

# 高純度結晶

## ～宇宙暗黒物質・二重 $\beta$ 崩壊探索用 無機シンチレーターの開発～

徳島大学・理工

伏見賢一

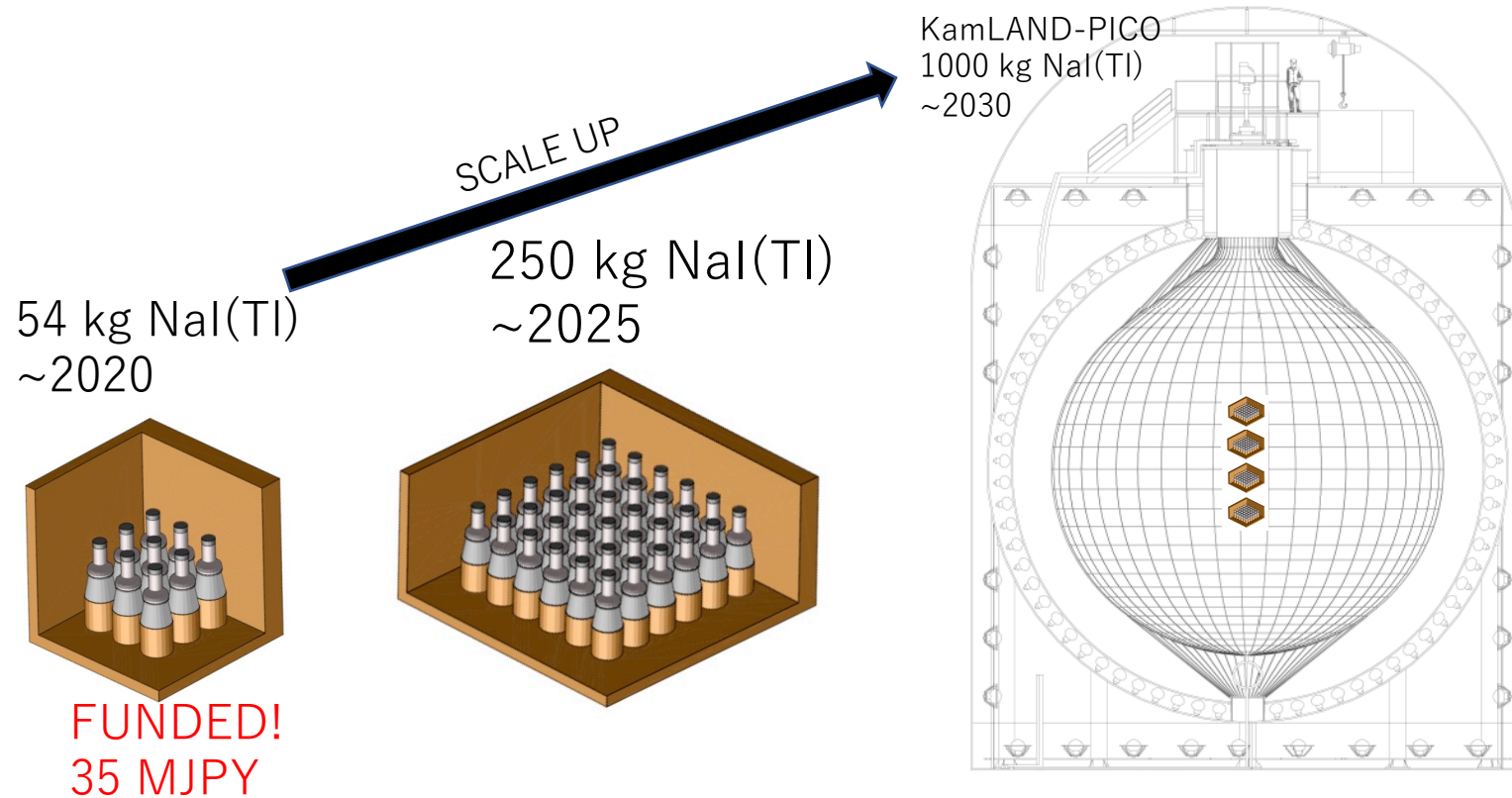
1. 目標とする純度
2. 原料の純化
3. 非水溶性材料の純化
4. 今後の計画

# 目標とする純度

- 宇宙暗黒物質 (DM)と二重ベータ崩壊(DBD)のバックグラウンド源
- DM・DBD共通
  - U系列
  - Th系列
  - いずれも1  $\mu\text{Bq}/\text{kg}$  以下を目指したい。
- DMの場合
  - 低エネルギー(<100 keVee) を見るのでDBDより核種が増える。
  - U系列、Th系列はDBDと同様
  - 特定のRI(Radioactive Impurity)
    - $^{210}\text{Pb}$
    - $^{40}\text{K}$
    - $^3\text{H}$
    - $^{14}\text{C}$
    - いずれも10  $\mu\text{Bq}/\text{kg}$ 以下が望ましい。

# PICOLON

- Pure Inorganic Crystal Observatory for Low-energy Neutr(al)ino



# NaI(Tl)純度の現状

	DAMA	COSINE	ANAIS	SABRE
natK (ppb)	<20	17~62	18~40	4
$^{232}\text{Th}$ ( $\mu\text{ Bq/kg}$ )	2~31	2.5~35	~4	0.8
$^{226}\text{Ra}$ ( $\mu\text{ Bq/kg}$ )	8.7~124	11~451	~ 10	5
$^{210}\text{Pb}$ ( $\mu\text{ Bq/kg}$ )	5-30	50~3800	740~3150	360

- U-chain: 1ppt= 12.3  $\mu\text{ Bq/kg}$
- Th-chain: 1ppt= 4.0  $\mu\text{ Bq/kg}$
- $^{210}\text{Pb}$ : 1ppt=2.5kBq/kg

DAMA: NIM A592 (2008) 297.

ANAIS, SABRE : Talk slides in TAUP2019.

COSINE: arXiv:2004.06287v1

# これまでの結晶純度

	Ingot26 (2015年製造)	Ingot37 (2016年製造)	Ingot53 (2017年製造)	Ingot68 (2018年製造)	Ingot71 (2018年製造)	Goal
結晶サイズ	3" $\phi$ $\times$ 3"	4" $\phi$ $\times$ 3"	5" $\phi$ $\times$ 4"	3" $\phi$ $\times$ 3"	3" $\phi$ $\times$ 3"	5" $\phi$ $\times$ 5"
natK (ppb)	2630	~120	~130	~120	~20	<20
<sup>232</sup> Th ( $\mu$ Bq/kg)	1.6 $\pm$ 2.0	15 $\pm$ 2	12 $\pm$ 3	12 $\pm$ 14	7 $\pm$ 1	<10
<sup>226</sup> Ra ( $\mu$ Bq/kg)	58 $\pm$ 4	73 $\pm$ 4	356 $\pm$ 13	93 $\pm$ 4	119 $\pm$ 10	<100
<sup>210</sup> Pb ( $\mu$ Bq/kg)	29.4 $\pm$ 6.6	~2300	7565	7519	1076	<50
NaIの純化方法	鉛吸着樹脂 + 陽イオン交換 樹脂	鉛吸着樹脂 + 陽イオン交換 樹脂	鉛吸着樹脂 + 陽イオン交換 樹脂	鉛吸着樹脂 + 陽イオン交換 樹脂	再結晶 $\times$ 2	-

- Ingot71は再結晶によってnatKの除去に成功
- Ingot26時の<sup>210</sup>Pb除去条件を再現できない  
→ 次の結晶の純化は 鉛吸着樹脂 + 再結晶  $\times$  2

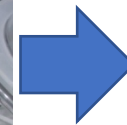
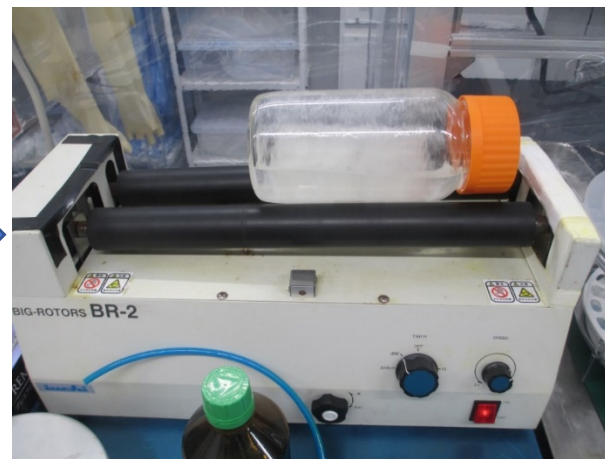
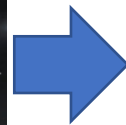
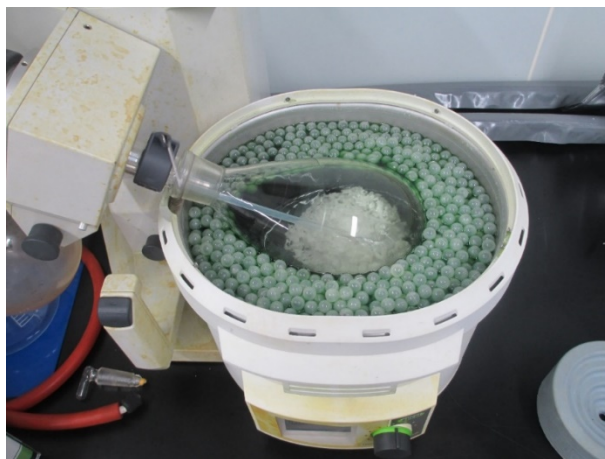
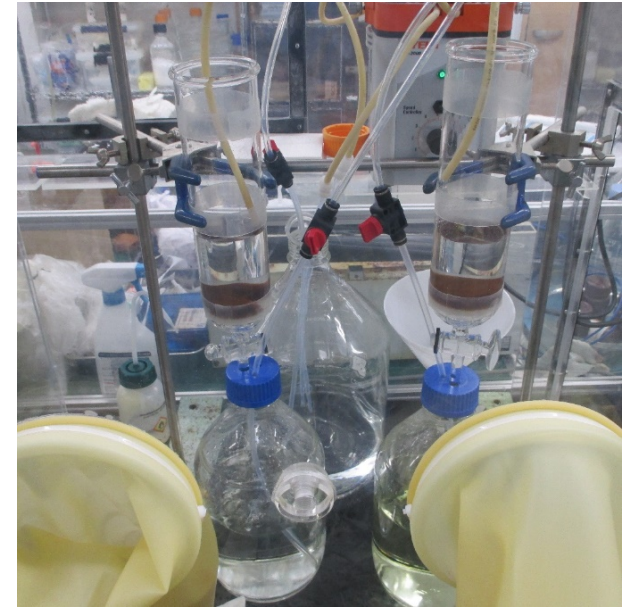
# Ingot76の純化

## ◆ 鉛吸着樹脂

NaI水溶液を樹脂に通液することで、Pbが吸着される。

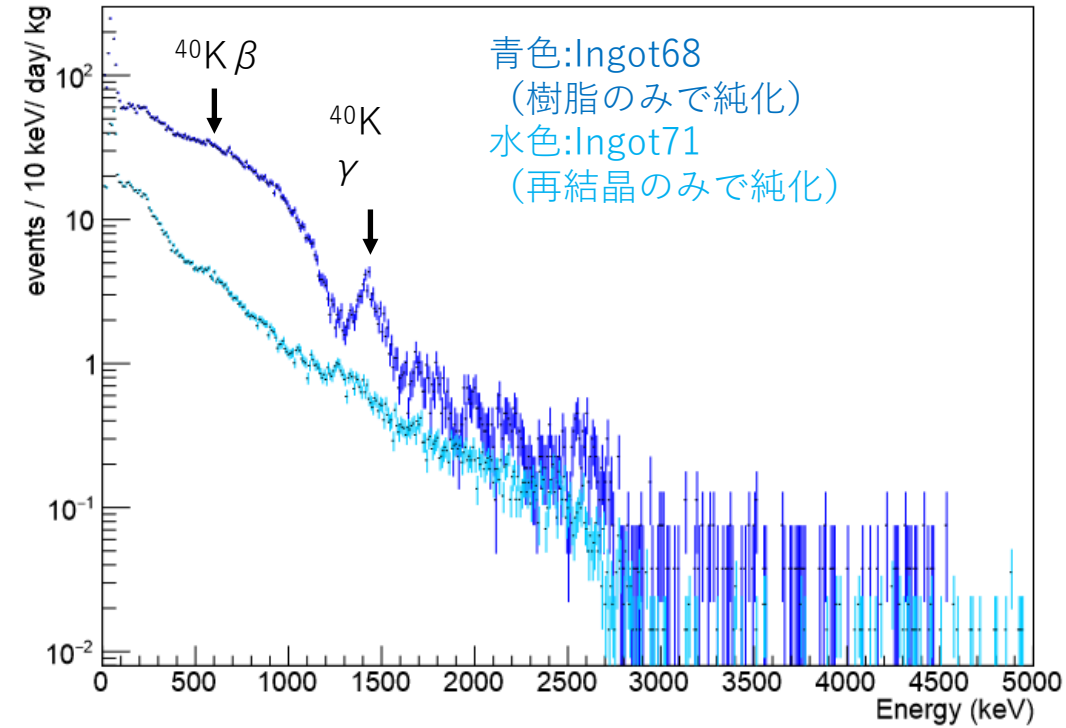
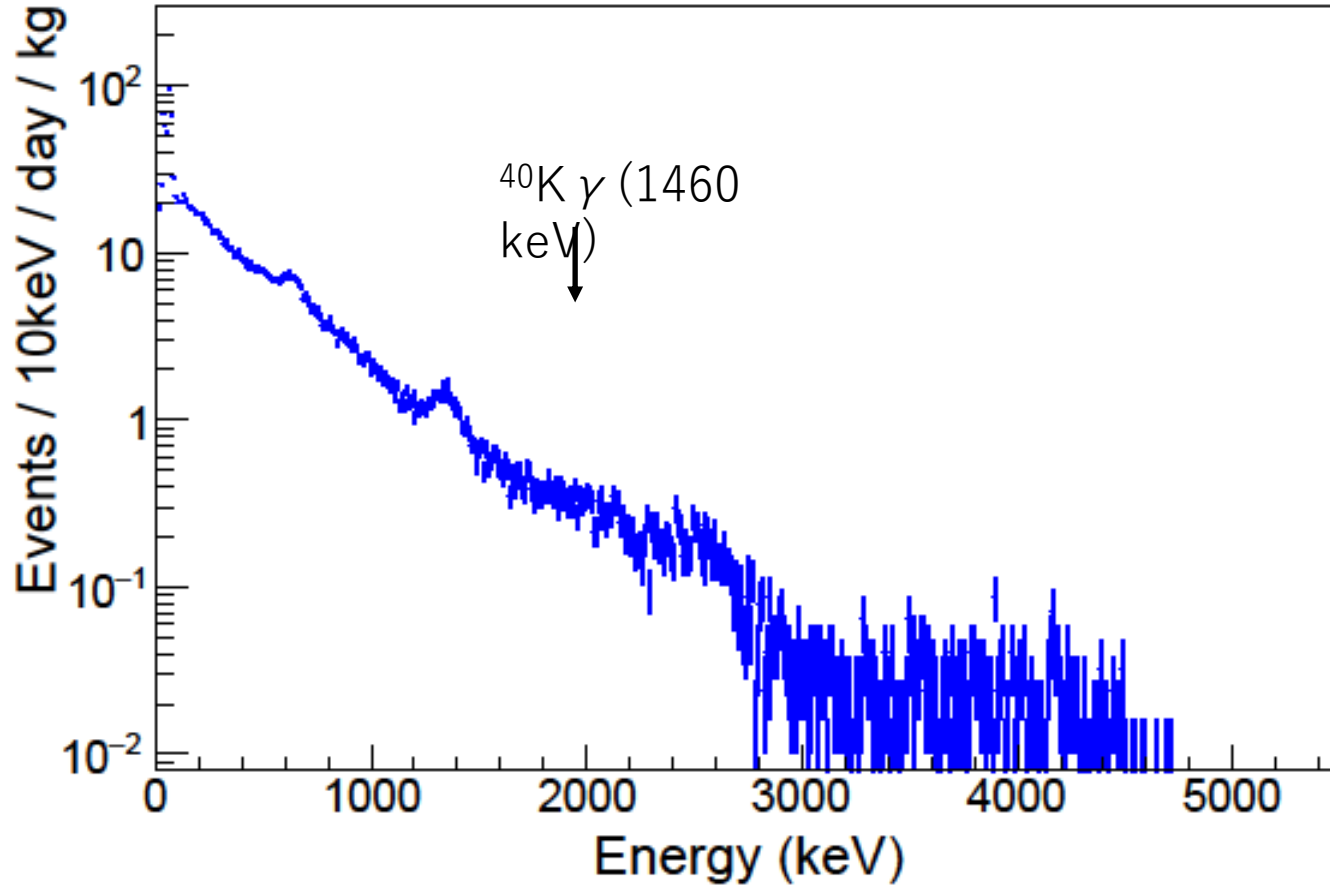
## ◆ 再結晶

1. NaIを100°Cで水に溶解して飽和溶液を作る。
2. 温度が下がるにつれてNaIは析出するのに対し、 $^{40}\text{K}$ は溶液中に残る。
3. 吸引ろ過を行うことで、結晶と溶液を分離する。

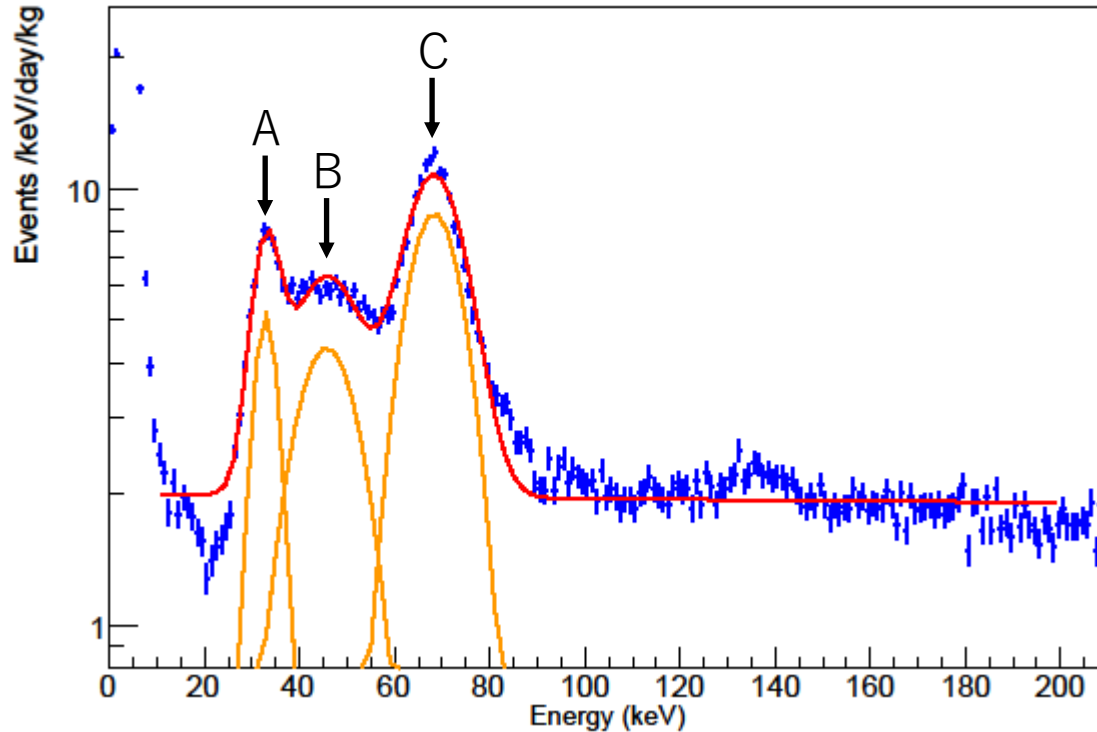


# Ingot76の $^{40}\text{K}$ 評価

Ingot76 (樹脂 + 再結晶で純化)



# Ingot76の $^{210}\text{Pb}$ 評価



低エネルギーにおけるピーク

A :  $^{126}\text{I}$  X線 (30 keV)

B :  $^{210}\text{Pb}$   $\gamma$  線 (46.5 keV)

C :  $^{125}\text{I}$   $\gamma$  線 + X線 (67 keV)

$^{126}\text{I}$ の半減期 = 13.11日

$^{125}\text{I}$ の半減期 = 59.4日

時間が経てば残るのは $^{210}\text{Pb}$ のみ

$$f(x) = \frac{N_{126\text{I}}}{\sqrt{2\pi}\sigma_{126\text{I}}} \exp\left\{-\frac{(x - \mu_{126\text{I}})^2}{2\sigma_{126\text{I}}^2}\right\} + \frac{N_{210\text{Pb}}}{\sqrt{2\pi}\sigma_{210\text{Pb}}} \exp\left\{-\frac{(x - \mu_{210\text{Pb}})^2}{2\sigma_{210\text{Pb}}^2}\right\} + \frac{N_{125\text{I}}}{\sqrt{2\pi}\sigma_{125\text{I}}} \exp\left\{-\frac{(x - \mu_{125\text{I}})^2}{2\sigma_{125\text{I}}^2}\right\} + a \exp(-bx)$$

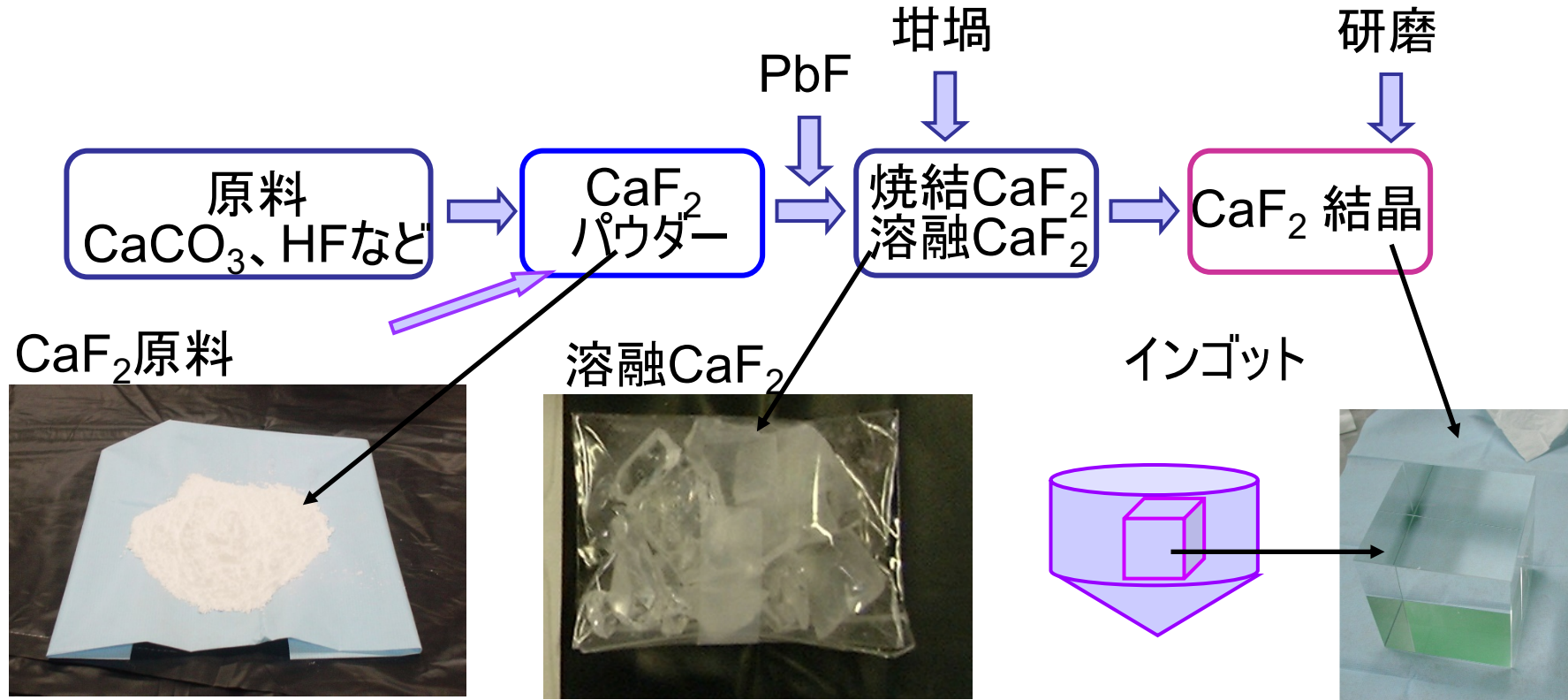
$$N_{210\text{Pb}} = 79.3 \pm 2.3 \text{ events/day/kg}$$

$$\Rightarrow ^{210}\text{Pb} \text{濃度} : 918 \pm 27 \mu\text{Bq/kg}$$



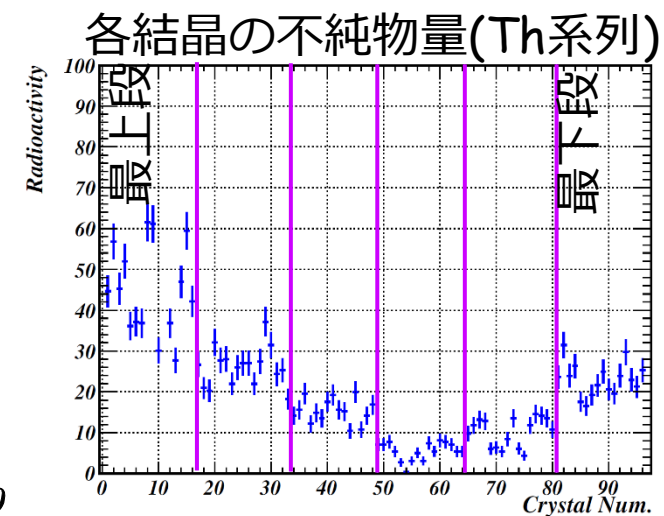
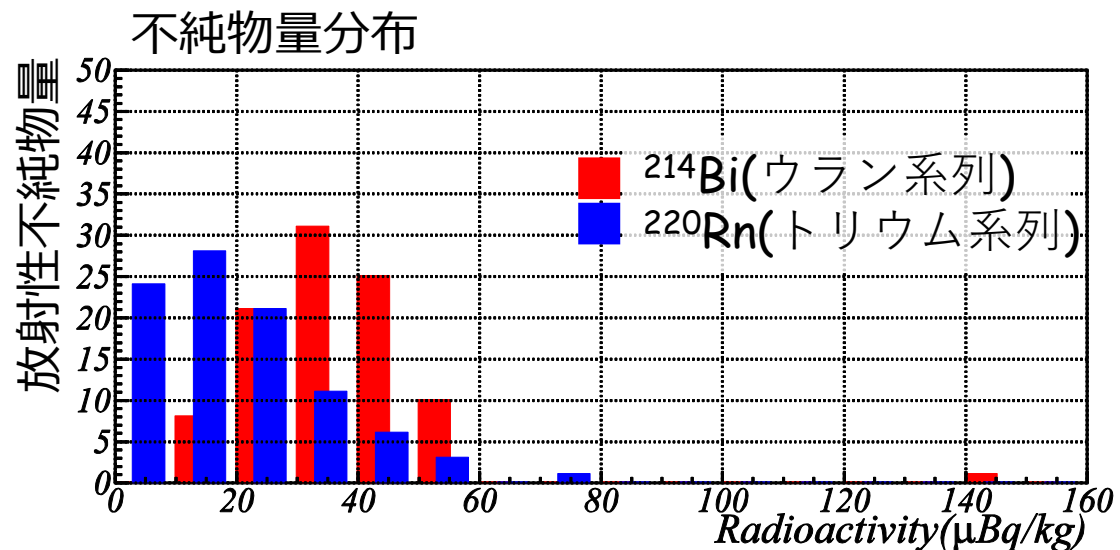
# CaF<sub>2</sub>（水に溶けない）結晶の製造過程

- 再結晶法、樹脂法は直接使えない。
- CaF<sub>2</sub>になる前の化合物を純化
  - CaCl<sub>2</sub>など。 CaF<sub>2</sub>にするときに混入しないか？

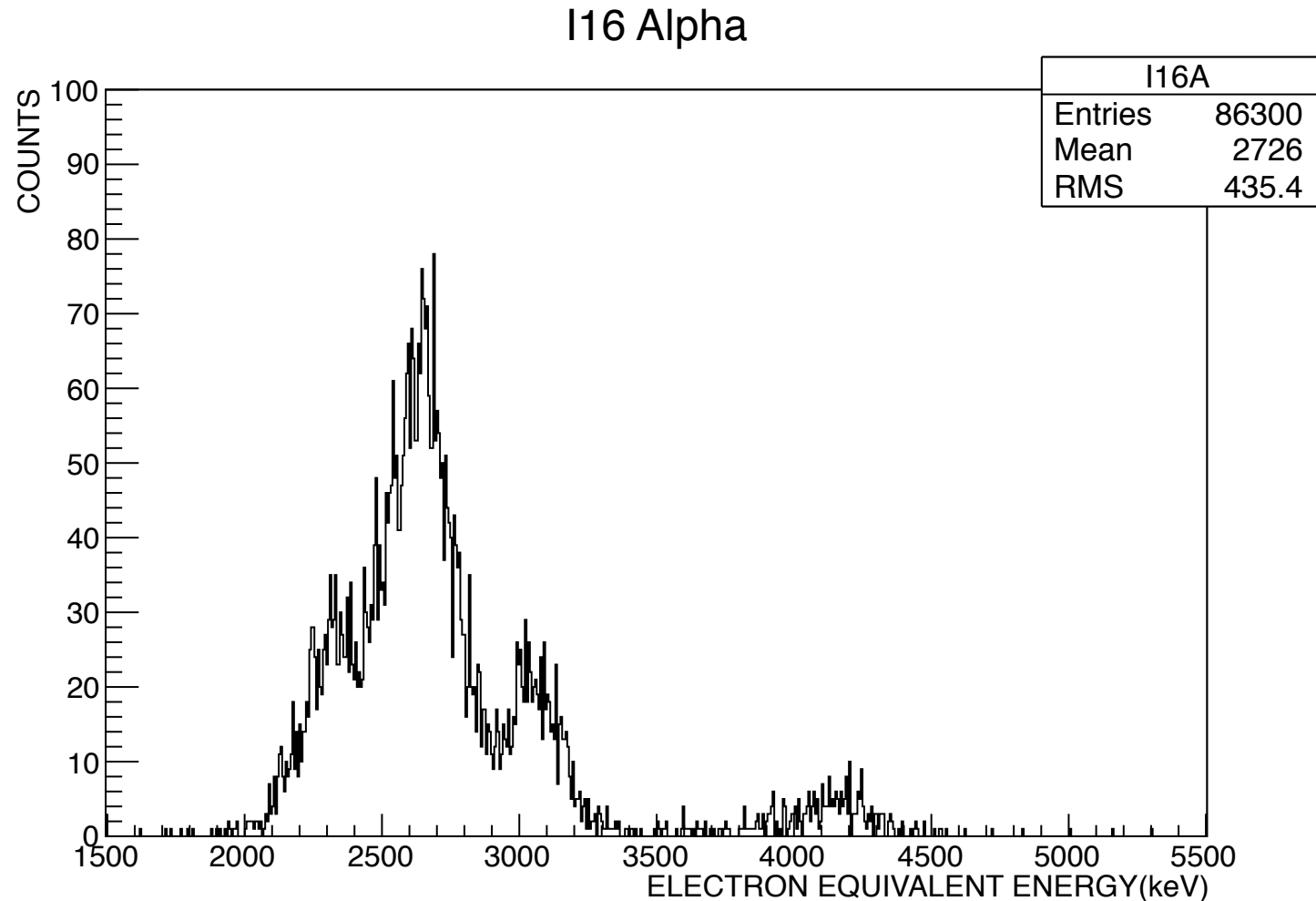


# 高純度結晶開発：CANDLES導入用

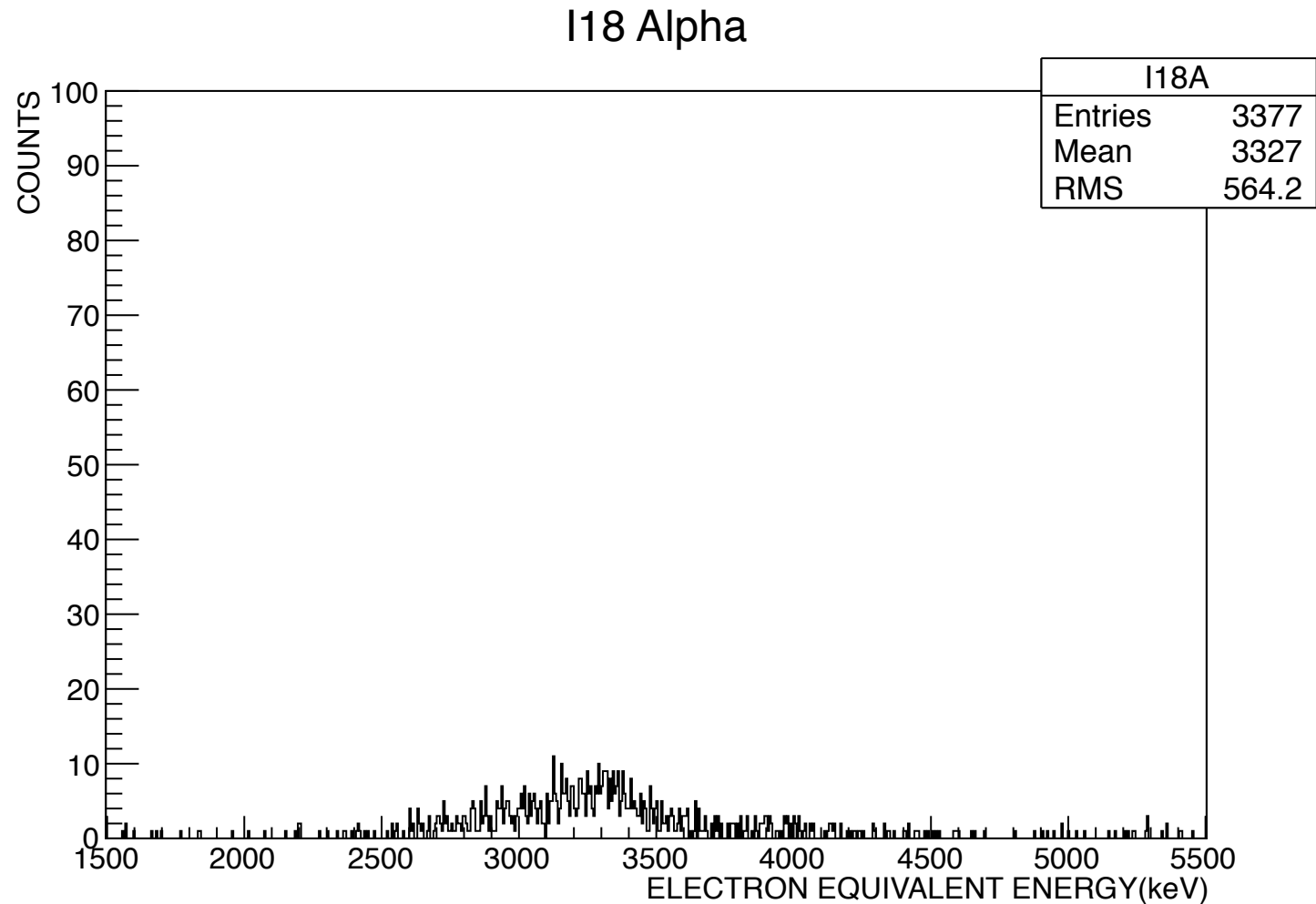
- 高純度：歩留まりよく結晶製造、 $\sim 15 \mu\text{Bq/kg}$ 
  - 不純物測定システム：実験室Aに設置
  - 高純度結晶の調達
  - 高純度 $\text{CaF}_2$ パウダー $\rightarrow$ 高純度 $\text{CaF}_2$ 結晶



通常のカーボン坩堝で結晶成長させたNaI(Tl)結晶  
U系列、Th系列のアルファ線が沢山見える。



坩堝を超高純度グラフィットに替えた。



# まとめと今後の展望

## ◆水溶性原料の場合

- ◆再結晶法でカリウム
- ◆樹脂法でRa,Pbイオン
- ◆樹脂を使用する場合には詳細な条件調整が必須
- ◆樹脂によって条件が異なるので再現性の確保に課題

## ◆非水溶性原料の場合

- ◆前段階の水溶性化合物を純化
- ◆原料を酸で洗浄
- ◆結晶成長の過程を高純度化

## ◆展望

