

暗黒物質直接探索における背景事象削減のための極低内部放射能原子核乾板の開発

Introduction:

陳夏姫, 中 竜^{AA*} (名古屋大学 理学研究科,^{AA*}東邦大学 理学部)

超微粒子原子核乾板(NIT)^[1]

従来の原子核乳剤:
バインダーとなるゼラチンにAgBr結晶が分散

・NIT元素組成

Element	Atomic fraction [%]
Ag	8.4
Br	Heavier DM 8.1
I	0.3
C	22.7
N	Main Target 5.2
O	12.5
H	Lighter, Boosted DM 42.8

・標的に重い原子核と軽い原子核を含む
→幅広い質量帯の暗黒物質探索に利用可能

・NIT密度: **3.2 g/cm³**
→ガス検出器より3桁大きい

・飛跡を検出器内に3次元情報として保存可能

・ゼラチンにAgBrが分散した検出器
・AgBr結晶一つ一つがセンサーの役割
・世界最高の空間分解能をもつ

乳剤製造装置 概略図

AgNO₃ solution, NaBr solution, バインダー, gelatin solution, AgNO₃+NaBr→AgBr+NaNO₃

高電粒子, 現像液, 現像, 処理, 241Am α-ray, 10 μm

ゼラチン, AgBr, 高過飽和状態でAgBrの種結晶が形成, ゼラチンがAgBrに吸着しながら結晶が成長する, ゼラチンが保護コロイドとして働きAgBrが分散した原子核乳剤ができる

keVオーダーの荷電粒子による飛跡長:
・固体検出器: ~10² nm
・ガス検出器: ~10⁵ nm

NEWSdm実験

・イタリア・グランサッソ国立研究所地下1000mにて赤道儀を用いたWIMPs直接探索実験を遂行
・地下環境で原子核乾板の作製から現像処理まで可能

Gran Sasso Underground Laboratory (LNGS)

1000m

飛程: 約100nm

10 GeV WIMPs疑似信号, Carbon30 keV ion 飛程 約100nm

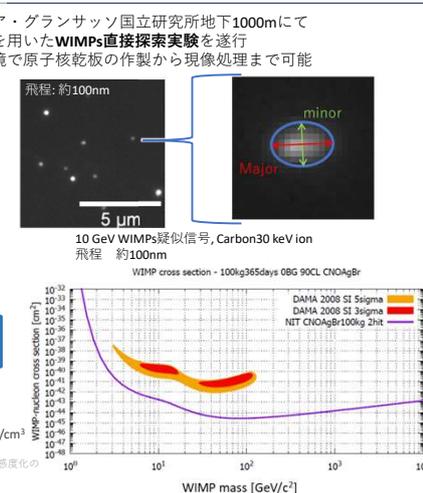
WIMPsシグナル数

NIT中におけるWIMP s 反応数:
4.2 /kg/year

仮定:
WIMPs速度: 300 km/s
WIMPs質量: 10 GeV/c²
反応断面積: DAMA領域 WIMPs密度: 0.4 GeV/cm³
σ=10⁻³⁸ cm²

乳剤密度(N): 3.1 g/cm³
標的原子核: C,N,O

表: 熊本県立(2020)原子核乾板を用いた暗黒物質方向探索実験高感度化の研究, 名古屋大学大学院理学部理学専攻博士論文



背景事象

地下環境下、シールド有、結晶感度無視

・放射線による主なバックグラウンド

alpha-ray	Expected
U and Th chain	<10
neutron	
cosmogenic neutron	0.1
environment neutrons	<0.02
electron	
environmental gamma	3.77 × 10 ⁸
¹⁴ C beta	7 × 10 ⁸ [/kg/year]

・非物理的バックグラウンド ・ダスト、現像ノイズ

原子核乾板内部での¹⁴C崩壊数

・NIT中に含まれる放射性同位元素:[mBq/kg]

²³⁸ U	²³² Th	⁴⁰ K	^{108m} Ag	¹⁴ C
42	7-22	40-130	50	24000

¹⁴C → ¹⁴N + e⁻: β線最大エネルギー: 156 keV

原子核乾板に用いるゼラチン由来

¹⁴Cは原子核乾板に含有されるため
地下環境、シールドでの低減不可な支配的な背景事象源

ゼラチンとPVAの相違点

AMS法による測定下限値未達 **< 2900 /kg/day**

合成高分子の利用による背景事象削減が可能

ゼラチン (2.00 ± 0.04) × 10⁶ /kg/day
3桁以上減少

ゼラチンを合成高分子の一種であるPVA (ポリビニルアルコール) に置換

AMS法による測定下限値未達 < 2900 /kg/day

合成高分子の利用による背景事象削減が可能

極低内部放射能原子核乾板の開発

先行研究:PVAを用いた写真乳剤

E. Fujii, H. Fujii, J. Demers and P. Demers: Can. J. Phys. 37 1645 他

・写真化学分野

ゼラチン 組成が複雑
~1970年
・品質が一定ではなかった
・品質が高くなかった
→写真フィルムの感度に影響

合成高分子の利用
・商業的に一定の品質を保つため
・組成が単純、科学的に純粋
・物理的性質がゼラチンと類似
・安価
産業的に大規模な商品化はされなかった

ゼラチンとPVAの相違点

バインダーの役割: コロイド支持体としてAgBr結晶を分散させ、粒子を成長させる

<ゼラチン>
ハンドリング: 可逆なゾル-ゲル変化、常温で固化
・膨潤性が良く現像処理が容易

結晶生成: 結晶の分散能力が良い
・結晶を成長させる

AgBr結晶にLoop and Bridgeの形で吸着
→隙間が多いため銀イオンが成長中の結晶に入り込み結晶が成長する(オストワルト成熟)

<PVA>
ハンドリング: 常温で固化しない
・膨潤性に欠ける

結晶生成: 結晶の分散能力がゼラチンに劣る
・結晶の成長を強く抑制する
・粗大な結晶ができる傾向が強い

・ポリ酢酸ビニルの酢酸基を水酸基(OH)に置き換え作製される

結晶サイズと感度

結晶感度: 光学顕微鏡光学顕微鏡で観察可能なグレイン数
単位体積円柱中に存在する結晶数

各結晶サイズでの結晶感度を考慮したPVA乳剤中1073 μm中でのα線に感度を持つグレイン数

放射線が貫通した結晶すべてが反応、現像され観察可能とは限らない
・PVA乳剤の結晶サイズ決定のため結晶感度の推定、結晶サイズの妥当性の評価が必要

Sensitivity of alpha-ray of NIT
S(x) = 0.084x + 0.035
結晶感度: S(x)
結晶サイズ: x

光学顕微鏡で観察可能な現像銀数(グレイン数)

1073μm中でのα線に感度を持つ結晶分布

α-ray: PVA Emulsion
optical microscope image, ²⁴¹Am α-ray

測定グレイン数 計 825 個
測定長さ 計 1072.65 μm

前提:
・20nm未満の銀粒子は光学コントラストが低下し観測が難しいことが知られている
→感度をもつ結晶サイズは20nm以上
→20nm未満の結晶: 全体の30.5%

・ゼラチン中とAgBr結晶感度が同様の仮定
→20nm~40nm結晶: 70%がα線への感度をもたない
→照射された放射線に対するシグナルの検出効率を高めるには結晶サイズが大きいほうが良い

20nm未満の結晶は不要
結晶サイズを大きくする必要

PVAを用いた写真乳剤開発

引用: 写真乳剤における合成樹脂の役割 藤井英子, 聖心女子大学学術リポジトリ

SEM画像

写真化学の開発

素粒子検出器へ応用

素粒子飛跡検出器としての要求

・原子核乾板としてのハンドリング、使用が可能
・放射線に十分に感度がある
・結晶サイズがある程度単分散
・数百nmを超えるサイズの粗大粒子を含まないこと
・非物理的ノイズレベルが高くない

→PVA乳剤中での放射線感度の推定

結晶サイズを大きくする手法の検討

ゼラチン中:
・添加時の温度
・添加時間
・バインダーへの溶剤の添加
により結晶サイズを容易に変更可能

PVA乳剤で同様の手法をとり結晶サイズ変化を検証

・添加温度: 60°C → 70°C
・添加時間: 5分 → 10分
・溶剤: 無 → 有

溶剤: 小さい結晶を溶解し大きい結晶の成長を促進する

分光光度計を用いたサイズ推定
縦軸: 吸光度 Abs = log₁₀(I₀/I)
横軸: 波長

乳剤のスペクトルから各バインダーのスペクトルを引く
→AgBr結晶のスペクトル

右図: ゼラチン中での結晶スペクトル結晶サイズによりピーク位置が変化する

ゼラチンと同じ手法では結晶成長を促進しない

溶剤添加による変化がないことから溶剤が入る隙間がないほどAgBr結晶へのPVAの吸着が強い
→PVAのOH基による可能性

→結晶サイズを大きくする方向性

Prospect: 結晶サイズを大きくする手法 → OH基を減らす, ゼラチンのように隙間のある吸着

- ・pH を変える pH6.8 → 酸性
- ・OH基への置換が少ないPVAの利用 → コポリマー (2種以上のポリマーの重合体) の利用
- ・PVA → 凝析度の低い他の高分子の利用 AgBr結晶サイズ 20 nm以上のPVA乳剤の作製 → 放射線に対する感度評価

Summary:

- ・NEWSdm実験において地下環境、シールド内で低減不可な背景事象: 原子核乾板由来の¹⁴C
- ・¹⁴C: 原子核乾板のゼラチン由来
→ ¹⁴C量が劇的に少ない合成高分子の一種であるPVAに置換
- ・AMS法による¹⁴C量の測定から、PVAの¹⁴C量は測定下限値未達 (¹⁴C崩壊数: < 2900 /kg/day)
→PVAはゼラチン ((2.00 ± 0.04) × 10⁶ /kg/day) より3桁以上低い崩壊数
- ・PVAを用いた原子核乾板の作製
→ α線に対する結晶感度、結晶サイズの妥当性の評価の評価
→結晶サイズを大きくする方向性