



二重ベータ崩壊探索実験のための 無機結晶純化について

梅原さおり(代理)

大阪大学核物理研究センター
umehara@rcnp.osaka-u.ac.jp

伏見賢一

徳島大学大学院理工学研究部

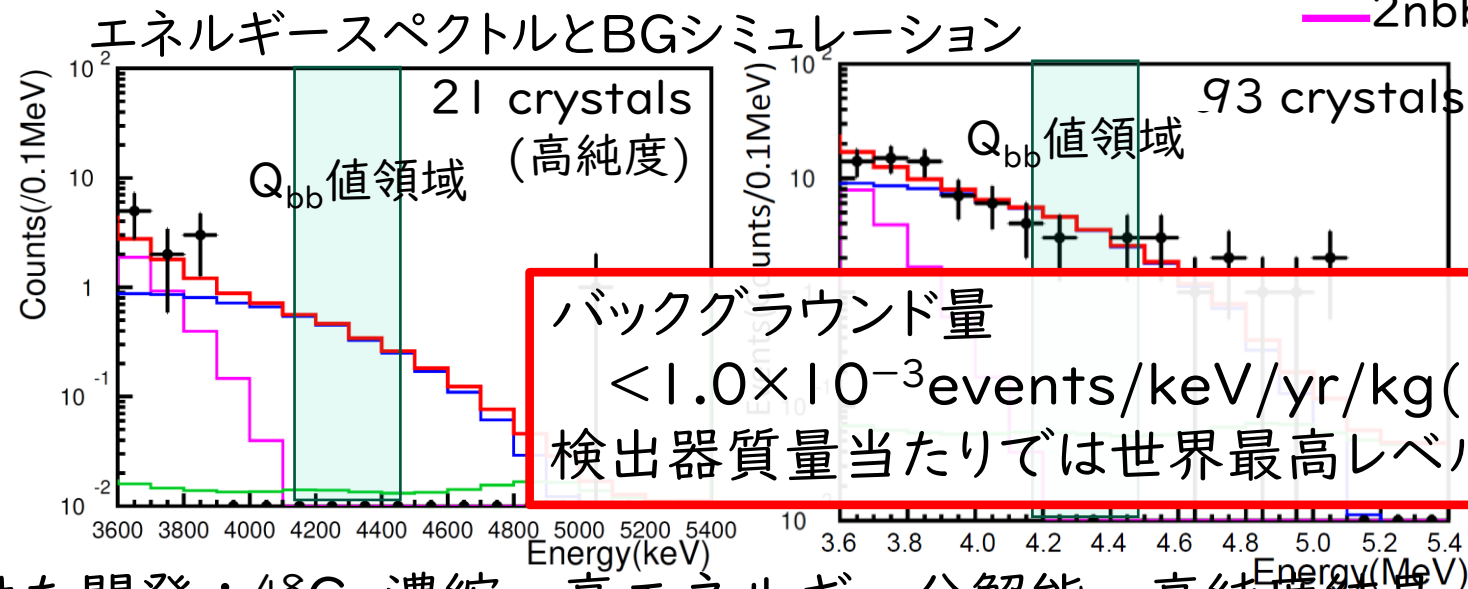
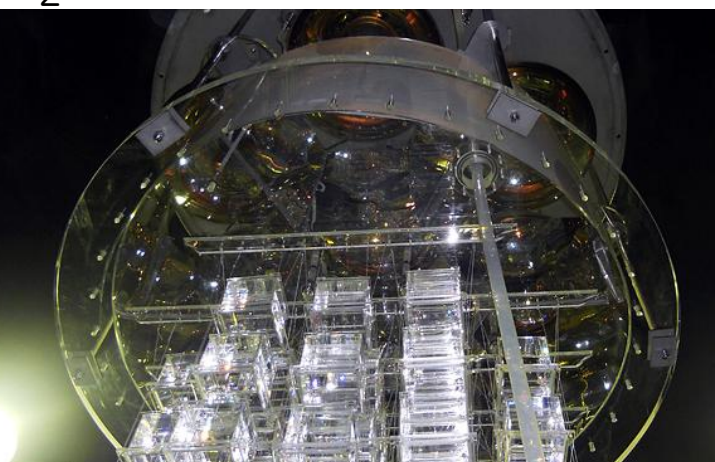


A02班： ^{48}Ca の二重ベータ崩壊

□ CANDLES

■ CaF_2 を用いた ^{48}Ca の二重ベータ崩壊探索実験

CaF_2 を用いた複合型検出器



■ 次世代装置に向けた開発： ^{48}Ca 濃縮、高エネルギー分解能、高純度結晶

■ 次世代二重ベータ崩壊測定装置の開発

■ ^{48}Ca 濃縮 : 谷川秀憲 (大阪大学)

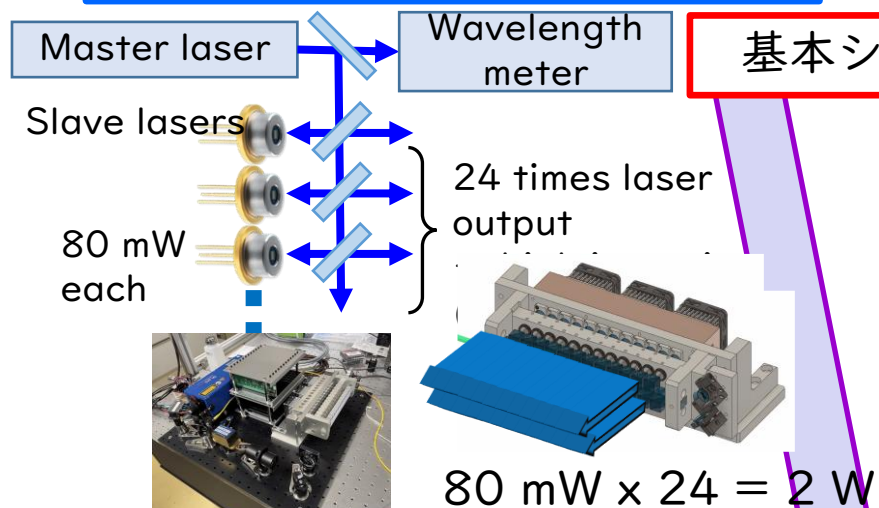
■ CaF_2 蛍光熱量検出器 : 西川 隆博、堤智、松本朋也 (大阪大学)

■ 高純度 CaF_2 結晶 : 西島渉悟 (徳島大学)

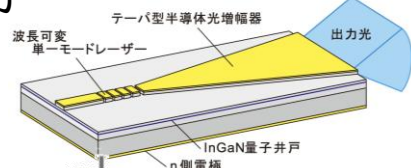
48Ca濃縮：レーザー濃縮

大阪大学RCNP、福井大学
京都大学化研、レーザー総研
大阪大学大学院工学研究科

集積高出力レーザーシステム



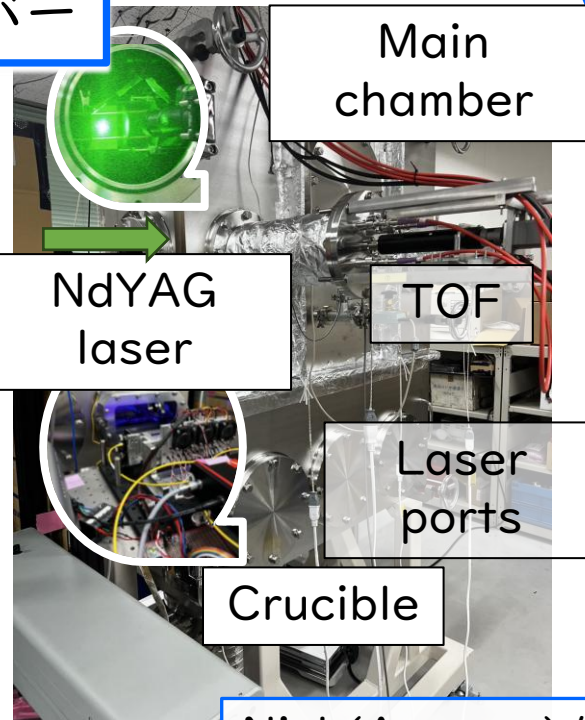
高出力レーザー素子



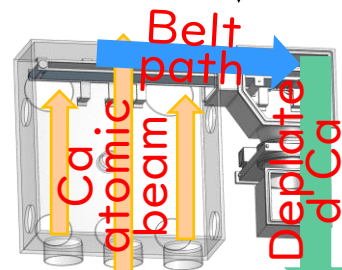
メインチェンバー

基本システムの構築

現在



Nick(Anawat)が若手研究会発表予定だったが同日開催の同位体科学会で発表中



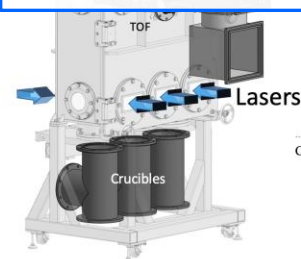
供給・回収システム
Nick資料より

P23

CANDLES実験のための⁴⁸Ca同位体濃縮の研究
大強度Deflection Laserの作成に向けた
FP-LDに対する注入同期の評価
谷川秀憲(大阪大学)

ラビ振動によるレーザー再利用システム
→名古屋大学でテスト実験

生産量の強化

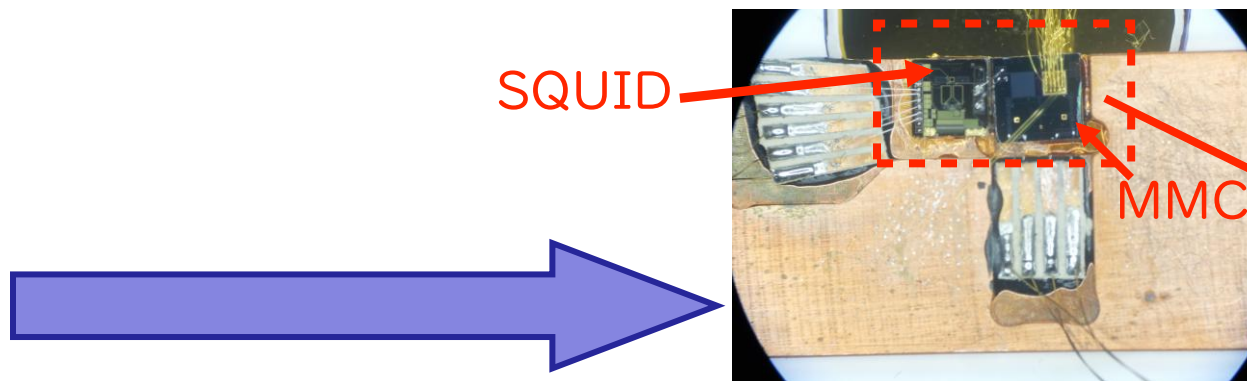
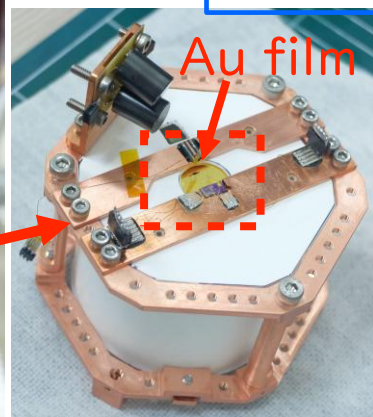
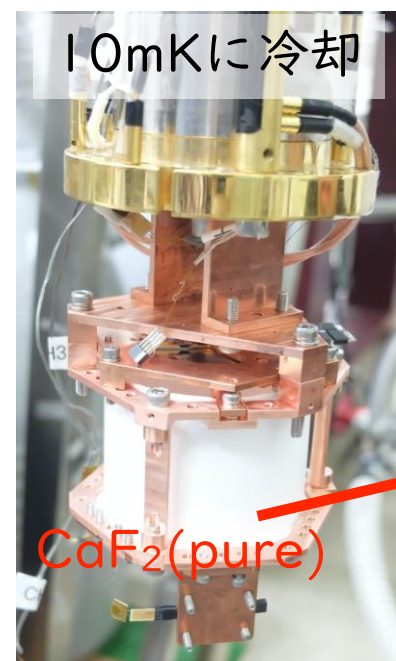
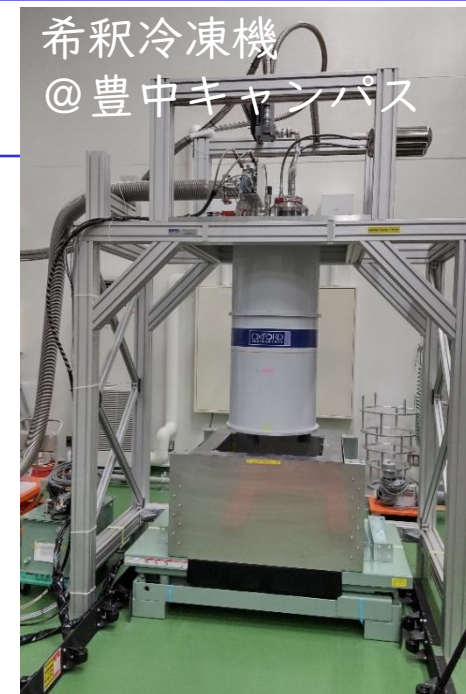


CaF₂ 蛍光熱量検出器

希釈冷凍機
@ 豊中キャンパス

- CaF₂ 蛍光熱量検出器開発
 - 韓国IBSの実験グループと共同開発中
 - 阪大 + AMoRE 実験サブグループ
- 韓国IBSセットアップ → 阪大豊中で開発中

P24	CaF ₂ 蛍光熱量計に向けたセンサー 西川隆博(大阪大学)
P17	暗黒物質探索のためのCaF ₂ 蛍光熱量検出器の開発 松本朋也(大阪大学)
P18	暗黒物質探索のためのCaF ₂ 蛍光熱量計の開発 堤 智(大阪大学)



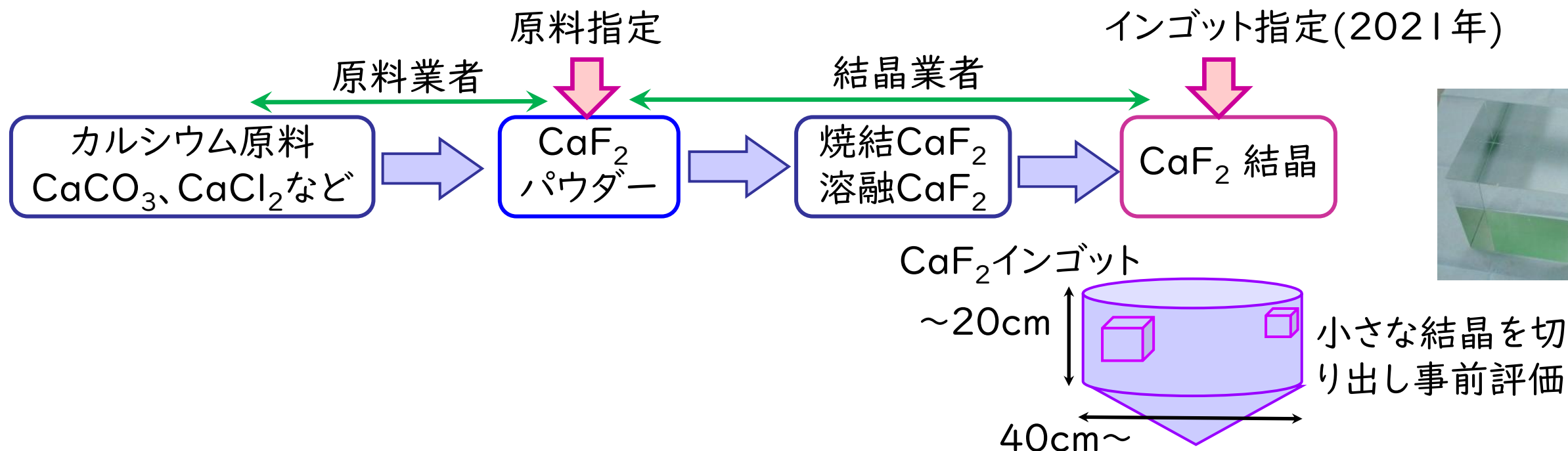
CaF₂高純度結晶製造

□ 高純度結晶製造：ステップ1

■ CaF₂業者の事情

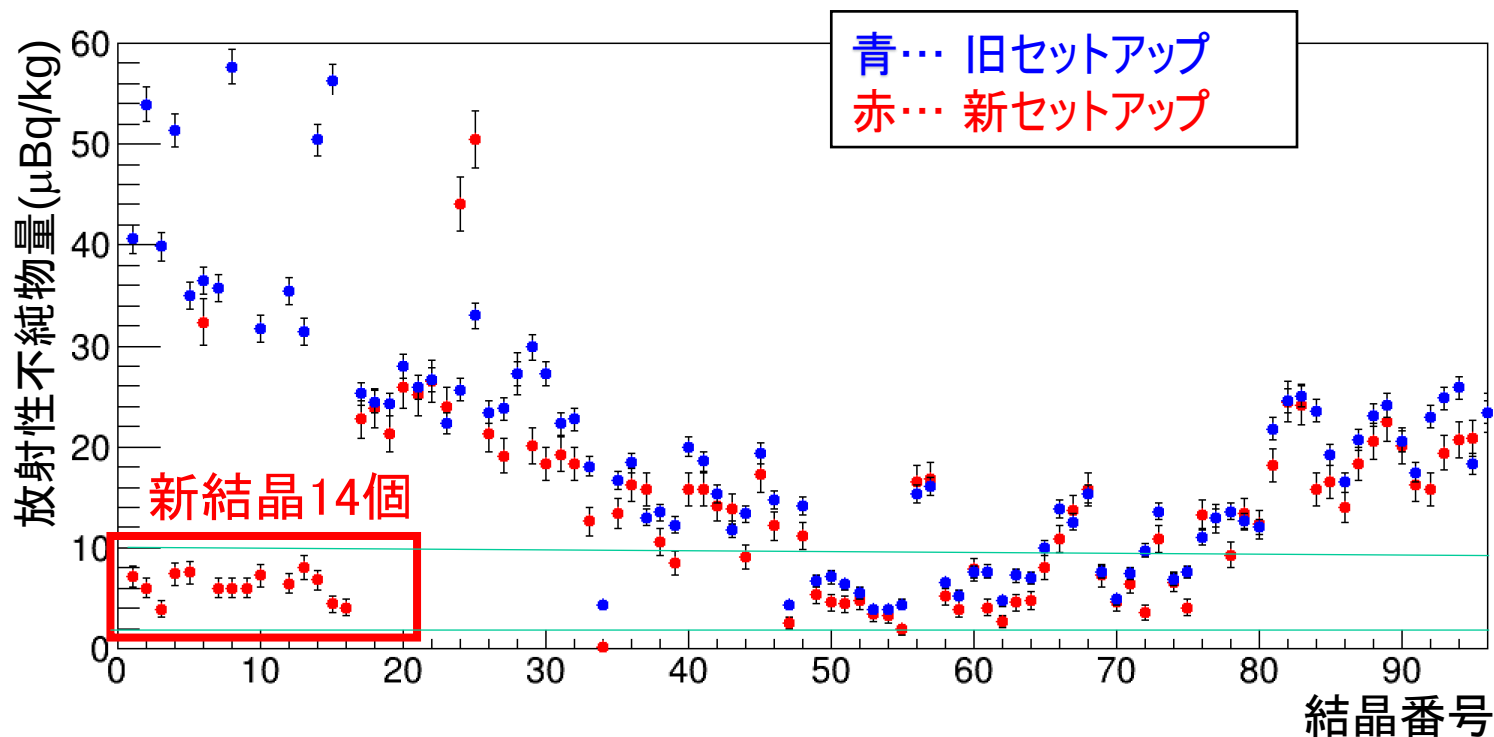
- シンチレータとしての製造量 < 光学結晶としての製造量
- 業者と連携して進めた場合、そのまま大量生産が可能

■ 原料指定



現在のCaF₂結晶の不純物量

□ 96結晶を購入、2021年に14個更新



■ 96結晶購入時

■ 業者を指定

■ 原料となるCaF₂粉末を指定

■ mBq/kg → ~30 μBq/kgに高純度化

■ 14個更新時

■ インゴット指定

■ ~60 μBq/kg → ~10 μBq/kg

■ 10 μBq/kgレベルはインゴット指定で達成可能

■ 濃縮⁴⁸Caからの結晶製造で数μBq/kgレベルを目指す

純化の課題

□ 課題

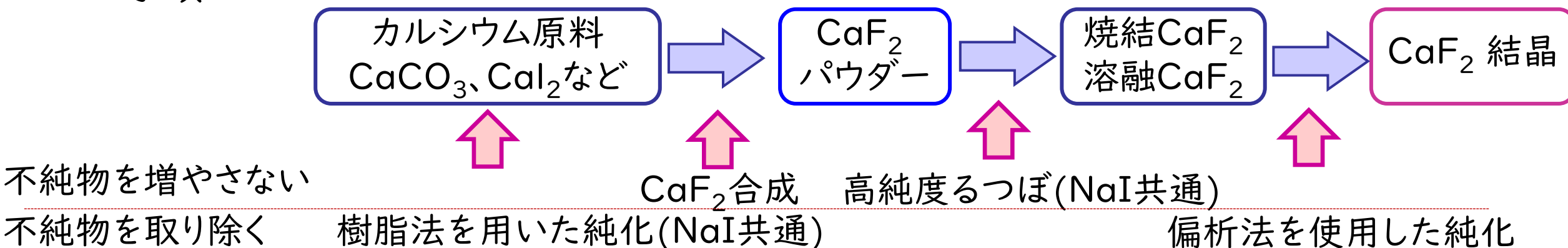
- 純化に際して ^{48}Ca を無駄にできない
- CaF_2 は水に溶けない。酸にもあまり溶けない。

□ 必要な開発

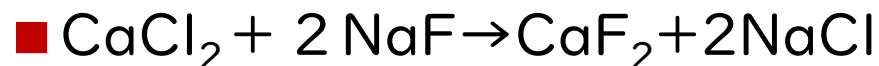
- 不純物を増やさない手法はもちろん必要
- カルシウム原料から不純物を取り除く高純度化手法

高純度CaF₂手順

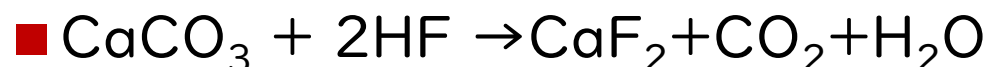
□ 手順



■ 合成手法例



■ CaCl₂とNaFの純度向上。CaF₂の純度評価。



■ CaCO₃の純度向上。CaF₂の純度評価。

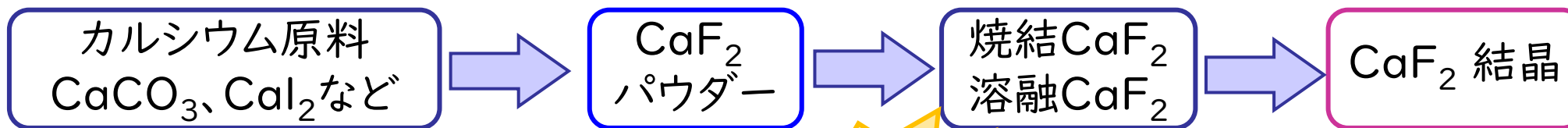
□ 確認すべき事

■ 各工程で純度を正確に測定できること

■ 大量生産のための効率的な合成方法を確立すること

分析手法

□ 結晶製造手順



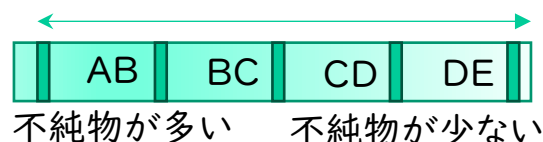
$^{48}\text{CaF}_2$ 結晶製造に向けた
新規導入

樹脂法(再純化が可能)



ウラン・トリウム吸着樹脂
塩化カルシウム水溶液等

偏析法(再純化が可能)



必要分析手法

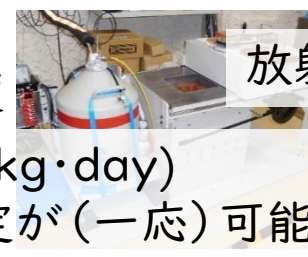
新規導入



ICP-MS分析
ppt感度

サンプル量が少なくても
OKで測定が速い

Ge検出器測定
数mBq/kg感度



放射能測定

時間はかかる(30kg・day)
各放射能核の測定が(一応)可能
で非破壊測定



結晶内部 α 線測定
数 $\mu\text{Bq/kg}$ 感度

時間はかかる(30kg・day)
が非破壊測定

偏析効果による高純度化

□ 偏析効果による不純物の偏り

■ 5cm Φ x 5cm の結晶で評価

結晶内での不純物の分布

α 線分析: $< 1 \text{ mBq(U)}$

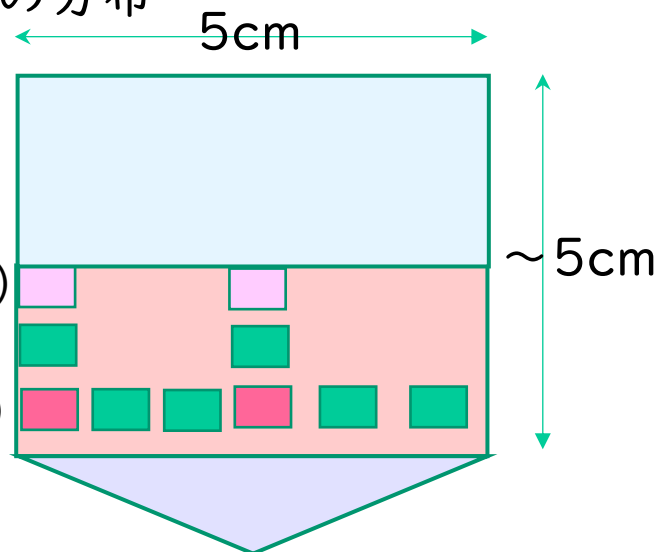
$\sim 0.5 \sim \text{ppb} (\sim 5 \sim \text{mBq(U)})$

α 線分析: $\sim 4 \sim \text{mBq(U)}$

$\sim 1 \sim \text{ppb} (\sim 10 \sim \text{mBq(U)})$

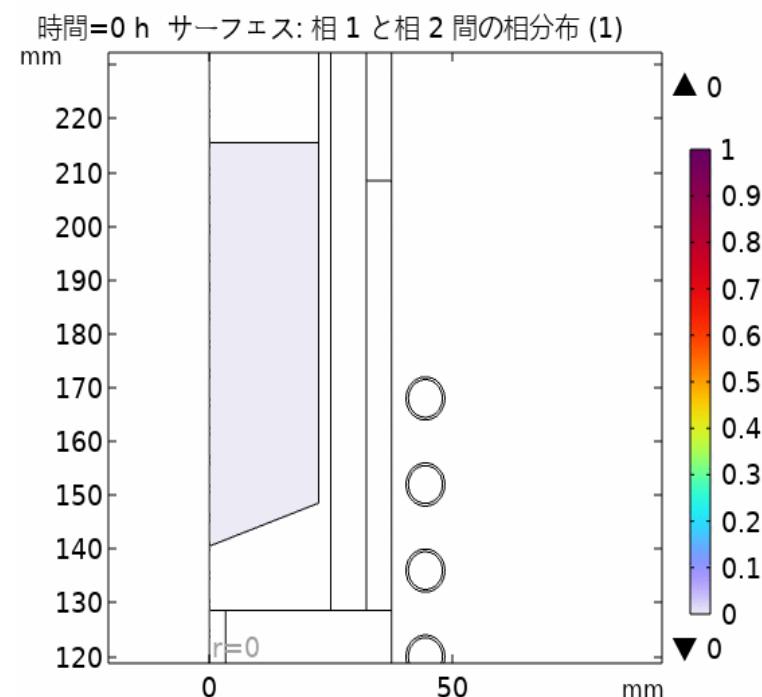
α 線分析: $< 2 \text{ mBq(U)}$

参考: CaF_2 原料の不純物量 $< 5 \text{ mBq(U)}$



結晶溶解と固化の様子
(温度シミュレーション)

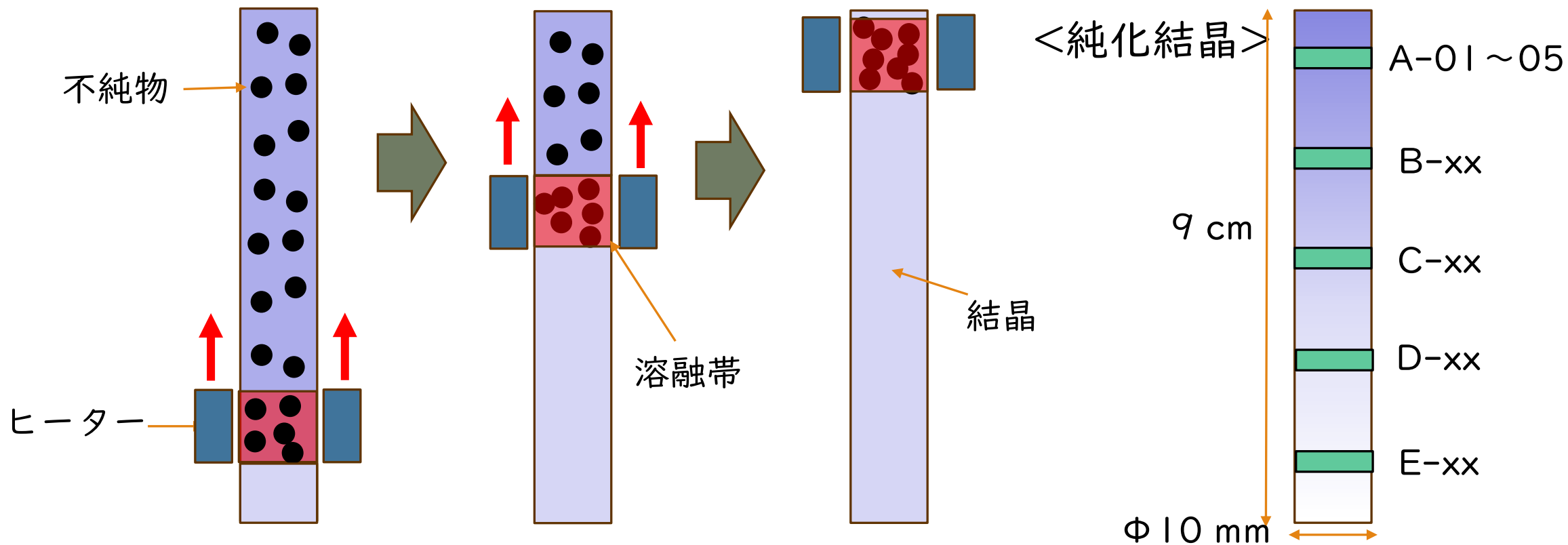
黒澤氏(東北大
金研)資料より



- ・最後に固化する部分と不純物濃度が高い部分が一致
- ・より偏析効果を強調し、不純物分布を細かく分析する必要がある

偏析効果による高純度化

□ 結晶形状を変更：ゾーンメルト法（帯融精製法）



P4 CaF_2 高純度化に向けた帯融精製法によるU,Th偏析の分析
西島渉悟(徳島大学)

分析手法は確立。だが、

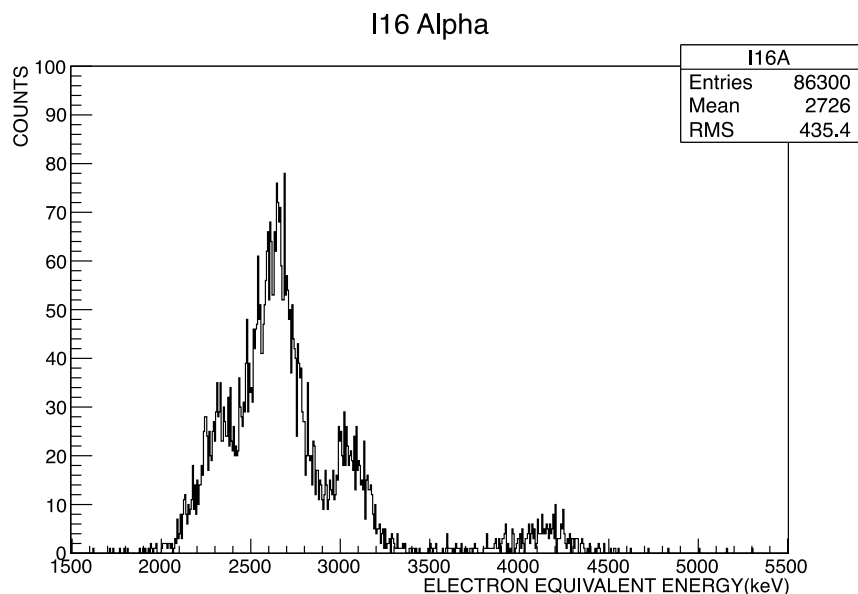
CaF_2 結晶の不純物量 15~180mBq(U)、5~20mBq(Th)

参考： CaF_2 原料の不純物量 <5mBq(U、Th)

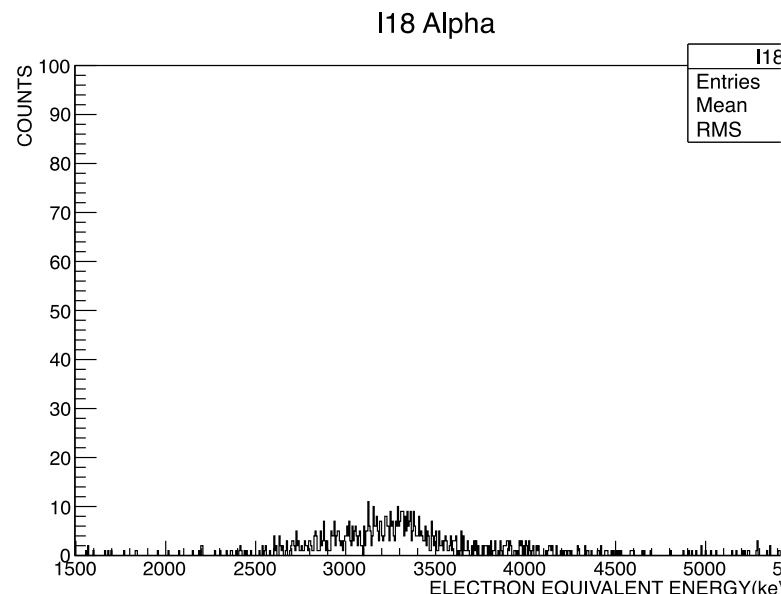
結晶合成時の坩堝も大事！

■ 今回、長尺（表面積大）坩堝を使ったため特に影響が大きかった？

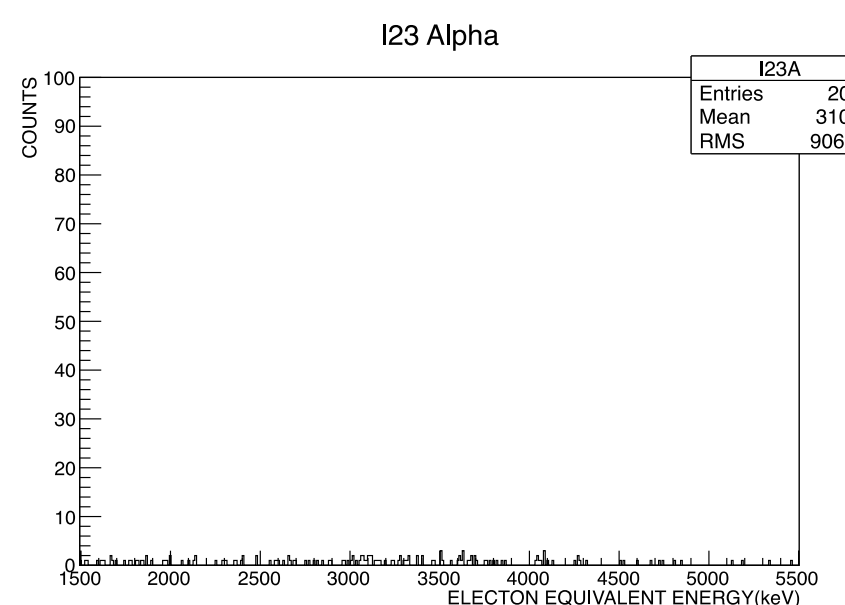
□ NaI結晶製造時：坩堝の不純物量の影響



Normal NaI(Tl) : A few mBq of U,Th



坩堝を綺麗にしました

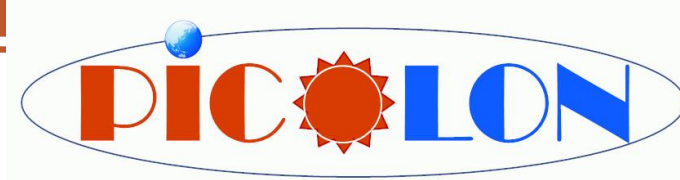


坩堝を更に綺麗にしました
坩堝からの汚染がなくなった

□ 現在、NaI結晶用高純度坩堝を参考にCaF₂用坩堝（蓋つき）を作成中

■ ただしCaF₂の融点1420℃、NaIの融点660℃

まとめ



@PicolonF

- ^{48}Ca の二重ベータ崩壊装置開発
 - 濃縮、蛍光熱量検出器
 - 高純度結晶
- NaI高純度化技術も導入しつつ CaF_2 の純度向上
 - 将来の濃縮&大型化を考慮して計画
 - CaF_2 の安全かつ高効率な合成法の確認
 - 結晶偏析による純度向上の確認

