

方向感度を持つ暗黒物質探索実験 NEWSdm と 超微粒子原子核乾板技術

東邦大学 素粒子物理学教室

中 竜大

tatsuhiko.naka@sci.toho-u.ac.jp

2019 年 (令和元年) 5 月 11 日

1 はじめに

1.1 概要

宇宙における暗黒物質問題は、言わずと知れた自然科学における最重要課題の一つであり、宇宙の構造形成において主要な役割を担っている未知の重力源である。同時に、素粒子標準模型を超えた新たな素粒子である可能性が高いことから、その正体について誰しもが知りたいと思っている(はずである)。

暗黒物質(dark matter)の歴史は古く、1932 年の J. Ort[1]、1937 年の F. Zwicky[2][3]によってすでに dark matter という言葉が使われ、銀河(団)内に大量の未知の重力源が存在していることが指摘されている。現在の暗黒物質問題の議論は、1970 年代の Vera Rubin の銀河の回転速度のアノマリー[4]から続いていると理解しているが、近年の宇宙観測によって、さまざまなスケールで暗黒物質が存在する証拠が得られている。ただし、我々が暗黒物質の直接検出を行う場合、その対象は、天の川銀河に存在する暗黒物質である。これは、すでに回転速度の測定によってその存在量が理解されており、約 $0.4\text{GeV}/\text{cm}^3$ のエネルギー密度を持つ[5][6]。例えば、暗黒物質の質量が原子質量程度だとすると、地球上でのフラックスは $10^5\text{cm}^2/\text{sec}$ に相当する。ちなみに、宇宙全体の暗黒物質のエネルギー密度を平均化すると、宇宙の臨界密度 $5\text{keV}/\text{cm}^3$ 、CMB の観測から Ω_{DM} が 0.27 とすると $1.35\text{keV}/\text{cm}^3$ であり、天の川銀河内の暗黒物質は、宇宙全体の平均に対して約 20 万倍濃い状態で存在していると推定される。

暗黒物質の直接検出は、どのような暗黒物質を仮定するかによって検出器の構造や方法論が変わってくる。我々は暗黒物質の正体について全く分かっていないため、さまざまな実験グループが各々のテクノロジーを駆使し、研究開発および実験を進めており、検出技術の側面からも面白い分野である。新しいアイデアが必要になる理由の一つは、暗黒物質は構造形成の観点から数百 km/sec 程度という非常に遅い速度を持っているためである。つまり、高エネルギー物理とは違い、 $\beta \sim 10^{-3}$ 程度の粒子を検出する必要があり、検出器の応答及び背景事象分離においてさまざまな新しい技術や知見が要求される。以降

では、暗黒物質を数十 GeV/c^2 以上の質量を持つ Weakly Interacting Massive Particles (WIMP)と仮定する。これは、初期宇宙における暗黒物質の熱的生成プロセスと現在の存在比との整合性による weak scale の未知粒子[7]であるという観点から妥当なモデルであると考えられるためである。

筆者は、特に、暗黒物質の到来方向情報を捉えることを目的とした暗黒物質探索実験[8]に関心を持ち、研究を進めている。暗黒物質による反跳される原子核の反跳距離は極めて短いため、現在、ガスを用いた検出実験が先行しているが[9]、より標的的重量を高めた固体(もしくは液体)検出器での可能性について研究することは将来の大規模化と新たな方法論の開拓にとって極めて重要である(その反面、非常にチャレンジングである)。現在、我々は、日本、イタリア、ロシア、トルコ、韓国からなる国際共同実験 NEWSdm (Nuclear Emulsion for WIMP Search – directional measurement) [10]を立ち上げている。残念ながら、現在はまだ R&D フェーズであり、本実験を行う段階ではないが、本記事では、これまでの研究に至る経緯と NEWSdm 実験における非常にユニークなテクノロジーを紹介し、現状と展望について報告する。

2. 原子核乾板を用いた暗黒物質探索

2.1 経緯

標準的な暗黒物質モデル(WIMP かつ Maxwell 分布に従う速度分布を持つ)を仮定した場合、固体中での反跳原子核の飛程は、図 1 に示すようにせいぜい数百 nm 程度となる。 $1\mu\text{m}$ も満たない粒子飛跡を検出できる技術は筆者が知る限り存在しなかった。筆者が大学院での研究テーマを探しているときに、たまたま訪問した名古屋大学 F 研究室に、丹羽公雄教授(当時)が休日にも拘わらず偶然居られ、(普通はそんなことしてくれないらしいが)直々に研究室を案内していただき、原子核乾板の高い空間分解能を生かして暗黒物質の検出実験をやりたいからやれる人間を探していると言われたのがきっかけである。個人的に最も魅力的だったのは、当時その研究をやっていたのは大学院生の夏目氏だけで、非常に初期の原理実証研究のフェーズであったため、観測実験どころか検出器としての原型がほぼない状態であったことである。自ら開発した検出器で、独

自の実験をやりたいと思っていた筆者にとってはある意味では最高の環境であった。

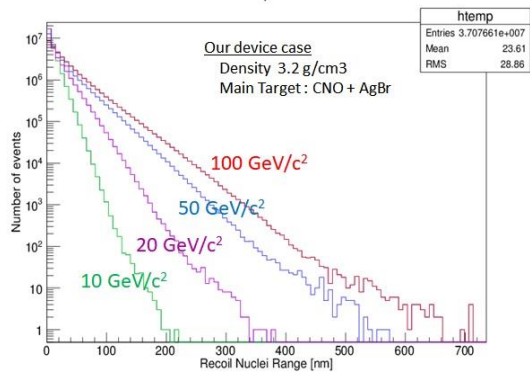


図1 固体中（ここでは我々のデバイスを想定）での暗黒物質の質量ごとの反跳原子核飛程スペクトル

2.2 原子核乾板

原子核乾板は、近年ではニュートリノ実験（高エネルギーニュース [11]参照）等でそれなりに知られてはいるが、その検出原理についてはあまり理解されていないと思うし、ユーザー自身もあまりそれを理解されていない場合もあるので、ここで改めて簡単に紹介する。

原子核乾板は、ゼラチン中にハロゲン化銀結晶（ここではAgBr(I)結晶）が分散された構造を持ち、その媒体を乳剤と呼んでいる。これは、現在ではあまり使われなくなった銀塩写真フィルム的一种である。原子核乾板の場合結晶サイズは、標準的には約 200nm 程度のものが用いられる[12]。通常使われている写真フィルムは 1 μ m 程度の直径を持ついわゆる平板粒子（図2(a)）であり、受光面を広げることにより光に対する量子効率を向上させている。原子核乾板の場合、それでは粒子の方向に対し異方性が生じてしまうため、より球に近い結晶で構成されて

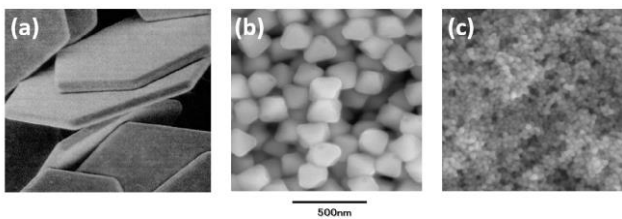


図2 ハロゲン化銀結晶の電子顕微鏡画像 (a) 一般的な写真フィルム (b) 従来の原子核乾板, (c) 超微粒子原子核乾板 (Nano Imaging Tracker)

おり、実際には 8 面体の角がとれたような結晶となっている（図2(b)）。乳剤層は約 10-100 μ m 程度である（原理的に厚みの制限はないが、現像液の浸透や顕微鏡のワーキングディスタンスから制限が来る）。分散されたAgBr(I)結晶を荷電粒子が貫通した場合、図3の概念図のように、電離作用によって潜像核と呼ばれる銀のクラスターが主に結晶表面に形成される。潜像核は、現像液におけるトリガーとなって、通常の現像液ではフィラメント

状の現像銀が成長し、粒子の軌跡に沿った現像銀の並びとして光学顕微鏡で飛跡が検出される。

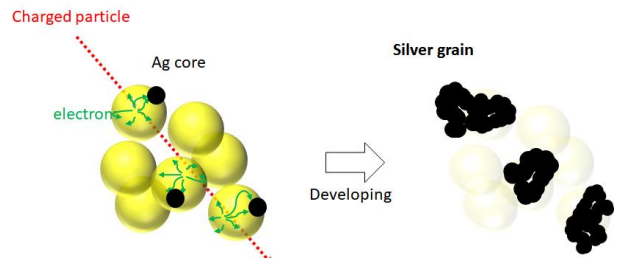


図3 原子核乾板の粒子検出原理の概念図

この潜像核の形成プロセスは、図4のバンド構造内の概念図で説明される。AgBr(I)結晶内で荷電粒子の電離作用より生じる電子-正孔(e-h)対は、再結合により消失する割合も一定量あるが、結晶表面に電子トラップが存在するため電子はそこに捕獲される。AgBr(I)結晶は、格子間銀イオンによる伝導度を持っており、これがトラップされた電子とクーロン相互作用により結合し、銀のクラスターを生成する。生成した銀のクラスターはさらに深い電子トラップとなるため、連続して銀の 2 量体, 3 量体を形成し、4 量体の状態で一般的な現像液において現像される。このような現像可能となった銀クラスターを潜像核という。現像プロセスは、基本的には還元反応であり、現像液から電子が供給され、同時に内部の格子間銀イオンを使って潜像核が増幅される。この増幅率は数十億倍に相当する。一般的に、潜像核の大きさが大きいほど酸化還元反応における活性化エネルギーが低くなるため現像速度は exponential に増加する(Nernst の定理)。この潜像核サイズ(および数)は、通過した荷電粒子の dE/dx に依存するため、現像速度や現像銀の大きさ・形状も dE/dx に依存する(しかし、この情報は光学分解能以下のスケールであるため、一現像銀は 0/1 の情報しか持たないと思われがちである)。

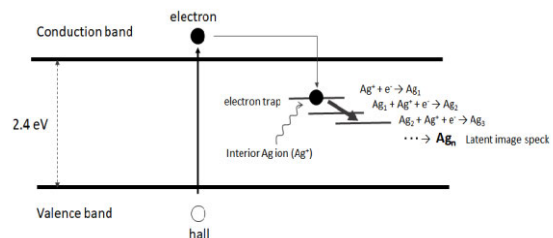


図4 AgBr(I)結晶のバンド構造内における潜像形成プロセスの概念図

図3 から想像できると思うが、原子核乾板における空間分解能は、AgBr(I)結晶のサイズと密度で決まり、さらに結晶の荷電粒子に対する反応確率(現像確率)は、潜像形成効率および現像活性によって決まる。つまり、これらの状態をコントロールでき

ればさまざまな応答特性を示すデバイスが作成できるわけである。

記録された飛跡は、光学顕微鏡で観察することができ、現在は、自動飛跡読み取り装置を用いた事象解析が行われている。例えば、名古屋大学等が行っている飛跡読み取りは、複数の原子核乾板を貫き、一枚あたりの原子核乾板に対して直線性の高い(高エネルギー)の飛跡をつなぎ合わせることで、事象再構成を行い、反応解析を行うことが一般的である。しかしながら、本研究においては、それまで開発されてきたデバイスや自動読み取り法は適用できない。その理由として、空間分解能が高いと言いつつも、暗黒物質検出で要求する $1\mu\text{m}$ 以下の飛跡検出ができるほどの空間分解能を持たないこと、 $1\mu\text{m}$ 以下という極短飛跡を読み出す読み取りシステムおよび事象解析方法論が存在しないこと、検出器の応答を制御する方法がない(知らない)ことが挙げられる。これは本研究を推進するうえで致命的な問題であった。これらの課題をどう克服してきたかについて次章で述べる。

3. 暗黒物質検出を可能にする技術開発

3.1 デバイス開発

結晶サイズが 100nm 以上あると、検出可能な飛跡長はせいぜい数 μm 以上となってしまう、これは当然サブミクロンの飛跡検出はできないため、さらに空間分解能を向上させる必要がある。先に述べたように、空間分解能はピクセルセンサーとしての機能を果たしている AgBr(I) 結晶のサイズと密度に依存する。結晶密度は最密充填に近いところまで高密度化されているため、結晶サイズを微細化したいいわゆる超微粒子原子核乾板が高空間分解能化における本質的な解となる。当初は Fuji Film の協力を得て開発が行われ(これは同様に超微粒子結晶を用いるホログラフィ写真フィルムの作成法が応用された)、約 40nm の結晶サイズを持つ初代 Nano Imaging Tracker (NIT) が作成された。これは、夏目氏により、イオン注入装置(名古屋大学、先端技術共同利用施設)を用いて、疑似的な暗黒物質による反跳原子核の信号を低速イオンで代用し、NIT に打ち込まれた事象を電子顕微鏡で観察することにより、実際にサブミクロの飛跡検出ができていたことを確認する形で原理実証がなされた[13]。これにより、超微粒子原子核乾板という方向性でサブミクロンの飛跡検出が可能であることが実証された。しかし、そこから Fuji Film の開発がストップし、これ以上のデバイス提供がなされなくなった。また、結晶を超微粒子化すると、結晶の溶解度が上がってしまうため、いわゆるオストワルド熟成と呼ばれる現象によってサイズ分布の中で小さい結晶がより早く溶解され大きな結晶に析出してしまい、最終的には保管時のゲル状態中に結晶サイズがどんどん広がってしまうという問題が生じてしまい、研究そのものがまともにできない状況に陥った。それにより、筆者の開発研究がしばらく停滞してしまっていた。

2008年に名古屋で開かれた emulsion workshop という会で Fuji Film の技術者・研究者の方と議論する機会があり、そういった状況を相談したところ、だったら原子核乾板を自分で作つたらどうだという話をいただいた。実は、原子核乾板は、あ



図5 原子核乾板用乳剤製造装置

まりにノウハウがありすぎて写真会社にしか製造はできないとさんざん教育されてきたが、実際に写真フィルムを開発してきた方々の言葉を信用し、中村教授(当時、准教授)と一つ一つその可能性を探っていった。約一年色々と議論を重ね、ホログラフィフィルムの作成経験のある研究者と共同研究も行いながら、最終的には Fuji Janet (Fuji Film の装置開発を行ってきた会社) の露木社長の全面的な協力が得られ、2010年に研究室レベルで製造可能なように設計された原子核乾板の製造装置(図5)を名古屋大学へ導入し、Fuji Film OB で OPERA 実験用原子核乾板の開発に従事された桑原氏と共に原子核乾板の開発に着手した。

当初の目的である超微粒子原子核乾板の開発は、最初の結晶成長に関しては意外にすんなりいったが、やはり結晶の凝集問題によって安定性が担保されない状況であった。この解決策として、ポロビニルアルコール(PVA)を10%程度添加することが決め手となり、非常に安定した結晶を作成できるようになった(図2(c))。作成法については、[14][15]に詳細に記載されているため参照されたいが、結晶サイズについて、図6で見

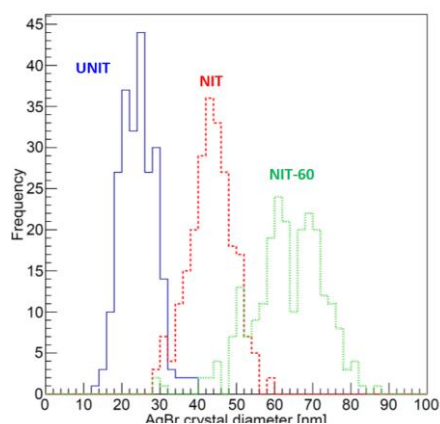


図6 超微粒子原子核乾板における AgBr(I) 結晶のサイズ分布。平均サイズ 10nm 以下の精度でサイズのコントロールが可能である。

られるように、サイズ分散が約 6 nm に納まることができ、平均サイズも 10nm の精度でコントロールできるようになっている。標準 NIT は、結晶サイズが 44nm 程度であり、最も小さいもので 20nm 程度の Ultra-NIT (UNIT)がある。できた乳剤は、プラスチックやガラス基板の上に塗布され、図 7(左)のような“フィルム”として使用される。例えば、NIT に記録された α 線は、図 7(右)のよう

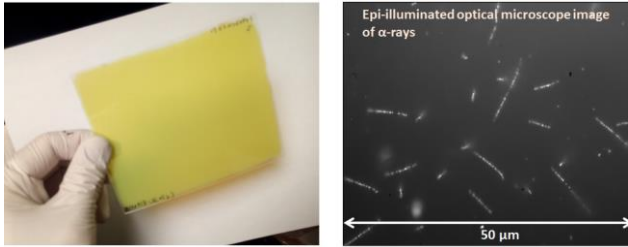


図 7 プラスチック基板に塗布された NIT フィルム (左) および記録された α 線の飛跡群の落射型光学顕微鏡画像 (右)。

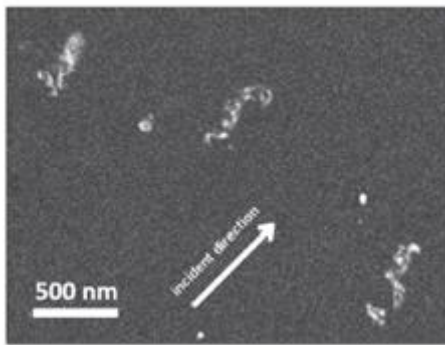


図 8. NIT に記録された低速炭素イオン (100keV) の飛跡の電子顕微鏡画像。現像された銀がフィラメント構造を持っているのがわかる。図の矢印は、炭素イオンの入射方向を表している。

非常にクリアに検出されることができる。また、サブミクロン粒子飛跡検出性能は、イオン注入装置で行われ、100keV の低速炭素イオンにおいて、図 8 の電子顕微鏡画像で見られるような飛跡検出能力が実証されている。

3.2 NIT の空間分解能

デバイスそのものが持つ空間分解能の定量的な理解は、検出器が持つ原理的な検出限界を理解する上で重要である。まず、NIT の結晶サイズ分布は、図 6 で示すような分布を持つこと、さらに、その密度は 3.3 g/cm³ であることが直接測定でわかっており、そこから結晶充填率は 39 %であることが見積られる。これは、40nm 結晶の場合 1cm³ に $\sim 10^{16}$ 個のセンサーである AgBr(I) 結晶が充填されていることになる。シミュレーション上でこの結晶の分散構造を配置し、そこに SRIM 等で荷電粒子の軌道を計算し、1 粒子あたり 2 個以上貫通した場合を“飛跡 (track)”と定義した場合の検出能力を議論したものが図 9 である。暗黒物質探索を想定し、反跳原子核標的を炭素とした場合の飛跡検出能力としては、20keV の炭素原子核においても

50%の効率で飛跡を構成できることがわかり、さらに方位角度分解能も 0.6rad (約 35°) 程度が得られている。角度分解能は、固体検出器であるため、どうしても内部での多重散乱が大きいのと、結晶によるデジタイズによる影響が主要な悪化原因ではある。一方で、電離電子は数 10nm の局在した領域で完結するため、そのドリフトチャンバーのようなドリフト長による拡散の影響がない。つまり、この AgBr(I) 結晶における電離電子の局在記録能力がデバイスのスケーラビリティを保証する重要な基本原理である。

3.3 NIT の量子感度と検出効率

最終的にデバイスがどの程度の量子感度(一結晶の反応確率)および飛跡検出効率を持つのが実際の実験デザインでは重要なところである。これについては、現在も研究中の部分が多いが、標準デバイスにおける性能については概ね理解ができています。

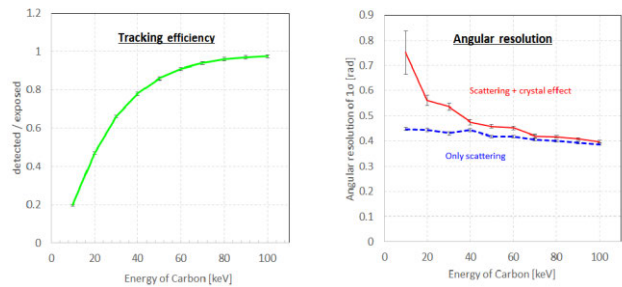


図 9 結晶サイズ分布および密度効果を考慮したシミュレーションによって見積られるデバイス内部の飛跡 (2 結晶以上貫通) 検出効率 (左図) および 2 次元角度分解能 (右図。青点線: 多重散乱によって決まる分解能, 赤実線: 多重散乱+結晶効果による分解能)。

まず、実際の AgBr(I) 結晶の量子感度は、通常結晶を作成してそのままの状態では非常に低い。これは、例えば、 α 線が貫通した際と言えば実行的に約 20%程度である。この量子感度を劇的に上げる方法が、いわゆる“ハロゲンアクセプター(HA)増感”という方法であり、デバイスを薄い亜硫酸ナトリウムで処理することにより量子感度が上昇し、ほぼ 100%と無矛盾な量子感度が達成される。しかも、この増感法は粒子線に対してのみ上昇し、余分なノイズの生成は一切起こらない。その理由は、特に NIT のような超微粒子結晶においては e-h の再結合による潜像核形成効率の低下が主要な低量子感度の要因であり、HA 増感は、主に正孔捕獲により有効電子数を増やすことを目的にしているからである(実は、亜硫酸ナトリウムが有効であることは筆者の独自発見であり、写真科学の業界では未だ詳細なメカニズムは議論中である)。その際の一結晶感度は、30keV の炭素イオンにおいて 100%と無矛盾であり、このときの飛跡検出効率としては 200nm の検出閾値を仮定すると、例えば 100keV の炭素においては 80%、60keV では 40%程度となる。量子感度を含め

た検出効率は、結晶そのものが持つ潜像核形成効率だけではなく、先にも述べたような現像活性にも依存する。現在は、MAA 現像液という N メチルパラアミノフェノール硫酸塩とアスコルビン酸を現像主薬とする現像液を自ら処方して現像処理に用いている。この酸化還元電位は -310mV 程度と、一般的な写真現像液と同等のレベルのものを標準にしており、かつ処理温度を通常 20°C で行うところを 5°C まで下げて行っている。これは、現像によるノイズ(random fog)の活性化エネルギーと潜像核が持つ活性化エネルギーの差をより顕著にするためであり、現像反応速度の温度依存性を使って低ノイズ化を図っている。この工夫により、従来に比べて $1/5$ 以下程度までノイズレベルを抑えている。実際は、さらに低い温度でも特性を見たいが現在は実験の優先度から 5°C での処理を標準として進めている。上記の検出効率は、このような現像処理感度も含めたものであり現在の指標となっている。現像された信号は、光学顕微鏡ベースの読み取りシステムで読み出され解析されることになる。最終的な検出効率は、この飛跡を読み出す(および選別する)効率も影響してくる。これについては次の章で紹介する。

4. サブミクロン飛跡の読み取り技術

4.1 サブミクロン粒子飛跡解析

飛跡の自動解析技術は、原子核乾板が現在でも研究現場の第一線で使われる最も重要な要因である。例えば、OPERA 実験においては、S-UTS と呼ばれる自動高速飛跡読み取り装置[16]により約 $40\text{cm}^2/\text{h}$ の速度で飛跡データの読み取り(スキャン)が行われ、最近の最も早いシステム HTS[17] においてはさらにその 100 倍の速度でスキャンが行われている。本研究においても例外なく自動解析システムが必要になるが、現在のシステムは原子核乾板を貫通する数十 μm 以上の直線性の高い飛跡を抽出することに特化したものであり、そもそもサブミクロンの粒子飛跡を読み出すことは不可能である。この自動データ取得法の開発に非常に多くの時間を費やした。その大きな理由は、30 年以上続く自動解析の方法論の常識の壁であり、その思考からの脱却は筆者の力量の無さも高いポテンシャル障壁が存在したからである。ここで提案したのが言われてみれば非常にシンプルであるが、サブミクロンの粒子飛跡が持つ光学像のゆがみをパラメータ化することであり、これは重力レンズの観測に関するセミナーを聴講しているときにヒントを得た。つまり、長い飛跡(ここでは $10\mu\text{m}$ 以上)に慣れていないと見えないのだが、形状の微妙な歪みに焦点を当ててみると、楕円形状を持つ粒子が、方向が揃って並んでいるのが観えるようになった(それまで全く気付かなかったが、一度観方を覚えると不思議と色々なものが観えてくる)。まずはシンプルな楕円形状解析で楕円フィットし、その長軸方向分布を取ると、見事にイオンの入射方向に揃った方向分布を検出することができ[18]、この手法をベースに、当時の大学院生の吉本、桂川らと新しい自動解析システム(Post Track Selector: PTS)[19]の構築を進めることになった。

4.2 Post Track Selector (PTS)

現在、この自動読み取り法をベースに運用しているのが図 9 の PTS-2 であり、同様のシステムで高速化等の開発用 PTS-3 もすでに立ち上がっている。さらに、イタリア・ナポリ大学にも構築され運用されているが、ナポリ大学のシステムにおいては別の解析手法も導入されているため、それについては後述する。

PTS は、通常は透過型の光学顕微鏡が使われるのに対して、落射型の光学顕微鏡が用いられる。落射型では、図 10(右)にあるような対物レンズの上部から光を入射し、媒体から反射される散乱光を結像し、像を取得する。上記の楕円解析は、より短波長の光を用いることで像の解像度(飛跡の検出可能閾値)が向上するため、バンドパスフィルターを通して $430\pm 20\text{nm}$ に絞った波長を用いる。撮像系は 2Mpix または 4Mpix の CMOS カメラを用いて撮像する。フレームレートは最大 300 fps 可能であるが、実際の光量との兼ね合いで、現在は 150fps で運用を行っている。また、X, Y, Z それぞれにステップモーターによる駆動系が搭載されており、特に、Z 方向(被写界方向)においては、そのステップごとに撮像する。このステップの最適化は必



図 10 現在運用中のサブミクロン飛跡自動読み取り用システム PTS.2 (左図:全体像,右図:読み取り中の対物レンズおよび NIT フィルム)。

ずしも十分ではないが、レンズの理論被写界深度 $0.3\mu\text{m}$ を考慮し、80 ステップ/view で撮像する。そこに存在する事象の輝度情報からベストフォーカス層を抽出することで、各事象における XYZ の 3 次元位置情報を取得することができる。PTS を用いることで、自動での事象解析が可能になり、デバイスにおける客観的かつ定量的な評価が可能になったことは、デバイス開発の立場からも非常に大きな進展である。

事象選別法として、先に述べた楕円パラメータを用いた場合、図 11 に示すように低速炭素イオンに対する方向分布を取得す

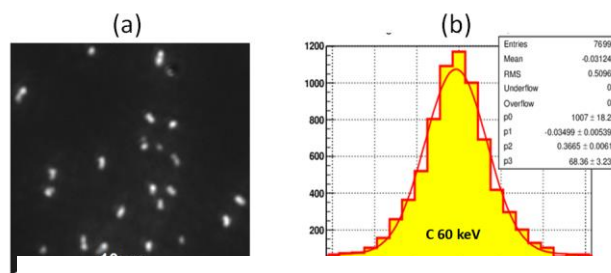


図 11 PTS によって読み出された 60keV の炭素イオンにおける (a)光学画像データ(縦方向に楕円形状の飛跡が見える)、および(b)楕円形状解析による長軸方向 2 次元角度分布。

ることが可能である。この時の検出可能な飛程の閾値は、結晶による影響を付加したシミュレーションとの比較により、約 196nm と評価されており、これは平均飛程でいえば炭素反跳にして 50keV の検出閾値に相当する。また、角度分解能は約 30° である。楕円解析の一番の目的は、一種のダークノイズである、いわゆる“random fog”と候補事象との切り分けにある。実際、原子核乾板はこの random fog というのが発生してしまう。その原因はいくつかあり、NIT の場合、積極的な fog 生成を起こす化学処理は行っていないため、何らかの熱的生成プロセスだと思われるがその根本的原因はよくわかっていない。しかし、こういったノイズは single grain で構成されるものがほとんどであるため、楕円パラメータの閾値設定によって約 4 桁の除去を行っており、実験において致命的な問題にはならない。ただし、どうしてもテイルは残ってきてしまい、閾値に制限が生じるが、これは画像取得の際の振動による微妙な撮像時のゆがみの影響として考えられるため、さらに低閾値化を狙う場合は、データ取得中の振動対策を十分に行う必要がある。ただし、こういった事象は、accidental な染み出しであるので、2 次解析で完全に除去されるため本質的な背景事象にはならない。それでは十分なバックグラウンド除去になるかというところではなく、やはり楕円形状だけでは限界がある。その理由は、やはりこの手法はあくまで光学分解能に制限された解析であり、光学分解能よりも小さい領域の情報は取得できないためである。一方、2.2 で述べたとおり、現像銀の情報は 0/1 ではなく、ナノスケールの領域に荷電粒子の dE/dx もしくは外部から混入した不純物等の情報が含まれる。例えば、図 8 のような電子顕微鏡で観察した粒子飛跡は、非常に密な銀粒子におけるフィラメント構造を持つ。これは荷電粒子による潜像核形成というプロセスにおける極めてユニークな情報であり、この情報をいかに光学顕微鏡から取り出すかが今後のバックグラウンド除去のキーポイントである(電子顕微鏡で観察できればすべて解決であるが、現在のテクノロジーでは観察面積やサンプル形状の強い制限から実用的に困難である)。現在の開発テーマとして、1 次選別(楕円形状解析)によってトリガーされた候補事象について、さらに光学顕微鏡を用いて光学分解能以上の情報を取り出すことを主目的に開発を進めている。その有力な方法の一つとして局在表面プラズモン共鳴(Localized Surface Plasmon Resonance : LSPR) [20] と呼ばれる光学応答を駆使した解析技術の研究を行っており、次に紹介する。

4.3 LSPR による事象解析

局在表面プラズモン共鳴(LSPR)は、波長よりも小さい金属ナノ粒子特有の光学応答である。詳しい理論は[20]を参照していただければよいが、簡単に言えば金属ナノ粒子中の自由電子が電磁場によって集団的な分極振動した際の共鳴現象であり、金属ナノ粒子の分極率(誘電率)とプラズマ振動数によってその吸収または散乱に対する共鳴波長が決まる(周辺媒質の

分極とのマッチングのため媒質の誘電率にも依存する)。特に、金や銀というのはこの共鳴波長が可視光領域に存在するため、さまざまな電子物性における研究対象となっている。

NIT における現像銀は、図 8 で見えるように数十 nm の構造を持つ、いわゆる銀ナノ粒子であることから、LSPR が可視光域で誘起される。現在、落射光学顕微鏡を使う理由は、この LSPR の効果を誘発しコントラストに反映させることでもある。

LSPR における共鳴波長は、銀ナノ粒子におけるサイズや形状に強く依存する。例えば、図 12 に示すように、銀ナノ粒子のサイズに依存して共鳴波長がシフトしていることがみてとれる。また、形状を持った銀ナノ粒子、例えばロッド状のものだと、直線偏光した光を入射すると、その偏光方向とロッドの長軸方向が並行の場合は長波長に、垂直の場合は短波長にシフトする。

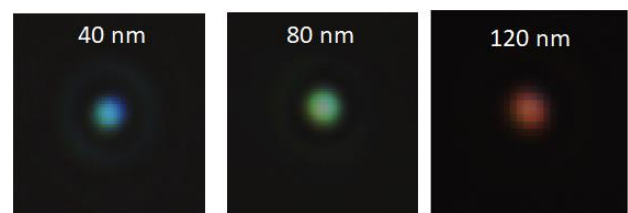


図 12 銀ナノ粒子の LSPR による光学像。左から 40, 80, 120nm の銀ナノ粒子であり、それぞれ共鳴波長が青、緑、赤とシフトしている。

我々は、この偏光方向に依存した共鳴波長シフトをうまく使うことによって光学分解能よりも小さい構造の情報取得が可能なシステムおよび解析法について開発を行ってきた。

その一つが超解像解析法である。超解像解析法は、2014 年のノーベル化学賞の受賞テーマ[21] となっており、顕微鏡技術における重要なブレークスルーとなった。この基本概念は以下のとおりである。本来、光学分解能はレイリーの回折限界で知られるように 2 点を分解できる能力である。通常の光学顕微鏡においては、波長と対物レンズの開口数(Numerical Aperture: N.A.)に依存し、波長 450nm, N.A. 1.45 で約 200nm 程度である。ここには重要な大前提があり、それは“2 点を同時に

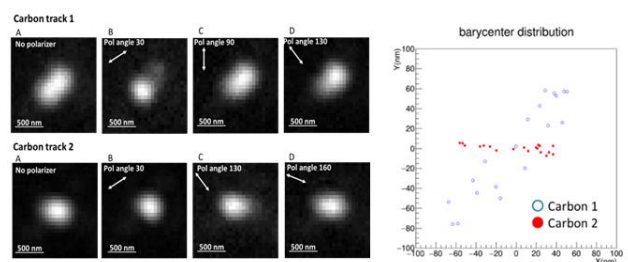


図 13 低速炭素イオンにおける LSPR による偏光依存性に対する光学像。(左図)およびそれぞれの偏光角ごとの像の重心位置の XY 分布(右図)。それぞれの重心決定精度が 10nm であり、より詳細な飛跡方向と内部情報を取得できている。

見たとき”ということである。逆に言えば、2 点を別々に見ればその限りではないことを意味し、これを実際に蛍光色素による発光特性を用いて超解像顕微鏡法が実現されている。これをヒントに、LSPR 応答を用いて超解像を実現させるとするのが我々のコンセプトである。例えば、形状の異なる銀ナノ粒子が並んでいた場合、入射光における偏光方向を変え、かつ波長フィルターを用いて観察する波長を制限した場合、偏光方向に応じてどちらか一方が強く観察されるタイミングがある。つまり、片方を別々に光らすことができる。結果、分解能は事象の位置決定精度で決まり 10nm 程度もしくはそれ以下を達成することが可能である。

この原理の実証は、梅本らの論文[22]にまとめられており、図 12 のように、100nm 程度の飛跡についてもその方向を取り出すことに成功した。この実証研究をもとに、現在、LSPR 情報を駆使した図 14 のような自動解析システムをナポリ大学にて開発を進めつつ運用も開始している[23]。これまでメカニカルに回していた偏光板を、本装置では液晶分子の配向方向をバイアス電圧によってコントロールする液晶偏光ローテータを導入した。これにより、メカニカルな振動を抑えた光学系を採用し、偏光角ごとの事象画像データを図 15 のように取得でき、その形状や輝度重心位置等のパラメータ使って事象解析を行う。このシステムにおける分解能は 5nm を達成しており、飛跡検出可能な閾値は 100nm まで下げることができた。

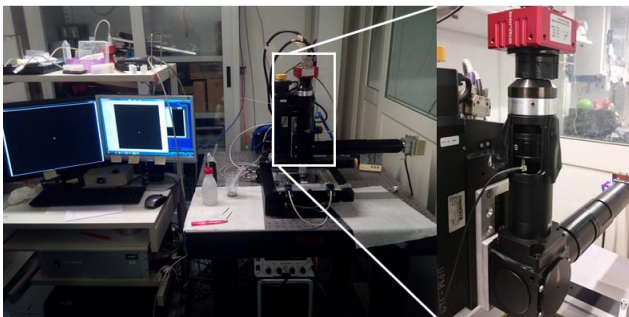


図 14 イタリア・ナポリ大学に設置されている LSPR 超解像解析用自動解析システム。撮像系の前に液晶偏光ローテータを設置することで、図 10 の情報を自動で取得することができる。

エネルギー閾値で言えば 30 keV の炭素反跳についても方向感度を出せるようになったことを意味しており、標準的な暗黒物質探索における探索可能な断面積が $20 \text{ GeV}/c^2$ の質量で 10 倍の感度向上が可能であることを意味している。

また、LSPR 起因の散乱光スペクトル情報を用いることでの事象選別を、機械学習を用いて行うことも議論されている。先にも述べたように、LSPR はナノスケールの構造を反映した共鳴スペクトルを持つ。この構造が荷電粒子種 (dE/dx) 等に依存していれば、スペクトル情報は粒子識別やノイズ識別の重要な情報となる。現在、ニューラルネットワーク等を用いて波長スペクトルや形状情報等も含めた機械学習研究も進めている。現状色々理解すべき点があるが、今後の解析フローの一部として実装さ

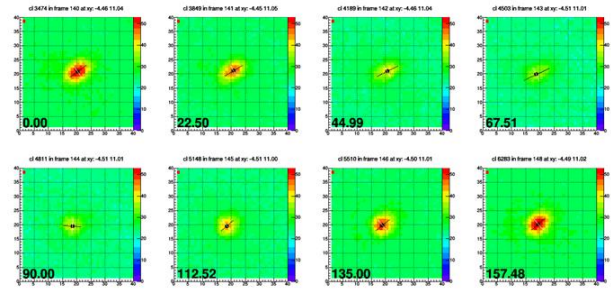


図 15 図 14 のシステムで取得した低速炭素イオンの LSPR による偏光依存性データの例。それぞれの偏光角(左下数値)に対する光学画像データを自動取得可能である

れる予定であり、候補事象の決定精度(背景事象との識別能)向上を段階的に向上させていく。

5. 背景事象の理解

上記で紹介したようなさまざまな解析技術の開発により、検証に必要なデータの取得が可能となり、それに伴い、背景事象とその原因を理解し、その削減に取り組むというフェーズに入っている。

まず、内部の放射性同位体は、その崩壊による β 線が背景事象を作り得るため理解が必要である。その存在量は ICP-MS および Ge 検出器を用いて評価を行ってきた。結論から言うと従来のものは、K-40 が約 70,000 mBq/kg も存在しており、最も高い放射能を持つ同位体であった。この主な原因は、ハロゲン化銀結晶を生成させるときに用いる KBr の残留物である。これは、NaBr を用いても同様の結晶成長ができることか KBr の代わりに NaBr を用いることで、K-40 の含有量を 1/2000 程度に削減することに成功した。ゼラチンも以前に使っていたものではなく、脱イオン化した高純度ゼラチンを用いることで K-40 が 1/100 以下に低減している。最終的に Th, U については上記の変更には依存せず、10-20 mBq/kg 程度である。現在、最も大きな放射能レベルを持つ同位体は C-14 であり、Accelerator Mass Spectrometry (AMS) の測定によって 24,000 mBq/kg と評価した。これらの電子バックグラウンドに対しては、NIT における AgBr(I)の低速炭素イオンに対する量子感度がまだ飽和している状態であるため、結晶の量子感度をさらに下げ、さらに低温にすることで切り分けが劇的によくすることがわかっている[24]。今後は実験に即した較正を行いながら量子感度を 3 桁以上落とすことで実質的に不感にする、もしくは潜像核の dE/dx 依存性を LSPR のような解析によって取得することで識別することを目指している。C-14 を除去する方法としては、人工高分子を用いることが挙げられる。これについても評価を進めており、今後の候補として有力な人工高分子(詳細は公開できない)において、測定限界以下($< 100 \text{ mBq/kg}$)まで減少していることが明らかになった。実際、Borexino 実験において使われている液体シンチ

レータにおいては自然同位体比から7桁以上低いという報告もあるため[25], そういった低放射能媒質を用いたデバイス開発も今後重要である。また, デバイス内部にTh・Uが存在する場合, (α , n)反応による中性子が生成され, 除くことが困難な背景事象になり得るが, これについては実際の測定量とシミュレーションを用いて 0.1 /kg/y 以下程度と見積もられており, 現状では主要な背景事象ではない[26]。

これまでの研究から, こういった背景事象を直接データ解析の中で分析する以前に, すでに製造段階で楕円形状パラメータだけでは落としきれない事象が存在し, それはデバイス内部の混入物であることがわかってきた。現在の製造環境はクリーンルームで行っているわけではいため, そういった混入物が存在するのは不思議ではないがこういったものが反跳原子核事象と同様の形状を持ってしまっているのは問題であり, 対策が必要である。また, 並行して, これらを解析的に除去することも必要であり, 上記で述べたような光学分解能以下の情報を取得するというはまさにここにつながるわけである。

最近, これらの混入物を識別する手段として位相情報を使うことを提案し, 解析フローに組み込むことも進めている。位相情報は, 本来光学像の中には反映されない物理量であり, 現在の光学解析技術ではこの情報を使えていない。この情報を可視化するのが位相差光学系であり, 位相光学像によって識別できなかった背景事象についてもクリアに差別化できることがわかってきた。上記の問題と解析フローの構築を最優先に進め, 暗黒物質探索の本格的なテスト実験に進んでいく。

6. 暗黒物質探索実験に向けて

暗黒物質探索実験は, 特に, 宇宙線や環境中性子が背景事象として寄与してしまうため, 地下環境で行う必要がある。我々は, イタリア・グランサツ研究所(LNGS)を最初の実験サイトとして準備を進めている。ここは, OPERA 実験の実験サイトでもあったため, 原子核乾板のハンドリングに対して経験があり(特に, 現像廃液等のインフラ環境), 効率的な実験環境の立ち上げが可能である。また, ここでの新しい試みは, これまで名古屋大学でのみ行っていたデバイス製造装置を初めて外部機関に構築し, デバイス供給を行うことである。新たな製造装置の立ち上げは 2017 年からデザイン設計も含め行われ, 名古屋大学技術職員の伊藤氏に多大な協力を頂きながら進められた。まず, 2018 年 2 月に名古屋大学に装置のパーツを納品し, そこから装置の組み上げ, さらに駆動制御ソフトウェアの構築を完了し動作試験を行った。動作試験で大きな問題がないことを確認し, 8月に再度解体し LNGS へ輸送した。10月に無事装置が到着し, 現地で組み上げ・試験を約2週間かけて行い, 2019年1月から実際の試験運用を開始した。地下の実験環境として, Hall.F と呼ばれるトンネル内にプレハブが建設され, 図 16 のような環境が構築された。今後, プレハブ内をクリーンルームとして運用する予定になっている。実は, ここ 1, 2 年で LNGS のセ

キュリティが非常に厳しくなってしまう(某実験による液体シンチレータの漏洩トラブルが原因のようである), 我々の実験環境の構築時期が, ちょうどこういったセキュリティ強化の移行期ということもあり, いろいろと面倒な手続きが増え, 実際の建設は当初予定から半年近く遅れている。それでも, ようやくデバイス製造を地下環境で行える段階まで来ており, 2019 年 2 月に最初のテスト製造が行われ, 最初にしてはまずまずのものが出来上がった。現在, 詳細な感度や再現性等の性能評価を進めているところであり, 本格的な実験投入への準備を進めている。現地の活動は, LNGS フェローシップの PD 研究員である浅田氏を中心となって進めている。また, 最近 SNOLAB の science committee (SC)からも関心が示されており, すでに SC スタッフが視察に訪れている。SNOLAB は将来のマルチサイトでの測定やより低バックグラウンド実験における候補地となり得る。まだ詳細は今後の進展具合に依存するが, ささまざまな実験サイトでの同様の測定というのはあらゆる背景事象を系統的に理解するうえで重要であり, LNGS だけにこだわらず地下実験の運営機関とのコミュニケーションは今後も継続して行っていきたいと考えている。



図 16 グランサツ研究所の地下実験施設 (Hall.F) に建設されたデバイス製造ファシリティ(左)および最初のデバイス製造テストの様子(右)

7. 目指す物理

DAMA/LIBRA実験[26]は, 暗黒物質フラックスの季節変動を 12.9σ の信頼度で観測したと主張している。NEWSdm実験では最初のターゲットとして, 標準的な暗黒物質モデルを仮定した場合に期待されるDAMA/LIBRAの有効領域(暗黒物質質量約 $10\text{GeV}/c^2$, 暗黒物質-核子断面積 10^{-40}cm^2)において方向感度を持った探索を行いたいと考えている。特に, 暗黒物質の特性に強く依存しない散乱モデル(ここではspin-independent)について, 反跳核における弾性散乱モデル, およびMaxwell分布を持つ暗黒物質速度分布モデルにおいての可能性を議論する。また, NITのような標的核が数種類持つことを利用した標的核依存性についての解析研究を行いたいと考えている。そのためには, 図16における感度推定において, 標的重量で約10kgの検出器で1年程度の観測が必要である。NITデバイスそのものは非常に高い感度を有しているため(図16 黒線Device potential), このスケールは読み出し能力にかかっている。6章で述べた製造装置においては, 約1kgを1週間以内で製造可能である。

また、装置のマイナーな改良と効率化により2週間で5kg程度の

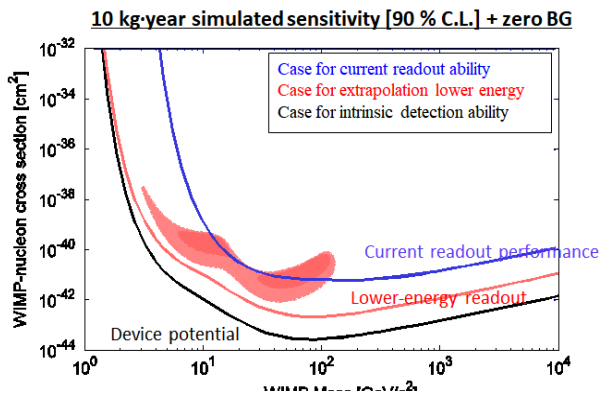


図 17 10kg・y の exposure において期待される暗黒物質質量に対する spin に依存しない暗黒物質-核子断面積の感度推定。青は現在読み取り効率を考慮した場合であり、赤は LSPR 等の超解像法を用いてエネルギー閾値を下げた場合。黒は、デバイスに記録された飛跡をすべて読み出した場合の感度。赤い有限の領域が、DAMA/LIBRA で観測された信号が暗黒物質だった場合の有効領域である。

検出器作成は可能である(10kgスケールの製造においては、さらに一回り製造スケールの大きな装置を導入する予定である)。問題となるのは光学解析システムにおける読み取りスピードである。現状の速度は、一台あたり10gの読み取りにも半年程度かかってしまうため、これについては、一台の装置の速度向上と台数を増やすことで最終的な速度(10kgスケールを一年以内に読めるスピード)を達成したい。装置の速度向上についての方針として、撮像速度の向上とそれに付随した光源のストロボ化、駆動系の高速化最終的には低倍率化による一次候補事象選別(光学輝度情報による分解能に寄らない候補事象の一次選別もしくは機械学習等を用いた事象形状のコンボリューション)を並行して開発を進め、すでに日本とイタリアに存在する5台の装置もアップグレードする。

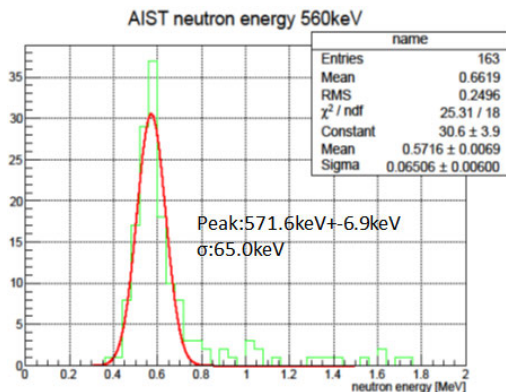


図 18 560keV 相当の単色中性子によって反跳された陽子飛跡のエネルギー(飛程)と角度から再構成された中性子エネルギースペクトル

バイプロダクトとして、地下環境における中性子フラックスの精密な測定も可能である。すでに、高エネルギーニュース[27]で紹介されている新学術領域「宇宙の歴史をひも解く地下素核研究 (2013-2018)」B02 班から派生した中性子測定コンソーシアムの一環で進めているプロジェクトでもあり、NIT は陽子反跳を用いることでサブ MeV の中性子を精度良く測定し、さらに方向情報も取得することができる。例えば、NIT を用いることで図 18 に示すように単色の中性子源からの中性子のエネルギー再構成に成功している。これは、反跳陽子エネルギーと方向の同時測定が可能であることから成せる業である。さらに、このときの飛程は数 μm と暗黒物質検出と比べて格段に検出がしやすいため、その分ガンマ線との分別能力が格段に高い(数か月の環境ガンマ線の曝露でも問題にならないレベル)。NEWSdm 実験で目指す 10kg 級の実験が実現できれば、地下環境の中性子のフラックスと方向分布測定、さらには季節変動測定も可能であり、背景事象の観点から DAMA/LIBRA 実験で観測された季節変動に関する新たな指針も得られるかもしれない。また、ニュートリノのコヒーレント散乱についても原子核の弾性散乱における方向情報も同時に計測できるため、より精密な観測が可能であり、例えば、すでに実験がなされている Oak Ridge の SNS ソースでの観測[28]で言えば、10 kg・y の実験で 100event 程度の信号(100nm 以上)が検出できるという見積りもある。さらに、近年では NIT の発光現象の存在も明らかになっている[29]。白石らの研究により AgBr(I)結晶の α 線発光については、発光波長が 540 nm 程度の時定数が 1 μs 程度の fast 成分と 560nm 程度の数 10 μsec 以上の slow 成分が存在することがわかり、この機構が AgBr(I)結晶内にドーパされたヨウ素における等電子トラップに束縛された正孔と電子による束縛励起子発光、および表面電子トラップに束縛された電子とのトンネル効果による再結合によるものであることがわかってきた。こういった特性は、飛跡検出と光検出によるハイブリットな情報取得により発光波長や時定数によって粒子識別能を持っている可能性を示唆する。こういった測定ができれば暗黒物質探索実験においても革新的な検出器となる。

8. まとめ

本稿において、これまでの NEWSdm 実験の基盤となっている超微粒子原子核乾板 (Nano Imaging Tracker : NIT)という新しい検出器の開発の経緯と現状、さらに NEWSdm 実験の現状とその技術応用について紹介させていただいた。本研究は、“ナノトラッキング”をキーワードにさまざまな分野を超えたテクノロジーを導入し、暗黒物質の謎に迫ろうとしているものであり、技術そのものが新しいがゆえに多くの課題も残されている。そういった課題について、現在、大学院生や共同研究者と共に一つ一つ問題を解決し、着実に前に進んでいる研究でもあるため、時間はかかってしまっているが、それなりにユニークな“何か”を今後もアウトプットできるはずである。読者の方には、是非こう

いった新たな実験技術があることも知っていただき、さまざまな議論や提案を頂けたら幸いです。

9. 謝辞

本研究は、筆者へ直接指導いただいた夏目氏の先駆的な研究から始まり、多くの大学院生、共同研究者、さらにさまざまな技術的支援をいただいた研究者・技術者の協力によって成り立っています。一人ひとり名前を挙げることは紙面の関係上難しいですが、ここに改めて感謝いたします。また、今現在も共に研究を行っている研究者・大学院生の成果によって本稿の執筆に至ったことを心から感謝いたします。また、新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下素核研究」B02 班を通して、多くの方々との交流も本研究を進めるドライビングフォースの一つになっており、今後とも是非さまざまな形で連携・議論を賜れば幸いです。

参考文献

- [1] J. H. Oort, Com. Obs. at Leiden, Vol. VI, No. 238, 249-287 (1932)
- [2] Zwicky, F., Helvetica Physica Acta 6:110127 (1933)
- [3] Zwicky, F., Astrophysical Journal 86: 217-246 (1937)
- [4] Vera C. Rubin *et al.*, Astro.phys. J., 225:L107-111 (1978)
- [5] Dan P. Clemens, Astrophys. J. 295: 422-436 (1985)
- [6] Toshihiro Omodaka, AAPPS Bulletin, Vol. 19, No. 3, 19-25 (2009)
- [7] Marc Kamionvsky, High Energy Physics and Cosmology. 14: 394.: arXiv:hep-ph/9710467 (1997)
- [8] D.N.Spergel *et al.*, Phys. Rev. D37,1353(1988)
- [9] Kiseki Nakamura *et al.*, PTEP Vol.2015,Iss. 4,043F01 (2015)
- [10] A. Aleksandrov *et al.*, (NEWS collaboration), arXiv:1604.04199 [astro-ph.IM] (2016)
- [11] 佐藤修, 小松雅宏, 高エネルギーニュース Vol.34, No.2 (2015)
- [12] Taku Nakamura *et al.*, Nucl. Instr.Meth A, Vol. 556 Iss. 1, 80-86 (2006)
- [13] M. Natsume *et al.*, Nucl. Instr. Meth A, Vol. 557 Iss. 3, 439-443 (2007)
- [14] T. Naka, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. A Vol. 718, 519-521 (2013)
- [15] Takashi Asada, Tatsuhiro Naka, Ken-ichi Kuwabara and Masahiro Yoshimoto, PTEP Vol.2017, Iss.6, 063H01 (2017)
- [16] K.Morishima, T.Nakano JINST Vol.5, P04011 (2010)
- [17] Masahiro Yoshimoto, Toshiyuki Nakano, Ryosuke Komatani, Hiroaki Kawahara, PTEP Vol.2017, Iss.10, 103H01 (2017)
- [18] K. Kimura and T. Naka, Nucl. Inst. and Meth. A Vol. 680, 12-17 (2012)
- [19] K.Katsuragawa, A.Umemoto, M.Yoshimoto, T. Naka and T. Asada, “New readout system for submicron tracks with nuclear emulsion”, JINST Vol.12, T04002(2017)
- [20] B. J. Messinger, K. U. von Raben, R. K. Chang and P. W. Barber, Phys. Rev. B, Vol., 24, 649 (1981)
- [21] Web site of the Nobel Prize foundation: <https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/2014/summary/>
- [22] Atsuhiko Umemoto, Tatsuhiro Naka, Andrey Alexandrov and Masahiro Yoshimoto, PTEP 2019,013D02 (2019)
- [23] A. Aleksandrov *et al.*, Nucl.Instrum.Meth. A Vol.824, 600-602 (2016)
- [24] M.Kimura *et al.*, Nucl. Inst. Meth.A Vol. 845,373-377 (2017)
- [23] G. Alimonti *et al.*, (Borexino collaboration), Phys. Lett. B vol.422, Iss. 1-4, 349-358 (1998)
- [25] A. Alexandrov *et al.*, Astropat. Phys. Vol. 80,16-21 (2016)
- [26] R. Bernabei *et al.*, Nucl. Phys. At. Energy Vol. 19, Iss. 4, 307-325 (2018)
- [27] 田中雅士, 帝釋稜介, 鈴木優飛, 吉本雅浩, 高エネルギーニュース, Vol.35, No.4 (2017)
- [28] D. Akimov *et al.*, *Science* Vol. 357, Issue 6356 (2017)
- [29] T.Shiraishi, H.Ichiki and T.Naka, Nucl. Inst. Meth. A (2019) Volume 927, 21 (2019)