

B10：暗黒物質探索実験のための極低放射能モレキュラー シーブスの開発

東京大学宇宙線研共同利用研究成果発表会

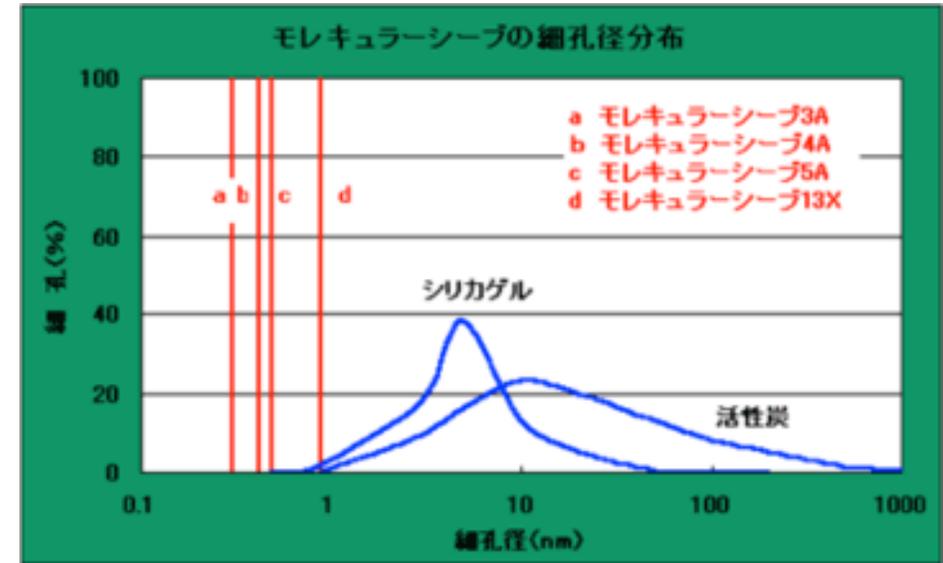
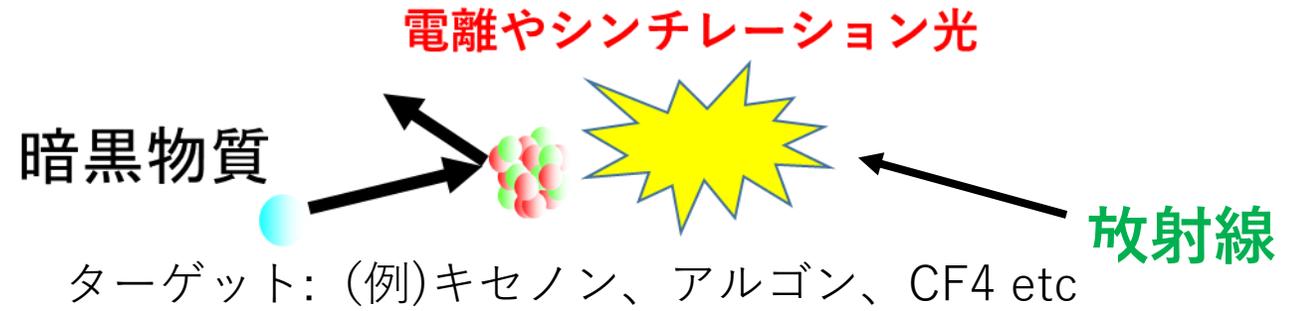
2021年2月8日

日本大学理工学部 小川 洋

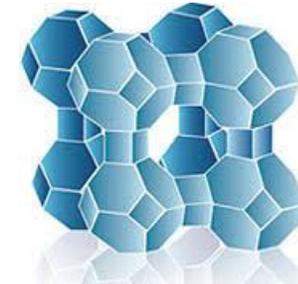
- 本年度共同利用研究費：10万円
 - 3万円：材料費、運送費、7万円：繰り越し

Introduction :

- 暗黒物質からの信号～放射線からの信号
 - ⇒ターゲットのガス中の**放射性不純物**を減らす必要。
 - 例：ラドン (^{222}Rn , ^{220}Rn)
- 暗黒物質からの信号をガスの発光、電離でとらえる。
 - ⇒発光と電離を減衰させる、ガス中の水や酸素などの**不純物**を除く必要。
- **モレキュラーシーブスがガスの純化に使える可能性。**
 - 特定のpore sizeを持っているので、対象となる不純物を**選択的に除去可能**



(株) ユニオン昭和 HPより



3A型～13X型
(3 Å～10 Å)まで
様々なタイプある。

MS5Aによるガス (SF₆)からのラドン除去

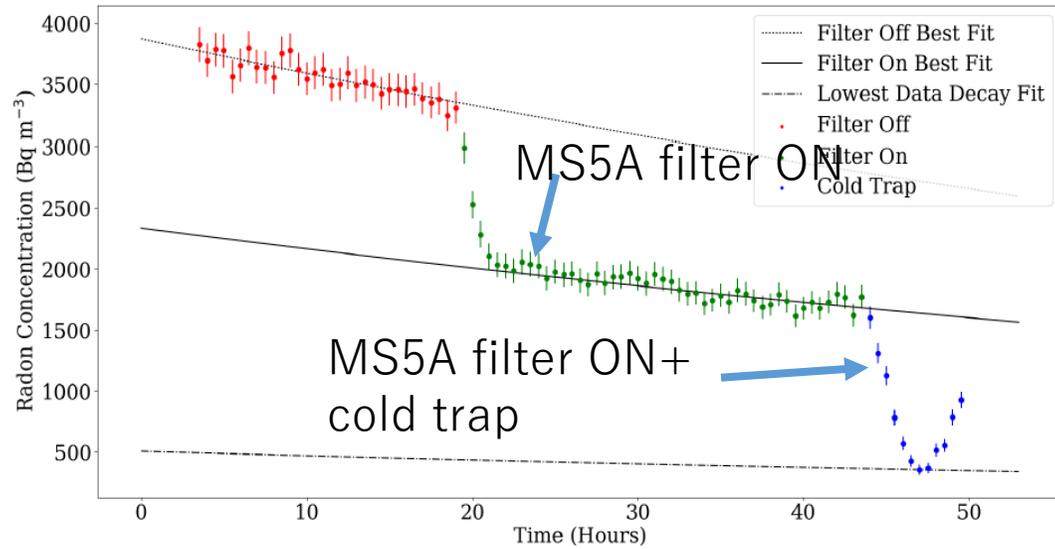


Figure 10: Radon concentration in SF₆ shown over time for the 5Å molecular sieve filter. The filter was engaged after 20 hours and the cold trap was engaged after 44 hours. The decay fit on the blue data set was determined using only one data point to extrapolate the lowest possible radon concentration achieved.

A. C. Ezeribe et al 2017 JINST 12 P09025

5A型にラドン除去能力あり

ラドン・不純物除去システム概略

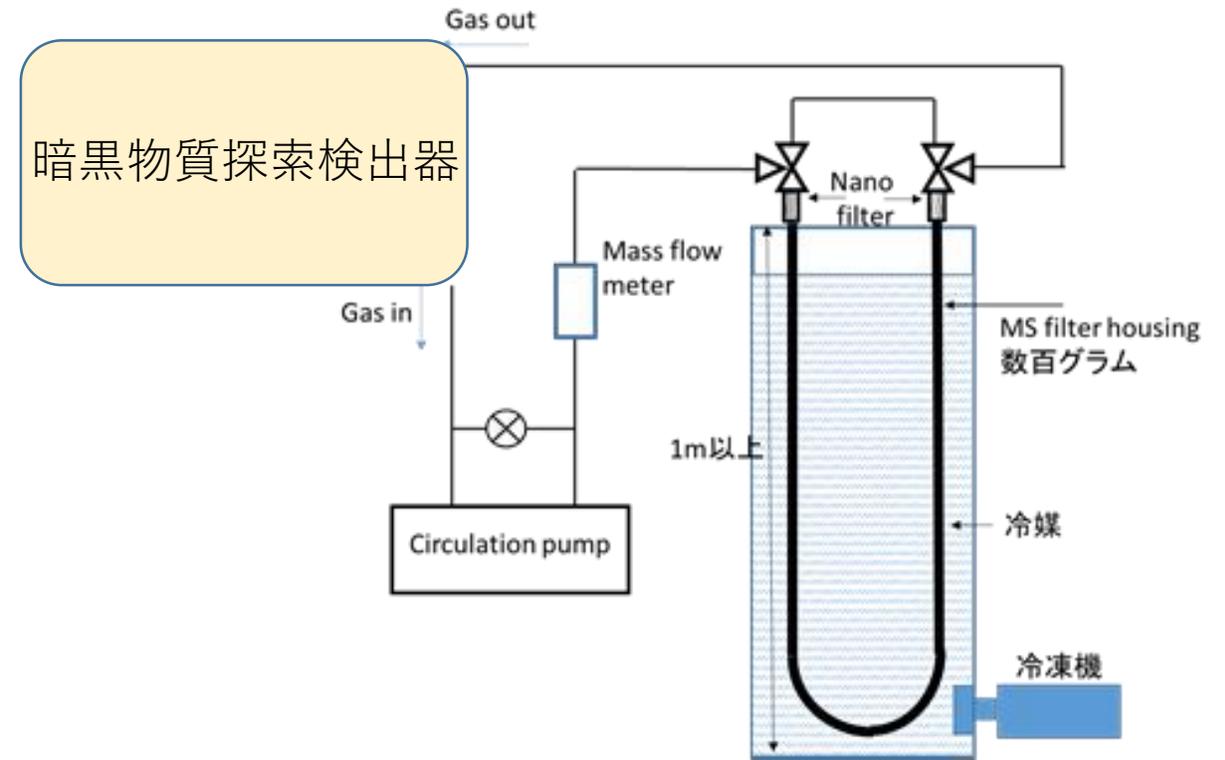


図4:ラドン除去システム

暗黒物質・ニュートリノ実験に使うためには、ゼオライト自身の放射性不純物を極限まで減らす必要がある。※市販MS:²²⁶Ra~5Bq/kg
⇒極低放射能のモレキュラーシーブスを独自に開発する。

(2019年度)極低放射能モレキュラーシーブス (MS)の製作

- 以下の材料を宇宙線研HPGe検出器でRIを測定し、MS製作に使った。
- (株)ユニオン昭和と共同研究、オルガノ(株)より、超純水の提供
- 選定されて材料を使って、日大船橋キャンパスでモレキュラーシーブス(4A型)を製作 (~0.5kg total)
 - 5A型はさらにイオン交換工程が必要

材料選定



4A type MS製作



さしあたっての目標
 ^{226}Ra 量: **<12mBq/kg**
 (1ppb for ^{238}U)

4A型 MSの材料

水酸化ナトリウム
 水酸化アルミニウム
 シリカ成分

material	^{226}Ra [mBq/kg]	^{232}Th [mBq/kg]	Company/Commercial name
NaOH	<12.2	<8.14	WAKO/NaOH for precise analysis
Al(OH) ₃	<9.1	<4.26	Nihon Keikinzoku / BHP39
Silica component	19.6±0.3	93.4±4.3	Nissan Kagaku/Snowtechs ST-30

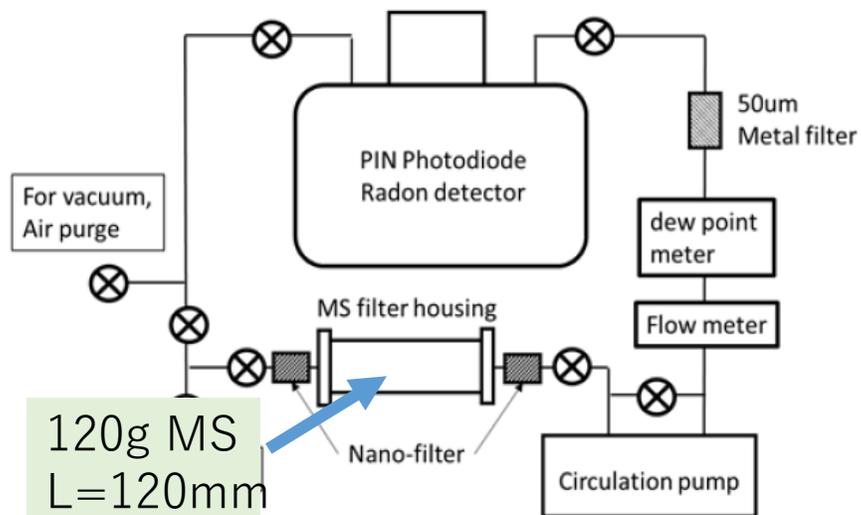
• 放射性不純物の測定

• HPGe検出器による測定: Target ^{226}Ra : < 12mBq/kg

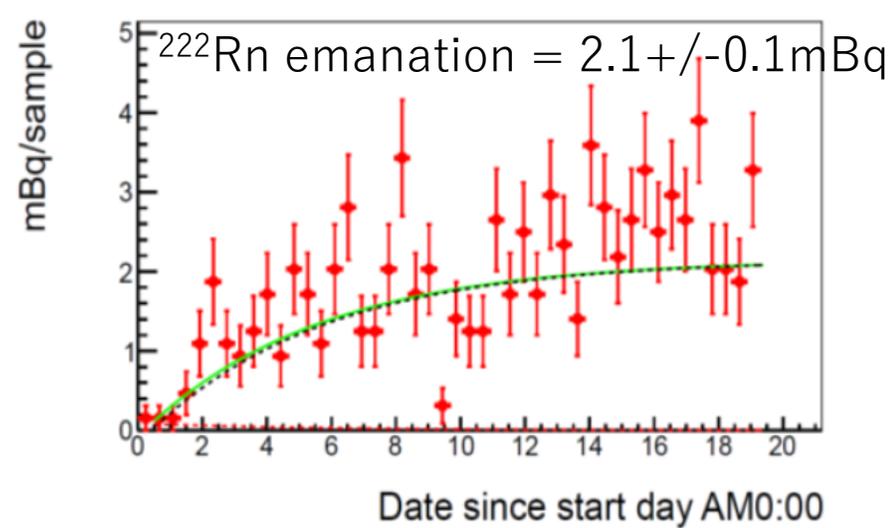
sample name	^{226}Ra [mBq/kg]	^{232}Th [mBq/kg]
sample 1	22.6±7.9	91.1±8.9
sample 1b (solidifying)	57.0±14.0	198.4±16.5
Sample 2	22.8±9.2	92.4±10.4

市販のMS ~5300 ~7000
 (固化したMSとの比較) ~99%削減 ~97%削減

• ラドンemanationの測定:



Target ^{222}Rn emanation : < 1mBq



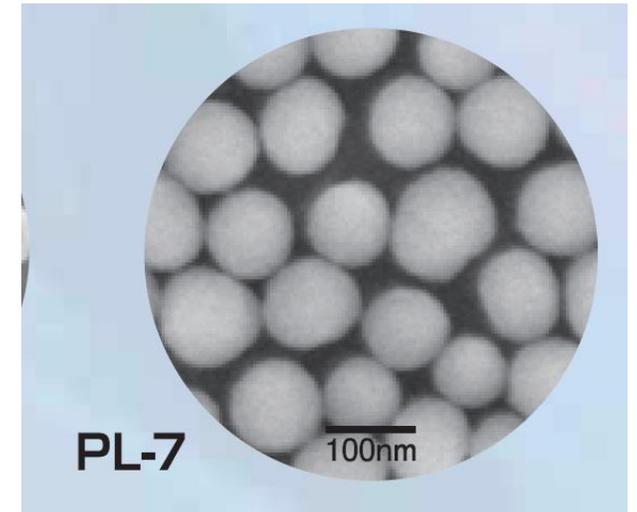
材料の選定により、
 極低放射能モレ
 キュラーシーブス
 を製作することが
 わかった。

*H. Ogawa et al.,
 JINST 15 P01039
 (2020)*

(2020年度) 極低放射能モレキュラーシーブスの製作 (材料の改良)

- シリカ成分の新材料として、扶桑化学工業PL-7を使うこととする。
- ~23% SiO₂, ~77% water
- 白濁のゾル状
- 低放射能材料 (U<ppb, ↓宇宙線研でのHPGe測定)
- ⇒東大院工、ユニオン昭和との共同研究で、4A型モレキュラーシーブスを製作

扶桑化学工業HPより



4A型 MSの材料	material	²²⁶ Ra[mBq/kg]	²³² Th[mBq/kg]	Company/Commercial name
水酸化ナトリウム	NaOH	<12.2	<8.14	WAKO/NaOH for precise analysis
水酸化アルミニウム	Al(OH) ₃	<9.1	<4.26	Nihon Keikinzoku / BHP39
シリカ成分	Silica component	<5.8	<4.6	扶桑化学工業 コロイダルシリカ PL-7

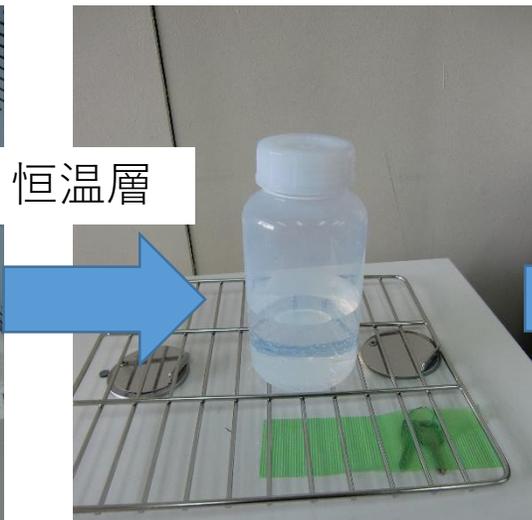
Expected ²²⁶Ra < 14mBq/kg

製作：日本大学理工学部船橋キャンパス

- 1) コロイダルシリカに水酸化ナトリウムを混合することで、溶かす。
- 2) 溶かしたコロイダルシリカをアルミネート（水酸化ナトリウム＋水酸化アルミニウム）、超純水（オルガノ（株）から提供）と混合し、結晶化
- 3) 洗浄、乾燥



コロイダルシリカ＋水酸化ナトリウム



溶かしたコロイダルシリカ

アルミネート、超純水

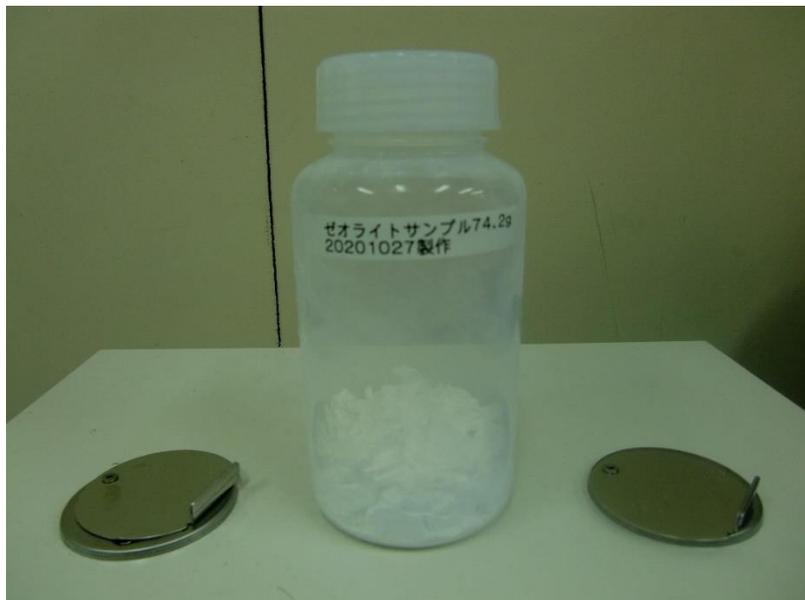


恒温層で結晶化



洗浄

- 1回の工程で、およそ80gのサンプル回収

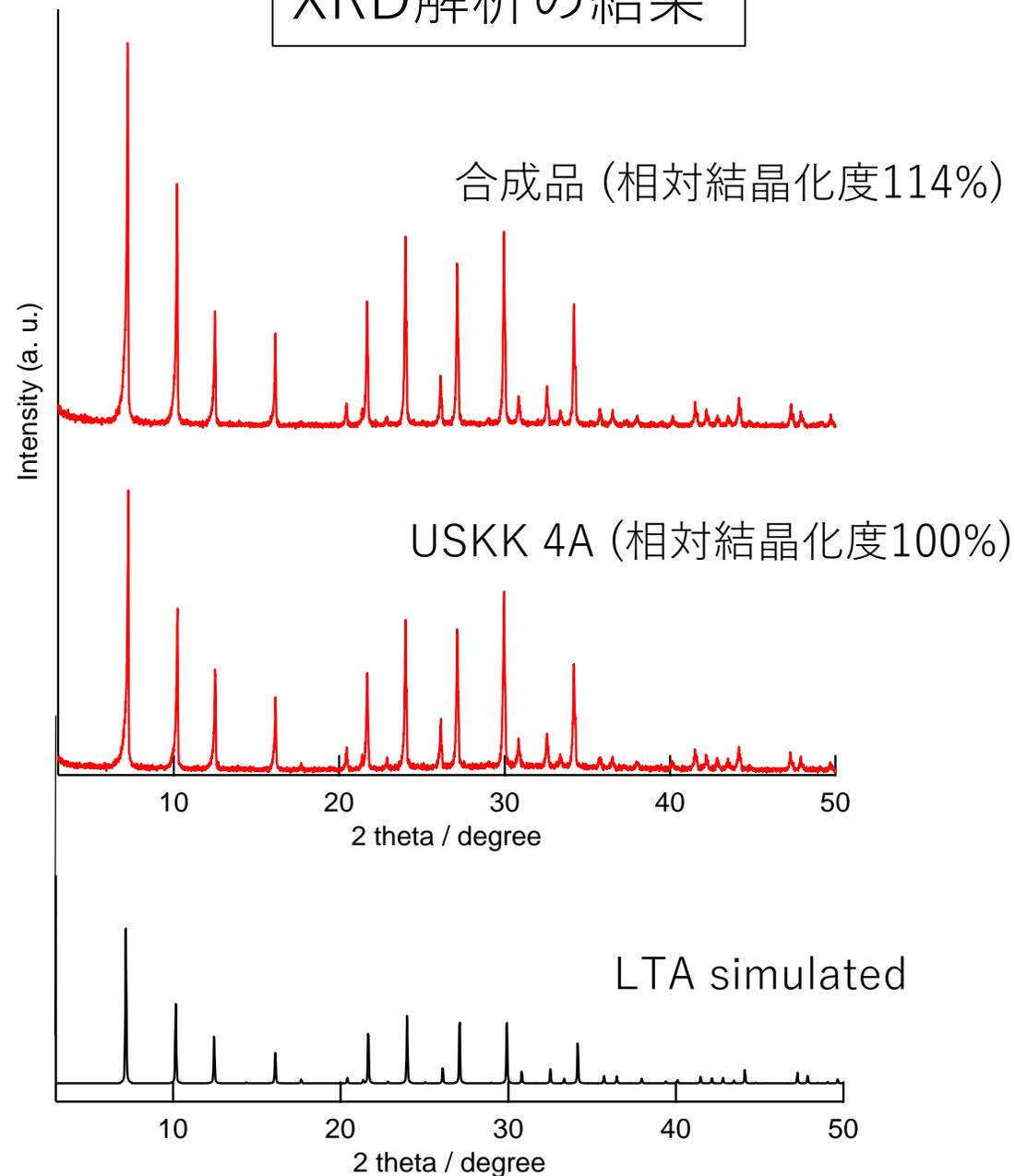


- XRD解析の結果、4A型になったことを確認した。

Nov. 19th 2020 日本ゼオライト学会講演：低バックグラウンド素粒子実験検出器用低放射能モレキュラーシーブスの開発

○小川 洋^{A*}・伊與木 健太^B・脇原 徹^B・安部 航^C・松倉 実^D・三村 均^D
(日本大学理工^A・東大院工^B・東大宇宙線研^C・ユニオン昭和(株)^D)

XRD解析の結果



HPGe検出器による放射性不純物測定:

Sample name	^{226}Ra (mBq/kg)	^{232}Th (mBq/kg)
Previous developed zeolite (MS sample 1)	22.6+/-7.9	91.1+/-8.9
Newly developed zeolite	62.4+/-17.2	74.9+/-15.1

Expected ^{226}Ra < 14mBq/kg



- 残念ながら、材料から期待される含有量まで到達しなかった。
- 製造過程におけるコンタミの可能性あり。
 - 使用容器等の洗浄が甘かった可能性。
 - 実験室のダスト？
 - ⇒ 洗浄、クリーン環境対策（ブースを設置）をした上での製作を実施する予定。
 - 材料、使用容器の再スクリーニング

まとめ

- 暗黒物質探索実験用希ガスからのラドン除去のために、極低放射能モレキュラーシーブスの開発を実施。
- => 材料の選定により、極低放射能モレキュラーシーブスを製作できることがわかった。
 - Hiroshi Ogawa et.al. “Development of low radioactive molecular sieves for ultra-lowbackground particle physics experiment”, Journal of Instrumentation 15 P01039 (2020)
- 高純度低RIコロイダルシリカによるモレキュラーシーブスの製作に成功した。
- 予定：
 - クリーン化対策をしたうえでのモレキュラーシーブスの製作
 - 綺麗なカルシウム成分材料（選定済）を使って、ラドン吸着用5A型モレキュラーシーブスの開発を目指す。