

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

令和三年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会

1/25-26 2022

日本大学理工学部 小川 洋

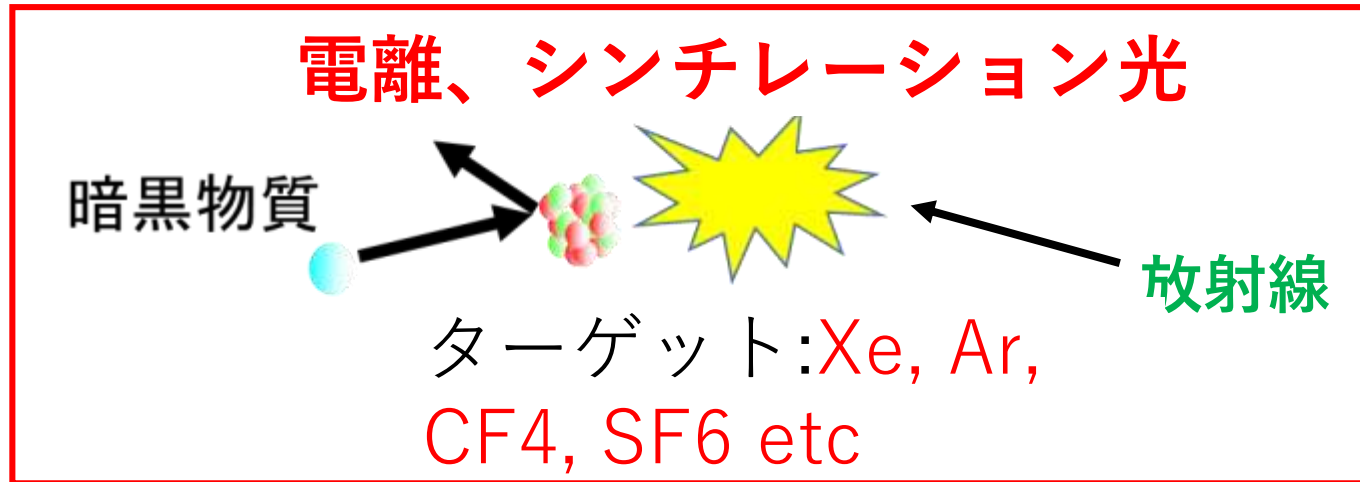
9/26 9:40

発表8分、質問2分

査定金額：70,000円（+ R2年度繰り越し70,000円）



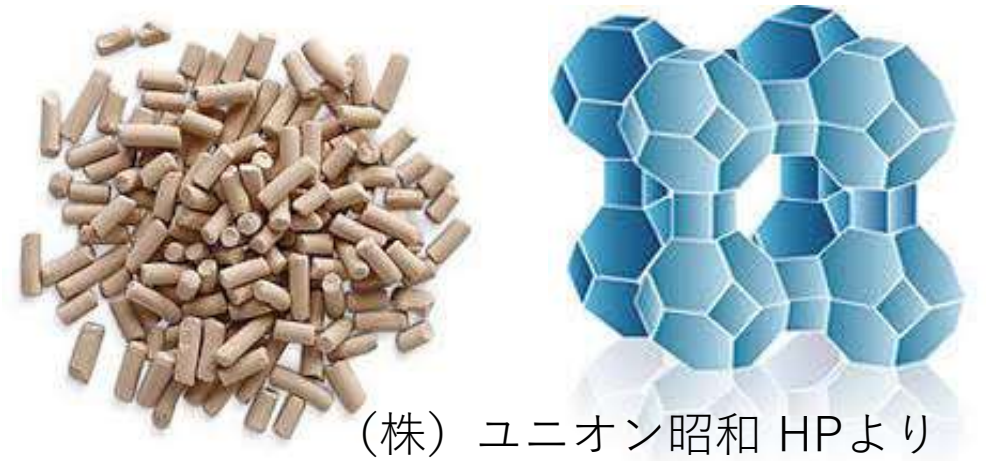
Introduction :



- 暗黒物質探索実験では、暗黒物質からの信号をガスの電離や、シンチレーション光でとらえる。
 - ⇒ 電離やシンチレーション光を減衰させる、ガス中の水分などの**不純物**を除く必要。
- 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)
- 吸着剤モレキュラーシーブ(MS)がガスの純化に使える可能性。

モレキュラーシーブ

- 特定のpore sizeを持っているので、ガス中から不純物を選択的に除去可能
- 水分除去：4A型 pore size $\sim 4 \text{ \AA}$
- 水分、ラドン除去: 5A型 $\sim 5 \text{ \AA}$

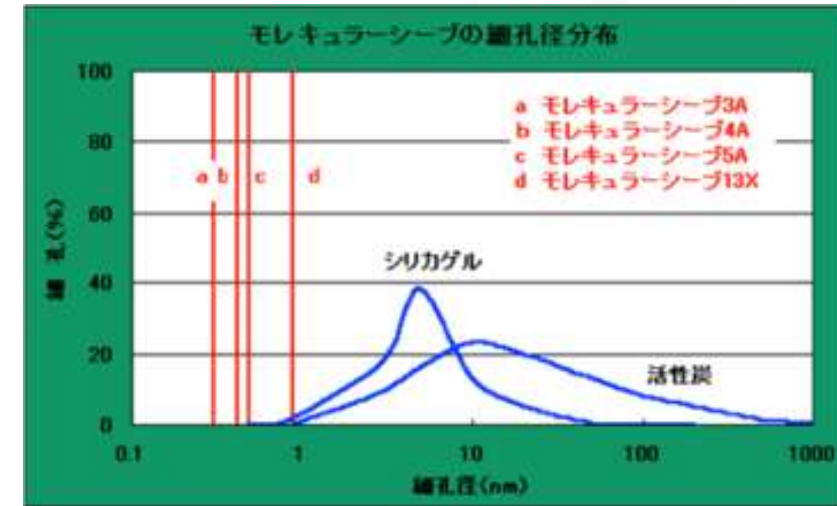


(株) ユニオン昭和 HPより

R.R. Marcelo Gregorio ... H.Ogawa et al., "Test of low radioactive molecular sieves for radon filtration in SF6 gas-based rare-event physics experiments" JINST 16 (2021) P06024

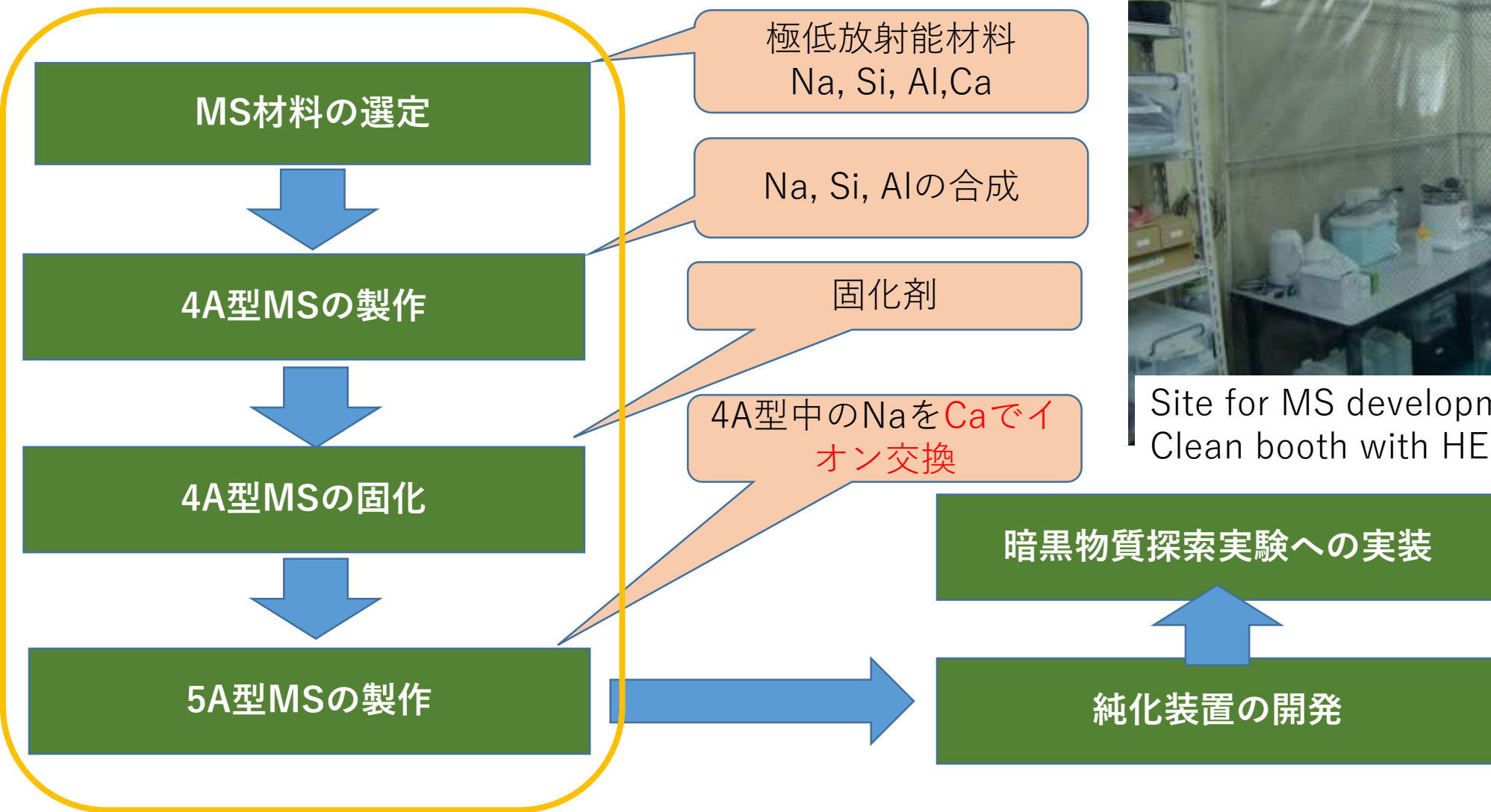
| 名称 | | 細孔径[\AA] | 主な陽イオン | 化学式 |
|----|------|---------------------|--------|---|
| A型 | Na-A | 4 [4A型] | Na+ | $\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}] \cdot 27\text{H}_2\text{O}$ |
| | Ca-A | 5 [5A型] | Ca+ | Na+をCa+でイオン交換 |

- 材料元素：Na, Al, Si, Ca



暗黒物質探索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: $^{226}\text{Ra} \sim 5\text{Bq/kg}$
 ⇒ 極低放射能のモレキュラーシーブスを独自に開発する。
 当面のRI目標： $< 12\text{mBq/kg}$ for ^{226}Ra ($< 1\text{ppb}$ for U)

本研究の進め方：



極低放射能材料
Na, Si, Al, Ca

Na, Si, Alの合成

固化剤

4A型中のNaをCaでイ
オン交換



Site for MS development in CST Nihon-U:
Clean booth with HEPA filter

材料、完成した
MSは、神岡の
HPGe検出器で
スクリーニング
した。

(1) 4A型MS製作：2020年度

- 1) コロイダルシリカ(Si)に水酸化ナトリウム溶液を混合することで溶解。
- 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(Na)溶液+水酸化アルミニウム(Al)）、超純水（オルガノ（株）から提供）と混合し、結晶化
- 3) 洗浄、乾燥 => **パウダー状4A型MS**



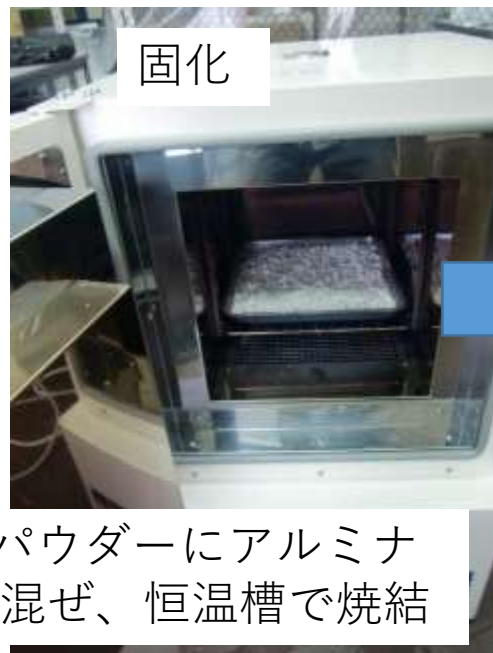
(2) 固化工程

2021年度

- パウダーのままでは、フィルターとして使えないので、固化剤により固化する。
- 市販MS → 粘土 (RI非常に多い)
- “アルミナゾル(日産化学)”というアルミベースの固化剤を選定



MS4Aパウダーにアルミナゾルを混ぜ、恒温槽で焼結



アルミナゾルに含まれる炭素が焦げて黒くなるのでその部分は除く。

(3) イオン交換用Ca (4A => 5A)

2021年度

- (old) 塩化カルシウム：RIが非常に多かった。
- (new) 高純度炭酸カルシウム
 - 大阪大 梅原氏より提供
 - 有意なRIみられず。
 - ⇒イオン交換用材料として選定
 - 炭酸カルシウムは、希硝酸（TAMAPURE-AA-10を希釈）で溶解し、固化したMS4Aを入れてイオン交換する。



| Sample name | ^{226}Ra (mBq/kg) | ^{232}Th (mBq/kg) |
|-----------------------------------|----------------------------|----------------------------|
| CaCl ₂ (Wako) | 1131+/-16 | 34.0+/-6.5 |
| CaCO₃ (Osaka-U) | <17.0 | <6.6 |



材料のRI summary

2021年度まで

| 材料名 | 主な元素 | 226Ra [mBq/kg] | 232Th [mBq/kg] | 備考 |
|-------------|------|----------------|----------------|-------------|
| 水酸化ナトリウム | Na | <12.2 | <8.1 | 和光純薬・精密測定用 |
| 水酸化アルミニウム | Al | <9.1 | <4.3 | 日本軽金属・BHP39 |
| コロイダルシリカ | Si | <5.3 | <4.6 | 扶桑化学工業 |
| アルミナゾル(固化用) | Al | <4.3 | <4.2 | 日産化学 |
| 炭酸カルシウム | Ca | <17.0 | <6.6 | 大阪大より提供 |

神岡のHPGe検出器で測定

| 材料 | 用途 | U (ICP-MS) | 備考 |
|----|-------------|--------------------|------------------------|
| 純水 | 合成、イオン交換、洗淨 | < 2 ppt | オルガノ (株) より提供 |
| 硝酸 | イオン交換 | < 10 ppt (メーカー公称値) | 多摩化学 TAMAPURE-AA-10 |

製作したMSのRI activity :

※市販MS: ^{226}Ra ~5Bq/kg

| Sample name | ^{226}Ra (mBq/kg) | ^{232}Th (mBq/kg) |
|------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| MS4A (powder) | 40.4+/-11.4 | 63.4+/-10.6 |
| MS5A (固化、 イオン交換後) | 14.2+/-7.0 | 58.8+/-8.6 |

- MS4Aは、まだ材料から期待されるactivityより多いが、MS5Aは、U換算で1ppb (~12mBq/kg for Ra)付近に到達。
- **ラドン吸着試験、emanation測定が進行中**

2021年度



まとめ

- 暗黒物質探索実験用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。
- 綺麗なカルシウム成分、固化材料を使って、ラドン吸着用5A型モレキュラーシーブスの開発に成功した。
- 予定：
 - 工程ごとのスクリーニング
 - 0(kg) 製作