

# 極低放射能モレキュラーシー ブスの改良と、暗黒物質探索 実験への実装

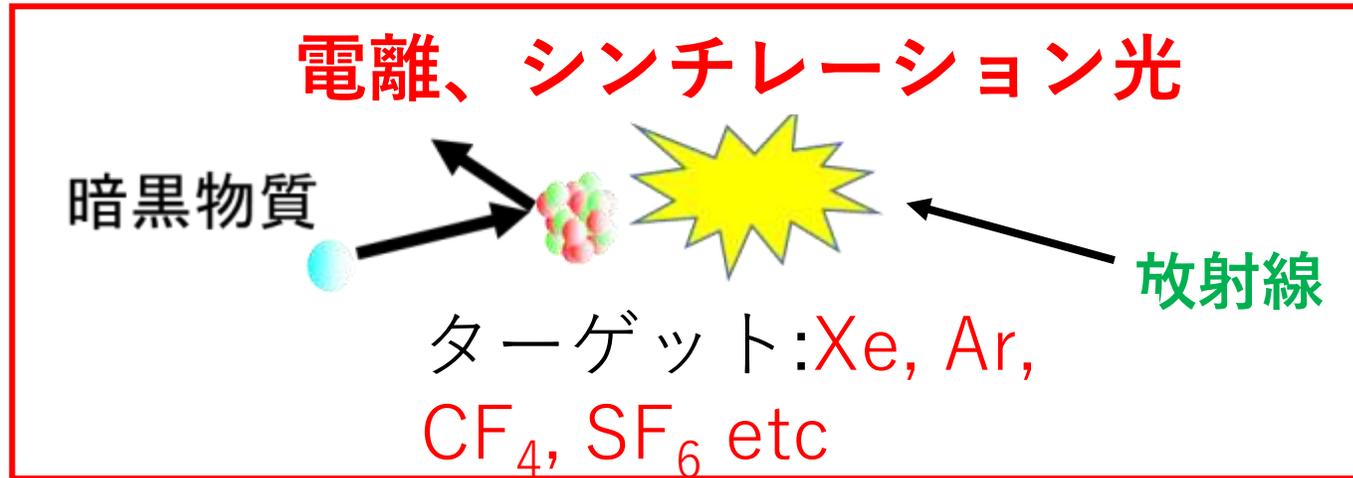
東京大学宇宙線研究所共同利用研究発表会

22<sup>nd</sup> Feb. 2024

日本大学理工学部 小川洋

査定金額：70,000円  
(神岡への旅費、消耗品)

# Introduction :

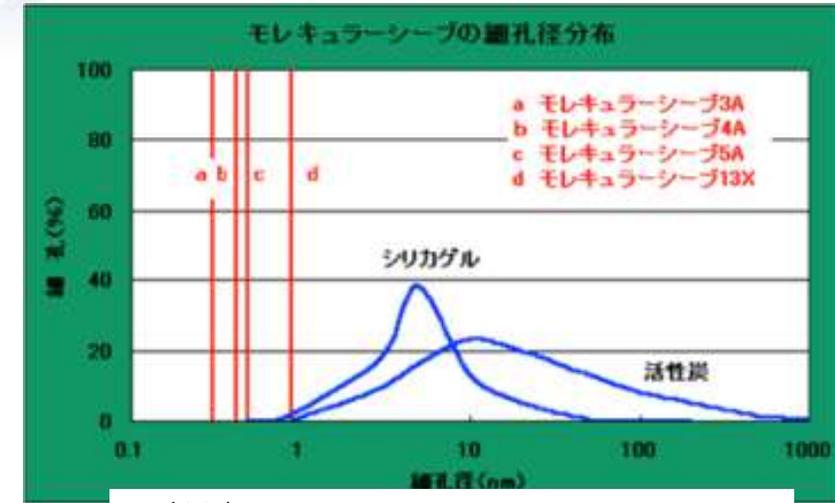
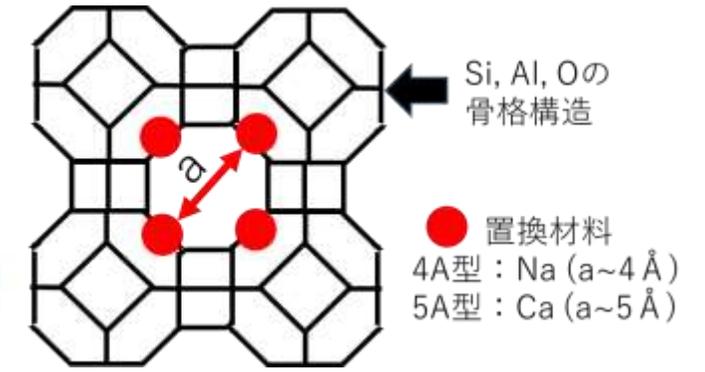


- 暗黒物質探索実験では、暗黒物質からの信号をガスの電離や、シンチレーション光でとらえる。
  - ⇒電離やシンチレーション光を減衰させる、ガス中の水分などの**不純物**を除く必要。
- 暗黒物質からの信号～放射線からの信号
  - ⇒ターゲットのガス中の**放射性不純物**を減らす必要。
  - 例：ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ )
- **吸着剤モレキュラーシーブ (ゼオライト) がガスの純化に使える可能性。**

# ゼオライト

- 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 ~4 Å
- 水分、ラドン除去：5A型 ~5 Å

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



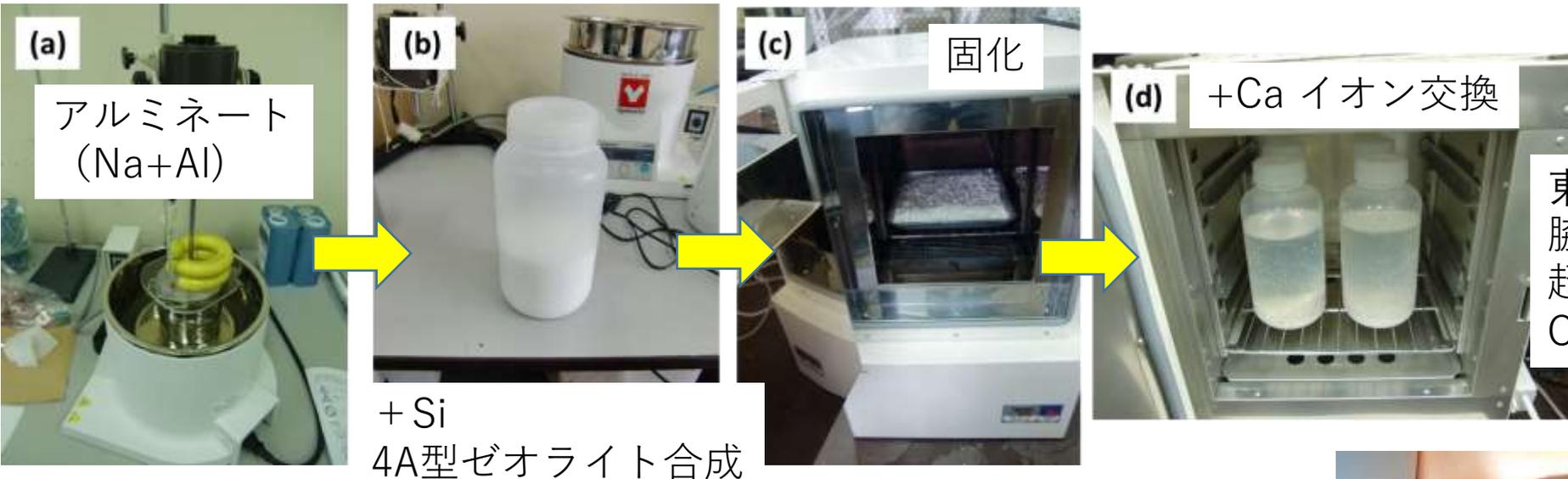
(株) ユニオン昭和 HPより

名称		細孔径[Å]	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。※市販のゼオライト： $^{226}\text{Ra} \sim 5\text{Bq/kg}$   
 ⇒ 極低放射能のゼオライトを独自に開発し、不純物の吸着能力を評価する。

# 5A型ゼオライトの製作(~2022年度)



東大院工学系研究科大久保・脇原研との共同研究で開発  
 超純水：オルガノ  
 CaCO<sub>3</sub>：阪大・梅原さん

Sample name	<sup>226</sup> Ra (mBq/kg)	<sup>232</sup> Th (mBq/kg)
<b>5A zeolite</b>	<b>14.2+/-7.0</b>	<b>58.8+/-8.6</b>

- 製作した5A型ゼオライトは、U換算で1ppb(~12mBq/kg for <sup>226</sup>Ra)近くまで到達

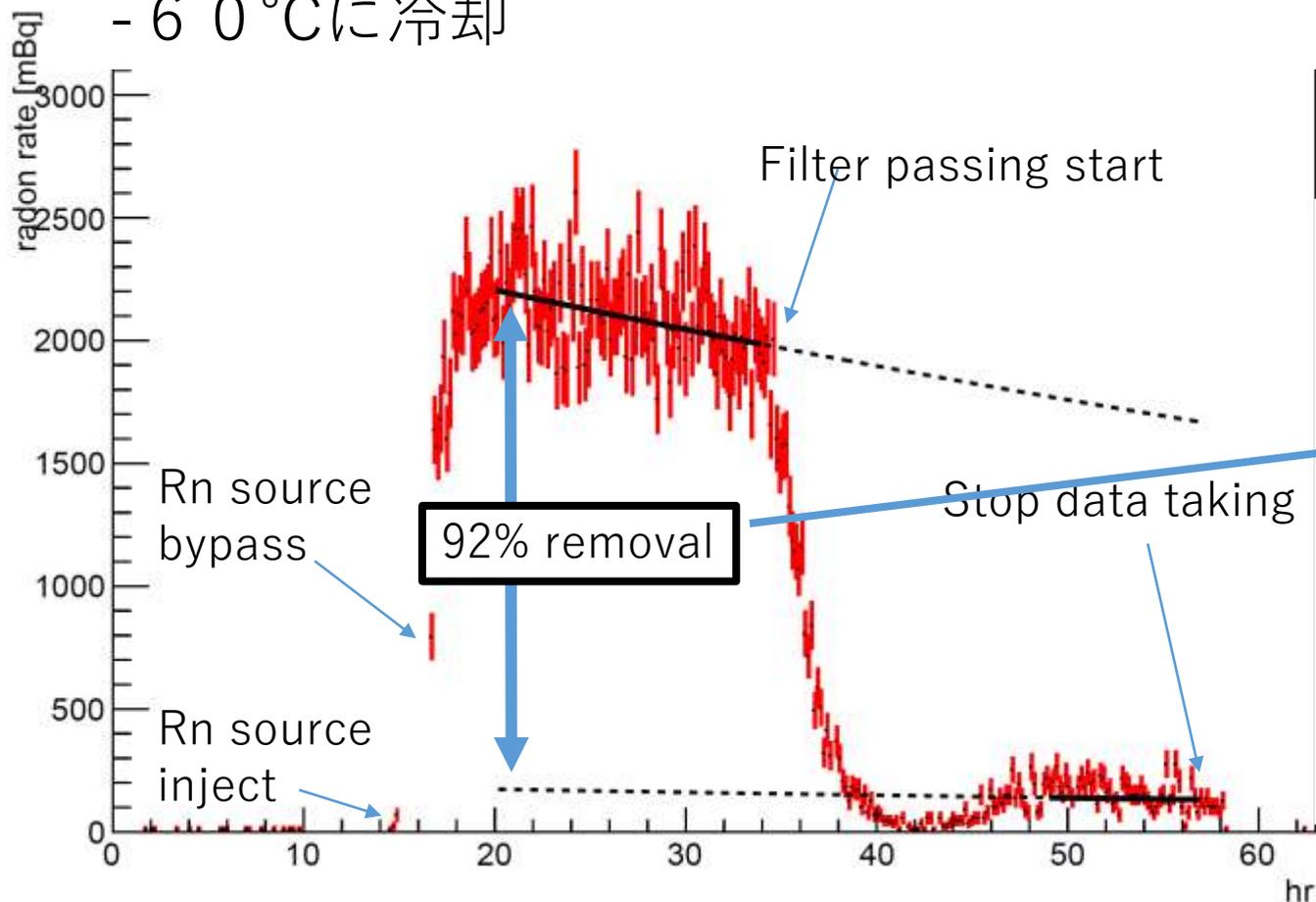
**Rn emanation @ラドン検出器:~18mBq/kg (常温)**



HPGe measurement @  
 ICRR Kamioka  
 宇宙線研・安部さん

- (本年度) ラドン除去効率の詳細測定
- 静電捕集型ラドン検出器=> $^{214}\text{Po}$ を観測

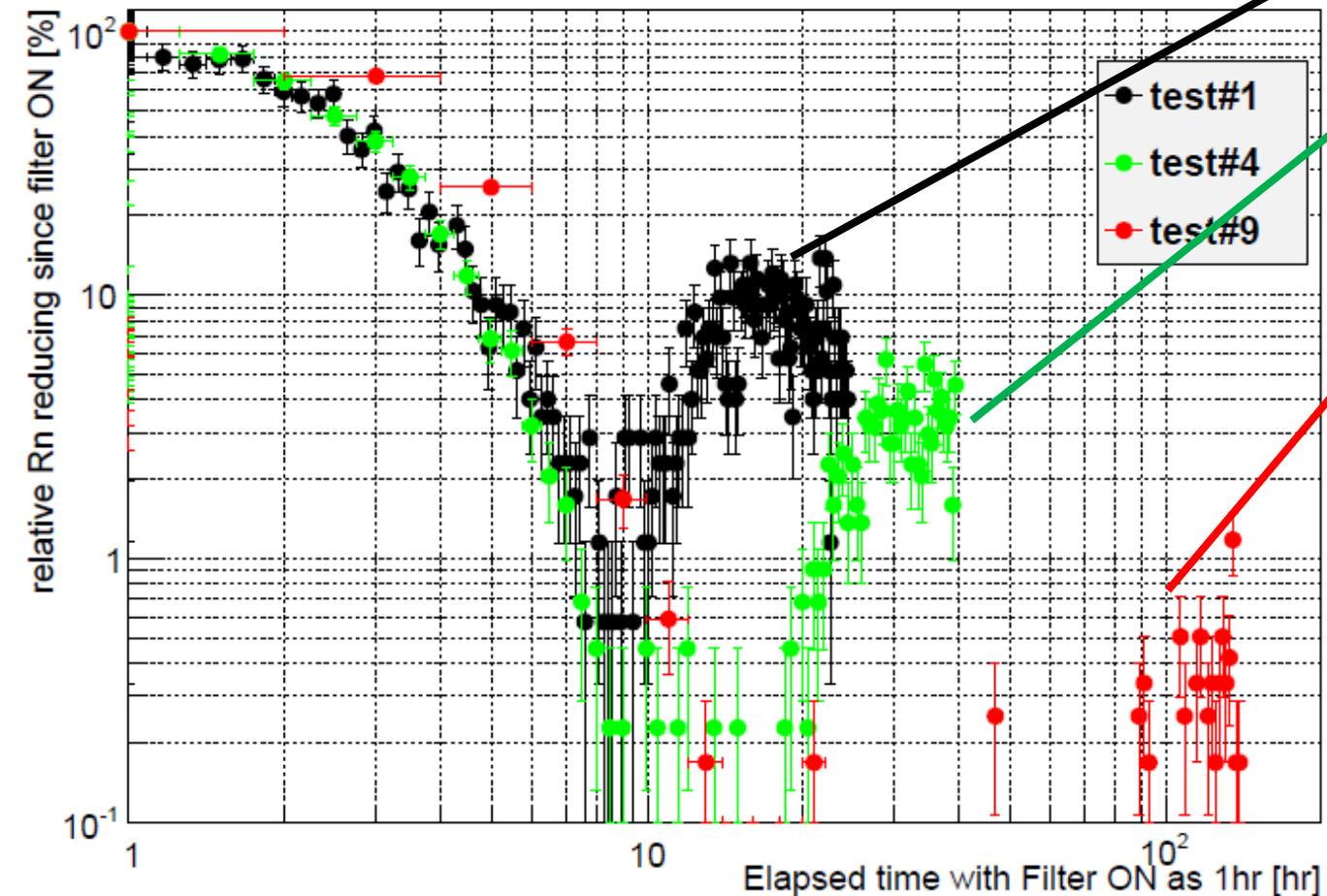
5A型ゼオライト39 gフィルター長~60cm,  
-60°Cに冷却



Test ID	Flow rate [L/min]	Temperature [°C]	Mass [g]	Gas	Removal efficiency [%]
#1	1	-60	39	Argon	92.1±1.8
#2	0.5	-60	39	Argon	91.1±1.8
#3	2	-60	39	Argon	88.2±1.8
#4	1	-96	39	Argon	96.6±1.8
#5	1	0	39	Argon	22.8±2.3
#6	1	-60	7	Argon	72.8±1.9
#7	0.7	-60	39	Air	65.6±1.9
#8	0.7	-96	39	Air	89.2±1.8
#9	0.5	-96	78	Argon	99.4±1.8

# Rn removal parameter dependence.

Test ID	Flow rate [L/min]	Temperature [°C]	Mass [g]	Gas	Removal efficiency [%]
#1	1	-60	39	Argon	92.1±1.8
#2	0.5	-60	39	Argon	91.1±1.8
#3	2	-60	39	Argon	88.2±1.8
#4	1	-96	39	Argon	96.6±1.8
#5	1	0	39	Argon	22.8±2.3
#6	1	-60	7	Argon	72.8±1.9
#7	0.7	-60	39	Air	65.6±1.9
#8	0.7	-96	39	Air	89.2±1.8
#9	0.5	-96	78	Argon	99.4±1.8



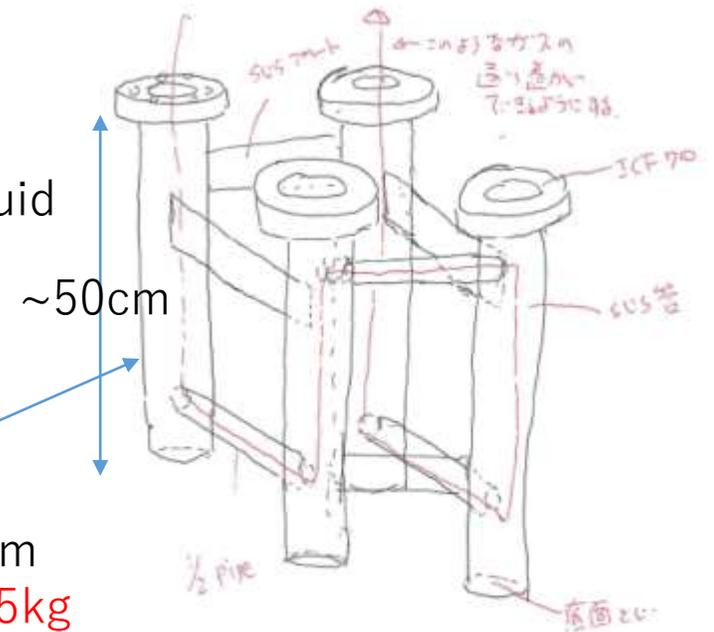
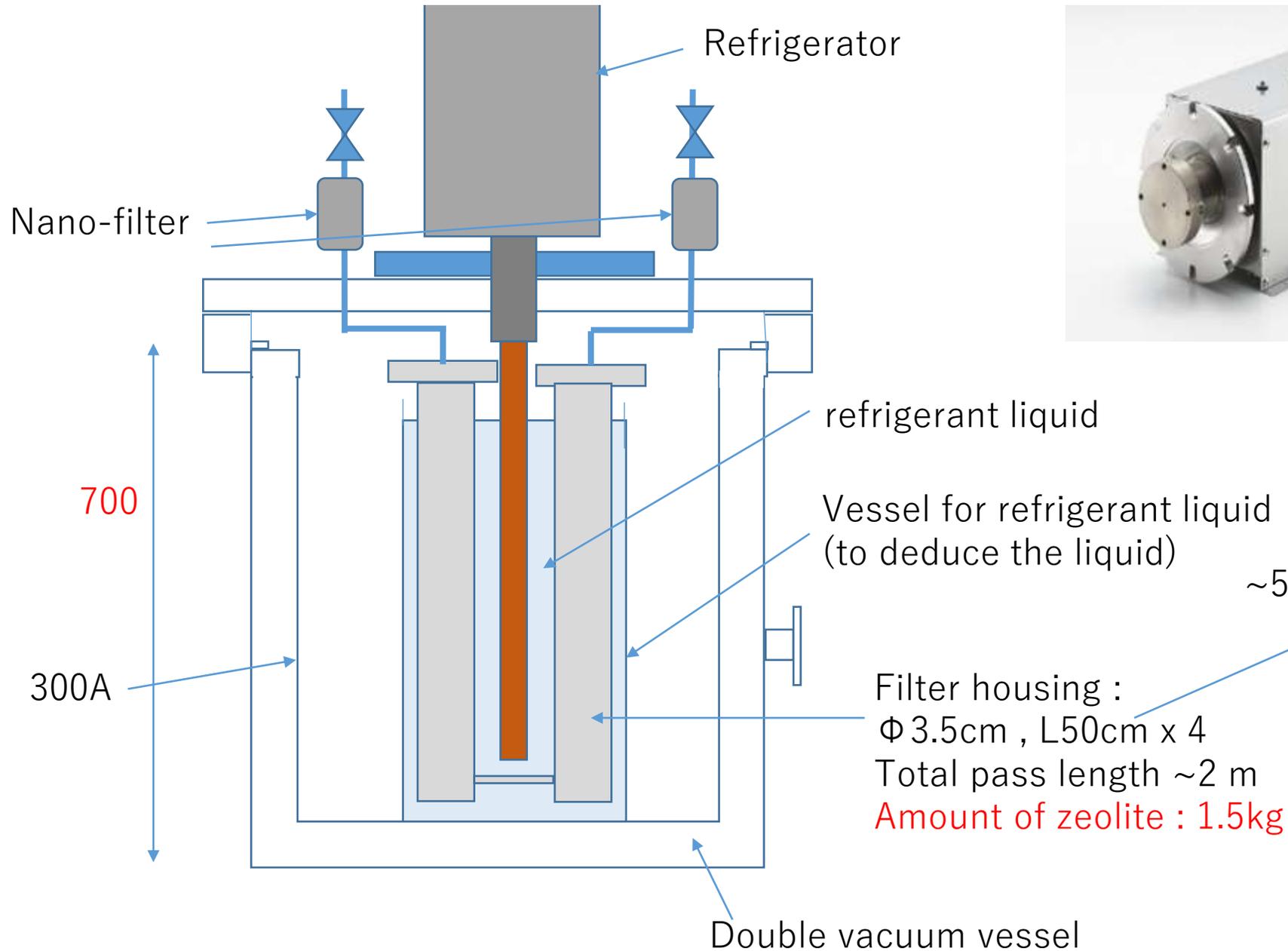
Paper published:

Measurement of radon emanation and impurity adsorption from argon gas using ultralow radioactive zeolite

Hiroshi Ogawa, Kenta Iyoki, Minoru Matsukura, Toru Wakihara, Ko Abe, Kentaro Miuchi and Saori Umehara

2024 JINST 19 P02004

# 大型フィルターシステム：暗黒物質探索実験への実装に向けて



# 【銀ゼオライトによるラドン吸着】

- 「銀ゼオライト」が非常に高い貴ガスの吸着特性を持つことが近年判明
- ラドンに対しても常温で高い吸着特性

<https://www.nature.com/articles/s41598-023-33253-5>

- **「銀ゼオライト」を地下実験での空気中のラドン除去に初めて応用する。**

- 状来の活性炭装置から、1/500程度の大きさの空気純化装置を実現する
- 国内トップクラスの専門家・製造業者の協力を得る。
  - 神戸大、東大宇宙線、日大
  - 東大(工)、シナネンゼオミック社、東ソー

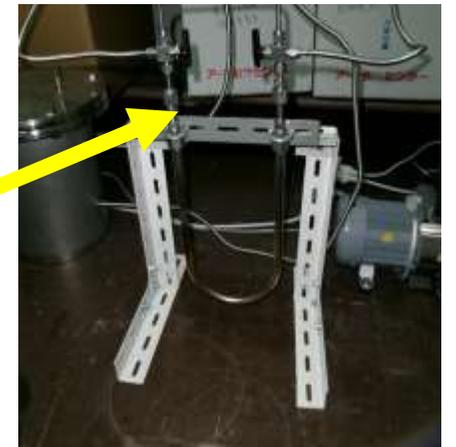
銀ゼオライトサンプル



予備試験セットアップ (日大)



銀ゼオライト入りフィルターハウジング  
SUS1/2inch ~ 60cm

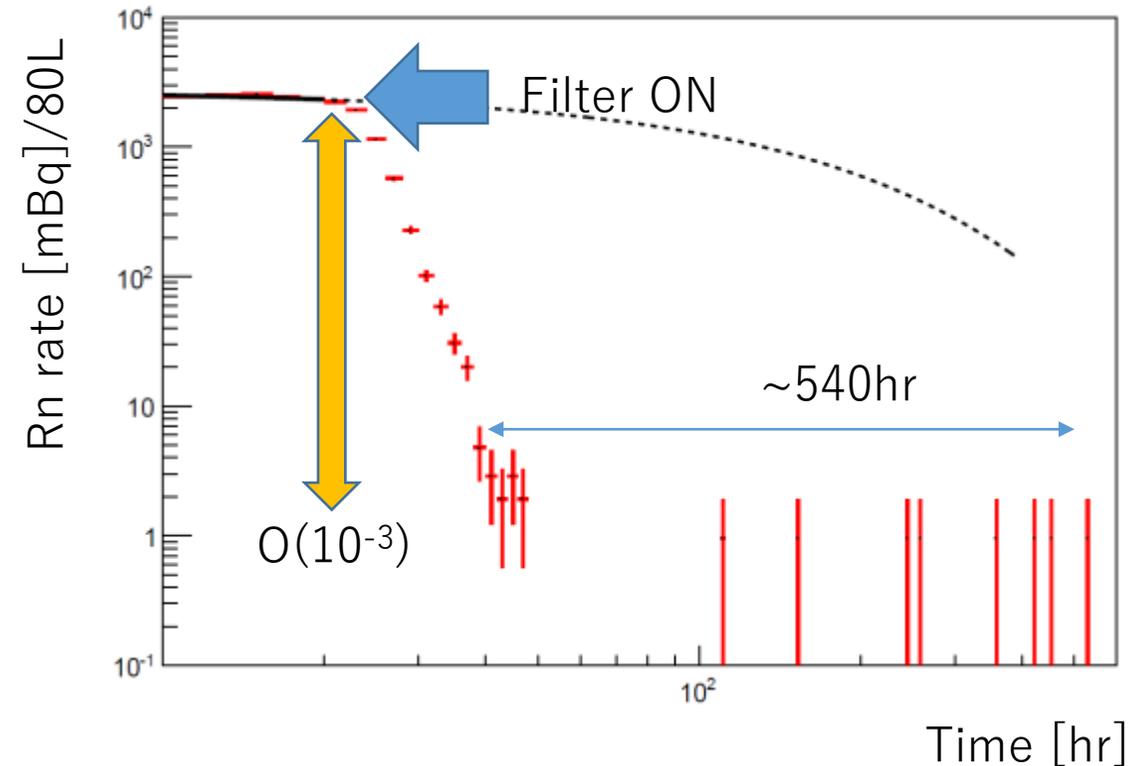


## Rn removal 予備試験例：

### 銀ゼオライトAg-FER(フェリエライト) 3%による空気からのラドン除去

- Filterハウジング（前頁右下写真）に銀ゼオライトAg-FER 3%を20.2g入れた。
  - 銀ゼオライト活性化：350°Cで6時間真空引き。
- 静電捕集型ラドン検出器でラドン量を測定。
- Gas：純空気を0.5L/minで循環。
- Rnを純空気に導入し、24時間後に銀ゼオライトfilterに通した (Filter ON)。
- Filterの温度は室温の状態、 $0(10^{-3})$ 以上のRn removal efficiencyを達成。
- Filter ON後、Rn rateが $\sim 0$ になってからの経過時 $\sim 540\text{hr} \sim 23\text{ days}$ で、明確なbreakthroughは観測されなかった。

静電捕集型ラドン検出器で測定した純空気中ラドン量のtime profile



# まとめ

- 日大理工学部で製作した極低放射能5A型ゼオライトによるラドン emanation, 吸着試験を実施.
  - 材料、工程サンプル、完成品を宇宙線研HPGe検出器でRI測定.
  - Emanation :  $3.0 \pm 0.3$  mBq/filter :  $\sim 18$  mBq/kg
  - アルゴンにおける Removal efficiency :  $> 90\%$  @ フィルター長 $\sim 60$ cm
- => H.Ogawa et.al, 2024 JINST 19 P02004
- 大型フィルターシステムを開発中
- 銀ゼオライトによるラドン吸着の研究を進めている