

低バックグラウンド実験装置用 モレキュラーシーブスの開発



新学術領域「地下宇宙」合同研究会
(オンライン)

2020年6月2日(火)~4日(木)

日本大学理工学部

小川 洋

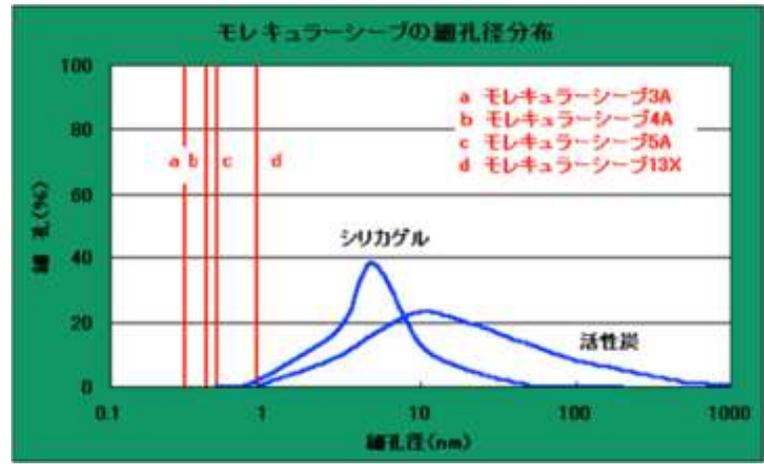
- Contents :
 - Introduction
 - 極低放射能モレキュラーシーブ(MS)の製作
 - 今後の予定
 - まとめ

新学術計画研究B02：方向に感度
をもった暗黒物質探索（分担）

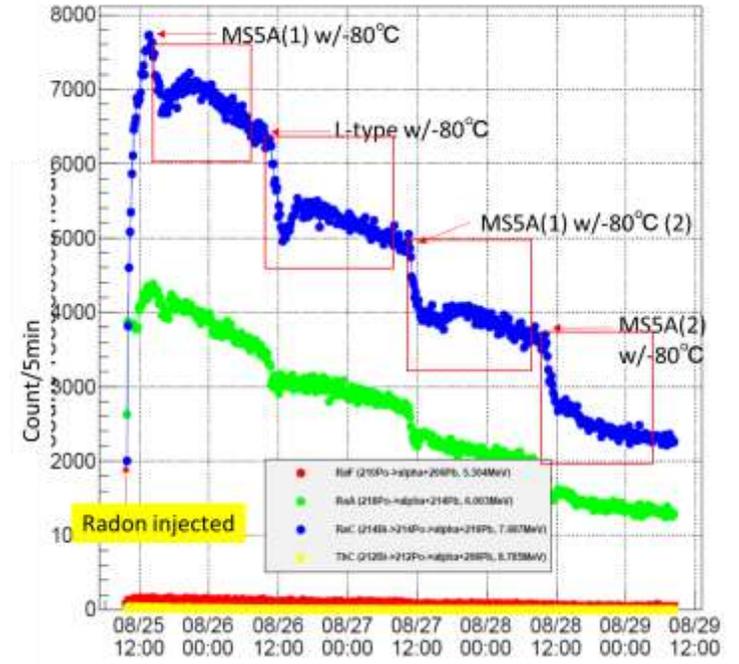
モレキュラーシーブス(MS)

- モレキュラーシーブス：特定のpore sizeに従って、不純物を吸着できる。
- 3A type ~ 13X type (3 Å ~ 13 Å)まで様々なタイプある。
- 5A type (5 Å pore size)にラドン吸着能力がある。
 - SF6 : A. C. Ezeribe et al 2017 JINST 12 P09025
 - キセノン : 小川|2018
- 市販のMS : 5.3Bq/kg for ^{226}Ra
- ⇒極低放射能モレキュラーシーブス(MS)を開発する。
 - 極低放射能材料の選定し、MSを自前で製作する。
 - **(株)ユニオン昭和との共同研究**
 - 今回は、4A type (4 Å pore size) を製作した。
 - 4A typeにCa イオン交換をすることで、5A typeの製作ができる。

(株)ユニオン昭和HPより



モレキュラーシーブスによるキセノンからのラドン吸着試験(2018 小川)



極低放射能モレキュラーシーブスの製作：材料選定

- 以下の材料をHPGe検出器でRIを測定し、今回の製作に使った。
- また、オルガノ（株）より、超純水の提供を受けた。

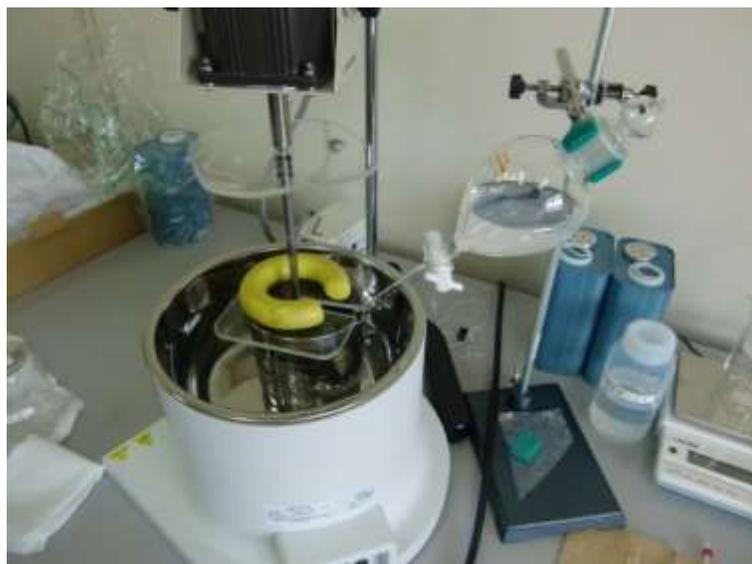
さしあたっての目標U(middle)
量：**<12mBq/kg (1ppb)**



4A type 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	19.6±0.3	93.4±4.3	Nissan Kagaku/Snowtechs ST-30

製作：日本大学工学部船橋キャンパス

- 選定された材料を用いて、モレキュラーシーブスを作成
- 1) 水酸化ナトリウム、水酸化アルミニウム、純水によるアルミネートの製作。
- 2) アルミネートにシリカ成分を滴定して、モレキュラーシーブスの結晶化。
- 3) 固化



sample name	sample 1	sample 2	sample 3	commercial MS
water adsorption capacity [g/100g]	23.2	18.6	23.3	> 20
the ratio of crystallization [%]	69.4	53.7	70.0	> 80

←製作した4A type MSの水分吸着能力の評価。市販とそん色ない水分吸着能力を持つ

放射性不純物の測定

HPGe検出器による測定:

- 固化前、固化後で測定を実施
- 市販のMSに比べて ^{226}Ra で99%の放射能削減に成功した。
- 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。

市販のモレキュラーシーブス



製作したモレキュラーシーブス

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

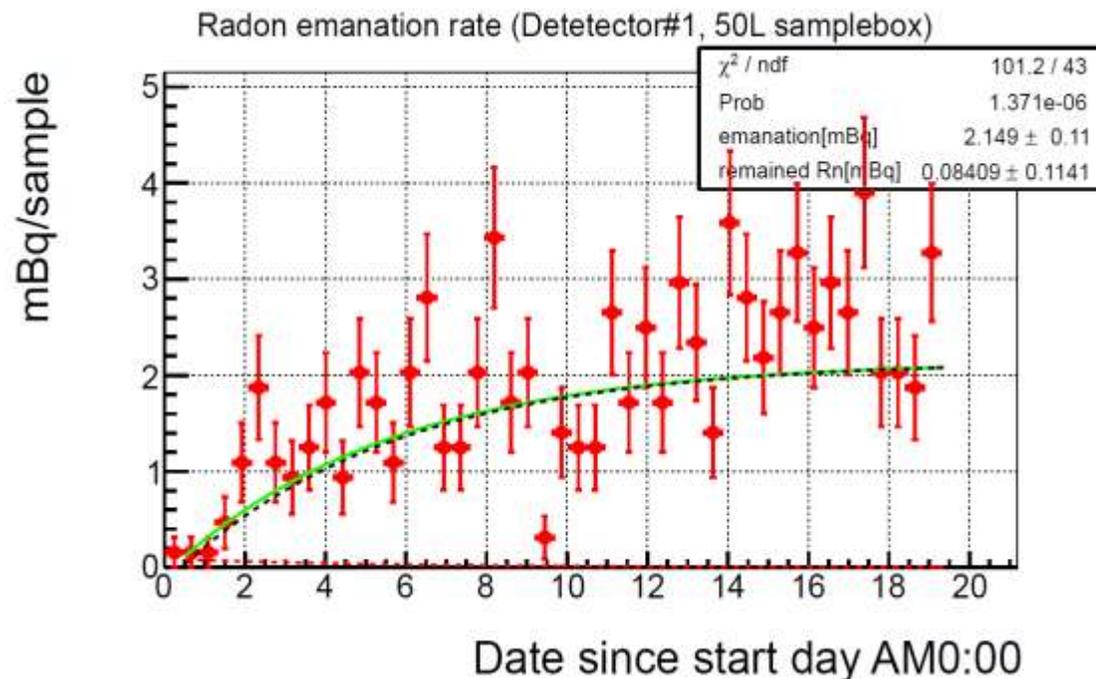
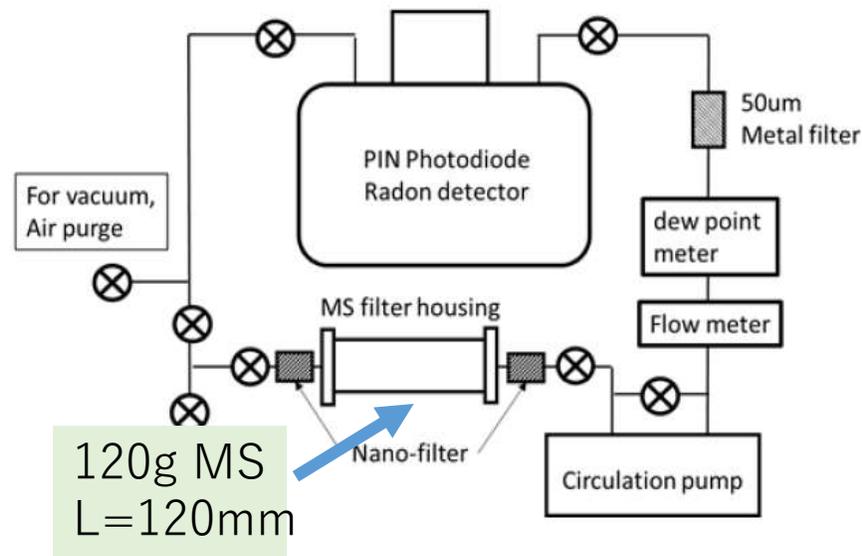
← 固化したMS

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



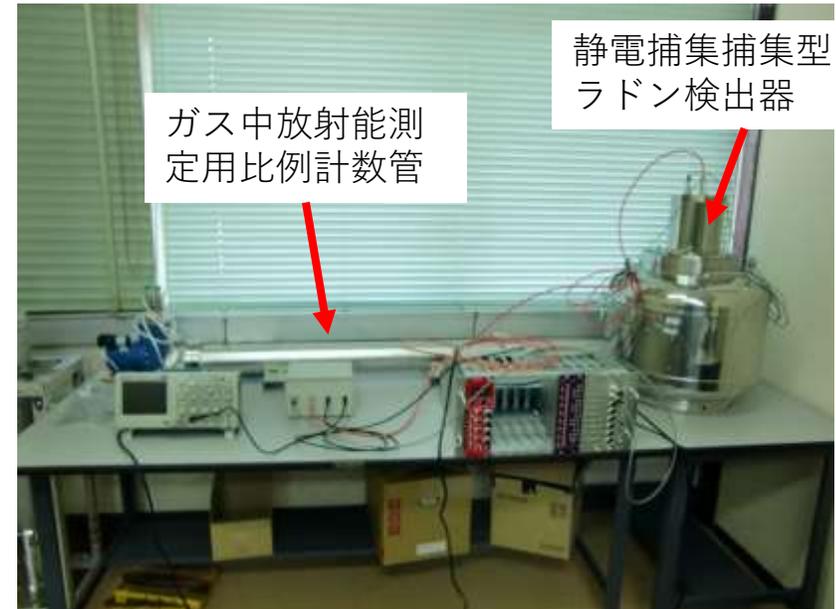
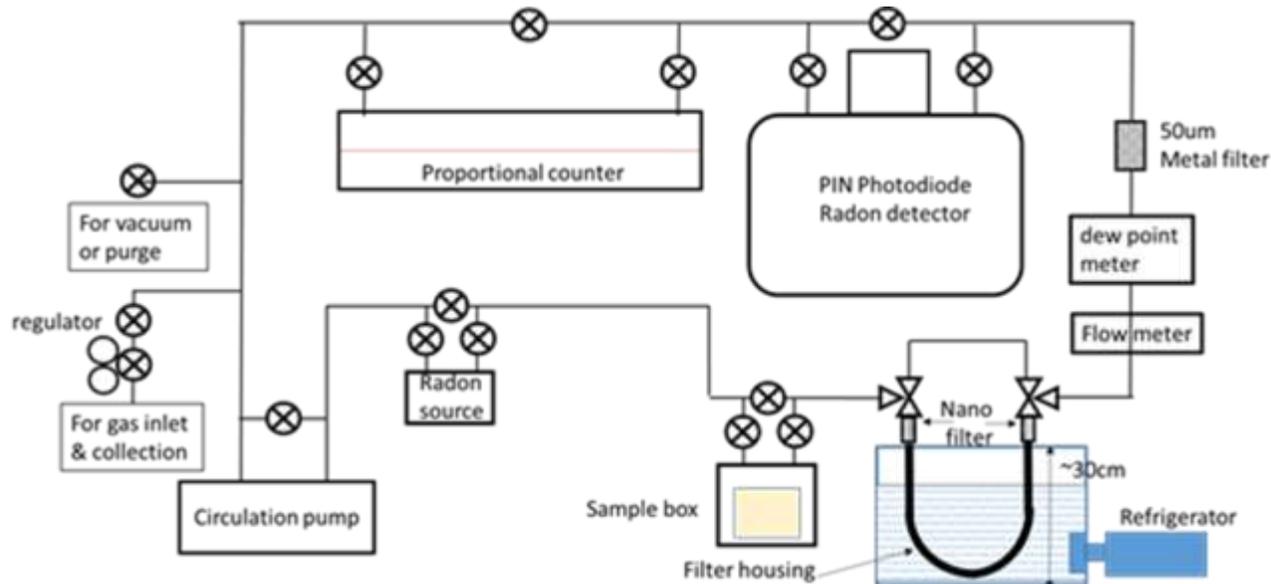
ラドン湧き出し測定：

- 5/21-6/10 @ Kamioka observatory, ICRR.
- Sample 1b (MS4A 固化) 121.4 g を測定
- 2.1 ± 0.1 mBq/sample \rightarrow 17.7 ± 0.9 mBq/kg 相当のラドン湧き出しを確認。
- ゲルマニウム検出器の結果 57.0 ± 14.0 mBq/kg のおよそ $1/3 \rightarrow$ diffusion の影響と考えられる。



今後の予定

- 4A typeをさらに高純度化⇒高純度シリカ成分の選定とMS製作。
 - (株)ユニオン昭和及び東大工学部脇原研と実施。
- 5A type製作のための高純度Ca材料の選定⇒阪大梅原さんより
- 製作したモレキュラーシーブスによるラドン吸着試験 (協力：神戸大)
 - SF6 (方向感度DM探索用ガス) : シェフィールド大で実施中
 - キセノン : 日本大学理工学部で測定セットアップを開発中



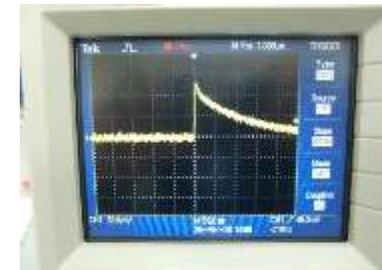
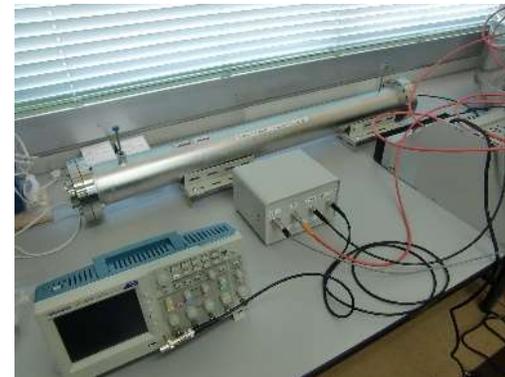
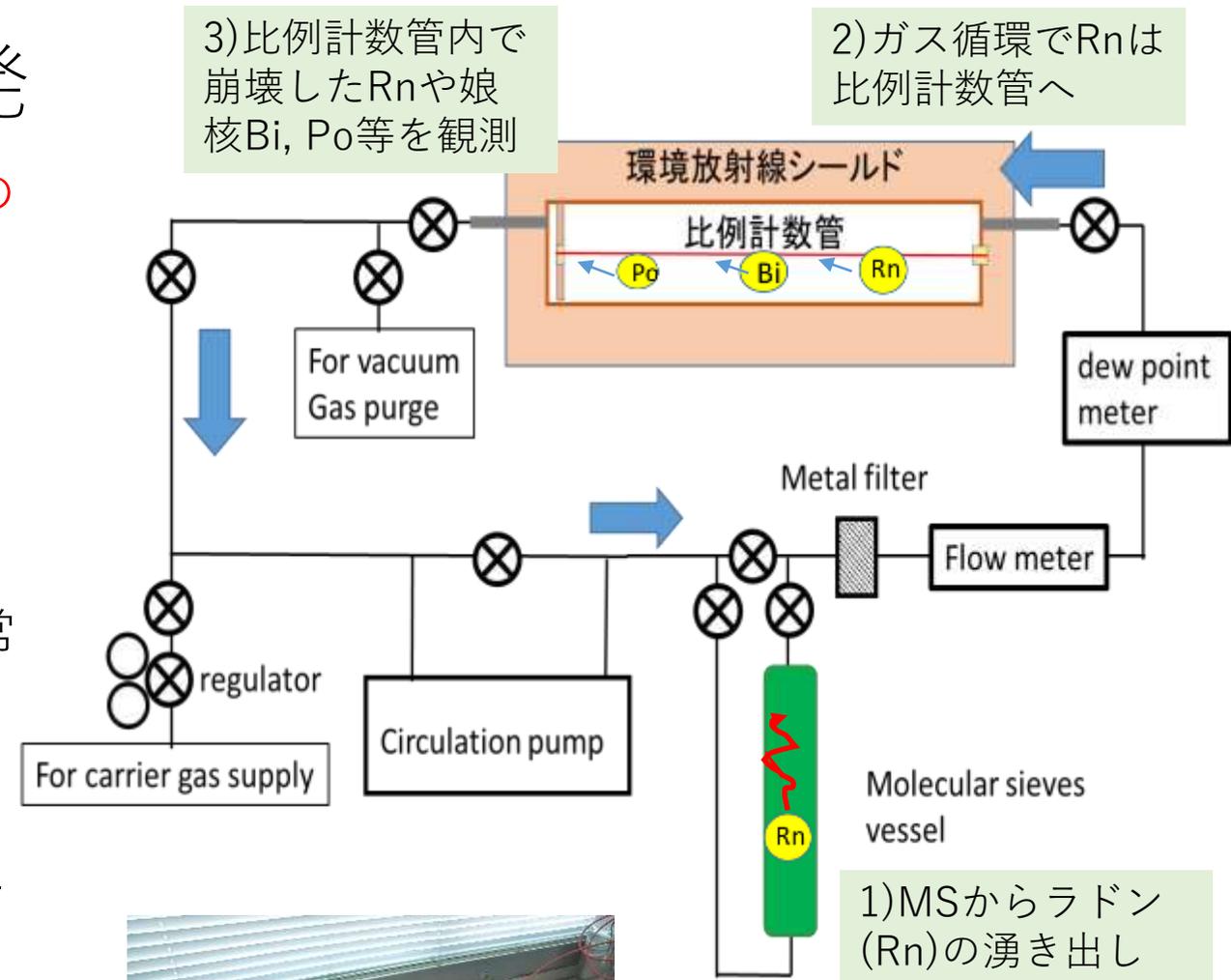
極低放射能比例計数管の開発

- 既存の技術 + 極低放射能技術による高感度での独自の放射能精密測定

- 1) 極低放射能部材による比例計数管を本申請で製作
 - 計数管本体に無酸素銅を、絶縁部としてサファイヤを使用。
- 2) 比例計数管の容量を大きくする
 - $\Phi 10\text{cm} \times L 100\text{cm}$ ~ 容量8リットル (通常の比例計数管は数百cc程度)
- 3) シールドによる外部由来放射能の削減: 鉛シールドを採用
- 高圧電源、計測回路 → 観測された放射能のエネルギー分布をリアルタイムで計測する。

= > 日大船橋キャンパスで製作中

R1研究助成・財団法人精密測定技術振興財団



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。
- 本研究の結果：
 - Hiroshi Ogawa et.al. “Development of low radioactive molecular sieves for ultra-lowbackground particle physics experiment”, Journal of Instrumentation 15 P01039 (2020)
- さらなる材料選定で、ラドン吸着用5A typeモレキュラーシーブスの開発を目指す。
- ラドン吸着試験が進行中。そのための静電捕集型ラドン検出器と共に、大型比例計数管を開発中。

Acknowledgments

- 新学術計画研究B02：方向に感度をもった暗黒物質探索（分担）
- 科研費基盤C：極低放射能モレキュラーシーブス開発による暗黒物質探索実験におけるラドン削減
- R1研究助成・財団法人精密測定技術振興財団：極低放射能比例計数管による気体中放射能の精密計測
- 宇宙線研究所共同利用：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