

銀ゼオライトを用いた空气中Rn除去性能の研究

神戸大学 粒子物理学研究室 M1 曾根貴将



共同研究グループ

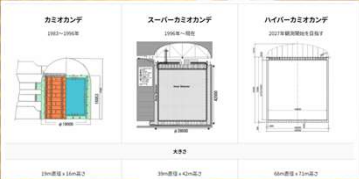
竹内康雄(神戸大学), 小川洋(日本大学), 中野樹樹(富山大学)
脇原徹(東京大学), 伊東木健太(東京大学), 松倉実(東京大学)
谷口明男(シナネンゼオミック), 平野茂(東ソー)
Supported by JSPS KAKENHI Grant Number 24H02243

文部科学省 科学研究所助成事業 学術最先端研究(A)

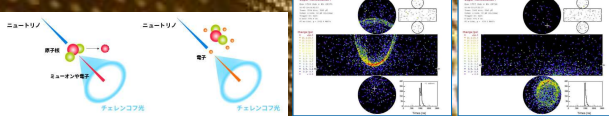
極稀事象で探る宇宙物質の起源と進化
新たな宇宙物質観測創生のフロンティア

スーパーカミオカンデ (SK)とハイパーカミオカンデ(HK)

- 目的: ニュートリノの諸性質の解明、陽子崩壊観測による大統一理論証明
- SK: 世界最大の地下に設置された水チェレンコフ宇宙素粒子観測装置
- 主な成果: ニュートリノ振動の発見(2015年ノーベル物理学賞)
- HK: 2027年観測開始予定 → 総体積はSKの約5倍
- 期待される成果: 約10年の観測でCP非対称性の発見

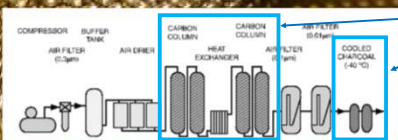


検出方法
ニュートリノがたたき出した高速荷電粒子が走ることによってチェレンコフ光が発生
→ 水タンク壁面の光電子増倍管で検出



SKの空気純化装置

- 地下実験ではラドン-222(^{222}Rn)が主なバックグラウンドになる
- スーパー(ハイパー)カミオカンデ: $<1\text{mBq/m}^3$ のRn除去空気供給が必要
- SK: 活性炭を用いたRn除去システム[1]
- HK: 実験装置の巨大化に伴いRn除去システムの増強が望ましい



SKの空気純化システム
常温活性炭($\sim 8\text{m}^3$)と冷却活性炭でRnを吸着して空気中から除去する

SKの装置をそのままスケールすると大きくなりすぎる(掘削がハイコスト)
もっとコンパクトにしたい

銀ゼオライト

- 非常に高い空气中Xe, Rn吸着特性を示す報告有り[2,3]
- HKのRn除去システムに応用できるかも?

先行研究の結果		Rn除去能力の指標 → Rn吸着係数(K)		
試料	$m [\text{kg}]$	$RT [\text{day}]$	$K [\text{m}^3/\text{kg}]$	
Ag-ZSM-5 [2]	8.85×10^{-3}	10.69	3500	
Ag-BTS-10 [2]	16.3×10^{-3}	19.16	3400	
活性炭線維 [4]	4.65	1.9	6.47	
粒状活性炭 [4]	26.9	10.16	4.96	
冷却活性炭(SK) [5, 6]	18.8	16.5	379	

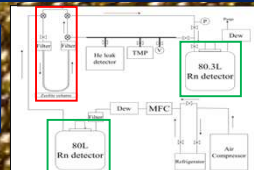


銀ゼオライトサンプル
フェリエライト(FER)は正方晶系のゼオライト[7]
東ソー製のFERにシナネンゼオミックが銀を特別に添加した。

1-pass試験

試験概要

- 神戸大学2F実験室の空気を取り込み露点と流量を調整して配管に送る
- カラムの前方と後方でRn濃度の計測を行い、Rn除去能を評価した。



解析方法(循環試験)

Rn吸着係数(K)の定義

Rn吸着能力の指標としてRn吸着係数(K)を使う

$$\rightarrow K = \frac{FR \times RT}{m} [\text{m}^3/\text{kg}] \quad (FR: \text{空気流量}, RT: \text{保持時間}, m: \text{質量})$$

保持時間(RT)とRn吸着係数(K)の評価

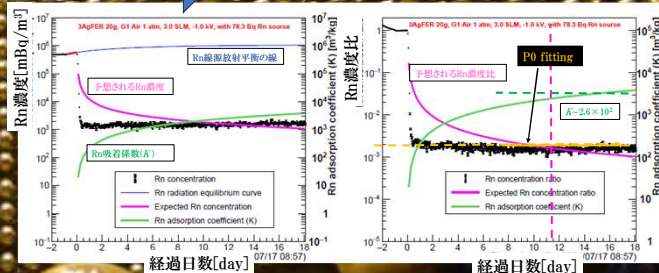
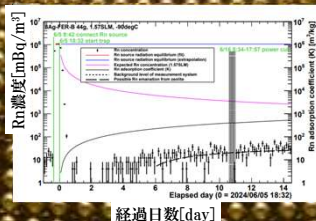
- Rn線源を接続し、空気を循環させているため、放射平衡では系内に78.3BqのRnが分布する(グラフ青線)。
- U字カラム内とRn検出器内のRn量の比がそれぞれのRn滞在時間の割合と一致していると仮定する。(配管の体積は無視)
- Rn検出器内のRn濃度の割合(Rn濃度比)
- (予想される)Rn濃度比 $= \frac{T}{RT+T}$

- 一方、Rn濃度比 $= \frac{\text{カラム経由Rn濃度}}{\text{カラムバイパス時Rn濃度}}$ で測定できる。
- Rn濃度比からRT, RTからKを評価する。

8Ag-FER-B
44g, 1.57SLM, -90°C

吸着しすぎて計測に時間かかりそう
→ 条件を厳しくして試験

3Ag-FER
20g, 3.0SLM, -90°C



解析結果

循環試験

$m = 0.020 \text{ kg}, 3.0 \text{ SLM}$

1-pass試験

$m = 0.020 \text{ kg}, 3.0 \text{ SLM}$

試料	$RT [\text{day}]$	$K [\text{m}^3/\text{kg}]$
3AgFER (-70°C)	2.65 ± 0.02	573 ± 4
3AgFER (-90°C)	11.97 ± 0.06	2563 ± 14
8AgFER-B (-90°C)	30.12 ± 0.37	6506 ± 81
8AgFER-D (-90°C)	21.38 ± 0.16	4618 ± 35

8Ag-FER-Bが最も優秀
→ 銀の寄与が大きい
→ B型添加が良い

Rn除去率の見積り
 $R = 2 \frac{T}{T+RT}$ ($\tau=3.8\text{day}$)を使う
 $T = 30.12 \rightarrow R \sim 4.0 \times 10^{-3}$
約3桁落ちてほしい

結果
 $R = 9.2 \times 10^{-5}$
約4桁除去できた

まとめと今後の展望

銀ゼオライトを用いて6種類のラドン吸着試験をした

- 8AgFER-B(44g)の循環試験
 - 活性炭と比較して常温で高い吸着能力を確認した
 - Rnを常温で $\frac{1}{100}$ 程度まで除去できた
 - 目標領域($<1\text{mBq/m}^3$)でも使用できそうだ
- 条件をそろえた(20 g, 3.0 SLM)銀ゼオライト循環試験
 - 露点温度 -90°C 程度が必要(-70°C では不十分。湿度に敏感)
 - 8AgFER-Bが最も良い結果を示した
 - 銀添加率が高い試料がより高い吸着をもつ
 - B型添加が良い
 - 8AgFER-B,Dは先行研究よりもRn吸着能力が高い(SKの冷却活性炭の12倍以上)
- 8Ag-FER-B(20g)の1-pass試験
 - 十分なベークと露点の設定で一時的ではあるが
 - $R = 9.2 \times 10^{-5}$ のRn除去率を確認した。

参考文献

1. NIMA 501 (2003) 418-462
2. S. Hoshino et al., Sci. Rep. 13, 8311 (2023)
3. J. Phys. Chem. C 2014, 118, 43, 25032-25040
4. Y. Takagi, Measurement of radon removal performance of ambient temperature activated carbon in air for hyper-kamiokande (March 2024). Available at https://www.hyper-kamiokande.jp/seminar/pdf/Takagi_180324.pdf
5. V. Takeuchi et al., Physics Letters B 452 (1999) 418-421
6. Nuclear Data and Methods in Physics Research, A 867 (2017) 108-114
7. M. Shikata, 19型セオライトのナノ孔に均した金属イオンアノンに対する吸着-脱着および炭素-炭素二重結合化合物が示す吸着挙動の解析と合成反応への応用研究, <https://repository.dl.acu.tokyo.ac.jp/record/2006618/files/A17885.pdf>



論文出しました。
DOI: 10.1093/ptep/ptae181