

D01:銀ゼオライトによる 空気純化装置の開発

第10回「極低放射能技術」研究会@富山大学

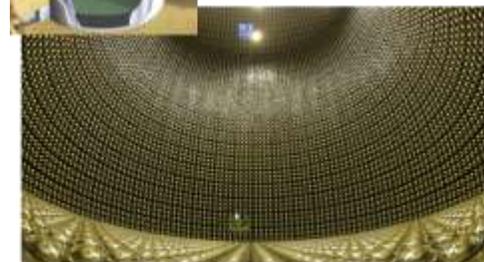
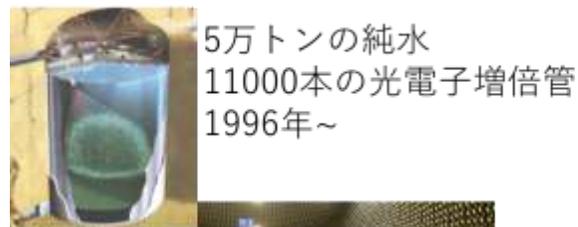
2025年3月7-8日

日本大学理工学部

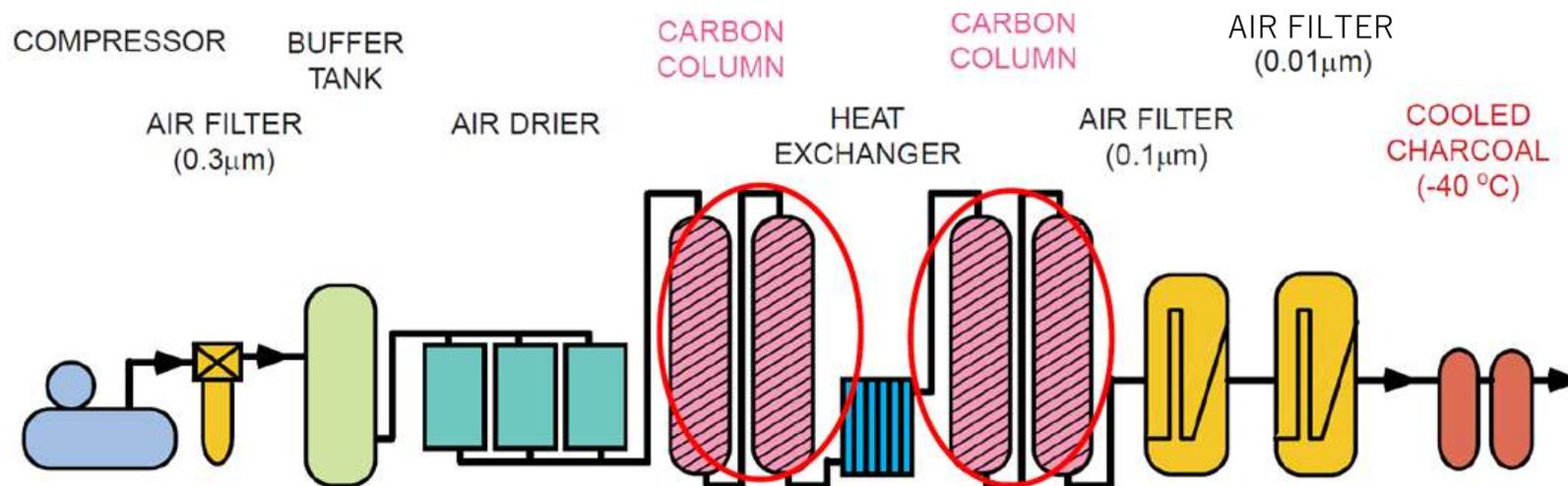
小川 洋

目的

- SK：活性炭を用いたRn除去システム.
- 50~2000Bq/m³の空気から<1mBq/m³までRn除去した空気の供給.
- 実験の巨大化 ∝ Rn除去システムの増強が不可欠.
 - HK ⇒ SKの3倍のスケール



26万トンの純水
20000本の光電子増倍管
2027年~ (予定)



S. Fukuda et al. /Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 501 (2003) 418-462

SKの空気純化装置：
常温活性炭：~8m³
+
冷却活性炭：~50L@-60°C
純空気流量~18Nm³/hr

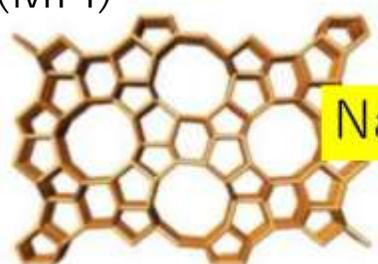
HK：×3!
(~50Nm³/hrの処理能力必要)
もっとコンパクトな空気
純化装置ができないか？

銀ゼオライト

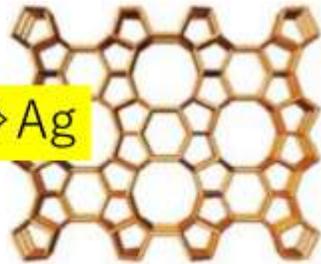
- 貴ガスに対しての優れた吸着能力
 - Agイオンと貴ガス軌道電子の吸着
- 吸着能力は、Ag含有量と、ベースとなるゼオライトの種類に依存。
 - “MFI”や、“フェリエライト (FER)”などが適してる。
- ラドンに対する吸着性能を調べたい。
 - いくつか先行研究あり

SiO₂/Al₂O₃
~40 (mol/mol)

ZSM-5 5.8 Å
(MFI)



フェリエライト 4.8 Å



Na ⇌ Ag

SiO₂/Al₂O₃
~18 (mol/mol)

M. Fukui et al., Xe adsorption performance of Ag-loaded zeolite, In The 36th Zeolite Research Presentation (on-line). The Zeolite Institute of Japan (2020).

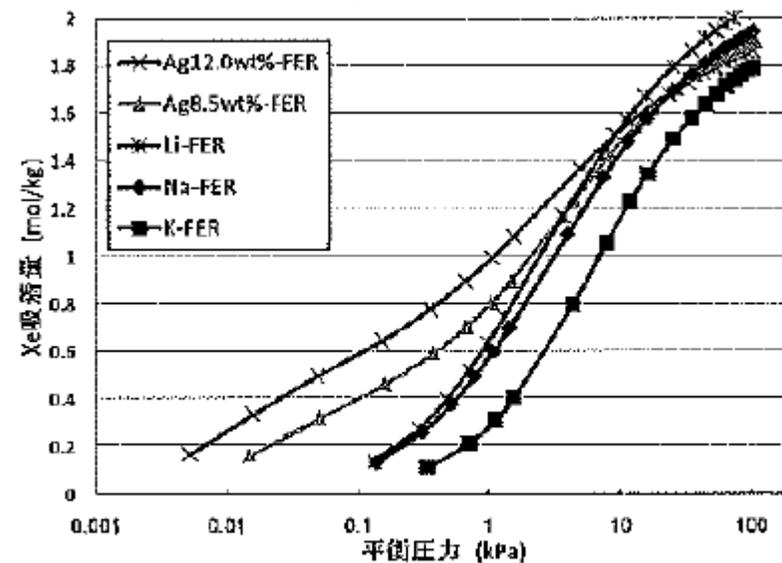


図1 Xe 吸着性能への交換カチオンの影響

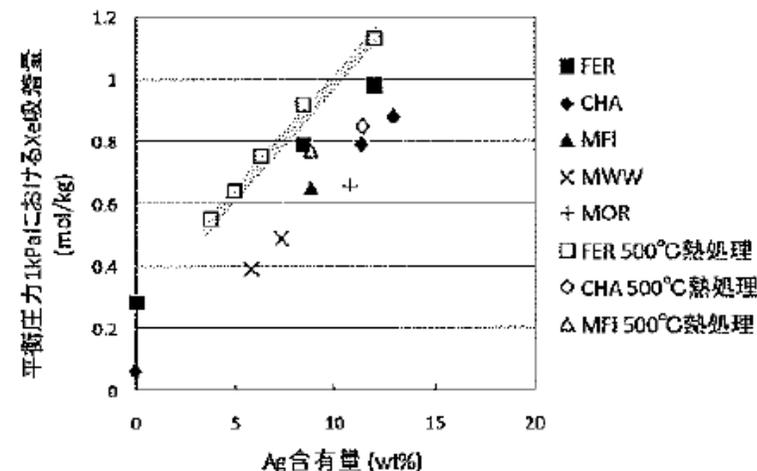
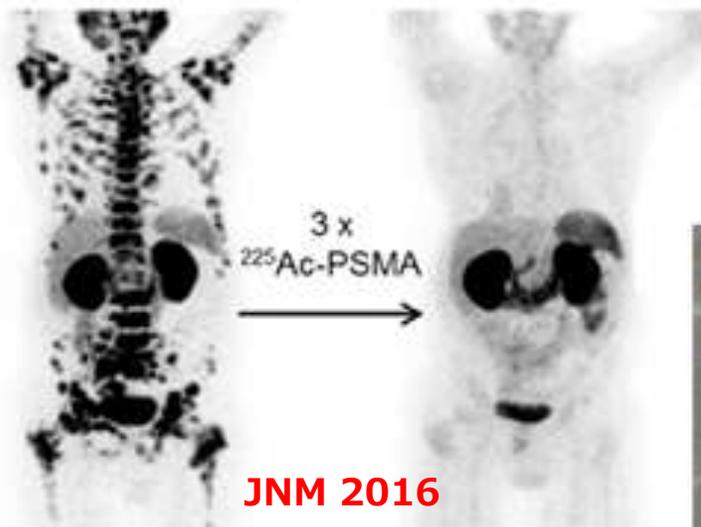
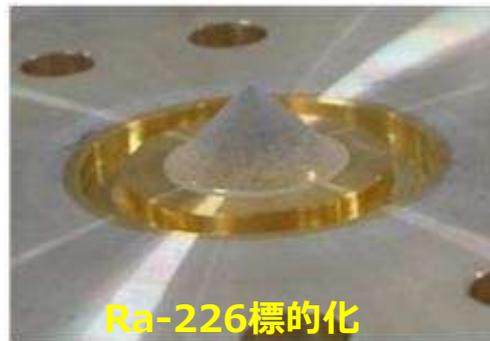


図2 各種ゼオライトのXe 吸着量のAg含有量依存性

応用：放射線治療用核種Ac-225製造(QST)



QST：製造技術を開発済
スケールUp検証中 (≒Ra増量, 10 mg)
製造法：**Ra-226**(p,2n)Ac-225



末期転移性前立腺がんに対しAc-225標識PSMA-617製剤による核医学治療が著効

→世界各国でAc-225製造開発

Ra-226使用に伴う
Rn-222封込が鍵
- Glove box(GB)
- フィルタトラップ
- ストレージタンク

排気中Rn-222濃度
限度：20Bq/m³
Rnトラップに必要な仕様・・・

- ・ Rn捕捉性能が優秀である事
- ・ 小規模であること
- ・ 常温使用が可能である事

⇒ 常温で希ガス捕捉性能を持つ**Agゼオライト**の活用を試みたい

ラドン吸着用銀ゼオライト開発研究

- 神戸大 竹内、宇宙線研 関谷、日大 小川、富山大 中野←ニュートリノ研究
- 東大工学研究科 脇原、松倉 東大新領域 伊與木 ←ゼオライト研究
- シナネンゼオミック 谷口、東ソー 平野 ←ゼオライト合成
- QST 市瀬、永津 ← 銀ゼオライトについての情報共有・連携

• 本講演の内容：

- 1) ラドン吸着について、どのようなタイプの銀ゼオライトが優れているか？ 日大 神戸大
- 2) Ag-ゼオライトは、空気純化装置のために極低放射能の材料によって製作をする必要があるか？→Rn emanation（湧き出し）を測定 日大 神戸大
- 3) 水分の影響 日大、湿度依存 神戸大
- 4) ラドン吸着性能の定量的評価 神戸大
- 5) 空気純化装置のデザイン 神戸大

銀ゼオライトサンプル：東ソーのベース剤ゼオライトをシナネンゼオミックで銀イオン交換
日大：圧粉固化(2023) 3種
神戸大：ペレット状 (2024)3種

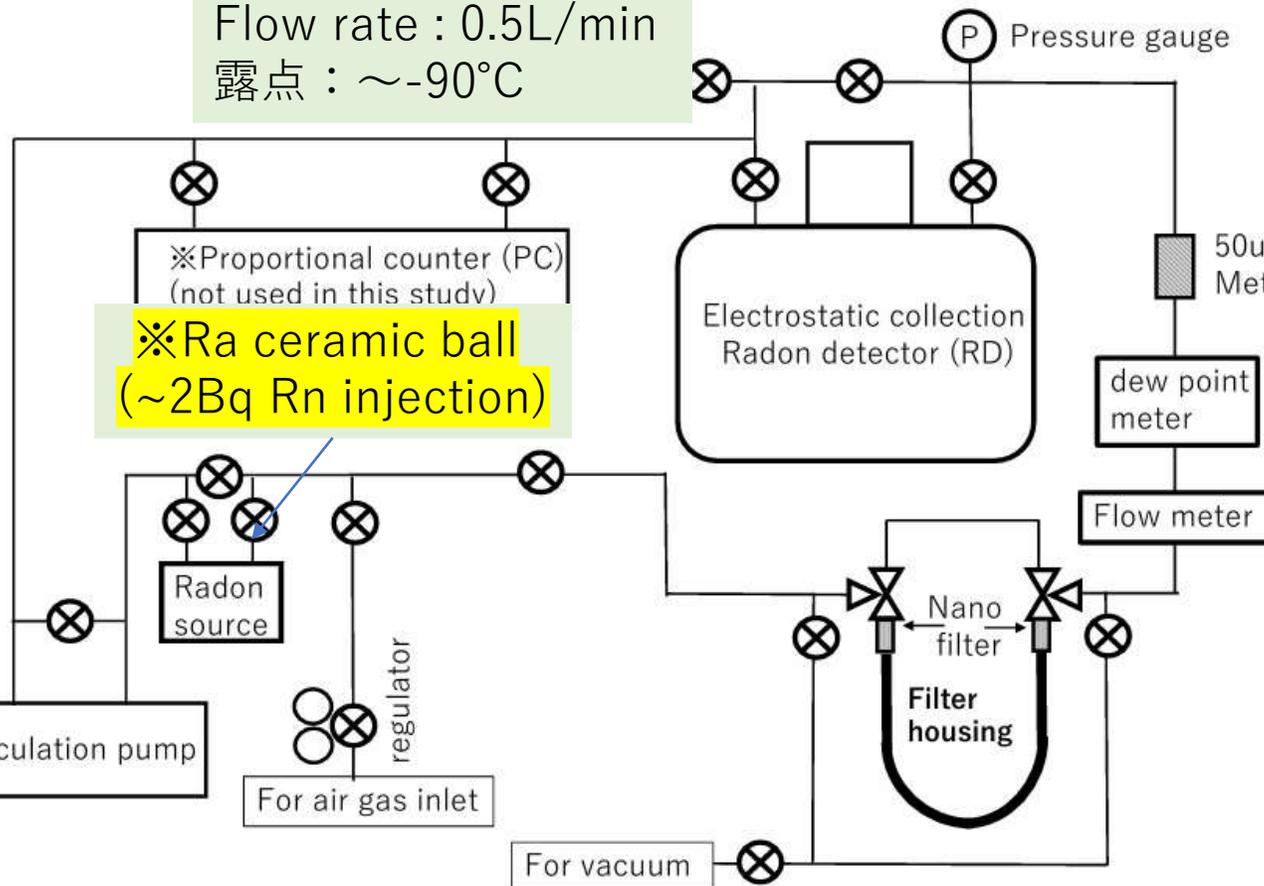


2本の論文をpublish

ラドン吸着試験@日本 大学工学部

H.Ogawa et al, PTEP (2025), 2 023H04

Gas : G1-air
Flow rate : 0.5L/min
露点 : ~-90°C



サンプル名	銀含有量(wt%)	量
Ag-MFI	3.0	各~20g、 <u>圧粉固化</u>
3Ag-FER	3.0	
8Ag-FER-D	7.8	

銀ゼオライトサンプル



50um
Metal filter

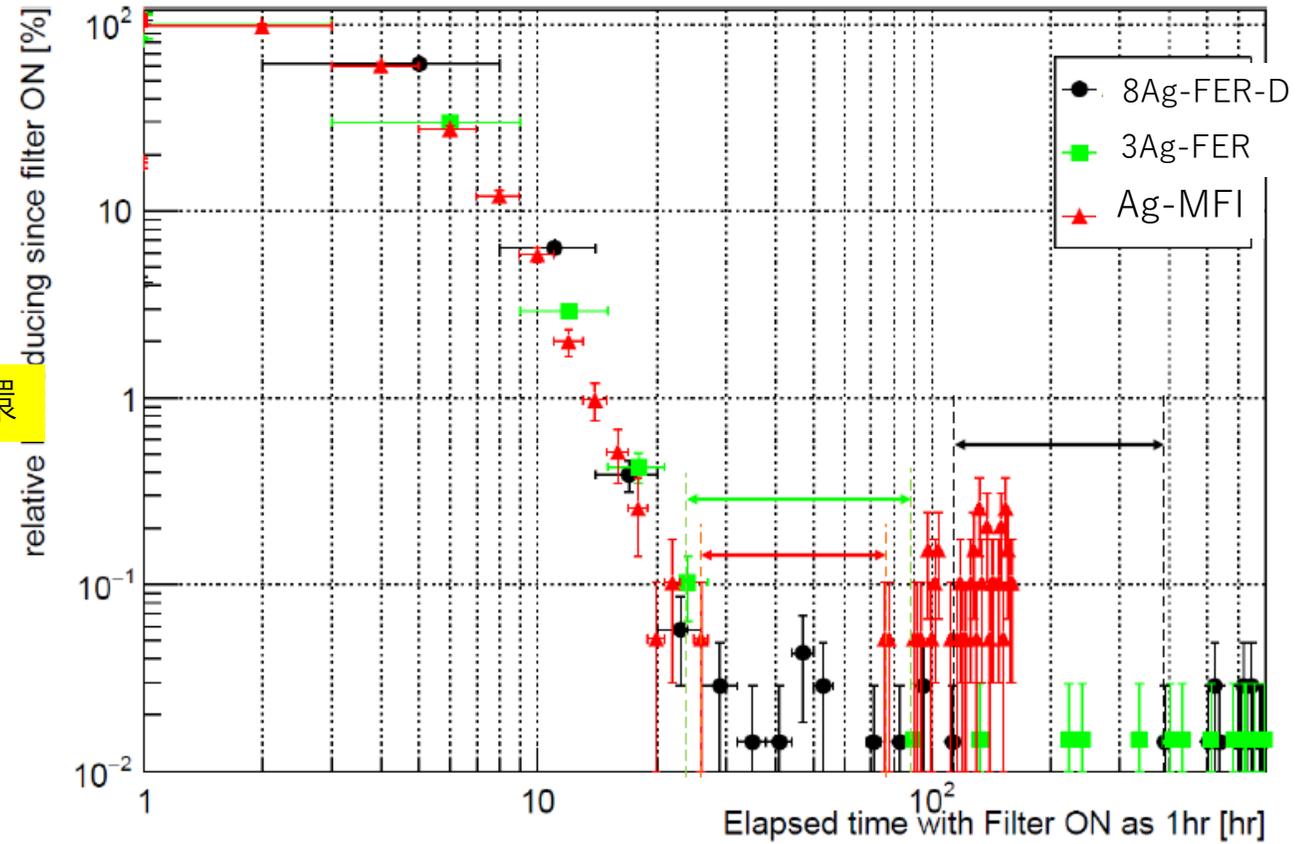
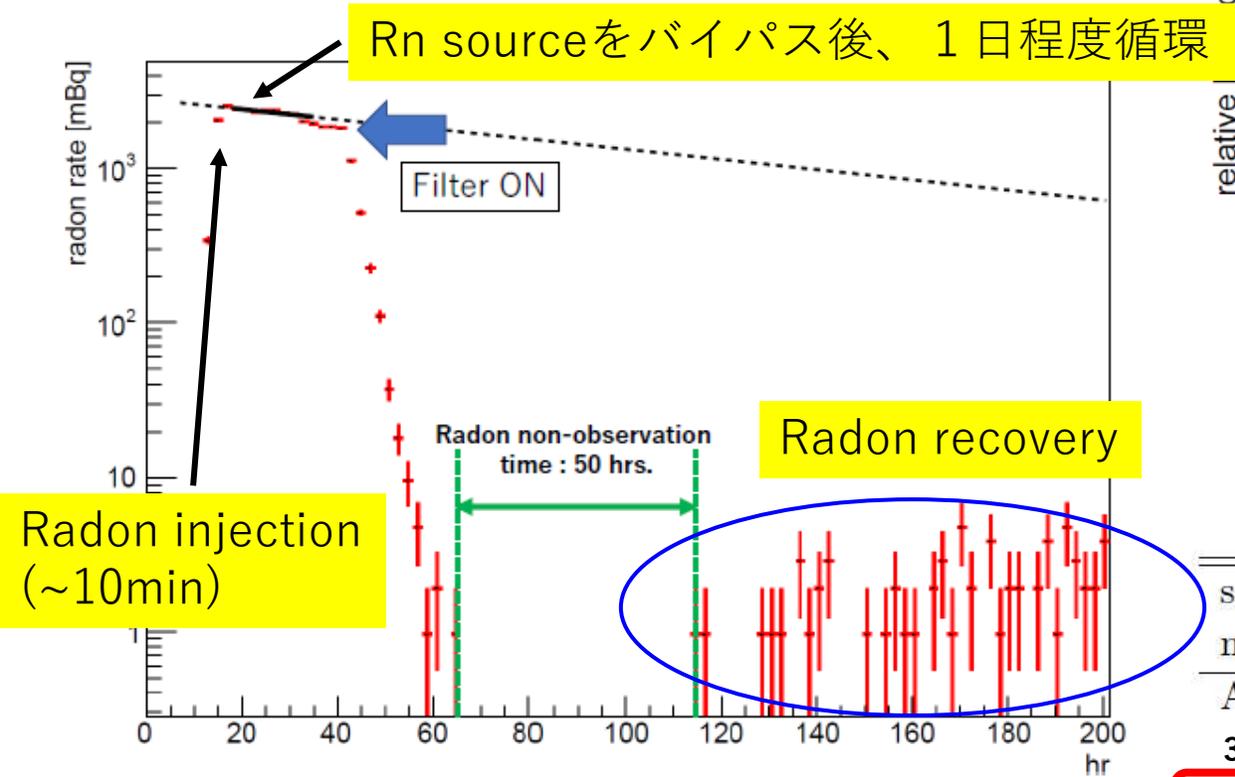
銀ゼオライト入りフィル
ターハウジング
SUS1/2inch ~ 60cm



- ✓ サンプルの前処理：
真空ベーキング
350°C 6hrs
- ✓ フィルターハウジン
グ両側から真空引き
- ✓ **Filter 温度：室温**

3種のサンプルの測定結果

Ag-MFIによるラドン除去試験

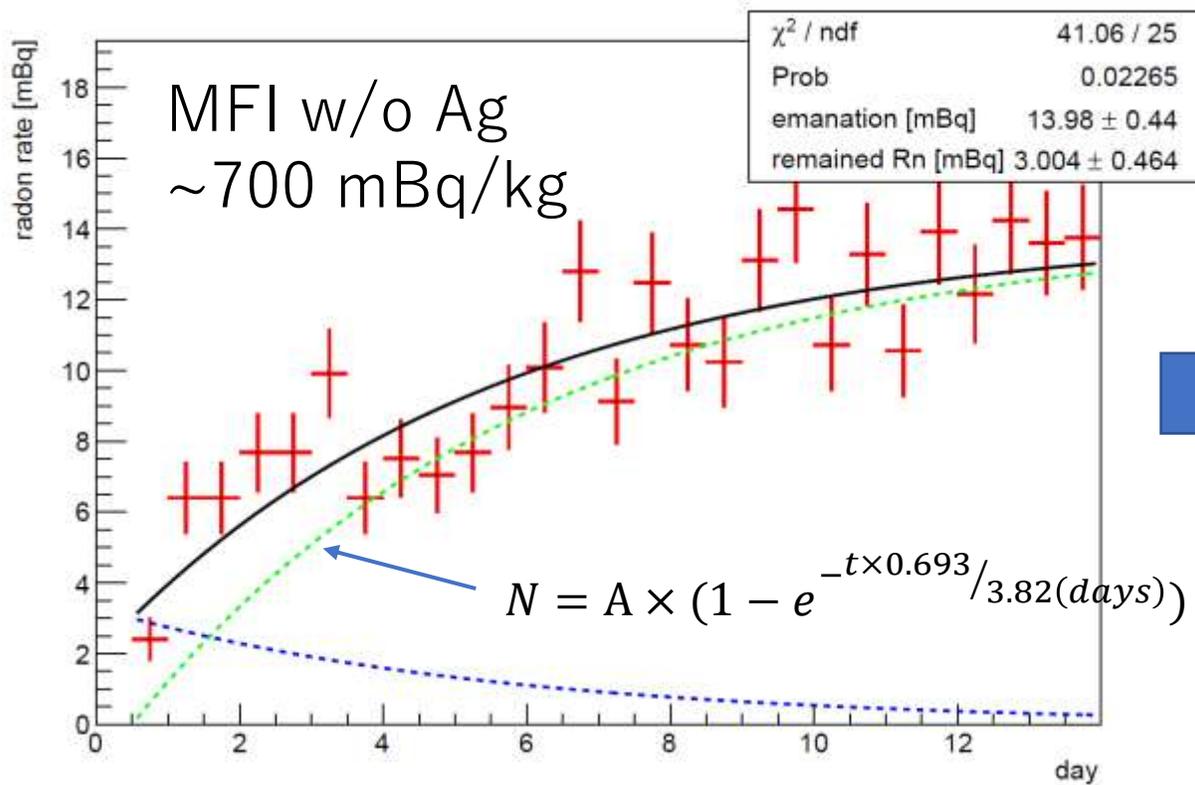


sample name	Ag loading amount [wt%]	sample weight [g]	flow rate [L/min]	RnNO time [hours]
Ag-MFI	3.0	20.9	0.5	50
3Ag-FER	3.0	20.2	0.5	66
8Ag-FER-D	7.8	20.3	0.5	276

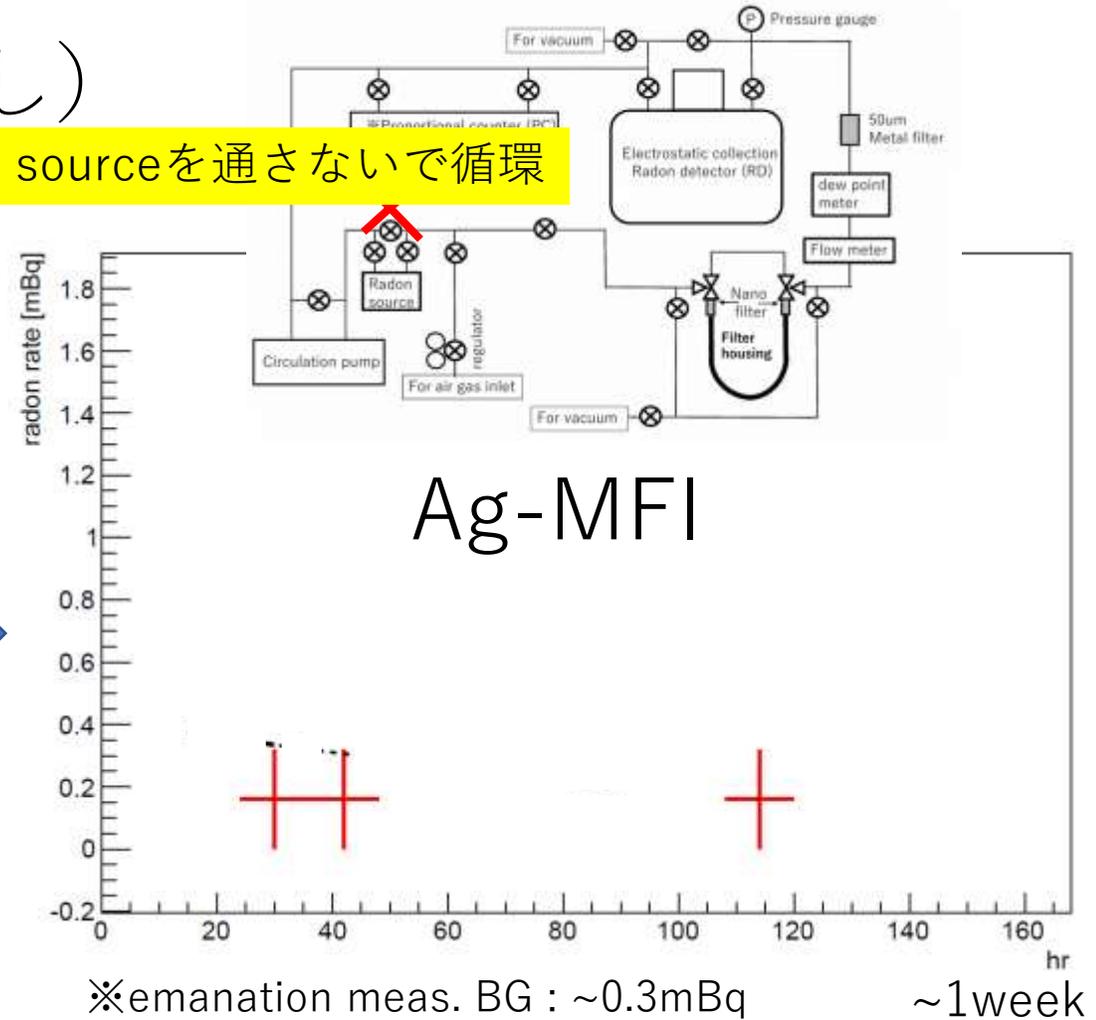
H.Ogawa et al, PTEP (2025),2 023H04

FER > MFI. 8Ag-FER-Dが性能がよさそう。

radon emanation (ラドンの湧き出し) MFI w/o Ag and Ag-MFI



Rn sourceを通さないで循環

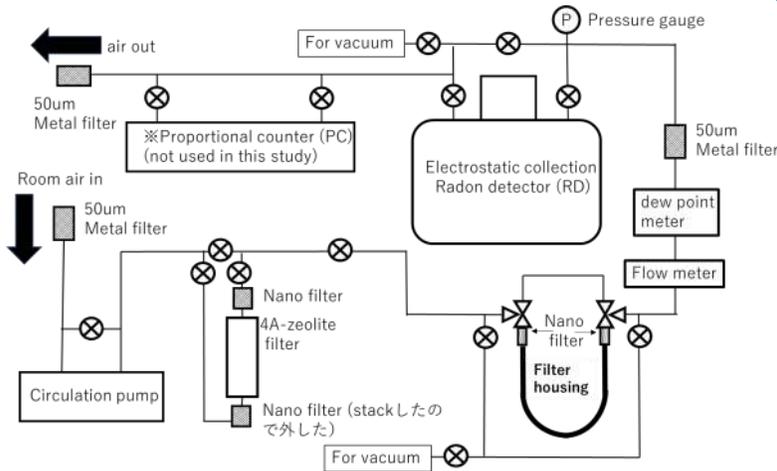


Ag-MFIでは有意なemanationは見られず。
神戸大測定からの見積もり(別サンプル) : <45 mBq/kg (90%CL)
⇒ 極低放射能の材料は選定せずに今の材料のまま使用可能。

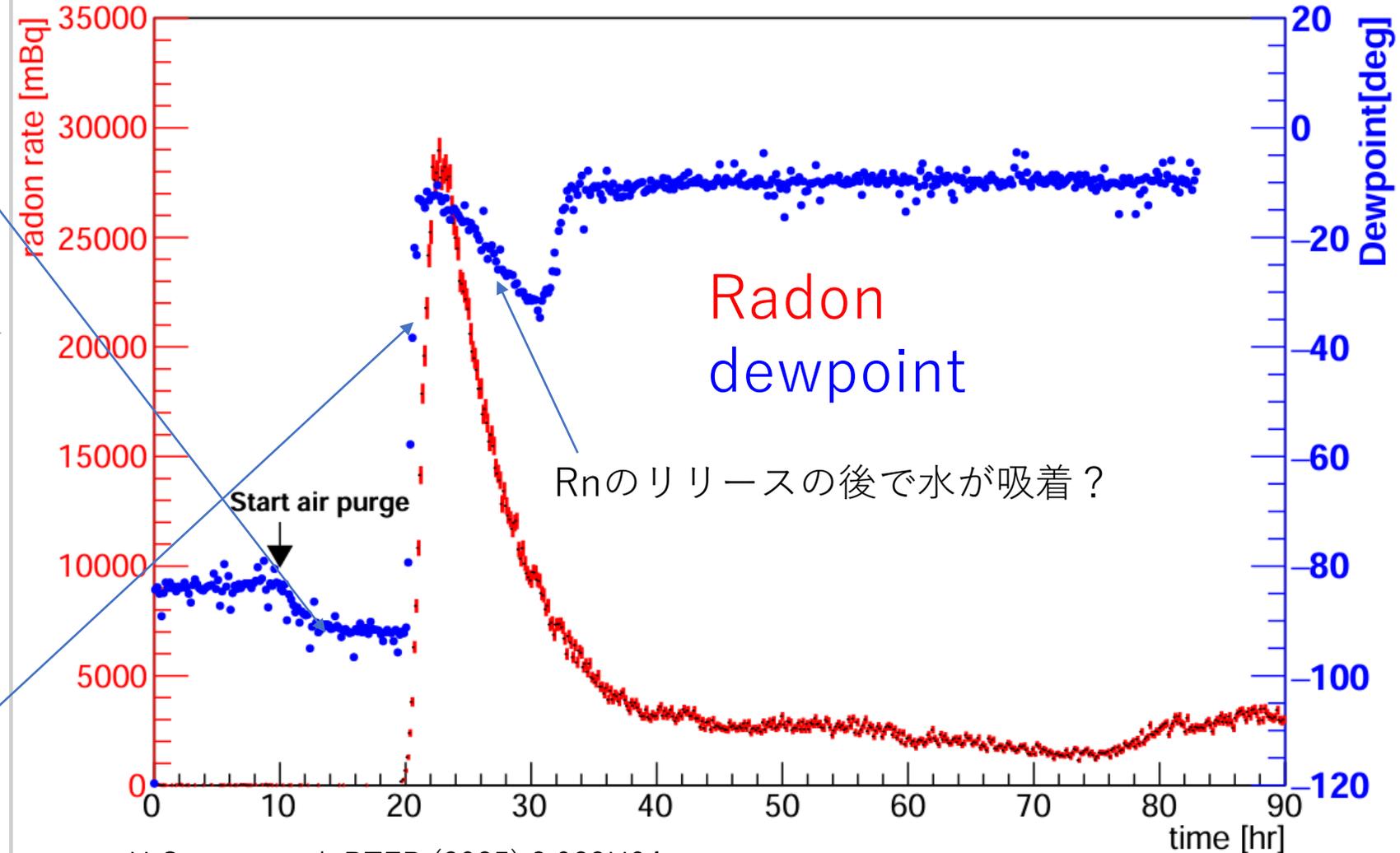
H.Ogawa et al, PTEP (2025),2 023H04

水分の影響：空気から水分除去をしなかった場合 (8Ag-FER-D)

外気をMS4A（既に使用限界近く）に通し、水分を除去した後、8Ag-FER-Dでラドン除去



MS4Aの使用限界になり、水分除去ができなくなると、大量のラドンをリリース

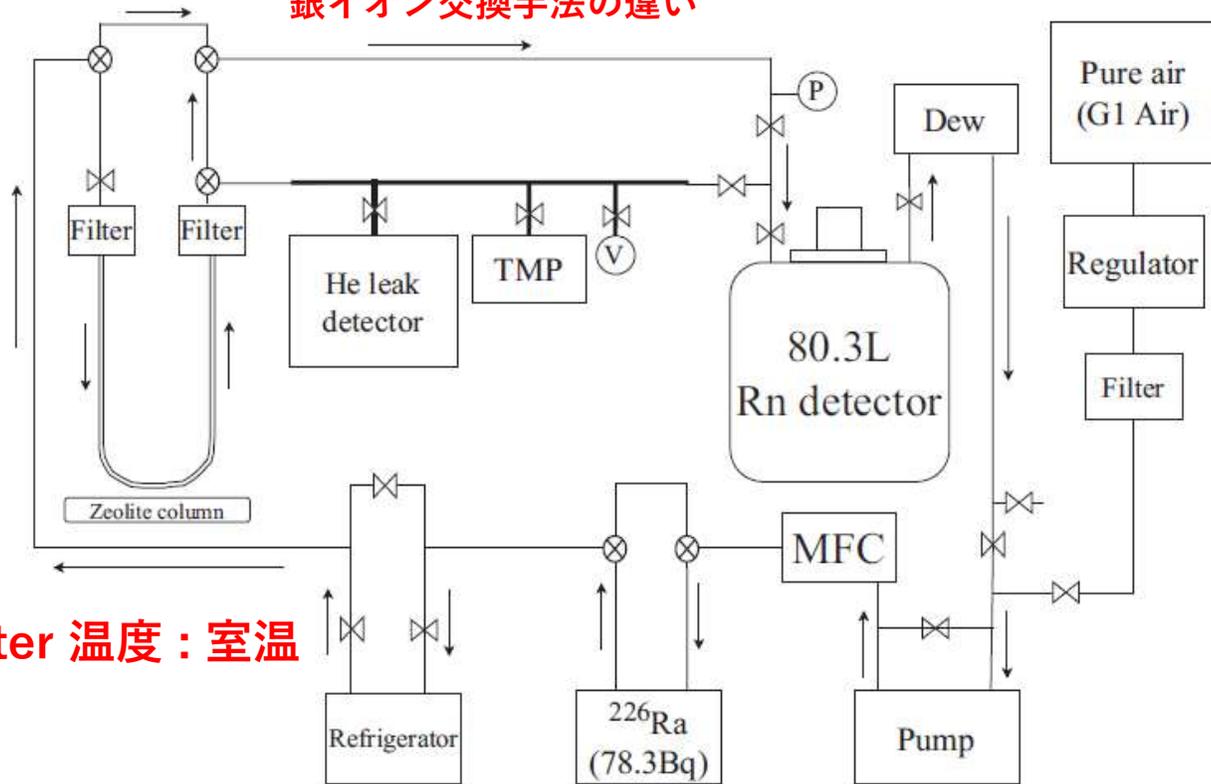


ラドン吸着性能試験@神戸大

	Target silver amount	Silver introduction process	Measured silver amount
3Ag-FER	3%	Normal ion exchange	3.2%
8Ag-FER-D	8%	Impregnation and drying	8.1%
8Ag-FER-B	8%	Special ion exchange	8.4%



銀イオン交換手法の違い



✓ Filter 温度 : 室温

ラドン吸着性能の評価： K (Rn 吸着係数), RT (Retention time)

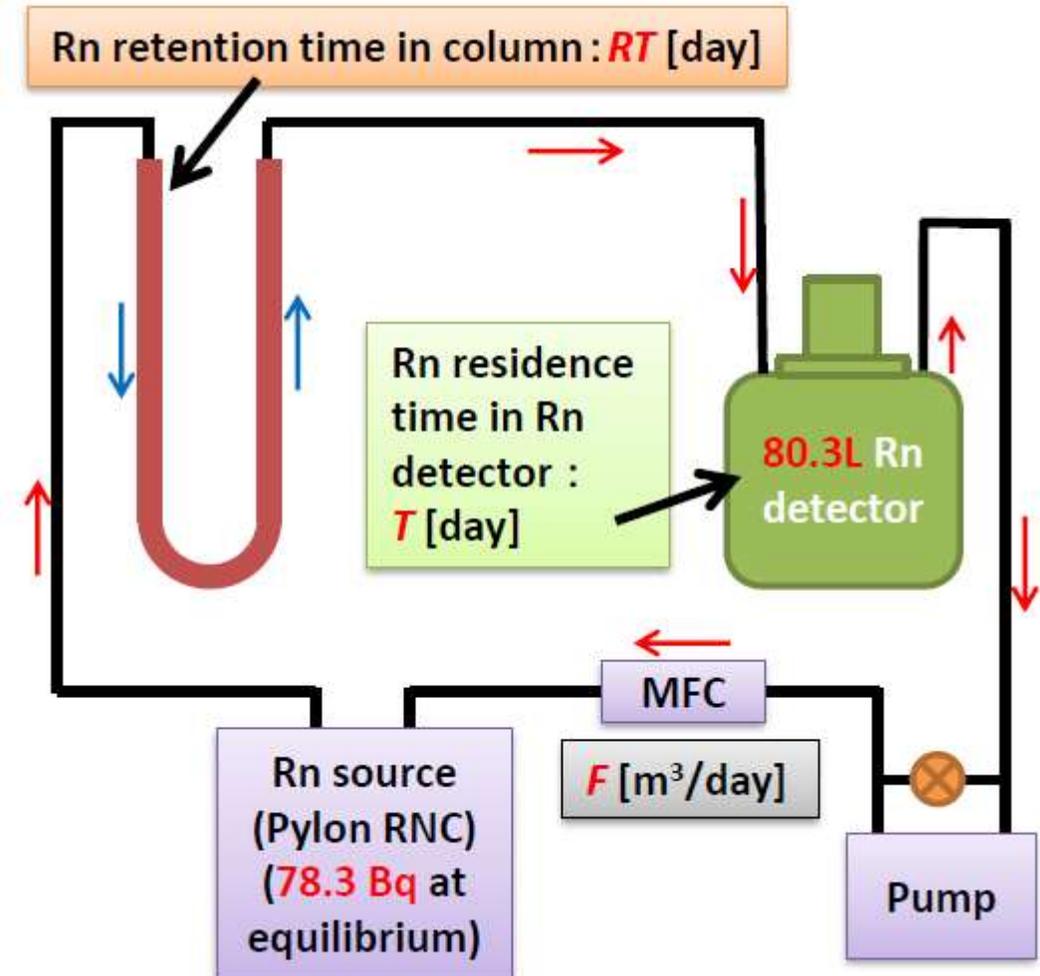
(Rn_{ratio} : $\frac{Rn \text{ concentration via column}}{Rn \text{ concentration at column bypass}}$)

$$Rn_{ratio} = \frac{T}{RT + T} = \frac{0.0803}{F \times RT + 0.0803}$$



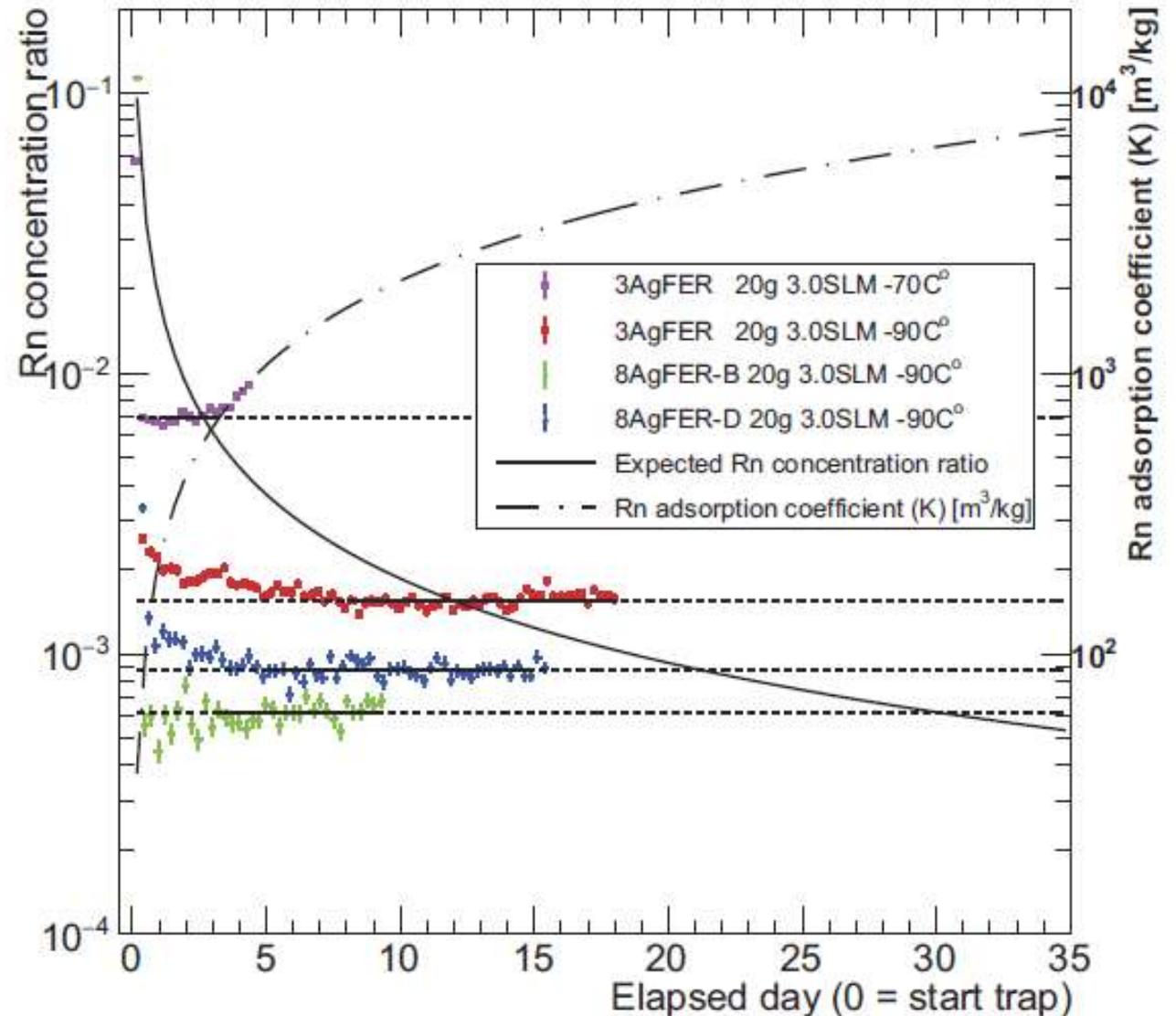
Rn det滞在時間, filter column保持時間の比に相当

$$K [m^3 kg^{-1}] = \frac{RT \times F}{m}$$



測定結果

- **湿度依存性**: 3Ag-FERで、冷凍機設定温度 -70°C と -90°C を比較 \rightarrow -90°C が良い。湿度に敏感。
- **銀の量**: 3%より8%が良い
- **銀の導入手法**: B型とD型を比較 \rightarrow B型の導入(特殊イオン交換)が良い。



測

RT

K

Sample	Refrigerator setting	Adsorbent mass [kg]	Retention time [d]	Radon adsorption coefficient [m ³ kg ⁻¹]
(This work)				
3Ag-FER	-70°C	0.020	2.65 ± 0.04	573 ± 4
3Ag-FER	-90°C	0.020	11.97 ± 0.14	2563 ± 14
8Ag-FER-B	-90°C	0.020	30.12 ± 0.48	6506 ± 81
8Ag-FER-D	-90°C	0.020	21.38 ± 0.27	4618 ± 35
(Preceding studies)				
Ag-ZSM-5 [1]		8.85 × 10 ⁻³	10.69	3500
Ag-ETS-10 [1]		16.3 × 10 ⁻³	19.16	3400
Ag-ETS-10(18°C) [2]		2 × 10 ⁻⁴		(140 ± 28) × 10
Activated Carbon Fiber [3]		4.65	1.9	6.47 (*)
Granular activated carbon [3]		26.9	10.16	4.96 (*)
Cooled activated carbon(-60°C) [4,5]		18.8 (*)	16.5 (*)	379 (*)

Rn adsorption coefficient (K) [m³/kg]

■ 湿度
凍機
比較
銀ゼオライト
ト先行研究
■ 銀の
活性炭
ン交換

[1] S. Heinitz et al., Sci. Rep. 13 , 6811 (2023). [2] O. Veselska et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2024 , 023C01 (2024). [3] Y. Takagi, M_thesis Kobe University (2024). [4] Y. Takeuchi et al., Phys. Lett. B 452 , 418 (1999). [5] Y. Nakano, H. Sekiya, S. Tasaka, Y. Takeuchi, R. A. Wendell, M. Matsubara, and M. Nakahata, Nucl. Instrum. Meth. A 867 , 108 (2017).

HK用ラドン除去空気製造装置の見積もり

- Specifications of HK air purification system:
 - Flow rate: 54 Nm³/h = 1296 Nm³/day, dew point = -70°C (at 1 atm.)
- Expected Rn concentration in input air : ~ 50 Bq/m³
- Required Rn concentration : < 1 mBq/m³

-90°Cにする必要があるが、

- Needed radon removal capacity (R) : 50 / 0.001 = 50000
- Rn half-life (τ): 3.8235 day
- Necessary retention time (RT):
$$2^{-\frac{RT}{\tau}} = \frac{1}{R} \rightarrow e^{\ln 2 \cdot \frac{RT}{\tau}} = R \rightarrow RT = \ln(R) \cdot \frac{\tau}{\ln 2} = 59.68 \text{ day}$$
- Necessary amount of Ag-zeolite (m) :
$$m \text{ [kg]} = t \cdot \frac{F}{K} = 59.68 \cdot \frac{1296}{K} = \frac{77345}{K \text{ [m}^3/\text{kg]}}$$
- 8Ag-FER-B: 12 kg weight (or 17 L volume)
 - ラドン除去 \leftrightarrow ベーキングの交互運転だと24kg (35L)必要か？



銀ゼオライト
8Ag-FER-B 4kg



除湿用ゼオライト
ゼオラム
A-4 HA 1.5mm 5kg
F-9 HA 1.5mm 5kg



U字管
SUS 50A

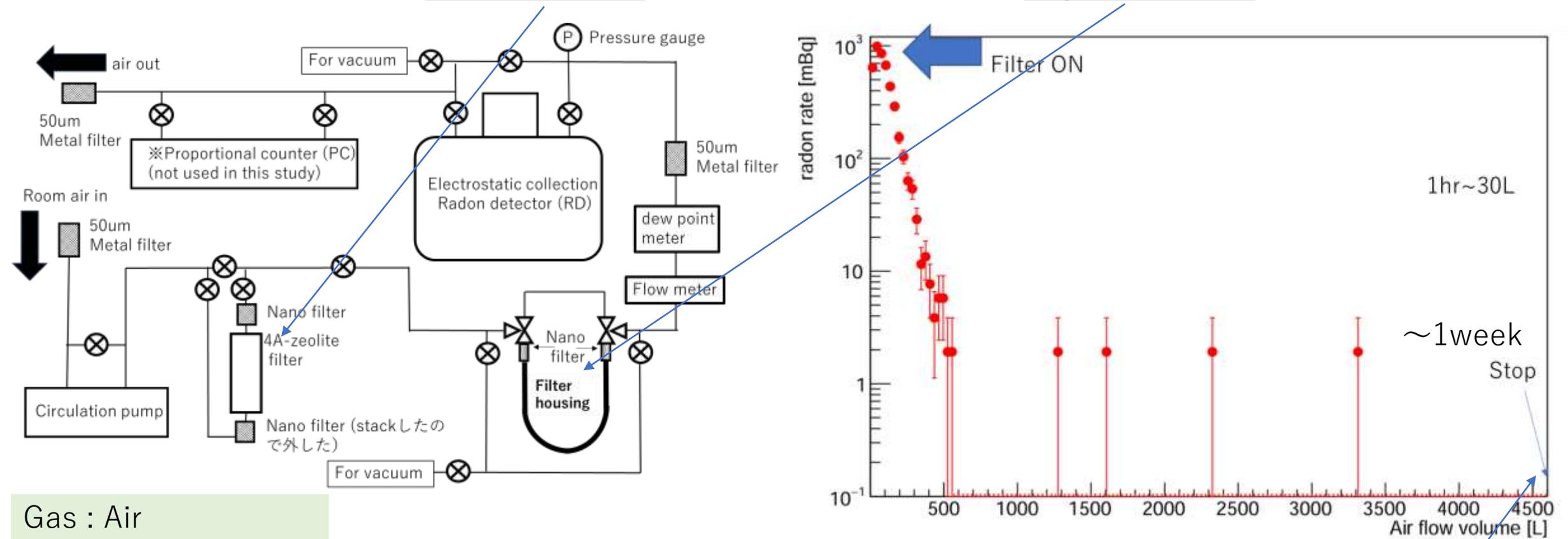
Summary

- 銀ゼオライトによるラドン吸着について、2本の論文を発表した。：
 - Study of Radon Removal Performance of Silver-Ion Exchanged Zeolite from Air for Underground Experiments.
 - T. Sone, Y. Takeuchi, M. Matsukura, Y. Nakano, H. Ogawa, H. Sekiya, T. Wakihara, S. Hirano, and A. Taniguchi
 - PTEP Vol. 2025, Issue 1, Jan. 2025, 013H01, <https://doi.org/10.1093/ptep/ptae181>
 - Removal of Radioactive Noble Gas Radon from Air by Ag-Zeolite
 - H. Ogawa, Y. Takeuchi, H. Sekiya, K. Iyoki, M. Matsukura, T. Wakihara, Y. Nakano, S. Hirano, and A. Taniguchi
 - PTEP Vol. 2025, Issue 2, Feb. 2025, 023H04, <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaf007>
- HK用空気純化装置のラドン除去のための銀ゼオライトとして、“8Ag-FER-B”が有力。吸着効率からの見積もりで、非常にコンパクトな空気純化装置が開発できそう。
 - 銀ゼオライトは、極低放射能材料を選定して製作する必要はない。
 - 水分によって、ラドンを放出する。また、露点が上がると、吸着性能が悪化する。水分に対する対策が必要である。

backup

Single passでのラドン除去

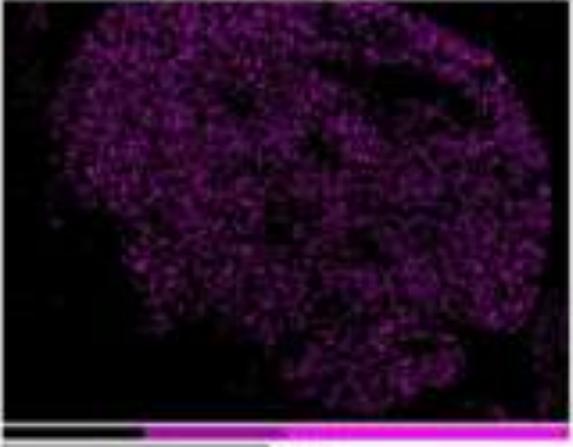
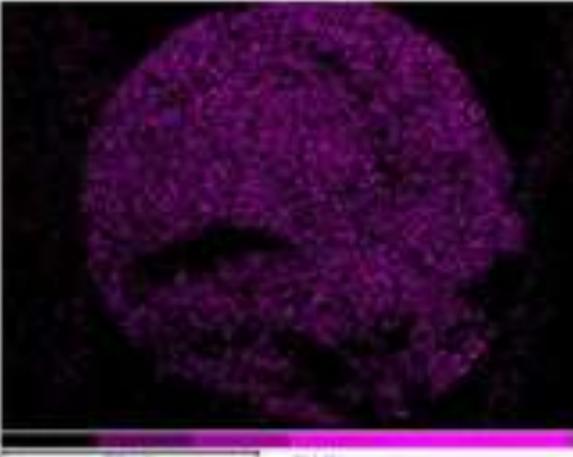
- 実験室空気を4A-zeoliteで水分を除去し、Ag-FER8%に通す。



Gas : Air
Flow rate : 0.5L/min
※Single passモード

Single passでも十分な除去能力を保持

※MS4Aの上流ナノフィルターが詰まったためstop 18

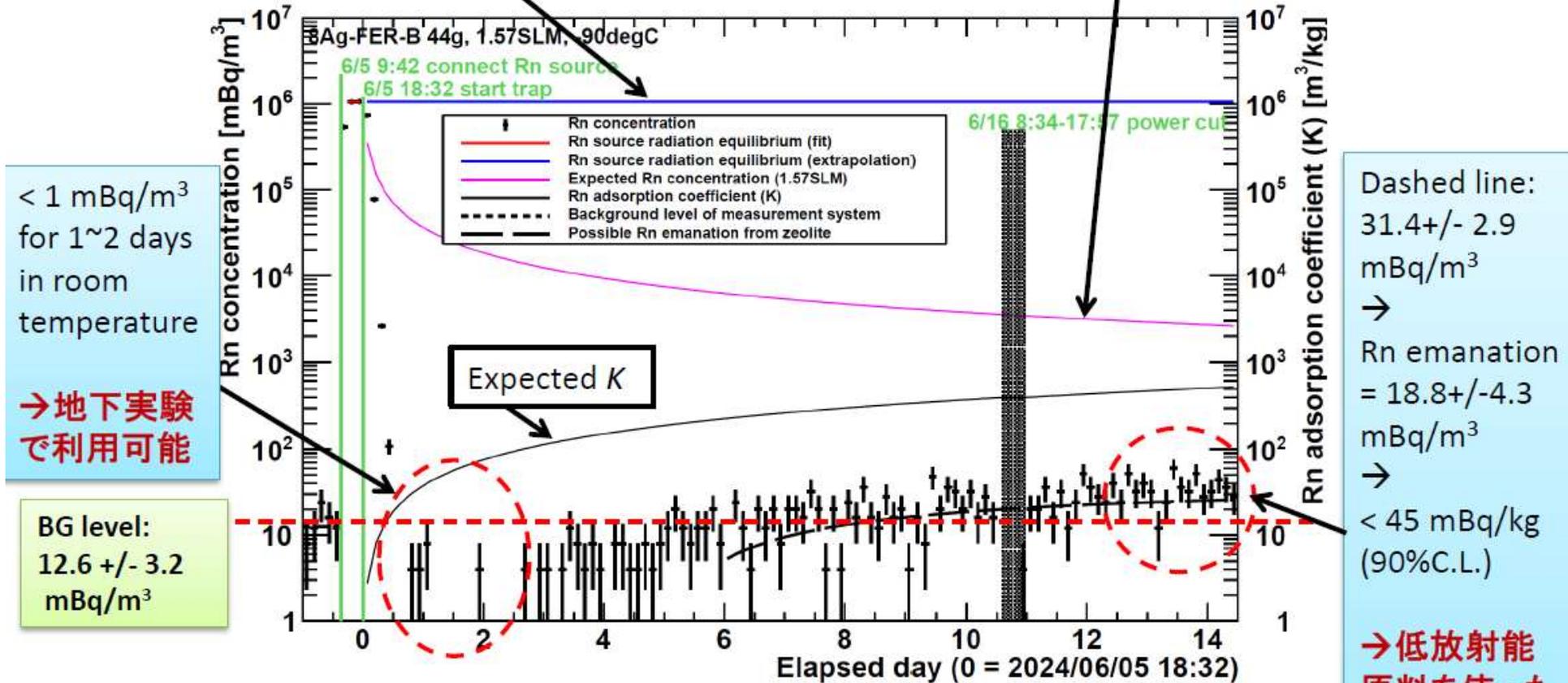
	3Ag-FER	8Ag-FER-D	8Ag-FER-B
Ag			
Si			

The 1st Rn adsorption test

8Ag-FER-B, 44 g (adsorbent weight), 1.57 SLM (air flow rate), -90degC (refrigerator temp.)

Radiation equilibrium of Rn

Expected Rn concentration from $\frac{T}{RT+T}$ when $RT = \text{"Elapsed day"}$



< 1 mBq/m³
for 1~2 days
in room
temperature

→ 地下実験
で利用可能

BG level:
12.6 +/- 3.2
mBq/m³

Dashed line:
31.4 +/- 2.9
mBq/m³
→
Rn emanation
= 18.8 +/- 4.3
mBq/m³
→
< 45 mBq/kg
(90%C.L.)

→ 低放射能
原料を使った
ゼオライトは
おそらく不要

- Too strong Rn adsorption capacity
- It would take months to measure RT (until the measured and expected Rn concentrations match)
- Reduce weight (44g → 20g) and increase flow rate (1.57 → 3.00 SLM)

ラドン吸着性能の評価： K (radon adsorption coefficient), RT (Retention time)

$$Rn_{ratio} = \frac{T}{RT + T} = \frac{0.0803}{F \times RT + 0.0803}$$

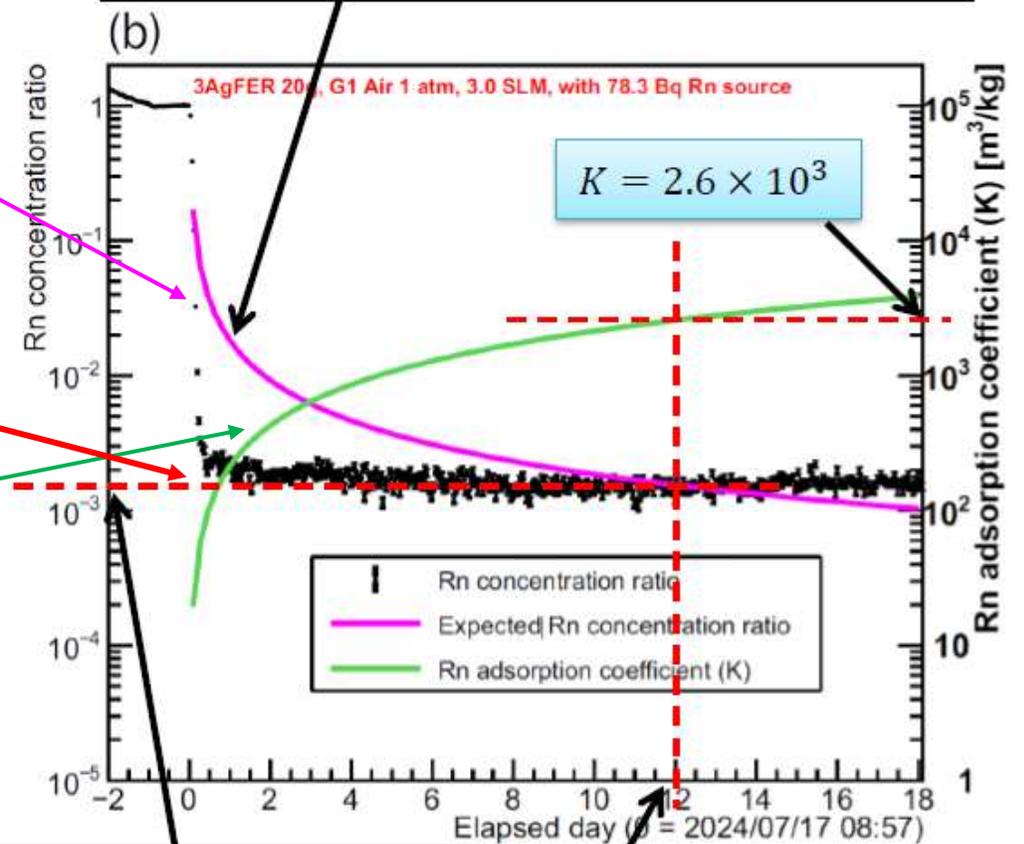


Rn det滞在時間, filter column保持時間の比に相当

$$(Rn_{ratio} : \frac{Rn \text{ concentration via column}}{Rn \text{ concentration at column bypass}})$$

$$K [m^3 kg^{-1}] = \frac{RT \times F}{m}$$

Expected Rn_{ratio} when $RT =$ "Elapsed day"



3Ag-FER $m=20$ g, $F=3$ SLM,
(air dewpoint = -90deg)

Measured $Rn_{ratio} = 0.0016$

$RT = 12$