

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03893

研究課題名（和文）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

研究課題名（英文）Radon reduction in dark matter search experiment by the development of ultra-low activity molecular sieves

研究代表者

小川 洋 (OGAWA, Hiroshi)

日本大学・理工学部・助手

研究者番号：20374910

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、暗黒物質検出器に用いられる希ガスから、暗黒物質探索実験のバックグラウンドとなる放射性不純物ラドンや、発光特性を減衰させる不純物を除去するために、極低放射能の吸着剤モレキュラーシーブス(MS)を独自に開発し、暗黒物質探索の感度向上を目指す研究である。特に、放射性不純物であるラドンの吸着を目標とする。

まず、極低放射能のMSの製作と、製作したMSの放射能の評価を実施し、材料の選定で、極低放射能モレキュラーシーブスの製作が可能であることが分かった。その後、材料の再選定と、製作工程の検討により、実際の暗黒物質探索実験の使用可能な、より放射能の少ないラドン吸着用MSを開発することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、ガスを用いた暗黒物質探索実験は、トンスケールの大型検出器 (XMASS, XENON) や、方向に感度を持つ検出器 (NEWAGE, DRIFT) など、大型化、多様化が進んでおり、ガスの純化は、暗黒物質探索実験の感度向上のために非常に重要である。本研究のアプローチは、これらのガスの純化に大きく貢献するものである。実際、本研究で開発されたMSによるガス中からの不純物除去研究が進められている。また、モレキュラーシーブの用途として、暗黒物質探索実験に使われるという基礎科学への貢献ということについての新たなフロンティアを開くものとなった。

研究成果の概要（英文）：This study is the developing of an ultra-low radioactive adsorbent Molecular Sieves (MS) to remove radioactive impurities, that are the background of dark matter search experiments and impurities, that attenuate light emission characteristics from the rare gas used in dark matter detectors. This is a study aimed at improving the sensitivity of dark matter search. In particular, the primary goal is to adsorb radon, which is a radioactive impurity. First, we conducted the production of ultra-low radioactive MS and evaluated the radioactivity of the produced MS, and found that it is possible to produce ultra-low radioactivity MS by selecting materials. After that, by selecting the materials and examining the manufacturing process, we succeeded in developing a radon adsorption MS with less radioactivity that can be used in actual dark matter search experiments.

研究分野：素粒子・原子核実験物理

キーワード：暗黒物質 ラドン 極低放射能技術

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2010年より、岐阜県の神岡宇宙素粒子実験施設で実施された XMASS 実験は、およそ1トンの液体キセノンを用いたシンチレーション検出器により、暗黒物質探索を目指していた。XMASS 実験データの解析[1]により、液体キセノン中に溶存するバックグラウンド事象が評価され、ラドン(^{222}Rn)が主要なものであることが分かった。XMASS では、検出器の部材から湧き出ており、およそ $10 \mu\text{Bq/kg}$ と見積もられている。これは、他の溶存バックグラウンド源 (^{85}Kr : $0.3 \mu\text{Bq/kg}$, ^{39}Ar : $0.8 \mu\text{Bq/kg}$, ^{14}C : $0.2 \mu\text{Bq/kg}$)より、1桁以上多い。将来の大型検出器においては、ラドン量としてはおよそ $0.1 \mu\text{Bq/kg}$ 以下が要求される。XMASS では、活性炭を使ったラドン除去を過去に発表した[2]が、活性炭の粉末の問題や、活性炭自身からのラドンの湧き出しがあり、実用化には至っていない。将来の大型暗黒物質探索実験においては、キセノンなどのガス中からのラドンの除去方法の確立が極めて重要となる。暗黒物質探索検出器は、低バックグラウンド・エネルギー実験として、太陽ニュートリノ観測、0 探索にも大変有望なものであり、本研究による検出器の低バックグラウンド化が非常に重要となる。

2. 研究の目的

ガスからラドンを除去する手法として、吸着剤モレキュラーシーブスがあげられる。モレキュラーシーブス(以下、“MS”と表記する)は、分子配列により一定の孔サイズを持ち、不純物を選択的に吸着可能である。最近の研究[3]では、5A-type MS にラドンの吸着能力があると考えられる。また、MS は、放射性不純物の他に、水や酸素など、暗黒物質探索実験ターゲットの発光や電離を減衰させる不純物に対する吸着剤としても有望である。しかし、市販のモレキュラーシーブスでは、それ自身の放射能が多い。本研究は、暗黒物質検出器からの放射性不純物ラドンの削減をするための極低放射能 MS を独自に開発し、暗黒物質探索の感度向上を目指す研究となる。

3. 研究の方法

MS の材料は、4A-type については、水酸化ナトリウム、水酸化アルミニウム、シリカ成分となり、5A-type についてはさらに、イオン交換用のカルシウム化合物が加わる。市販の MS の放射能は、 ^{226}Ra 換算として、 5Bq/kg 以上あることが、ゲルマニウム検出器の測定結果から分かっている。これは、市販の MS の材料が、工業生産ベースのものであり、放射性不純物が多く含まれているためである。よって、高純度な試薬ベースの材料を、ゲルマニウム検出器による放射能測定をすることで、本研究 MS 用材料を選定した。選定された材料を用いて、所属機関において、MS の製作を行った。本研究における製作は、2つの version で実施した。“version 1”は低放射能材料により、4A-type の MS を製作し、放射能を評価することで、材料の選定によって、極低放射能 MS が製作可能であることを示した。一方、“version 2”では材料及び工程を改良し、より低放射能な MS を製作するとともに、イオン交換をすることで5A-type の MS を製作した。製作手法は、ユニオン昭和(株)及び東大(工)の協力で確立した。また、製作環境としては、クリーンブース及びULPA フィルターで清浄度を保つことで、製作工程によるコンタミを低減させた。

4. 研究成果

(1) version 1 MS の製作と放射能測定 [4]

所属機関において、4A-type の MS の製作を実施した。材料として、高純度の水酸化ナトリウム、水酸化アルミニウム、シリカ成分を、HPGe 検出器でのスクリーニングを実施し、極低放射能の材料として選定した。その結果が表1となる。シリカ成分にはまだ放射能が有限に残存するが、他2つの材料の測定は上限値となった。

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

表1 : version 1 MS 材料の HPGe 測定結果

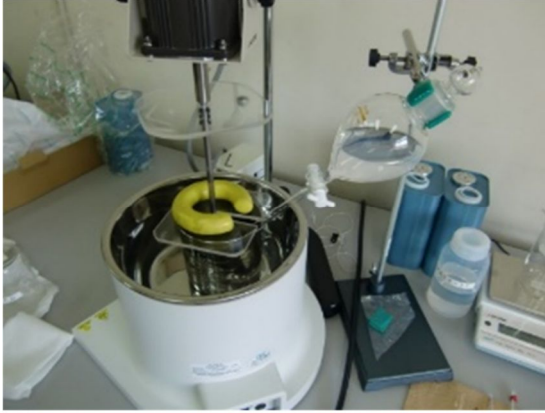


図 1 : (左) version1 MS 製作の様子 (右) 完成品

これらの材料を用いて、4A-type MS を製作した。図 1 に、モレキュラーシーブス製作の様子と、完成品を示す。完成品は、HPGe 検出器で放射能測定を実施した。市販のモレキュラーシーブスと比較すると、 ^{226}Ra については 99%、 ^{232}Th については 97% の削減となった。この結果、材料の選定により、極低放射能モレキュラーシーブスの製作は可能であることが分かった。また、ラドンの湧き出しの測定も実施した。その結果、120g のモレキュラーシーブスフィルターで、 2.1mBq のラドン湧き出しであることが分かった。

残存する放射能は、シリカ成分で説明できる。よって、極低放射能のシリカ成分を見つけることで、更なる放射能の削減が可能だと考えられる。

(2) version 2 MS の製作と放射能測定

次に、version 1 の材料及び工程を改良し、より低放射能な MS を製作するとともに、イオン交換をすることで 5A-type の MS を製作する。

新たなシリカ材料として扶桑化学工業 (株) のコロイダルシリカ PL-7 を用いた。粉体を固体にするために、日産化学 (株) のアルミナゾルと呼ばれる固化剤を選定した。4A-type から 5A-type にイオン交換をする材料として、大阪大より提供を受けた炭酸カルシウムを選定した。これらの材料は、有意な放射能は検出されなかった。以上より、表 2 のように、MS 材料の選定が完了した。

材料名	主な元素	^{226}Ra [mBq/kg]	^{232}Th [mBq/kg]	備考
		HPGe検出器による測定		
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

材料	用途	U (ICP-MS)	備考
純水	合成、イオン交換、洗浄	< 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

表 2 : version2 用材料の放射能。水酸化ナトリウム、水酸化アルミニウム及び純水は version1 の材料と同じである。

図 2 に、version2 MS の製作工程と、完成品を示す。コロイダルシリカと、version1 で用いた水酸化ナトリウム、水酸化アルミニウムによって、4A-type MS を結晶化する。アルミナゾルを混合して焼結固化後、炭酸カルシウム + 硝酸に入れてイオン交換をする。

完成した 5A-type MS は HPGe 検出器で放射能を測定した。検出された ^{226}Ra の量は、4A-type MS の状態では、 40mBq/kg なのに対し、イオン交換した 5A-type MS では、 14mBq/kg と減少が見られた。これは、硝酸による洗浄効果によって、不純物が除去された可能性がある。また、この放射能量は、 ^{238}U 換算で 1ppb 程度に相当し、本研究に差し当たっての目標放射能量に近い値となった。

(3) MS へのラドン吸着の性能評価

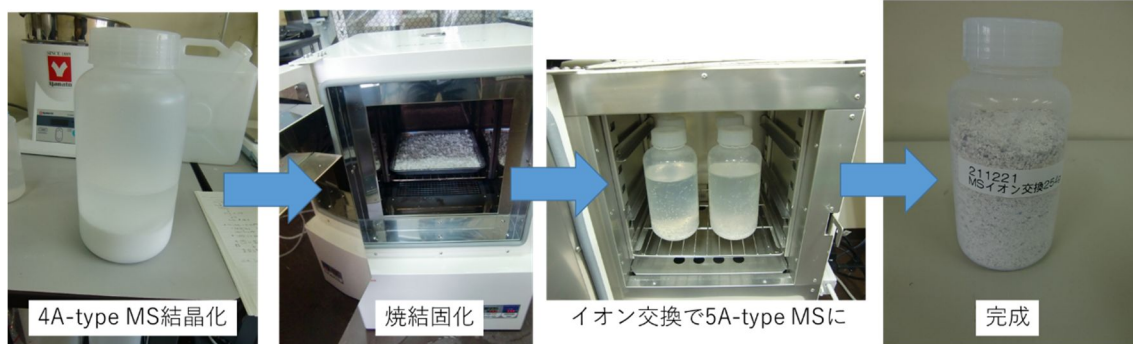


図 2 : version 2 MS の製作工程と、完成品

本研究で製作された MS は、英国シェフィールド大において、SF₆ ガスからのラドン吸着試験が実施された。

Version 1 MS については、4A-type を塩化カルシウムでイオン交換をして 5A-type にしたが、塩化カルシウムの ²²⁶Ra 含有量が、1000mBq/kg と非常に大きいものであった。それでも、市販の MS 以上のラドン吸着能力があることが示された[5]。また、Version 2 MS についても同様に試験をした結果、ラドン湧き出し量が大幅に削減され、十分なラドン吸着能力があることが示された。この結果によって、暗黒物質探索実験におけるラドン吸着装置に使用可能な目途が立った。

(4) 放射能計測装置の開発

暗黒物質探索実験のターゲットとなるガス中および、部材からガスに放出される放射性不純物を測定する装置を開発した。図 3 (左) にその写真を示す。静電捕集型ラドン検出器と、独自に開発した大型の比例計数管によって、ラドンからの信号を観測することに成功した。図 3 (右) は、比例計数管におけるラドンからの信号を示している。本研究で開発した MS についても、ラドンの湧き出し測定及び吸着試験を実施予定である。また、本装置の比例計数管は、暗黒物質探索実験に用いるガス及び部材から湧き出るラドン以外の放射性同位体を高感度で測定することを目標とする。

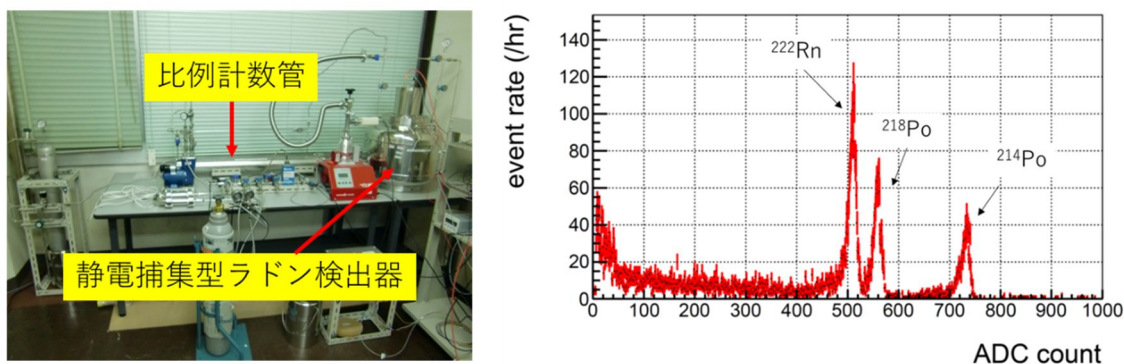


図 3 : (左) 放射能計測装置 (右) 比例計数管によるラドンからの信号

<引用文献>

- [1] K. Abe et al. (XMASS Collaboration), “A direct dark matter search in XMASS-I” Phys. Lett. B 789 (2019) 45-53
- [2] The XMASS Collaboration (K. Abe et al.), “Radon Removal from Gaseous Xenon with Activated Charcoal” Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A661, 50-57 (2012)
- [3] A. C. Ezeribe et al 2017 JINST 12 P09025
- [4] H.Ogawa et al., “Development of Low Radioactive Molecular Sieves for Ultra-Low Background Particle Physics Experiment” JINST 15 (2020) P01039
- [5] 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

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 R.R. Marcelo Gregorio, N.J.C. Spooner, J. Berry, A. C. Ezeribe, K. Miuchi, H. Ogawa, A. Scarff	4. 巻 16
2. 論文標題 Test of low radioactive molecular sieves for radon filtration in SF6 gas-based rare-event physics experiments	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Instrumentation (2021)	6. 最初と最後の頁 P06024(1-12)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1748-0221/16/06/P06024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 H. Ogawa, K. Abe, M. Matsukura and H. Mimura	4. 巻 15
2. 論文標題 Development of low radioactive molecular sieves for ultra-low background particle physics experiment	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Instrumentation (2020)	6. 最初と最後の頁 P01039(1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1748-0221/15/01/P01039	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 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
3. 学会等名 新学術領域「地下宇宙」合同研究会（オンライン）ポスター発表
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小川 洋・伊與木 健太・脇原 徹・安部 航・松倉 実・三村 均
2. 発表標題 低バックグラウンド素粒子物理学実験検出器用低放射能モレキュラーシーブスの開発
3. 学会等名 第36回ゼロライト研究発表会(online)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 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
3. 学会等名 東大宇宙線研究所共同利用研究成果発表会（オンライン）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 暗黒物質探索実験用極低放射能ゼオライトの開発
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 低BGモレキュラーシュープの開発
3. 学会等名 「第七回極低放射能技術」研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 ラドン吸着用極低放射能モレキュラーシーブの開発
3. 学会等名 新学術「地下宇宙」2021年領域研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 方向に感度を持つ暗黒物質直接探索のためのモレキュラーチューブ開発
3. 学会等名 新学術地下宇宙B02班（方向に感度をもった暗黒物質探索）研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Alasdair McLean, Callum Eldridge, Robert Renz Marcelo Gregorio, Neil Spooner, Kentaro Miuchi, Hiroshi Ogawa
2. 発表標題 Towards Directional Dark Matter Detectors using High Gain Negative Ion TPCs with Continuous Radon Reduction
3. 学会等名 10th symposium on Large TPCs for low-energy rare event detection, Dec. 15-17,2021, University de Paris (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川 洋
2. 発表標題 暗黒物質探索実験のための極低放射能モレキュラーチューブの開発
3. 学会等名 令和3年度東大宇宙線研究所共同利用研究成果発表会（オンライン）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小川洋、伊與木健太、松倉実、脇原徹、安部航、身内賢太郎、梅原さおり
2. 発表標題 放射性ラドン除去用極低放射能5A型ゼオライトの開発
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会(オンライン)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
英国	University of Sheffield			