

## マイクロリアクター・超分子化学による卓上同位体分離プラント

Desktop Factory of Isotope Separation by Microreactor・Supramolecular Chemistry

主任研究員名：裕 隆太

分担研究員名：濱崎 竜英、緒方 良至

マイクロ空間の物質輸送やエネルギー輸送の効果を利用したマイクロチップとマイクロリアクターの技術は原理検証から実証の段階に入っており、バイオ・医療、高分子、環境、食品等、様々な分野領域への展開・応用がなされているが、素粒子物理学・原子力エネルギー・放射線診断への展開は未開拓で、今後のキラコンテンツとなりえる。先行研究ではまだ超分子化学の第1世代（crown-ether）のみでの検証であり、今後、第2世代（cyclodextrins）、第3世代（calix[n]arenes）、第4世代（cucurbit[n]urils）、第5世代（pillar[n]arenes）での最適化により、さらなる分配係数・分離係数の向上が見込まれ、検証を行う[1-4]。

### (1) Ca 同位体の分離濃縮

[g オーダー]原子核物理の分野で超重元素の合成や中性子過剰の不安定核の研究に<sup>48</sup>Caが欠かせない。80%以上の濃縮度のCaが年間数g必要。ニホニウム（Nh）がIU PAPに承認後、超重元素の認知度が高まり、世界中で囲い込みが起きて予算があっても買えない状態にある。

[kg オーダー] Caの同位体は高価であるがニーズは高い。特に医学の面でトレース可能なCaイオンは重要で、Caは体内を速く移動し陽イオンとして神経系統の動きを反映する。放射性的<sup>47</sup>Caはその生産に<sup>46</sup>Ca又は<sup>48</sup>Caを必要とする。特に<sup>48</sup>Caから<sup>47</sup>Caを作る中性子放射化法は廃棄物も少なく<sup>48</sup>Caの濃縮は<sup>47</sup>Caの実用レベルでの生産を可能とする。

[ton オーダー] ニュートリノ振動実験でニュートリノの種の間には質量差がある事が確実になった今、ニュートリノ質量の絶対値を測定できる2重ベータ崩壊は最も重要な研究に位置づけられ、ニュートリノを放出しない0ν2重ベータ崩壊で唯一、宇宙の物質生成の鍵となるレプトン数を破るマヨラナ粒子性も検証出来る。

### (2) Li 同位体の分離濃縮

[<sup>6</sup>Li 40~90%濃縮度]D（重水）T（トリチウム）核融合炉のブランケット内に装荷されるT増殖材料中のリチウム<sup>6</sup>(<sup>6</sup>Li)と中性子反応によりT燃料を生産するが、T増殖比を1以上にするためには40~90%濃縮<sup>6</sup>Liが必要である。水銀を用いるアマルガム法は唯一実用化された<sup>6</sup>Li濃縮技術であるが、日本では有害金属のため工業化出来ず、他、吸着剤、イオン透過膜、電気泳動法全て量産化に不向きで日本独自の国産濃縮技術の確立は、核融合炉実現に向け、最重要課題のひとつである。

[<sup>7</sup>Li分離濃縮] ホウ酸により原子炉構造材の腐食の抑制を目的にアルカリ側に水質

(pH)を調整する必要があるが、水酸化リチウムが添加されるが、<sup>6</sup>Liは中性子吸収材のために<sup>7</sup>Li濃度を高める必要がある、<sup>7</sup>Liは全てロシア(水銀アマルガム法)から輸入し、安全保障上の課題となり、リスク回避に、経済・環境面を考慮した国内供給体制の構築が急務。

[<sup>7</sup>Li 99.99%濃縮度] 中国ではトリウム溶融塩炉の研究が進められており、8月に2メガワット炉が完成し、2030年の373メガワット商用炉の運転を目指しており、LiFは冷却材として使用されるため、一基あたり、数~数十トンオーダーの濃縮<sup>7</sup>Liを必要とする。またトリチウムを抑制する必要がある、99.99%という高い濃縮度が求められる。現在の<sup>7</sup>Li供給国は、上記ロシアと中国のみであるが、中国における原子力エネルギー利用の高まりにより、中国は<sup>7</sup>Li供給国から輸入国に転じる可能性が高いと指摘されている。

### (3) 核融合炉・原発施設・PET薬剤等に起因する廃棄物からのトリチウム除去(気・液)

日本学術振興会の二国間交流事業「タイ国における環境水中トリチウムの全国規模調査と都市排水中の放射能濃度測定」も採択され、タイ国カセサート大学・タイ国家原子力技術研究所(TINT)と共同でタイ国における環境水中トリチウムの全国規模調査を実施中である。北部オンガラックにTRIGA型1万kW研究炉を現在、建設中(95%完了)かつ中国との連携協定による核融合実験炉の中国からの技術移転も計画中であり、まさしく今が、稼働前のベースライン基準値評価を行える唯一のチャンスであり、既に先行研究5か所での測定結果より緯度分布は認められ、赤道領域でのハドレー循環・季節変動に資する貴重なデータとなる。技術開発の面で特に、トリチウム水は、福島原発事故以降、汚染水処理で喫緊課題の核種であり、固体高分子電解質膜を用いた電解濃縮装置改良により原理的に濃縮度に上限が無く、タイ側のアルカリ電解濃縮法と比較し、面倒な電解質の添加、pH調整(中和)不要で、水のまま電解濃縮可能であり、相互検証を行う[5]。

## 令和3年度に公表した研究業績

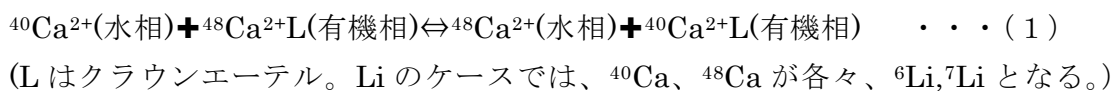
- 1) 裕隆太、義本孝明、Rittirong Anawat、佐久間洋一、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司、“化学交換法における同位体分別研究”，京都大学複合原子力研究所「第55回学術講演会報文集」(査読無)、KURNS-EKR-10, ISSN 2434-1088, pp31, 2021.  
<https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/wp-content/uploads/houbunsyu55.pdf>
- 2) A. Rittirong, T. Yoshimoto, R. Hazama, T. Kishimoto, T. Fujii, Y. Sakuma, S. Fukutani, Y. Shibahara, A. Sunaga., “Isotope separation by DC18C6 crown-ether for neutrinoless double beta decay of <sup>48</sup>Ca”, Journal of Physics: Conference Series, 2147, 012015, 2022. DOI: 10.1088/1742-6596/2147/1/012015
- 3) R. Hazama, T. Yoshimoto, A. Rittirong, Y. Sakuma, T. Fujii, S. Fukutani, Y. Shibahara, A. Sunaga, “Study of Isotope Separation via Chemical Exchange Reaction”, KURNS Progress Report 2021, pp250, 2022. ISSN 2434-9488  
[https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/PUB/report/PR/ProgRep2021/ProgressReport2021\\_online.pdf](https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/PUB/report/PR/ProgRep2021/ProgressReport2021_online.pdf)
- 4) A. Rittirong, 博士論文、大阪産業大学、2022 [大阪産業大学リポジトリ \(nii.ac.jp\)](https://www.nii.ac.jp)

- 5) JSPS Bilateral Joint Research Project with Thailand NRCT. 1st Collaboration meeting JAPAN and Thailand, FY2020. March 22, 2021.  
[http://133.64.176.21/dokuwiki/lib/exe/fetch.php?media=jsps\\_bilateral\\_joint\\_research\\_projects.pdf](http://133.64.176.21/dokuwiki/lib/exe/fetch.php?media=jsps_bilateral_joint_research_projects.pdf)

# カルシウム・リチウムの水溶媒及び塩酸添加溶媒での分配係数

碓 隆太(デザイン工学部)

液-液抽出法で、下記化学平衡反応 (1) により選択的に軽元素( $^{40}\text{Ca}$ )がクラウンエーテル側に濃縮され、0.07M 濃度の DC18C6 クラウンクロロホルム有機溶媒と、10~30% (重量比) 濃度の塩化カルシウム水溶液、塩化リチウム水溶液の水溶媒のみ、及び水溶媒 0.3、3、30%濃度に 12M 塩酸も添加した場合の 2 通りの比較を行った。液液抽出は、室温中、攪拌 1 分、静置 10 分で分離し、Ca/Li 濃度は原子吸光光度計 (島津 AA-6800)、同位体比測定は大阪大学のリアクションセル ICP-MS (Agilent 7900) で測定を行った。



水溶媒のみの場合と比較し、12M 塩酸添加により、分配係数が劇的に改善され、水溶媒のみでは、低濃度での分配係数の低下が顕著であるが、特に Ca では塩酸添加により低濃度でも、Ca イオンとクラウンエーテル間の親和性が維持され、30%濃度で約 9 倍の向上が得られた (図 1)。一方、クラウンエーテル樹脂による固液抽出法では、Ca イオンとクラウンエーテル間の親和性が、塩酸無しには成り立たず、少なくとも 6M 塩酸以上の塩酸添加が必須であり、クラウンエーテルそのものを用いる液液抽出法では、塩酸添加無しでも親和性が得られるが、塩酸添加により、約 1 桁近い改善が得られ、Li の場合も、適切な空孔サイズのクラウンエーテルを用いることにより同程度の改善が期待されると思われる (今回は Ca と Li の比較のため、DC18C6 の同じクラウンエーテルを用いた)。

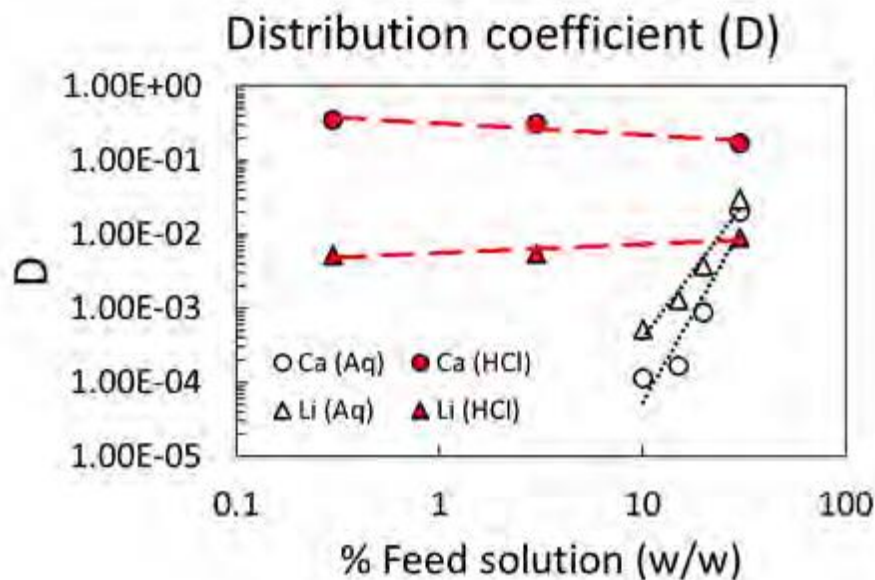


図 1 水溶媒(Aq)及び 12M 塩酸(HCl)添加溶媒で得られた各々の分配係数( $D = [\text{ion}]_{\text{Org}} / [\text{ion}]_{\text{Aq}}$ )の測定

# 環境中微量トリチウム水の測定法の開発及び タイ国での物質循環・集水域の起源解明

濱崎 竜英 (デザイン工学部)

日本学術振興会・二国間交流事業からも支援を受け、2年度目も、あいにくコロナ禍のため、現地への渡航・日本への受入は出来なかったが、試料採取を現地のタイ国カセサート大学・タイ国家原子力技術研究所 (TINT) に依頼し、測定は、本学及び国内共同研究先の京都大学・信州大学で実施した。バンコク首都圏水道公社 14 箇所のトリチウム測定・電気伝導度・pH・酸素・水素同位体比・各種溶存イオン濃度・元素分析の基礎情報に加え、雨水も 2020 年 5 月から毎月 (乾季を除く)、バンコクから南東 50km のカセサート大学シラーチャキャンパス (2021 年 8 月から北部チェンマイも) で採取を行い、バンコク首都圏の水源が 2 つに集約されることが判明した  $\delta$  ダイアグラム (天水線) との比較を行い、現在、2 年間に渡るデータを用いたクラスター多変量解析及びデジタル標高モデルの解析中である。

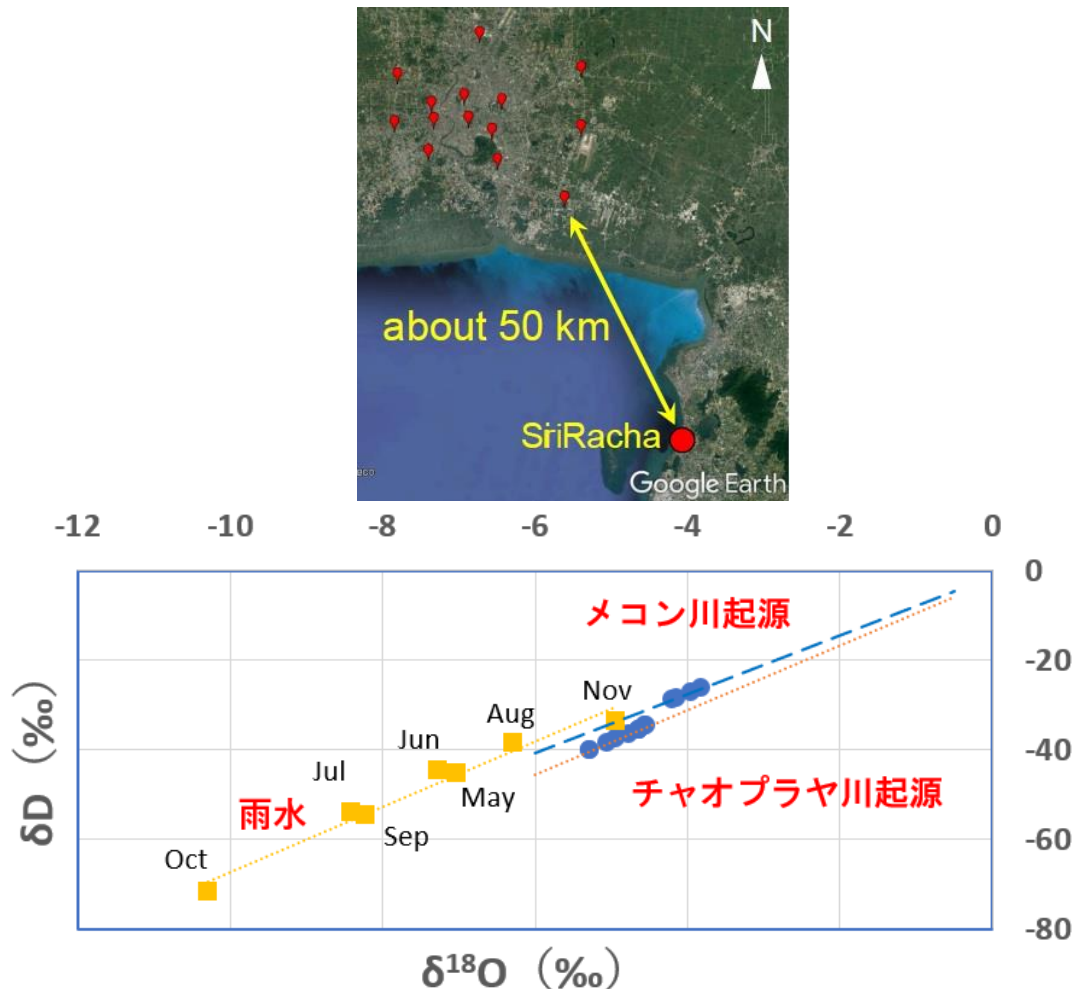


図1 (上) タイ国での 2020 年 7 月、バンコク首都圏水道公社水採取場所。及びカセサート大学シラーチャキャンパスでの雨水採取場所 (2020 年 5 月~11 月の月毎採取)。

(下) バンコク首都圏水道水及びシラーチャの雨水の酸素、水素の同位体組成 ( $\delta$  ダイアグラム)。

# 液体シンチレーション測定法による微量トリチウム濃度測定 最適ウィンドウ条件の決定

緒方 良至（名古屋大学（現・愛知医科大学））

液体シンチレーション測定法は、放射線の自己吸収がないため検出器に至る減衰が少なく、低エネルギーのベータ線計測に適しており、環境試料の低レベル放射能測定において、測定装置の性能を示す指標として FOM（Figure of Merit:性能指数）が用いられる。液体シンチレーション測定法においては、計数効率を  $E$ （%）、含水率を  $V$ （mL）、バックグラウンド計数率を  $B$ （cpm）とすると、以下定義され、FOM が大きいほど性能が良い。

$$FOM = \frac{E * V}{\sqrt{B}}$$

日立ヘルスケア製 AccuFLEX LSC-LB-7 液体シンチレーション装置を用い、試料水（無トリチウム水（東濃鉱山地下水）及び添加標準トリチウム水）と Ultima GOLD 液シンカクテル 10mL を 1:1 の比率で混合し、20mL HDPE シンチレーションバイアル容器で 100 分間測定を 10 回×3 サイクル（計 3000 分）測定（トリチウム標準水は 60 分を 6 回）を行い、エネルギーウィンドウ上限値の最適値（700ch=3.5keV）を求めた。従来の全エネルギーウィンドウ解析と比較し、本改良により約 1.6 倍の FOM 向上を達成した。

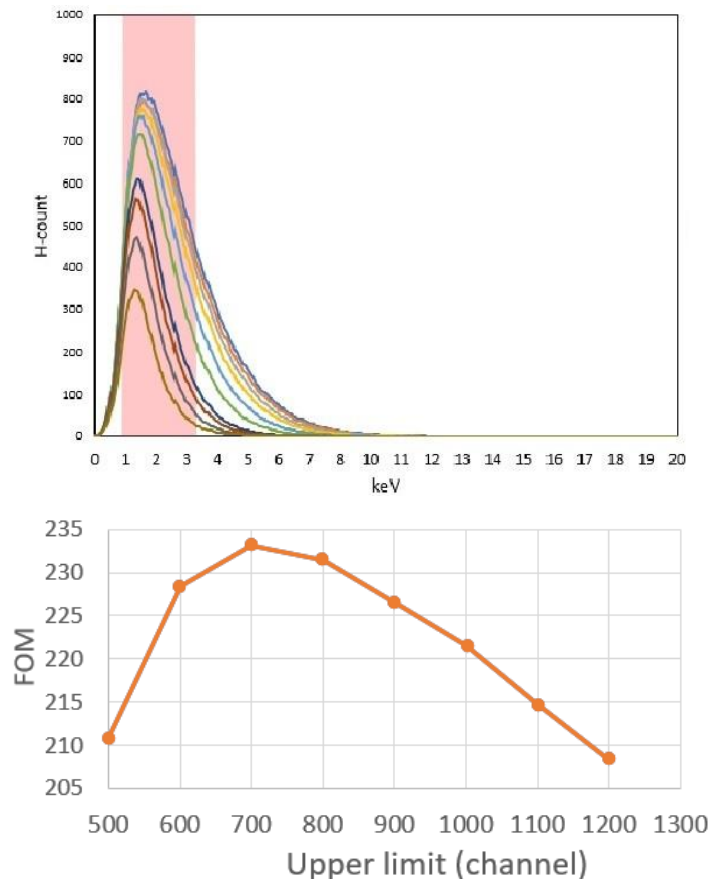


図1 (上) LB-7によるトリチウム標準水のエネルギースペクトル (下) FOMのエネルギーウィンドウ (下限 200ch=1keV、上限 500~1200ch) 依存性