

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K18353

研究課題名(和文)核磁気共鳴を利用した液相での同位体遠心分離その場観察

研究課題名(英文) In situ observation of the isotope centrifugal separation in the liquid state using nuclear magnetic resonance

研究代表者

緒方 裕大(Ogata, Yudai)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・博士研究員

研究者番号：80757691

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：同位体遠心分離法では、気相を用いた方法が実用化されているが、莫大なコストや設備の巨大化を伴うため新技術開発が望まれている。液相での同位体の遠心分離の分離機構解明を目的に、液相での遠心分離現象の定量評価を行う。試料とNMR信号検出器を同時に回転させることで、回転半径方向の局所的濃度測定が可能な装置を開発し、遠心分離過程のその場観察に挑戦した。水溶液中の同位体分離の極端な模型としてNaI-CsI混合溶液(NaI:CsI=3.3mol/L:1.66mol/L)を用いた遠心分離実験を行い、Na濃度の回転数依存性を液相その場観察することに成功した。

研究成果の概要(英文)：In the isotope centrifugal separation, a method using a gas phase has been put to practical use, however, the development of new technology is desired due to enormous cost and size of equipment. Quantitative evaluation of the centrifugation phenomenon in the liquid phase leads to clarification of the mechanism of isotope centrifugal separation in the liquid phase. We created the apparatus for measuring the local concentration in the radial direction of rotation by simultaneously rotating the sample and the NMR signal detector and succeeded in the in situ observation of the centrifugation process. We performed centrifugal experiment using NaI - CsI mixed solution (NaI: CsI = 3.3 mol / L: 1.66 mol / L) as a model of isotope separation in the liquid state. We succeeded in the in situ observation of the centrifugal separation process in the liquid state.

研究分野：工学

キーワード：遠心分離 同位体 液相

1. 研究開始当初の背景

同位体分離は核分裂用 ^{235}U の濃縮や、中性子吸収能力の高い ^{10}B の濃縮に利用されている等、有益な物質を生産するために必要不可欠な技術であるが、問題点も多い。それは同位体を分離するためには化学的な性質が同じであるために質量数の差異を用いる方法しかないことが主因である。質量数の差異による分子移動度の違いを用いた電気分解による同位体分離では、1 kgの重水を得るために 57 MWh という莫大なエネルギーが必要になる [Nucl. Eng. Des. **144**, 269 (1993)]。重水は核融合の燃料や核分裂反応制御用の中性子減速材として重要であり、より低エネルギーかつ低コストな生産方法が望まれている。遠心分離を用いた同位体分離については、分子の移動度が高い気相を用いたガス遠心分離法が実用化されている。この方法では、分子濃度が希薄であるため、生産量の向上には装置の大規模化が必要であり、莫大なコストが伴う。近年では、医療においても同位体への需要が高まっている。核医学の例では、脳梗塞検査等に使用されている $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の親核種である ^{99}Mo は、半減期が 66h と短くストックできない原料である上に、全量を輸入に依存している。 ^{99}Mo の国内生産に向け ^{98}Mo に熱中性子を照射する研究が行われているが、高濃度 ^{98}Mo の購入にかかる莫大な費用が実用化を阻んでいるため高効率で経済的な同位体生産方法が望まれている。

2. 研究の目的

我々のグループでは世界で初めての遠心分離を用いた液相同位体分離に成功している [Appl. Phys. Lett. **91**, 231917-1-3 (2007)]。本手法を用いれば、同位体の遠心分離が小規模な設備と低コストで実現できる。しかしながら、実験結果では理想的な遠心分離半径依存の分離係数が得られなかった。低重力側では分離係数の分布傾斜が確認されなかった。相転移での分子移動の影響などの理由が考えられるが、明らかにされていない。これは、遠心分離中は物体が高速で回転しているため、内部の直接観測は無理だと考えられていたからである。

この課題について核磁気共鳴法 (NMR) を用いた手法によって解決する。試料と信号検出器を同じ回転場にさせた状態での NMR 信号測定を用いる。この手法を応用すれば回転している試料の局所的な NMR 測定が可能であり、液相遠心分離のその場観

察を実現できる。また、液体では先鋭な NMR スペクトルが得られ、信号強度も大きいことから高精度の測定が可能であり、液相遠心分離の研究に適した測定手法である。液相同位体分離と、新たに開発された分析技術を融合することで、液相遠心分離その場観察を行い同位体分離現象解明に発展させるのが目的である。

3. 研究の方法

遠心分離中の局所的濃度解析に NMR 測定を用いた。NMR 測定は原子核のスピンの磁場中においてエネルギー分裂を起こす事を利用した元素分析法であり、原子核種の差異は共鳴周波数の違いとして現れる。この原子核は中性子と陽子から構成されたものであり、同位体により異なる。そのため原子核固有のスピンの利用した解析法である NMR は、同位体の同定には非常に適している。

液相遠心分離過程のその場観察を実現するため、NMR の信号検出コイルと試料を一体化して高速回転させる方法を応用した。図 1 に無線共振回路技術を応用した

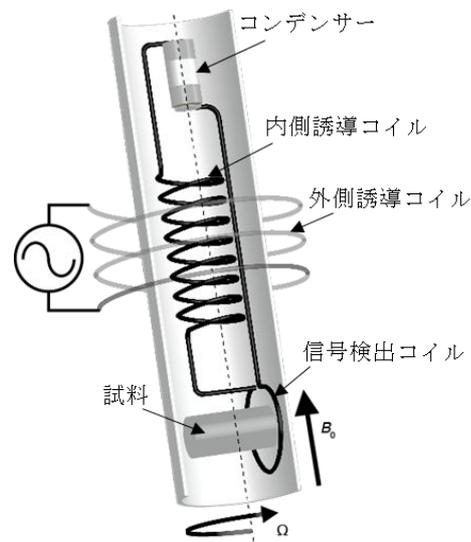


図 1 : 高速回転共振回路

高速回転共振回路を示す。 B_0 は NMR 装置内での磁場印加方向を示しており、 Ω は回転方向を示している。遠心管の中にコンデンサー、測定コイルと内側誘導コイルで共振回路を構成し、コンデンサーの容量を調節し測定周波数に同調する。これを外側誘導コイル内に挿入し、相互誘導を通じて高速回転共振回路にラジオ波を誘導し、NMR 測定ができる仕組みになっている。外部磁場は回転軸と平行に印加する。

図2は作成した内径 6.5mm の遠心管用のサンプルセットアップである。試料最大半径領域に信号検出コイルがセットしてある。このサンプルが挿入された遠心管を圧縮空気を用いて最大 4 kHz の回転を実現する。これにより溶液濃度の回転数依存性をその場観察する。



図2：6.5mm 遠心管用サンプルセットアップ

実験セットアップ

図2の試料部に水溶液を入れ、サンプルセットを羽根車付きの中空の遠心管に挿入する。この遠心管を JEOL 製である圧縮空気駆動の回転システム（ベンチスピナー）に挿入。このベンチスピナーはプローブに設置されており、このプローブを NMR 装置に挿入する。

4. 研究成果

まず初めに、 ^{23}NaI 水溶液で遠心分離実験を行った。図3は NaI（濃度:10 mol/L）水溶液の最大回転半径部における ^{23}Na 信号検出強度の回転数依存性を示している。無回転から回転印加時の大きな変化は確認されなかった。

図4は NaI (1.1 mol/L) と CsI (2.2 mol/L) の混合水溶液を用いた最大回転半径部における ^{23}Na 信号検出強度の回転数依存性を示している。回転数に依存した Na 濃度の変化は確認できなかった。Na と

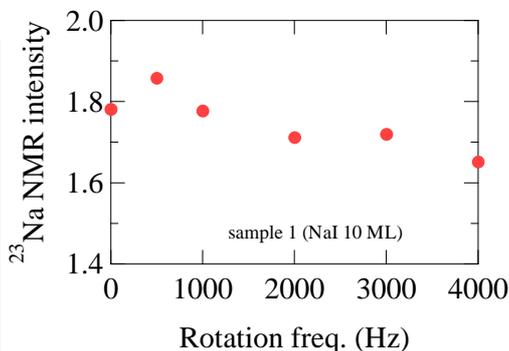


図3：最大半径部における NaI (10 mol/L)水溶液中での Na 信号強度の回転数依存性

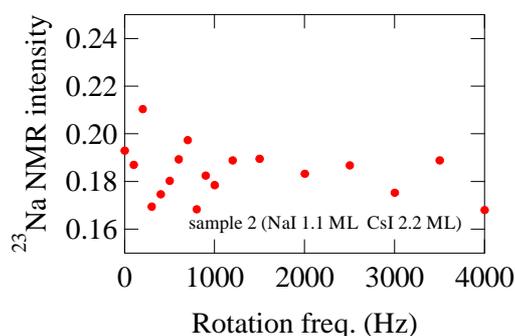


図4：最大半径部における NaI(1.1 mol/L)と CsI(2.2 mol/L)の混合水溶液中での Na 信号強度の回転数依存性

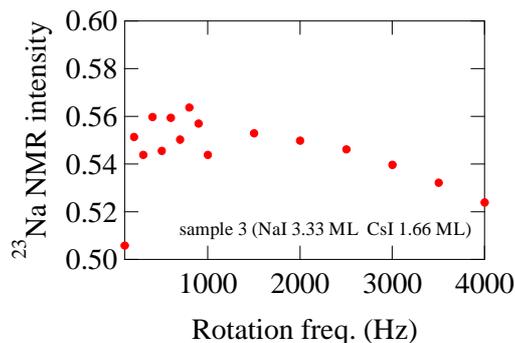


図5：最大半径部における NaI(3.33 mol/L)と CsI(1.66 mol/L)の混合水溶液中での Na 信号強度の回転数依存性

Cs の原子量はそれぞれ 22.9 と 132.9 であり、その差は大きい。しかしながら、回転数依存性が確認できなかった。これは、溶液が希薄であるためだと考えられる。

図5は NaI (3.33 mol/L) と CsI (1.66 mol/L) の混合水溶液を用いた最大回転半

径部における ^{23}Na 信号検出強度の回転数依存性を示している。0 Hz から 1000 Hz までは 100 Hz 毎に、1000 Hz からは 500 Hz 毎に Na 濃度を測定した。0 から 100 Hz への回転数の変化時に、急激な Na の濃度上昇が観測された。これはイオンが最大半径部に集まり、濃度が向上したためだと考えられる。その後 1000 Hz までは濃度変化は観測されない。1000 Hz から 4000 Hz までは 500 Hz 毎に Na 濃度が減少しているのが確認された。これは原子量の大きい Cs が遠心力印加方向に移動していくと同時に原子量の小さい Na が回転中心方向に移動していくためだと考えられる。

今回、高速回転共振回路を用いて試料と測定部の同時回転を実現させ装置開発に成功したことで、液相遠心分離その場観察に成功した。

5 kHz 以上の高い遠心力では、成形素材であるスタイキャストの変形、コンデンサの移動、液漏れ等の問題が発生した。そのため、成形素材の選定や、新たなサンプルセット構成の創作により研究の発展が期待される。

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2 件)

Y.Ogata, H. Chudo, B. Gu, N. Kobayashi, M. Ono, K. Hariu, M. Matsuo, E. Saitoh, S. Maekawa, (2017): Enhanced orbital magnetic moment in FeCo nanogranules observed by Barnett effect, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **442**, 329-331. 査読有
DOI:10.1016/j.jmmm.2017.06.101

Y. Ogata, H. Chudo, M. Ono, K. Harii, M. Matsuo, S. Maekawa, and E. Saitoh, (2017): Gyroscopic g factor of rare earth metals, *Applied Physics Letters*, **110**, 072409. 査読有
DOI:10.1063/1.4976998

[学会発表](計 2 件)

”Barnett effect in rare-earth metals”
Y. Ogata, H. Chudo, M. Ono, K. Harii, S. Okayasu, M. Matsuo, S. Maekawa, E. Saitoh
International workshop on nano-spin conversion science quantum spin dynamics
2016 年 10 月 13 日

”希土類金属を用いた常磁性バーネット効果の観測”
緒方裕大、小野正雄、中堂博之、針井一哉、岡安悟、松尾衛、前川貞通、齊藤英治
日本物理学会第72回年次大会
2016 年 9 月 14 日

6 . 研究組織

(1)研究代表者

緒方 裕大 (Ogata, Yudai)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門
先端基礎研究センター・博士研究員
研究者番号：80757691