

令和 5 年 9 月 27 日現在

機関番号：34407

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2020

課題番号：16H04636

研究課題名(和文) マイクロリアクターによる多段同位体分離・濃縮

研究課題名(英文) Multistage Isotope Separation/Enrichment by Micro Reactor

研究代表者

碓 隆太 (Hazama, Ryuta)

大阪産業大学・デザイン工学部・教授

研究者番号：00379299

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：多段濃縮に向けた化学同位体分離開発：液液抽出での従来の水溶媒と比べ、Ca30%高濃度(3.5M)に12M塩酸添加で分配係数は約1桁、分離係数は約2倍の1.007の激的な改善を得た。攪拌子バッチ処理による液液抽出攪拌反応(30分)と同程度の15%分配係数を、攪拌無しマイクロリアクター層流のみでわずか0.3秒(6千倍高速)で達成。前処理無し&簡易迅速なICP-MSによる同位体比測定の開発：ホット・リアクションセル法から、クールプラズマ法でAr起因干渉イオンを低減し、高精度な同位体比測定に成功。大量生産に向け、樹脂法/電気泳動法の百/4百倍の高濃度かつ再利用可クラウンエーテルで廉価な濃縮達成。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ニュートリノ質量の絶対値及びマヨラナ性を検証できる二重ベータ崩壊実験において、ニュートリノの質量が標準階層領域も示唆される中、最大のQ値をもつ48Caによるバックグラウンドフリー実験であるCANDLES実験を濃縮48Caを含むCaF₂結晶で行うことが、次世代実験として期待されている。Ca濃縮法は未だ電磁法に限られ、価格は高騰(数千万円/グラム)し、世界での市場供給量も既存の数十グラムに限られ、安価な濃縮Ca法開発は、Caトレーサーの医療診断へも画期的なin vivo診断を可能とし、新たな新産業創出に繋がる。核融合炉燃料トリチウム製造の濃縮6Liへの有効性も示され、独自の国産濃縮技術開発が重要。

研究成果の概要(英文)：Development of chemical isotope separation towards multistage process:1 Dramatic improvements of distribution coefficient and separation factor were obtained for one order and 2 times, respectively by adding 12M HCl in Ca aqueous solution (30% 3.5M).2 We obtained a similar value of 15% distribution coefficient with the batch liquid-liquid extraction process and its Ca transfer between two phases without any stirring for only 0.3 sec (6000 times faster than batch process with magnetic stirrer for 30 min) on a chip.3 Development of quick and easy (without preprocessing) method for isotope ratio measurement by ICP-MS: We succeeded an accurate measurement of isotope ratio by changing from hot plasma with reaction-cell to cool plasma with reducing interference from Ar gas. Our method utilizes a high Ca concentration of 100/400 times for crown-ether resin and electrophoresis, respectively and its crown-ether can be recycled. These enables us to achieve a cost-effective mass production.

研究分野：数物系科学

キーワード：実験核物理 素粒子実験 化学工学 同位体分離 マイクロ・ナノデバイス

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

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(基盤C)により既にクラウンエーテル液抽出によるCa同位体の化学分離法の有効性を確認し、事業化を目指した多段濃縮に当り、基本的にクリアしないといけない三大障壁 Ca濃度: ほぼ飽和水溶液の3.5M(30% w/w) 分離係数: 1.004~1.007(4段目・反応時間1分・室温) 分配係数: 2~15% を、本基盤(B)で達成し、残る課題は、多段濃縮プロセスでの各段数でのCaの損失をいかに減らし、2相(有機相・水相)から回収Caを共に補いつつ、10倍濃縮に必要な段数: 1000段~4000段で第一目標の【gオーダー】での回収量を達成するかによる。Ca濃度を維持(分配係数)したまま、同時に高い分離係数も保持できる新しい液抽出法を本基盤(B)で開発し(図1) 溶媒等へのCa溶解による欠損も無いことも確認済みで、水だけでCaをクラウンエーテルから脱着可能(固液分離では、着脱に高濃度塩酸が必須)な本手法により可能となり、本基盤(B)の成果を踏まえ、今後、多段化大量生産の開発に注力する。

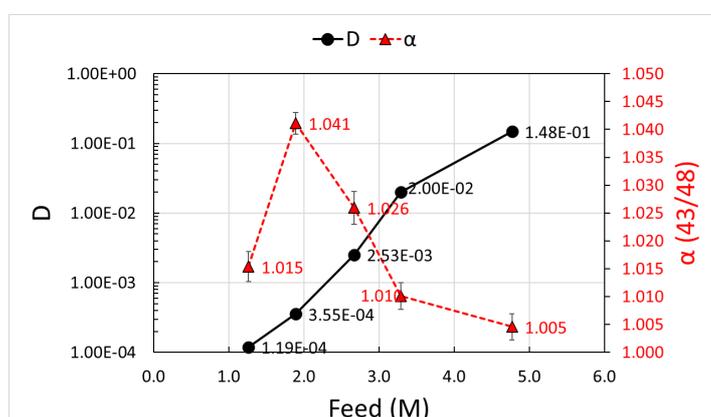


図1: 分配係数(D)及び分離係数(α)のfeed塩化カルシウム水溶液中のCa濃度依存性 ($D = \frac{[Ca]_{有機相}}{[Ca]_{水相}}$; 原子吸光度計、 $\alpha = \frac{[^{43}Ca/^{48}Ca]_{有機相}}{[^{43}Ca/^{48}Ca]_{feed}}$; ICP-MSで測定。

2. 研究の目的

(1) Ca同位体の分離濃縮: 以下の生産量に応じた段階を踏み開発を行う。

[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 ^{48}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IUPAP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 ^{47}Ca はその生産に ^{46}Ca 又は ^{48}Ca を必要とする。特に ^{48}Ca から ^{47}Ca を作る中性子放射化法は廃棄物も少なく ^{48}Ca の濃縮は ^{47}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02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

[6Li 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6(6Li)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 6Li 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 6Li 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。

[7Li 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り、水酸化リチウムが添加されるが、 6Li は中性子吸収材のために 7Li 濃度を高める必要があり、 7Li 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。

[7Li 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、昨年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 7Li を必要とする。またトリチウムを抑制する必要があり、99.99%という高い濃縮度が求められる。現在の 7Li 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 7Li 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. 研究の方法

液液抽出法 (Ca 濃度、分配係数、分離係数) の最適化

$^{40}\text{Ca}^{2+}$ (水相) + $^{48}\text{Ca}^{2+}$ (有機相) $^{48}\text{Ca}^{2+}$ (水相) + $^{40}\text{Ca}^{2+}$ (有機相): (L はクラウンエーテル) 液-液抽出 (LLE) 法で、上記化学平衡により選択的に軽元素 (^{40}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 ICP-MS (Agilent 7900) で測定を行った (図 4, 5, 9, 10)。

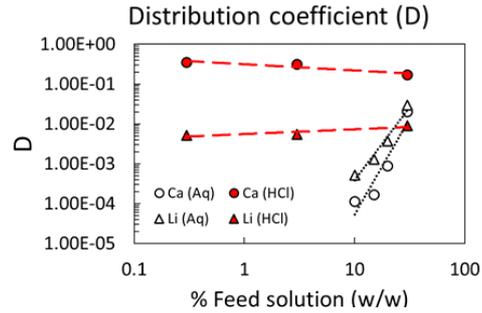


図 2: 分配係数 ($D = [\text{ion}]_{\text{Org}} / [\text{ion}]_{\text{Aq}}$) of LLE

4. 研究の成果

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 2)。一方、既往研究の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、適切な空隙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)。

東工大先導原子力研より既知のスパイク試料 (^7Li : 94.14, 96.35, 98.20%) を得て、ICP-MS の Li 同位体比測定の検証を行い、Li の 1 段当たりの分離係数として、**30% 濃度の水溶媒に対し、 1.009 ± 0.003 、12M 塩酸添加に対し、 1.008 ± 0.004** を得た (図 3)。上記分離係数では、約 1400 段数で 10 倍濃縮が得られ、最適径の B15C5 および多段濃縮の検討中。

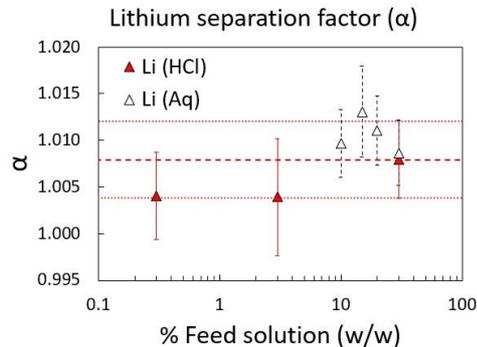


図 3: Li1 段の分配係数 ($\alpha =$

$[\text{Li}]_{\text{Org}} / [\text{Li}]_{\text{Aq}}$): (Line for 30%.)

上記、液液抽出法を、抽出後の水相中 Ca に、新たな 20mL 有機溶媒 (12M 塩酸添加有: 図 5 左, 添加無し: 図 5 右) と攪拌し、この液液抽出プロセスを 6 回繰り返した。リアクションセル ICP-MS による同位体比測定は、東工大先導原子力研究所の表面電離型質量分析計 **TIMS (TRITON 及び MAT261) により、**逆抽出後の溶質 Ca (軽元素 (^{40}Ca) が有機相側に濃縮されるため、重元素 (^{48}Ca) は減少方向) について同じ結果が得られ、**整合性を確認**した (図 4: 水相側の濃縮 Ca 同位体比は、ICP-MS での測定結果 (図 5) のみで、TIMS では未測定で今後、測定予定。)

Comparison TIMS (TRITON, and MAT261) vs. RC-ICP-MS

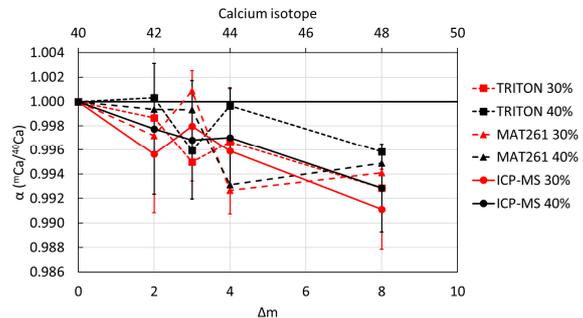


図 4: 単位質量当り分離係数 (α): ICP-MS (Agilent 7900) and TIMS (TRITON and MAT261)

上記、分離係数は、 **1.007 ± 0.004 (12M 塩酸添加有) 及び、 1.004 ± 0.004 (添加無し)** が得られ、10 倍 ^{48}Ca 濃縮を得るためには、各々、2112 段、3783 段の多段濃縮が必要で、**固液抽出 (クラウンエーテル樹脂) 法と比較し約 1.3~2.3 倍の結果が得られ、多段濃縮での、Ca 回収率 (25.6%: 塩酸添加有, 50.4%: 添加無し)** も考慮し、今後検討を行う。

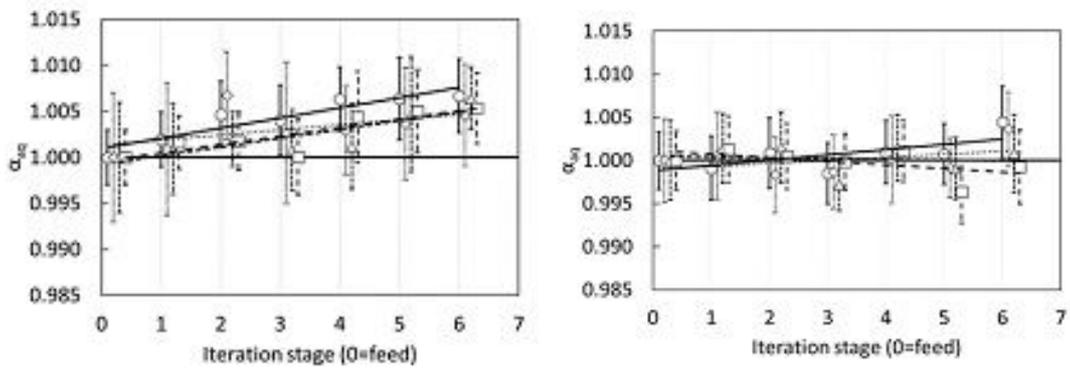


図 5 : Ca 液液抽出 6 段目までの分離係数 () 左 : 12MHCl 添加溶媒、右 : 添加無し水溶媒
 $D = {}^{48}\text{Ca}/{}^{40}\text{Ca}$ (○), $D = {}^{48}\text{Ca}/{}^{42}\text{Ca}$ (■), $D = {}^{48}\text{Ca}/{}^{43}\text{Ca}$ (-----), $D = {}^{48}\text{Ca}/{}^{44}\text{Ca}$ (□)

マイクロリアクター法による反応率・高速化開発

水相 (3M 塩化カルシウム水溶液) と有機相 (0.07M DC18C6 クロロホルム溶液) をシングル Y タイプ-4cm 合流長マイクロチップ (図 6) 上を層流送液 (図 7) し反応を室温で行った。流速 $30 \mu\text{l}/\text{分}$ で送液 (30 分で 1ml) し、層流送液後の Ca 濃度を ICP-MS で測定した。従来のスターラーによるバッチ処理による液液抽出攪拌反応 (30 分) と同程度の 15% 分配係数 (二層間 Ca 移行) (図 8) を、攪拌無しの層流のみのわずか **0.3 秒 (6000 倍の高速)** で得ることに成功した。この結果は、マイクロチップの大きな比界面積 (S/V) & 短い拡散距離 (T) による高効率 & 高速化の有効性を実証する証左で、 $100 \mu\text{m}$ 溝幅では、 $S/V = 200$ & $T = 0.1\text{s}$ である。高速かつ高効率二層変換卓上システム : ホウケイ酸ガラス製マイクロチップ (顕微鏡上) で液液界面を生成し、マイクロ送液制御機器 (MFCS-EZ)、流量計、高圧 (0.7MPa) ポンプより構成 (図 6)。

図 6 シングル Y タイプマイクロチップ (ICC-SY05) : $100 \mu\text{m}$ 溝幅、 $40 \mu\text{m}$ 溝深さ、4cm 流路長 (IMT: マイクロ化学技研製)。

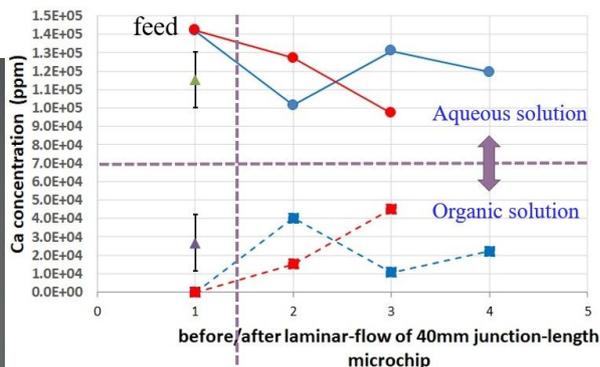
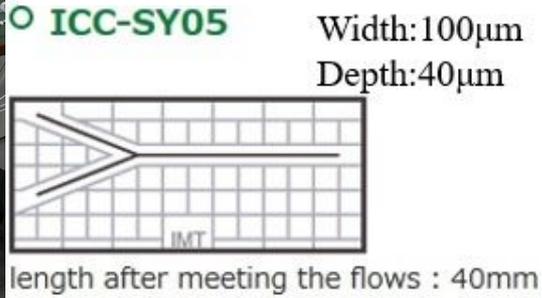
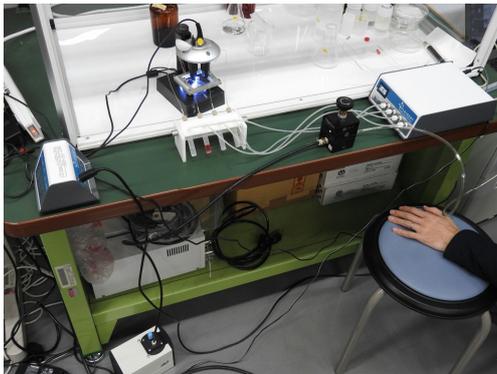


図 7 マイクロチップ上での水層 (右) - 有機層 (左) の 2 溶媒による層流形成 (下 → 上)。

図 8 横軸 1 : フィード溶液 (塩化カルシウム水溶液 : 水層 ●、クラウン-クロロホルム有機層 ■) 2 ~ 4 : 層流流路長 4cm 反応後。2 ~ 4 の平均 Ca 濃度 ; ▲。

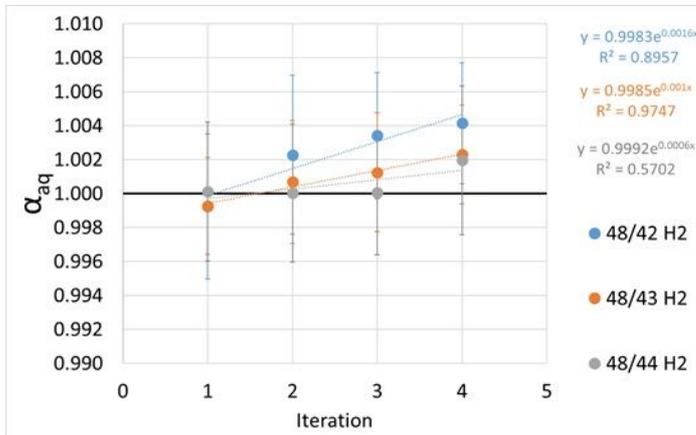


図 9: 4 段目までの多段化・液液抽出により、分離係数: 1.002 ~ 1.004 (室温) を得た (水素ガスによる Reaction-cell ICP-MS 測定)。現在、より高精度の同位体比測定を行うためクールプラズマ法で測定し改善を行った (図 10)。10 段に要する時間は約 2 時間で、10 倍濃縮に必要な 1000 段も約 1 か月のプロセス時間で可能。

ICP-MS クールプラズマ法による高精度同位体比測定の開発

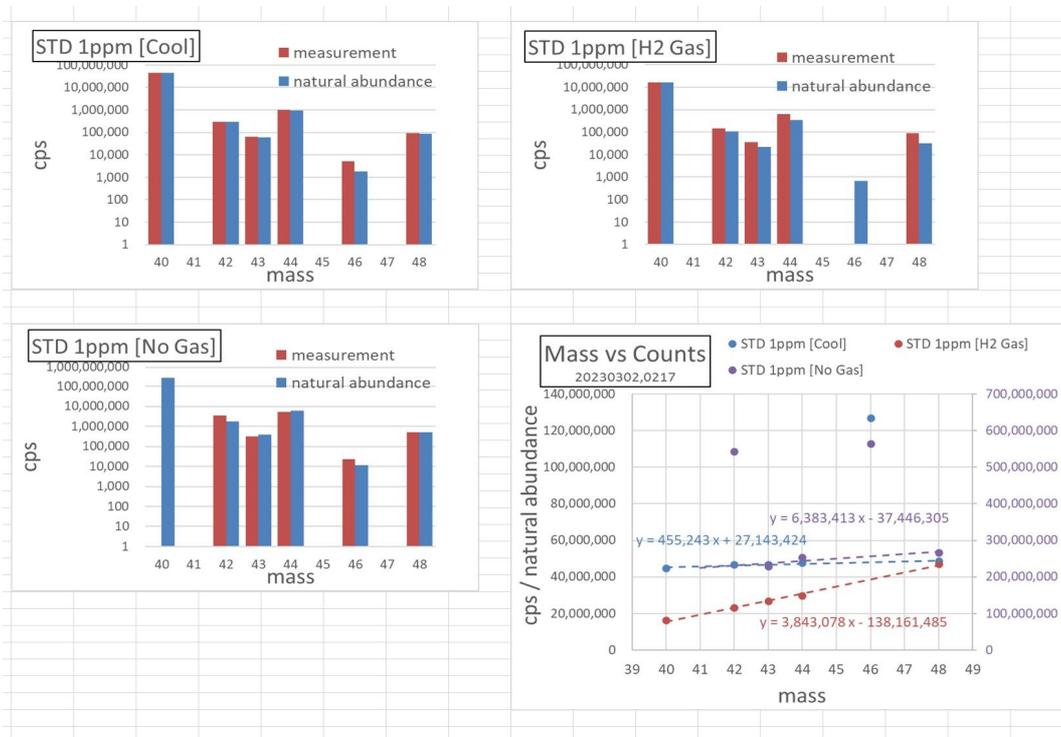


図 10: Ca 標準試料 (1ppm) での Ca 天然同位体比測定結果 (ICP-MS7900) 比較。左上: クールプラズマ法、右上: ホットプラズマ&水素ガスリアクションセル法、左下: ホットプラズマ&ノーガス法。右下: 3 手法の天然存在比との計数 (cps) 比較。

従来から懸念のあった Ar ガスに起因するスペクトル干渉及びマトリックス干渉の影響を受ける Ca 及び Li 同位体比測定に当たり、これまで He・H₂ ガスによるコリジョン・リアクションセル法により改善に取り組んできたが、600W 低出力イオン化で妨害イオンを元から生成させないクールプラズマ法を初めて ICP-MS での同位体比測定に適用した。これまでの x レンズ (ホットプラズマ) から s レンズ (クールプラズマ) s レンズ用スキマコーン (Pt/Cu) Pt サンプルングコーン、マイクロフローネブライザー、石英トーチに交換し、大阪大学所有の ICP-MS (7900) をクールプラズマ仕様に改良を行い、水素ガス・リアクションセル法では、Ca 質量数依存性を除去出来なかった (干渉イオンの上乗せによる) が、今回のクールプラズマ法により、Ca 質量数に依存しない天然存在比に合致したフラットな同位体比測定に初めて成功した (図 10)。

現在、超分子化学・マイクロリアクターによる同位体分離は本研究のみで唯一無二であり、本液液抽出法は、最大濃度である飽和水溶液で通水可能で、Ca 濃度が樹脂法、電気泳動法と比較し、各々 100 倍及び 400 倍であり、2~3 桁の生産量の優位性を有している。マイクロリアクターは一見、大量生産に向かないように思われるが、通常のバッチ法では実験室レベルでの結果が工業化の際にそのまま適用不可で、ナンバーリングアップ大量生産スケールアップを目指す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 7件 / うち国際共著 9件 / うちオープンアクセス 16件）

1. 著者名 R. Hazama, T. Yoshimoto, Y. Sakuma, T. Fujii, T. Fukutani, Y. Shibahara	4. 巻 2018
2. 論文標題 Study of Isotope Separation via Chemical Exchange Reaction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 KURNS Progress Report 2018, April 2018-March 2019	6. 最初と最後の頁 252
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 -
1. 著者名 A Rittirong, P Noithong, R Hazama, Y Sakuma, K Saenboonruang and W Sudprasert	4. 巻 1285
2. 論文標題 Determination of tritium levels in tap waters collected from various regions in Thailand using liquid scintillation counting	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conf. Series	6. 最初と最後の頁 012021-1,7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1285/1/012021	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 K. Nakajima, T. Kishimoto, R. Hazama et al.	4. 巻 6
2. 論文標題 Upgrading of shielding for rare decay search in CANDLES	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Progress in Nuclear Sciences and Technology	6. 最初と最後の頁 144,147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.15669/pnst.6.144	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 A Rittirong, P Noithong, R Hazama, Y Sakuma, K Saenboonruang and W Sudprasert	4. 巻 2019-2
2. 論文標題 The Regional Distribution of Tritium Content in Tap Water Collected in Thailand and Eastern China	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proc. 20th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proc.	6. 最初と最後の頁 72,77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Nakajima, R. Hazama et al	4. 巻 100
2. 論文標題 Background studies of high energy rays from (n,) reactions in the CANDLES experiment	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Astroparticle Physics	6. 最初と最後の頁 54-60
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.astropartphys.2018.02.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Nakajima, R. Hazama et al	4. 巻 1921
2. 論文標題 Performance of updated shielding system in CANDLES	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 60003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5018999	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Hazama, Y. Sakuma, T. Yoshimoto, T. Tatsubo, T. Fujii, T. Fukutani, Y. Shibahara	4. 巻 2189-7093
2. 論文標題 Study of Isotope Separation of Strontium and Calcium via Chemical Exchange Reaction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 KURRI Progress Report 2017(April 2017 - March 2018)	6. 最初と最後の頁 104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 碓隆太, 義本孝明, 佐久間洋一, 藤井俊行, 福谷哲, 芝原雄司	4. 巻 KURRI-KR-213
2. 論文標題 化学交換法における同位体分別研究	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 京都大学複合原子力科学研究所「第53回学術講演会報文集」	6. 最初と最後の頁 39
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 碓隆太、濱崎竜英、佐久間洋一	4. 巻 41
2. 論文標題 マイクロチップによる同位体分離	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 大阪産業大学産業研究所所報	6. 最初と最後の頁 47-51
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 S. Umehara, T. Kishimoto, R. Hazama et al.	4. 巻 INPC2016
2. 論文標題 Search For Neutrino-less Double Beta Decay Of ^{48}Ca - Candles -	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Proc. of Sci.	6. 最初と最後の頁 246-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.22323/1.281.0246	査読の有無 無
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 B. Aharmin, M. Bergevin, R. Hazama et al.	4. 巻 96
2. 論文標題 Search for neutron-antineutron oscillations at the Sudbury Neutrino Observatory	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. D	6. 最初と最後の頁 092005-1-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevD.96.092005	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 R. Hazama, Y. Sakuma, T. Yoshimoto, T. Fujii, T. Fukutani, Y. Shibahara	4. 巻 2016
2. 論文標題 Study of Isotope Separation of Strontium and Calcium via Chemical Exchange Reaction	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 KURRI Progress Report 2016(April 2016 - March 2017)	6. 最初と最後の頁 17
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 碓隆太、義本孝明、佐久間洋一、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司	4. 巻 KURRI-EKR-16
2. 論文標題 ストロンチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究III	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 京都大学原子炉実験所「第51回学術講演会報文集」	6. 最初と最後の頁 46
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 碓隆太、濱崎竜英、佐久間洋一	4. 巻 40
2. 論文標題 マイクロチップによる同位体分離	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 大阪産業大学産業研究所所報	6. 最初と最後の頁 41-45
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 T. Iida, T. Kishimoto, R. Hazama et al.	4. 巻 273-275
2. 論文標題 The CANDLES experiment for the study of ^{48}Ca double beta decay	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Nucl. Part. Phys. Proc.	6. 最初と最後の頁 2633-2635
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nuclphysbps.2015.10.013	査読の有無 無
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 T. Iida, K. Nakajima, T. Kishimoto, R. Hazama et al.	4. 巻 718
2. 論文標題 Status and future prospect of ^{48}Ca double beta decay in CANDLES	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 062026-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/718/6/062026	査読の有無 無
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 R. Hazama, Y. Sakuma, T. Yoshimoto, T. Fujii, T. Fukutani, Y. Shibahara	4. 巻 2015
2. 論文標題 Study of Isotope Separation of Strontium and Calcium via Chemical Exchange Reaction	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 KURRI Progress Report 2015(April 2015 - March 2016)	6. 最初と最後の頁 31
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 碓隆太、佐久間洋一、伊藤彩、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司	4. 巻 KURRI-KR-207
2. 論文標題 ストロンチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究II	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 京都大学原子炉実験所「第50回学術講演会報文集」	6. 最初と最後の頁 53
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 碓隆太、濱崎竜英、佐久間洋一	4. 巻 39
2. 論文標題 マイクロチップによる同位体分離	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 大阪産業大学産業研究所所報	6. 最初と最後の頁 37-41
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 1件/うち国際学会 2件)

1. 発表者名 碓 隆太、義本孝明、佐久間洋一、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司
2. 発表標題 化学交換法における同位体分別研究
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所「第53回学術講演会」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Anawat Rittirong
2. 発表標題 Tritium Concentrations in Precipitation and Tap Water Collected at Osaka, Japan
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会 (東北大学)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 碓 隆太
2. 発表標題 液体シンチレータを用いたトリチウムの微量計測
3. 学会等名 Scintillator for Medical, Astroparticle and environmental Radiation Technologies(SMART2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Rittirong
2. 発表標題 Determination of Tritium Levels in Tap Waters Collected from Various Regions in Thailand Using Liquid Scintillation Counting
3. 学会等名 International Nuclear Science and Technology Conference 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 碓隆太, 義本孝明, 佐久間洋一, 藤井俊行, 福谷哲, 芝原雄司
2. 発表標題 化学交換法における同位体分別研究
3. 学会等名 京都大学原子炉実験所「第52回学術講演会」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 碓 隆太、義本孝明、佐久間洋一、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司
2. 発表標題 化学交換法における同位体分別研究
3. 学会等名 京都大学原子炉実験所「第52回学術講演会」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 碓 隆太
2. 発表標題 ICP-MS for CANDLES
3. 学会等名 新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究」「極低放射能技術」研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryuta Hazama
2. 発表標題 Recent Tritium Levels in Tap Waters Collected at the Eastern Part of China
3. 学会等名 6th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC17) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 碓 隆太、王 躍強、黄 逸帆、佐久間 洋一
2. 発表標題 中国東部で採取した水道水のトリチウム濃度変化
3. 学会等名 日本保健物理学会第50回研究発表会・日本放射線安全管理学会第16回学術合同大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 碓 隆太、義本孝明、佐久間洋一、藤井俊行、福谷哲、芝原雄司
2. 発表標題 ストロンチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究 III
3. 学会等名 京都大学原子炉実験所「第51回学術講演会」
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 前迫 ゆり, 鶴田 哲也, 碓 隆太, 他13名	4. 発行年 2017年
2. 出版社 学術研究出版/BookWay	5. 総ページ数 378
3. 書名 環境サイエンス入門 人と自然の持続可能な関係を考える	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>CANDLES 宇宙 物質の起源を探る二重ベータ崩壊 https://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/candles/ CANDLES 宇宙・物質の起源を探る二重ベータ崩壊 https://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/candles/index.html CANDLES 宇宙 物質の起源を探る二重ベータ崩壊 http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/candles/ 宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究 http://www.lowbg.org/ugnd/ CANDLES 宇宙 物質の起源を探る二重ベータ崩壊 http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/candles/ 宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究 http://www.lowbg.org/ugnd/</p>

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
研究 分 担 者	岸本 忠史 (Kishimoto Tadafumi) (90134808)	大阪大学・核物理研究センター・特任教授 (14401)	追加：2019年8月2日

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
---------	---------