

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2010

課題番号：19540300

研究課題名 (和文) クラウンエーテル・マイクロチップ化学プラントによる
二重ベータ崩壊同位元素濃縮研究課題名 (英文) Enrichment of Double Beta Decay Isotope by Crown-ether &
Microchip Chemical Plant

研究代表者

碓 隆太 (HAZAMA RYUTA)

広島大学・大学院工学研究科・講師

研究者番号：00379299

研究代表者の専門分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・素粒子 原子核 宇宙線 宇宙物理

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

1. 研究計画の概要

振動実験でニュートリノの種の間には質量差があることが確実にされた今、ニュートリノの質量の絶対値及びマヨラナ性を検証できる唯一の2重ベータ崩壊は最も重要な研究に位置づけられており、世界中で研究が進められている。現在濃縮(86%)された ^{76}Ge を用いる研究(HDM実験：ハイデルベルグ・モスクワグループ)が世界最高感度の測定を達成しており、次世代も含めて世界の研究は ^{76}Ge を軸に進められている。しかし、そのQ値の低さ(2.04 MeV)故、すでに自然および人工放射性バックグラウンド(BG)が限界を決め始めている。我々は ^{48}Ca で世界を追い越すために CaF_2 結晶からなるCANDLES計画を立ち上げ、昨年度より東大神岡地下観測所で CaF_2 結晶約300kgの実験装置を建設中で近く測定を開始する。 ^{48}Ca は2重ベータ崩壊核の中で最大のQ値(4.27 MeV)を持ち、BGの最も少ない測定が可能で、今後有望な原子核である。今まで世界の研究の中心になってこなかった理由はひとえに自然存在比が少ない(0.187%)のために大量の原子核を用意し難い点で、本研究は、更に質量を一桁スケールアップして0.1eV以下領域を探索する検出器製作に於いて画期的な感度向上をもたらす標的同位体元素(^{48}Ca)の安価で大量な濃縮方法の確立を目的とする。

2. 研究の進捗状況

(1) 測定器を汚染する等、従来のICP-MS装置での測定が困難であった懸念事項の、カルシウム濃度測定を約0.1mLの試料量でpptレベルの微量測定可能なICP-OES最新機器利用(Thermo

Scientific iCAP6500)により、自前で測定可能とし①クラウンエーテルの違いによる効果(DC18C6と18C6)②温度効果(常温20度、低温2度)③溶媒による効果(クロロホルム、ジクロロメタン)等、最適条件の確認を行い、同位体比測定を除き、実験システムを確立した。
(2) バッチシステムに加え、マイクロチップでの実験に当り、反応速度が速く・密度測定により最適条件の確認の容易な $^3\text{H}(\text{gas}) + ^2\text{H}_2^{18}\text{O}(\text{liquid}) \leftrightarrow ^3\text{H}_2(\text{gas}) + ^3\text{H}^{18}\text{O}(\text{liquid})$ の気液2層同位体交換反応を利用し、トリチウム水の代わりにまず重水で、マイクロチップ合流部：流路長20mm幅194(気)64(液) μm 深90(気)22(液) μm を用い、実験を行った。本テストにより20mmの合流長(比界面積係数が約80/cm)でも十分に重水での上記交換反応が有効であることが判明し、重水の流速を約17分の1に減速(9.65 $\mu\text{l}/\text{min} \rightarrow 0.57\mu\text{l}/\text{min}$)することにより、さらに交換反応を1%から3%まで向上させることに成功。
(3) 広島大学ナノデバイス・バイオ融合科学研及び日立プラントと協力し、エマルジョン形成用のマイクロリアクタを用いて有機相中に微細な水相の液滴を形成させることで相互の液の接触面積を増大させ、有機相中のクラウンエーテルと水相からのCaの接触確率を上昇させることで抽出効率を上げ、従来の10倍以上の流速で水相と有機相の流量比を1(3mL/分):10(30mL/分)としてマイクロリアクタに送液した。結果、マイクロリアクタ法ではバッチ法に比

べ最大1桁以上のCa濃度を達成し、マイクロリアクタによって抽出効率が向上することが確認された。

3. 現在までの達成度

③やや遅れている。

(理由)当初は、液液抽出実験、同位体比測定を交互に行い、後者は研究分担者による高知大学海洋コア総合技術センターの日本で数台しかないアンモニアガスを利用したReaction-cell ICP-MS(質量分析装置)で測定を行っていたが、平成19年7月の大型台風による影響(測定室への雨漏れ)で装置が故障(平成20年1月に装置のオーバーホール・メンテナンス終了し測定再開)。また、液液抽出法によるカルシウム濃度の分配係数が当初予期していた10対1と異なる新たな可能性の知見が示唆された。このため、新たにカルシウム濃度測定を実験に組み込むこととし、2.の状況・成果で述べた方法によりカルシウム濃度測定方法を新たに確立する必要が生じたため。

4. 今後の研究の推進方策

2.の(1)で述べた①②③の最適条件を3.のReaction-cell ICP-MSにより比較し、連携研究者との同位体比測定と連携を図り結果をフィードバックし、合わせて、大量濃縮に向けたマイクロチップを用いた多段濃縮による自動ルーチン化を行う。既に以下の2方法による多段化のテストを行い、マイクロチップ形状、流速、流路長、温度、触媒等の最適条件を確認及び、チップ壁面の親水疎水加工による2層流の多段化及びポンプの最適化を通じ、装置の改良を行う。

(1)層流または高反応率を得られる“液滴”送液による2液“Y字”型マイクロチップによる攪拌

(2)プラント化を見据え日立プラント及び柴田化学との産学連携を通じ、より高速反応を得られる乳化・剪断型(エマルジョン形成用)マイクロチップによる攪拌。エマルジョン形成用マイクロリアクタにおいては送液条件によってエマルジョン液滴の生成量やサイズが異なってくる。液滴サイズが小さくなると2相の接触面積は増大して抽出効率は向上すると予測されるが、一方で混合後の比重差によって分離する工程において長時間を要するようになる。濃縮工程の前半である液液抽出工程においてマイクロリアクタが有効であることが確認されたが、今後は後半の比較的時間を要した、水相と有機相の静置・分離工程の迅速化方法と自動化技術について進める。

5. 代表的な研究成果

(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4件)

① R. Hazama, Y. Sakuma, Y. Ogata, M. Tokeshi, “Remove of Tritium from Tritiated Water and Isotope Separation by Microchips”, Annual Report of National Institute for Fusion Science (査読無), Vol. October, 2009, p456.

② 裕隆太, 「マイクロチップによるトリチウム水からのトリチウム除去及び同位体分離」、核融合研究所一般共同研究成果報告書、(査読無)、2009年3月、p365.

③ R. Hazama, Y. Sakuma, Y. Ogata, M. Tokeshi, “Remove of Tritium from Tritiated Water and Isotope Separation by Microchips”, Annual Report of National Institute for Fusion Science (査読無), Vol. October, 2008, p475.

④ R. Hazama(1番目), Y. Tatewaki, T. Kishimoto et al. (計8人), “Challenge on ^{48}Ca enrichment for CANDLES double beta decay experiment”, Proc. of 6th Rencontres du Vietnam(Challenges in Particle Astrophysics) ed. J. Dumarchez et al., The Gioi Publishers (査読無), Vol. 6, 2007, p383-386. (arXiv:0710.3840) [学会発表](計4件)

① 裕隆太, “ ^{48}Ca enrichment liquid-liquid extraction”, 3rd joint meeting of the Nuclear Physics Divisions of APS and JPS (Hawaii 2009), October 12, 2009, Hilton Waikoloa Village, Hawaii island, USA.

② 裕隆太, “Enrichment of ^{48}Ca -Separation with a crown ether-”, UCB-OU Collaboration meeting on double beta decay, February 5, 2009, Lawrence Berkeley National Laboratory, USA.

③ 裕隆太, “Enrichment of ^{48}Ca ”, International Workshop on Double Beta Decay and Neutrinos(DBD07), June 12, 2007, Crystal Tower, Osaka Business Park, JAPAN.

④ 裕隆太, “Double Beta Decay Experiment CANDLES using ^{48}Ca and chemical isotope separation”, The 7th Eichrom Users’ Seminar For The Extraction Chromatography: Resin and Columns, May 29, 2007, Tokyo Garden Palace, Tokyo, JAPAN.

[その他] ホームページ

① http://www.nifs.ac.jp/report/ann_rep.html

② <http://arxiv.org/abs/0710.3840>

③ <http://dbd09.phys.sci.osaka-u.ac.jp/>

④ <http://dbd07.phys.sci.osaka-u.ac.jp/>