

平成21年 6月 1日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19540311
 研究課題名（和文） フラーレン内包による放射性同位元素の半減期変化の計測に関する研究
 研究課題名（英文） Measurement of half-life change of radionuclide by encapsulation into fullerene
 研究代表者
 渡辺 智（WATANABE SATOSHI）
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
 研究者番号：40354964

研究成果の概要：

本研究課題は、フルラーレンに内包した核種の半減期変化を調べる準備段階として、効率的な内包フルラーレンの生成法の開発を目的とした。まず、イオン注入法による内包フルラーレンの生成量の向上のために、ターゲットに逆電圧をかけてイオンの減速が可能なエネルギー可変型イオン注入装置を開発した。そして、この装置を用いて注入エネルギーを5-15 keVと変化をさせたときの ^{133}Xe 内包フルラーレンの生成率の注入エネルギー依存性を調べた。結果として、注入エネルギーの減少とともに ^{133}Xe 内包フルラーレンの生成率が上昇することが明らかとなった。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：放射化学

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：内包フルラーレン、イオン注入、エネルギー減速

1. 研究開始当初の背景

放射性核種の半減期は変化しないものと一般に考えられているが、実は化学的環境が変わると半減期が変化する場合がある。1947年Segrè¹⁾はEC壊変の際には電子密度によって半減期が変化する可能性を指摘し、特に低い原子番号の ^7Be のような核種

ではこの可能性があるとした。そして1949年、Segrèら²⁾によって実験的に確認され、その半減期は、約0.1%変化した。

これに対し最近、Ohtsukiら³⁾は、 C_{60} フルラーレンに ^7Be を内包して半減期を調べたところ半減期が0.8%短くなることを報告した。従来の研究の0.1%から一挙に0.8%も変化したことから一躍フルラーレンが注目

されるようになった。しかし、この原因はフラーレンの電子に関連しているだろうと考えられるが、実際のところその原因は何に由来しているのかは明らかにされていない。

そこで、本研究では、電子状態の異なるフラーレン (C_{60} , C_{70} , C_{76} , C_{84} 等) にイオン注入法で核種を内包して半減期を測定し、半減期変化量と電子状態との関係を調べることを最終目的とする。ただし、この研究には、内包フラーレンの製造が大変重要であるため、本研究課題内では、半減期測定研究の準備段階と位置づけ、半減期測定には高い測定精度が要求されることから、半減期決定に十分な統計量を確保できる放射エネルギーを持った内包フラーレン試料の作製法を開発する。

<引用文献>

- 1) E. Segrè, Phys. Rev., **71**, 274 (1947).
- 2) E. Segrè, C. E. Wiegard, Phys. Rev. **75**, 39 (1949).
- 3) T. Ohtsuki et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 112501(1)-112501(4) (2004).

2. 研究の目的

半減期決定には、十分な統計量を確保できる放射エネルギーの内包フラーレン試料を作製する必要がある。しかし現在の我々のイオン注入法による内包フラーレンの作製法においては、イオン注入エネルギーが高すぎるために、ターゲットであるフラーレンや生成した ^{133}Xe 内包フラーレンを壊してしまい、わずかな量しか生成できない。そこで、ターゲットに逆電圧をかけてイオンの減速が可能なエネルギー可変型イオン注入装置を開発し、内包フラーレンの生成率の注入エネルギー依存性を調べ、効率的な内包フラーレンの生成法を開発すること目的とする。

3. 研究の方法

(1) エネルギー可変型イオン注入装置の開発

研究代表者は、以前にイオン注入法による ^{133}Xe 内包フラーレンの作製法を開発している。これは、まず、フラーレンの蒸着薄膜を

作製し、これをターゲットとして ^{133}Xe を同位体分離器でイオン注入するものである。このとき精度良い質量分離を行うために 30 keV という高いエネルギーで ^{133}Xe イオンを加速させる必要がある。この 30 keV の ^{133}Xe イオンがフラーレンの蒸着薄膜に照射されると ^{133}Xe イオンはフラーレンにエネルギーを与えて減速しながらフラーレン薄膜中を進む。このとき、イオンから供与されるエネルギーによりフラーレン分子は壊れてグラファイトのような無定形炭素になったり、フラーレン分子の多量体を形成したりする。 ^{133}Xe イオンが十分エネルギーを失い、あるエネルギー領域に達したとき、この ^{133}Xe イオンはフラーレン分子を壊さずにフラーレンの炭素原子で構成される五員環または六員環を通して内包できる。しかし、フラーレン分子が壊れて無定形炭素になってしまう分、現在の方法では僅かな量しか生成できない。したがって、この問題を解決するために、ターゲットに逆電圧をかけてイオンのエネルギーを十分落とすことができるエネルギー可変型イオン注入装置を開発する。

このエネルギー可変型イオン注入装置は、同位体分離器の真空チェンバー内のターゲット照射部分に本体を設置し、真空チェンバー外部に置いた高電圧電源から高電圧ケーブルを通して高電圧を供給するものである。真空内および真空外で放電が起きないように高電圧部分に絶縁を施した。また、ターゲットをマウントする本体は、突起物があると放電しやすいので、丸みをおびた形状で設計した。

(2) 生成率の注入エネルギー依存性

上記で開発したエネルギー可変型イオン注入装置を用いて ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率の注入エネルギー依存性を調べた。まず、蒸着法により作製したフラーレンターゲットを本エネルギー可変型イオン注入装置に設置した。日本メジフィジックス製 ^{133}Xe ガス 370 MBq を真空ラインにより 3.8 リットル試料ポンベに移送した。質量分離における質量の指標として約 0.2 cm^3 の ^{129}Xe 濃縮同位体も同じポンベに充填した。このポンベを同位体分離器の ECR イオン源に接続し、同位体分離器で ^{133}Xe イオンを 30 keV で加速させ、エネルギー可変型イオン注入装置には 15-25 keV の電圧を印加してフラーレンターゲットへの注入エネルギーを 5-15 keV に調整した。また、 ^{133}Xe のイオン注入量は 1×10^{12} 個/ cm^2 から 1×10^{14} 個/ cm^2 とした。イオン注入後のフラーレンターゲットは、Ge 検出器で ^{133}Xe の線 (81 keV) を測定して放射エネルギーを求めた。

次に、フラーレンターゲットを、o-ジクロロベンゼンに溶解し、不溶物をメンブレンフィルターでろ過した後、HPLC 分析を行い、 ^{133}Xe 内包フラーレンの放射エネルギーを求め ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率を算出した（生成率は、注入した全ての ^{133}Xe の放射エネルギーに対する ^{133}Xe 内包フラーレンの放射エネルギーの比）。以上の結果から ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率と注入エネルギーとの関係を調べた。

4. 研究成果

(1) エネルギー可変型イオン注入装置の開発

図 1 には、作成したエネルギー可変型イオン注入装置を示した。放電を抑えるために、突起物等がないように丸みをおびた形状で作製した。



図 1 エネルギー可変型イオン注入装置

(2) 生成率の注入エネルギー依存性

図 2 には、HPLC 分析の結果を示した。図 2 において、 C_{60} のピークと ^{133}Xe のピークがほぼ一致していることから、 ^{133}Xe 内包フラーレンが生成していることが確認された。

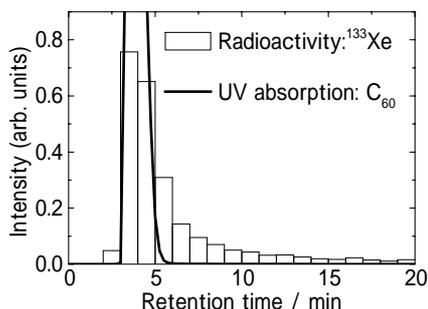


図 2 ^{133}Xe と C_{60} の溶離曲線

図 3 には、注入エネルギーが 5 keV および 15 keV における、内包フラーレンの生成率の ^{133}Xe のイオン注入量依存性を示した。5 keV

および 15 keV のどちらの場合も、 ^{133}Xe のイオン注入量が増加するにしたがい、生成率は減少することがわかった。

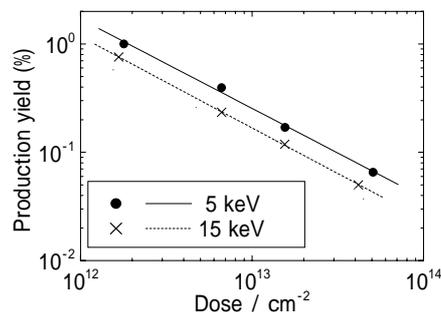


図 3 生成率の ^{133}Xe のイオン注入量依存性

次に、注入エネルギーに注目してみる。5 keV で ^{133}Xe を約 2×10^{12} 個/ cm^2 注入した試料の生成率は 0.96% であった。15 keV で ^{133}Xe を約 2×10^{12} 個/ cm^2 注入した試料の生成率は 0.65% であったことから、5 keV で注入することにより、15 keV の場合に比べて生成率が約 50% 上昇した。

フラーレンに内包される Xe イオンのエネルギーは 130 eV から 200 eV と見積もられている。15 keV でフラーレンターゲットに入射した ^{133}Xe は、エネルギーを失い空のフラーレンを無定形炭素化しながらターゲット中を通過し、200 eV になったときにフラーレンに内包されると考えられる。200 eV に達するまでに一度生成した ^{133}Xe 内包フラーレンに衝突すると、この ^{133}Xe 内包フラーレンも無定形炭素化する。ここで、注入エネルギーを 5 keV にした場合、空のフラーレンおよび ^{133}Xe 内包フラーレンの両者の無定形炭素化が減ると考えられ、このため 15 keV に比べて生成率が増加したと思われる。

^{133}Xe 内包フラーレンの生成率は注入エネルギーに大きく依存しており、このエネルギーをさらに減少させることにより生成率のさらなる増加が期待できる。

さらに、これにより、従来のような余分な高いエネルギーを使う必要がなくなり、フラーレンターゲットや生成した RI 内包フラーレンを壊すことなく、効率的に RI 内包フラーレンを生成でき、半減期測定のための放射エネルギーを確保できると考えられる。

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)

S. Watanabe, N. S. Ishioka, Production Yield of Endohedral ^{133}Xe -Fullerene at Incident Energy of 5 keV by Ion Implantation, JAEA-Review 2008-055, P115, (2008), 査読なし

S. Watanabe, N. S. Ishioka, S. Matsuhashi, Incident Energy Effect of the Production Yield of Endohedral ^{133}Xe -Fullerene by Ion Implantation, JAEA-Review 2007-060, P129 (2007), 査読なし

〔学会発表〕(計 3 件)

渡辺 智、石岡典子、 ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率の注入エネルギー効果、第 3 回高崎量子応用研究シンポジウム、平成 20 年 10 月 10 日、高崎シティーギャラリー

渡辺 智、石岡典子、 ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率の注入エネルギー依存性、2008 日本放射化学会年会・第 52 回放射化学討論会、平成 20 年 9 月 25 日、広島大学

渡辺 智、石岡典子、松橋信平、 ^{133}Xe 内包フラーレンの生成率のイオン注入エネルギー依存性、第 2 回高崎量子応用研究シンポジウム、2007 年 6 月 22 日、高崎シティーギャラリー

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡辺 智 (WATANABE SATOSHI)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：40354964