

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：34506
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2020～2022
課題番号：20K03995
研究課題名（和文）核物質の精密理解に向けた高濃度炭素14標的の開発

研究課題名（英文）Development of a high-purity carbon-14 target

研究代表者

松田 洋平（Matsuda, Yohei）

甲南大学・理工学部・准教授

研究者番号：50569043

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、高濃度の炭素14を含む炭酸バリウムから炭素粉末を安全に且つ高い収率で生成する方法を確立させた。方法としては、まず炭酸バリウムの熱分解反応で二酸化炭素を発生させる。但し、炭酸バリウム単体の熱分解反応温度は1000度を超えるため安全性に問題が生じる。そこで塩化銀、塩化鉛と一緒に加熱することで熱分解反応温度を400度まで下げる手法を用いた。次に発生させた二酸化炭素をマグネシウムとの酸化還元反応によって炭素粉末に変える。最終的に、これらの混合物を塩酸で溶かし、濾過することで炭素粉末のみを抽出する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

炭素14の偏極陽子弾性散乱精密測定を計画している。陽子弾性散乱の観測量からは核子多体系や天体現象の研究に於いて重要な核物質の状態方程式に関する情報が得られる。通常、地上に安定に存在しない不安定原子核の場合、実験的困難から本研究に必要な精度での測定は難しい。この問題を解決するために、高濃度の炭素14を標的として用い安定原子核と同じ順運動学下で測定を行う必要がある。本研究で開発した手法を用いて高濃度の炭素14を生成すれば、上記の順運動学での実験が可能となる。

研究成果の概要（英文）：In this research, we established a method to produce carbon powder safely and in high yield from barium carbonate containing high concentration of carbon-14. As a method, first, carbon dioxide is generated by a thermal decomposition reaction of barium carbonate. However, since the thermal decomposition reaction temperature of barium carbonate exceeds 1000 degrees, there is a safety problem. Therefore, we used a method of lowering the thermal decomposition reaction temperature to 400 degrees by heating with silver chloride and lead chloride. The generated carbon dioxide is converted into carbon powder by a redox reaction with magnesium. Finally, these mixtures are dissolved in hydrochloric acid and filtered to extract only the carbon powder.

研究分野：原子核物理

キーワード：炭素同位体 放射性同位体 粉末成形 熱分解反応 酸化還元反応

1. 研究開始当初の背景

核物質の状態方程式を決定する事は、核子多体系や天体現象の研究に於いて重要な課題となっている。しかし、陽子数と中性子数が等しい対称核物質において、飽和密度付近から高密度側にかけての三体力の効果を評価出来ていない。また中性子数が過剰となる非対称核物質において、対称エネルギーの密度依存性が分かっていない。本研究ではこの2点の解明を目標として、200 MeVと300 MeVでの¹⁴C 偏極陽子弾性散乱の精密測定を計画している。通常、地上に安定に存在しない不安定原子核の場合、実験的困難から本研究に必要な精度での測定は難しい。そこで、この問題を解決するために、高濃度の¹⁴C を標的として用い安定原子核と同じ順運動学下で測定を行う。

先行研究では、同位体比 10%程度の¹⁴C 粉末が市場から入手できるとのことで、若手研究(B) (課題番号 15K17660)「炭素 14 原子核の陽子弾性散乱測定による三体力の定量的抽出と核物質への応用」にて 300 MeV での¹⁴C 偏極陽子弾性散乱測定を試みた。ところが供給元から提供された粉末から¹⁴C 標的を作成し、2017 年に散乱実験を行ったところ、¹⁴C は同位体比で 0.3%しか含まれていなかったことが判明した。この濃度では精密測定は困難であり、核物質の状態方程式に関する議論は行えなかった。

2. 研究の目的

¹⁴C 偏極陽子弾性散乱測定を実現させるためには、厚さ 10 mg/cm²、直径 12 mm で同位体比 80-95%の¹⁴C 標的を完成させる必要がある。この高濃度¹⁴C 標的の作成方法としては、高濃度¹⁴C の粉末成形が考えられる。近年、粉末状の¹⁴C は安定供給されておらず、市場価格の高騰が続いている。そして前述のように供給される粉末中の濃度は低い。一方、Ba¹⁴CO₃のような化学形態で高濃度の¹⁴C は市販されている。そこで、Ba¹⁴CO₃から¹⁴C 粉末を抽出し、粉末成形により同位体比 80-95%の高濃度¹⁴C 標的を作成する方法が最適であると考えた。本研究では、実際に BaCO₃から炭素粉末を安全に且つ高い収率で生成する方法の確立を試みた。

3. 研究の方法

図 1 に BaCO₃ から炭素粉末を生成する手法の略図を示す。まず BaCO₃ の熱分解反応から CO₂ を生成する。BaCO₃ 単体の熱分解反応温度は摂氏 1000 度を超えるため安全性に問題が生じる。そこで本研究では PbCl₂ と AgCl を混ぜて熱分解反応温度を下げる方法を試みた。熱分解反応温度を下げることで、試料を封入する容器を耐熱性以外の耐久性と強度も考慮したステンレス製で作成することが可能となり、安全性の向上が可能となる。発生した CO₂ は Mg との酸化還元反応により炭素粉末に変えた。反応後の試料には塩酸と水を加え、濾過によって炭素粉末の分離抽出を行った。熱分解反応と酸化還元反応の進行度は、CO₂ の圧力を圧力計で測定することで確認した。また、使用した BaCO₃ と濾過後の炭素粉末の量は電子天秤で計測した。

一回の試験で同位体比 99%の Ba¹²CO₃ または 98%以上の Ba¹³CO₃ を 1 mmol 用い、安全性且つ再現性が得られるように装置の改良を行いつつ試験を繰り返した。

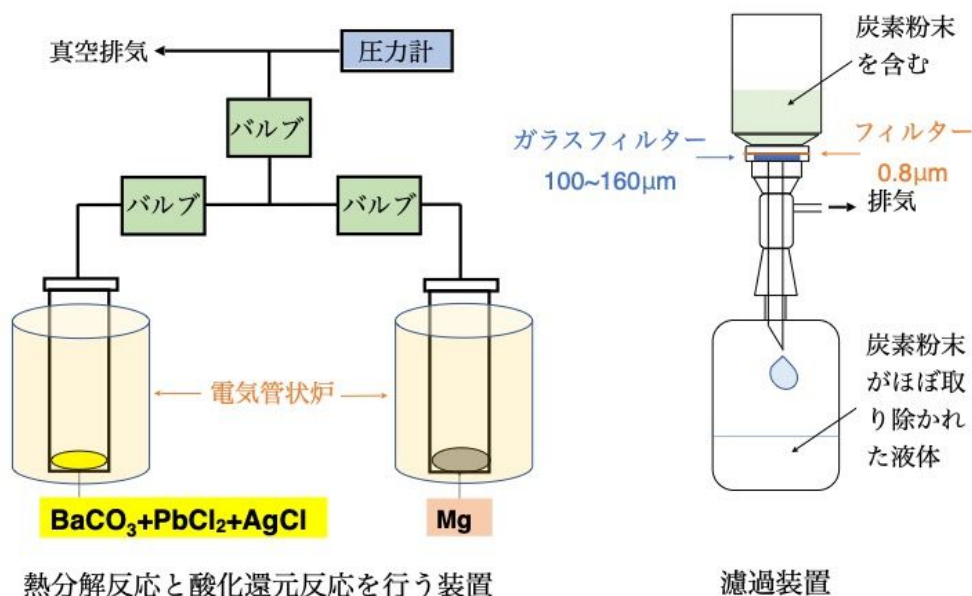


図 1 BaCO₃ から炭素粉末を生成する手法の略図。

4. 研究成果

(1) BaCO₃の熱分解反応

BaCO₃の熱分解反応においてBaCO₃、PbCl₂、AgClを1:1:1の比率で混ぜることにより、熱分解反応温度を摂氏400度まで下げることが出来た。配管等の容積と温度分布を考慮すると圧力計の値が600 hPaあたりで反応進行度は1 mmolとなる。図2に熱分解反応時に圧力計で測定したCO₂の圧力の時間依存性を示す。10³秒で熱分解反応を終え、ほぼ全ての炭素がCO₂に変化した。

(2) CO₂の還元反応

CO₂の還元反応は、Mgの融点より高い摂氏800度あたりで行うと有意に反応が進むことがわかった。また反応に使用するMgの量によって反応進行度が変化した。これはMgの塊の表面が酸化してしまい、内部のMgが反応に寄与しなかったためと考えられる。そこでMgの塊の表面積を大きくすべく、使用量を5 mmolまで増やしたところ、反応進行度は1 mmolとなった。この時の圧力計で測定したCO₂の圧力の時間依存性を図3に示す。10⁴秒で圧力は10⁰ hPa台となっており、約1 mmolの炭素粉末が生成されたと考えられる。

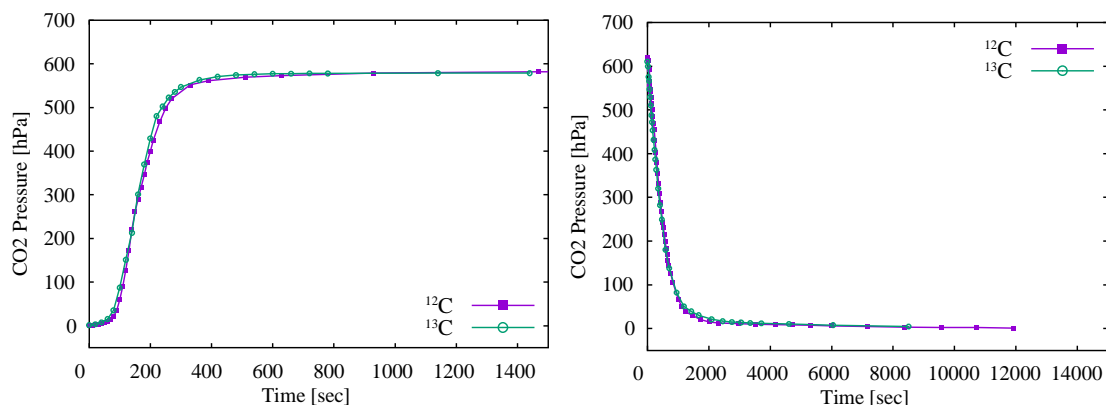


図2 熱分解反応時のCO₂圧力の時間依存性。図3 還元反応時のCO₂圧力の時間依存性。

(3) 炭素粉末

生成された炭素粉末に混在しているMgOは塩酸で溶かし、濾過装置で試料から炭素粉末のみを抽出した。作業中に塩酸を洗い流すために水で複数回洗浄する工程も行った。この濾過の工程を経て乾燥した炭素粉末を得るまでに要する日数はおよそ2日であった。得られた炭素粉末(図4)の量は、ほぼ100%の12±1 mgであった。この結果は使用したBa^{12,13}CO₃に寄らなかった。誤差の要因は主に使用した電子天秤によるものと考えられる。

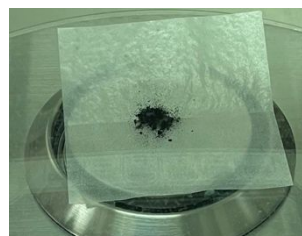


図4 抽出された炭素粉末。

(4) 粉末成形

得られた粉末をプレス機で成形したところ粒径が荒く、標的作成のためには粉碎の必要性が明らかになった。先行研究で作成した炭素標的に於いても、市販の粉末は事前に粉碎してから粉末成形を行っており、大きな粒径の粉末が生成されることは問題でない。

安全性については、耐熱仕様の部品を使用し適宜装置の構造を見直すことで、最終年度の全ての試験で失敗することなく粉末の生成が行えた。また収率については、上記のようにほぼ1 mmolの炭素粉末を再現性良く回収することに成功した。以上の結果から、本研究の目的であるBaCO₃から炭素粉末を安全に且つ高い収率で生成する方法の確立に成功したと言える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 0件）

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 梅本 学嗣, 松田 洋平, 齋藤 風太, 山崎 敦博, 伊藤 正俊, 池田 隼人, 坂口 治隆, 銭広 十三, 川畑貴裕
2. 発表標題 高純度炭素14標的作成に向けた炭素粉末生成法の確立
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	池田 隼人 (Ikeda Hayato) (30649083)	東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・助教 (11301)	
研究分担者	坂口 治隆 (Sakaguchi Harutaka) (30025465)	大阪大学・核物理研究センター・協同研究員 (14401)	
研究分担者	銭廣 十三 (Zenihiro Juzo) (70529057)	京都大学・理学研究科・准教授 (14301)	
研究分担者	伊藤 正俊 (Itoh Masatoshi) (30400435)	東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・教授 (11301)	

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