

令和元年6月12日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05103

研究課題名(和文) 不安定核のミュオン原子X線観測実験に向けた放射性物質制御の基礎研究

研究課題名(英文) Study on control of radioactivities for muonic X-ray observation of unstable nuclei

研究代表者

谷口 秋洋 (TANIGUCHI, Akihiro)

京都大学・複合原子力科学研究所・准教授

研究者番号：10273533

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,500,000円

研究成果の概要(和文)：重水素薄膜法による不安定核ミュオン原子X線測定の実現に向け、技術上の基礎的知見を得るために、重水素薄膜の模擬としてのドライアイス薄膜とオンライン同位体分離装置からのRIビームを用いて、種々の条件で形成されたドライアイス薄膜中にRIを注入し、薄膜昇華の際のRIの挙動や回収法に関する実験が行われた。冷却トラップによる回収法に関しては、回収効率の薄膜形成条件の依存性は低く、トラップ側の幾何学的効率が主に効く見通しが得られた。また、ドライアイス昇華後の基板上にRIが残留する事象が認められ、昇華過程における基板材表面と注入原子間の化学的作用に因る残存の可能性が新たな検討課題として抽出された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ミュオン原子X線測定は核電荷半径の情報が得られる実験手法であり、本研究は、ミュオン原子の生成効率を飛躍的に高めた重水素薄膜法を不安定核実験に適用するための技術開発である。模擬的にドライアイス薄膜を利用し、形成条件が異なる薄膜に注入されたRIの挙動や回収に関する研究が行われた。RI回収法に関しては、冷却トラップ方式が試され、回収効率を上げるためのトラップ側の条件が確認された。さらに、薄膜の昇華過程における基板材表面と注入原子間の化学的作用の可能性を、より効率を上げるための新たな検討課題として示すことができ、重水素薄膜法による不安定核の核電荷半径測定を実現するための技術上の知見が得られた。

研究成果の概要(英文)：In order to realize the measurement of muonic X-ray for unstable nuclei applying the deuterium thin film method, R&D for the behavior and recovery of radioactivities (RI) implanted into the thin film was conducted.

In this work, a dry ice thin film was used instead of the deuterium thin film. In each run, the dry ice thin film was formed under different conditions, and after implanting an RI beam from ISOL, the experiments on behavior and recovery of RI during sublimation of the dry ice thin film were performed.

As for the recovery method using a cold trap, it was found that the dependence of the recovery efficiency on the condition of the film formation was small and the geometry of the trap was likely to be effective. Moreover, since RI was observed to remain on the substrate after dry ice sublimation in all RUNS, it was extracted as a new issue that the possibility of chemical interaction between the substrate material surface and the implanted atoms in the sublimation process.

研究分野：原子核物理

キーワード：核電荷分布 不安定原子核 ミュオン原子 重水素薄膜法 ドライアイス薄膜 オンライン同位体分離装置 放射性物質の挙動と回収 基板材表面と注入原子の相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子核は自己束縛された核子（陽子と中性子）で構成された有限量子多体系、つまり、有限個の陽子と中性子がパウリ原理に従いながら互いに強い力で結合し、全体としては表面を有している多体系である。このような量子系では、多様な物理現象が発現することから、原子核物理に限らず、物理学全般においても興味深い研究対象となっている。

原子核構造において、原子核の電荷の空間的拡がり（核電荷半径）は、核子間の有効相互作用の情報が得られる基本的な物理量である。その量の測定方法として、電子散乱、ミュオン原子 X 線測定やレーザー分光法による電子軌道エネルギーの精密測定がある。電子散乱とミュオン原子 X 線測定は、安定な原子核を対象に 1950～60 年代に精力的に行われ、安定核の電荷半径の研究に貢献した。これら三種の手法で得られる実験データは互いに補完的であり、信頼性の高い核電荷半径の情報を得るには、それぞれの手法がより高度化される必要がある。

負ミュオンは第 2 世代のレプトンであり、電子が核の電場に捕捉され電子軌道を作るのと同様、負ミュオンも核の周りにミュオン軌道を形成する。ただし、ミュオンの質量は電子の約 207 倍であり、その Bohr 半径は電子の $1/207$ となるため、原子核の内部や表面近傍にもミュオンが存在することになる。したがって、ミュオン軌道は、原子核の電荷の空間的分布による影響を強く受け、その準位エネルギーへ鋭敏に反映される。このことは、即ち、補足された負ミュオンが軌道間を遷移する際に放出される X 線（ミュオン原子 X 線）のエネルギー測定により、原子核の電荷半径に関する情報が得られることを示唆している。（図 1）

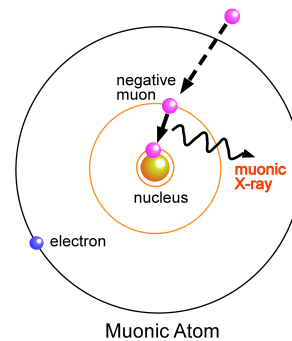


図 1 ミュオン原子とミュオン原子 X 線の概念図

原子核は、安定な核種が 300 種程度であるのに対し、不安定核種は数千種になると言われている。従って、原子核の全体像を調べるためには、不安定原子核も対象にしなければならない。不安定原子核の核電荷半径の研究は、その重要性にも関わらず、長年に亘り進展がなかったが、最近、レーザー分光法による研究が進んだ。その一方、ミュオン原子 X 線測定と電子散乱実験による研究は、現在においても殆ど進展していない。その主な原因は実験で必要とされる不安定核の個数にある。安定原子核を対象とした実験では、特定の同位体の箔や粉末を入手し、それに電子やミュオンを照射し、散乱電子やミュオン原子 X 線を測定することになる。つまり、伝統的な手法により有意な結果を得るにはモル数 ($10^{21} \sim 10^{23}$ 個) 程度の原子核が必要であり、安定核の実験においては容易である。しかし、不安定核を対象とする場合、モル数オーダーの不安定核を生成・供給可能な施設はなく、仮に入手できたとしても、その放射能の取扱いは非常に難しいレベルとなる。

この困難を克服するため、それぞれの手法において高効率化が図られている。電子散乱実験では、自己閉じ込め型ターゲット (SCRIT) 法が開発された[1]。この方法は、蓄積リング内を周回する高エネルギー電子ビームが作る静電ポテンシャル中に対象核のイオンをトラップさせ、散乱される周回電子を測定する方法であり、安定核 ^{133}Cs の実験では 10^7 個程度のイオン数で実験が可能であることが実証された。一方、ミュオン原子 X 線の測定においても、不安定核実験の可能性が探られる状況の中[2]、我々は、高効率ミュオン原子の生成法として、固体重水素薄膜法の開発に成功した。この方法では、対象核を重水素薄膜に注入し Ramsauer-Townsend 効果を利用して生成効率を向上させている。英国 Rutherford Appleton 研究所の RIKEN-RAL ミュオン施設において、 ^{40}Ar 、 $^{86, 87, 88}\text{Rb}$ 、 ^{138}Ba 、 $^{148, 152}\text{Sm}$ など広範囲の安定核種に対して本手法を適用した結果、約 10^{16} 個程度の原子核数で、ミュオン原子 X 線のアイソトープシフトの観測ができることを実証した[3]。しかし、別のミュオン施設におけるミュオン強度やプロフィールを考慮したとしても、なお、実験においては相当量の放射性核種 (RI) を要するため、本手法を不安定核へ適用するには、RI の取扱い、特に、薄膜中に残存する RI の挙動や制御 (回収) 等に関する知見を得て、それを基にした基盤的技術開発が必要である。

このような状況において、詳細は後述するが、我々の先行研究[4]により、RI の取扱いに関し、ドライアイス薄膜中に RI を注入させることができる模擬体系が構築され、主に薄膜に注入された RI の回収に関する技術開発が開始された。

2. 研究の目的

固体重水素薄膜を用いたミュオン原子の生成過程は次の通りである。まず、薄膜に入射したミュオン (μ) が重水素に捕獲され重水素ミュオン原子 (μD) を形成する。Ramsauer-Townsend 効果により、 $<10^{-3}$ eV の運動エネルギー領域において、 μD は $25 \mu\text{m}$ 程度の平均自由行程を持ち薄膜中を移動し、薄膜中にある大きな原子番号 (Z) の原子 (Az) に出会うと、ミュオンが重水素から移行されミュオン原子 (μAz) が生成される。この生成過程 ($\mu\text{D} + \text{Az} \rightarrow \text{D} + \mu\text{Az}$) の効率は非常に高く、例えば、 $Z=50$ の原子が 1 ppm の濃度で薄膜中に分散している場合、移行率は $5 \times 10^5 / \text{sec}$ にもなる。

RIKEN-RAL での実験では、 $\sim 3\text{K}$ に冷却された銀箔上に形成された重水素薄膜に、対象核種のイオンを注入し試料が作成された。この際、薄膜形成とイオン注入を繰り返し多層状にすることで、対象核種の高集積化を図りながら、総量 10^{16} 個程度の対象核種を含む試料が作成された。

後、ミュオンが照射され、ミュオン原子X線が測定された。その結果、本手法は、従来の手法と比較し、 $10^5 \sim 10^7$ 効率の良い方法であることが確認された。しかし、 10^{16} 個の放射性物質は、半減期が1年程度であれば数100 MBq であり、その取扱いには十分な配慮を要するレベルであり、固体重水素薄膜法を不安定原子核実験に展開するには、この手法における放射性物質の取扱いに関する技術開発が必要である。

重水素薄膜法を不安定核ミュオン原子生成に適用した場合、過程としては、1)重水素薄膜への不安定核の注入、2)ミュオン照射とミュオン原子 X 線測定、3)RI が残留する薄膜の後始末などがある。そして、過程 1)では注入 RI イオンの散乱、過程 3)では固体水素の解凍に伴う注入 RI の放出が課題である。特に、過程 3)の課題においては、放出される RI の多くは重水素ガスと共に真空ポンプで装置外へ排気されたり、一部は真空容器の内壁などに付着したりすることが問題になると予想されている。しかし、安定核種の実験においては、その挙動を調べることは困難であるが、銀箔上の残留については、一連の実験における測定結果に、残留物の影響が顕に認められず、銀箔上の残留はそれ程多くないとも推測されていた。ただ、不安定核の実験において、薄膜生成部周辺での RI の残留は、それ以降の実験に対して不要なバックグラウンドとなるばかりか、その量が多ければ、実験の継続が阻害される。したがって、実験時の放射性物質の挙動、特に、実験終了時、RI が薄膜から放出される際の挙動を調べ、残留量の低減や放射性物質の回収技術が必要となる。

本課題を含めて我々の研究においては、まず、低温下で形成された薄膜に注入された RI の挙動やその制御方法についての知見を得ることを第一段階に据えている。このため、重水素とドライアイスの類似点・相違点を考慮しつつ、重水素膜の代替としてドライアイス膜を利用し、そのドライアイス膜中に RI を注入できる模擬体系を構築し、研究を進めている。本課題においては、この模擬体系を用いて、様々な条件の下で形成されたドライアイス薄膜に RI ビームを注入し、ドライアイスが昇温し気化する際における RI の挙動やより効率の良い回収方法を調べ、重水素薄膜法を放射性核種に適用に向けた技術開発に対す知見を得ることが目的とされた。

3. 研究の方法

本課題においては、主に薄膜中に注入された RI が薄膜解消時にどのような挙動を示し、また、それを再回収し得るのが調べられた。ガスから薄膜を遠隔から形成できる点や昇華により薄膜が素早くガスに変化するなどの点から、重水素薄膜の代替としてドライアイス薄膜が用いられた。図 2 に示されている装置が用いられ、ドライアイス薄膜に、京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉(KUR)に附置されたオンライン同位体分離装置(ISOL)からの RI ビームが注入できるようになっている(図 3) [4]。装置内では、ドライアイス薄膜の形成、質量分離された RI ビームの注入及び放出された炭酸ガスと RI の再捕集が行えるようになっている。そして、RI の被注入側(Catcher)と再捕集側(Trap)にある RI からのガンマ線を、外部のゲルマニウム半導体検出器により測定し、RI の挙動や再捕集(回収)の様子が調べられた。上述のように、安定核種での実験においては、重水素薄膜を形成した銀箔上での対象核種の残存を調べるのは困難であったが、本実験では RI を利用するためその確認は容易である。

本課題においては、我々の先行研究をさらに進めるべく、薄膜の形成条件(冷却 Catcher

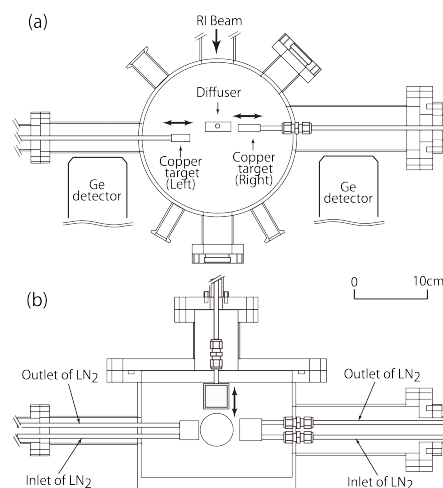


図 2 KUR-ISOL に設置された装置。(a)水平断面、(b)縦断面。左右の銅ブロックは、外部からの液体窒素(LN₂)フローにより独立して液体窒素温度(77 K)に冷却される。また、(図では切れているが、)左右の枝管にベローズが使用され、各銅ブロックは、容器中央から放射線検出器の位置まで、冷却状態を保ちながら移動できる。ドライアイス薄膜は、左銅ブロック(Catcher)を中央に移動させ LN₂ フローで冷却した後、その正面に上方から Diffuser が降ろされ、炭酸ガスを吹き付けることに形成される。薄膜生成後、Diffuser を上方に戻し、RI ビームが薄膜に注入される。右銅ブロック(Trap)は、RI 回収用であり、同様に冷却後、RI が注入された Catcher の正面に移動させ、Catcher の LN₂ フローを停止した後、ゆっくりとした熱伝導により Catcher が昇温し、ドライアイスを昇華させると、膜中の RI が炭酸ガスと共に Catcher から放出され、Trap で再び凝集(回収)される。双方のブロックの温度は熱電対により常時モニターされている。



図 3 KUR-ISOL のビームラインに設置された装置とその周辺。

への炭酸ガスの吹付率、吹付総量、単層/多層)を変え、そのそれぞれの薄膜に注入された RI が、ドライアイスの昇華に伴い炭酸ガスと共に放出された後の挙動などが観測された。

因みに、KUR-ISOL が設置されている京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉においては、東日本大震災を契機とした原子炉に関わる新規規制基準適合審査などにより、申請時の想定期間より長期に亘り (H26 年度 ~ H29 年度中頃) 研究炉が稼働しなかった。このため、本課題 (採択期間 (H27 年度 ~ H29 年度 (H30 年度まで延長))) においても、実験内容を絞らざるを得なかったことを付記しておく。

4. 研究成果

実験では、KUR-ISOL により質量分離された ^{146}La (半減期: 10 sec) が利用された。 ^{146}La は、その娘核種 ^{146}Ce や孫核種 ^{146}Pr の半減期がそれぞれ 14 min と 24 min である。各 RUN において、ドライアイス薄膜への注入前には、RI ビームのオプティクスや強度の確認を短時間で行うために、短半減期の ^{146}La からのガンマ線を用いることができる。そして、注入後においては、Catcher や Trap の移動及び放射線計測に 1.5 時間程度を要するため、比較的半減期の長い娘・孫核種の放射線が利用できる。それらの半減期が過度に長い場合、残留 RI が十分減衰するまで次の RUN が始められないため、 ^{146}La は非常に都合の良い核種であり、このような不安定核種が選択できる ISOL の特徴が生かされている。

形成条件が異なるドライアイス薄膜に、30 kV で加速された $^{146}\text{LaO}^+$ 、約 9×10^5 個/5 min/layer が注入され、薄膜の解消後、Catcher 上の残留 RI や Trap に炭酸ガスと共に移行した RI について、そのガンマ線測定により調べられた。

薄膜形成条件は、冷却 Catcher 上への炭酸ガスの吹付早さ、吹付総量や単層/多層であった。図 4 に Diffuser 上流に取り付けられている炭酸ガス供給系が示されている。現在、75 cc の容器に 1 atm で炭酸ガスを貯留するようにしている。さらに、Diffuser へガスを供給する際、装置内の真空度を $10^{-5} \sim 10^{-6}$ Torr 程度に保ちながら薄膜形成ができるように、貯留容器下流側のガス供給バルブ (Supply valve) については、開度が微調整できるニードル式バルブが使用されている。現時点において、Catcher 上に形成されたドライアイスの膜厚を計測する手段がないため、その膜厚や積層数は、この貯留容器中のガス量を単位としており、最少単位 (75 cc, 1 atm) の炭酸ガス一回分を Diffuser に供給した場合でも、Catcher 上には視認できる程の膜、つまり、十分厚い膜が形成される。Catcher 上に単層 (Single layer) の薄膜を形成する場合には、その厚さとビーム注入後のカバー薄膜の有無などが変えられた。また、多層 (Multilayer) の場合、ある厚さを決めた上で、その厚さでの薄膜形成とビーム注入を繰り返し試料が生成された。ただ、1) 装置内に大量のドライアイス形成させてしまうと、昇華時に多量のガスが発生し、真空排気装置に過大な負荷をかけてしまうことや、2) ドライアイス解消の際、Catcher 側の LN_2 フロー停止後、特に加熱せずに Catcher を昇温させたり、Catcher 上の残留 RI を減衰させたりするため、各 RUN の所要時間は 5 時間程度になってしまうことの 2 つの理由により、形成した薄膜も 2 層までに留めた。今回の実験で形成させた薄膜の主なパターンを図 5 に示す。

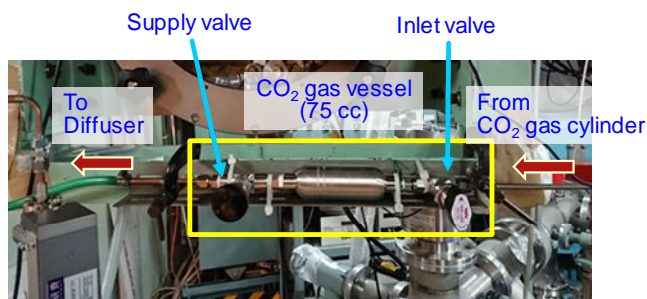


図 4 炭酸ガス供給系。炭酸ガスの貯留容器 (黄枠) 及び、容器へガスを導入するためのバルブ (Inlet Valve) と貯留したガスを Diffuser へ供給するためのバルブ (Supply Valve) で構成されている。貯留容器の容積は 75 cc で、圧力 1 atm で、ガスが貯留された。Inlet valve 開により、炭酸ガスを貯留容器に導入した後、Inlet valve 閉、Supply valve 開により、貯留槽のガスが、Diffuser へ供給される。Supply valve はニードル式で、装置内の真空度を確認しながら、ガス供給スピードが調整できる。

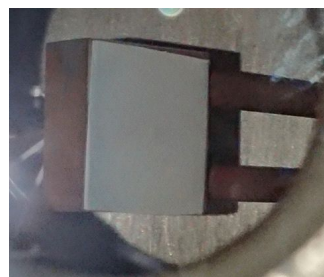
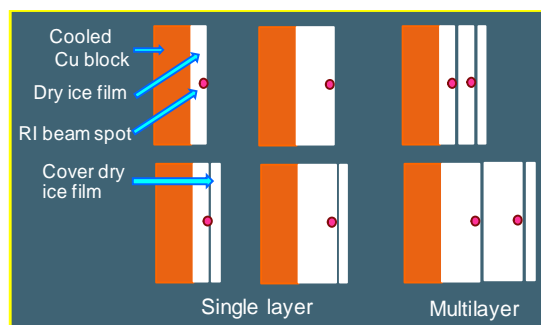


図 5 ドライアイス薄膜の形成パターン (上) と Catcher 上に形成されたドライアイス薄膜 (下)

各 RUN においては、RI 注入開始から

バックグラウンドとしての Catcher 上の残留 RI の減衰が確認されるまで、時刻を確認しながら実験をしており、現在、詳細なデータ解析と検討を行っている状況であるが、各 RUN で測定されたガンマ線エネルギースペクトルから、以下のような結論と考察が得られた。

(1) 薄膜中に注入された RI の回収方法について。

回収方法に関しては、回収効率はそれほど高くはなかったが、いずれの RUN においても、同程度の効率が得られた。このことから、効率への薄膜形成条件の依存性は小さいことが分かった。したがって、冷却トラップ法による RI 回収を行う場合には、Trap 側の幾何学的効率に重点をおけば良い、つまり、Catcher に対して可能な限り大きな立体角を持つ Trap を設計すれば良いということが言える。

(2) Catcher 上に残留する RI について

全ての RUN において、ドライアイス昇華後の温度が十分高くなった Catcher 上に、 ^{146}La の娘・孫核種の残留が認められた。SRIM 2013 のシミュレーションによると、 ^{146}La イオン(E=27 keV)のドライアイス中における飛程は約 27 nm であった(図 6)。上述のように、膜厚は未計測であるが、各 RUN においては、視認できる薄膜(サブ mm 程度と思われる)が形成されており、 ^{146}La イオンを薄膜中で停止させるのに十分な厚さであったと考えている。それにも関わらず、全 RUN において、Catcher 上に RI の残留が確認されたのは想定外であった。

その原因として、1)不完全な薄膜の形成、若しくは、2)昇華過程における Catcher 材表面と注入原子間の化学的作用が考えられている。当初、1)の可能性が高いとして、薄膜形成条件を変えながら、実験が繰り返されたが、これらの実験ではその解消には至らなかった。このため、原因として 2)が検討されているが、こちらの場合、安定核種での実験では、頭には認められなかった残留核の影響が、RI ビームが利用されたことにより認識できた可能性がある。そして、このことは、不安定核実験に向けた重水素薄膜法の開発に対し、Catcher の表面材と注入原子との化学的作用に関する検討も必要ということであり、今後の基礎研究に重要な示唆を与えることができた。

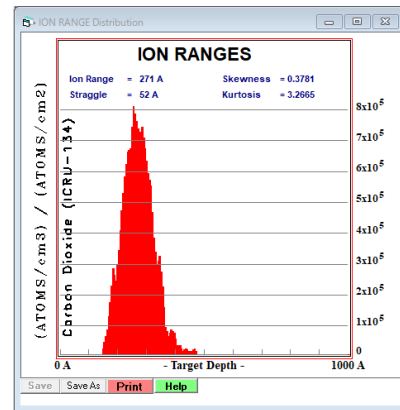


図 6 SRIM 2013 による $^{146}\text{La}^+$ (@27 keV) のドライアイス中での飛程。飛程として 27 nm が得られている。

(3) 放出された RI の経路

当初、薄膜上に注入された RI の移行経路として、図 7 に示したように、1)薄膜の一部の剥離(チェンバー内に落下の後、排気ガスと共に装置外へ排出(注))、2)装置内壁に付着、3)昇華時、Trap に捕集されずに炭酸ガスと共に真空排気装置を通して装置外へ排出、といった経路も想定されていた。本実験において、実際に確認された経路は、Trap に再捕集された分と Catcher 上に残存した分だけであったが、注入 RI、Catcher 上の残留 RI と Trap に再捕集された RI の各数量を導出するためのガンマ線の測定データは取得できており、間接的ではあるが、経路 1)~3)分の総量の導出は可能であり、RI の全体的な挙動も把握できるようになる。

(注) KUR-ISOL では、ビームライン等の真空排気装置から排出されたガスは、フィルターチェンバーを経た後、その線量がモニターされた上で、原子炉室の排気系へ排出されている。

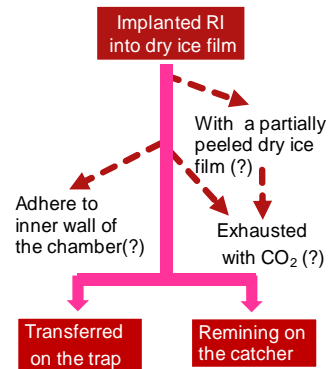


図 7 薄膜中に注入された RI の予想経路

< 引用文献 >

[1] M. Wakasugi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 100, 164801(2008)
 [2] T. Nillson *et al.*, Nucl. Phys. A746(2004)513c-517c
 [3] P. Strasser *et al.*, Hyp. Int. 193 (2009) 121-127.
 [4] A. Taniguchi *et al.*, KURRI Progress. Report 2013, pp98-98

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 件)

A.Taniguchi, P.Strasser, M.Tanigaki and Y.Ohkubo,
 Technique of Transferring Radioactive Atomic Nuclei Implanting in Dry Ice Film,

KURNS Progress Report 2018, 査読無, to be published.

〔学会発表〕(計 1 件)

谷口秋洋、Patrick Strasser、

「不安定核ミュオン原子生成実験に向けた技術的課題」
第10回停止・低速RIビームを用いた核分光研究会

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究協力者

研究協力者氏名：ストラッサー パトリック

ローマ字氏名：STRASSER, Patrick

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、研究者個人に帰属されます。