

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540303

研究課題名(和文)不安定核ミュオン原子生成に向けた放射性物質の挙動/制御に関する基礎研究

研究課題名(英文) Research on behavior and control of radioactive materials toward producing muonic radioactive atoms

研究代表者

谷口 秋洋 (TANIGUCHI, Akihiro)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：10273533

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：原子に捕獲されたミュオンが基底状態に移る際に放出されるX線のエネルギーから、原子核の電荷分布情報が得られる。近年、我々は、安定原子核のミュオン原子を高効率で生成する方法(固体重水素薄膜法)を開発したが、電荷分布が殆ど未知の不安定核に適用するには、薄膜へ注入される放射性物質の挙動の理解や測定終了時の放射性物質の回収技術を要する。

本課題では、昇華するドライアイスを用いて放射性物質を固体重水素薄膜の代用とし、その薄膜生成装置と回収装置を設計・製作し、不安定核ミュオンを用いて実験を行い、特に回収に関しては、薄膜に注入された放射性物質を液体窒素冷却トラップ型回収装置に移行させることに成功し、有望な回収技術を提案できた。

研究成果の概要(英文)： Observation of the emitted X-rays from muonic atoms is one of the most effective methods for the investigation of the nuclear charge distribution. Recently, a new method using solid hydrogen film has been developed to produce muonic atoms. However, several problems have to be solved before this method is applied to experiments for unstable nuclei. In this study, one such problem, concerned with handling of residual radioactivities in the film after experiments, was attacked experimentally using a radioisotope (RI) beam from KUR-ISOL and dry ice film.

An apparatus capable of implanting RIs to dry ice film and re-trapping the RIs with a cooled copper block was designed and installed at the beam line of KUR-ISOL.

It was observed that a relatively large number of the implanted RIs were transferred to the cooled block when the RIs were released with sublimation of dry ice. This technique can be applied to the deuterium film method when recovering residual radioactivities in film safely.

研究分野：原子核物理学(実験)

キーワード：ドライアイス薄膜 不安定核注入 放射性物質回収 ミュオン原子 固体重水素薄膜法

## 1. 研究開始当初の背景

量子力学的粒子である核子（陽子と中性子）で構成される原子核は、表面を有する量子多体系として、物理学における重要な研究対象の一つである。

原子核の電荷の空間的な広がり（電荷密度分布）の知見は、核子間の相互作用などを明らかにする上で重要な情報の一つである。核の電荷密度分布を調べる方法には、電子散乱、ミュオン原子 X 線測定及び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り、特に、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年代から行われ、歴史的に相補的な関係にある。

負ミュオンは電子と同じ性質を持ち、原子核に束縛されミュオン原子を形成するが、その質量は電子の約 207 倍もあるため、負ミュオンは原子核の内部や表面近傍にも存在することになる。この結果、原子核の電荷密度分布が、ミュオン軌道のエネルギーに鋭敏に反映される。したがって、原子に捕獲されたミュオンが基底準位に遷移する際に放出される X 線（ミュオン原子 X 線）のエネルギーを測定することにより原子核の電荷密度分布の情報が得られる。

原子核の電荷密度分布の研究は重要なテーマであるにも関わらず、約半世紀を経た現在に至っても、不安定な原子核を対象とした本格的な実験的研究は始まっていない状況にある。その主な理由は、測定に必要な不安定核の個数によるものである。安定な原子核、例えば  $^{197}\text{Au}$  を対象とした実験の場合、金箔に電子やミュオンを照射し、散乱電子や放出されるミュオン原子 X 線を測定すれば結果が得られる。即ち、有意な実験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、安定核を対象とした実験では、それを容易に利用できる。その一方、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できる施設はなく、仮に生成できたとしても、その放射能は取扱いができないレベルになる。

この困難を克服するため、それぞれの実験方法において、必要な不安定核数を低減するための高効率化が図られている。電子散乱実験では、最近、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、蓄積リング中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ものである。安定核  $^{133}\text{Cs}$  の実験では  $10^7$  個程度のイオンで測定が可能であることが実証され、現在、理化学研究所・仁科加速器研究センターにおいて「RI・電子散乱装置」が建設された。一方、ミュオン原子 X 線の測定実験においても、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、固体重水素薄膜法を開発し、英国 Rutherford Appleton 研究所の RIKEN-RAL ミュオン施設において、

$^{40}\text{Ar}$ ,  $^{86, 87, 88}\text{Rb}$ ,  $^{138}\text{Ba}$ ,  $^{148, 152}\text{Sm}$  など広範囲の安定核種に対し、非常に高い確率でミュオン原子が生成されることを確認し、同位体間のミュオン原子 X 線のアイソトープシフトの観測にも成功した。この方法で必要であった原子核数は  $10^{16}$  個程度であり、不安定核実験に向け有望な結果が得られた[3]。

## 2. 研究の目的

固体重水素薄膜を用いたミュオン原子生成法は、重水素薄膜中に研究対象の原子核がある場合、それにミュオンが非常に高い効率で移動しミュオン原子を生成するという性質を利用したものである。RIKEN-RAL ミュオン施設での実験では、 $\sim 3\text{K}$  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ターゲットが作成された（さらに、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、総量  $10^{16}$  個程度の対象核種を含むターゲットが作成された）。この多層膜ターゲットにミュオンを照射しミュオン原子が生成され、その X 線の測定に成功した。従来手法では、モル数程度の原子核が必要であったのに比べ、この方法は  $10^5 \sim 10^7$  倍も効率の良い方法である。しかし、 $10^{16}$  個の放射性物質は、例えばその半減期が 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の手順は、1) 不安定核ビームの重水素薄膜への注入、2) ミュオン照射とミュオン原子 X 線測定、3) 実験終了後のターゲットの後始末となる。各過程に幾つかの問題があるが、その一つとして、過程 1) と 3) におけるターゲット周辺の放射性物質の挙動がある。過程 1) では、注入 RI イオンの一部が散乱され、真空槽の内壁に付着することが想定される。また過程 3) では、ターゲットが常温に戻され固体重水素が気化する際、注入されていた放射性物質がリリースされる。そ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、一部は銀箔上やチェンバー内壁に残留すると考えられている。しかし、これまでの安定核種の実験では、定量的にその挙動は調べられていない。（ただし、銀箔上の残留核種の影響については、一連の実験における測定結果に、残留物の影響が顕には認められておらず、残留量はそれ程多くないと推測されている。）放射性核種の場合、ターゲット周辺での残留はバックグラウンドの増加を招き、さらにその量が多ければ、実験の継続性を阻害する。したがって、実験時の放射性物質の挙動、特に、実験終了時、放射性物質がターゲットからリリース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。

以上のことから、本課題では、重水素薄膜法を放射性核種に適用した際、放射性物質の

重水素薄膜ターゲット周辺における挙動を定量的に検証し、さらに、注入された放射性物質を制御（基本的には回収）するための技術開発を行うことが目的とされた。

### 3. 研究の方法

本課題においては、後述するように、重水素薄膜の代わりに、ドライアイス薄膜を用い、そこに京都大学原子炉実験所の研究用原子炉に設置されているオンライン同位体分離装置（KUR-ISOL）からの不安定原子核を直接注入する模擬体系を構築し、体系内で散乱/残留する放射性物質をゲルマニウム半導体検出器による $\gamma$ 線測定等で検知することで、その挙動を把握すると共に、薄膜から放射性物質がリリースされた際の有効な回収技術を提案することが当初計画された。

#### (1) ドライアイス薄膜生成装置の設計・製作

重水素薄膜を生成するには、ターゲットを $\sim 3$  Kまで冷却させる高価な冷凍機が必要である。しかし、第一段階的な検証実験である本課題においては、安価・簡便に実験環境を再現するため、ドライアイス薄膜を重水素薄膜の代用とした。これは、ドライアイスが低圧力下で解凍される際の状態変化が固体重水素のそれと似て、模擬ターゲットとして適当であると考えられたためである。このため、まず初めに、下記仕様を満たすドライアイス生成装置の設計・製作をすることとなった。

- ・冷却されたバックングに、噴霧器を用いて炭酸ガスを吹き付けてドライアイスを生成する。（これにより、炭酸ガス量で膜厚が調整でき、また、多層膜化も可能であるため、重水素薄膜の状況が再現できる）
- ・冷媒に液体窒素を使用する
- ・生成された薄膜は、KUR-ISOLのビーム軸上から放射線測定位置まで、冷却状態を保ちながら、移動可能であること。また、噴霧器もビーム軸上に対して出し入れ可能であること

#### (2) 放射性物質回収装置の設計

放射性物質回収には、液体窒素温度に冷却された金属上に放射性物質を捕集する方法（冷却トラップ方式）を採用した。その仕様は以下の通りであった。

- ・冷媒に液体窒素を使用する
- ・冷却された金属体（捕集部）は、ドライアイス薄膜の不安定核種（RI）注入面の極近傍正面から放射線測定位置まで、冷却状態を保持しながら移動可能である
- ・捕集部はアタッチメントタイプとし、形状を変えられるようにする

(3) (1)と(2)の機能を統合した装置を設計・製作し、これをKUR-ISOLのビームラインの末端に設置し、RIビームを用いた次の実験が計画された。

ビーム注入時のRIの散乱成分の測定

解凍時に放出されるRIの挙動調査

解凍時のRIの回収方法の検証

注入核種は、注入時間、ドライアイス薄膜の解凍や $\gamma$ 線測定に要する時間を考慮し、適切に選ぶことにした。（KUR-ISOLでは $^{235}\text{U}$ の核分裂片が生成されるので、広範囲な核種の中からの選択が可能である。）

散乱成分の測定では、ドライアイス薄膜へRIを注入した際、薄膜内に留まらずに、散乱されるRIを、ターゲット周辺に配された衝立でキャッチし、注入成分と散乱成分を求める。また、数時間の半減期をもつRIを注入し、照射終了後に衝立を取り出し、別途、散乱方向の分布も調べる。

解凍時のRIの挙動については、と同様な衝立を配した上で、RI注入済みのターゲットを解凍し、衝立に付着、或いはターゲットのバックングに残留したRIを測定する。また、リリースされたRIが、気化した炭酸ガスと共に直接真空ポンプへ排気されるのか、それとも、チェンバー内に偏在し易い場所があるのかなどについても調べる。

回収方法については、製作した冷却トラップ型放射性物質回収装置を用いて、リリースされたRIのトラップへの捕集効率をトラップの大きさや形状等を変えて測定し、その有効性を検証する。

上記が課題申請時に立案された研究計画である。しかし、KUR-ISOLが設置されている京都大学原子炉実験所の研究用原子炉（KUR）においては、東日本大震災（平成23年3月）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のため、採択期間中においては、原子炉が殆ど稼働せず、当該課題に割当てられたマシンタイムは3日間であった。このため、上記の研究計画(3)については再検討し、最も重要なテーマと位置付けていた放射性物質の冷却トラップ型回収法の検証実験を優先して実施した。

### 4. 研究成果

(1)本研究の遂行には、KUR-ISOLの高真空ビームラインに設置される真空槽内でのドライアイス薄膜の生成が不可欠であった。しかしながら、申請時の調査においては、想定されたドライアイス生成環境（真空度 $10^{-5} \sim 10^{-6}$  Torr、液体窒素温度(77 K)）における炭酸ガスの状態は必ずしも明確ではなかった。このため、小規模な実験装置を製作しドライアイス薄膜の生成条件が確認された。さらに、操作性や反復性（短時間で冷却・解凍を繰り返すこと）等を具体的に検討し、薄膜生成方法として、その内部に液体窒素をフローさせて銅ブロックを冷却する方法を採用し、約1,000 ccの真空槽内に、銅ブロック（縦30 mm、横25 mm、厚さ10 mm）とその冷却系及び炭酸ガス噴霧器を納めた装置（図1）が製作された。

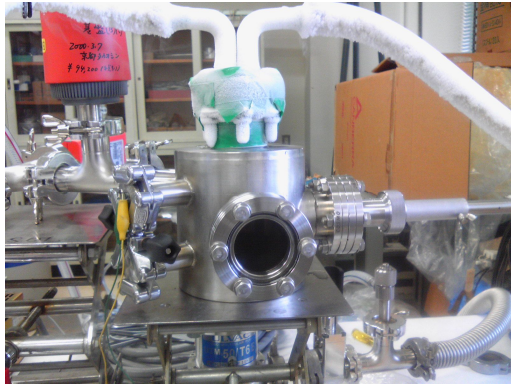


図1 ドライアイス薄膜生成装置製作のためのテスト装置。内部では銅ブロックが液体窒素のフローにより冷却されている。右側のパイプから炭酸ガスが導入され、内部の噴霧器を通して、銅ブロック上に吹きつけられ、ドライアイスが生成される。因みに、中央の真空槽の外径は 114 mm。

この実験の結果、真空度 $3 \times 10^{-6}$  Torr付近において、77 Kの銅ブロック表面にドライアイスの生成が認められた(図2)。また、生成されたドライアイスは、液体窒素フローを停止するまで安定に保持できること、ドライアイス生成の手順や細かな留意点が確認された。



図2 銅ブロック上に生成されたドライアイス(白点)点状になっているのは、噴霧器のガス噴出口の構造を反映しているため。銅ブロック上部に見える2本の銅製パイプ中を液体窒素が流れている。

(2) ドライアイス薄膜生成と放射性物質回収を統合した装置(図3)を設計・製作し、KUR-ISOLのビームラインに設置した。図4に、この装置内で再度ドライアイス薄膜を生成した時の写真を載せる。

放射性物質回収装置の捕集部の冷却には、当初コールドフィンガーによる冷却が考えられていたが、冷却・昇温に要する時間や捕集部の可動方法を検討した結果、ドライアイス生成装置と同様の液体窒素フロー方式を採用した。

(3) 放射性物質回収法の検証実験

上述の装置を用いて、ドライアイス薄膜に注入されたRIが、今回考案された方法により有効に回収できるかが検証された。

実験では、KUR-ISOLで質量分離された $^{146}\text{La}$ (半減期: 10 s)が利用された。30 kVで加速された $^{146}\text{LaO}^+$ 、約 $3 \times 10^6$ 個をドライ

アイス薄膜が形成された左銅ブロック上に注入した後、その注入面正面に右銅ブロックを

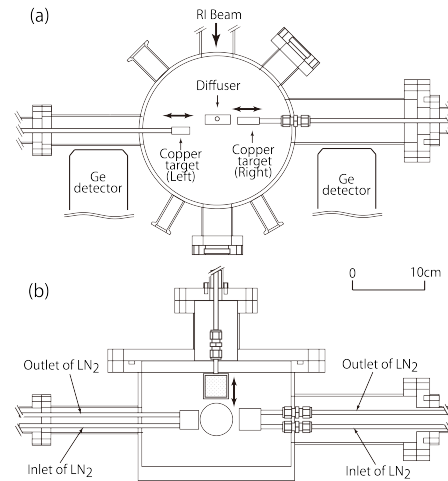


図3 KUR-ISOLに設置された装置。(a)水平断面、(b)縦断面。左右の銅ブロックは、外部からの液体窒素フローにより冷却される。(図では切れているが、)左右の枝管に溶接ベローズ(蛇腹)が使用されているため、容器中央から放射線検出器の場所まで、冷却状態を保持したまま、各銅ブロックは移動できる。ドライアイス薄膜の生成は、まず、左銅ブロックを中央に移動させ液体窒素温度に冷却した後、その正面に上方から噴霧器を降ろし、炭酸ガスを吹き付けて行われる。薄膜生成後、噴霧器は上方に戻され、RIビームが薄膜に注入される。右側の銅ブロックは、放射性物質回収装置であり、これをRIが注入された左銅ブロックの正面に移動し液体窒素温度まで冷却させた後、左銅ブロックの冷却を止めドライアイスを昇華させると、注入されたRIが炭酸ガスと共に左銅ブロックから離れるので、それを右銅ブロックで再び凝集して回収する仕組みとなっている。右銅ブロックは、形状を変えられるようにアタッチメント式となっている。

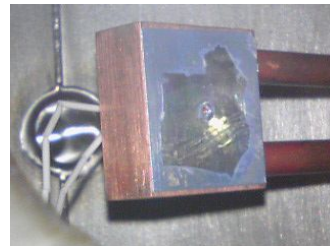
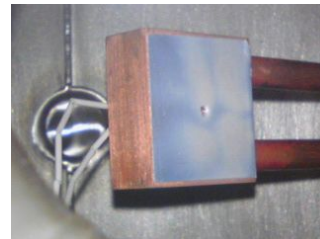


図4 (上) KUR-ISOLに設置された装置内で形成されたドライアイス薄膜。銅ブロック表面が放射性物質で直接汚染されないように、アルミニウム箔が貼られ、その上に薄膜が形成されている。(下)銅ブロックの冷却を止めて暫く経った後の写真。温度上昇に伴い、中央付近の薄膜が無くなっている。(液体窒素の流路が銅ブロックの外周にあるため、中央の温度が先に上がる)

移動し冷却した。その後、左銅ブロックの冷却を停止しドライアイス薄膜を昇華させ、注入した RI を左銅ブロックから離脱させた。離脱した RI は、トラップである右銅ブロック上に、炭酸ガスと共に再凝集するので、そこから放出される  $\gamma$  線を測定し、その捕集効果が確認された。

結果の一例を図5に示す。ドライアイス薄膜中にあった  $^{146}\text{La}$  の娘・孫核種が、ドライアイス薄膜の昇華に伴い、その6割程度が右銅ブロックに再び凝集(つまり回収)されたことが確認された。このことは、回収効率の一層の改善は必要ではあるが、不安定核を対象とした固体重水素薄膜法の適用に向け、放射性物質の回収に対する一つの解決策を提示するものである。

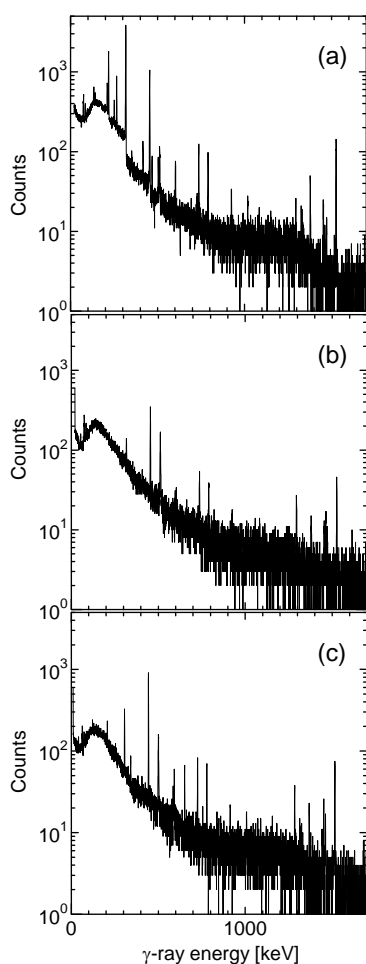


図5 冷却トラップ型回収装置の有効性の検証。各銅ブロック上の放射性物質( $^{146}\text{La}$ とその娘・孫核種)。(a) $^{146}\text{La}$ 注入後約8分の銅ブロックからの $\gamma$ 線スペクトル。 $^{146}\text{La}(T_{1/2}=10\text{ s})$ はDecay outし、その娘・孫核種 $^{146}\text{Ce}(T_{1/2}=14\text{ m})$ と $^{146}\text{Pr}(T_{1/2}=24\text{ m})$ の $\gamma$ 線が見えている。(b)左銅ブロックの冷却を停止し、ドライアイス薄膜を昇華させた後の左銅ブロックからの $\gamma$ 線スペクトル。RIが残存しているのが分かる。これは、ドライアイス薄膜の膜厚が薄く、ビームがブロック上のアルミ箔にまで届き、表面に残留したためと考えられる。(c)トラップ側銅ブロックの $\gamma$ 線スペクトル。放射性物質がトラップ側に再凝集し、回収されているのが分かる。

上述の理由により、採択期間中に不安定核ビームを用いた実験は殆ど実施できなかったが、本装置に関して少なくとも次の2つの改良点も見出された。

- ・炭酸ガスが損失なく薄膜生成に使われるように噴霧器を改良し、膜厚を制御できるようにする
  - ・両銅ブロックに昇温を促進する仕組みを取り付け、昇温時間を短縮し、より多くの条件下での実験を可能にする。(現状では、一つのRUNに3~4時間を要している)
- 今回、実施できなかった他の実験についても、原子炉の運転が再開され次第、本装置を用いて、順次実施することで、固体重水素薄膜法の不安定核への適用に向けた基盤的な知識・技術が蓄積されることが期待される。

#### <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.

#### 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 1 件)

A.Taniguchi, P.Strasser, M.Tanigaki and Y.Ohkubo, Technique of Transferring Radioactive Atomic Nuclei Implanting in Dry Ice Film, KURRI Progress Report 2013, 査読無, pp.98-98  
<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/PUB/report/PR/ProgRep2013/ProgRep2013.html>

[学会発表](計 1 件)

谷口秋洋、「不安定核のミュオン原子を作る 不安定核ミュオン原子の生成・観測に向けて」, ミュオン変換 mini WS, H26年4月19日、大阪大学・豊中キャンパス(大阪府・豊中市)

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

谷口 秋洋 (TANIGUCHI, Akihiro)  
京都大学・原子炉実験所・准教授  
研究者番号: 10273533

##### (2)連携研究者

ストラッサー パトリック  
(STRASSER, Patrick)  
高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・機関講師  
研究者番号: 20342834