

会議のトピックス(I)

日本原子力学会「2024 春の年会」

企画セッション（核データ部会主催・「シグマ」調査専門委員会共催）

ミューオン核データの進展

2024 年 3 月 27 日 13:00～14:30 近畿大学 東大阪キャンパス

(1) インビーム放射化法によるミューオン核データの測定

理化学研究所

仁科センター核変換データ研究開発室

新倉 潤

niikura@riken.jp

1. ミューオン・原子核の相互作用とミューオン核データ

ミューオンは第二世代の荷電レプトンで、電子のおよそ 200 倍の質量を持ち、 $2.2\ \mu\text{s}$ の寿命で電子と二つのニュートリノに崩壊（ミューオン崩壊）する素粒子の一つである。ミューオンは正負の電荷を持つ 2 種類があり、物質中で正ミューオンは「軽い陽子」として、負ミューオンは「重い電子」として振る舞う。本稿では、主に原子核と相互作用する負ミューオンのみを対象とする。図 1 に負ミューオン（以下単にミューオンと記す）と原子核の相互作用する過程の概念図を示す。ミューオンが物質中で停止すると原子核が作るクーロン場に捕われて原子束縛状態（ミューオン原子）を形成する。生成時のミューオン原子は高い励起状態にあり、オーグジュ電子やミューオン原子 X 線を放出して段階的に基底準位 $1s$ 状態まで遷移する。 $1s$ 状態にあるミューオンは一定の寿命を持ち、自然崩壊または原子核捕獲反応（以下、ミューオン捕獲と記す）[1] によって消滅する。ミューオン捕獲の素過程は、原子核内の陽子とミューオンが弱い相互作用により中性子とニュートリノを生成する反応、



であり、原子番号 Z 、質量数 A を持つ原子核 (Z, A) に対してミューオン捕獲が起こると、原

子番号が一つ小さい原子核($Z-1, A$)を形成する。



この反応においてミューオンの静止質量 ($106 \text{ MeV}/c^2$) の殆どはニュートリノが運動エネルギーとして持ち去り、残りのエネルギーは $5\text{-}50 \text{ MeV}$ 程度の励起状態にある原子核 (複合核) の形成に使われると考えられている。ミューオン捕獲により生成した複合核は、中性子・陽子・アルファ粒子などの粒子放出やガンマ線脱励起を伴い残留核へと変化する。

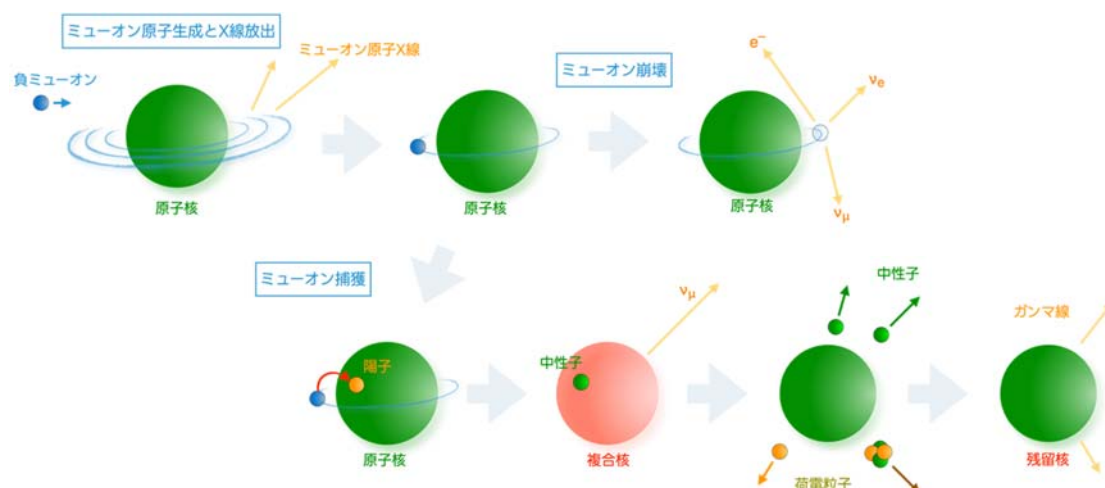


図1 ミューオンと原子核の相互作用過程の概念図

近年これらミューオンによる核反応は、様々な学術研究や応用・産業利用においてその重要性が指摘されている。ミューオン原子 X 線分光は、ほぼ全ての元素を、位置選択的に、非破壊で元素分析できる新たな手法として、近年国内外のミューオン施設で精力的に開発研究が行われている [2]。ミューオン捕獲による核変換は、原子炉で使用された使用済み燃料を再処理した際に発生する高レベル放射線廃棄物の低減手法として、また医療用 RI の新しい製造手法としても注目されている [3,4]。ミューオンビームを利用する加速器施設では、ビーム照射によって生成する放射線同位元素の生成確率を知ることが放射線安全の観点からも重要である。地上に降り注ぐ宇宙線のおよそ 7 割はミューオンであり、ミューオン捕獲は地上における宇宙線の影響を評価するためにも重要である。宇宙線によって生じる半導体デバイスの一過性の誤動作 (ソフトエラー) は、現代社会を構成する半導体集積システムの信頼性を決定する最大要因となっている。従来は宇宙線の中でも中性子がソフトエラーの主要因と考えられてきたが、近年の半導体デバイスの微細化や構造変化に伴いミューオンが中性子に代わりソフトエラーの主要因となる可能性が示唆されている [5]。いずれの研究でもミューオン原子 X 線エネルギーやミューオン捕獲による反応核種生成率、粒子放出エネルギースペクトル等のデータは研究の基礎となるが、現状これらの測定量の系統的・網羅的な核データは存在しない。

そこで現在我々はミュオン核データの開発を進めている[6]。ミュオン核データとして、下記の5つの物理量（サブライブラリ）の核データ構築を計画している。

- (1) ミュオン原子 X 線のエネルギーと強度
- (2) ミュオン原子の寿命（ミュオン捕獲確率）
- (3) ミュオン捕獲による核種生成確率
- (4) ミュオン捕獲から放出される粒子の放出確率
- (5) ミュオン捕獲から放出される粒子のエネルギースペクトル

ミュオン核データの開発は、物理過程の理論モデルの開発と測定によるベンチマークの連携によって行う。それぞれの現在の開発状況と今後の展望は本セッションの各講演者による後続の記事を参照されたい。本稿では、ミュオン核データのうち「(3)ミュオン捕獲による核種生成確率」の測定実験について述べる。

2. インビーム放射化法によるパラジウム同位体の核種生成確率測定

現在、大強度のミュオンビーム照射を利用した高レベル放射性廃棄物の核変換や医療用 RI 製造が提案されている [3,4]。このミュオン核変換の実現には、その変換経路や変換効率を定量的に見積る必要があり、ミュオン捕獲で生成する核種の生成確率分布の基礎データが不可欠である。本研究では、長寿命核分裂生成核種の一つである ^{107}Pd （半減期 650 万年）近傍のパラジウム (Pd) 同位体 ($^{104,105,106,107,108,110}\text{Pd}$) について、ミュオン捕獲による核種生成確率測定を行った [7]。

図 2 に ^{107}Pd を例にミュオン捕獲による核変換経路を核図表上に示した。式(2)に示したように、ミュオン捕獲は核図表上では右下の複合核を生成する。 ^{107}Pd のミュオン捕獲では、複合核ロジウム-107 (^{107}Rh) を生成する。中重核のミュオン捕獲で作られる複合核からの蒸発粒子の 9 割以上は中性子であり、0 から 5 個程度の中性子を放出して残留核 $^{103-107}\text{Rh}$ へと至る。安定核である ^{103}Rh を除いた生成 Rh 同位体はベータ崩壊核であり、一定の半減期を持って Pd の安定同位体へと核変換される。核変換効率の評価のためには、これらの核種生成確率、つまり中性子放出多重度の核データが必要である。

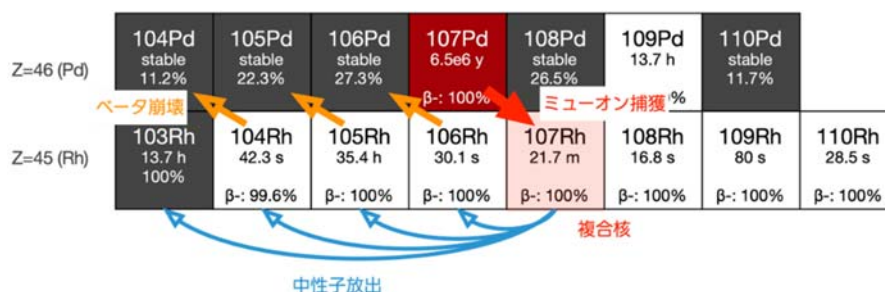


図 2 ^{107}Pd のミュオン捕獲による核変換の経路を核図表上に示す。 ^{107}Pd のミュオン捕獲では複合核 ^{107}Rh を生成し、主に複数の中性子を放出して Rh の同位体を生成する。

核種生成確率は放射化法によって測定する。放射化法は核反応で生成した放射性同位体の生成確率を測定する最も信頼性の高い測定方法である。特に本研究で行なった Pd 同位体のように原子番号（陽子数）が偶数の原子核のミュオン捕獲では、生成する核種が主に奇数の陽子数を持つため、その多くは放射性同位体であり放射化法による測定ではほぼ全ての核種生成確率を得ることができる。一方で、ビーム照射の後に照射室とは別の場所に用意したオフライン放射能測定装置を使用する従来の放射化測定では、照射試料の移動時間内に放射崩壊してしまう短寿命核種の生成率は測定することができない。Pd 同位体のミュオン捕獲では、半減期が 1 分以内の短寿命核も多く生成されるため、この短寿命核の放射能を効率的に測定するための工夫が必要となる。この短寿命核の放射能測定を可能にする手法が、本研究で開発したインビーム放射化法という手法である。

インビーム放射化法では、シンクロトロン加速器で加速された陽子ビームの核反応で生成するミュオン（正確には核反応でパイオンを生成し、その崩壊ミュオンをビームとして利用している）が持つ、パルスビームの時間構造を利用する。パルス時間構造を持つミュオンビーム施設は、現在イギリスのラザフォードアップルトン研究所 (RAL-ISIS) の理研ミュオン施設 (RIKEN-RAL) [8]と日本の J-PARC 物質生命科学実験施設 (MLF) の MUSE [9] の 2 施設が存在する。図 3 にパルスミュオンビームの時間構造を示す。パルスビーム施設では、一定の周波数（RAL-ISIS では 50Hz、J-PARC MLF では 25Hz）で複数のミュオンがパルス幅約 100 ns の短い時間にまとまって照射される。ビームパルスの間にはビームが照射されていない「静かな」時間が十分にあり（RAL-ISIS で 20 ms、J-PARC MLF では 40 ms）、この時間にベータ崩壊ガンマ線を検出することで放射能を測定することができる。ビームを照射しながら放射能を測定することから、この手法のことをインビーム放射化法と命名した。インビーム放射化法では、数 ms から数時間までの広い範囲の放射能を効率的に測定することが可能である。

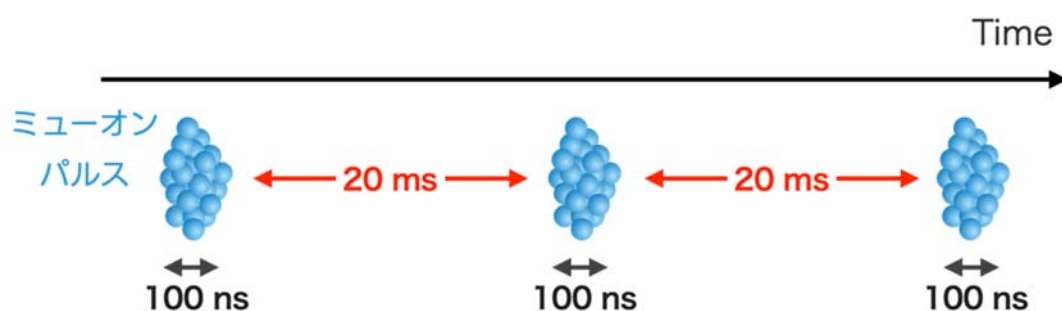


図3 パルスミュオンビームの時間構造。RAL-ISIS では 50Hz、J-PARC MLF では 25Hz の周期でミュオンが複数個ほぼ同時に照射される。

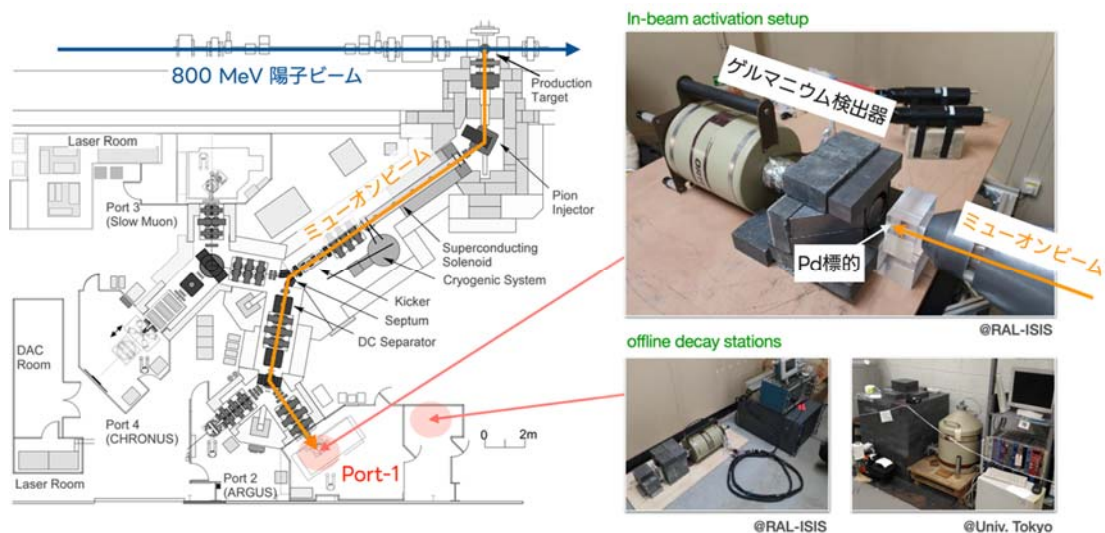


図4 RIKEN-RAL ミューオン施設 [10] と実験セットアップ

実験は RIKEN-RAL ミューオンビーム施設の Port-1 において行った。図4に実験ビームラインとセットアップの写真を示す。RAL-ISIS のシンクロトロンで加速した 800 MeV の陽子ビームをグラファイト製の生成標的に照射し、生成したパイオンの崩壊によって得られるミュオンを RIKEN-RAL ミューオンビームラインで照射室 Port-1 に輸送した。34 MeV/c の運動量を持つ低速ミュオンビームを Pd 同位体濃縮標的に停止させ、ミュオン捕獲により生成した残留核のベータ崩壊および核異性体崩壊によるガンマ線を、標的の直下流に設置したゲルマニウム (Ge) 検出器で測定した。インビーム放射化法では、半減期が 1 日程度までの放射能を測定し、より長い半減期を持つ核種の放射化測定は、照射室の外に設置したオフライン測定装置で測定した。数日の半減期を持つ ^{105}Rh (半減期 35.3 時間) と ^{101}Rh (半減期 4.34 日) は照射室すぐ外に設置したオフライン測定用の Ge 検出器で、より長い半減期を持つ ^{102}Rh (半減期 207.3 日) と ^{103}Ru (半減期 39.2 日) は東京大学に設置した超低バックグラウンド Ge 検出器でそれぞれ放射能を測定した。

図5に本実験で得られた5つの Pd 同位体標的におけるミュオン捕獲の核種生成確率を、中性子多重度の関数として整理したグラフを示す。一部に中性子多重度の放出確率の値が抜けているものがあるが、それらは主に放射化法では測定できない安定核 ^{103}Rh の生成に起因している。実験で得られた核種生成確率は、PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code system) による計算結果 [11,12]との比較を行った。PHITS の計算結果は実験で測定された生成確率を概ねよく再現する一方で、使用されている物理モデルに改良が必要なのことも明らかになった。実験結果と議論の詳細は原論文 [7]を参照していただくこととし、本稿では本研究で実施したインビーム放射化法の特徴と今後の展望を紹介する。

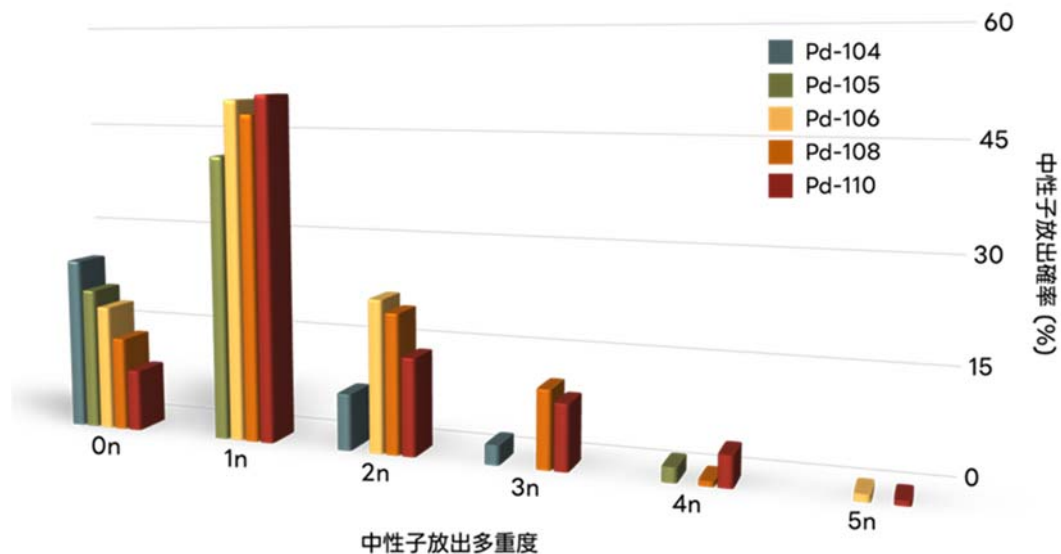


図5 5つのPd同位体標的におけるミューオン捕獲で放出される中性子多重度の確率

これまでもいくつかの原子核についてミューオン捕獲による核種生成確率の測定が主に2つの手法によってなされている。その一つは、ミューオン捕獲で生成する複合核が粒子放出をした後の脱励起ガンマ線を測定する手法である。このガンマ線測定手法では、原子核のガンマ線脱励起様式がよくわかっていて、かつ全てのガンマ線を測定することができれば、全ての核種において生成確率を得ることができるが、実際には未知のガンマ遷移や測定限界以下の弱いガンマ線が多数存在するため、実験で得られる核種生成確率は下限値となる。周辺核の系統性から全生成確率を導出するモデル計算も行われているが、モデル依存性からくる不定性を完全には排除できない。もう一つの手法は放射化法であり、前述の通り従来のオフライン放射化測定では長半減期の核種のみ生成確率が測定可能なため、既存のデータは一部の生成核種に限定されている。本研究では特に生成核種が全て放射性同位体である^{106,108,110}Pd標的においては合計で90%以上のほぼ完全な核種生成確率のデータを得ることができ、今後のミューオン核データ開発のための基礎手法を確立することに成功した。

本実験はインビーム放射化法を適応した初めての実験であり、データ解析を進めていく中で測定体系には改良の余地が残されていることも明らかとなった。放射化法は核反応で生成する核種の生成確率を測定する最も感度の高い手法であり、その測定限界は生成核種の崩壊様式に強く依存するが、本研究ではおよそ生成確率0.5%までの生成核を同定している。測定限界は主にガンマ線スペクトルにおける信号バックグラウンド比に依るため、放射能測定に使用したGe検出器を鉛の遮蔽で覆い、またコンプトン抑制機を利用してバックグラウンドを低減させる。これにより測定感度をおよそ10倍に向上することが可能となる。これら感度向上のための開発はすでに完了しており、最近のインビーム

放射化法による核種生成確率測定では、0.1%以下の生成確率をもつ核種生成の同定に成功している。

3. まとめ

現在我々はミューオン核データの開発を進めている。近年、ミューオンによる核反応は、核変換・医療用 RI 製造・放射線安全・半導体ソフトエラー等の様々な研究分野でその重要性が指摘されており、ミューオン核データはそれらの研究の基盤を提供するものである。

本稿では、ミューオン核データを構成する 5 つのサブライブラリの一つである「ミューオン捕獲による核種生成確率」の測定実験について紹介した。核種生成確率の測定手法として、インビーム放射化法という新たな手法を開発し、ミューオン核データ測定の基礎手法を確立した。現在パルスミューオン施設である RIKEN-RAL と J-PARC MLF において、さまざまな標的核種でのミューオン捕獲による核種生成確率の測定実験を系統的に行っている。今後は、得られた実測データからミューオン核データを評価・整備して公開する予定である。

参考文献

- [1] D. Measday, Phys. Rep. 354, 243–409 (2001).
- [2] 二宮和彦, 核データニュース, No.114, 10–17 (2016).
- [3] 藤田玲子他, 「放射性廃棄物の処理方法」(特許第 6106892 号)
- [4] T. Matsuzaki and H. Sakurai, J. Radioanal. Nucl. Chem. (2024), in print.
- [5] S. Manabe et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. 65, 1742 (2018).
- [6] M. Niikura et al., Proc. Joint Symp. on Nuclear Data and PHITS 2023; arXiv:2403.19965 (2024).
- [7] M. Niikura et al., Phys. Rev. C 109, 014328 (2024).
- [8] T. Matsuzaki et al., Nucl. Instrum. Method A 465, 365 (2001).
- [9] Y. Miyake et al., Phys. Procedia 30, 46 (2012).
- [10] <https://www.isis.stfc.ac.uk/Pages/RIKENRAL-Muon-Group.aspx>
- [11] S. Abe and T. Sato, J. Nucl. Sci. Technol. 54, 101 (2017).
- [12] 安部晋一郎, 核データニュース, No.114, 18–27 (2016).