

核データ部会企画セッション

「ミューオンの物質内輸送とその学際的応用」

(2) 負ミューオンを用いた非破壊元素分析

大阪大学大学院理学研究科

二宮 和彦

ninokazu@chem.sci.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

負ミューオン（ミュオンともいう）は、電子と同じ電荷を持ち、電子のおよそ 200 倍の質量を持つ素粒子である。素粒子、というとあまり馴染みを感じにくくなってしまいが、正電荷のものも含めてミュオンは、地表では $170 /\text{m}^2\text{s}$ 程度の比較的高いフラックスがあり、これを用いて火山や原子炉などの、大型構造物のレントゲン写真を撮像する研究がこれまでも行われている。ミュオンは、素粒子のなかでは比較的生成しやすい粒子であり、大型の加速器施設で生成したミュオンビームを用いて、正電荷ミュオンを利用した μSR 法による物性研究がこれまで多く行われてきた。近年になって、大強度陽子加速器施設（茨城県 J-PARC）のような、これまで以上に大強度のミュオンが得られる環境が整ってきており、従来主流であった物性研究に限らない、様々な応用研究が可能となってきた。本稿では、負電荷ミュオンを用いた非破壊元素分析法について、筆者が中心となって進めてきた研究の概要を述べる。

2. 負ミューオンによる元素分析法

負ミューオンは電子と同じ電荷を持っているために、物質中で原子核のクーロン場にとらわれて、ミュオン原子を形成する。ミュオン原子は、電子の代わりに一つの負ミューオンが原子軌道を作っている。負ミューオンは電子の 200 倍の質量を持つため、電子による原子軌道とは全く別物の軌道を生成する。すなわちミュオン原子軌道は電子の 200 倍の結合エネルギーを持っており、その原子軌道半径は $1/200$ である。ミュオン原子ができたとき、負ミューオンは非常に高い励起準位に存在しており、すぐさまミュオン $1s$ 軌道へと脱励起する。このとき非常に高エネルギーの特性 X 線、ミュオン特性 X 線を放出する。本稿で取り扱う負ミューオンによる元素分析法とは、このミュオン特性 X 線測定による元素分析である。

ミュオン特性 X 線による元素分析法は、これまで知られている元素分析法とは異なった様々な特徴を持っている[1-3]。まずミュオン特性 X 線のエネルギーは非常に高いために、ミュオン特性 X 線の試料自身による吸収の寄与が小さく、バルクな試料の内部の分析が可能である。例えば銅のミュオン特性 X 線のエネルギーは $K\alpha X$ 線で 1500 keV であり、1 センチメートルの銅板の裏からでも容易に検出可能である。またミュオン特性 X 線は軽元素でも高いエネルギーを持っている。例えば酸素のミュオン特性 X 線のエネルギーは 133 keV であり、XRF などの蛍光 X 線分析と比べて軽元素に対しても定量性が良く、また高真空などの条件を必要としないという利点がある。このように負ミュオンによる元素分析は、中性子放射化分析や即発ガンマ線分析と似た特徴を持っているといえる。ただし負ミュオンによる分析は、元素に対する感度という点と、ミュオンの停止位置を容易に制御できるという点で大きく異なる。負ミュオンによる元素分析では、ミュオン特性 X 線の強度、すなわち各元素への負ミュオン捕獲数が感度となるが、物質中の各元素への捕獲確率は質量あたりほぼ一定であり、感度は元素によってほとんど変化しないことが知られている。また負ミュオンは原子核ではなく原子に捕獲されるために、感度に同位体の影響は無い。ただしミュオン特性 X 線のエネルギーには同位体シフトがあり、原理的に同位体の弁別は可能である[4]。負ミュオンは、陽子と同じように物質中ではブラッグ曲線に従いエネルギーをロスし、入射エネルギーに依存した物質中のある深さに停止するため、停止位置の制御ができる。そして負ミュオンの入射エネルギーは、加速器施設のミュオン輸送の電磁石システムで比較的容易に選択でき、任意の分析深さを選ぶことが可能である。以上のように、負ミュオンによる元素分析は、あらゆる元素をほぼ同じ感度で検出でき、さらに物質内部について非破壊で位置選択的な分析が可能という、非常にユニークな特徴を持っている。

一方で当然のことながら、負ミュオンによる元素分析にも適用限界はあり、実際の試料の分析においては様々な分析法の特徴を生かした分析を行うべきである。負ミュオンによる元素分析は、あらゆる元素に対して似た感度を持っている。これは含まれるあらゆる元素は逃さず検出できる反面、微量な元素の測定には向かないということの意味している。また、ミュオンは加速器で陽子から二次的に得られる粒子であり（より正確にはパイ中間子の崩壊により得られる三次粒子）、ビーム強度に制限がある。

最初に述べたように、近年 J-PARC におけるミュオン実験施設 (MLF/MUSE) では、 $10^6/s$ を超える負ミュオンビームが利用可能となり、現実的な感度で負ミュオン元素分析が可能となってきた。本稿では、負ミュオン元素分析の一例として、日本の江戸時代に製造された小判を対象とした、非破壊かつ位置選択的な元素分析の結果を述べる[5]。

3. 天保小判の非破壊元素分布測定

ミュオン特性 X 線による元素分析の一例として、今回は 19 世紀に製造された天保小

判に注目した。江戸期の小判は、すべて見事な金光沢を持っているが、江戸時代末期となると金の含有量は 60 % 以下であり、実際にはかなりの量の銀を含む合金である。このような合金が金光沢を作る理由は、「色揚げ」と呼ばれる製造時の技法による[6]。これは小判の表面から数マイクロメートルでの深さにある銀を化学的に溶出することにより、90 % 以上の金の含有率をもつ表面層を作る方法である。本研究では、入射する負ミューオンのエネルギーを制御し、表面からマイクロメートル単位で元素の組成がどのように変化しているのかを、ミューオン特性 X 線強度より決定した。

実験は、J-PARC におけるミューオン実験施設 D2 ビームラインにおいて行った。図 1 に示すようなセットアップを構築し、負ミューオンの照射実験を行った。形成されたミューオン原子から放出されるミューオン特性 X 線を、ミューオンビームのパルスシグナルと同期させてゲルマニウム半導体検出器で測定した。本実験では表面数マイクロメートルに負ミューオンを停止させるために、非常に低いエネルギーの負ミューオンの取り出しが必要である。そこで本実験では、試料を入れた真空チェンバーをビームラインに直結し照射実験を行った。負ミューオンの入射エネルギーは 0.2~1 MeV を選定した。これは運動量に換算すると 6~15 MeV/c に相当しており、これらの負ミューオンを金の板に入射した場合、表面から 2~20 マイクロメートルの深さに停止すると見積もられる。なお、本稿では詳細を省くが、本実験で利用した 1 MeV 以下の低エネルギーの負ミューオンを利用できるのは、世界でも J-PARC だけであり、そのビームの取り出しについても多くの開発要素があった。

図 2 に 0.2 および 1 MeV の条件で負ミューオンを照射したときの、ミューオン特性 X 線スペクトルを示す。それぞれの条件において、金と銀のミューオン特性 X 線のピークが確認できる。これらの元素以外に由来するミューオン特性 X 線のピークは観測されなかったため、天保小判の主成分は金と銀であることがわかる。図 3 に 300~450 keV 領域のスペクトルの拡大図を示す。銀由来のミューオン特性 $\text{M}\alpha\text{X}$ 線 (305 keV) と金由来のミューオン特性 $\text{N}\alpha\text{X}$ 線 (400 keV) との強度比が、入射エネルギーにより明確に異なることがわかった。このことは、小判の元素組成が負ミューオンの停止深さごとに変化していることを意味している。銀由来のミューオン特性 $\text{M}\alpha\text{X}$ 線と金由来のミューオン特性 $\text{N}\alpha\text{X}$ 線の強度比について、ミューオン停止深さ依存を取ったものを図 4 に示す。ミューオン特性 X 線の強度比は表面近傍では高いが、3 マイクロメートル程度までで急激に減少し、それより深い地点では強度比の変化は見られなかった。

ミューオン特性 X 線強度比を元素の成分比に換算するために、金と銀からなる成分既知の標準合金試料に対してミューオンの照射を行い、検量線の作成を行った。図 5 にその結果を示す。金と銀の含有比に従い、ミューオン特性 X 線の強度比も単調に増加していることがわかる。この検量線から天保小判の元素成分の深度分布を図 6 のように決定した。金の含有率は、表面から 2 マイクロメートルでは 80 % 程度であるが、深さととも

に金の含有量が低下し、表面 3 マイクロメートルより深いところでは金の含有率は 57% となることがわかった。筆者らは、この実験より高い入射エネルギーである、5.7 MeV の条件で、深さ 300 マイクロメートル程度に負ミューオンを停止させる実験も行っており [7]、深部での元素組成はこの結果とも一致した。これら負ミューオンにより決定した金の含有率の変化は、破壊分析による実験データとも整合しており [11]、負ミューオンを用いることで、深さ分解能のある非破壊分析が可能であることを実証した。

4. 負ミューオンによる元素分析の更なる展開

これまで述べてきたように、ミューオン特性 X 線による元素分析法は、非破壊で物質の内部を多元素同時に定量することができる。負ミューオンを用いて元素分析を行うというアイデアは、すでに古くから指摘されてきていたが [1, 2]、実際に定量的な分析 [5, 8] や分析法としての検出限界の評価 [9] を行ったのは筆者らのはじめてである。

負ミューオンを用いた元素分析法は、分析法としても今後更なる発展が期待される。まず、より大強度の加速器の整備により、より微量な元素への分析が可能となる。例えば大阪大学核物理研究センターでは、新規の大強度ミューオン源、RCNP-MuSIC の整備が進んでいる。また本稿ではミューオン特性 X 線による元素分析法のみを扱ったが、負ミューオンはミューオン原子形成後、その一部は原子核の陽子に吸収され Z-1 励起原子核を生成する。これは脱励起の過程で中性子の放出を起し、励起核や不安定核の生成を起す。これらのガンマ線を測定することでも、同様に元素分析が可能である。実際に図 3 に示しているように、金や銀の原子核に負ミューオンが吸収された後に放出されるガンマ線が検出されており、ミューオン特性 X 線とガンマ線測定を組み合わせることで、より高感度な分析も可能になると期待される [10]。

本手法は空気中に置いた試料を、破壊することなく直接内部を見ることができる。つまり表面が錆などにより悪い状態にある場合や、メッキや塗料などがある場合、何らかの容器に密封されている場合でも適用可能である。このため本手法は、今回示したような考古学資料の分析に限らず、空気との接触により変性してしまう可能性のある地球外物質試料 [11] や、生きたままの生物試料等、内部の分析をする必要があるが壊せない試料についても適用でき、今後様々な分野で負ミューオンによる元素分析法が活用されていくことを期待したい。

5. 謝辞

本稿で紹介した研究内容は、J-PARC において、実験課題 2012A0095 および 2012B0206 実験の一環として行われたものです。この実験の共同研究者に、また大強度で高品質なミューオンビームの生成に関わった J-PARC のすべてのスタッフに深く感謝いたします。

参考文献

- [1] H. Daniel, *Nuclear-Medizin* 4 (1969) 311
- [2] Rosen, L. *Science* 173 (1971) 490
- [3] M. K. Kubo, H. Moriyama, Y. Tsuruoka, S. Sakamoto, E. Eoseto, T. Saito, K. Nishiyama, J. *Radioanal. Nucl. Chem.* 278 (2008) 777
- [4] G. Fricke, C. Bernhardt, K. Heilig, L. A. Schaller, L. Schellenberg, E. B. Shera, C. W. Dejager, *At. Data Nucl. Data Tab.*, 60(1995)177
- [5] K. Ninomiya, M. K. Kubo, T. Nagatomo, W. Higemoto, T. U. Ito, N. Kawamura, P. Strasser, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Suzuki, Y. Kobayashi, S. Sakamoto, A. Shinohara, T. Saito, *Anal. Chem.* 87, (2015) 4597
- [6] M. Ueda, I. Taguchi, T. Saito, Institute for Monetary and Economic Studies, Discussion Paper, 1996-E-26 (1996).
- [7] K. Ninomiya, T. Nagatomo, M. K. Kubo, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Saito, W. Higemoto, *J. Phys. Conf. Ser.*, 225(2010)012040
- [8] K. Ninomiya, T. Nagatomo, K. Kubo, T. U. Ito, W. Higemoto, M. Kita, K. Shinohara, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Saito, *Bull Chem Soc Jpn.*, 85 (2012) 228
- [9] K. Ninomiya, M. K. Kubo, P. Strasser, T. Nagatomo, Y. Kobayashi, K. Ishida, W. Higemoto, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Suzuki, A. Shinohara, T. Saito, *JPS Conf. Proc.*, 8(2015)033005
- [10] K. Ninomiya, M. Inagaki, M. K. Kubo, T. Nagatomo, W. Higemoto, N. Kawamura, P. Strasser, K. Shimomura, Y. Miyake, S. Sakamoto, A. Shinohara, T. Saito, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, in press
- [11] K. Terada, K. Ninomiya, T. Osawa, S. Tachibana, Y. Miyake, M. K. Kubo, N. Kawamura, W. Higemoto, A. Tsuchiyama, M. Ebihara, M. Uesugi, *Sci. Rep.* 4, (2014) 5072

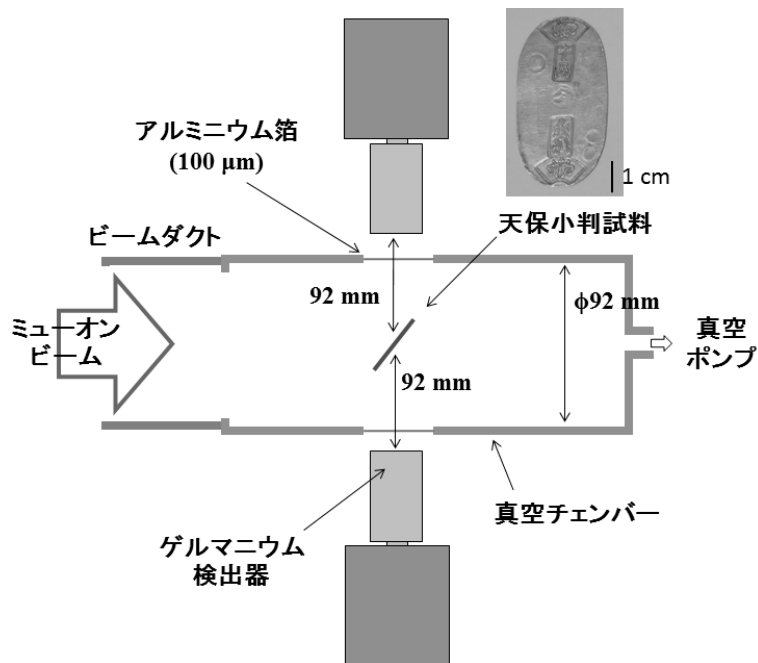


図 1 : J-PARC におけるミューオン実験施設 D2 ビームラインに設置した実験セットアップの概要

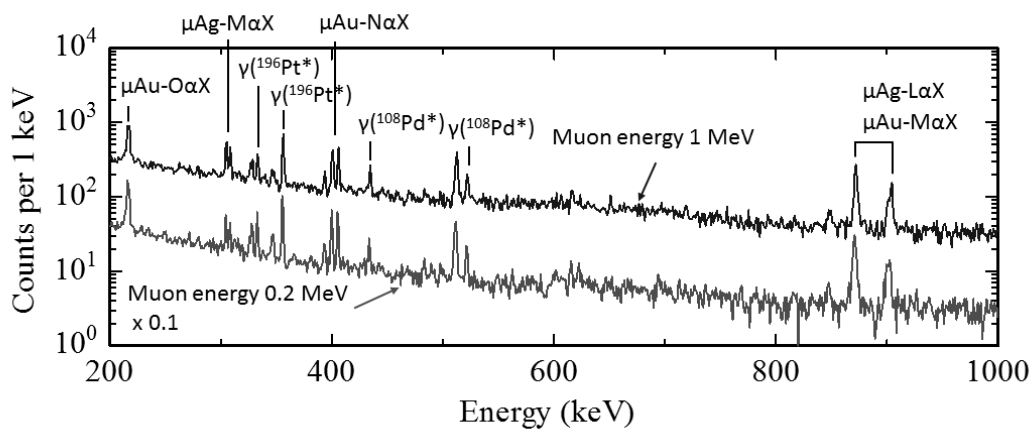


図 2 : 負ミューオンを入射エネルギー0.2 MeV および 1 MeV で天保小判試料に照射したときに得られたミューオン特性 X 線スペクトル

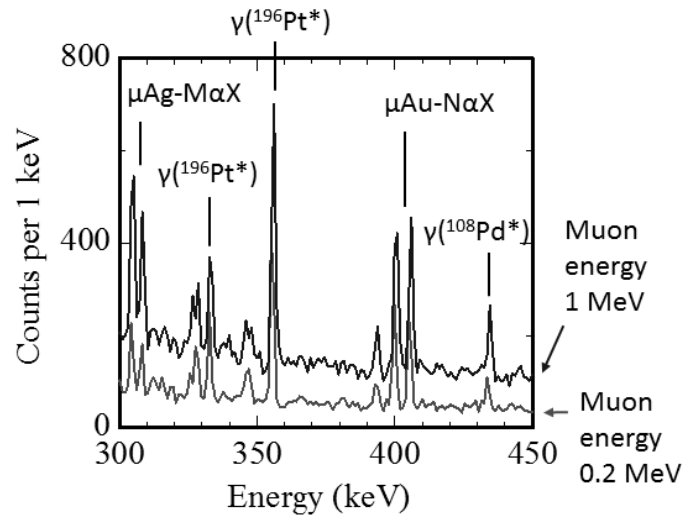


図 3 : 負ミューオンを入射エネルギー0.2 MeV および 1 MeV で天保小判試料に照射したときに得られたミューオン特性 X 線スペクトル (300~450 keV 領域の拡大図)

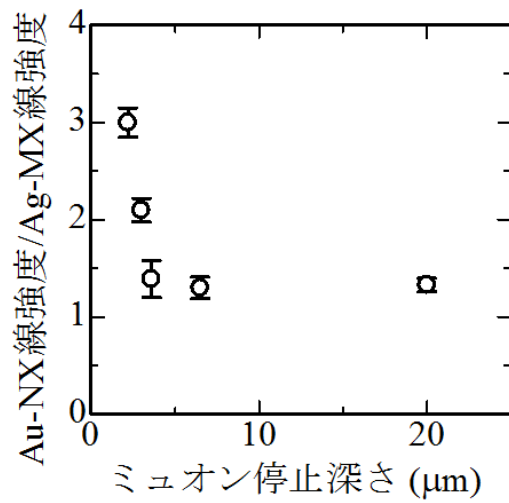


図 4 : 銀由来のミューオン特性 X 線と金由来のミューオン特性 X 線の強度比の負ミューオン入射エネルギー (ミューオン停止深さ) 依存

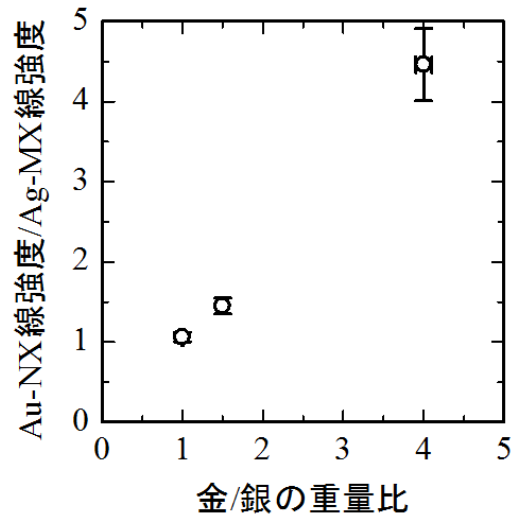


図 5 : 金を 50, 60, 80 % 含む銀との合金より得られた、ミュオン特性 X 線の強度比と元素成分比の関係

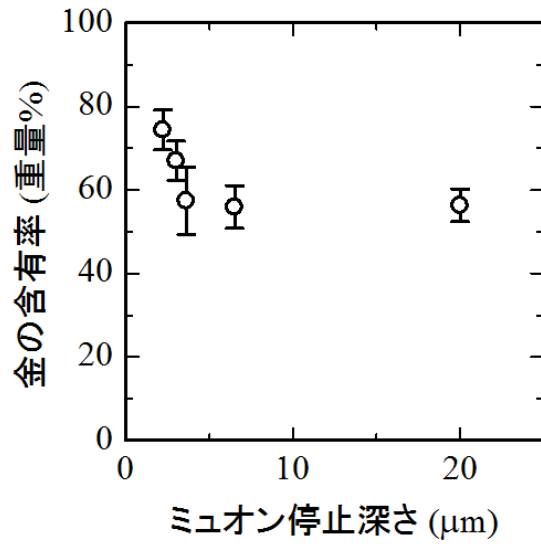


図 6 : 本実験において定量した天保小判の元素成分の深度分布