

## ミュオン：量子ビームミュオンを用いる非破壊分析

二宮和彦

### 1 ミュオンとは何か？

本稿では、一風変わった量子ビーム、ミュオン（ミューオン、ミュー粒子という言い方もある。本稿ではミュオンに統一する）を使った分析法について紹介する。まずはミュオンという粒子がどのようなものかについて簡単に説明する。

ミュオンは、世の中を作る素粒子の一つに分類される粒子である。そうすると、一気に遠い世界の話と感ずるかもしれないが、電子やあらゆる波長の光（光子）も素粒子なので、同じようなものだと思っただきたい。でもミュオンは身近にあるものではない、と思っただけかもしれない。しかし今この記事を読んでいる皆さんの手を、1秒に1個程度のミュオンが通過しており、気が付かないが実は身近に存在している素粒子である。

ミュオンの性質は、電子と非常によく似ている。電子と同じ電荷を持っており、物質との相互作用は電子と同じである。二つだけ電子と異なる性質があり、一つは電子よりもおよそ207倍の質量をもつ粒子であること、もう一つは2.2 $\mu$ 秒の寿命で崩壊してしまうことである。ただしミュオンの寿命は本稿の内容にはかかわらないので、今回は省略する。ミュオンは「207倍重い電子」である、ということのみ覚えておいていただきたい。

ミュオンは、素粒子の中では比較的軽い粒子であり、加速器等で大量に作る（といっても現在の最高の加速器を利用しても作ることでできる数はせいぜい10<sup>8</sup>/s程度である）ことができるため、量子ビームとして取り出して様々な研究に利用されている。

### 2 奇妙な原子：ミュオン原子の世界

ミュオンの説明が終わったところで、本稿において重要なもう一つのこと、ミュオン原子について説明する。原子が、正電荷を持ったとても小さくて重い原子核と、負電荷を持った軽い電子からなっていることはご存じであろう。電子は原子核の周りに原子軌道を作り、通常は結合エネルギーの大きい軌道の順に電子が満たされている。

ミュオンは重いだけで電子と相互作用が同じである。つまりミュオンも原子核と束縛状態を形成し、原子核の周りに原子軌道を作ることができる（図1）。このように、ミュオンが原子軌道を作って原子核と結びついてい

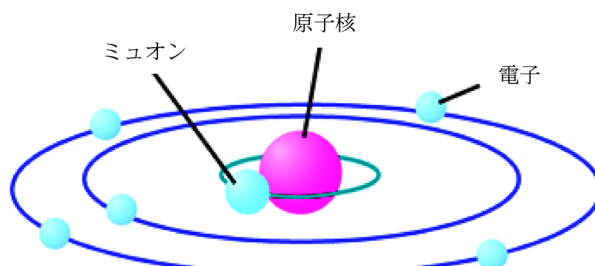


図1 ミュオン原子の模式図

る「奇妙な原子」のことを、ミュオン原子という。原子軌道に存在するミュオンは、電子と同じく量子数を持っており、1s, 2s, 2p…というようなミュオン原子軌道を形成する。

ミュオン原子軌道は、電子の作る原子軌道とは完全に独立している。すなわちミュオンの質量から、ミュオン原子軌道は電子の作る軌道よりも近似的には207倍大きい結合エネルギーを持ち、軌道の半径は207分の1になる。ミュオンのほうが電子よりも結合エネルギーの大きな、安定な軌道を作ることができるため、ミュオンを物質中に打ち込むだけでミュオンは原子軌道をつくり、ミュオン原子が形成する。

ミュオン原子には、一つしかミュオンが束縛していないため、ミュオン原子軌道のほとんどは空の状態である。捕獲されたミュオンは、当初は主量子数が20以上の非常に高い励起準位に存在し、ミュオンはすぐさまミュオン1s原子軌道に向けて脱励起を起こす。これにより、ミュオン原子からはミュオンの軌道間遷移に伴うX線、ミュオン特性X線が放出される。

### 3 ミュオン原子を使った元素分析法

ミュオン特性X線は元素に固有のエネルギー（波長）を持っているために、ミュオン特性X線の測定により元素を特定することが可能である。そして先に述べたように、ミュオンを物質に打ち込むだけでミュオン原子は形成し、結果としてミュオン特性X線が放出される。これを利用するのが本稿のメインテーマであるミュオンを使った元素分析法（MIXE: Muon Induced X-ray Emission）である。

元素分析は、多くの科学研究の分野において重要な技術の一つであり、それゆえに、多くの手法がこれまで開

発されてきている。当然、それらは感度、対象元素、対象の状態、試料の処理等で、異なる特徴を有している。ここから MIXE の特徴について述べていくことにする。

ミュオン特性 X 線は、ミュオンの大きな質量から極めてエネルギーが高い。例えば銅のミュオン特性 KX 線のエネルギーは約 1.5 MeV であり、電子遷移に伴う X 線のエネルギーである 8 keV のおよそ 200 倍である。このような高エネルギーの X 線は、物質中の透過力が高く、試料や空気による自己吸収の影響がほとんどない。これによりミュオンによる元素分析法は、空気中に置いた分析対象に対しても、物質内部にある元素についても感度良く定量することができ、さらには炭素などの軽元素などについても分析することが可能である。そしてミュオン自体が非常に透過力の高い粒子であることも大きな利点である。電子は軽いため、物質内部での散乱の影響が大きく物質内部で直進性が極めて悪いのに対して、ミュオンは入射エネルギーを選択することで、物質内部の狙った深さに停止させることができる。これによりミュオン原子が形成する深さ、すなわち分析する場所を選択することができる。次にミュオンによる元素分析法の感度について述べる。分析の感度は、ミュオン特性 X 線の強度と直接対応しており、これにはミュオン原子の形成確率が強く影響されることになる。ミュオン原子の形成確率は、元素を物質中での重量に換算するとあらゆる元素でほとんど同じ値をとるようになる。すなわち元素ごとの感度の違いはほとんど現れない。これにより元素組成が未知の物質にミュオンを打ち込んだ場合も、含まれている主要元素からのミュオン特性 X 線が存在量に応じた強度で放出されることになり、多元素同時分析が可能である。さらにミュオン特性 X 線の同位体シフトを利用することで、同位体分析を行うことも原理的に可能である。非破壊の同位体分析については本稿の後半で簡単に紹介したい。

以上の特性により、ミュオンは非破壊で、物質内部のある特定の位置について、軽元素を含めたあらゆる元素について定量することができる。このような特徴を持った方法は他にはなく、ミュオンを利用することでこれまで分析するすべがなかった試料の分析が可能となる。

ここまで、MIXE の利点のみについて述べてきたが、本稿ではあえて苦手とすることについても書いておきたい。まず、ミュオンは大型の加速器を利用して生成する必要がある。ミュオンは加速した陽子をミュオン生成標的に衝突させ、核反応により作られる。高強度のミュオンを利用するためには四方八方に飛び散ったミュオンを磁場でかき集め、ビームとして取り出す必要がある。このため原理的に小さなビームを作ることができず、現状では、数センチメートルオーダーのビームの大きさがある。大きなビームと、ミュオンビームの強度が限られていることから、1 mm サイズのものを分析する

ことは、不可能ではないがかなり難しい。また、あらゆる元素に対しておおよそ同じ感度を持つということは、逆に言うと微量元素由来のシグナルが主成分に由来するシグナルで埋もれてしまうことを意味しており、ミュオンによる元素分析法は原理的に微量元素分析に向かない。そして水素については、原理的には分析は可能であるがミュオン特性 X 線のエネルギーは 2 keV と低いので、物質内部にある水素の分析は実際にはほとんど不可能である。

以上、ミュオンによる元素分析法の利点、欠点について述べてきた。本特集でも他の量子ビームを用いた分析法が取り上げられているように、分析には多くの方法があり、分析対象に対して適切な手法を適用すべきである。MIXE は、非破壊であること、内部の分析が可能であること、軽元素の分析が可能であることが最もユニークな点である。対象によっては、空気中での分析ができることも利点として挙げられるだろう。このような特徴を持つミュオンによる元素分析法は、表面と内部で異なる組成を持つが内部を選択的に分析したい場合や、物質内部に存在する軽元素を非破壊で分析したい場合には強力なツールとなる。本稿では、それぞれの例として、江戸期の小判に対する分析と、隕石の分析について、実例を示したい。

#### 4 小判の元素深度分布分析

江戸時代に使用された小判は、金を主成分とする金貨である。小判は、何度か改鋳が行われており、形状、重量、金の濃度、製造法などが時代とともに変化している。江戸時代初期には 90 % 程度の金が含まれていた一方で、江戸の末期となると政府の厳しい財政状況も一因となって、金の濃度が下がっている。例えば、19 世紀に作られた天保小判は、過去の破壊分析により金の含有量は 57 % 程度であり、残りは銀でできた合金であることが分かっている。しかし銀が半分近く入っているような合金は、白っぽい金属であり金光沢が無いにもかかわらず、天保小判には金光沢がある。これは小判に施された表面処理に由来しており、小判は製造後表面の銀を溶かすことで表面のみ金の濃度が高い状態をつくって金光沢を得ている。この天保小判について、元素の深度分布はどのようになっているのか、また表面処理の厚みがどの程度あるのかについて、ミュオンを用いて調べることにした<sup>1)</sup>。

天保小判の分析は J-PARC ミュオン実験施設、MUSE にて実施した。J-PARC は茨城県東海村に設置された、日本原子力研究開発機構と高エネルギー加速器研究機構が共同で運用している加速器施設である。J-PARC では大強度の陽子ビームにより、世界最高強度のパルス状のミュオンビームが生成され、利用されている。MUSE で 0.2 MeV から 5.6 MeV の運動エネルギー

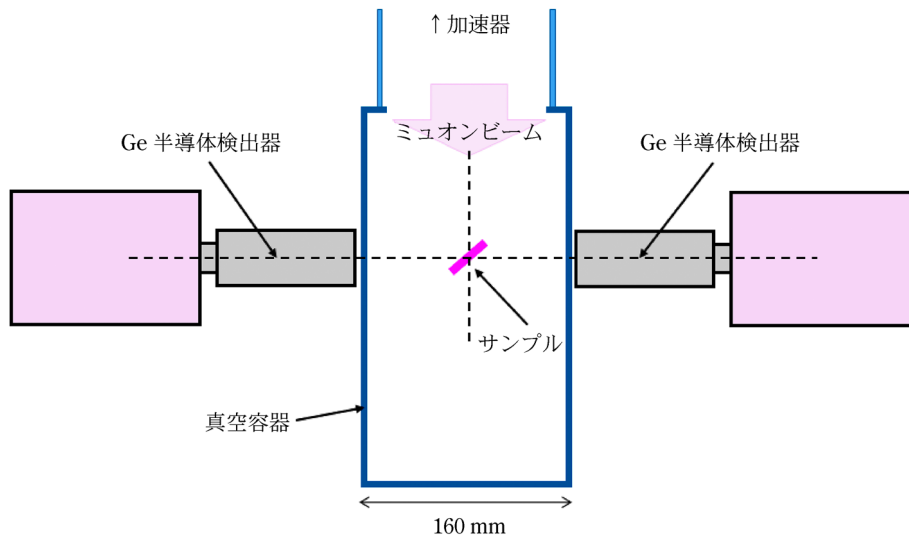


図2 天保小判分析時の実験セットアップの模式図  
 ミュオンを試料に打ち込むことで得られるミュオン特性 X 線は Ge 半導体検出器で測定した。

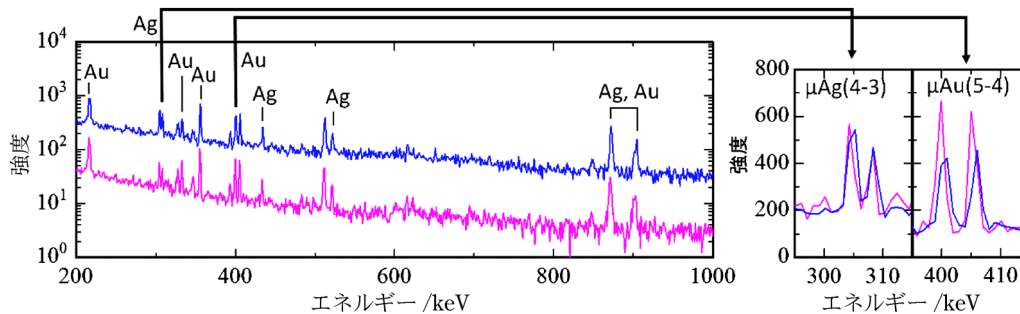


図3 天保小判にミュオンを打ち込むことで得られたミュオン特性 X 線スペクトル  
 すべてのピークは金もしくは銀に由来すると同定され、天保小判は金と銀の合金であり、他の元素はほとんど含まれていないことが分かった。金と銀のミュオン特性 X 線の強度は打ち込むミュオンのエネルギー、すなわちミュオン停止深さで異なっており、天保小判は深度により異なる元素成分比を持っていることを明確に示した。

ギーを持つミュオンを取り出し、小判に打ち込んでミュオン特性 X 線を測定した。実験のセットアップの概略図を図2に示す。これらのエネルギーのミュオンは、小判の中で2 μm から 300 μm の深さに停止すると見積もられる。なお、ミュオンを表面数マイクロメートルの領域に止めるためには、低エネルギーのミュオンを取り出すことが必要である。このような研究は過去に例がなかったが、筆者が中心となり効率的なビームの取り出し開発することで可能となった。

図3に0.2 MeV および1 MeV のエネルギーのミュオンを小判に打ち込んだ時に得られた、ミュオン特性 X 線スペクトルを示す。スペクトルから得られたピークは、すべて金、もしくは銀に由来するものであり、この小判が金と銀の合金であることが確認できた。今回は金由来のミュオン特性 X 線として NX 線（主量子数  $n=5 \rightarrow 4$  の遷移）、銀由来のものとして MX 線（主量子数  $n$

$=4 \rightarrow 3$  の遷移）に注目した。これらのミュオン特性 X 線の強度は、二つのミュオン入射エネルギー、すなわちミュオン停止深さで異なっており、小判の金と銀の含有率が深さによって変化していることが分かった。成分が既知の金と銀からなる合金に対しても同様に分析し検量線を作り、図4に示す小判の金の含有率の深度分布を得た。小判の表面付近での金の含有率は80%であり、深部では57%であった。また表面処理の厚みは3 μm であった。これらの分析値は、過去に行われた小判の破壊分析による報告ともよく一致しており、ミュオンを使うことで深さ分解能のある非破壊の元素分析が可能であることを実証した。

### 5 物質内部の軽元素元素分析

軽元素の分析は、基礎研究だけでなく産業分野においても重要視されている。例えば、鉄中の炭素量は鉄の強

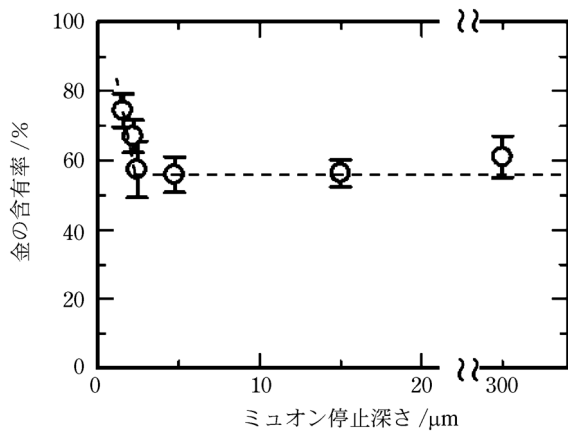


図4 ミュオンにより分析した、天保小判の金の含有率の深度分布

度に大きく影響するし、リチウムイオン電池ではその働きにおいてリチウムがどこにいるかを知ることは重要である。一方でこのような軽元素は、比較的簡便な非破壊分析法である蛍光 X 線分析では定量が難しい元素である。ここでは、ミュオンによる軽元素の分析例として、炭素質コンドライトの炭素定量の研究について紹介する<sup>2)</sup>。

炭素質コンドライトは、隕石の中でも揮発性成分を多く含んでいる種類の総称である。揮発性成分を多く含んでいるということは、過去に高温にさらされていない、つまり生成時の元素組成をのこしているということであり、太陽系の始原物質の一つとされている。そして炭素質コンドライトには、その名の通り炭素を多く含んだものがあり、さらにはアミノ酸が見つかるなど、生命の起源を調べるうえでも重要な研究対象となっている。炭素質コンドライトは貴重な隕石なので、炭素量を非破壊で調べることができれば、同じ試料を他の分析に適用することができ、重要な情報をもたらすと期待される。

炭素質コンドライトの分析は、大阪大学核物理研究センターのミュオンビームライン、MuSICにおいて行った。MuSICにミュオンビームを供給する加速器は、本来はミュオン利用ができないほど出力の低いものであるが、他のミュオン利用施設の1000倍にも達する高いビーム輸送効率を達成することにより、ミュオンの実験を可能としている。MuSICでは、J-PARCのようなパルス状のミュオンビームではなく、ミュオンが一つずつまばらに飛来する連続構造のミュオンビームが得られる。

図5に炭素質コンドライトから得られたミュオン特性 X 線スペクトルを示す。隕石の主要構成元素である、O, Mg, Si, Fe に由来するシグナルの他に、C や S といった揮発性の元素についても観測できた。ミュオン特性 X 線の強度を調べることで、元素構成比を明らかにし、この炭素質コンドライトがどのような種類のものに分類できるかについて示した。このように、MIXE に

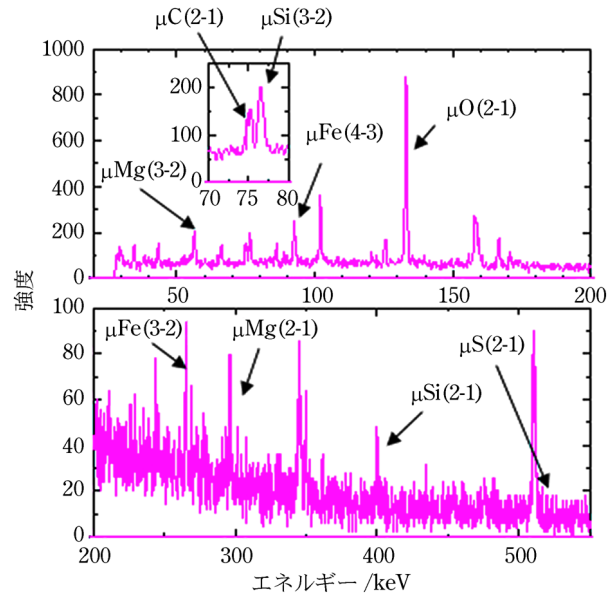


図5 炭素質コンドライト (Jbilet Winselwan 隕石) にミュオンを打ち込んだ時に得られたミュオン特性 X 線スペクトルと、主要なピークの帰属

より貴重な炭素質コンドライトを破壊することなく、その軽元素を分析することが可能であることを明らかにした。

## 6 同位体分析の可能性

同位体の情報は様々な研究分野で利用されており、例えば鉛同位体比は、考古物の産地推定や地球の年齢を調べることに利用されている。同位体分析は、実際には質量分析、すなわち破壊分析により行われている。非破壊で同位体を決定することができれば、貴重試料への適用が可能となるため、多くの応用研究での利用が期待される。

ミュオン原子軌道はとても小さく原子核に近いために、ミュオン原子軌道は原子核の正電荷分布、すなわち原子核の状態に敏感で、ミュオン特性 X 線エネルギーに大きな同位体シフトが存在することが知られている。つまりミュオン特性 X 線のエネルギーは同位体により異なっており、スペクトルの解析から非破壊の同位体分析が可能であると考えられる。そこで鉛に注目し、天然鉛の同位体比をミュオン特性 X 線強度から調べることにした。そしてミュオン照射により得られた図6に示すミュオン特性 KX 線のスペクトルから、鉛の同位体比を  $^{208}\text{Pb} : 51.1 \pm 4.7\%$ 、 $^{207}\text{Pb} : 21.3 \pm 2.9\%$ 、 $^{206}\text{Pb} : 27.6 \pm 1.3\%$  と決定した<sup>3)</sup>。精度(統計)は今後改善する必要があるが、この値は質量分析により求めた同位体比と良く一致しており、MIXEにより非破壊の同位体分析も可能であることを実証した。

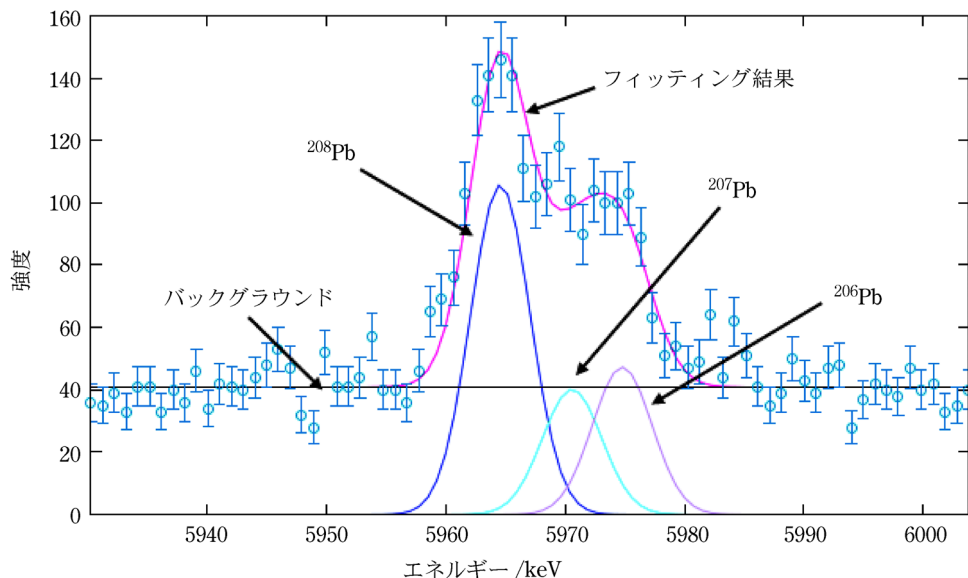


図 6 天然鉛にミュオンを打ち込んだ時に得られた、KX 線領域のミュオン特性 X 線スペクトル

同位体により異なるミュオン特性 X 線のエネルギーが得られることから、同位体についての情報を得ることができる。

## 6 まとめ

ミュオンによる元素分析法は、その原理は 50 年以上前に提案されていたものであるが、いくつかの先駆的な研究が行われたのちに忘れられていた方法である。それをここ 10 年程度の間、筆者らの研究グループが中心となって開発研究を進め、今では多くの基礎研究、応用研究が行われている。例えば本手法は、小惑星 Ryugu のサンプルリターン計画において、初期分析の一つとして適用が進められている。考古物の分析も進められており、貨幣や青銅品への適用<sup>4)5)</sup>だけでなく、開封不能のガラス瓶の内容物の分析<sup>6)</sup>も行われている。さらにはリチウムイオン電池中のリチウム金属析出を非破壊で検出する研究も行われている<sup>7)</sup>。

MIXE が可能な施設は、世界で 4 か所しかない。本稿で紹介した J-PARC、大阪大学核物理研究センターの 2 か所に加えて、スイスのポールシェラー研究所、イギリスのラザフォードアップルトン研究所で研究が行われている。そして実は日本はミュオン利用施設が複数ある、ミュオン研究の先進国である。

本稿では、ミュオンによる元素分析法について、その原理から適用例まで説明した。この方法は物質内部に存在する、軽元素を含めたあらゆる元素について、非破壊で場所選択的な分析を行うことが可能である。様々な量子ビームを利用することで、分析法はますます多様化してきている。今後、読者の皆様が様々な分析研究を行うにあたって、本稿で紹介した、日本で発展したミュオンを用いた元素分析法を「引き出し」の一つとしていただければ、筆者としては幸いである。

## 文 献

- 1) 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**, 4597 (2015).
- 2) K. Terada, A. Sato, K. Ninomiya, Y. Kawashima, K. Shimomura, G. Yoshida, Y. Kawai, T. Osawa, S. Tachibana : *Sci. Rep.*, **7**, 15478 (2017).
- 3) K. Ninomiya, T. Kudo, P. Strasser, K. Terada, Y. Kawai, M. Tampo, Y. Miyake, A. Shinohara, Kenya M. Kubo : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **320**, 801 (2019).
- 4) K. Ninomiya, T. Nagatomo, K. Kubo, T. U. Ito, W. Higemoto, M. Kita, A. Shinohara, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Saito : *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **85**, 228 (2012).
- 5) B. Hampshire, K. Butcher, K. Ishida, G. Green, D. M. Paul, A. D. Hillier : *Heritage*, **2**, 400 (2019).
- 6) K. Shimada-Takaura, K. Ninomiya, A. Sato, N. Ueda, M. Tampo, S. Takeshita, I. Umegaki, Y. Miyake, K. Takahashi : *J. Nat. Med.*, **75**, 532 (2021).
- 7) I. Umegaki, Y. Higuchi, Y. Kondo, K. Ninomiya, S. Takeshita, M. Tampo, H. Nakano, H. Oka, J. Sugiyama, M.K. Kubo, Y. Miyake : *Anal. Chem.*, **92**, 8194 (2020).



二宮和彦 (Kazuhiko NINOMIYA)

大阪大学放射線科学基盤機構 (〒560-0043 大阪府豊中市待兼山町 1-1)。大阪大学大学院理学研究科化学専攻博士後期課程修了。博士 (理学)。《現在の研究テーマ》ミュオン原子の化学、福島事故で放出された放射性同位元素の分析。《趣味》料理、歴史。

E-mail : ninomiya@rirc.osaka-u.ac.jp