

令和 5 年 9 月 15 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H03739

研究課題名(和文) 有機物を含む地球外物質の完全非破壊キャラクタリゼーション分析法の開発

研究課題名(英文) Development on non-destructive characterization of extraterrestrial materials including organics

研究代表者

寺田 健太郎 (Terada, Kentaro)

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：20263668

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,500,000円

研究成果の概要(和文)：本計画は、素粒子ミュオンを用いた非破壊分析の高度化を目指し、測定試料に照射するミュオンの入射位置を検出するマルチワイヤードリフトチャンバーをデザイン・製作した。また高純度Ge検出器とBGOコンプトン抑制器からなるX線分光器を製作した。これらを組み合わせ実験を行った結果、1mm以下の位置分解能で試料内部の元素分布の画像を得ることに成功した。またコンプトン散乱由来のホワイトノイズを約50-60%削減できたことで、Terada et al. (2014)では検出できなかった炭素質隕石Allende中の0.5%の炭素の有意なシグナルを検出することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

素粒子ミュオンを用いた特性X線分析は、軽元素を含むほぼ全ての元素を非破壊で定量分析することができる革新的な技術である。本研究により、プロジェクト開始前と比べ、空間分解能が数cmから1mmへ、検出限界が1wt%から0.1wt%へと、劇的に向上した。これにより炭素質隕石中の炭素や窒素を有意に検出できるようになり、「有機物を含む地球外物質の完全非破壊キャラクタリゼーション」への道を拓いた。この非破壊3次元分析分析法は、地球外物質にとどまらず、考古学試料や重要文化財、リチウム電池のような産業機器の分析に応用できることから、多様な学術・応用分野の発展に大きく寄与できる。

研究成果の概要(英文)：Aiming at the advancement of nondestructive analysis using elementary muons, we designed and fabricated a multi-wire drift chamber that detects the incident position of muon particles irradiating a sample to be measured. An X-ray spectrometer consisting of a high-purity Ge detector and a BGO Compton suppressor was also fabricated. As a result of experiments using the combination of these devices, we succeeded in obtaining images of the elemental distribution inside the sample with a position resolution of less than 1 mm. The white noise from Compton scattering was reduced by about 50-60%, and a significant signal of 0.5% carbon in the carbonaceous meteorite Allende, which could not be detected by Terada et al. (2014), was successfully detected.

研究分野：惑星科学

キーワード：ミュオン 特性X線分析 非破壊分析 隕石 はやぶさ2 軽元素 有機物 ミュオン

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ミュオンは電子の約 200 倍の質量を持つ不安定な素粒子である。人工的に生成した負電荷をミュオンを物質に照射すると、電子が原子核の周りを周回し原子を形成するように、負ミュオンも原子核を周回する「ミュオン原子」を形成する。このときミュオンが取り得る周回軌道のエネルギー準位は、電子とミュオンの質量比、すなわち電子の場合よりも約 200 倍高い。したがって、軌道が外殻から内殻へ遷移する際に発生する**特性 X 線も電子に比べてミュオンの方が約 200 倍高いエネルギーを持つ**。通常の蛍光 X 線分析では深さ 10 μm 程度までしか分析できないが、ミュオン由来の高エネルギー特性 X 線は透過力が高いので、数 cm の深さまで非破壊で元素分析が可能である。これがミュオン非破壊分析の最大の利点である。また蛍光 X 線分析では特性 X 線のエネルギーが低すぎて検出できない C や N などの軽元素も、ミュオンでは可能である。

このような負電荷を持ったミュオンによる元素分析の可能性は 50 年ほど前から指摘されていたが、ミュオンビームの強度や検出器の技術的な制約により実用レベルの分析に使用されるまでには至らなかった。しかし近年、**茨城県東海村の J-PARC/MUSE、及び大阪大学・核物理研究センターの MuSIC が稼働を開始し**、ミュオンビームの量と質が格段に向上したことにより、ミュオン分析が一気に実用レベルへ飛躍した。以来、研究代表者の寺田は両ミュオン施設で基礎的分析手法の開発を行ってきた。特に、軽元素にも感度をもつミュオン非破壊分析法は、希少で貴重な小惑星リュウグウの初期分析 (キャラクター化) に使えることにいち早く気づき、炭素質隕石の分析に取り組んできた (Terada et al. 2014, 2017)。その結果、CM 隕石 (Murchison, Jibulet Winselman) の炭素の非破壊定量分析に成功した。一方で、CV 隕石 (Allende) 中の炭素の検出はできなかった。これらのことから、数 cm の試料に対して検出限界は 1wt% と見積もることができる。

2. 研究の目的

右表に有機物を含む各隕石中の化学組成を示す。有機物を含む小惑星リュウグウのような地球外物質のキャラクター化を行うには、CV 隕石、CO 隕石のような 0.5% 程度の炭素の定量が必要不可欠である。また、本計画の開始前は、直径数 cm のミュオンビームを試料に照射するのみで空間分解能の概念がそもそもなかった。

元素	ミュオン X 線エネルギー (Ka)(keV)	物質中でのミュオン寿命 (ns)	崩壊電子率 (%)	組成比 (wt%)			
				CI	CM	CV	CO
C	75	2030	92	3.45	2.2	0.53	0.44
N	102	1940	89	0.318	0.152	0.008	0.009
O	134	1812	83	46.4	43.2	37	37
Mg	297	1071	49	9.7	11.5	14.3	14.5
Si	400	767	35	10.6	12.7	15.7	15.8
Fe	1253	207	9	18.2	21.3	23.5	25

そこで本計画ではミュオン非破壊分析の高度化を目指し、(1)ミュオン特性 X 線のイメー

ジング分析法の構築、および(2)低バックグラウンド化による高感度化、を開発の大きな柱とした。

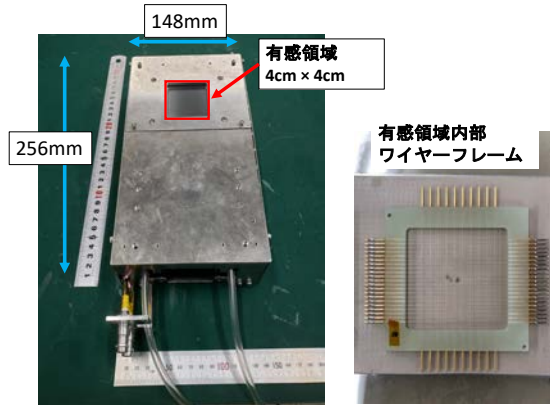
### 3. 研究の方法／装置開発

#### (1) イメージング法の開発

入射ミュオン飛跡をトラックする三段のドリフトチェンバーを、シミュレーション計算を駆使してデザインし、製作した。ドリフトチェンバーに入射したタイミングとミュオンが発生した特性X線のタイミングの同期を取ることで、エネルギー情報をもった特性X線の発生位置を特定でき、

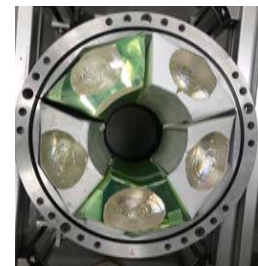
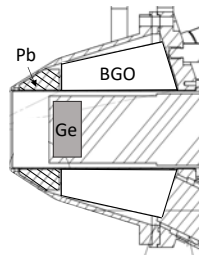
元素イメージングが可能となる。当初の予定ではスイスのポール・シェラー研究所(PSI)で大強度ミュオン連続ビームを用いて実験を行う予定であったが、2020年からの新型コロナウイルス感染拡大の影響を受け、最終年度まで実験ができなかった。そこで京都大学複合原子力科学研究所の陽子ビームを用いて、製作したドリフトチェンバーの性能評価試験を進めた。その結果、運動エネルギー7MeVの陽子の飛跡を約 $100\mu\text{m}$ の位置分解能で測定できることを確認した。実際のミュオン照射分析の空間分解能は、測定試料とドリフトチェンバーの距離できまるが、ドリフトチェンバーとサンプルの距離が2mmの時には、X方向で、Y方向共に0.1mmの精度で、サンプル内部のミュオンの停止位置が決定できることが示された(堀孝之 修士論文2020、西村由貴 修士論文2022)。

#### ■ 製作したドリフトチェンバー



#### (2) 低バックグラウンド化

炭素や窒素などの微量な軽元素のS/N比を悪くする主な原因は、酸素やケイ素、鉄などの岩石の主要元素の特性X線のコンプトン散乱成分(ホワイトノイズ)であることがわかっている。そこでGe検出器から漏れ出るコンプトン



(a) コンプトンサプレッサー付きGe検出器の断面図。 (b) コンプトンサプレッサーの上からみた写真。中心にGe検出器が配置される。

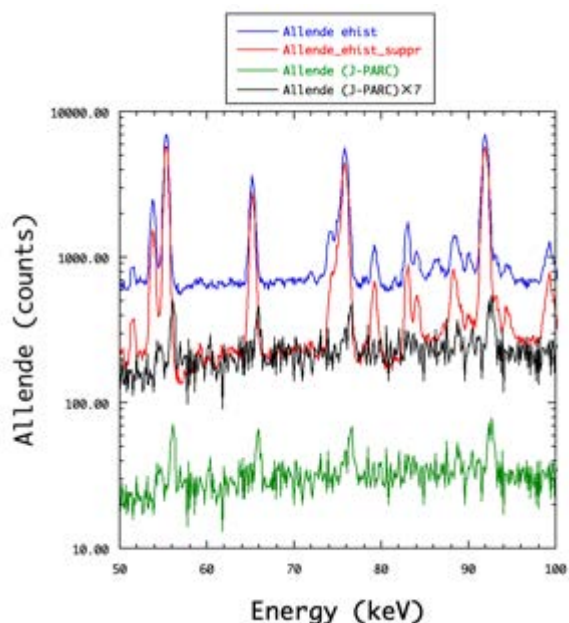
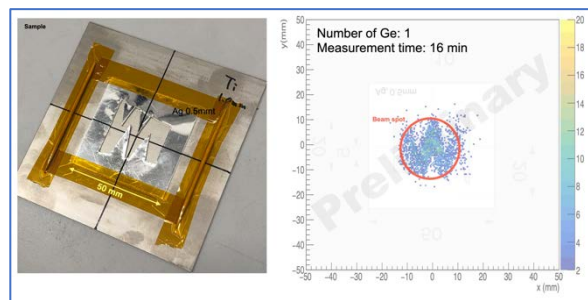
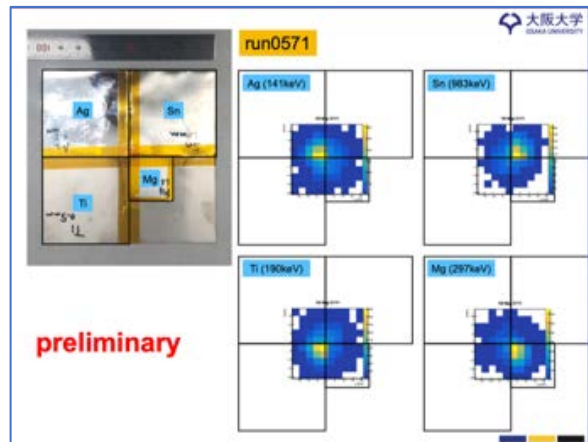
ン散乱成分をモニターし反同期をとるコンプトンサプレッサーとしてBGOシンチレーターを採用し、検出システムの設計と製作を行なった。こちらも新型コロナウイルス感染拡大の余波で、スイスPSIのビームタイムの利用ができなくなったことから、ミュオンビームの代わりに10MeVまでの幅広いガンマ線を照射することで、同システムの性能評価(直線性、エネルギー分解能、検出効率など)を行った。結果、コンプトンサプレッサーを用いることで $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 由来のコンプトン成分を50-60%削減することに成功した(水野り恵 修士論文2022)。

#### 4. 研究成果

最終年度の2022年度はスイス・PSIに上記2つのシステムを輸送し、 $\pi$ E1 ビームラインに設置された現地のゲルマニウム半導体検出器アレイ GEANT の中に組み込んだ。PSI の検出器システム、日本のゲルマニウム検出器、ドリフトチェンバーの3つそれぞれに独立のデータ収集系を構築し、共通クロック入力により時刻同期をとった。

元素マッピングについては、チタン、銀、錫、マグネシウムから構成されるデモンストレーション用の試料を作成し、ここに約 20kHz の強度で負電荷ミューオンビームを入射した。試料直前に配置したドリフトチェンバーでミューオンの入射位置を測定し、試料から放出されるミューオン特性 X 線の強度とエネルギーをゲルマニウム半導体検出器で測定する。この2つの情報を組み合わせることにより、1mm 以下の位置分解能で試料内部の元素分布画像を得ることに成功した。

低バックグラウンド化についても大きな成果が得られた。改良前と改良後のミューオン特性スペクトルを右図に示す(炭素の  $K\alpha$  線は 75keV、主成分であるケイ素の  $L\alpha$  線は 76keV 付近)。2010-2012 年に行った J-PARC のミューオンパルスビームでは、CV 隕石 (Allende, 炭素濃度 0.53wt%) から、有意な炭素シグナルは検出できなかった(緑のスペクトル。主成分のケイ素の  $L\alpha$  線のみが見えている)。一方、青線と赤線が今回の PSI のミューオン連続ビームに特性 X 線スペクトルである (赤線がコンプトンサプレッサー起動時のスペクトル)。PSI の Ge 検出器のエネルギー分解能が悪かったため炭素とケイ素のピークは完全には分離できていないが、S/N 比が劇的に向上し、炭素濃度 0.5wt% のピークを有意に検出できた。検出感度を 0.1wt% 以下に下げることができ、大気を遮断のヘリウムチェンバーを導入することができれば、CI 隕石、



CM 隕石中の窒素の定量も可能であることが示せた (PSI での分析では、大気中で測定を行ったため、窒素の濃度が 0.01wt% の CV 隕石においても大気由来の窒素のピークが確認できた)。以上の結果から、「有機物を含む地球外物質の完全非破壊キャラクタリゼーション」への道を拓いたと言える。

以上の述べてきたように、本研究によりミュオン非破壊元素分析の空間分解能、検出感度が劇的に向上した。この非破壊 3 次元分析分析法は、地球外物質にとどまらず、考古学試料や重要文化財、リチウム電池のような産業機器の分析に応用できることから、多様な学術・応用分野の発展に大きく寄与できる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 水野るり恵	4. 巻 -
2. 論文標題 ミュオン原子 X 線分光のためのコンプトンサプレッサー付き ゲルマニウム検出器の開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 東京大学修士論文	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 佐藤朗	4. 巻 52
2. 論文標題 ミュオンX線による非破壊元素・同位体比分析の進展	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 X線分析の進歩	6. 最初と最後の頁 25-32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Rurie Mizuno, Megumi Niikura, Tokihiro Ikeda, Teiichiro Matsuzaki, Shintaro Go, Takeshi Y Saito, Shin' ichiro Michimasa, Hiroyoshi Sakurai	4. 巻 ptad055
2. 論文標題 Response of germanium detectors for high-energy $\gamma$ -rays by $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$ at $E_p = 992$ keV	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Progress of Theoretical and Experimental Physics	6. 最初と最後の頁 ptad055
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Nakamura T. et al.	4. 巻 379
2. 論文標題 Formation and evolution of carbonaceous asteroid Ryugu: Direct evidence from returned samples	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science	6. 最初と最後の頁 Issue 6634
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/science.abn8671	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 佐藤朗	4. 巻 01(3)
2. 論文標題 連続状ミュオン施設におけるミュオン非破壊分析	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 金属	6. 最初と最後の頁 49-55
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sayani Biswas, et. al.	4. 巻 11
2. 論文標題 The non-destructive investigation of a late antique knob bow fibula (Bugelknopffibel) from Kaiseraugst/CH using Muon Induced X-ray Emission (MIXE)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Heritage Science volume	6. 最初と最後の頁 43
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 堀孝之	4. 巻 -
2. 論文標題 DC ミュオンビームによる元素マッピングに 向けたドリフトチェンバーの開発	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 大阪大学 修士論文	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 室田雄太	4. 巻 -
2. 論文標題 宇宙線によるミュオン特性 X 線 元素分析装置の開発	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 大阪大学 修士論文	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 西村由貴	4. 巻 -
2. 論文標題 ミュオン X 線分析元素マッピング装置の陽子ビームによる評価試験	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 大阪大学 修士論文	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 寺田健太郎、二宮和彦	4. 巻 57
2. 論文標題 ミュオン非破壊分析で見えてきた小惑星リュウグウの素性	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 日本中間子科学会誌「めそん」	6. 最初と最後の頁 4-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計29件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Terada K. et al.
2. 発表標題 DEVELOPMENT ON NON-DESTRUCTIVE MUONIC X-RAY ANALYSIS OF CARBONACEOUS CHONDRITES: FEASIBILITY TEST FOR RETURNED SAMPLES FROM C-TYPE ASTEROIDS
3. 学会等名 The 82nd Annual Meeting of the Meteoritical Society (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Terada K.
2. 発表標題 Advanced Analytical methods for Planetary materials
3. 学会等名 The 4th International Conference on Lunar and Deep Space Exploration (LDSE) (国際学会)
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 Terada K.
2. 発表標題 Advanced analytical methods for planetary science
3. 学会等名 KOREA BASIC SCIENCE INSTITUTE seminar (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Terada K.
2. 発表標題 KAGUYA Observation of the terrestrial Oxygen transported to the Moon via "Earth Wind"
3. 学会等名 Korea Polar Research Institute (KOPRI) seminar (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 堀孝之
2. 発表標題 低エネルギーミューオンの飛跡検出に向けた高空間分解能ガスチェンバーの開発
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 堀孝之
2. 発表標題 低エネルギーミューオンの飛跡検出に向けた高空間分解能ガスチェンバーの開発
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 堀孝之
2. 発表標題 低エネルギーミュオンの 飛跡検出に向けた高空間分解能 ガス検出器の開発 2
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Akira Sato
2. 発表標題 The Continuous Beam Muon Source in Japan, RCNP-MuSIC
3. 学会等名 ICABU2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 大阪大学RCNP-MuSIC施設とミュオン分析
3. 学会等名 第2回「文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 大阪大学・核物理研究センターDCミュオン施設 MuSICの進展
3. 学会等名 第10回「Muon科学と加速器研究」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西村由貴、他
2. 発表標題 DCミュオンビームによる元素マッピングに向けたドリフトチェンバーの開発(3)
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 室田雄太、他
2. 発表標題 宇宙線ミュオンを用いた特性X線分析装置の開発
3. 学会等名 日本地球化学会第67回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 大阪大学RCNP-MuSIC施設とミュオン非破壊分析の可能性
3. 学会等名 第3回「文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 ミュオンによる非破壊元素・同位体分析の進展
3. 学会等名 第56回 X線分析討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 連続ミュオンによるミュオン非破壊分析の進展
3. 学会等名 第4回「文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akira Sato
2. 発表標題 Development of an in-museum non-destructive elemental analysis with cosmic-ray muons for cultural heritage
3. 学会等名 一般社団法人日本鉄鋼協会 第181回春季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 大阪大学・核物理研究センター連続状ミュオンビーム施設RCNP-MuSIC
3. 学会等名 第12回「Muon科学と加速器研究」研究会/第6回文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西村由貴
2. 発表標題 ミュオンX線元素マッピング装置の開発
3. 学会等名 第12回「Muon科学と加速器研究」研究会/第6回文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 RCNP-MuSIC連続ミュオンビームによる実験
3. 学会等名 RCNP研究会 「ミュオンX線 線 ~分光非破壊分析、化学、原子核物理への新展開~」 / 「ミュオン原子核捕獲反応による原子核関連研究の可能性」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 大阪大学・核物理研究センター連続状ミュオンビーム施設RCNP-MuSIC
3. 学会等名 第7回 文理融合シンポジウム 量子ビームで歴史を探る -加速器が紡ぐ文理融合の地平-
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 連続状ミュオンビームの将来と可能性- RCNP-MuSIC -
3. 学会等名 中間子科学の将来討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤朗
2. 発表標題 阪大 RCNP-MuSIC
3. 学会等名 第13回Muon科学と加速器研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Akira Sato
2. 発表標題 DC Muon Facility RCNP-MuSIC
3. 学会等名 Workshop on muon elemental analysis research 2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 新倉潤
2. 発表標題 ミュオニクス
3. 学会等名 若手放談会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 水野るり恵
2. 発表標題 ミュオン原子 X線分光のためのコンプトンサプレッサー付き Ge 検出器開発
3. 学会等名 日本物理学会 2021 年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水野るり恵
2. 発表標題 Ge 検出器を用いたミュオン原子 X線分光のための光子検出システムの性能評価
3. 学会等名 Muon科学と加速器研究
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 水野るり恵
2. 発表標題 ミュオン原子 X 線分光のための Ge検出器を用いた広ダイナミックレンジ光子検出システムの性能評価
3. 学会等名 日本物理学会第 77 回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 新倉潤
2. 発表標題 ミュオン原子 X 線測定のための検出器開発
3. 学会等名 RCNP 研究会「ミュオン X 線 線分光」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Mizuno
2. 発表標題 Evaluation of muonic X-ray spectrometer with Compton suppressors in a wide energy range
3. 学会等名 Workshop for muon elemental analysis research
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

小惑星リュウグウの石の平均的元素組成を決定 素粒子ミュオンを用いた非破壊の元素分析に成功  
[https://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2022/20220923\\_2](https://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2022/20220923_2)

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	佐藤 朗  (Sato Akira)  (40362610)	大阪大学・理学研究科・助教    (14401)	
研究分担者	友野 大  (Tomono Dai)  (40415245)	大阪大学・核物理研究センター・特任助教(常勤)    (14401)	
研究分担者	新倉 潤  (Niikura Jun)  (50644720)	国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・協力研究員    (82401)	
研究分担者	河井 洋輔  (Kawai Yosuke)  (90726671)	大阪大学・理学研究科・助教    (14401)	

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
スイス	パウル・シェラー研究所		