

平成 28 年 6 月 5 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800213

研究課題名(和文) 低圧気体を用いたミュオン転移過程における分子構造の影響の検証

研究課題名(英文) Molecular effect on muon transfer process for carbon containing molecules

研究代表者

二宮 和彦 (NINOMIYA, Kazuhiko)

大阪大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：90512905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ミュオン水素原子からCO、CO<sub>2</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>分子へのミュオン転移による、ミュオンの捕獲過程を詳細に調べた。低圧の気体試料を用いた実験では、転移過程における分子構造の影響は小さいことが分かった。またC<sub>6</sub>H<sub>6</sub>およびC<sub>6</sub>H<sub>12</sub>試料では、液体試料に対する転移現象との比較を行った。液体試料では希薄気体試料とは異なり、C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>分子のC原子に対する転移速度が、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>分子の1.5倍程度あることがわかり、転移現象における化学的影響の違いを定量的に明らかにした。このことから励起状態にあるミュオン水素原子の転移現象において、化学的影響が存在していると結論付けた。

研究成果の概要(英文)：In this study, muon transfer processes for CO, CO<sub>2</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub> and C<sub>6</sub>H<sub>12</sub> molecules were studied at the muon science facility (MUSE) in J-PARC. The muon transfer rates for carbon atom of these molecules were determined from muonic X-ray intensities of muonic carbon atom. There are no differences on muon transfer rates among these molecules in low pressure gaseous condition. On the other hand, we found muon transfer rate for carbon atom in C<sub>6</sub>H<sub>6</sub> molecule is 1.5 times higher than that in C<sub>6</sub>H<sub>12</sub> molecule in high density liquid sample condition. From these results, we conclude that molecular effect on muon transfer process was firstly observed in the prompt muon transfer phenomena that derived from excited muonic hydrogen atoms.

研究分野：ミュオン科学

キーワード：ミュオン、ミュオン原子、ミュオン捕獲過程、ミュオン特性X線、ミュオン転移過程、ミュオン初期状態、エキゾチック原子

### 1. 研究開始当初の背景

原子核と電子以外の粒子を構成物に持つ原子系は、総称してエキゾチック原子と呼ばれている。本研究で研究対象とするミュオン原子は、電子の200倍重い素粒子であるミュオンが、電子の代わりに原子軌道を作っている原子である。ミュオンは電子よりもはるかに大きな結合エネルギーの原子軌道を作るので、ミュオン原子は物質中にミュオンを停止させるだけで生成する。

ミュオン原子が生成するとき、ミュオンの捕獲現象は価電子の状態に影響される。実際にミュオンを捕獲する原子の化学的環境によりミュオンの捕獲現象が異なることが知られている [Phys. Rev. A, 27, 950(1983), Nucl. Phys., A312, 419(1978)]。具体的には分子中のどの原子に捕獲されるのかという捕獲確率、そしてミュオンが捕獲される準位(主量子数と角運動量子数)が変化する。ミュオン原子が形成後に放出する、高エネルギーのミュオン特性X線を測定することにより、捕獲確率や捕獲される準位についての情報を得ることができる。私はこれまで得た科研費研究(若手B、H24-25、24740279)において、ミュオンを捕獲する分子の電子の状態と、ミュオンの捕獲初期の状態を関連付けて、初めて定量的な議論をすることに成功した。

これに対して、ミュオン転移過程と呼ばれる、水素を含有する系でのみ起こる特殊なミュオン原子形成過程がある。ミュオンが水素原子に捕獲された場合、ミュオンと陽子のみからなるミュオン水素原子が生成する。この場合、原子系に電子を含まないために、ミュオン水素原子は通常の水素原子の1/200の大きさしかない小さな原子となる。これは中性子のように物質を容易に拡散することができる。そしてミュオン水素原子が物質中の他のより重い原子核の近くに到達すると、ミュオンが他の原子のより大きな束縛状態へと移動する。この現象はミュオン転移と呼ばれている。

これまでミュオン原子形成過程に関する研究は多く行われてきた。我々の先の研究により、ミュオン捕獲における電子の影響について定量的な議論を行うことが可能となった。それに対して、ミュオン転移過程における電子の影響は明らかとなっていない。この原因として、水素を含有する系におけるミュオン原子の形成過程においては、3つのミュオン原子形成過程が混在しているという難しさが挙げられる。すなわち直接重い元素にミュオンを捕獲する直接捕獲過程、一度ミュオン水素原子が形成し、これがその水素と結合していた原子へと転移する内部転移過程、さらには他の分子との衝突過程を通して重い原子へと転移する外部転移過程の3つのプロセスである。

ミュオン転移過程は、素過程としてはミュオン水素原子と他の原子との低エネルギー

の散乱現象であり、これを理解することは基礎物理の観点からも興味深く、また地表面の宇宙線ミュオンの強度を考えた場合、このような物質とミュオンの相互作用のデータは、非常に重要な基礎的知見をもたらすものである。

### 2. 研究の目的

本研究の最終的な目標は、ミュオン転移における化学的影響、分子の構造による変化を明らかにすることである。このために本研究では、特にミュオンを捕獲する分子の立体的な構造に注目して、CとOからなる単純な分子を対象として、ミュオンの転移過程の観察を行った。ミュオン原子形成後に放出されるミュオン特性X線の測定を行うことで、ミュオンがどのような速度で転移過程を起こすのか(転移捕獲確率)を調べることを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、直接捕獲、内部転移、外部転移という3つのプロセスがあり、複雑な現象となるミュオン原子形成過程を詳細に調べるために、新たに3つのアプローチを採用した。具体的には、(1)孤立系と見なすことができる希薄な試料を使用すること、(2)CとOという、軽い特定の原子に注目して、構造の異なる分子を系統的に測定すること、(3)希薄試料にミュオンを効率よく停止させるために低エネルギーのミュオンを利用すること、で実験を行った。それぞれについて詳細な説明を下記に行う。

#### (1) 孤立系と見なせる希薄試料の使用

これまでのミュオン転移の研究においては、そのほとんどが液体や高圧気体などの高密度の環境で行われてきた。本研究でも対照実験としてそのような条件での実験は行ったが、本研究では特にミュオン原子が孤立系と見なせる希薄試料におけるミュオン転移現象に注目した。

このような条件での実験は、実験的な難しさはあるがいくつかの利点がある。まず分子間のミュオン転移(外部転移)は、ミュオン水素原子と他の分子の衝突過程により律速される。つまり希薄な低密度試料を利用することで、速度の速い直接捕獲過程や内部転移と、外部転移の区別が可能となる。また、測定のうえでも希薄試料は有利である。希薄試料においてはミュオン原子が形成後孤立系の状態にあるために、他の分子との衝突による電子の再充填を無視することができる。つまりミュオン特性X線放出におけるオージェ過程との競合を無視することができる。

#### (2) 軽元素のみからなる分子群に注目

これまでの転移過程に関する研究とは異なり、本研究ではCとOからなる非常に単純な分子群を対象とした実験を行う。これら

の軽元素は、その構造や電子の空間的な存在状態、さらには束縛エネルギーなどで、分子軌道計算等で理論的なサポートを得やすいという利点がある。

### (3) 低エネルギーミュオンビームの利用

低密度の希薄な試料にミュオンを停止させるためには、高品質の低エネルギーのミュオンビームが必要となる。これまでこのようなビームの利用はできなかったが、実験を実施する大強度陽子加速器施設において、私が中心となって低エネルギーミュオンビームの利用環境の整備を行い、このような新たなアプローチによる実験をすることが可能となった。

以上の実験計画により、本研究では1%程度の希薄なCO、CO<sub>2</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>を含むH<sub>2</sub>との混合気体試料に対するミュオン照射実験を行った。これにより外部転移のみの寄与を取り出すことができた。また、C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>に関しては高密度条件の対照実験として、液体試料についての実験データについても検討した。

## 4. 研究成果

本研究では、H27年度はJ-PARCにおける加速器トラブルにより加速器実験を行うことができなかった。このため当初予定していた様々な構造を持つ炭化水素でのミュオン転移現象の観察ができなかったが、限られたマシンタイムのなかで得られた知見を反映した応用研究(元素分析実験)についても推進し、研究全体で査読つき論文として8件、国際学会の招待講演1件、国際学会での発表7件を含む、計16件の学会発表の成果を得ることができた。それぞれの研究成果について下記に述べる。

### (1) ミュオン転移過程における化学効果

#### 【投稿論文の成果概要】

CO<sub>2</sub>を1%含むH<sub>2</sub>との混合気体試料1気圧に対して、ミュオンを照射したときに得られたミュオン特性X線スペクトルを図1に示す。

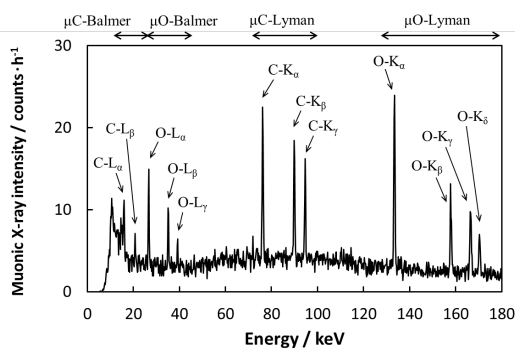


図1: H<sub>2</sub>+CO<sub>2</sub>(1%)試料に対するミュオン照射により得られたスペクトル

ミュオンが一度水素に捕獲され、外部転移

過程によりCおよびO原子に移動した後に放出されたミュオン特性X線が明瞭に観察された。ミュオン特性X線スペクトルでは、C原子ではK以上の、O原子ではK以上の繊維が確認されなかったことから、ミュオン転移過程においてはC原子へは主量子数n=4、O原子にはn=5より高い励起状態への捕獲現象が起こっていないことが明らかとなった。

これらのスペクトルの解析を行い、ミュオンの転移速度の比、すなわちミュオン捕獲比の導出を行ったところ、表1に示す結果が得られた。同一の実験系で得られた直接捕獲過程の捕獲比についても同様に表1に示す。

表1: 転移過程と直接捕獲過程でのミュオン捕獲比A(C/O)の比較

Sample	A(C/O)
H <sub>2</sub> +CO	0.649 ± 0.032
H <sub>2</sub> +CO <sub>2</sub>	0.656 ± 0.036
CO	0.753 ± 0.021
CO <sub>2</sub>	0.549 ± 0.023

ミュオンの捕獲比において、COとCO<sub>2</sub>で直接捕獲では明瞭の違いが見られたが、転移過程(H<sub>2</sub>+COとH<sub>2</sub>+CO<sub>2</sub>)においては分子による違いが見られなかった。また転移過程における捕獲比は、直接捕獲過程の捕獲比の値とは異なっており、転移過程においては別の化学的な要因がミュオン捕獲に関与していることが明らかとなった。

炭化水素であるC<sub>6</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>へのミュオン転移過程についても、これまで得られなかった知見が得られた。低密度の気体試料の実験においては、C原子に対する外部転移によるミュオン転移速度はC<sub>6</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>の二つの分子で有意な違いが見られなかった。一方で液体を試料とした高密度試料では、C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>分子のC原子に対する転移速度が、C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>分子のそれの1.5倍の大きさがあるということが明らかとなった。高密度の試料においてのみこのような転移速度の違いがあるということは、励起状態のミュオン水素のような寿命の短いものからの転移過程において、化学的な影響があることを示唆している。このような現象は、ミュオン原子と同じようなエキゾチック原子である、パイオン原子の転移過程でも報告されている(Hyperfine Interactions, 106, (1997) 301)。

### (2) ミュオン捕獲現象を利用した元素分析

#### 【投稿論文の成果概要】

本研究課題で得られた、ミュオン原子形成における化学的な影響の知見をベースとした応用研究として、ミュオン原子形成後に放出される元素分析法の開発を行った。この手法は、蛍光X線分析のようなX線分析を、ミ

ミュオンの入射、ミュオン原子形成により放出されるミュオン特性 X 線で行うというアイデアをもとにしている。このアイデア自体は古いが (Science 173 (1971) 490) 我々が初めて実用的な分析実験を行うにいたった。この方法は、ミュオンの運動量を選択することにより、ミュオンの停止深さを制御できること、ミュオン特性 X 線は非常に高エネルギーであるため、物質内を吸収されずに検出可能であること、軽元素であっても高エネルギーの X 線が利用でき定量性が良いこと、という3つの大きな特徴がある。すなわち非破壊で三次元的な元素分析が可能であり、考古学試料や貴重試料の分析に強力なツールとなる可能性がある。

我々は実際に考古学試料や、貴重試料として地球外物質を模擬して隕石に対する元素分析を実施した。具体的な分析実験の一例として、Brown Field 隕石に対するミュオン特性 X 線スペクトルを図 2 に示す。

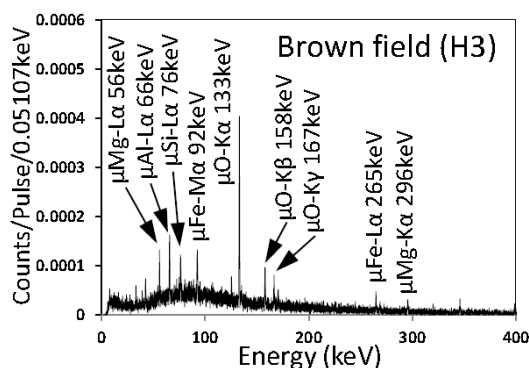


図 2 : Brown Field 隕石試料から得られたミュオン特性 X 線スペクトル

ミュオン特性 X 線スペクトルからは、マグネシウム、シリコン、鉄、酸素といった元素のピークが明瞭に観察された。このことは隕石がこれらの元素から成っているということを直接的に示しており、実際この結果は破壊分析による結果とも完全に整合している。このほかにも位置選択的な分析を行うことで、考古学試料において表面から元素組成が変化していくことを、初めて非破壊で調べることができた。これらの成果は、一般紙【投稿論文】にも掲載され高い評価を得た。

## 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 8 件)

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

"Nondestructive Elemental Depth-Profiling Analysis by Muonic X-ray Measurement"  
Anal. Chem., 87 (2015) 4597-4600  
10.1021/acs.analchem.5b01169 (査読有)

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  
"Negative muon induced elemental analysis by muonic X-ray and prompt gamma-ray measurements"  
J. Radioanal. Nucl. Chem., in press  
10.1007/s10967-016-4772-y (査読有)

M. Inagaki, K. Ninomiya, K. Fujihara, G. Yoshida, Y. Kasamatsu, M. K. Kubo, W. Higemoto, N. Kawamura, T. Nagatomo, Y. Miyake, T. Miura, A. Shinohara  
"Muonic Atom Formation by Muon Transfer Process in C<sub>6</sub>H<sub>6</sub> or C<sub>6</sub>H<sub>12</sub> and CCl<sub>4</sub> Mixtures"  
JPS Conf. Proc., 8(2015)033004  
10.7566/JPSCP.8.033004 (査読有)

T. Osawa, K. Ninomiya, G. Yoshida, M. Inagaki, M. K. Kubo, N. Kawamura, Y. Miyake  
"Development of an Elemental Analysis System using Negative Muon Beam"  
JPS Conf. Proc., 8(2015)025003  
10.7566/JPSCP.8.025003 (査読有)

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  
"Elemental Analysis of Bronze Artifacts by Muonic X-ray Spectroscopy"  
JPS Conf. Proc., 8(2015)033005  
10.7566/JPSCP.8.033005 (査読有)

G. Yoshida, K. Ninomiya, M. Inagaki, W. Higemoto, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura, K. M. Kubo, A. Shinohara  
"Chemical Environmental Effects on Muon Transfer Process in Low Pressure Mixture Gases; H<sub>2</sub> + CO and H<sub>2</sub> + CO<sub>2</sub>"  
Radioisotopes 65 113-118 (2016)  
10.3769/radioisotopes.65.113 (査読有)

G. Yoshida, K. Ninomiya, T. U. Ito, W. Higemoto, T. Nagatomo, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura, K. M. Kubo, A. Shinohara  
"Muon capture probability of carbon and oxygen for CO, CO<sub>2</sub>, and COS under low-pressure gas conditions"  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 303 (2015) 1277-1281  
(査読有)

二宮和彦

“素粒子ミュオンを使った新しい元素分析法  
- 非破壊で三次元的に元素分布を測定する”  
化学、Vol.70 No.10、2015、 p49-52 (依頼原稿)

[学会発表](計 16件)

K. Ninomiya

"Negative muon capture processes for low pressure gaseous molecules"  
2015 International Chemical Congress of the Pacific Basin Societies (PacifiChem 2015)  
Honolulu, Hawaii, USA, December 15-20, 2015  
(招待講演)

K. Ninomiya; M. K. Kubo; T. Nagatomo; W. Higemoto; N. Kawamura; P. Strasser; K. Shimomura; Y. Miyake; S. Sakamoto; A. Shinohara; T. Saito  
"Non-destructive and three-dimensional bulk analysis using high energy muonic X-rays for archeological artifacts"  
2015 International Chemical Congress of the Pacific Basin Societies (PacifiChem 2015)  
Honolulu, Hawaii, USA, December 15-20, 2015

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  
"Negative muon induced elemental analysis by muonic X-ray and prompt gamma-ray measurements"  
14th International Conference on Modern Trends in Activation Analysis  
Delft, The Netherlands, August 23-28, 2015

二宮和彦

“負ミュオンを用いた非破壊元素分析”  
日本原子力学会「2016年春の年会」  
仙台、2016/3/26-28 (依頼講演)

稲垣誠、二宮和彦、吉田剛、佐藤朗、川島祥孝、松本侑樹、河野靖典、中沢遊、高久圭二、下村浩一郎、髭本巨、篠原厚  
“RCNP-MuSIC ミュオン源を用いたミュオン特性 X 線測定”  
2015 日本放射化学学会年会・第 59 回 放射化学討論会、仙台、2015/9/25-2015/9/27

稲垣 誠、吉田 剛、二宮 和彦、篠原 厚  
“ミュオン散乱の全断面積測定に向けた装置開発”  
原子衝突学会第 40 回年会、八王子、2015 年 9 月 28-30

稲垣 誠・二宮 和彦・藤原 一哉・吉田 剛・笠松 良崇・久保 謙哉・髭本 巨・河村 成肇・長友 傑・三宅 康博・三浦 太一・篠原 厚  
“ベンゼンおよびシクロヘキサン分子におけ

るミュオン原子形成過程”

日本化学会 第 96 春季年会、2016 年 3 月 24-27 京田辺

G. Yoshida, K. Ninomiya, M. Inagaki, W. Higemoto, T. U. Ito, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura, K. M. Kubo and A. Shinohara  
“Muonic atom formation processes for carbon containing molecules”  
The XXIX International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC 2015)、2015 年 7 月 22-28 Toledo Spain

吉田 剛、二宮 和彦、稲垣 誠、篠原 厚、髭本 巨、河村 成肇、下村 浩一郎、三宅 康博、三浦 太一、久保謙哉  
“C,O 原子に対するミュオン捕獲過程の化学構造による変化”  
日本化学会 第 96 春季年会、2016 年 3 月 24-27 京田辺

M. Inagaki, K. Fujihara, G. Yoshida, K. Ninomiya, Y. Kasamatsu, M. K. Kubo, W. Higemoto, N. Kawamura, T. Nagatomo, Y. Miyake, T. Miura, A. Shinohara, Muon Capture  
“Processes for Carbon Atoms in C6H6and C6H12 through the Muon Transfer Processes”  
The 2nd International Symposium on Science at J-PARC (J-PARC 2014)、2014/07/14、つくば

稲垣誠、吉田剛、二宮和彦、久保謙哉、髭本巨、河村成肇、三宅康博、三浦太一、篠原厚  
“気体ベンゼンおよびシクロヘキサンに対するミュオン水素原子からのミュオン転移過程”  
第 58 回放射化学討論会、2014 年 09 月 12 日、名古屋

M. Inagaki, K. Fujihara, G. Yoshida, K. Ninomiya, Y. Kasamatsu, M. K. Kubo, W. Higemoto, N. Kawamura, T. Nagatomo, Y. Miyake, T. Miura, A. Shinohara  
“Muonic atom formation by muon transfer process in benzene and cyclohexane”  
11th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP11)、2014/10/08、仙台

G. Yoshida, K. Ninomiya, M. Inagaki, T.U. Ito, W. Higemoto, T. Nagatomo, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura, M.K. Kubo, and A. Shinohara  
“Muonic atom formation on low pressure carbon oxide samples by using low energy negative muon beam”  
The 2nd International Symposium on Science at J-PARC 2014、2014 年 7 月 14 日、つくば

吉田剛、二宮和彦、稲垣誠、伊藤孝、髭本  
巨、長友傑、ストラッサー・パトリック、河  
村成肇、下村浩一郎、三宅康博、三浦太一、  
久保謙哉、篠原厚  
“低圧の  $H_2+CO$  および  $H_2+CO_2$  混合ガスにお  
けるミュオン転移過程の研究”  
第 58 回放射化学討論会、2014 年 9 月 12 日、  
名古屋

G. Yoshida, K. Ninomiya, M. Inagaki, T.U. Ito,  
W. Higemoto, T. Nagatomo, P. Strasser, N.  
Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura,  
M.K. Kubo, and A. Shinohara  
“Initial quantum states of captured muon for CO,  
CO<sub>2</sub> and COS molecules”  
11th Asian International Seminar on Atomic and  
Molecular Physics (AISAMP11) 、2014 年 10 月  
8 日、仙台

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

二宮 和彦 ( NINOMIYA Kazuhiko )  
大阪大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号 : 90512905