

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740279

研究課題名(和文) 軽元素に捕獲された負ミュオン初期状態の精密決定

研究課題名(英文) Determination of initial states of captured muons for light elements

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) 2,000,000円、(間接経費) 600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、低圧のCO、CO₂、COSの気体試料に負ミュオンを照射し、ミュオン特性X線線を精密に測定することで、C原子、O原子への負ミュオンの捕獲現象が、分子によってどのように変化するのかについて系統的に調べた。それぞれの分子においてC原子とO原子にどのような確率で、どのような量子状態で負ミュオンが捕獲されているかを調べ、その結果CO分子のC原子上に存在する非共有電子対が捕獲過程に大きく影響しているということを見出した。そしてC原子上の非共有電子対と相互作用して捕獲された負ミュオンがどのような状態にあるのかについて、初めて定量的に調べることができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, muon irradiations for low-pressure gaseous samples (CO, CO₂ and COS) have been performed at the muon science facility (MUSE) in J-PARC. The muon capture probabilities for C and O atoms and the initial quantum level (principle and angular momentum quantum numbers) of captured muons were quantitatively investigated for these molecules. From this work, we found that the muon capture probability for C atom in CO molecule was clearly higher than that in CO₂ and COS molecules. We also found that the initial quantum level of muon captured in C atom for CO molecule was different from that for CO₂ and COS molecules. We concluded that the difference in muon capture process in C atom among these molecules are caused by lone-pair electrons at C atom in CO molecule, and we firstly investigated the initial quantum levels of captured muon by lone-pair electrons at C atom quantitatively.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学 原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：ミュオン ミュオン原子 量子ビーム ミュオン捕獲過程 ミュオン特性X線 エキゾチック原子 J-PARC

1. 研究開始当初の背景

原子と電子以外の構成粒子を持つ原子は、総称してエキゾチック原子と呼ばれている。その中でも、本研究で扱うミュオン原子は、電子の200倍重い負ミュオンが原子核の近傍に軌道を持っている系である。

ミュオン原子の形成過程は分子の構造等に強く影響され、たとえ組成式が同じでも分子構造の違うものでは異なる挙動を示す、つまり分子効果があることが知られている(炭素同素体に関する先行研究 Phys. Rev. A, 27, 950(1983))。負ミュオンが高エネルギーの加速器施設では比較的得やすい粒子であることもあり、分子効果を明らかにするためにミュオン原子形成に関して多くの研究がなされ、具体的には以下の2つが調べられてきた。

- (1) 負ミュオンは分子のどの原子に捕獲されるのか(捕獲確率)
- (2) 負ミュオンはその原子のどんな準位(n, l)に捕獲されるのか(初期捕獲準位) またその後原子内でどのような過程を経るのか(ミュオン脱励起過程)

(1)の負ミュオンの捕獲確率の研究に関しては、Z則と呼ばれる古典的なモデル(Phys. Rev., 72, 399(1947))を始めとして、それに実験的なパラメータを導入したもの(Sov. J. Nucl. Phys., 2, 613(1966))、イオン半径に対する依存を議論したもの(Z. Phys., A300, 253(1981))などが知られている。また外殻の電子数に依存するとした、LMMモデル(Nucl. Phys., A312, 419(1978), Phys. Rev. A, 37, 43(1988))も多くの分子の捕獲確率の傾向をよく説明するモデルとして受け入れられてきた。

ミュオン原子形成後のミュオン脱励起過程、すなわち(2)に関しては、オージェ過程とミュオン特性エックス線放出の二つの過程の競争過程であるということが知られている(Ann. Rev. Nucl. Sci., 23, 395(1973))。オージェ電子の測定は難しいが、ミュオン特性エックス線の測定は実験的には比較的容易であり、その構造($K\alpha/K\beta$ 強度比など)を計算で再現するような初期条件を探することで、初期捕獲準位はどうであったかについて議論が行われている(Phys. Rev. A, 22, 1600(1980), Phys. Rev. A, 59, 3375(1999))。しかしながら、負ミュオンを捕獲した原子の置かれている状態と、負ミュオンの初期捕獲準位の関係について、いくつか経験則が提案なされているものの、未だその詳細は明らかとなっていない(Phys. Rev. A, 37, 3795(1988), Nucl. Instrum. Meth., B84, 14(1994))。

申請者はこれまでミュオン原子等のエキゾチック原子形成後に、負ミュオンをはじめとする導入された負の粒子が脱励起していく過程で、電子はどのような状態にあるのかについて注目した研究を行ってきた。最近では正の電荷のミュオンによる固体物理研究

(μ SR法)とともに、J-PARCミュオン施設におけるミュオンビーム取り出しの調整にかかわっており、その中で得られた負ミュオンビームを実際に用いる研究として、単純な分子である酸化窒素(NO , NO_2 , N_2O)に対するミュオン捕獲過程の研究を詳細に行った(K. Ninomiya, et. al., J. Kor. Phys. Soc., 59, 2917(2011))。これらの実験において、負ミュオンの捕獲確率と初期捕獲準位を高精度で求め、過去の実験と比較を行ったところ、断片的な経験則しか得られていない(2)の初期捕獲準位についてだけでなく、大まかには理解されていると考えられていた(1)の捕獲確率に関しても、既存の考えでは説明できない予想外の結果が得られた。

2. 研究の目的

本研究の最終的な目標は、負ミュオンの捕獲現象における分子効果を明らかにすることである。そして分子の構造のみから、それぞれの原子への負ミュオンの捕獲確率と初期捕獲準位がどのようになるのかを予言できるモデルの構築を行う。

本申請では、まずはモデル分子において、負ミュオンの捕獲過程を詳細に調べる。対象となる分子は第二周期の軽元素からなる単純な分子である。これらに対する負ミュオンの照射実験を通して、分子を構成するそれぞれの原子への負ミュオン捕獲確率と初期捕獲準位を決定する。これらが分子構造や電子の状態の違いによって、どのように変化するのかを定量的に明らかにすることで、負ミュオン捕獲過程を説明する。

3. 研究の方法

負ミュオン捕獲過程を明らかにするために、本研究では以下2つのアプローチから研究を進めた。

- (1) 単純な構造の軽元素からなる低圧の気体分子に注目し、類似の構造を持つ分子群に集中して負ミュオン照射実験を行い、これまでにない高い精度で負ミュオン捕獲過程を理解する。
- (2) 低圧気体試料での負ミュオン捕獲過程の観察を行うために、低エネルギーの負ミュオンの取り出し開発とその特性評価を行う。

これまでのミュオン捕獲過程の研究は、実験の容易さから固体などの高密度の試料を用いた実験がほとんどであり、様々な試料へのミュオン照射が行われているが成果が各論的であり、また個々の実験データの精度が高くないと言う問題点があった。それに対して本申請では、(1)に示したように、低圧気体という極低密度の試料を用い、類似の構造を持つ単純な軽元素から成る分子群

に注目し、(2)にも係る新たに低エネルギーの負ミュオン取り出し開発を行うことで精度の高い実験を行う、という3つの問題解決法を新たに採用した。低密度試料を用いるというの切り口は、負ミュオンが分子に捕獲された後に、完全に孤立系とみなすことができる実験的に理想的な系を達成することができる。これによりミュオン原子が形成した後に、他の負ミュオンを捕獲していない分子との衝突による電子の再充填過程を無視することができ、負ミュオン捕獲後の過程を単純化することにより負ミュオン脱励起過程を高い精度で議論することができる。またに関して、今回の実験では負ミュオン照射試料として、CとOを含む分子である、CO、CO₂、COSに注目した。COとCO₂の間には非共有電子対の有無、CO₂とCOS間ではSというかさだかい原子があるという違いがあり、捕獲比や負ミュオンの捕獲初期準位を比較することで、これらの存在が捕獲過程にどのように影響しているのかについて定量的に議論することができる。

このような低密度試料への負ミュオン照射には低エネルギーの負ミュオンを大強度で得る必要がある。そこで本研究ではこのような低密度試料への負ミュオン照射を可能とするために、(2)の低エネルギー負ミュオン取り出しの開発を行った。加速器施設(J-PARC ミュオン施設)において、施設側と協力してビームコミッショニングを行い、様々なエネルギーのミュオン取り出し実験を通して、そのビーム強度やビーム形状の取得を行った。

4. 研究成果

研究方法で述べたように、本研究は

- (1) 低圧気体というこれまで実験が難しかった実験条件での、単純な分子への系統的な負ミュオン照射実験
- (2) 低圧気体試料への負ミュオン照射を可能とするための低エネルギー負ミュオン取り出し実験および調整

の2つのアプローチで研究を遂行した。本研究で明らかにしようとしている負ミュオン捕獲過程の詳細は、(1)の研究より達成されるが、そのためには(2)の研究によりあらかじめ実験の実現性を確かめる必要があった。そこで本稿では時系列的に先に行った(2)の研究成果より先に述べる。

【(2)の研究成果】

2件の論文発表(業績、)
5件の学会発表(業績、 、 、 、)

1気圧以下の低密度の気体試料へのミュオン照射実験を行うためには、運動エネルギー2 MeV (運動量 20 MeV/c) 以下の低エネルギー負ミュオンを得ることが必要である。し

かし加速器で生成する2次粒子である負ミュオンが、そのような低エネルギーで得られる実験施設は世界的にも限られている。本研究では茨城県に設置された大強度陽子加速器研究施設(J-PARC)において、低エネルギーの負ミュオンビームの開発を行った。様々な大きさや厚みを持つ試料に対して負ミュオンを照射し、ミュオン特性エックス線を測定した。負ミュオンの入射エネルギーを変化させることで、負ミュオンの試料内での停止位置を計算どおりに制御できることを確認した。さらに負ミュオンのエネルギー(運動量)により、負ミュオンのビーム強度がどのように変化していくかについて実験的に調べた(図1)。

これらの実験を通して、低圧気体試料にミュオンを止めるのに必要な、運動エネルギー2 MeV (運動量 20 MeV/c) 以下の低エネルギー負ミュオンが、十分な強度で得られることが明らかとなった。またこの実験成果の実証として、ミュオン特性エックス線測定による元素分析手法の開発を行い、2報の原著論文発表を含めた成果を挙げる事ができた。

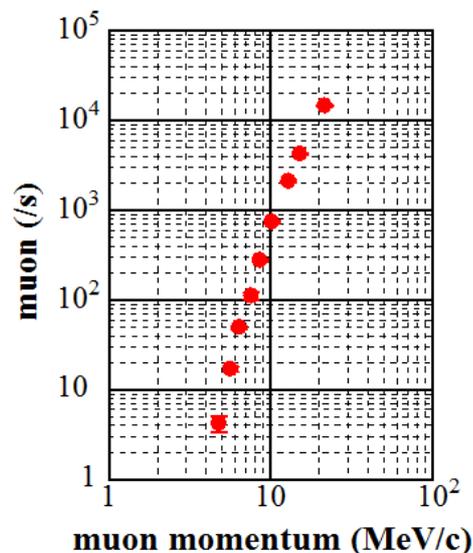


図1: J-PARC ミュオン実験施設において、ミュオン特性エックス線強度より見積もった負ミュオンの運動量による強度変化

【(1)の研究成果】

2件の査読つき原著論文を投稿
(J. Phys. Soc. Jpn. 誌および J. Radioanal. Nucl. Chem. 誌へ投稿済み)
5件の学会発表(業績、 、 、 、)

(2)で開発した低エネルギー負ミュオンビームを用いて、1気圧以下の気体試料、CO (0.40 bar)、CO₂ (0.20 bar)、COS (0.18 および 0.10 bar) の試料に対するミュオン照射実験を行い、ミュオン特性エックス線を精密に測定した。なお、COSに関しては、ミュオン原子が形成後孤立系になっていない可能

性を考えて、2つの圧力での実験を行った。しかし2つの条件で結果に差は見られず、当初想定していたようにミュオン原子はこのような低密度の状態では、ともに孤立系となっていることが確認された。今後の結果では、2つの条件で得られた結果を平均したものを示す。

得られたミュオンC原子およびミュオンO原子のエキス線の強度から、C原子およびO原子へのミュオンの捕獲率を導出することができる。実際に得られたO原子ひとつあたりのC原子への捕獲比A(C/O)を表1に示す。表1に示すように、これまでの実験結果に対して非常に高い精度でミュオン捕獲比を決定することができた。A(C/O)の値にCOとCO₂間で顕著な違いが見られた。一方でCO₂とCOSの間ではA(C/O)の値がほぼ一致しており、Sというかさだかい原子の存在は、CとOのミュオン捕獲現象にほとんど影響していないということがわかった。この結果を過去に提案されているモデル(Phys. Rev. A, 37, 43(1988))へのあてはめを行い、ミュオン捕獲現象が過去のモデルで説明できるかを調べたところ、パラメーターの調整によりこれらの分子ではモデルが適用可能であるということがわかった。

表1：ミュオン捕獲比A(C/O)の比較

	A(C/O) This work	A(C/O) referenced values
CO	0.753±0.021	0.766±0.030 ^[a]
CO ₂	0.549±0.023	0.56±0.08 ^[b]
COS	0.513±0.014	0.43±0.02 ^[c]

[a] Phys. Lett., 79A, 377(1980)

[b] Radiochim. Acta, 47, 77(1989)

[c] Phys. Lett., 95B, 202(1980)

ミュオン特性エキス線の構造、すなわちK α やK β エキス線の強度比についても、それぞれの分子について、C原子からのエキス線およびO原子からのエキス線を別々に詳細に解析した。これらの結果と、様々な初期条件を与えたミュオン脱励起過程のシミュレーション計算(Comput. Phys. Comm., 15, 291(1978))と比較することによって、図2に示すように実験値を再現する条件を探索し、これより捕獲された負ミュオンの初期条件の見積もりを行った。その結果O原子に捕獲された負ミュオンの初期状態は、CO、CO₂、COSの3つの分子の間で差が見られなかったのに対して、C原子に負ミュオンが捕獲された場合においては、捕獲比と同様に、COとCO₂、COS間で顕著な差が見られることをはじめて見出した。

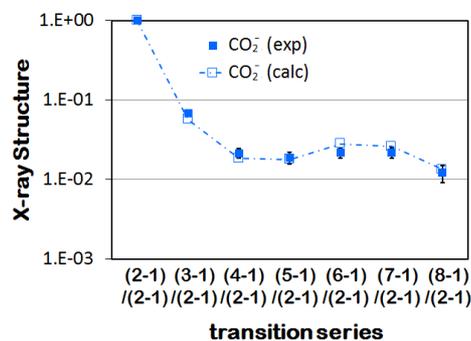


図2：CO₂分子のO原子に捕獲されたときに放出されたミュオン特性エキス線の構造。実験と計算により適当な初期条件を与えたときのミュオン特性エキス線構造の比較を比較すると両者はよく一致している。これより計算の初期条件が実際に捕獲された負ミュオンの初期状態を反映しているといえることができる

CO原子のC原子に捕獲された場合にのみ特異な、これらの捕獲過程について、より詳細な議論を行うために、CO分子のC原子上にのみ存在する非共有電子対に注目した。ミュオンの捕獲比の違いが、非共有電子対に由来すると仮定し、シミュレーションとあわせることにより、非共有電子対と相互作用して捕獲された負ミュオンの初期の角運動量子数の分布を見積もった。C原子上の非共有電子対と相互作用して捕獲された、負ミュオンは大きな角運動量子数を持っているという結果が明確に得られた(図3)。これは予想していなかったことに、過去にp電子に負ミュオンが捕獲された場合に持つ初期条件に近いものであるということがわかった(Phys. Rev., A37, 3795(1988))。

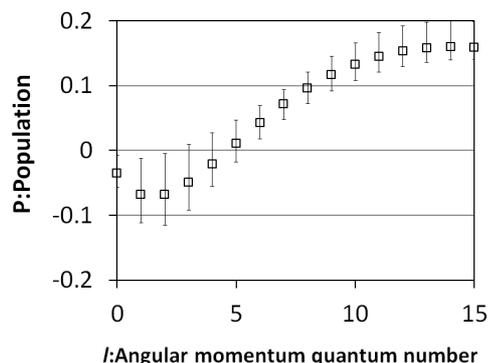


図3：C原子上の非共有電子対と相互作用してC原子に捕獲された、負ミュオンのn=16状態での角運動量子数の分布。l=10以上の大きな角運動量子数を持っている割合が圧倒的に多いことがわかった。

本研究の低圧気体試料により得られた精密なデータと、類似の形状を持つ分子への系統的な実験という新しいアプローチにより、

非共有電子対と相互作用して捕獲された負ミュオンの初期状態の成分の抽出に初めて成功した。負ミュオンの捕獲現象は、負ミュオンが相互作用する電子によって大きく異なるということ、本科研費研究により明確かつ定量的に示すことができた。

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2件)

(査読あり)

K. Terada, K. Ninomiya, T. Osawa, S. Tachibana, Y. Miyake, M. K. Kubo, N. Kawamura, W. Higemoto, A. Tsuchiyama, M. Ebihara, M. Uesugi

“A new X-ray fluorescence spectroscopy for extraterrestrial materials using a muon beam”

SCIENTIFIC REPORTS 4, 5072 (2014)

DOI: 10.1038/srep05072

(査読あり)

二宮和彦

“ミュオン原子から放出されるミュオン特性 X 線を用いた非破壊元素分析”

放射化学、第 29 号、p9-14、2014

[学会発表](計10件)

吉田剛、二宮和彦、稲垣誠、伊藤孝、髭本亘、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

“低圧気体サンプル(CO, CO₂, COS)を対象としたミュオン原子形成時の化学的環境の影響に関する研究”

原子衝突学会第 38 回年会、2013.11.16-17、理化学研究所(和光)

二宮和彦

“負ミュオン特性 X 線を用いた非破壊多元素同時分析”

第 52 回放射線科学研究会、2013.10.25、大阪

K. Ninomiya, M. K. Kubo, T. Nagatomo, G. Yoshida, M. Inagaki, A. Shinohara, T. Suzuki, N. Kawamura, P. Strasser, K. Shimomura, Y. Miyake, Y. Kobayashi, W. Higemoto, S. Sakamoto, T. Saito

“Simultaneous and Multielemental Analysis by Muonic X-rays for Inside Japanese Bronze and Gold Coins”

APSORC'13 - 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry、2013 年 09 月 22 日 ~ 2013 年 09 月 27 日、Kanazawa, Japan

G. Yoshida, K. Ninomiya, A. Shinohara, T.U. Ito, W. Higemoto, T. Nagatomo, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Miura, M. K. Kubo

“Study on muon capture process for gaseous molecules containing C and O atoms”

APSORC'13 - 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry、2013 年 09 月 22 日 ~ 2013 年 09 月 27 日、Kanazawa, Japan

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 the Muon Transfer Process in C₆H₆ / C₆H₁₂ + CCl₄ Mixtures”

APSORC'13 - 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry、2013 年 09 月 22 日 ~ 2013 年 09 月 27 日、Kanazawa, Japan

二宮和彦、吉田剛、篠原厚、伊藤孝、髭本亘、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

“酸化窒素分子を対象としたミュオン特性 X 線構造の測定”

日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 03 月 26 日 ~ 2013 年 03 月 29 日、広島大学

吉田剛、二宮和彦、篠原厚、伊藤孝、髭本亘、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

“低圧の CO, CO₂, COS を試料に用いたミュオン原子形成過程の研究”

第 56 回放射化学討論会、2012 年 10 月 03 日 ~ 2012 年 10 月 05 日、東京工業大学

二宮和彦、小林義男、ストラッサー・パトリック、石田勝彦、松崎禎市郎、久保謙哉、齋藤努

“ミュオンエックス線測定による青銅鏡の元素成分比の定量”

第 56 回放射化学討論会、2012 年 10 月 03 日 ~ 2012 年 10 月 05 日、東京工業大学

二宮和彦、長友傑、小林義男、鈴木栄男、河村成肇、ストラッサー・パトリック、下村浩一郎、三宅康博、髭本亘、坂元眞一、篠原厚、久保謙哉、齋藤努

“負ミュオンを用いた三次元非破壊多元素同時元素分析”

第 56 回放射化学討論会、2012 年 10 月 03 日

~ 2012 年 10 月 05 日、東京工業大学

K. Ninomiya, T. Nagatomo, Y. Kobayashi, T. Suzuki, N. Kawamura, P. Strasser, K. Shimomura, Y. Miyake, W. Higemoto, S. Sakamoto, K. Ishida, T. Matsuzaki, A. Shinohara, K. Kubo, T. Saito
“Non-destructive and quantitative multi-elemental analysis by muonic X-ray spectroscopy for archeological bronze samples”
8th International Conference on Nuclear and Radiochemistry、2012 年 09 月 16 日 ~ 2012 年 09 月 21 日、Como, Italy

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