

DCミュオン源を用いた 化学研究の展開

大阪大学大学院理学研究科 化学専攻

二宮 和彦

共同研究者

大阪大学

篠原厚 教授

吉田剛

喜多真琴

国際基督教大

久保謙哉 教授

JAEA/J-PARC

髭本亘 博士

伊藤孝 博士

坂元眞一 博士

KEK/J-PARC

三浦太一 教授

三宅康博 教授

下村浩一郎 博士

Strasser Patrick 博士

河村成肇 博士

長友傑 博士

理化学研究所

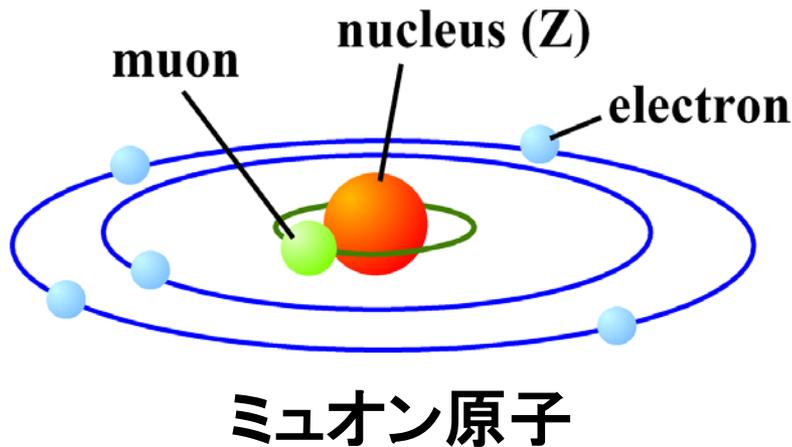
小林義男 博士

歴史民俗博物館

齋藤努 教授

負ミュオンとミュオン原子

負電荷のミュオン(負ミュオン)は重い電子として働く



負ミュオンは原子内の電子と置き換わって**ミュオン原子**を形成

負ミュオンの原子軌道は原子核の近傍

負ミュオンの性質

電荷	-e
寿命	2.2 μs (長い寿命)
質量	106 MeV/c^2 (電子の200倍)

ミュオン原子を化学の対象として見る！

ミュオン原子形成過程

ミュオン原子は物質中に負ミュオンを入射するだけで生成

負ミュオンはオージェ電子もしくは
ミュオン特性エックス線を放出し
ミュオン1s軌道へ脱励起

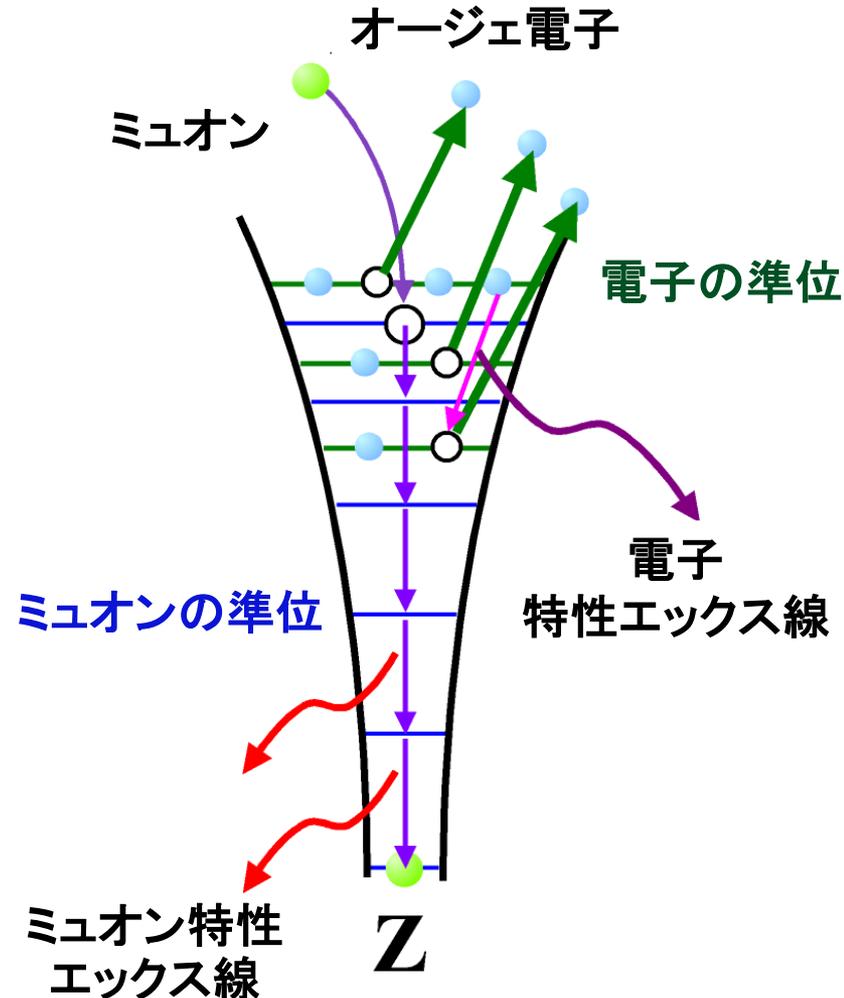
ミュオン特性エックス線の強度

⇒ 負ミュオンの捕獲数

ミュオン特性エックス線の構造

⇒ 負ミュオンの捕獲された準位(量子数)

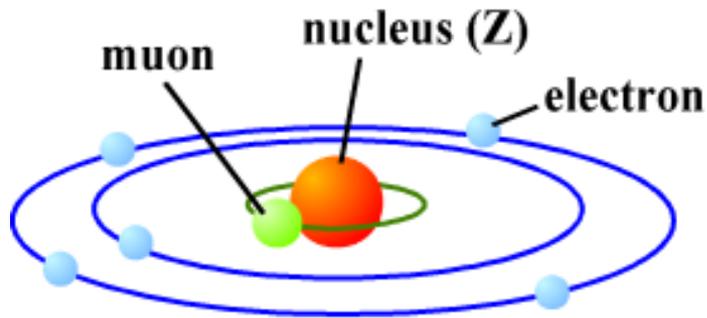
エックス線測定には
DCビームが有利



化学種としてのミュオン原子

負ミュオンは1s軌道である程度の寿命を持つ(50-2000 ns)

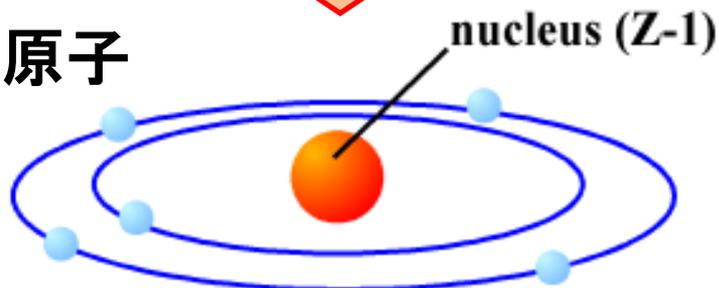
ミュオンZ原子



負ミュオン軌道は原子核近傍
ミュオン原子は擬似的にZ-1原子
とみなすことができる

興味: ミュオンZ原子とZ-1原子
の化学反応の違い

Z-1原子



ミュオン原子の化学
(反応)的性質は?

ミュオン原子形成における分子効果

ミュオン原子の形成過程は、ミュオンを捕獲した原子の置かれている状態により変化

構造の異なる窒化ホウ素に対する負ミュオン照射実験

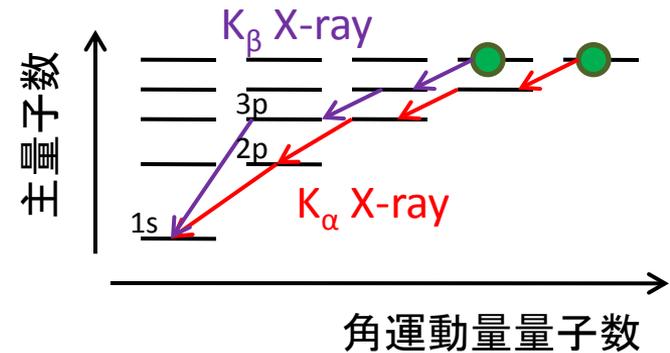
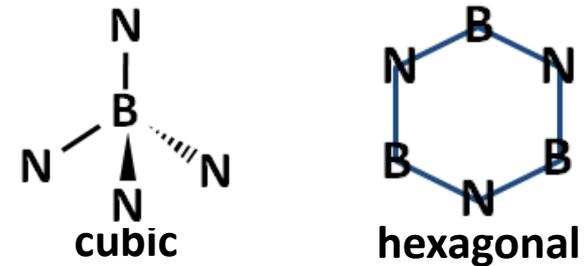
H. Schneuwly, *et. al.*, Phys. Rev. A27, 950 (1983)

● 負ミュオンの捕獲比(捕獲確率)

	BN(cubic)	BN(hexagonal)
A(B/N)	0.233(11)	0.275(12)

● ミュオン特性エックス線の構造

	BN(cubic)	BN(hexagonal)
$\mu\text{NK}_\beta/\mu\text{NK}_\alpha$	0.262(5)	0.282(5)
$\mu\text{NK}_\gamma/\mu\text{NK}_\alpha$	0.155(3)	0.177(3)



何がミュオン原子形成に関与しているのか？

発表内容

ミュオン原子形成過程の分子効果に関する研究

**負ミュオンを用いた三次元・多元素同時・非破壊
元素分析法の開発**

**ミュオン原子形成後の負ミュオン脱励起過程に
関する研究計画**

ミュオン原子による化学研究の計画

発表内容

ミュオン原子形成過程の分子効果に関する研究

**負ミュオンを用いた三次元・多元素同時・非破壊
元素分析法の開発**

**ミュオン原子形成後の負ミュオン脱励起過程に
関する研究計画**

ミュオン原子による化学研究の計画

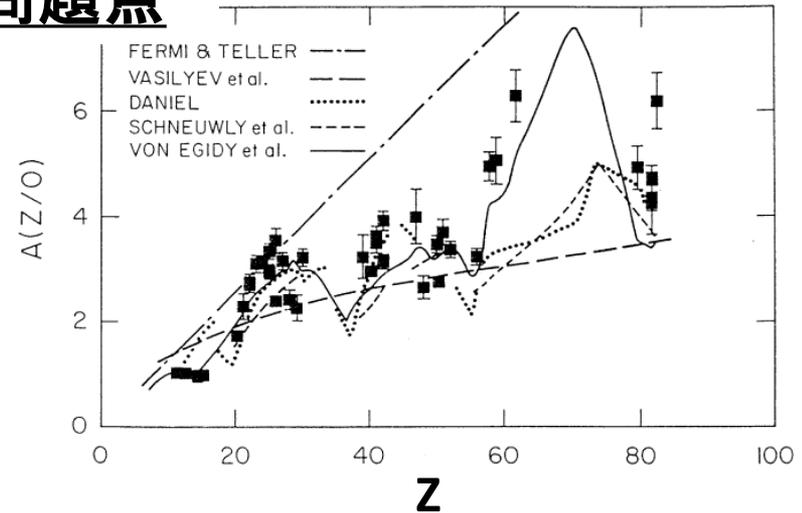
研究背景

分子効果研究に関する先行研究の問題点

固体、液体、高圧気体試料
原子番号の大きな元素が対象

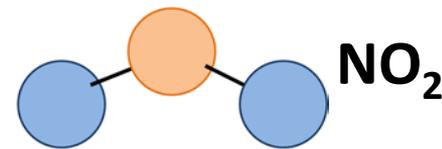
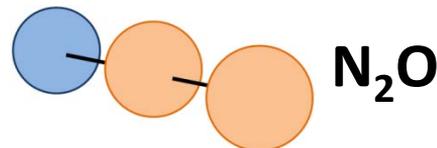
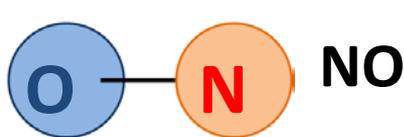


負ミュオン脱励起とミュオン
原子の衝突過程が競合
電子の多い複雑な系



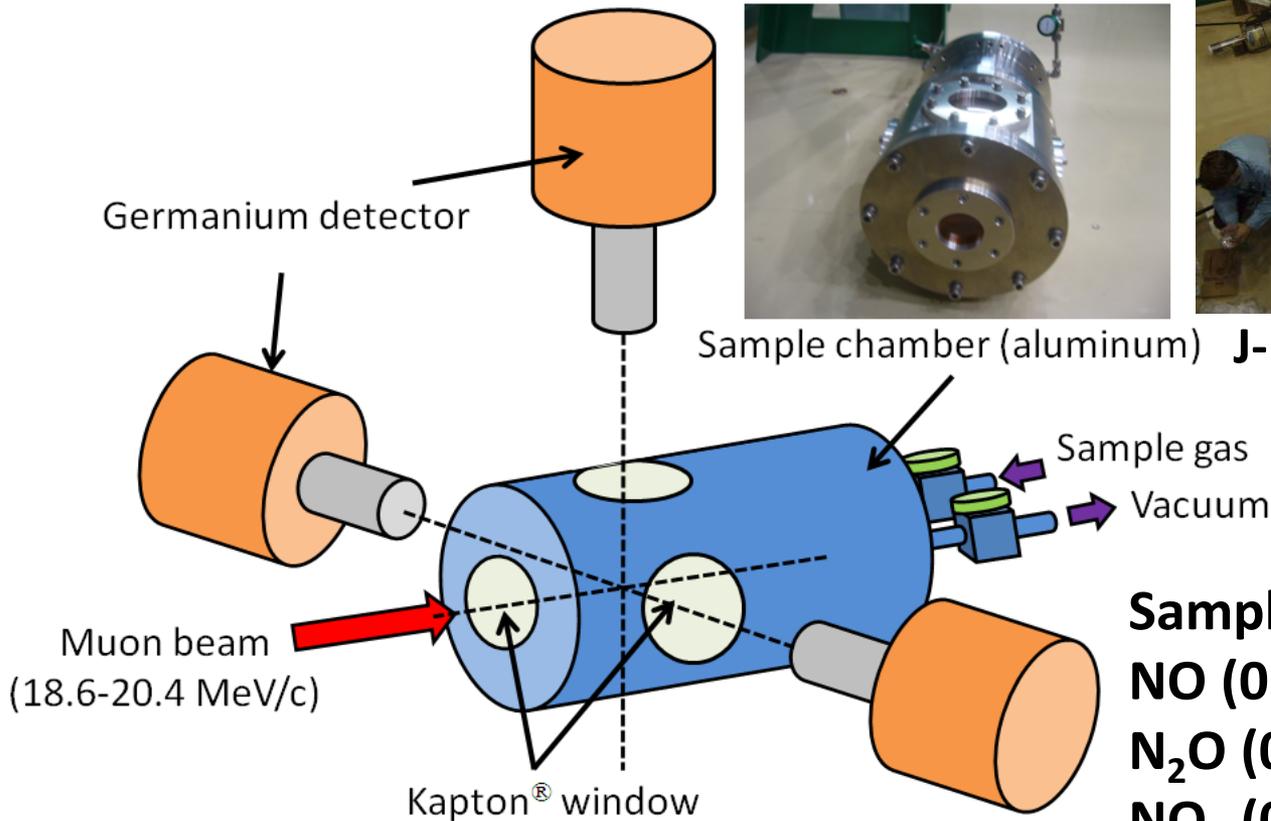
$Z_m O_n$ 分子への捕獲確率

孤立系の単純な分子 (NO, N₂O, NO₂) を対象に捕獲過程の詳細を検討



実験の概要

20 MeV/c 以下の低エネルギー負ミュオンを用いることで初めて可能となった研究

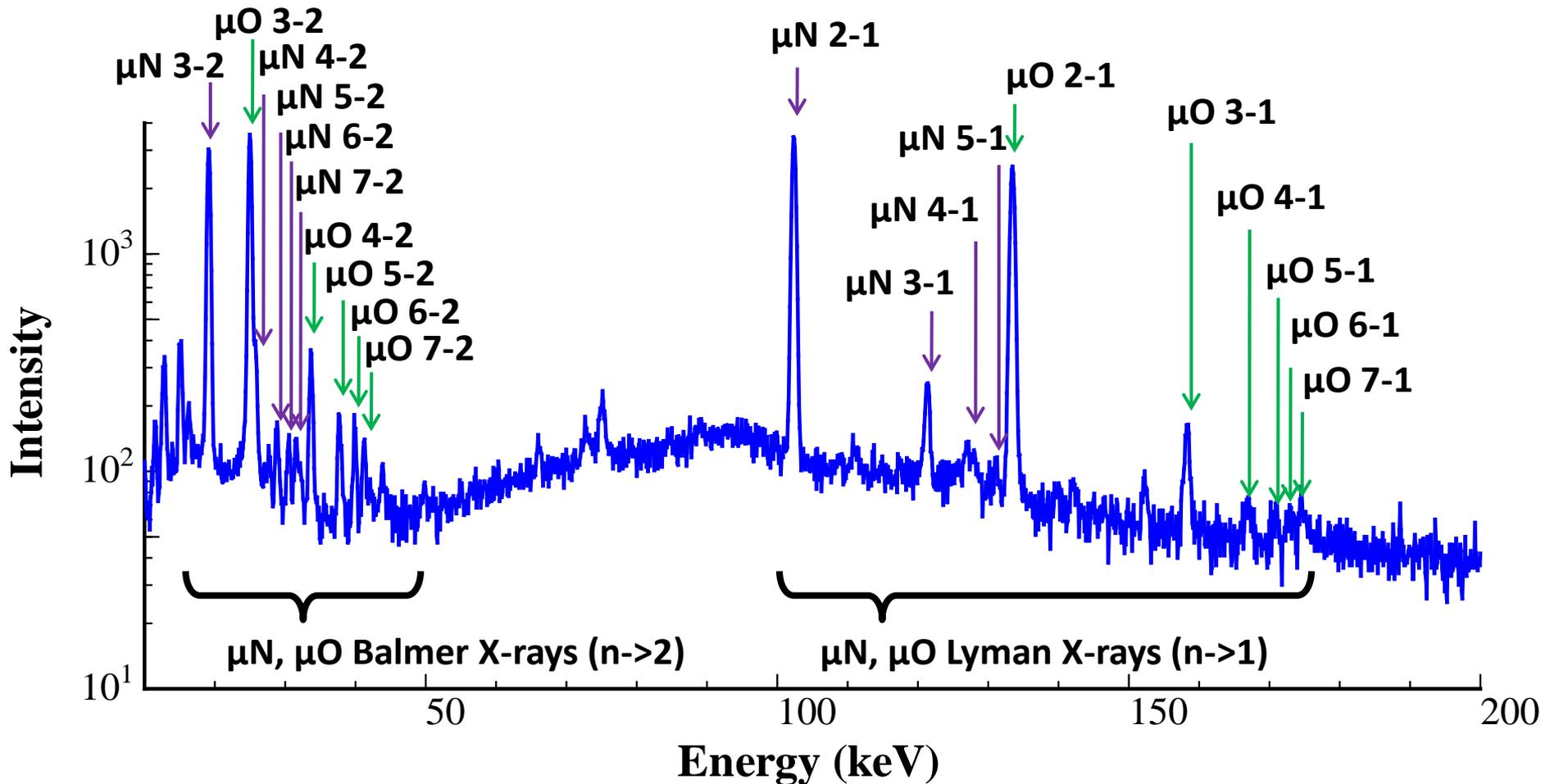


J-PARC, MLF, MUSE D1-port

Samples (low pressure gases):
NO (0.20, 0.98 atm)
N₂O (0.09, 0.20, 0.41, 0.98 atm)
NO₂ (0.10, 0.22, 0.44, 0.50 atm)

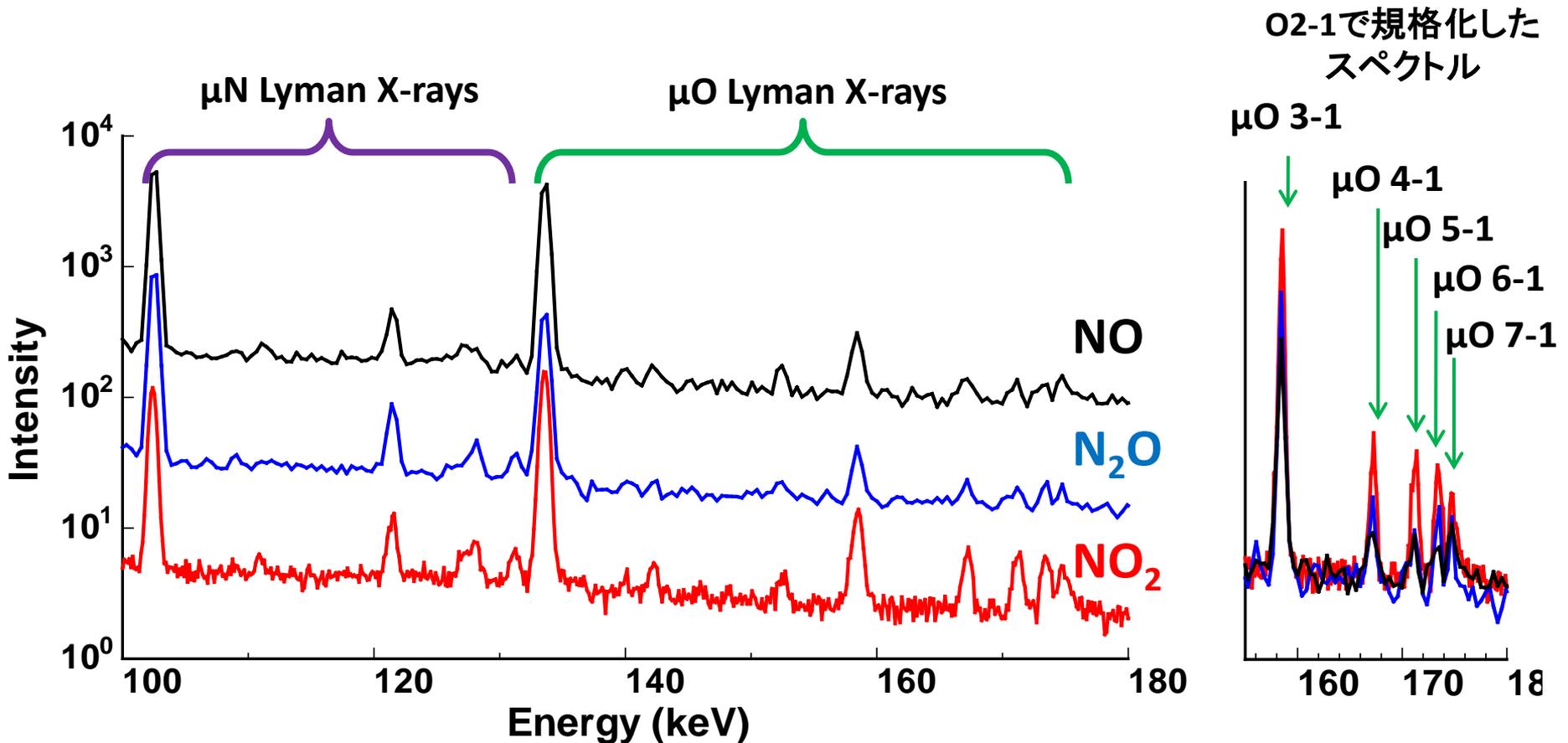
測定結果

NOサンプルでのスペクトル



測定結果

酸化窒素 (NO, N₂O, NO₂) のスペクトル比較



考察とまとめ

ミュオン捕獲比 原子ひとつ当たりのミュオン捕獲確率

実験値

$$A(N/O)_{NO} = 0.946 \pm 0.015$$

$$A(N/O)_{N_2O} = 0.839 \pm 0.011$$

$$A(N/O)_{NO_2} = 0.992 \pm 0.013$$



捕獲モデルからの計算値

Nucl. Phys. A 312, 419 (1978)

$$A(N/O)_{NO} = 0.804$$

$$A(N/O)_{N_2O} = 0.519$$

$$A(N/O)_{NO_2} = 1.26$$

非常に高精度でミュオンの捕獲比を導出

単純な分子にも関わらず捕獲モデルでは説明できない

新しい捕獲モデルの構築の必要 → 分子軌道計算

DCミュオン源でより複雑な系(高密度、高Z試料)へ展開

発表内容

ミュオン原子形成過程の分子効果に関する研究

**負ミュオンを用いた三次元・多元素同時・非破壊
元素分析法の開発**

**ミュオン原子形成後の負ミュオン脱励起過程に
関する研究計画**

ミュオン原子による化学研究の計画

負ミュオンによる元素分析

非常にユニークな特性を持つ元素分析手法

特性エックス線

元素固有のエックス線エネルギー

高感度

ひとつのミュオン捕獲で複数のエックス線放出

高エネルギー

軽元素のエックス線も高い透過力がある

位置選択性

入射エネルギー選択による停止位置の選択

同位体分析

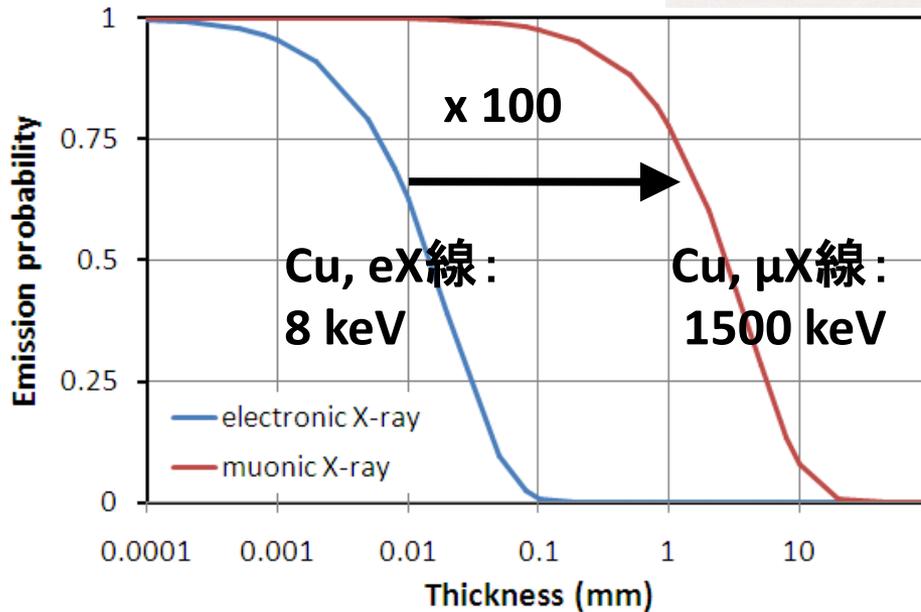
Kaエックス線のエネルギーには同位体シフトがある

化学状態についての知見

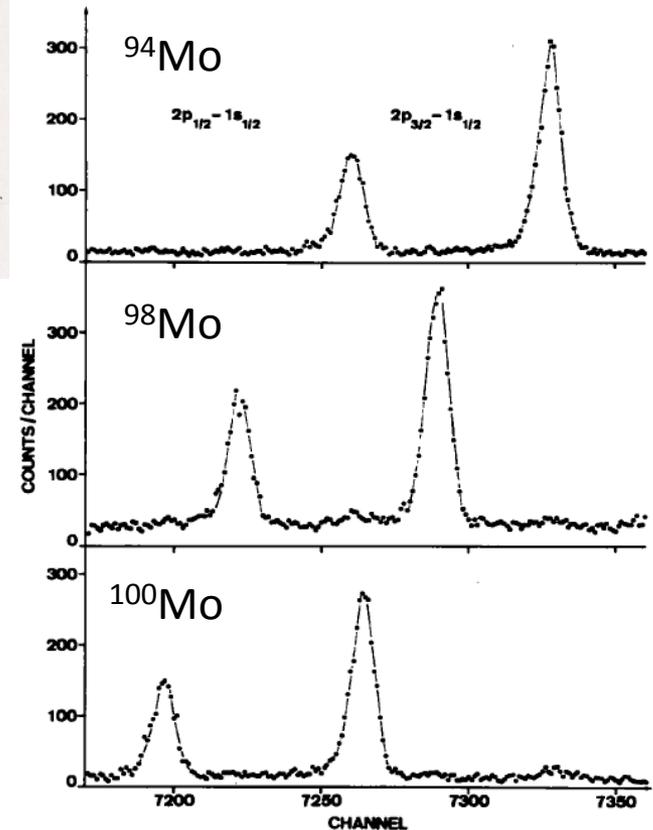
ミュオン捕獲現象は試料の化学状態により変化

負ミュオンによる元素分析

錆びやメッキのある
考古学資料等の
非破壊分析の強力
なツール

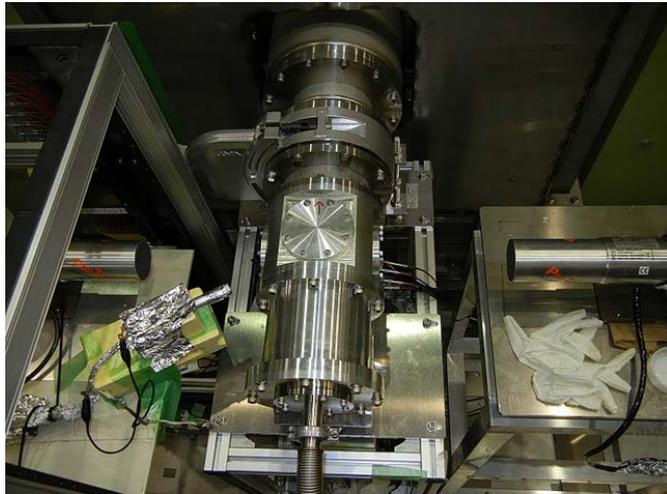


CuのKX線の透過率



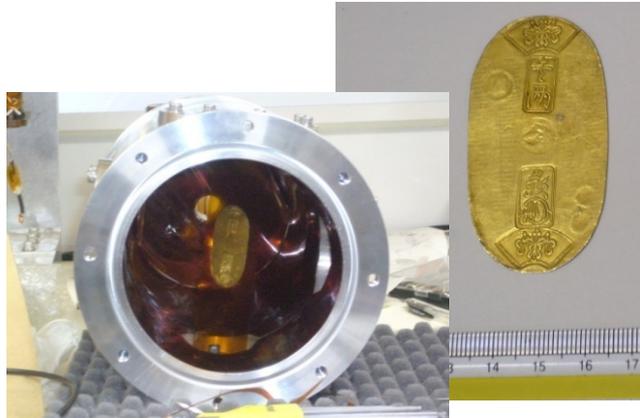
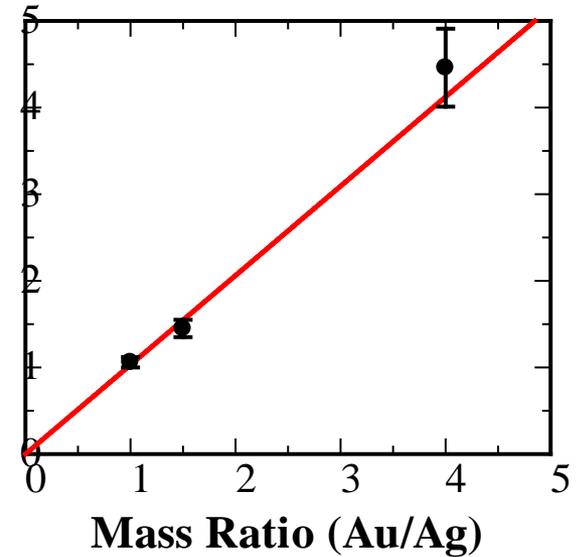
KX線同位体シフト

小判の元素分析

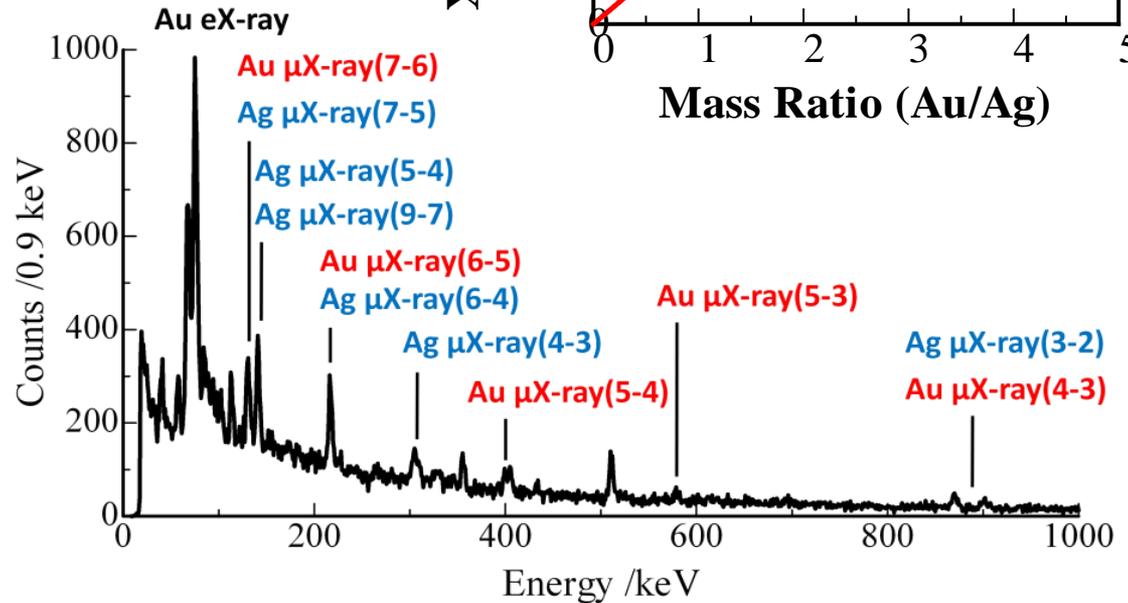


Au-Ag合金での
検量線 →

X-ray Intensity Ratio
 $\text{Au}(5-4)/\text{Ag}(4-3)$



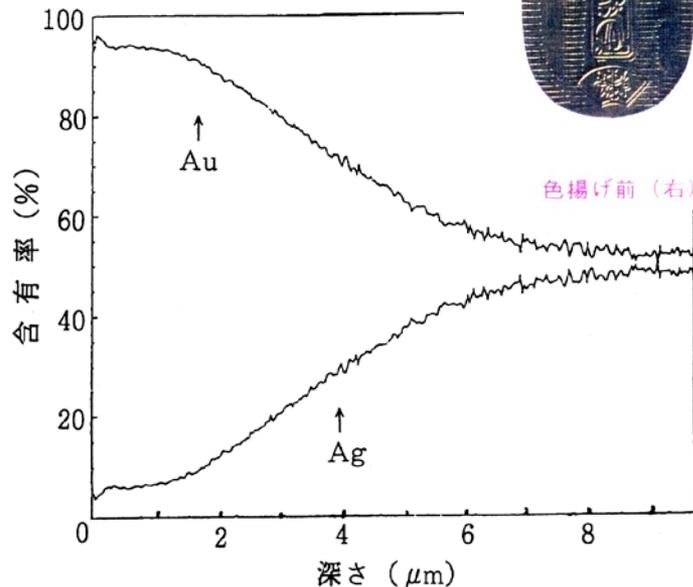
天保小判



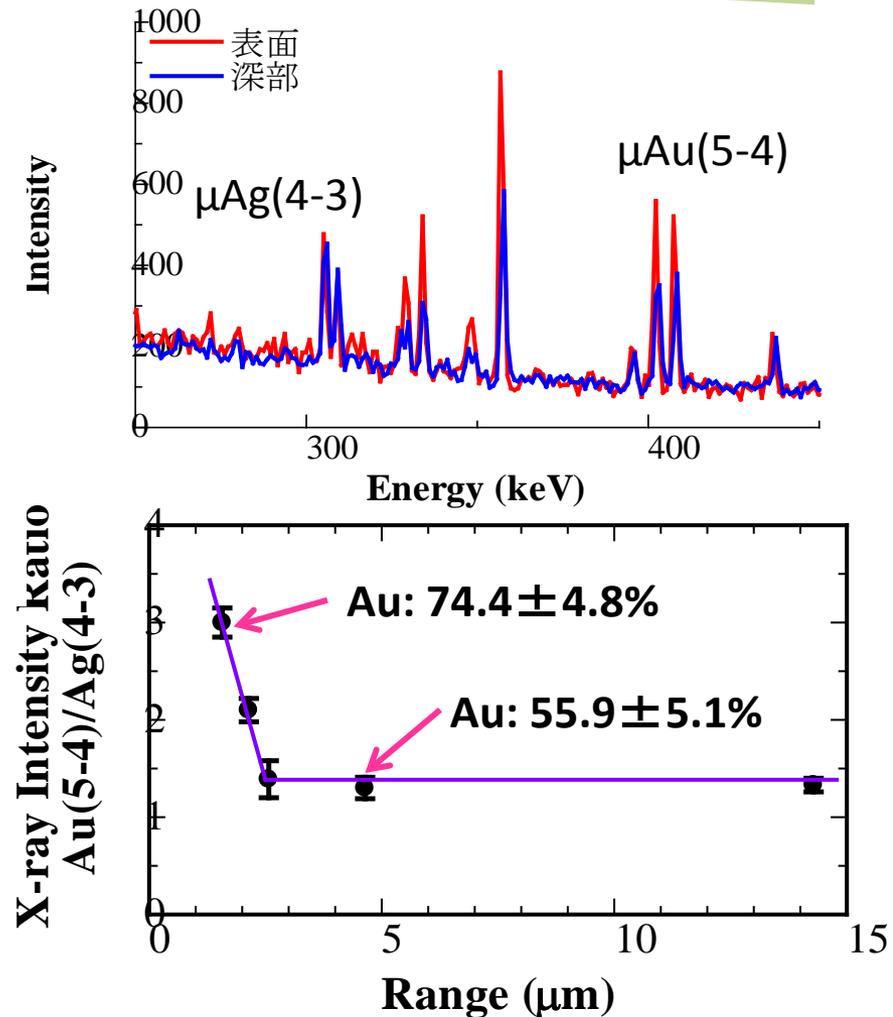
小判の元素分析

負ミュオンにより μm 深さの位置
選択元素分析を達成

Auger Electron Spectroscopy
による小判分析↓



色揚げ前 (右) と後 (左) の小判 (複製)



深部 (高エネルギー) の分析は、MuSICで展開可能

発表内容

ミュオン原子形成過程の分子効果に関する研究

**負ミュオンを用いた三次元・多元素同時・非破壊
元素分析法の開発**

**ミュオン原子形成後の負ミュオン脱励起過程に
関する研究計画**

ミュオン原子による化学研究の計画

ミュオン原子形成後の過程

ミュオン原子の化学を展開するためには、ミュオン原子形成後の電子状態の情報が不可欠

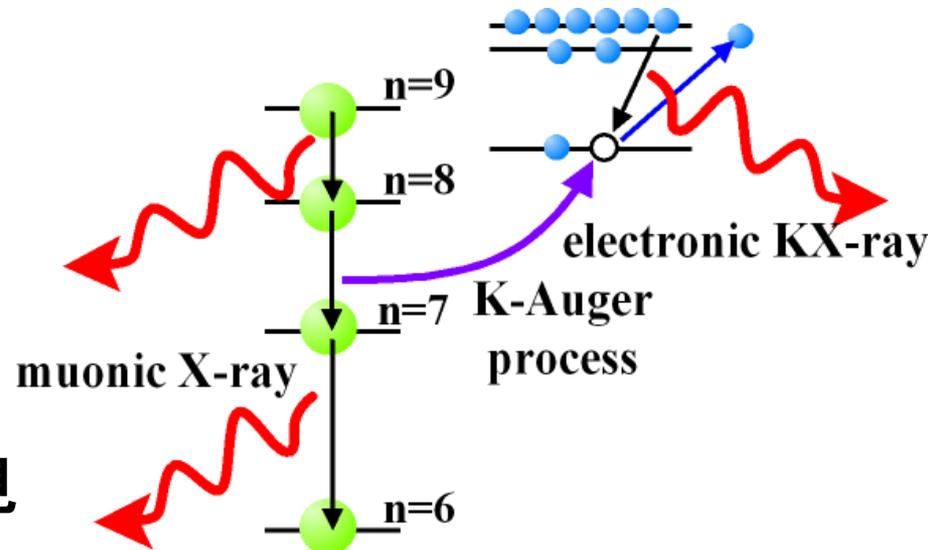
- オーグメント過程
- ミュオン特性エックス線放出
- 電子再充填過程

が競合



電子エックス線エネルギーの精密測定

- ミュオンの存在準位
 - 電子空孔数
 - 電子再充填速度
- の知見

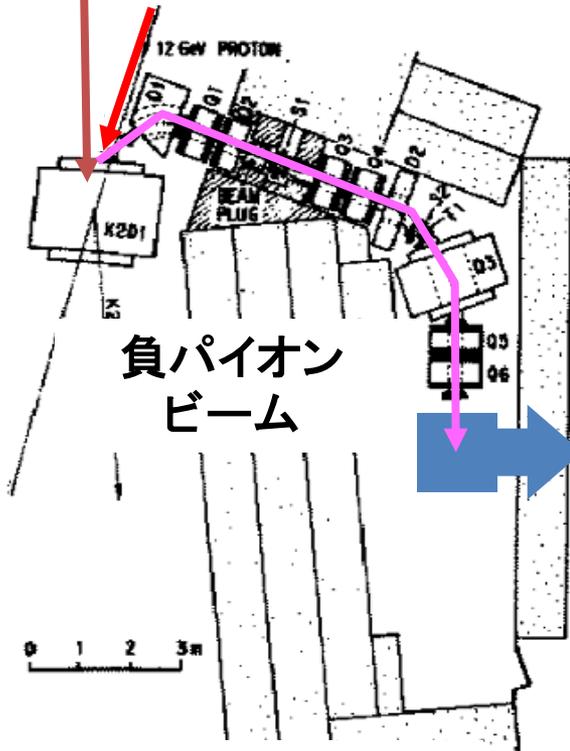


KEK-PSでの実験概要

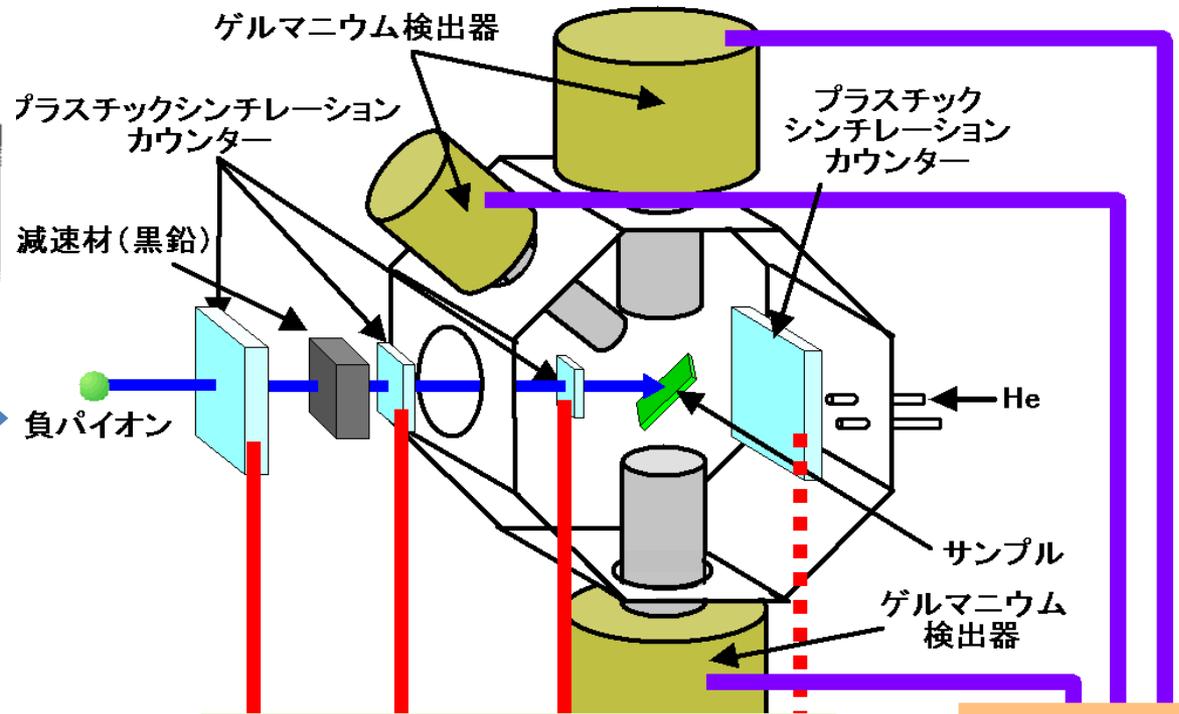
電子エックス線のエネルギーからミュオン原子の状態を知る

一次ターゲット

陽子ビーム



$\pi\mu$ -channel(@KEK-PS)



STOP event

Gate

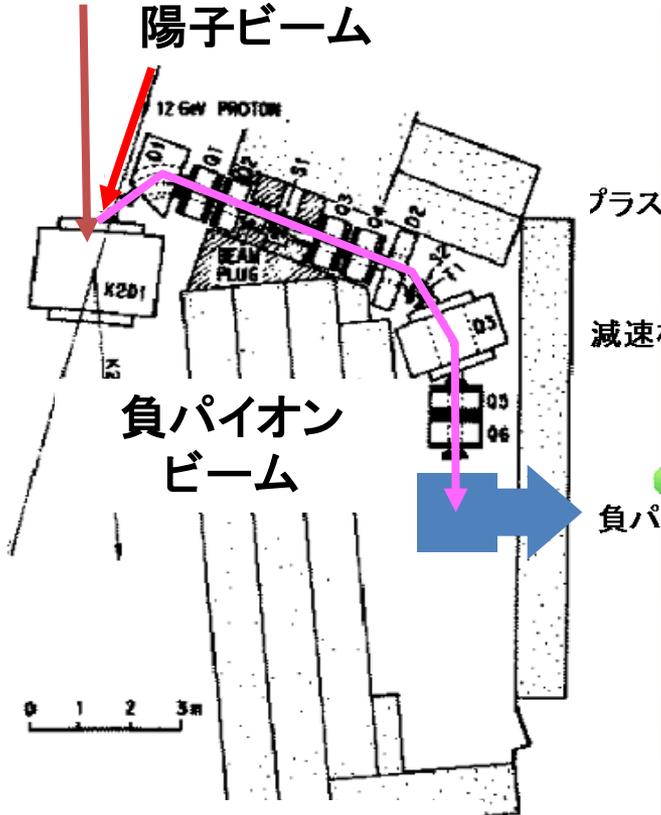
エックス線
スペクトル

KEK-PSでの実験概要

電子エックス線のエネルギーからミュオン原子の状態を知る

一次ターゲット

陽子ビーム



$\pi\mu$ -channel(@KEK-PS)

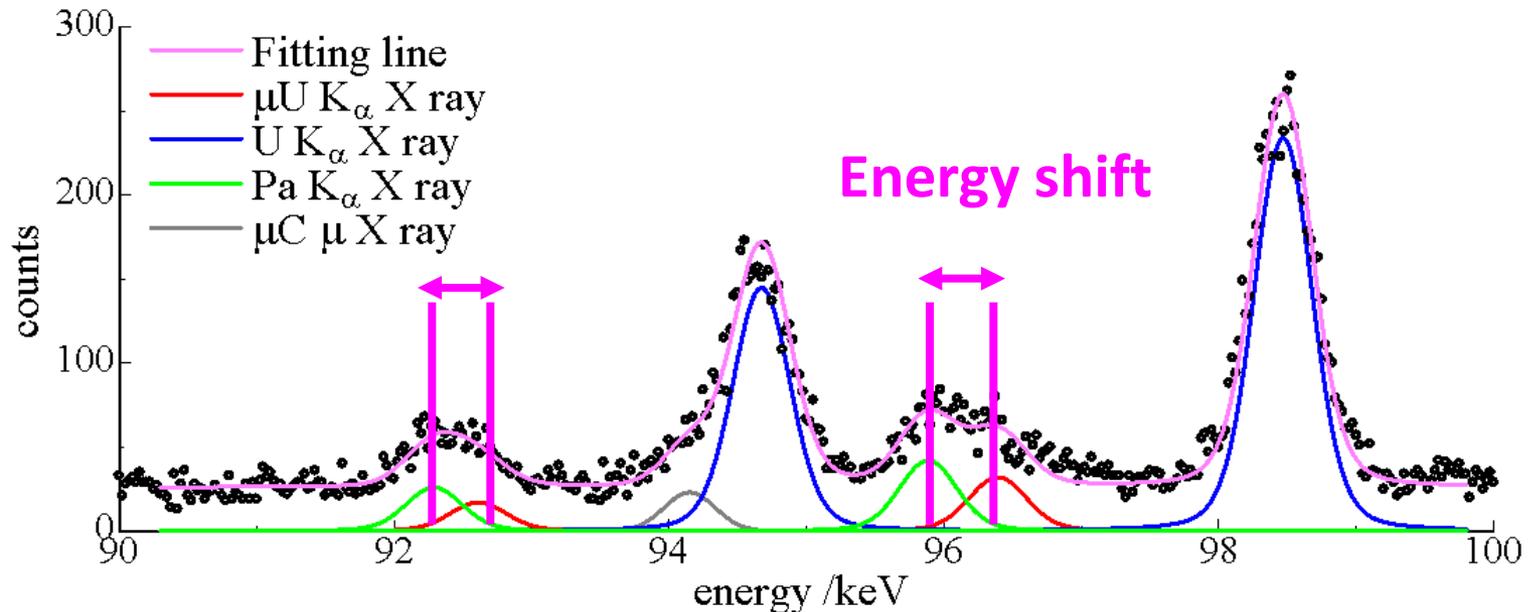
STOP event



エネルギー
スペクトル

電子エックス線エネルギー測定

ミュオンウラン原子の電子エックス線スペクトル

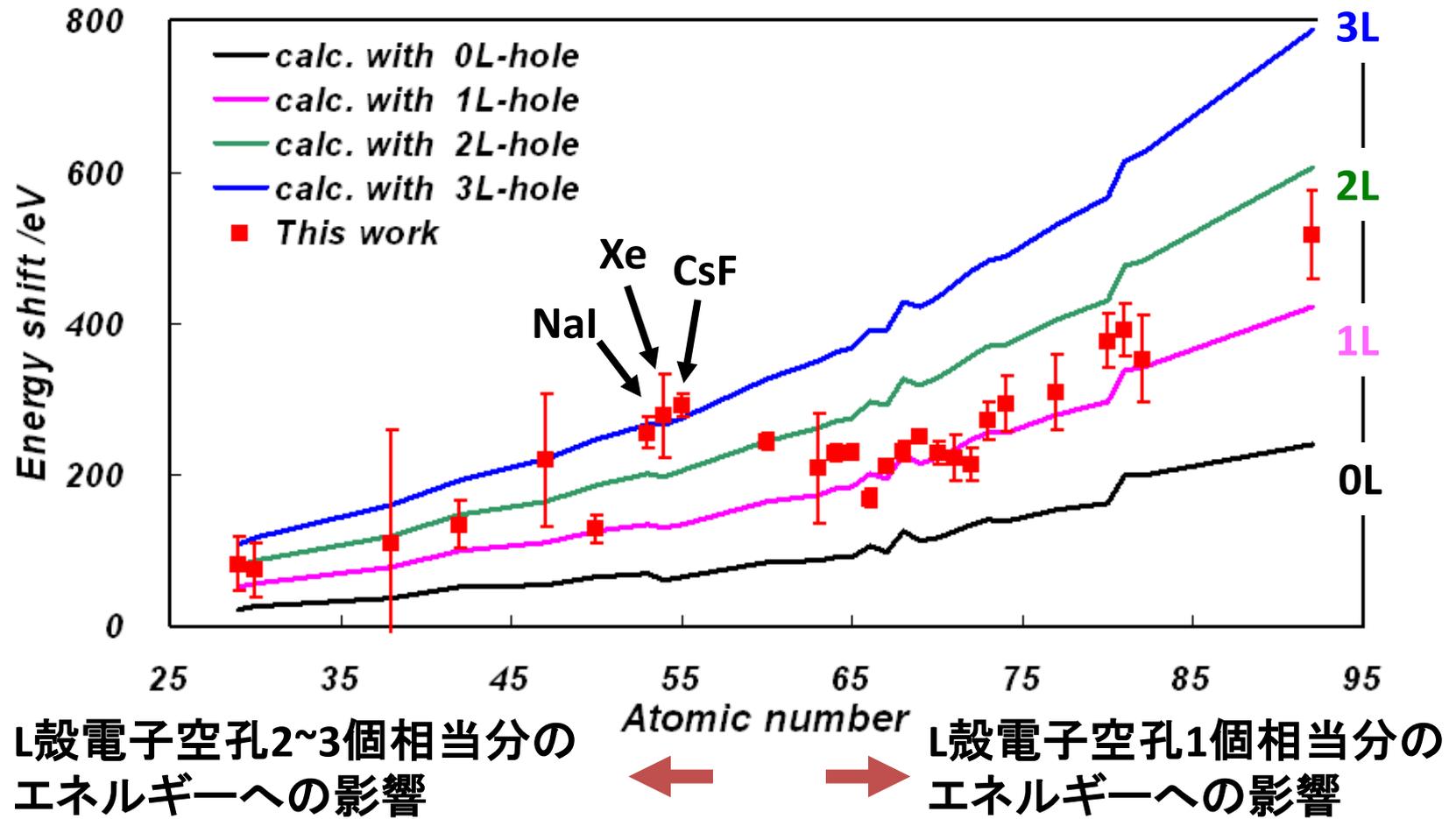


$\mu\text{-Z}$ 原子の電子エックス線エネルギーは、

{ ミュオン原子が高電荷であること
負ミュオンが励起状態に居ること

から $Z-1$ 原子の電子エックス線エネルギーからシフト

ミュオン原子形成後の電子状態



L殻電子空孔2~3個相当分の
エネルギーへの影響 ←

Atomic number

→ L殻電子空孔1個相当分の
エネルギーへの影響

電子状態の化学形依存に関して今後検討が必要

発表内容

ミュオン原子形成過程の分子効果に関する研究

**負ミュオンを用いた三次元・多元素同時・非破壊
元素分析法の開発**

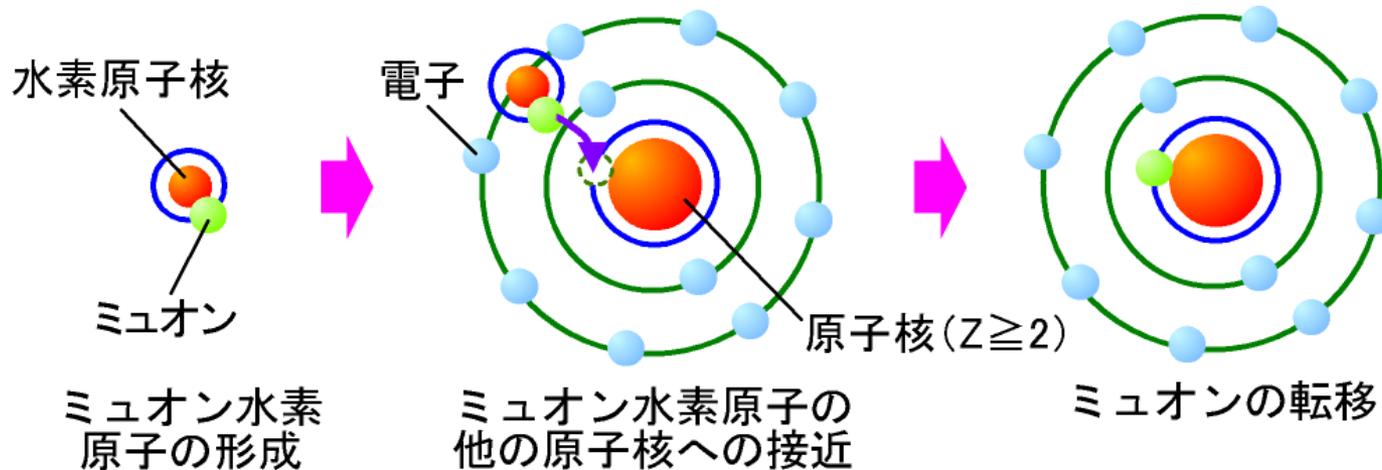
**ミュオン原子形成後の負ミュオン脱励起過程に
関する研究計画**

ミュオン原子による化学研究の計画

励起状態からのミュオン転移過程

転移過程

ミュオン水素原子は、擬似的な中性子とみなすことができ、
ミュオンの移動反応(転移)を起こす



励起状態のミュオン水素原子からの転移は、ミュオンの軌道が
大きく転移過程において分子効果がある可能性

早い時間スケール = DCミュオン源が必要

まとめ: RCNP-MuSICへの期待・要望

- 負ミュオンを用いた化学分野の研究も、DCミュオン源であるRCNP-MuSICで展開可能な研究テーマが多くある
- 化学分野のミュオンユーザーとしての要望

ソレノイド輸送系の早期整備

中性子、電子(陽電子)の混入のないビーム
実験セットアップの自由度

一次ビームの大強度化実現

「きれいな」ビームの取り出し
小さいビーム径、狭い運動量幅

マシンタイム

ビームコミッショニング、装置開発
化学実験用のビームポートの整備