

宇宙線ミュオンによる 文化財資料のオンサイト非破壊元素分析

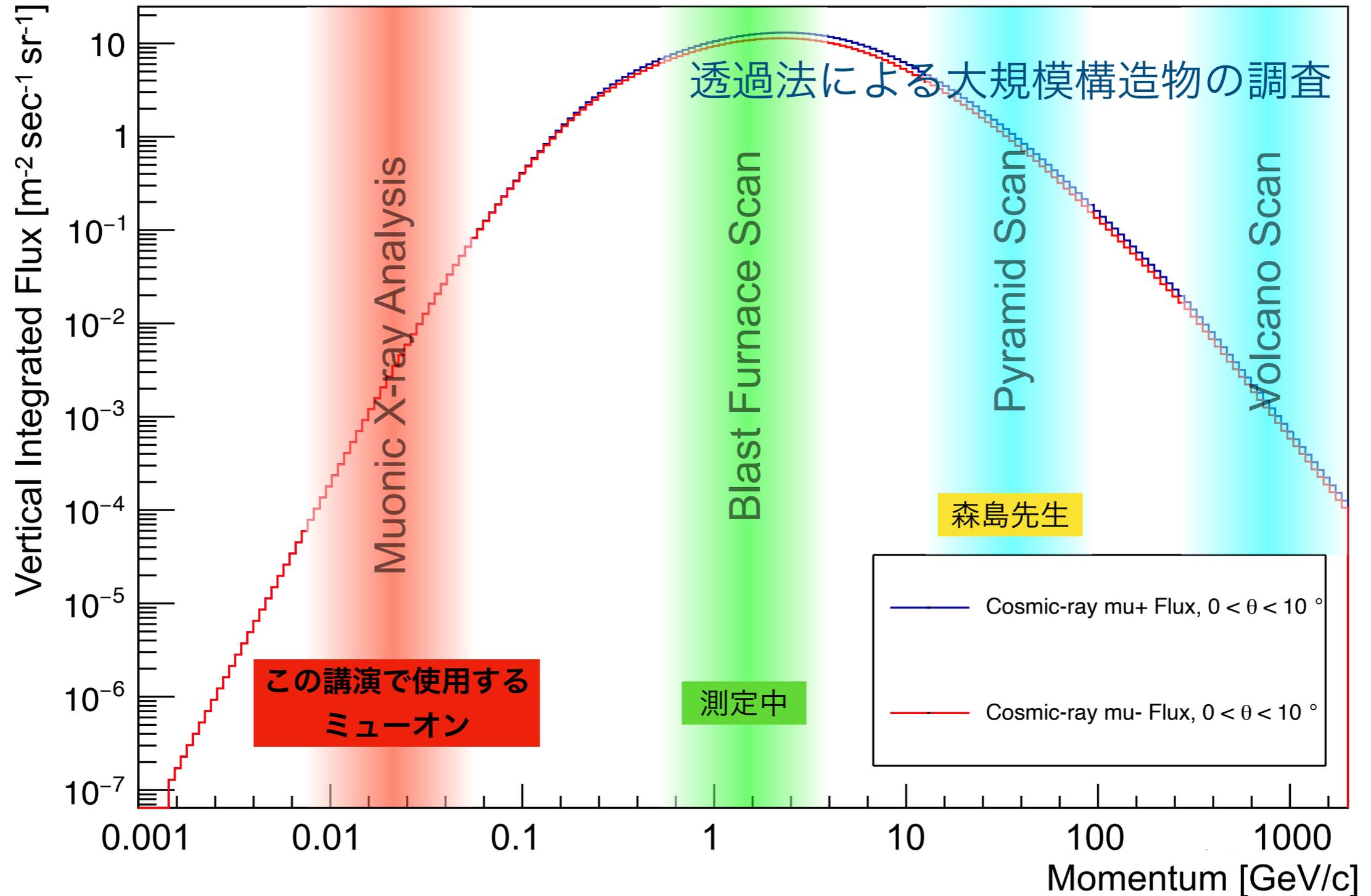
大阪大学 大学院理学研究科 佐藤 朗

シンポジウム「宇宙線で繋ぐ文明・地球環境・太陽系・銀河」

2023/9/17 日本物理学会第78回年次大会@東北大学



宇宙線ミュオン：エネルギーとフラックス



・PARMAモデルでの計算結果

内容

- ・ ミューオンX線非破壊分析
- ・ 加速器ミューオンによる分析例の紹介
- ・ 宇宙線ミューオンによる分析
 - ・ 本研究の分析装置
 - ・ 実証機の結果
 - ・ シミュレーションによる検討
 - ・ 展望
- ・ まとめ

ミュオンX線非破壊分析

X-rays, γ -rays

元素, 同位体比,
化学状態

負電荷ミュオンビーム

ビーム照射口に分析資料をおくだけ (完全非破壊)

分析深さを限定できる (金属中~10 mm、軽物質~100 mm)

ミューオンX線とは

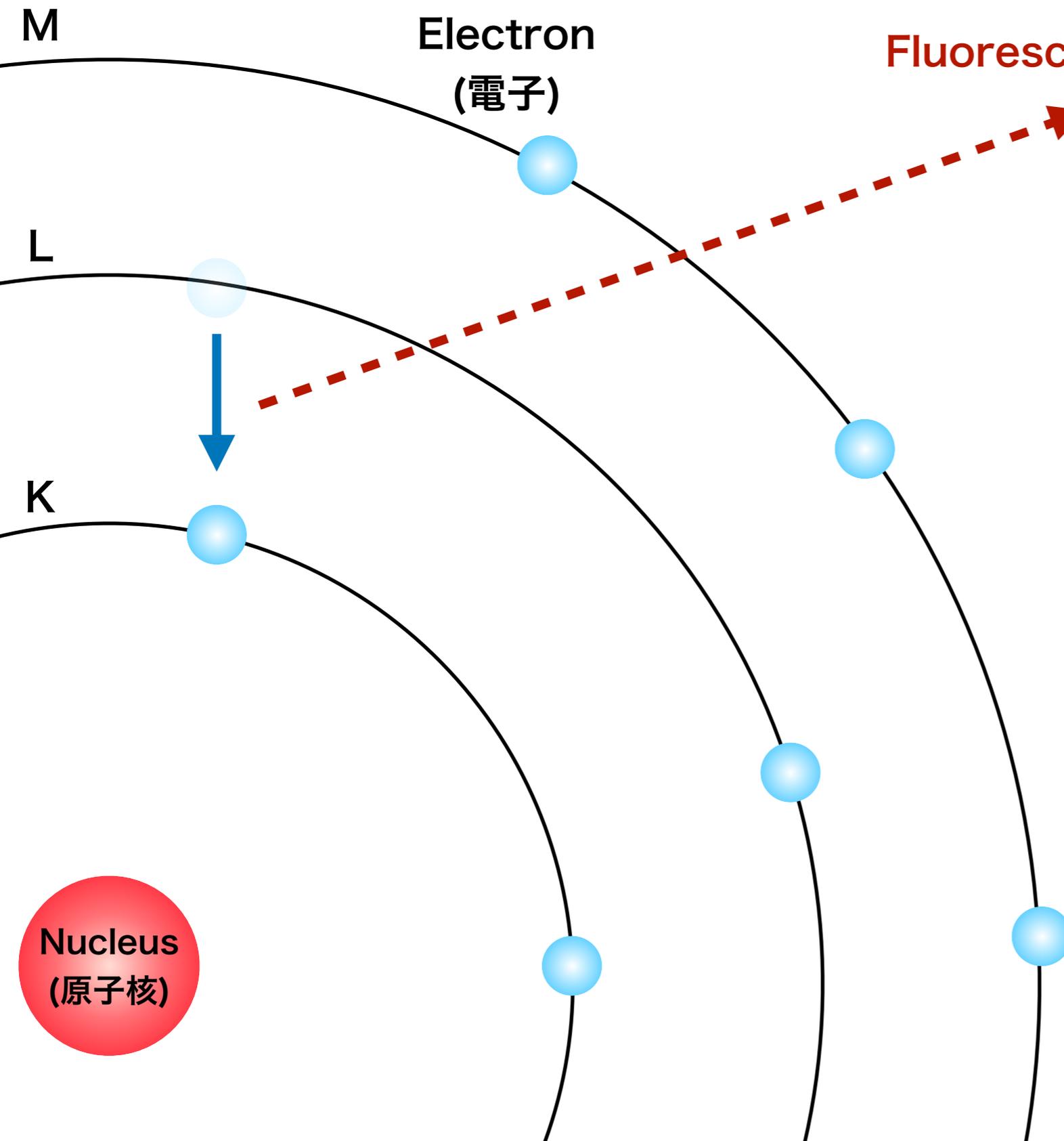
その前におさらい

蛍光X線分析/電子特性X線

cf. 蛍光X線分析の場合

原子内のe⁻の軌道遷移

Fluorescence X-ray/Characteristic X-ray
(蛍光X線/電子特性X線)



$$E_n = -\frac{Z^2 m e^4}{8 n^2 \epsilon_0^2 h^2}$$
$$r_n = -\frac{4 \pi \epsilon_0 n^2 \hbar^2}{Z m e^2}$$

Bohr model

ミューオンX線とは

ミュオンX線とは

- ・ **ミュオン原子が放出する特性X線** ミュオン原子内の μ^- の軌道遷移

Negative muon
(負電荷ミュオン)

$$E_n = -\frac{Z^2 m e^4}{8n^2 \epsilon_0^2 h^2}$$

$$r_n = -\frac{4\pi\epsilon_0 n^2 \hbar^2}{Z m e^2}$$

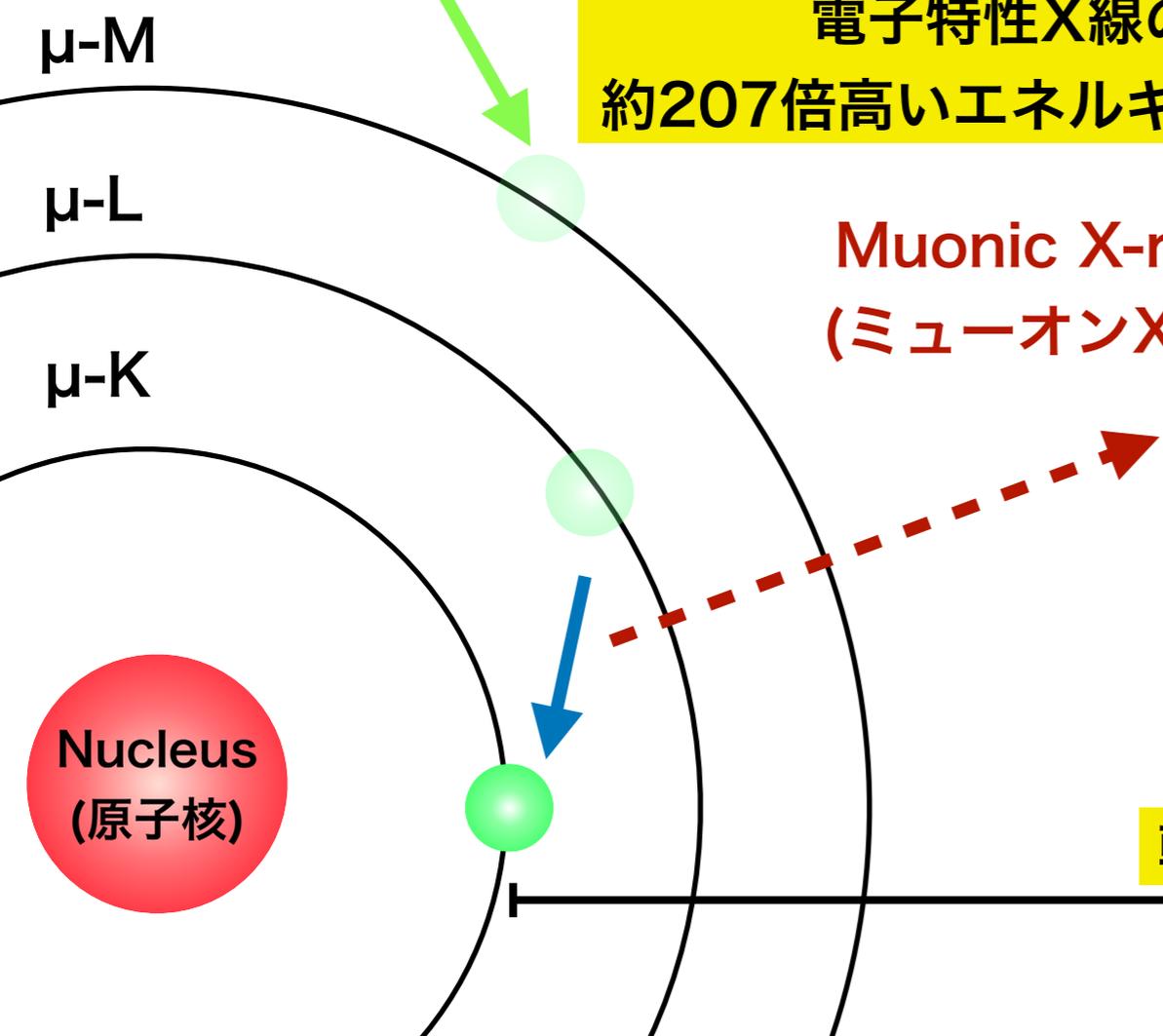
$$\frac{m_\mu}{m_e} \approx 207 \approx \frac{E_\mu}{E_e} \approx \frac{r_e}{r_\mu}$$

Bohr model

ミュオン特性X線は
電子特性X線の
約207倍高いエネルギーを持つ

Muonic X-ray
(ミュオンX線)

軌道半径 r_n は 電子の1/207



ミュオンX線分析の特徴

高エネルギーX線の特徴エックス線を使用

- ・特性X線のエネルギーにより元素を特定
 - ・Cu: $\mu\text{X-K}\alpha=1513\text{ keV}$, cf. $\text{eX-K}\alpha=8\text{ keV}$

・全ての元素に対する多元素同時分析

- ・軽元素のエックス線も高い透過力があるので測定できる

分析深さの選択性

- ・ミュオンの入射エネルギーにより分析深さを設定できる
 - ・非破壊で厚み数cmまでの任意の深さの位置における組成分析が可能
 - ・cf. XRF, PIXE, EPMA の分析深さは、表面から $\sim 100\ \mu\text{m}$.
 - ・表面の腐食層の影響がない。
 - ・金メッキされた資料内部の分析も可能。

・同位体比や化学状態についての情報も得られる

非破壊で資料深部の元素や同位体の分析ができる。

考古学・文化財科学などの貴重資料分析方法として、
ミュオンX線分析が高い注目を集めている。

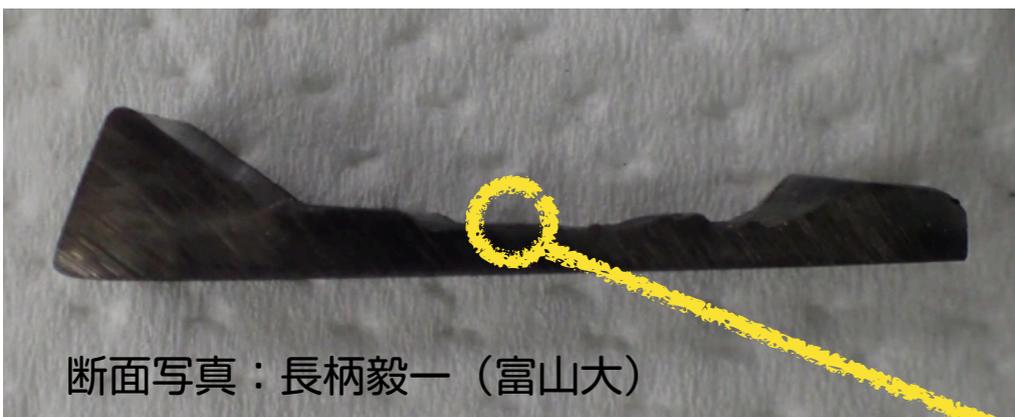
古代青銅器

古代資料の表面状態はとても悪い：土に埋まっている→表面腐食



ミューオンX線分析では、腐食層の内側にある地金部分だけを非破壊で分析できる。

表面が腐食した青銅器の分析



腐食層

140 μ m

地金

Cu +
Sn71% + Pb10%

Cu +
Sn22% + Pb6%

蛍光X線

ミュオンX線

1次X線

分析感度領域

ミュオン

分析感度領域

ミュオン

分析感度領域

ミュオンX線分析では、
入射ミュオンのエネルギーを変えることで
分析深さを調整することができる。

加速器ミューオンビームによる ミューオンX線分析例の紹介

ミュオンX線分析が実施可能な加速器施設



リュウグウの石の初期分析

Science

Current Issue First release papers Archive About Submit manuscript

HOME > SCIENCE > VOL. 379, NO. 6634 > FORMATION AND EVOLUTION OF CARBONACEOUS ASTEROID RYUGU: DIRECT EVIDENCE FROM RETURNED SAMPLES

RESEARCH ARTICLE COSMOCHEMISTRY



Formation and evolution of carbonaceous asteroid Ryugu: Direct evidence from returned samples

T. NAKAMURA, M. MATSUMOTO, K. AMANO, Y. ENOKIDO, M. E. ZOLENSKY, T. MIKOUCHI, H. GENDA, S. TANAKA, M. Y. ZOLOTOV, [...], AND Y. TSUDA +211 authors Authors Info & Affiliations

SCIENCE • 22 Sep 2022 • Vol 379, Issue 6634 • DOI: 10.1126/science.abn8671

12,695 28

CHECK ACCESS

Structured Abstract

INTRODUCTION

Observations of asteroid Ryugu by the Hayabusa2 spacecraft found that it is a rubble pile, formed from fragments of a parent asteroid. Samples retrieved from Ryugu by the spacecraft were expected to contain a record of this history, including the formation and early evolution of the parent body, the subsequent impact destruction and partial reaccretion, and later space weathering. The composition of Ryugu was expected to be similar to that of Ivuna-type carbonaceous chondrite meteorites (CI chondrites).

RATIONALE

We investigated the formation history of Ryugu through laboratory analysis of the samples. Specifically, we sought to determine (i) when and where in the Solar System the parent asteroid formed; (ii) the original mineralogy, elemental abundances as a whole, and chemical compositions of the accreted materials, including their ice content; (iii) how these materials evolved through chemical reactions; and (iv) how the material was ejected from the parent body in an impact. To address these issues, we analyzed 17 Ryugu particles of 1 to ~8 mm in size.



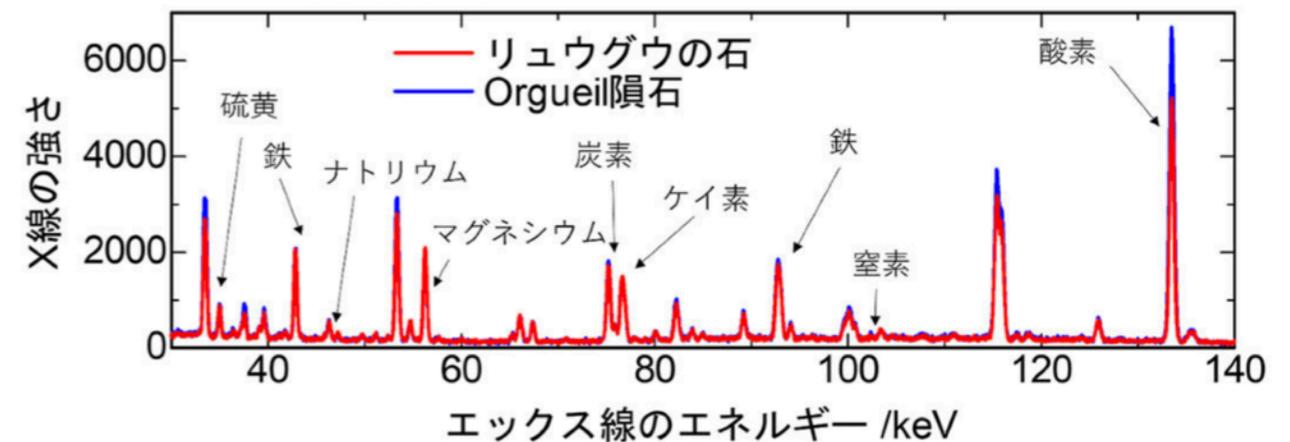
図1:今回分析した中で最も大きいリュウグウの石 (C0002) の写真 (写真提供: JAXA) 質量は93.5 mg。左上の赤線はスケールで縦1 mm横1 mmを表す。

全く地球大気に接触させずに非破壊で分析



ミュオン分析を待つリュウグウの石

リュウグウの石は白丸で囲んだ部分にあり、鋼箔に包まれている。分析時は銀色のホルダーから外されて試料以外は鋼のみの空間に。



平均的元素組成を決定

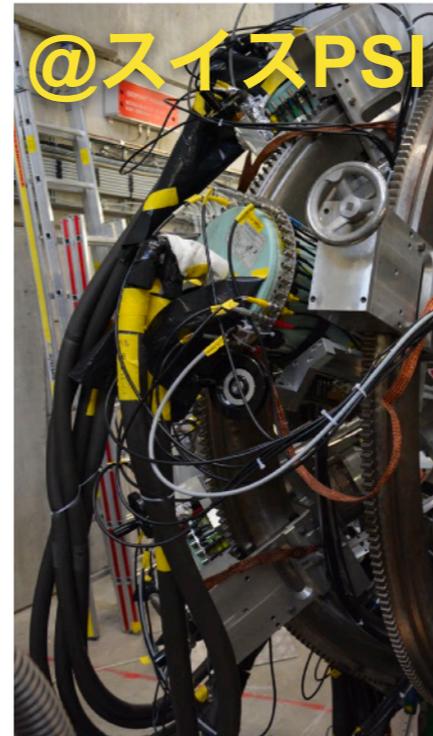
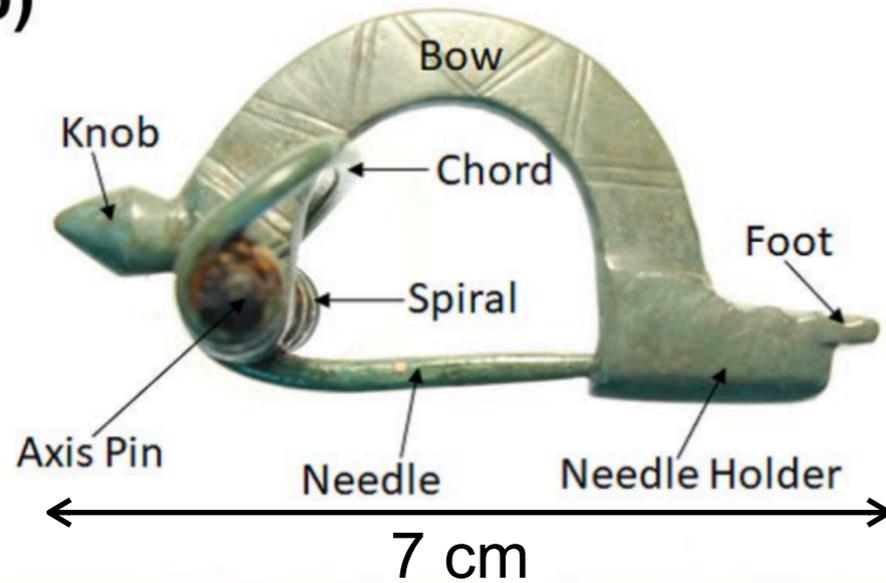
CIコンドライト似ているが、酸素が約25%少ない

ローマ時代ブローチの組成分析

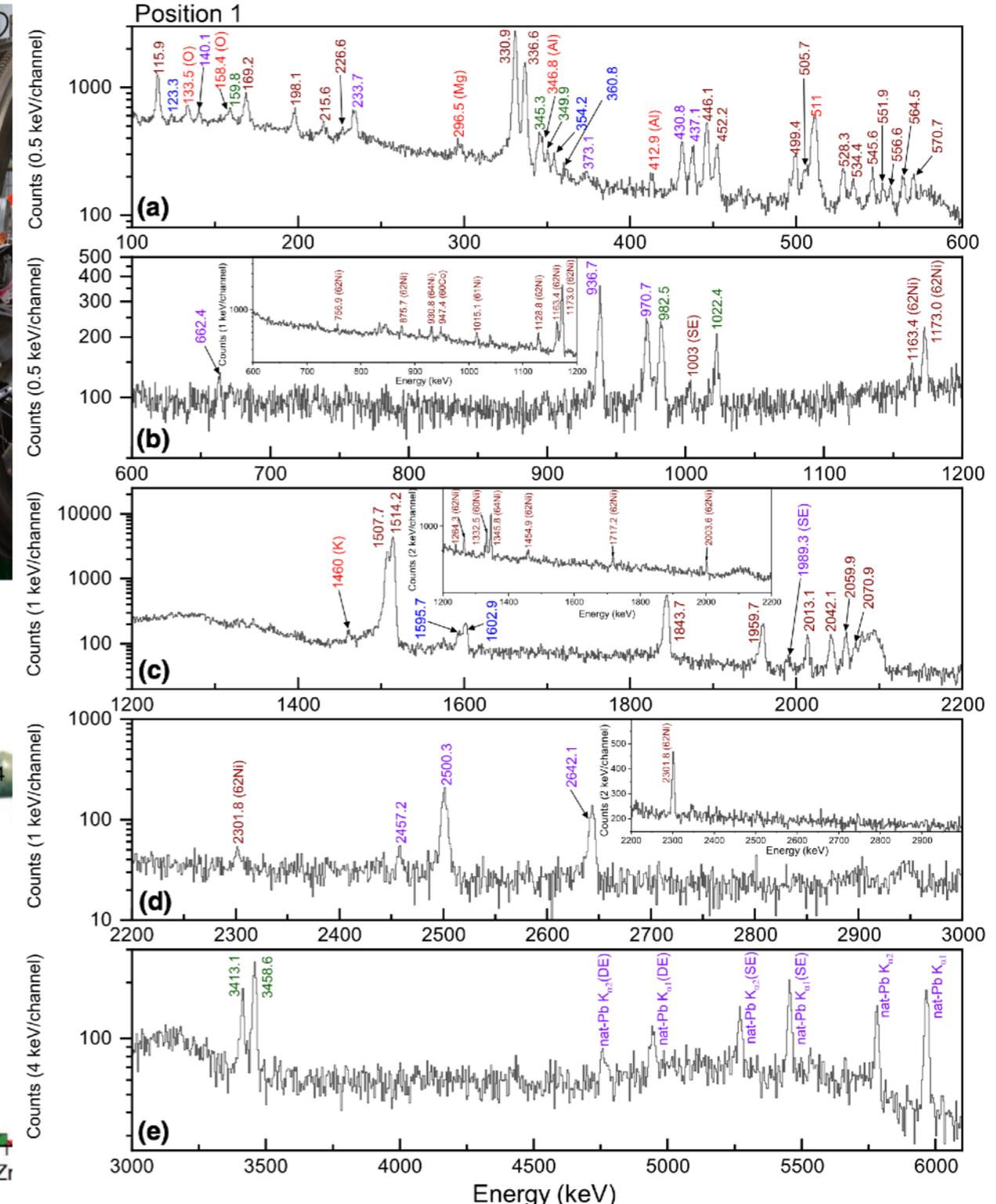
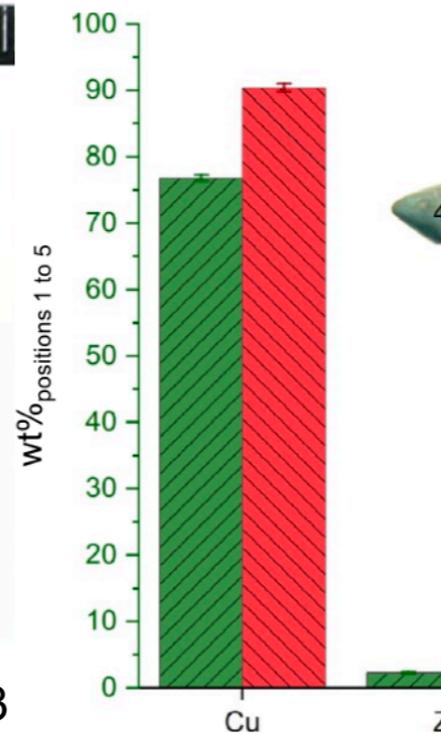
4世紀後半から5世紀のボーガンを模したブローチ

2018年に発掘

(b)



(c)



医療文化財の成分特定



鉛カリガラス容器
厚さ3mm

図4. 測定対象薬瓶

(提供：高橋)

透過性が高い、
薬剤部のみ分析が可能

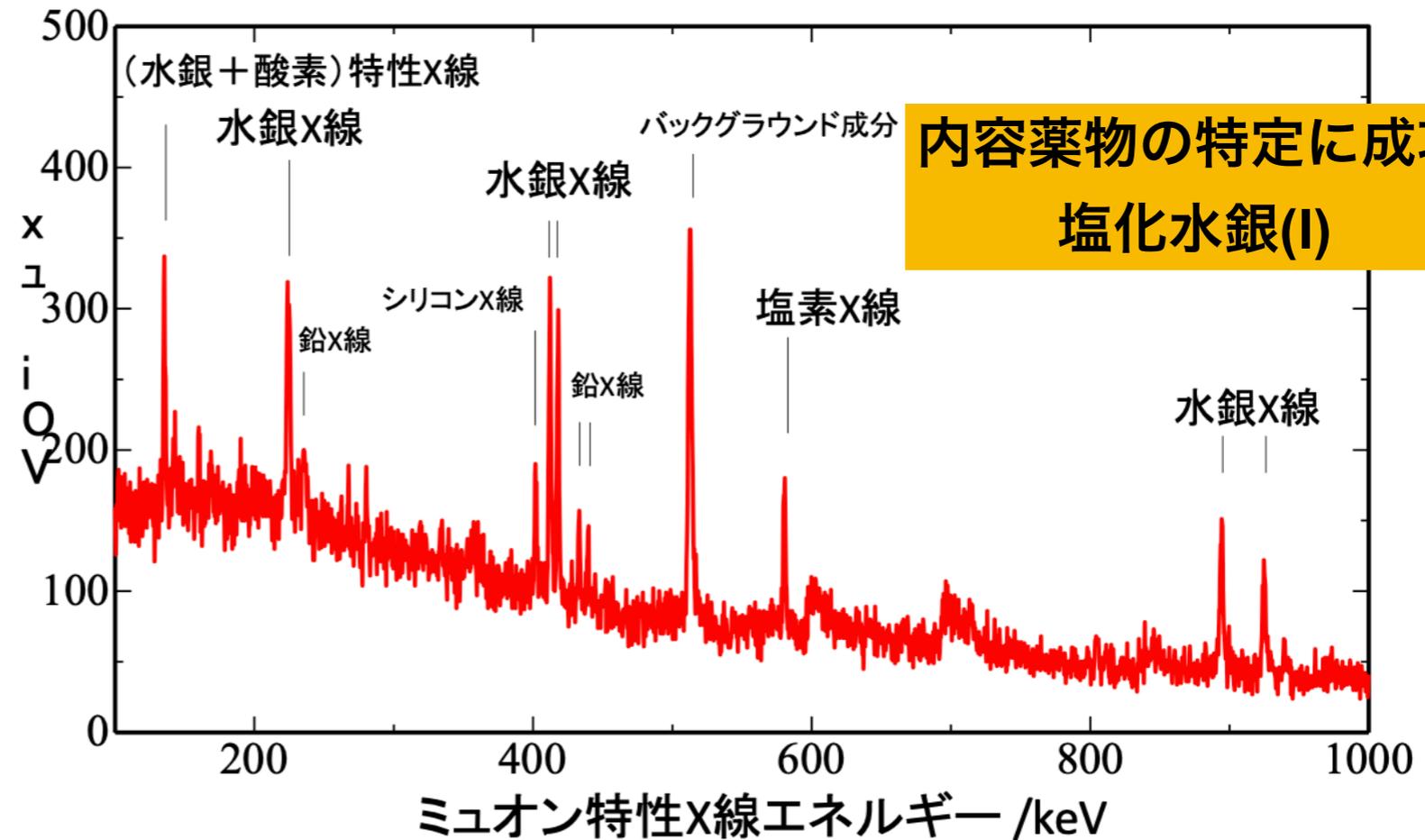


図5. ミュオン特性X線スペクトル



透過率が低い

貴重資料のミュオンX線分析

- ・貴重資料分析は非破壊分析が大前提。
- ・加速器ミュオン施設において、考古学資料・文化財資料の分析が精力的に進められている。
- ・しかし、、、学芸員の方曰く

文化財を持ち出す

・博物館側

- ・最適な保管状態から外れる
 - ・腐敗、損傷、盗難
 - ・輸送時のリスク
 - ・分析時のリスク
- ・時間のかかる持出手続き
 - ・数ヶ月以上
- ・学芸員の付き添い（常時）

・ミュージオン施設側

- ・貴重資料の取扱
- ・適切な使用・保管環境の確保
- ・放射化

・貴重資料をミュージオン施設に持ってくることは多くの場合で容易ではない。(—)

宇宙線ミュージオンを活用し、博物館に居ながらにしてミュージオンX線分析を実施することを提案。

宇宙線ミューオンによる ミューオンX線分析

宇宙線ミュオン

- ・地上での飛来頻度
 - ・ ~ 1 個/cm²/分
 - ・この内約半数が負ミュオン
- ・宇宙線負ミュオンが物質中に停止する頻度
 - ・ ~ 1 個/cm³/5日 for 1g/cm³

数ヶ月の長期測定が必要！可能か？

宇宙線ミュオンを用いたオンサイト非破壊元素分析システムの開発

佐藤 朗 (大阪大学・大学院理学研究科・物理学専攻)

研究協力者：廣川 守 (泉屋博古館・学芸課、館長、考古学)

研究協力者：長柄 毅一 (富山大学・芸術文化学部、教授、文化財科学・金属材料学)

研究協力者：南 健太郎 (岡山大学・埋蔵文化財調査研究センター、助教、考古学)

科学研究補助金・挑戦的研究(開拓) 2019-2021年度：

宇宙線を用いた完全非破壊オンサイト成分分析法の開拓:古代青銅器文化の解明に向けて

概要

文化財資料を全く傷つけることなく、資料内部の成分や同位体比情報を博物館に居ながらにして調べることが出来るオンサイト非破壊分析方法「宇宙線ミュオンX線分析法」を開発する。特に、古代青銅器を対象として、資料の元素組成や鉛同位体比を宇宙線ミュオンを用いて分析する技術確立に挑戦する。2021年度には、開発した分析装置を博物館に設置し、所蔵する青銅器を分析して、鑄造技術や産地同定の可能性を検証する。これまで科学分析の対象にしたいくてもできなかった多くの国宝・重要文化財の定量成分データ、鉛同位体比データを安全に取得する新しい手法を確立することで、考古学、文化財科学、技術史等の研究に貢献したい。

青銅器の組成分析の意義

青銅器組成の科学的分析は、次のような事柄の解明に重要な手がかりを与える。

- 資料の製作時期
- 資料の産地、製作技法の発生・伝播過程

よって、様々な文化財資料の組成分析を進めることが強く望まれている。

文化財資料分析の難しさ

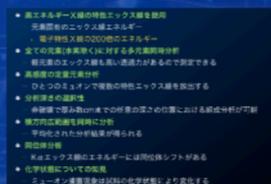
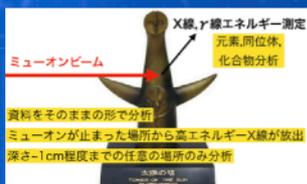
- 資料を非破壊で分析することが原則
- 博物館外へ文化財を移動させることが難しい

よって、貴重な文化財については博物館に居ながらにして分析する必要があり、また、適用できる分析方法には大きな制約がある。
→ 指定文化財については、取得できる科学データがかなり限定されている。

ミュオンX線非破壊元素分析

ミュオンを利用すると、物質内の元素、同位体の構成比や位置分布、化学的状態などの情報を、分析資料に一切ダメージを与えることなく非破壊で分析することができる。

ミュオンX線分析法では、負電荷を持ったミュオンを資料へと入射する。ミュオン特性X線はミュオンが停止した地点から放出される。図1(b)は、青銅中でミュオンが停止する位置、すなわち、分析対象の範囲を示している。ミュオンはある特定の深さに局所的に停止する。つまり、特定の深さのみを分析出来るので、表面の状態に左右されない分析結果を得ることができる。また、放出されるミュオン特性X線のエネルギーは、銅の場合で約1500 keVと高いエネルギーを持ち、透過力が大きいので、深さ1cm程度までの分析が可能である。炭素においても特性X線は76 keVと十分高いエネルギーを持つので、基本的に全ての元素が分析の対象となる。さらに、鉛や錫などの重元素においては、同位体によりミュオン特性X線のエネルギーが大きく変わるため、各同位体のエネルギーに対応するエネルギーのX線の数を調べることで、完全非破壊での同位体分析が可能である。



宇宙線ミュオンX線分析法

本分析方法では、宇宙から地上へとたえず降り注いでいる宇宙線ミュオンを使用する。この宇宙線ミュオンが分析資料中に停止した際に放出するミュオン由来の特性X線のエネルギーを半導体X線検出器で測定することにより、組成成分の分析を行う。

特徴

- 加速器や放射線発生装置を使用せず、博物館等で展示・保管した状態で分析が可能
- 資料を全く傷つけることなく、資料の表面状態に影響されない内部のみの分析が可能
- 炭素などの軽元素から鉛などの重元素までの成分分析、鉛や錫の同位体比分析が可能

開発のポイント

- 数少ない宇宙線ミュオンをいかに効率良く利用して、できるだけ短時間にいかに品質の良いデータを取得するか
- 博物館における貴重な文化財分析であるので、文化財保護の観点からの安全性を考慮したシステムと運用方法が必要

スケジュール

- 2019年度 装置の設計と製作
- 2020年度 装置試験と標準試料による成分分析
- 2021年度 博物館における文化財分析による検証

主な従来分析方法の問題点

組成分析：蛍光X線分析法：資料にX線(一次X線)を照射し、放出される電子特性X線のエネルギーを測定することで、組成分析を行う。

- 電子特性X線は一次X線が通過した位置から確率的に放出されるが、一次X線は資料内部を進むに連れ徐々に資料に吸収されるので、分析結果には資料表面に近い部分の成分が大きく現れる。
- 発生する電子特性X線のエネルギーは銅の場合でも8 keVと小さいので、100μmより深い部分で発生した特性X線は資料内部で吸収されて検出することが出来ない。

よって、蛍光X線分析はごく表面の分析にしか適さない。資料表面に錆や泥が付着している場合は、この表面汚染層の情報が分析結果に顕著に現れることになり、資料内部の成分情報を正確に取得することが出来ない。また、ネオンより軽い軽元素については、特性X線のエネルギーが小さすぎるので分析出来ない。

同位体分析：質量分析法：僅かであるが資料を削り取るサンプル収集がひつようであり、指定文化財には適用できない。

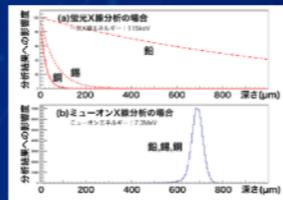


図1：シミュレーション計算：エネルギー115 keVの一次X線を青銅製資料に入射した場合に、資料中のどの深さに存在する成分が分析結果に影響を与えるのか？

こんな分析も出来る！

ミュオンX線分析では、負電荷を持ったミュオンを資料へと入射する。ミュオン特性X線はミュオンが停止した地点から放出される。下図は、青銅中でミュオンが停止する位置、すなわち、分析対象の範囲を示している。ミュオンはある特定の深さに局所的に停止する。特定の深さのみを分析出来るので、表面の状態に左右されない分析結果を得ることができる。保護ケースに入れたまま、試料部分のみ成分分析もできる。

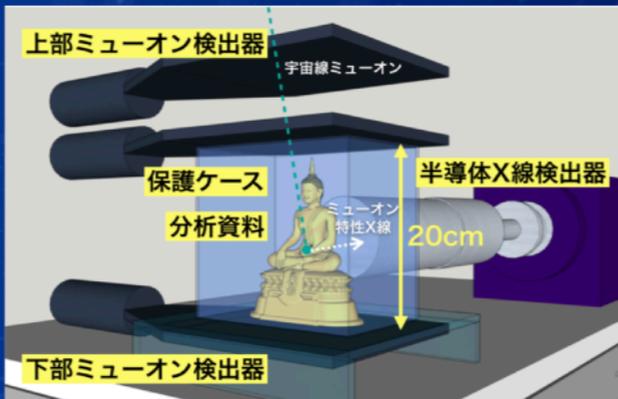
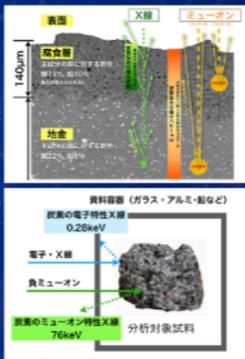


図2：大きさ20cm程度の青銅製仏像を分析する場合の装置配置図。文化財資料をそのまま保護ケースに入れた状態で、資料の上部と下部にミュオン検出器を、側面にX線検出器を配置し、数ヶ月間測定する。放射線発生装置を一切使用しないので、特別な放射線防護対策の必要も無い。

本研究

・ 科研費 挑戦的研究(開拓) 2019-2023

・ 宇宙線を用いた完全非破壊オンサイト成分分析法の開拓:古代青銅器文化の解明に向けて

・ 佐藤 朗 (研究代表者)

- 大阪大学、助教、素粒子・ミュオン科学

・ 廣川 守

- 泉屋博古館、館長、考古学

・ 長柄 毅一

- 富山大学、教授、文化財科学・金属材料学

・ 南 健太郎

- 岡山大学、助教、考古学

・ 文化財資料を全く傷つけることなく、資料内部の成分や同位体比情報を博物館に居ながらにして調べることが出来るオンサイト非破壊分析方法「宇宙線ミュオンX線分析法」を開発。

・ 最終度には開発した分析装置を博物館に設置し、所蔵する青銅器を分析して、鑄造技術や産地同定の可能性を検証。

共同研究者

- ・泉屋博古館

 - ・廣川 守（館長、考古学）

- ・富山大学

 - ・長柄 毅一（教授、文化財科学・金属材料学）

- ・京都橘大学（岡山大学）

 - ・南 健太郎（准教授、考古学）

- ・大阪大学

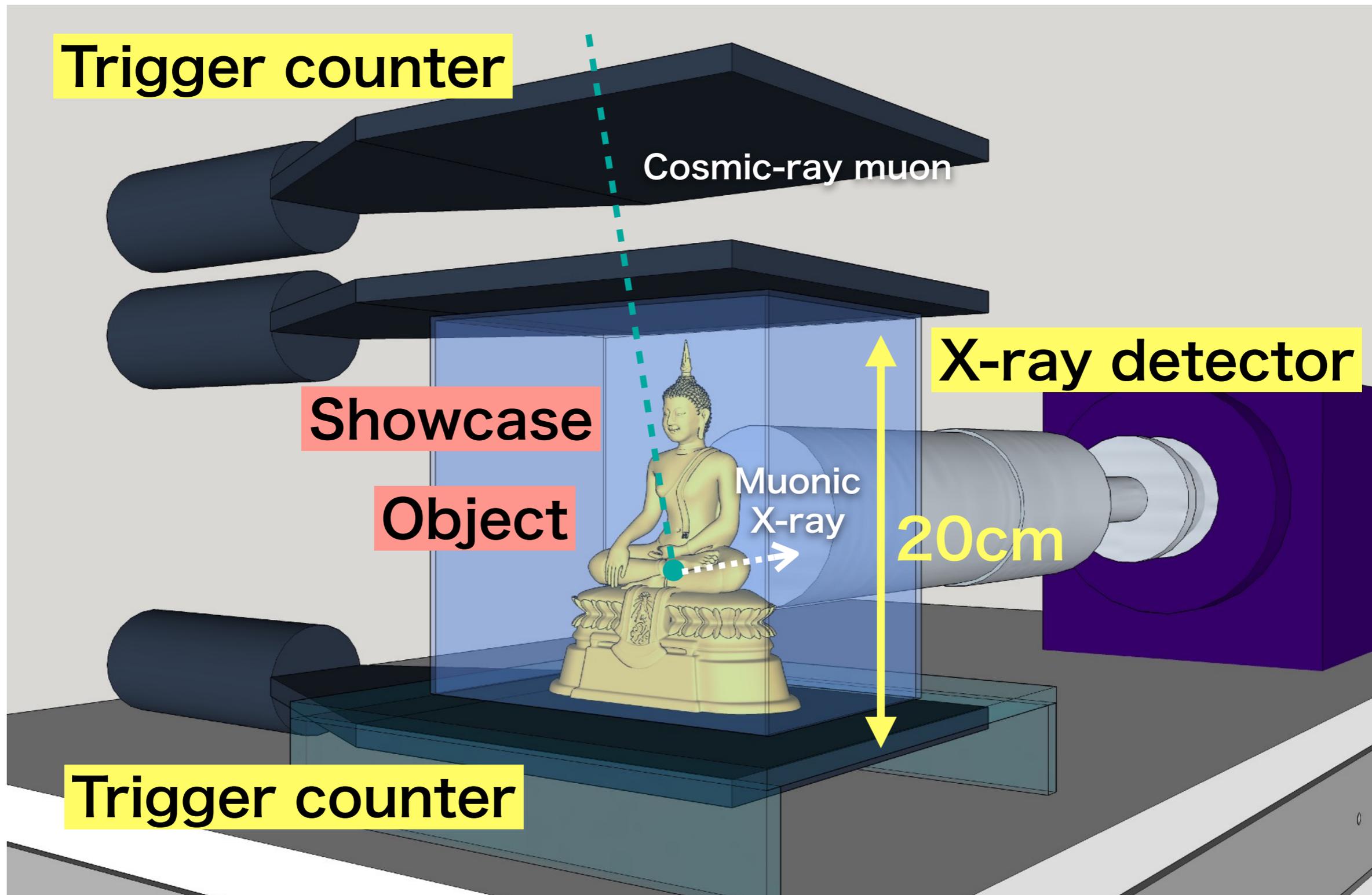
 - ・室田 雄太、西村 由貴、寺田 健太郎（教授、地球宇宙）

- ・科研費

 - ・挑戦的研究(開拓)（佐藤） JP19H05479 (20K20412)

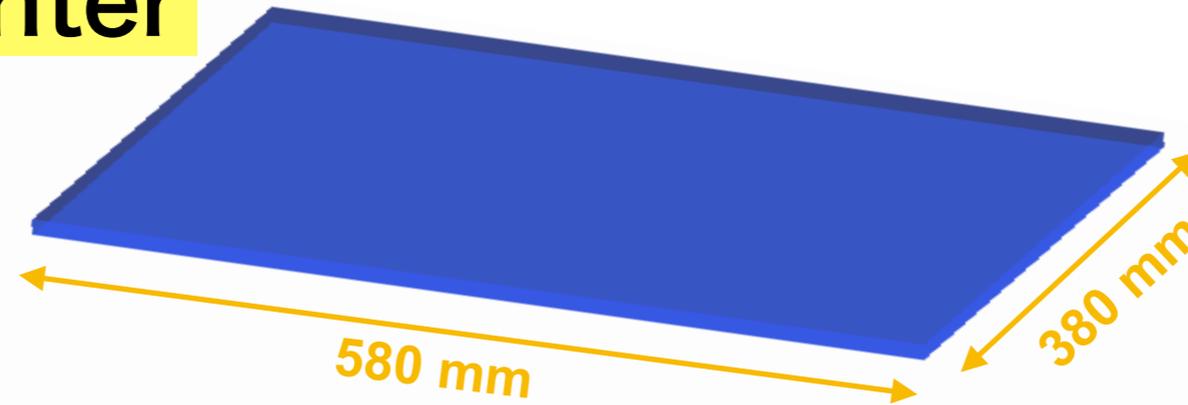
 - ・基盤A（寺田） JP18H03739

測定のご概念図



実証機：製作

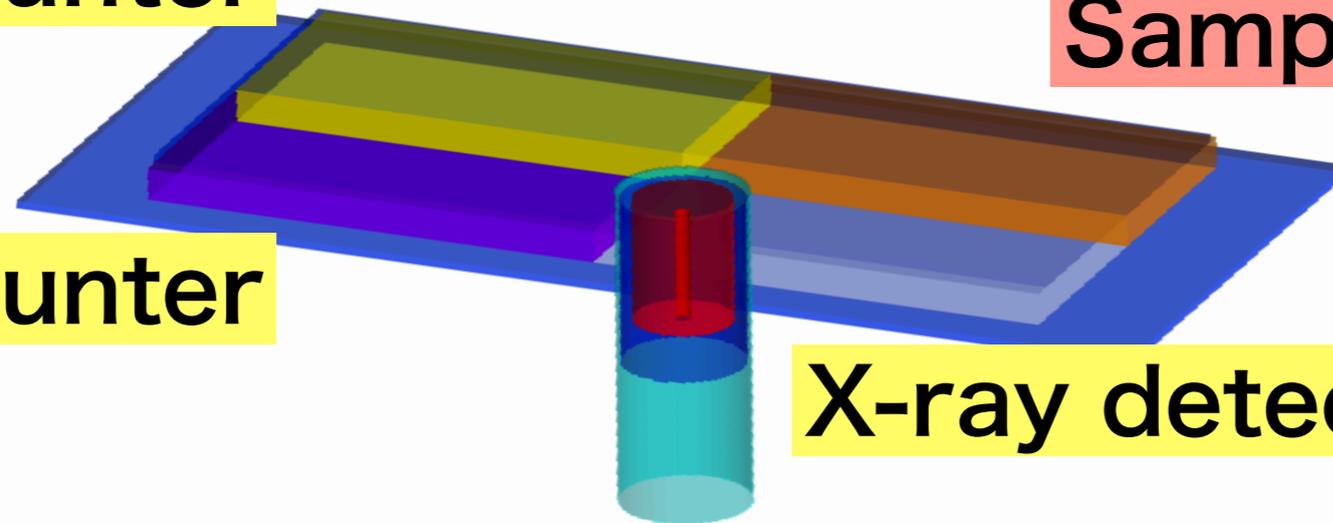
Trigger counter



Trigger counter

Samples x4

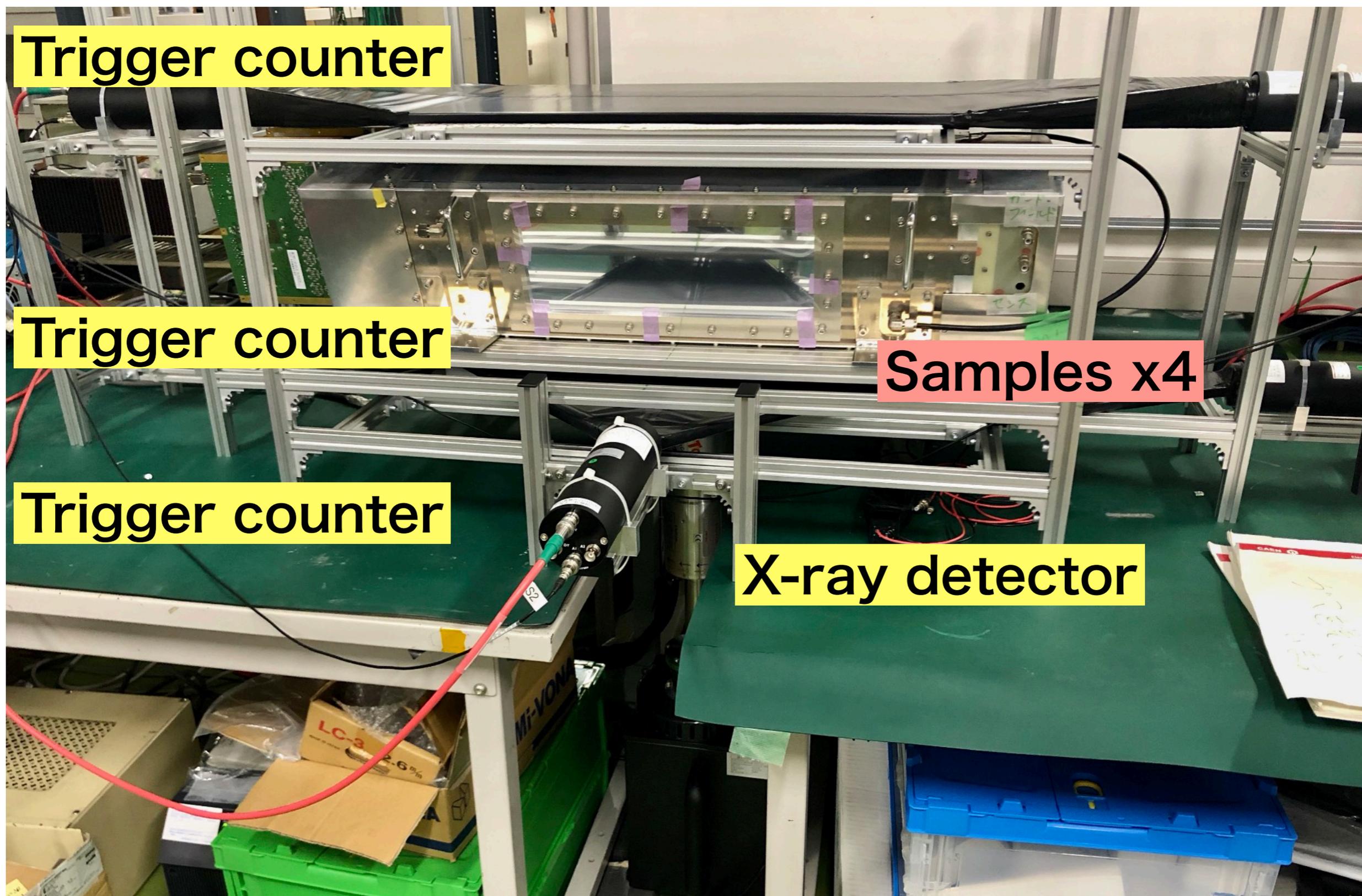
Trigger counter



X-ray detector

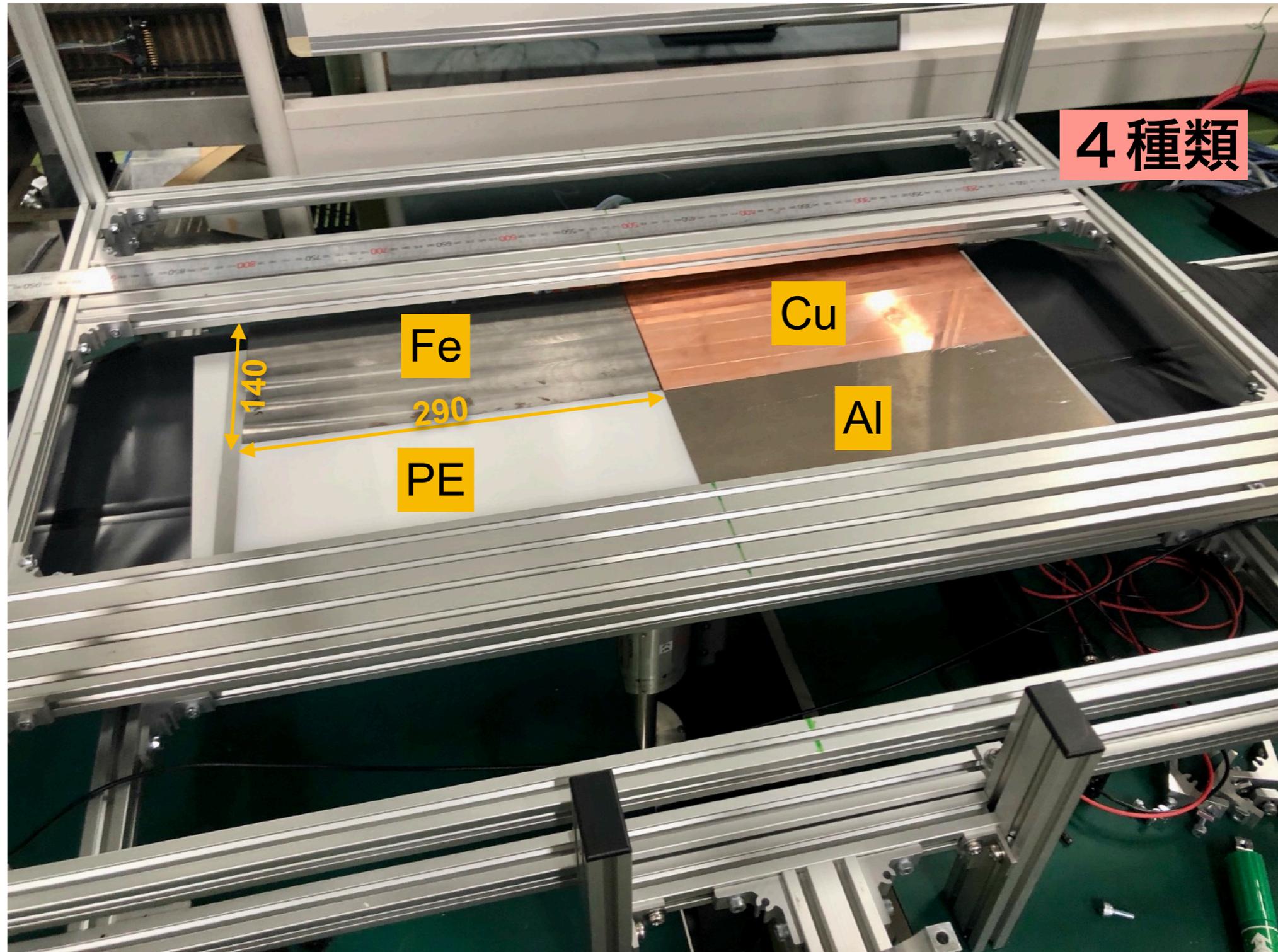
- ・まずは、実証機を製作して、4種類の純物質試料を実測し、問題点などを洗い出すことにした。

実証機：写真



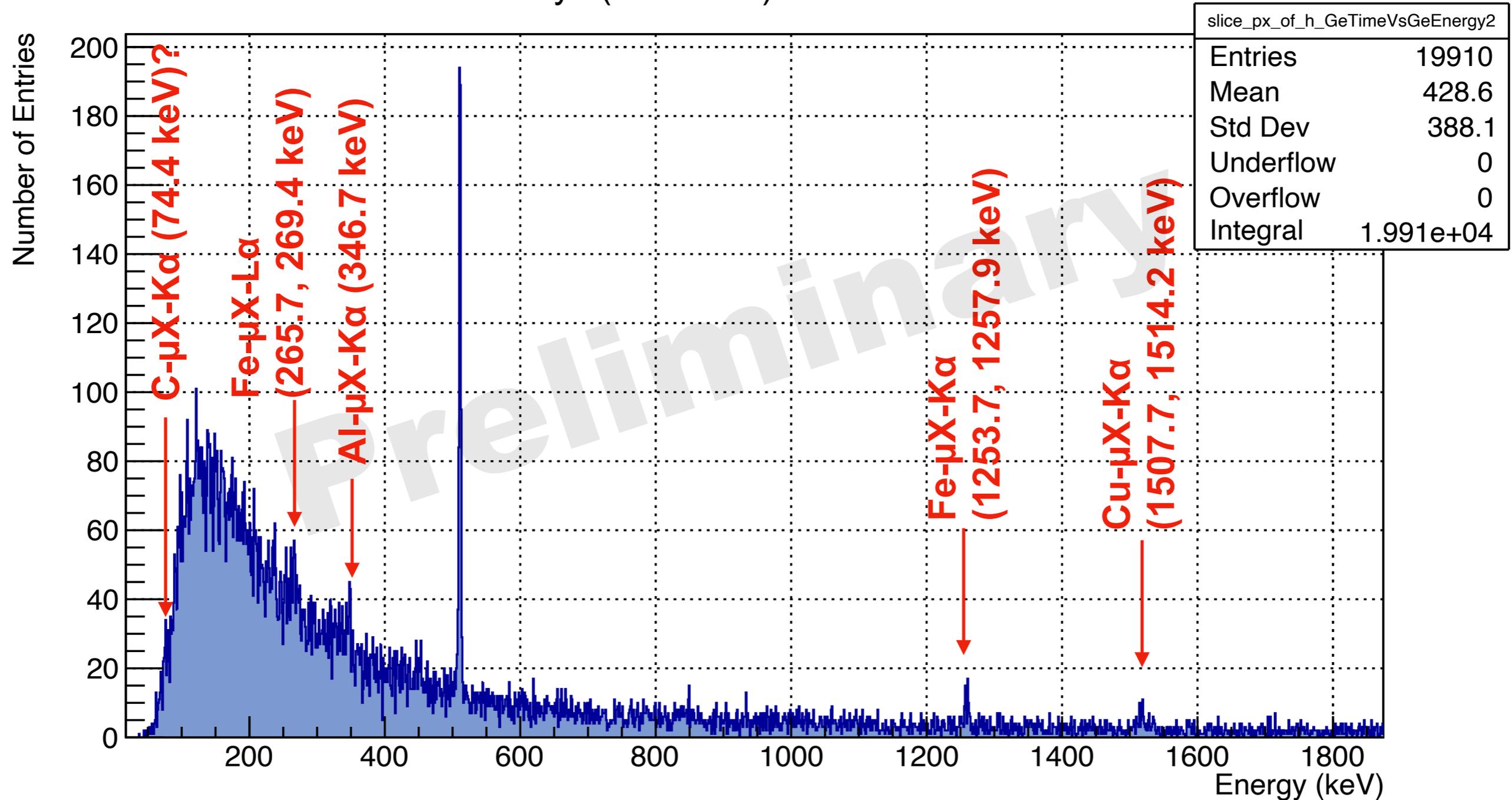
実証機：試料

- ・純物質の板: 290mm x 140mm x t20mm



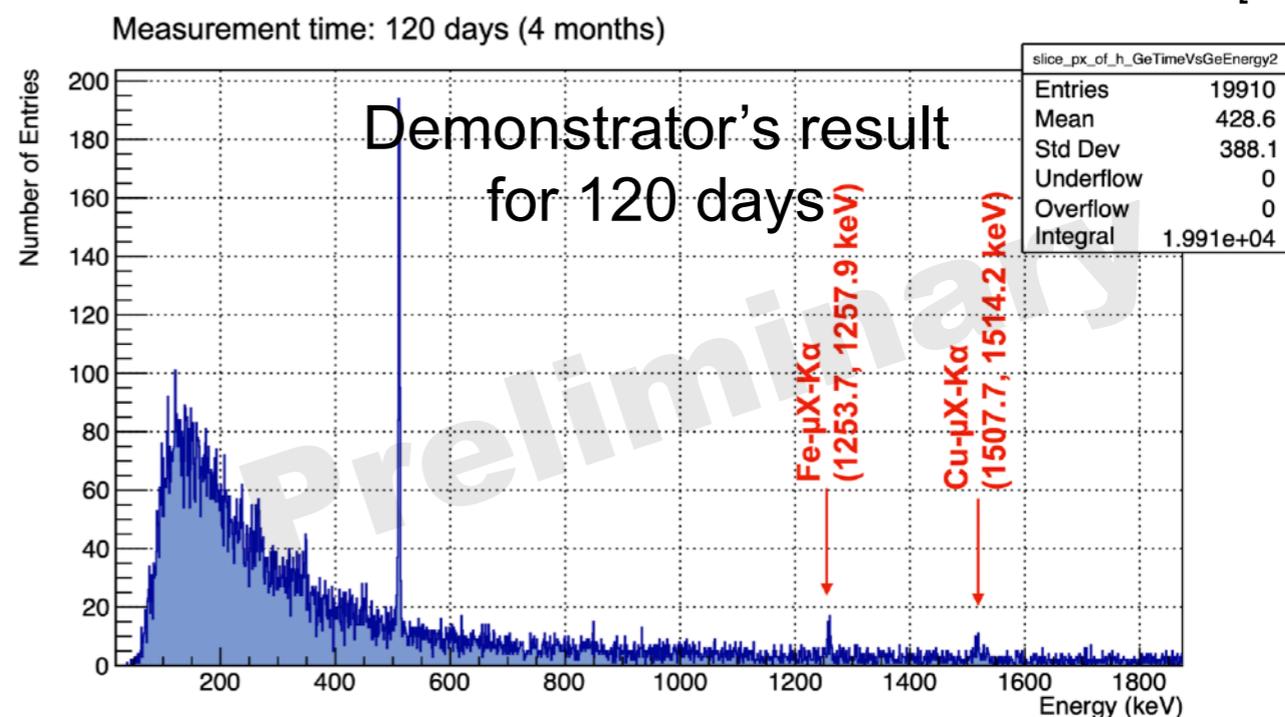
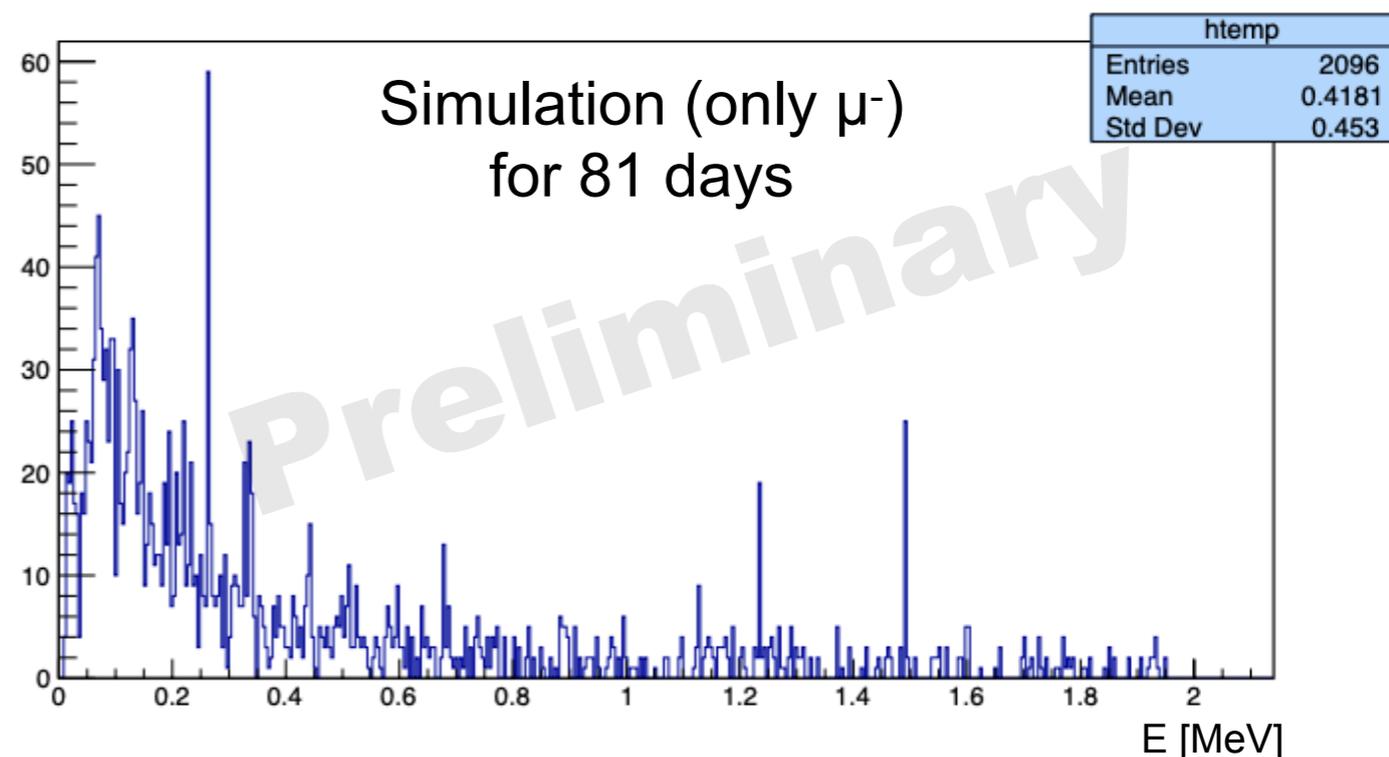
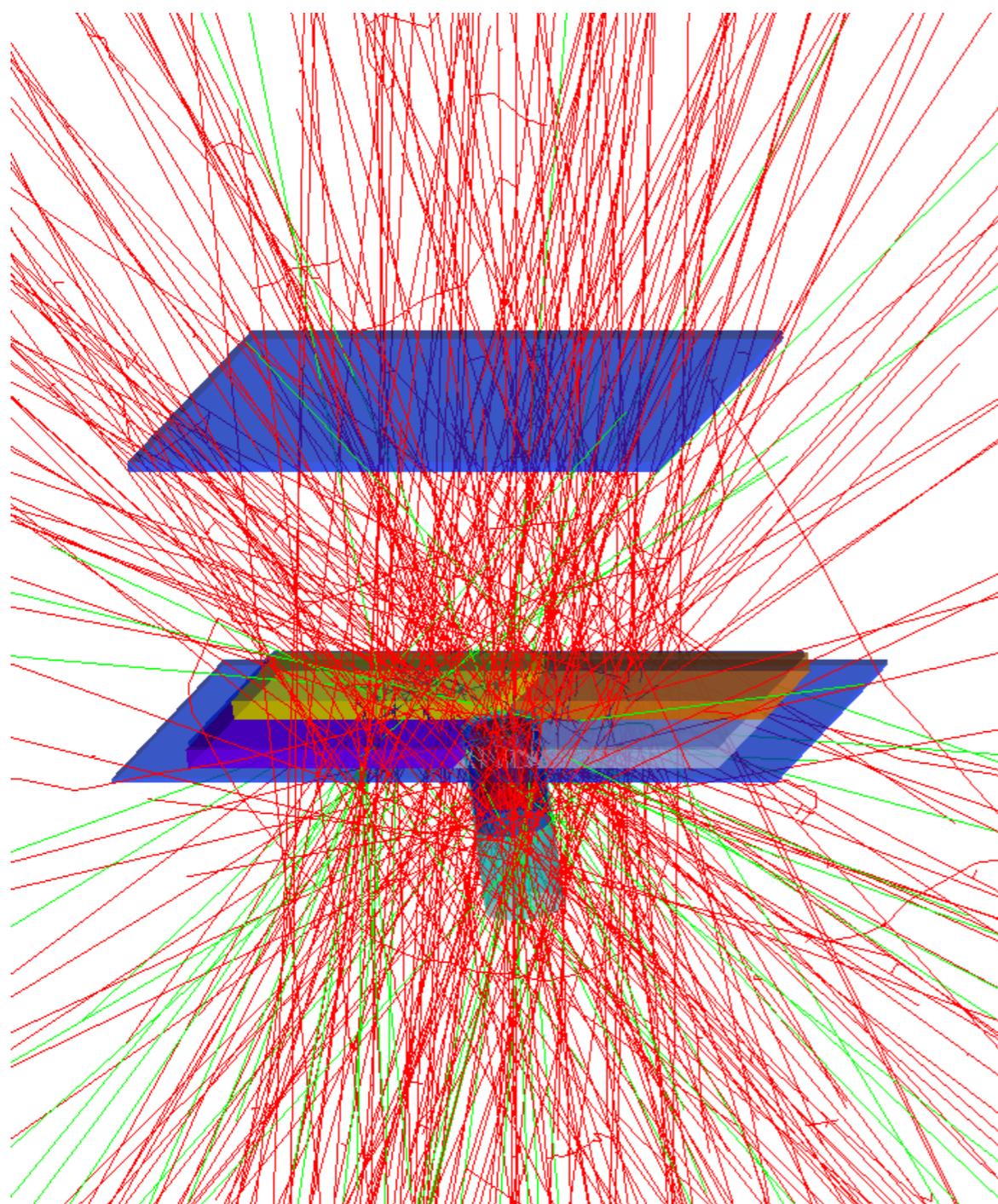
実証機：測定結果

Measurement time: 120 days (4 months)



実証機：シミュレーション

- ・実証機の体系をGeant4に組み込み込んだモンテカルロ計算の結果と実測のスペクトラムを比較する。

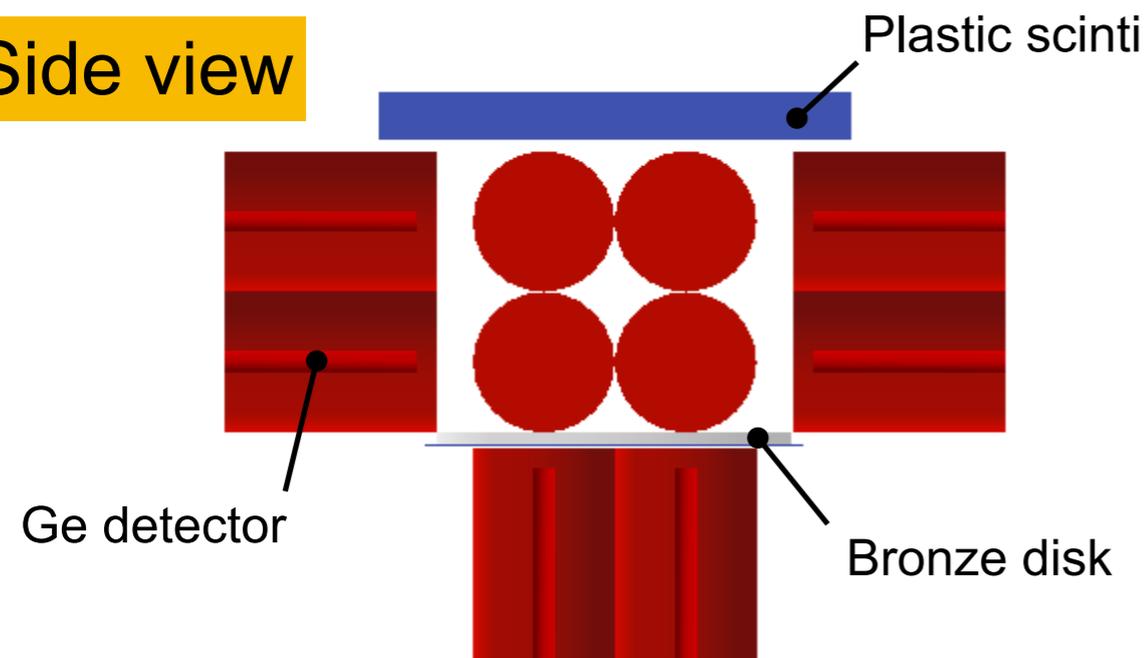


実証機測定より

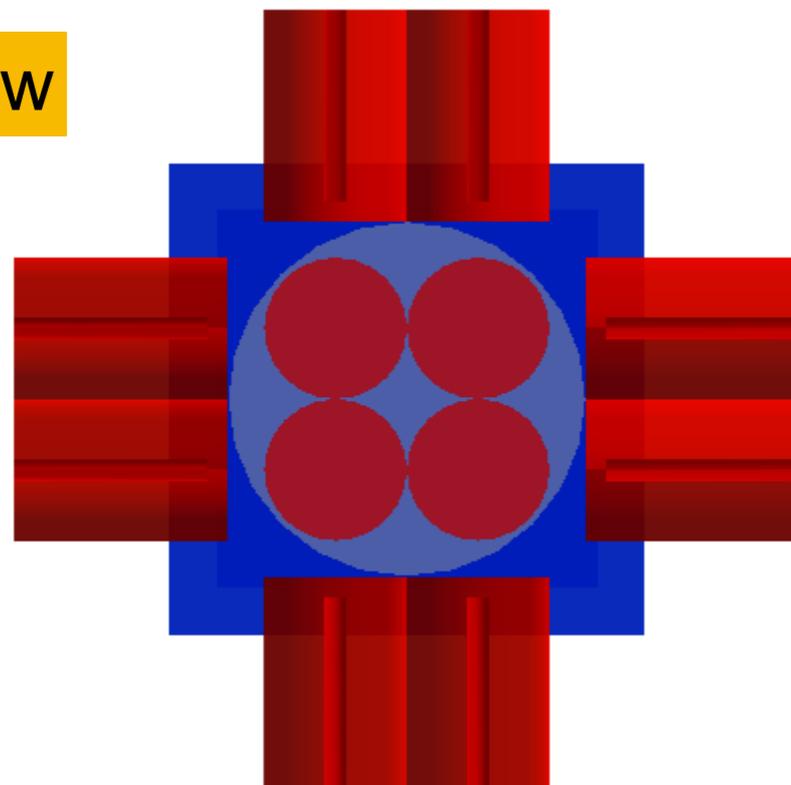
- ・高エネルギー領域のピーク観測に成功。
 - ・重い元素の分析はできそう。
 - ・Cu, Fe, Sn, Pb ...
 - ・やはり統計的に厳しい。
 - ・装置形状の最適化が必要
 - ・X線検出器の立体角増大が鍵
- ・低エネルギー領域ではS/Nが厳しい。
 - ・背景事象の原因は何か？ μ^+ , e^\pm , 中性子？
 - ・軽元素の分析に重要
 - ・C, O, N, Al ...

大立体角検出器シミュレーション

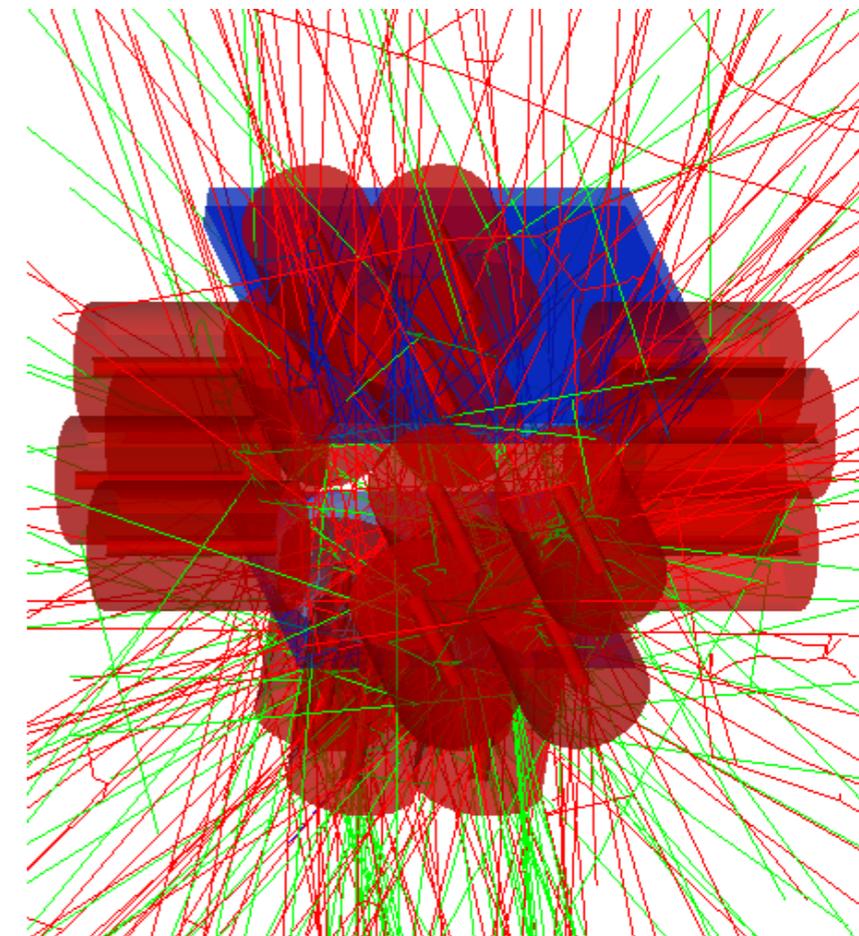
Side view



Top view

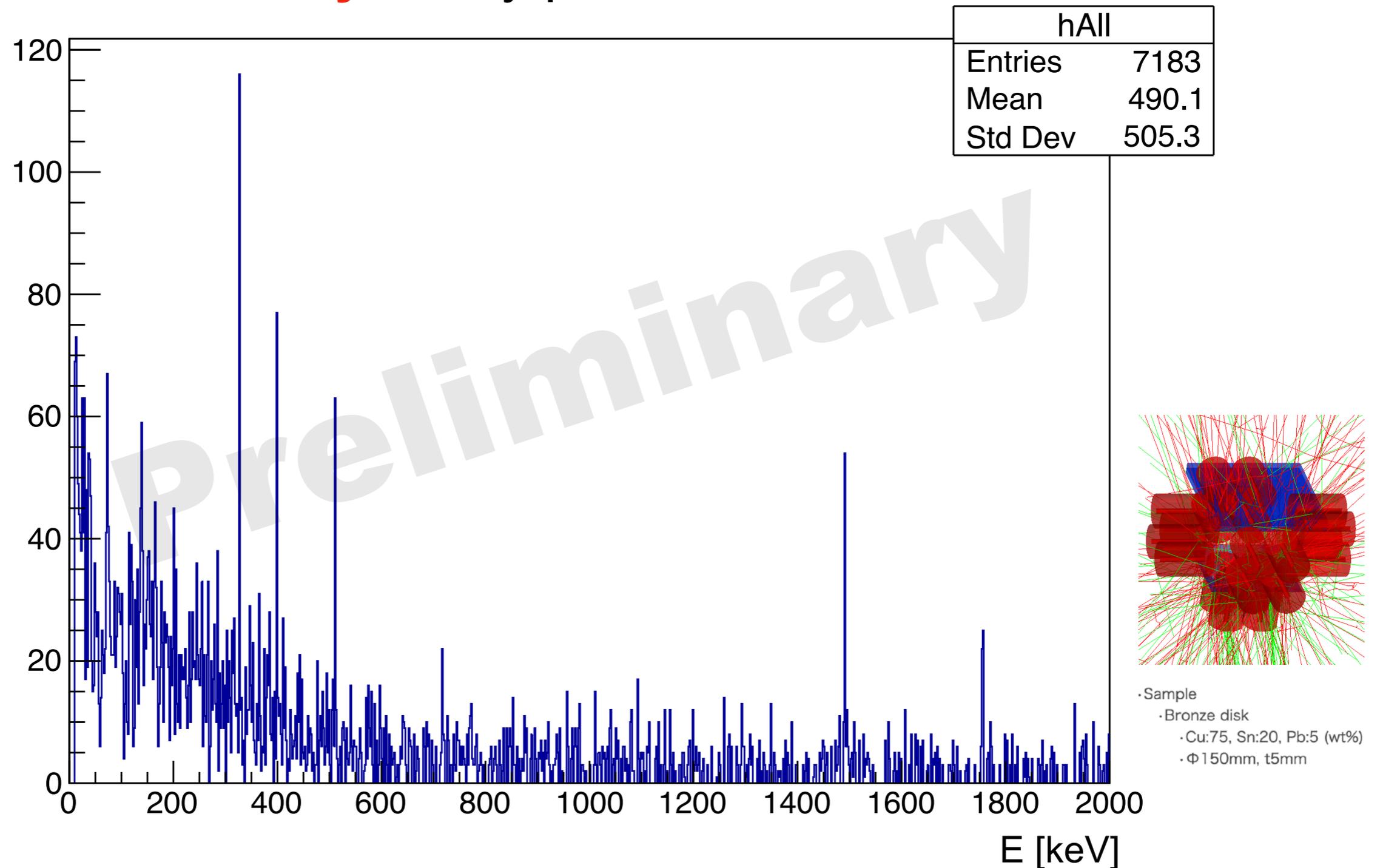


- ・統計数を向上
 - ・X線検出器数：20個
- ・想定試料
 - ・青銅製円盤
 - ・Cu:75, Sn:20, Pb:5 (wt%)
 - ・ Φ 150mm, t5mm
- ・測定時間
 - ・12 日
 - ・120 日



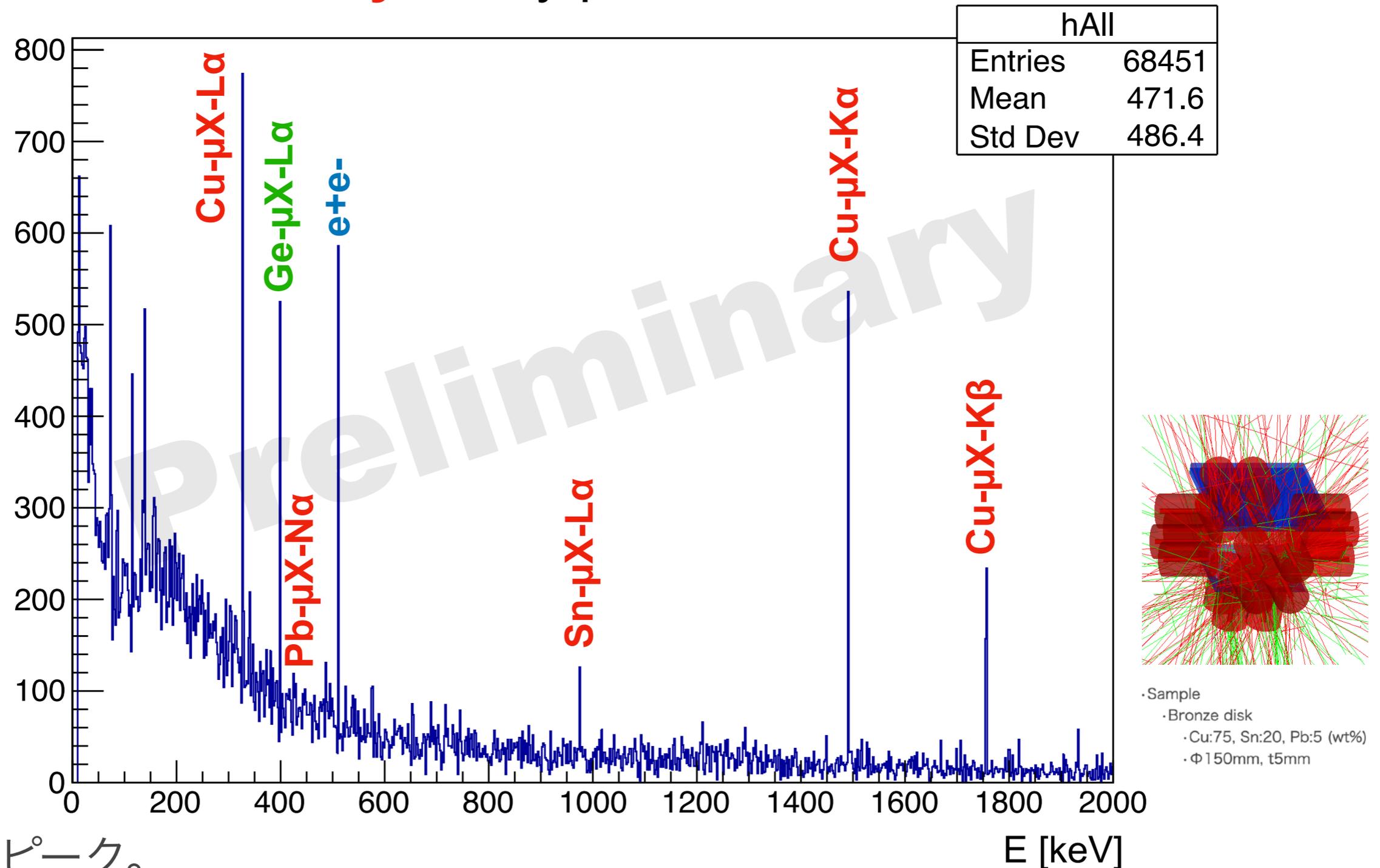
大立体角検出器シミュレーション

Simulation for **12 days**, only μ^-



大立体角検出器シミュレーション

Simulation for **120 days**, only μ^-



- ・明瞭なピーク。
- ・ μ^+ , e^\pm , 中性子などによる背景事象の検討も必要。

今後の予定

・実証機1号機

- ・資料無しデータを取得し、比較する

・実証機2号機：博物館での実測用

- ・小型化
- ・まず、阪大で模擬試料で測定する
- ・泉屋博古館で実資料を測定する(2023年)

・実証機3号機

- ・X線検出器の数を増やし、背景事象削減の検討(2023年)

・シミュレーション

- ・背景事象削減の検討

・その他

- ・予算を獲得し、大型実機を製作？
- ・他の応用を検討

まとめ

- ・貴重資料のミュオン非破壊元素分析を博物館に居ながらにして実施可能にすることを目指し、宇宙線ミュオンを使ったミュオンX線分析装置を開発している。
- ・実証機とシミュレーションで実現性を確認した。
- ・2023年には実際に京都泉屋博古館で所蔵資料を測定する。
- ・コンクリートインフラ構造物の内部調査も検討中。