

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

「宇宙線で繋ぐ文明・地球環境・太陽系・銀河」研究会

2022/10/25~26 @京都大学



内容

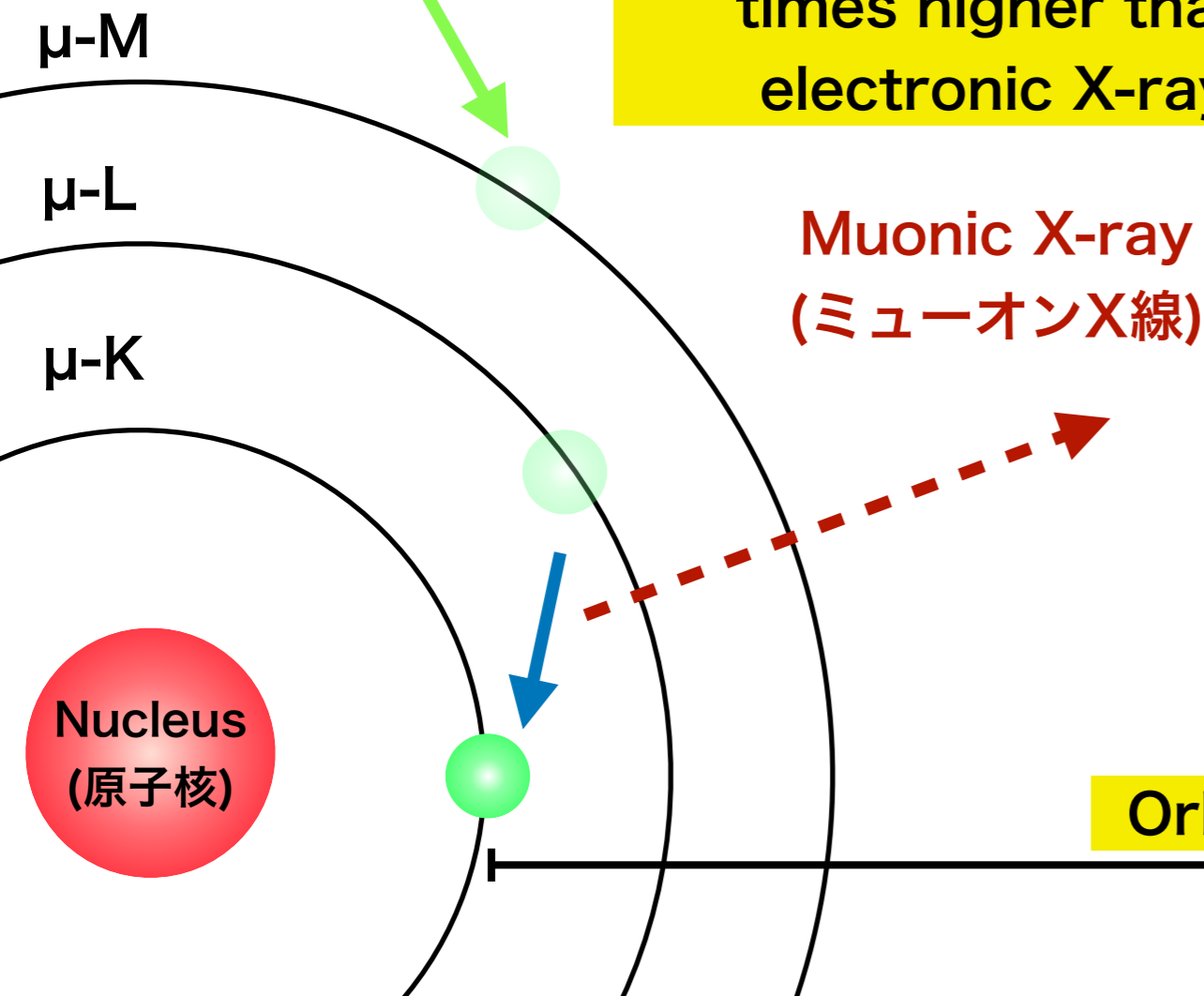
- ・ ミューオンX線非破壊分析
- ・ 貴重文化財の化学分析
- ・ 宇宙線ミューオン

- ・ 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線とは

- ・ミュオン原子が放出する特性X線

Muon
(ミュオン)



X-ray energy is 207 times higher than electronic X-ray

Muonic X-ray
(ミュオンX線)

Orbit radius r_n is 1/207

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

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

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

Bohr model

ミュオンX線非破壊分析

X-rays, γ -rays

元素, 同位体比,
化学状態

負ミュオンビーム

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 (up to ~10mm)

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

貴重文化財は一切傷つけてはいけない。非破壊分析が必須である。

非破壊で資料深部の軽元素も分析出来る、ミュオンX線分析が高い注目を集めている。

貴重資料の化学分析

- ・非破壊分析が大前提。
 - ・ミュオンなら可能!

ミュオンX線分析が実施可能な加速器施設





本研究成果は論文掲載先である「Scientific Reports」から、以下の通り報道解禁決定があります。
TVラジオ・NHK ……11月13日(月)午後7時(日本時間)
新聞 ……11月14日(火)朝刊(日本経済)

平成29年11月13日

分野:自然科学系 キーワード:ミューオン特性 X線分析、非破壊分析、地球外物質、大阪大学核物理研究センター

素粒子ミューオンの連続ビームによる、 太陽系誕生時の有機物を含む隕石の非破壊分析に成功！

【施設見学会：11月27日(月)14時～@核物理研究センター(吹田キャンパス)】

【研究成果のポイント】

- ◇大阪大学核物理研究センターで世界最高効率の大強度ミューオン^μビーム生成装置 MuSIC²⁰¹⁷の開発に成功し、日本初の DC ミューオンビーム²⁰¹⁷を用いた非破壊物質分析を開始！
- ◇「はやぶさ2²⁰¹⁸」が持ち帰る小惑星物質のキャラクタリゼーションを想定した、炭素質コンドライト隕石²⁰¹⁸の非破壊定量分析に成功！
- ◇試料を壊すことなく内部の炭素濃度を定量分析できるため、考古学、材料科学などへの応用にも期待。

◇ 概要

寺田健太郎教授(大阪大学大学院理学系研究科宇宙地球科学専攻)、佐藤朗助教(同物理学専攻)および二宮和彦助教(同化学専攻)らの研究チームは、大澤崇人主任研究員(日本原子力研究開発機構)及び橋本吾教授(当時:北海道大学(現:東京大学大学院理学系研究科))他と協力し、大阪大学核物理研究センターで開発された新しい DC ミューオンビーム(図1)を用いたミューオンX線分析法により、**有機物を含む炭素質コンドライト隕石** (Jbilet Winselwan の Mg(マグネシウム)、Si(ケイ素)、Fe(鉄)、O(酸素)、S(硫黄)、C(炭素)の非破壊定量分析に成功しました。この世界に類を見ない革新的な分析手法は、試料を壊すことなく内部の炭素濃度を定量分析(透視)できるため、小惑星からの回収サンプルのような希少なサンプルの初期分析(キャラクタリゼーション分析)に応用できるほか、考古学、材料科学など、様々な分野への応用が期待されます。

本研究成果は、英国科学誌「Scientific Reports」に2017年11月13日19時(日本時間)にオンライン公開されます。(論文題目「Non-destructive elemental analysis of a carbonaceous chondrite with direct current Muon beam at MuSIC」)

また本件に関し、11月27日(月)14時から核物理研究センター(吹田キャンパス)にてミューオン施設 MuSIC の見学会を開催します。是非とも取材方よろしくお願ひ申し上げます。

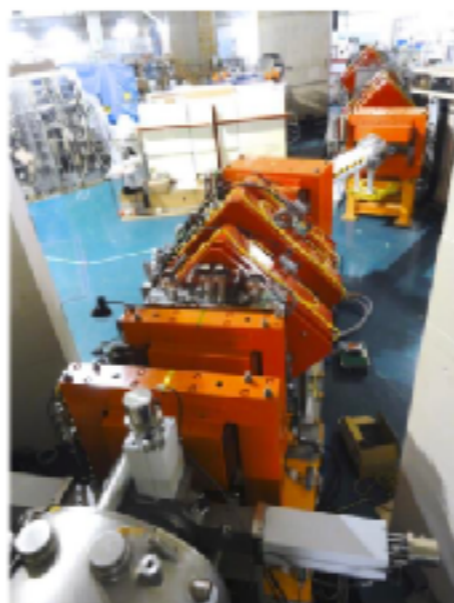


図1: 大阪大学 MuSIC のビームライン

ミューオンX線非破壊分析

バルク試料の組成や化学状態を短時間でしらべることが出来る。

隕石分類
化合物化学状態

SCIENTIFIC REPORTS

OPEN Non-destructive elemental analysis of a carbonaceous chondrite with direct current Muon beam at MuSIC

Received: 5 September 2017

Accepted: 27 October 2017

Published online: 13 November 2017

K. Terada¹, A. Sato¹, K. Ninomiya¹, Y. Kawashima², K. Shimomura^{1,3}, G. Yehida^{1,3}, Y. Kawai¹, T. Oawa⁴ & S. Tachibana^{1,4}

Electron- or X-ray-induced characteristic X-ray analysis has been widely used to determine chemical compositions of materials in vast research fields. In recent years, analysis of characteristic X-rays from muonic atoms, in which a muon is captured, has attracted attention because both a muon beam and a muon-induced characteristic X-ray have high penetration abilities. Here we report the first non-destructive elemental analysis of a carbonaceous chondrite using one of the world-leading intense direct current muon beam sources (MuSIC) at Muon Science Innovative Channels. We successfully detected characteristic muonic X-rays of Mg, Fe, O, S and C from Jbilet Winselwan CH chondrite, of which carbon content is about 13 wt%, and the obtained elemental abundance pattern was consistent with that of CH chondrites. Because of its high sensitivity to carbon, non-destructive elemental analysis with a muon beam can be a novel powerful tool to characterize future returned samples from carbonaceous asteroids.

医療文化財の成分特定

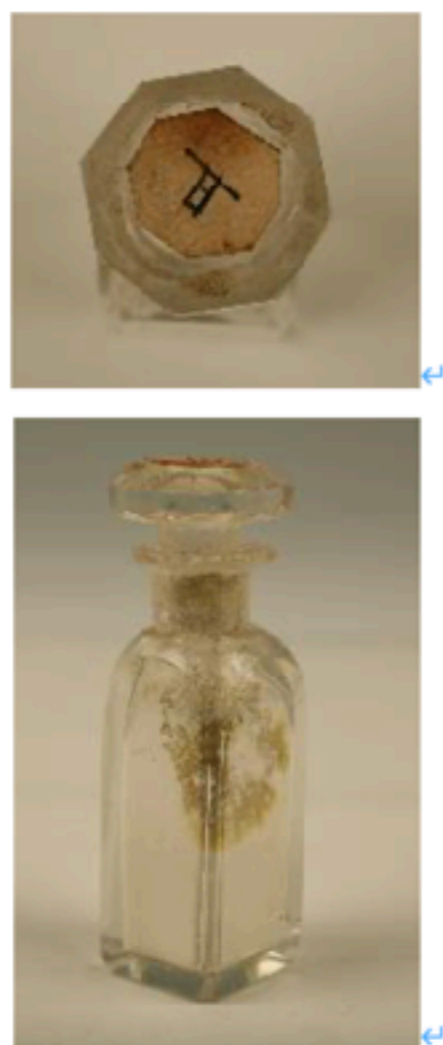


図 4. 測定対象薬瓶
(提供：高橋)

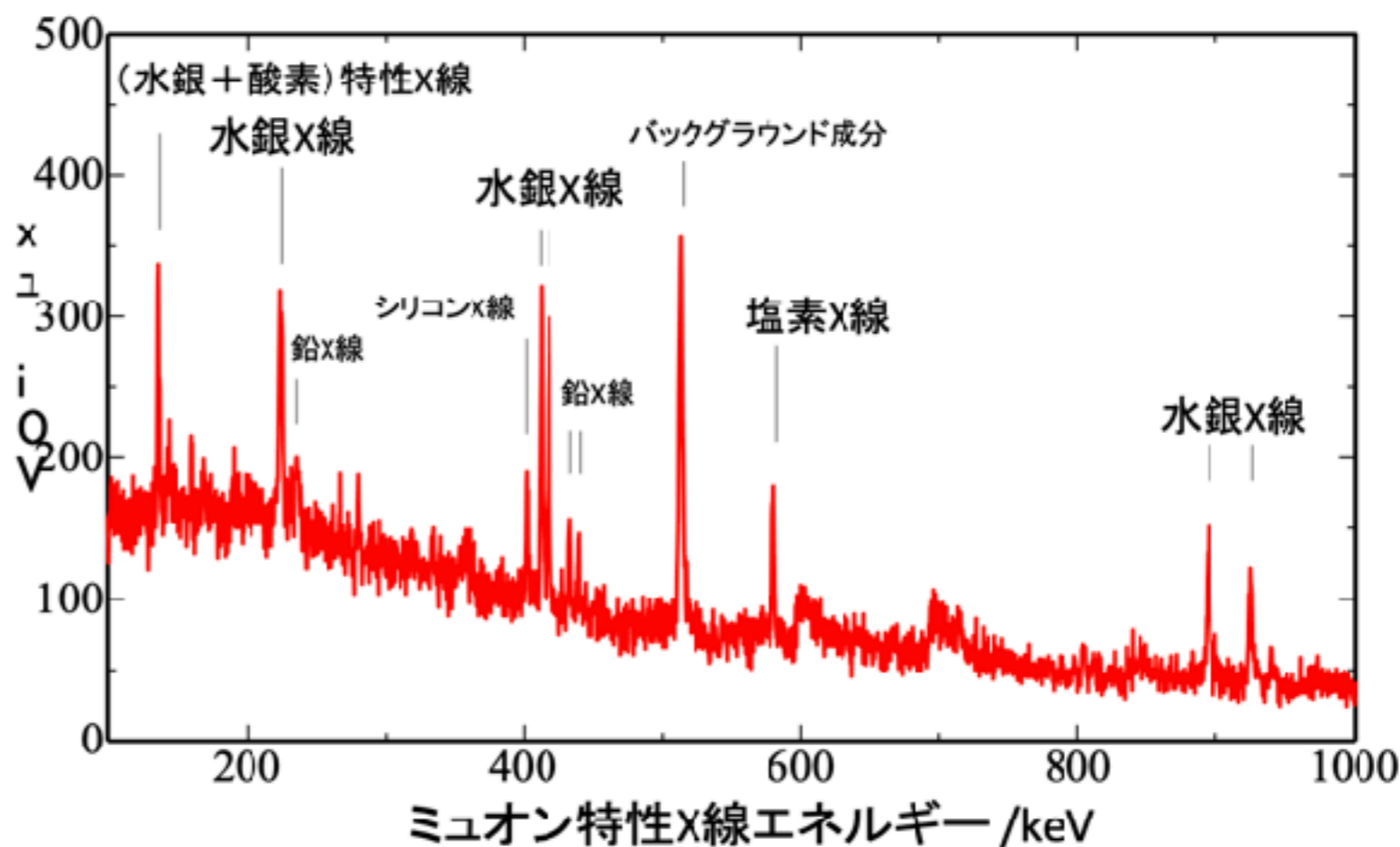


図 5. ミュオン特性 X 線スペクトル

ふたが開かない薬瓶 中身の解明に挑む

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
- ・学芸員の付き添い（常時）

・ミュージアム施設側

- ・貴重資料の取扱
- ・適切な使用・保管環境の確保
- ・放射化

- ・非破壊分析が大前提。
 - ・ミューオンなら可能!
- ・博物館から資料を持つ出すには、膨大な手続きと準備が必要で、数ヶ月以上かかる。
- ・貴重資料をミュー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。(ー_ー)

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

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・学芸員、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・歴史文化財調査研究センター、助教、考古学)

科学研究費助成金・長柄毅一研究(開始) 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発: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出来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、次のような事例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
- 製作技術の発生・伝播経路

よって、様々な文化財資料の組成成分を効率的に調べることが強く望まれている。

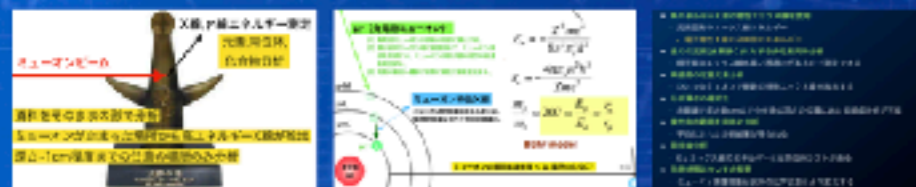
文化財資料分析の課題

- 資料を非破壊で分析することが難しい
 - 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、適用できる分析手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、同位体の組成比や濃度分布、金学的状態などの情報を、分析資料に一切ダメージを与えずに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(a)は、青銅中でミュオンが停止する位置、すなわち、分析対象の断面を示している。ミュオンはある特定の層に選択的に停止する。つまり、特定の層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出来る。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、透過力が高いため、厚さ1cm程度までの分析が可能である。実際においても特性X線は76 keVと十分な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、鉛同位体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

本分析手法では、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応用する。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、資料の表正状態に影響されない内部のみの分析が可能
- 鉛同位体比や銅同位体比などの重元素までの成分分析、鉛同位体比や銅同位体比が可能な。

開発のポイント

- 数少ない宇宙線ミュオンをいかに効率よく利用して、できるだけ短時間でいかに品質の高いデータを取れるか
- 博物館における貴重な文化財の分析であるので、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線が透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つれ徐々に資料に吸収されるので、分析結果には資料位置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放出することが出来ない。

よって、指定X線分析法はごく表面の分析にしか過ぎない。資料表面に鉛や銅が析出している場合は、この表面析出物の情報が分析結果に大きく現れることになり、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、ホオンより軽い鉛元素については、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採取が必須であり、指定文化財には適用できない。

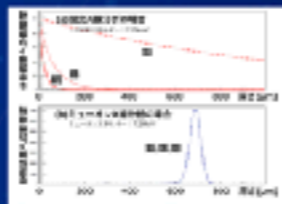


図1: シミュレーション結果。エネルギー1150 keVの一次X線を青銅器資料に入射して発生する特性X線のエネルギー分布を示している。

こんな分析も出来る!

ミュオンX線分析法では、食器物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、分析対象の断面を示している。ミュオンはある特定の層に選択的に停止する。つまり、特定の層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出来る。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。

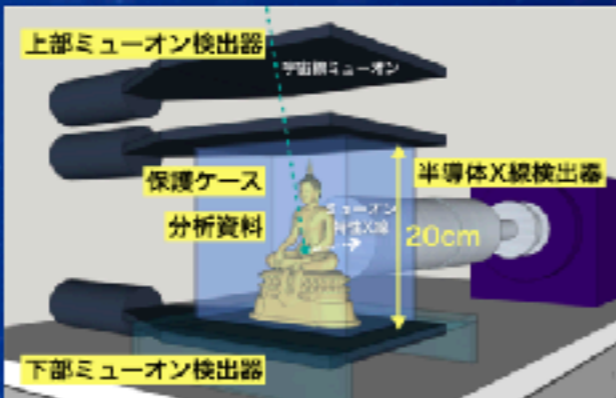
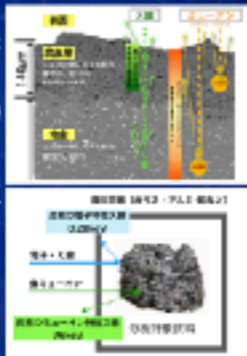
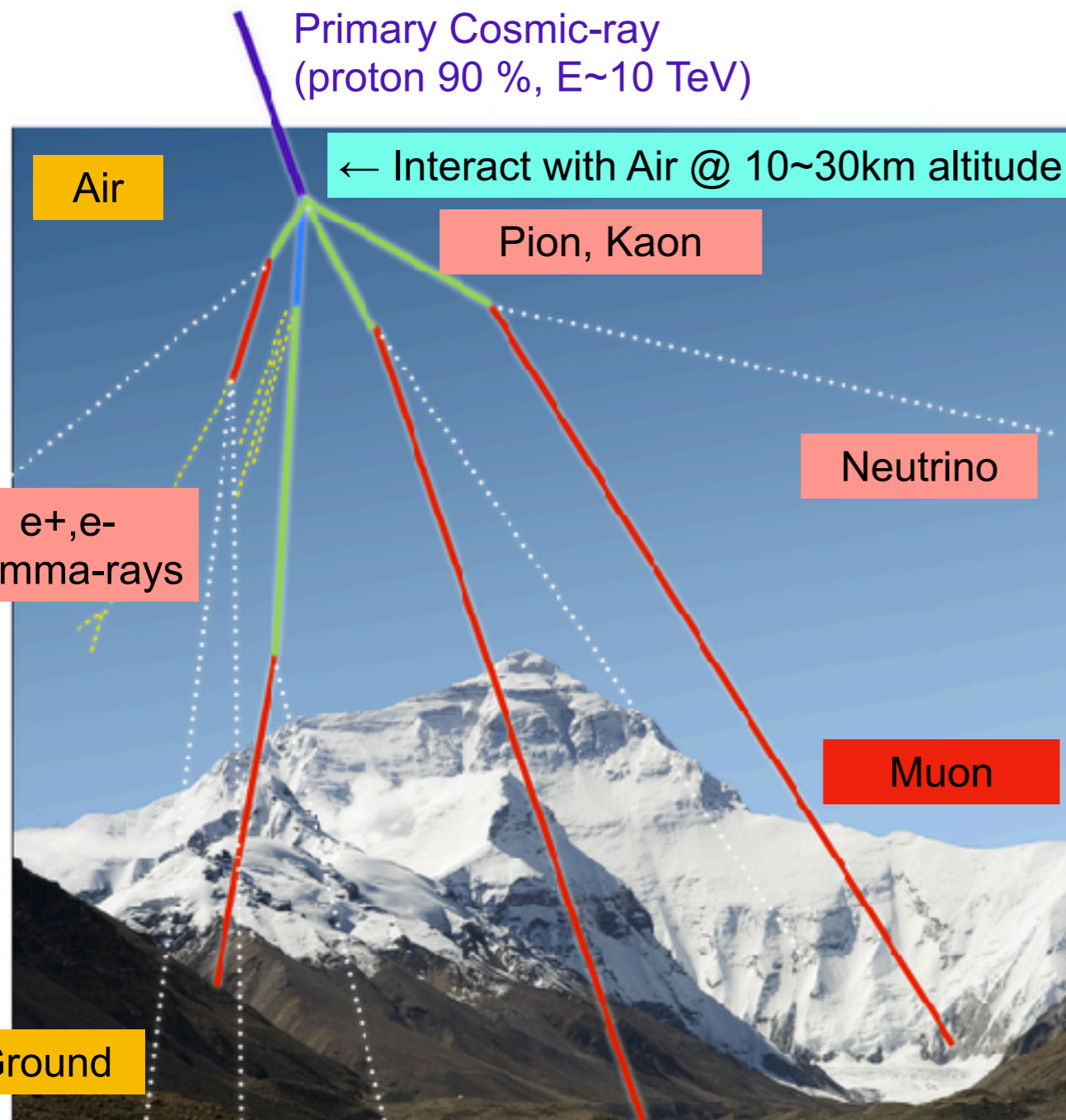


図3: ミュオンX線分析法の装置構成。上部に上部ミュオン検出器、下部に下部ミュオン検出器があり、中央には分析資料が保護ケース内に設置されている。検出器間の距離は20cmである。

本研究

- 科研費 挑戦的研究(開拓) 2019-2021
 - 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。
- 2022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。

Cosmic-ray Muons



• Features of the CR muons

• pros

- Anytime, anywhere on the earth!

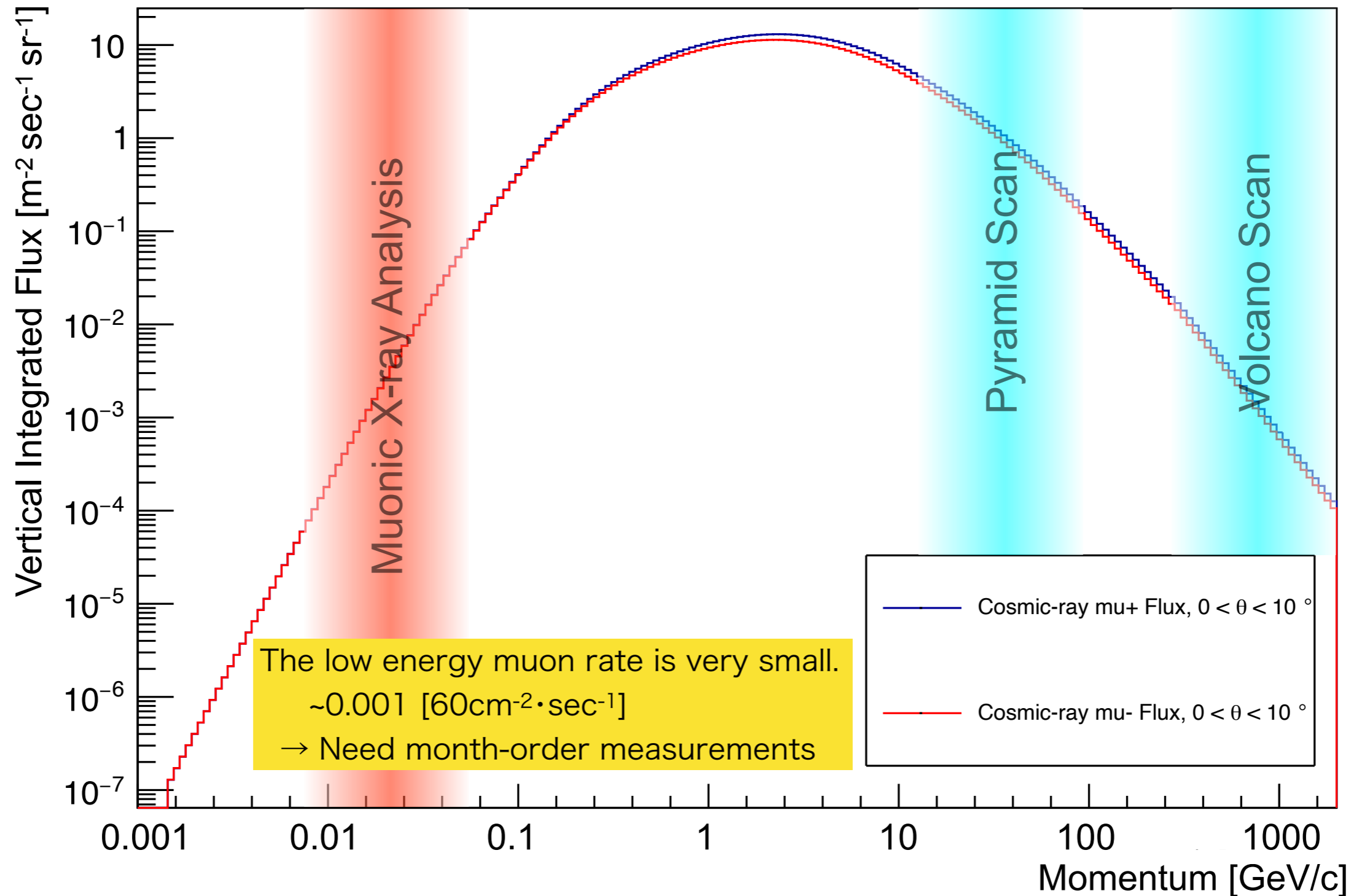
• cons

- Low rate
 - ~ 1 [$60\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$]
 - cf. 1k~1M [$60\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$]
@muon facility
- Mostly high energy
 - Typical E = a few GeV
 - cf. ~ 55 MeV
@muon facility

• Typical applications

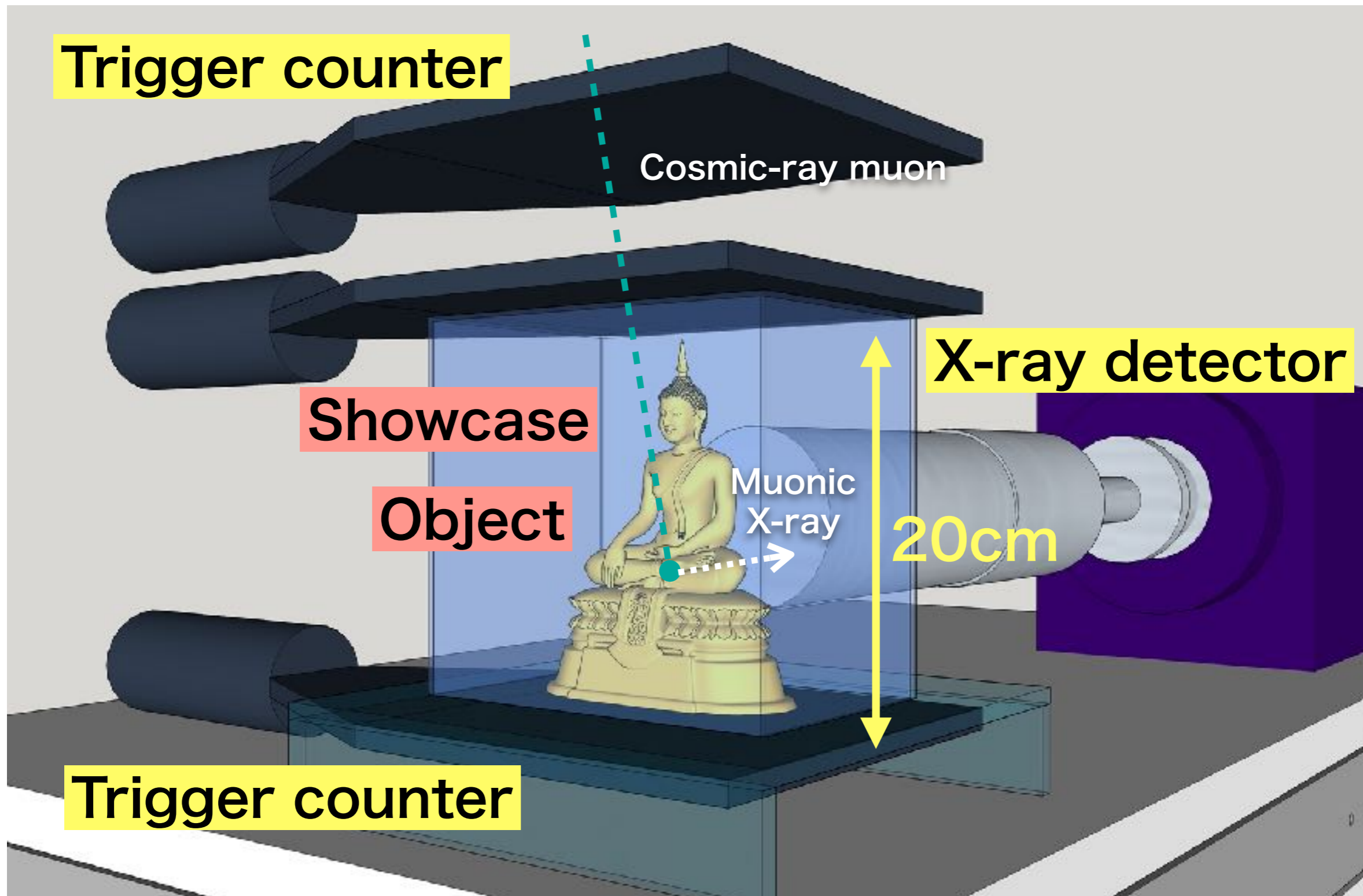
- Muon radiography
 - pyramids
 - volcanos
- Fukushima nuclear plants

Cosmic-ray Muons: Flux and Energy



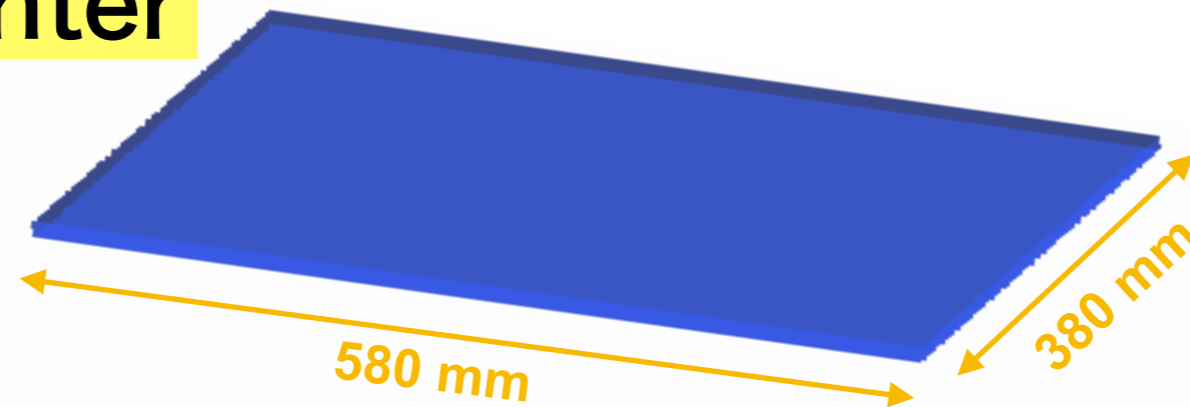
• Calculated by the PARMA model

Concept of the system



Demonstrator: Setup

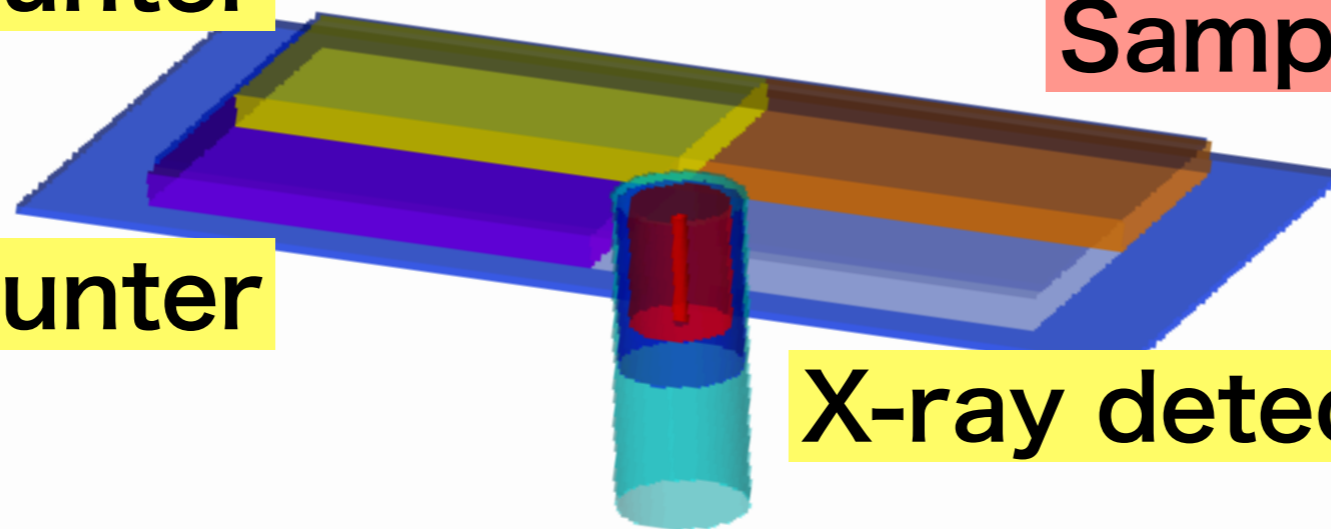
Trigger counter



Trigger counter

Samples x4

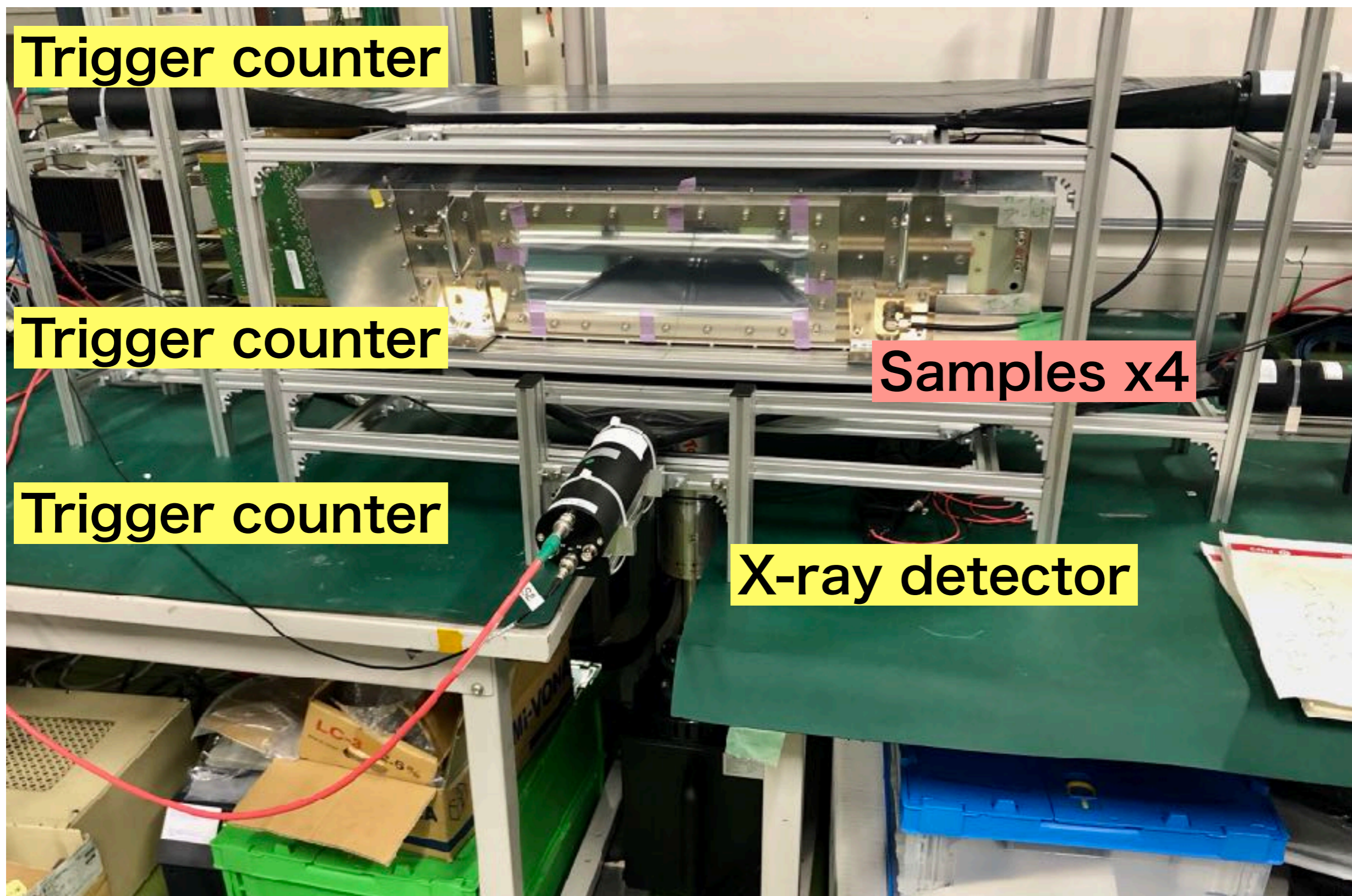
Trigger counter



X-ray detector

- We built a demonstrator to show feasibility of the system and to list up issues for further optimization.

Demonstrator: Setup



Trigger counter

Trigger counter

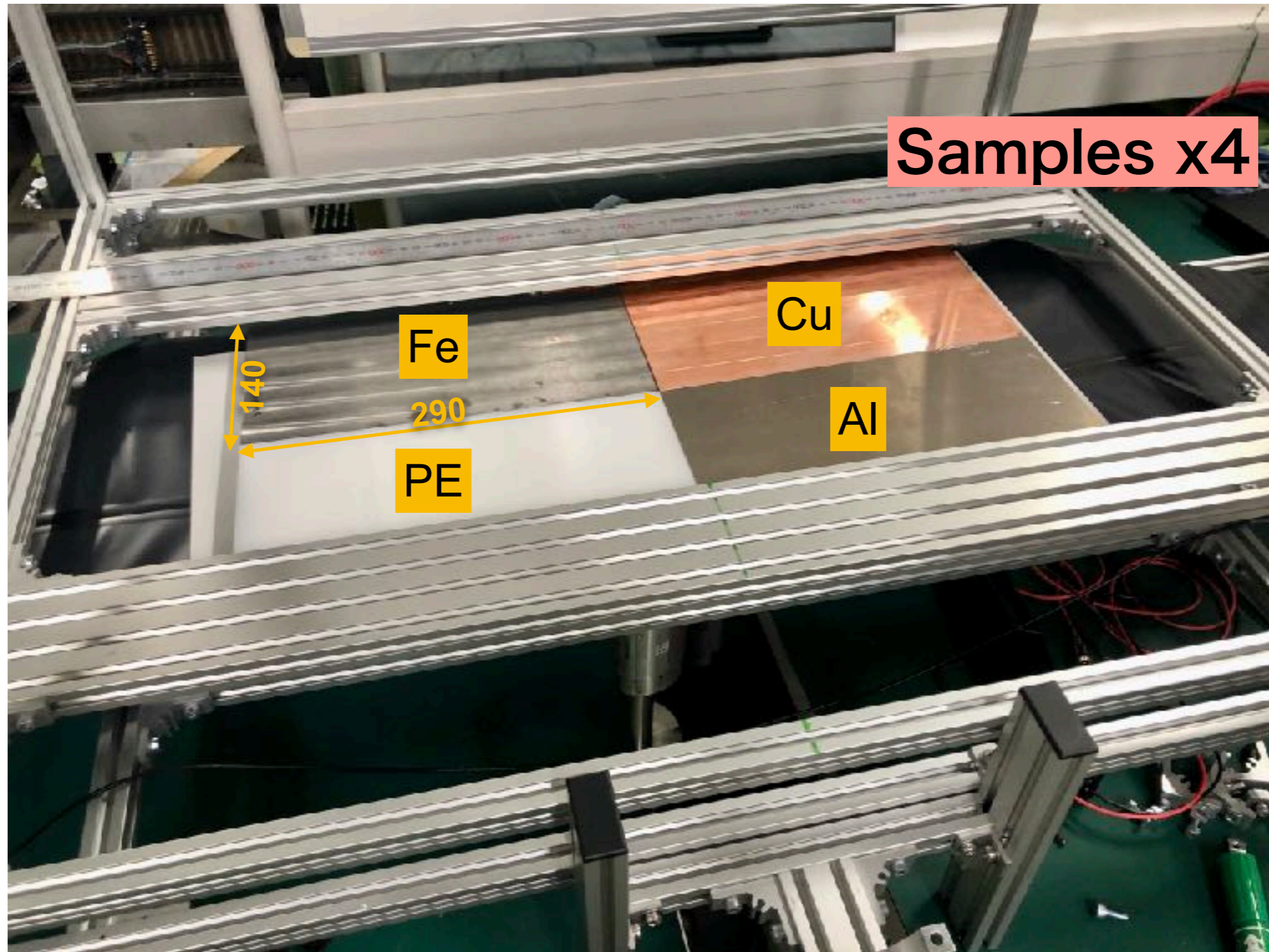
Samples x4

Trigger counter

X-ray detector

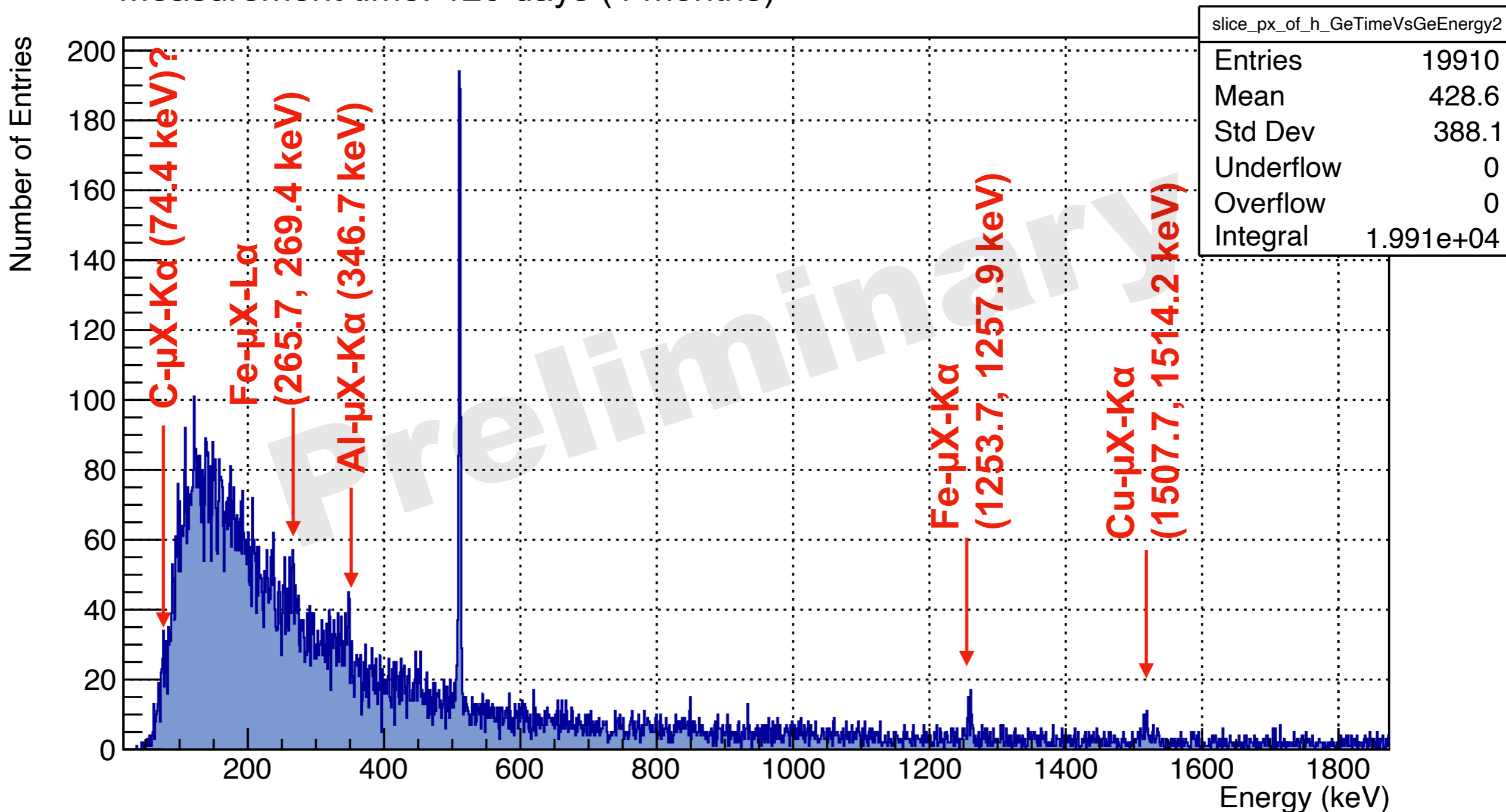
Demonstrator: Samples

- Four plates: 290mm x 140mm x t20mm



Demonstrator: Results

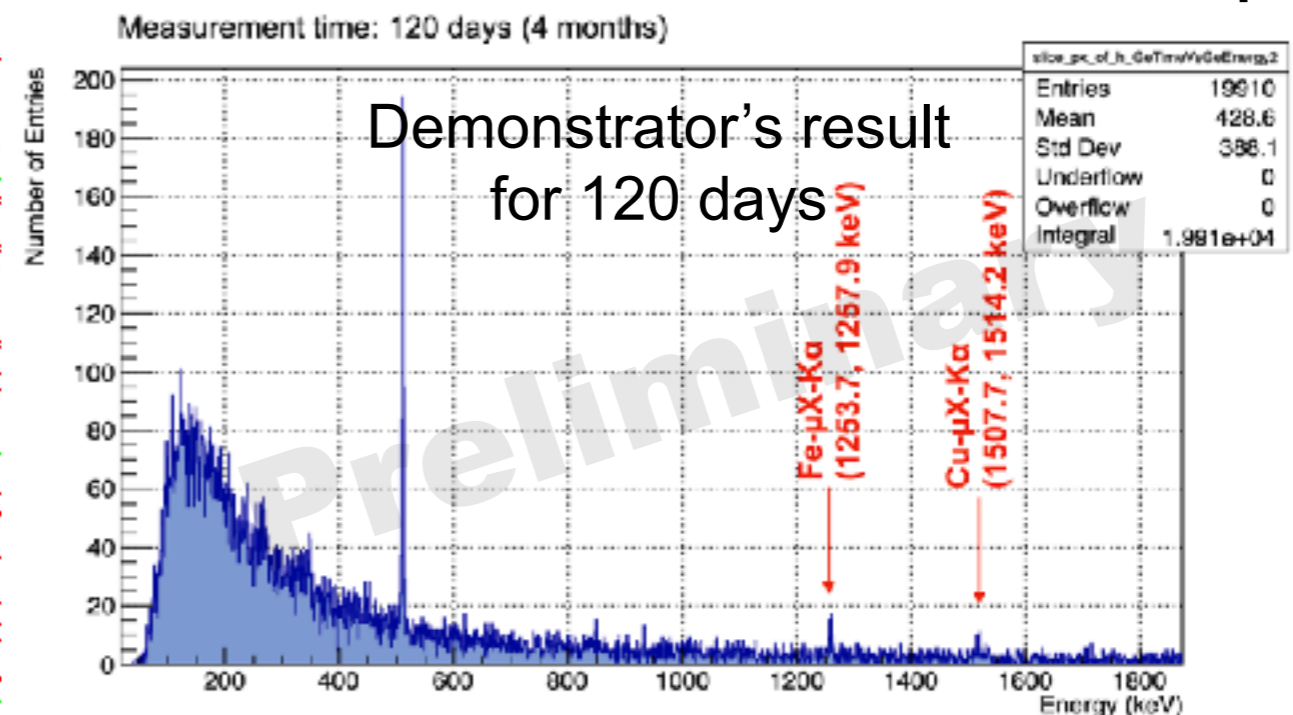
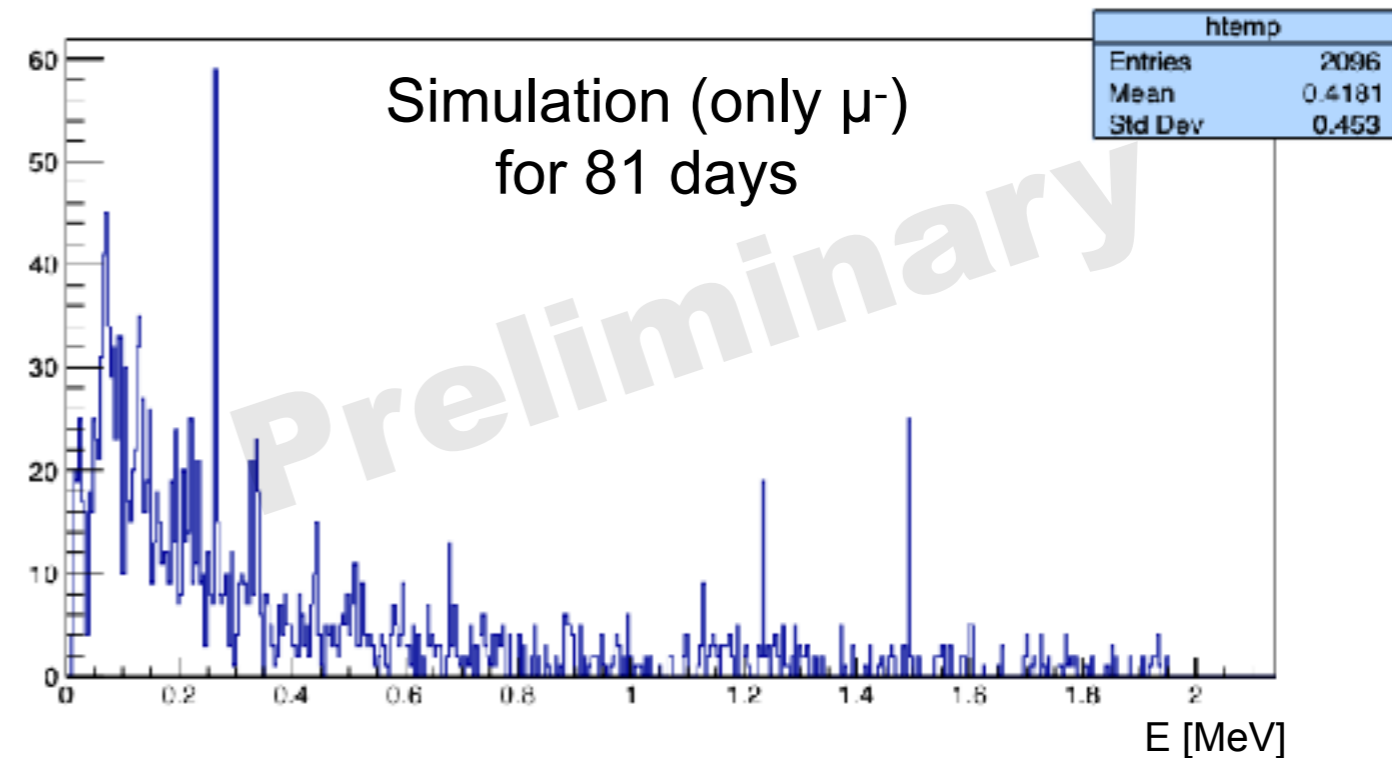
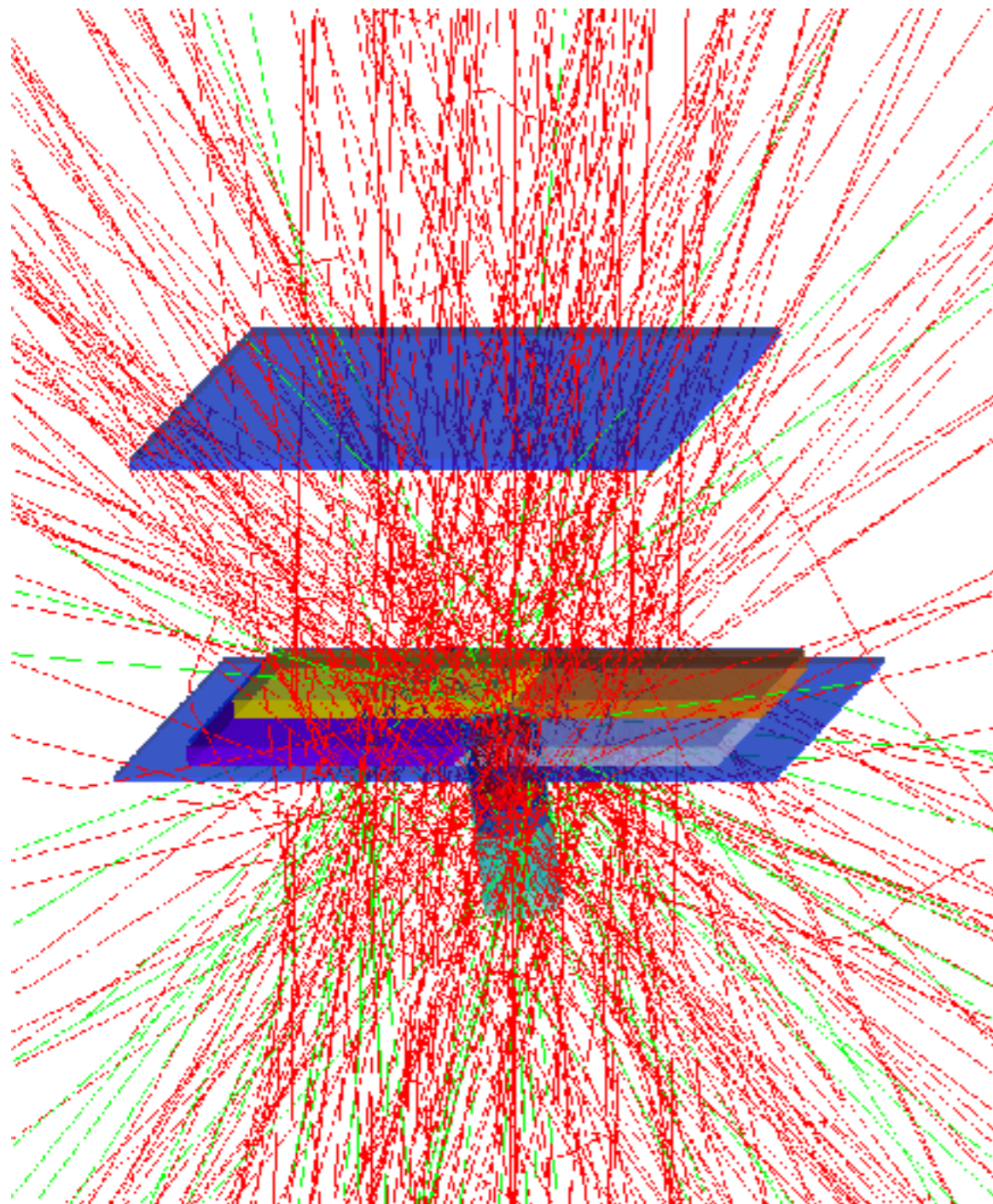
Measurement time: 120 days (4 months)



slice_px_of_h_GeTimeVsGeEnergy2	
Entries	19910
Mean	428.6
Std Dev	388.1
Underflow	0
Overflow	0
Integral	1.991e+04

Simulation of the system

- The measurement result was compared by an energy spectrum generated by a Monte Carlo simulation (Geant4).

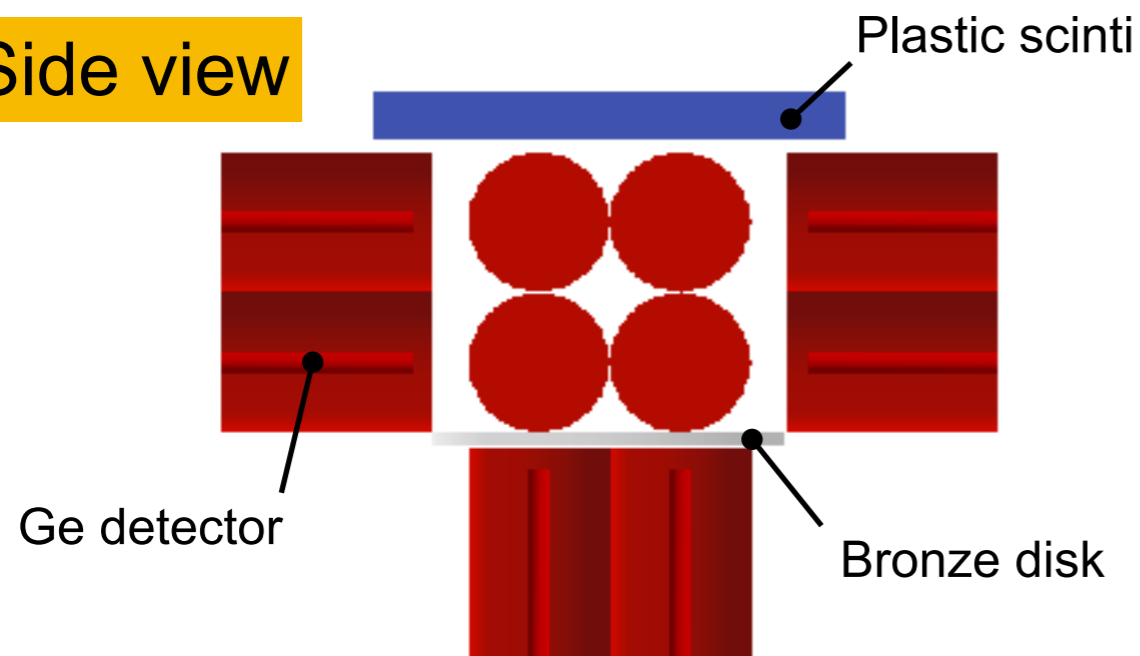


Outcomes from the demonstrator

- High energy peaks can be clearly observed.
 - Good to identify High-Z elements;
 - Cu, Fe, Sn, Pb ...
 - Need more statistics.
 - **optimize geometry,**
 - **improve solid angle of the X-ray detector.**
- For low energy region, need to suppress backgrounds.
 - caused by μ^+ , e^\pm , and neutron?
 - Important for Low-Z elements;
 - C, O, N, Al ...

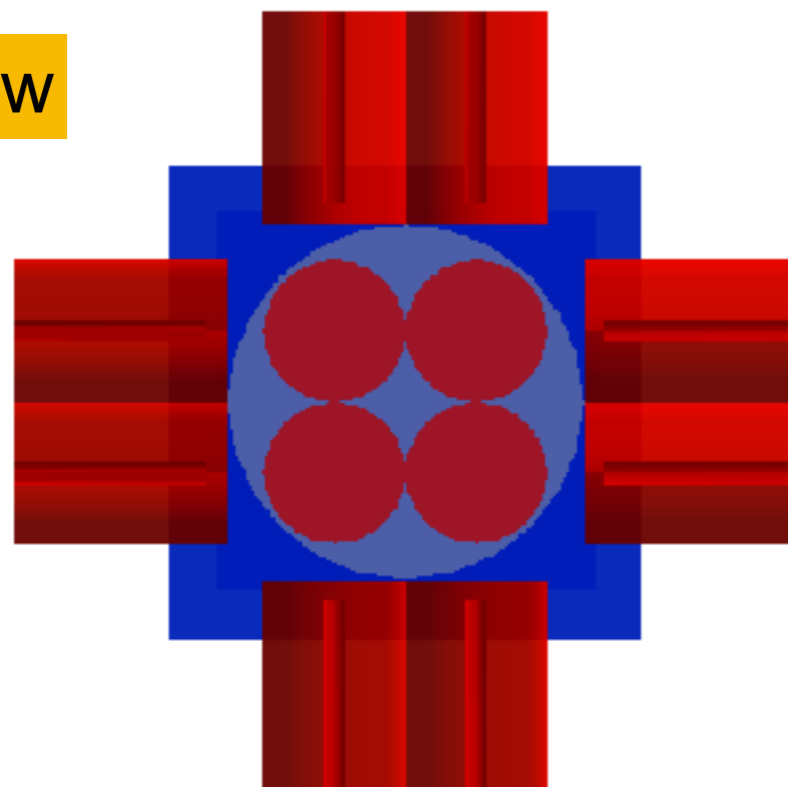
Simulation Study 2: Model

Side view

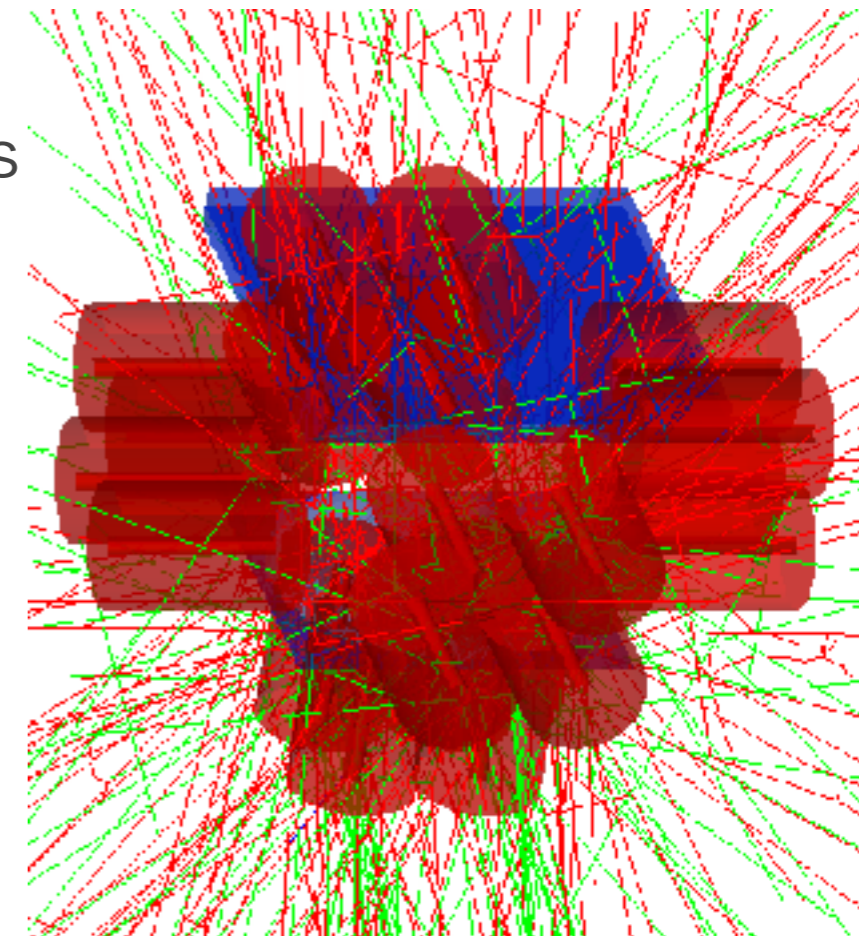


200 mm

Top view

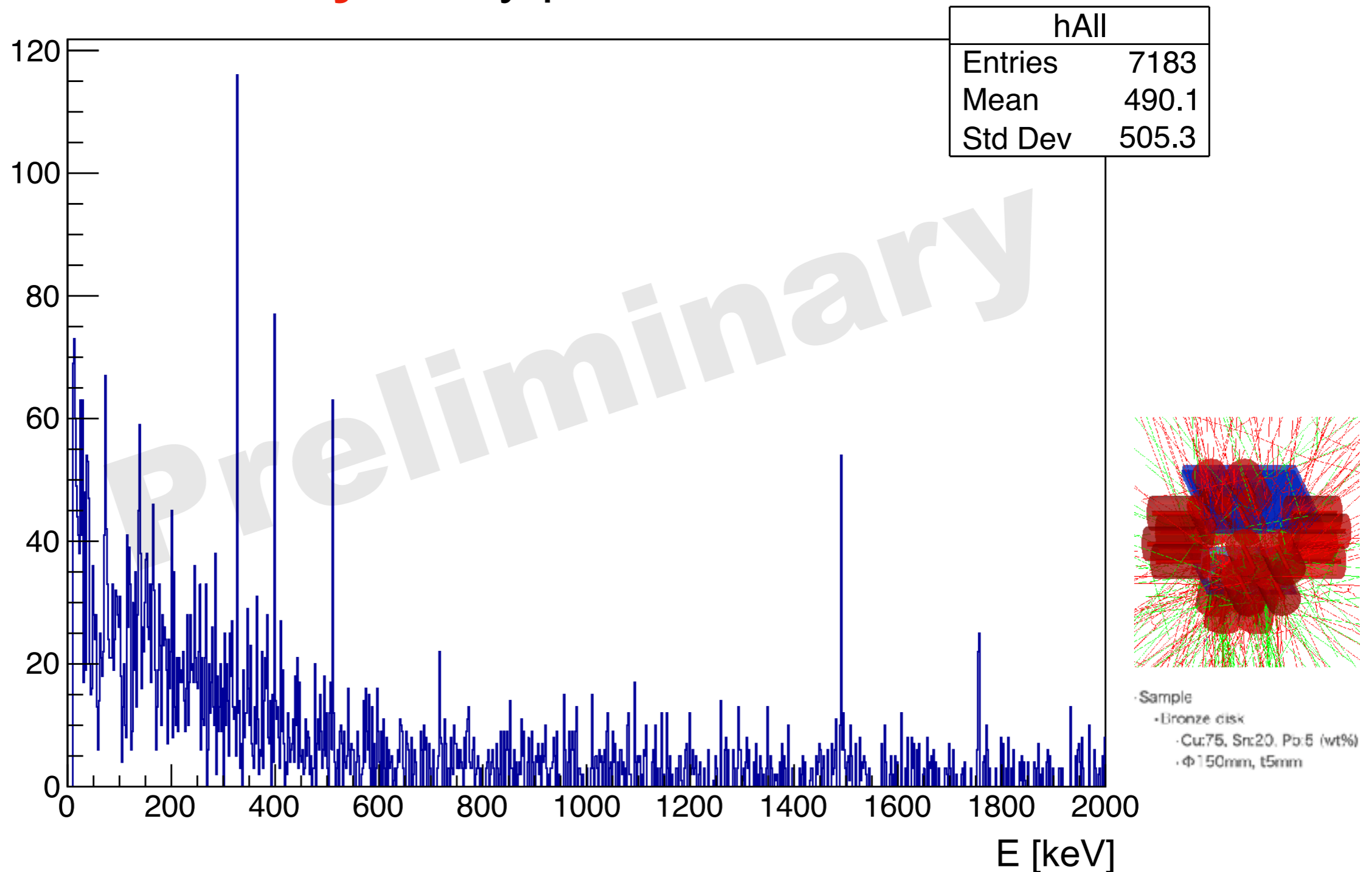


- Improve statistics
 - 20 X-ray detectors
 - Compact system
- Sample
 - Bronze disk
 - Cu:75, Sn:20, Pb:5 (wt%)
 - Φ 150mm, t5mm
- Measurement time
 - 12 days
 - 120 days



Simulation Study 2: Result

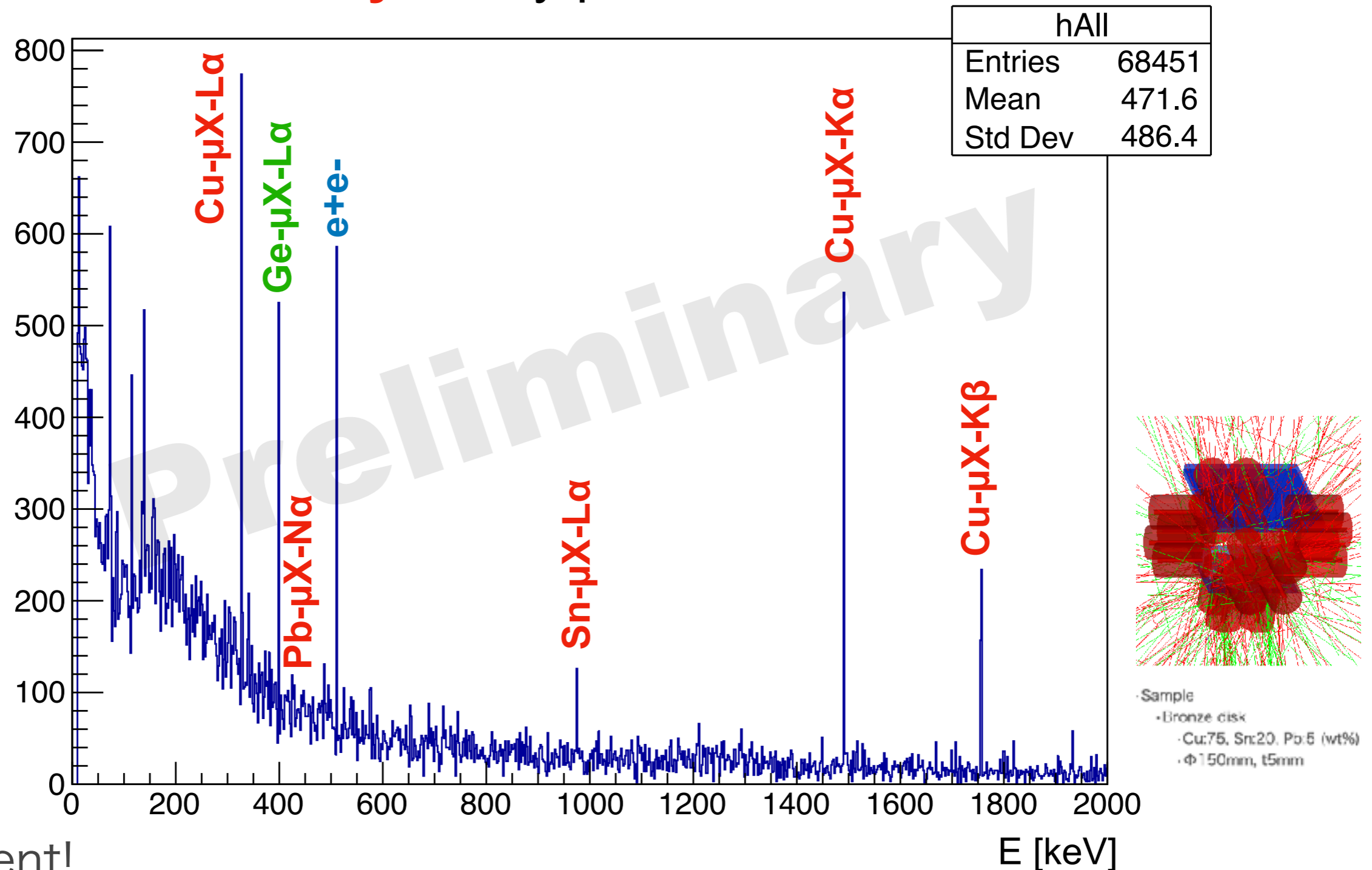
Simulation for **12 days**, only μ^-



• We can see peaks clearly!

Simulation Study 2: Result

Simulation for **120 days**, only μ^-



- Excellent!
- Background effects from μ^+ , e^\pm , and neutron must be studied.

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
- ・博物館での実証用に小型化
 - ・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(2022-2023)

・シミュレーション

- ・背景事象削減

・その他

- ・予算を獲得し、大型実機を製作？

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。
- ・2022年冬には実際に博物館で所蔵資料を測定する。
- ・興味のある方は、一緒に大型化しませんか？

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