UVSOR-III におけるガンマ線誘起陽電子消滅寿命−運動量相関測定法の開発

DEVELOPMENT OF GAMMA-RAY INDUCED POSITRON AGE-MOMENTUM CORRELATION MEASUREMENTS AT UVSOR-III

山本涼平[#, A)], 高嶋圭史[B)], 杉田健人[C)], 平義隆[C)], 平出哲也[D)], 加藤政博[C, E)]
Ryohei Yamamoto [#, A)], Yoshifumi Takashima[B)], Kento Sugita[C)], Yoshitaka Taira[C)],
Tetsuya Hirade[D)], Masahiro Katoh[C, E)]
[A)] Graduate School of Engineering, Nagoya University
[B)] Synchrotron Radiation Research Center, Nagoya University
[C)] UVSOR Facility, Institute for Molecular Science, National Institutes of Natural Sciences
[D)] Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency
[E)] Hiroshima Synchrotron Radiation Center, Hiroshima University

Abstract
In UVSOR-III, we have developed the gamma ray-induced age-momentum correlation (GiAMOC), which measures the correlation between the positron lifetime and the Doppler broadening of the annihilation gamma rays. In this measurement method, the inverse Thomson scattered (ITS) gamma rays with energies up to 6.6 MeV is used to generate positrons inside a sample by means of pair production. Due to the high transmission property of ITS gamma rays, GiAMOC allows measurements through the entire sample volume with the thickness of centimeters. Using the developed GiAMOC setup, we have measured a reference material for positron lifetime spectroscopy with GiAMOC. Here, we report the detail of GiAMOC experiment.

1. はじめに

物質中のナノスケールの構造欠陥(原子空孔、原子空孔クラスター、複合空孔、ボイド、転位、自由体積等)は、物質の機械的特性、電気的特性、光学的特性などの物性に影響を与える重要な因子である。これらの構造欠陥を検出する手法の一つとして、陽電子消滅法がある。陽電子消滅法は、構造欠陥の非破壊かつ高感度(<10^{-6} at.%)の検出が可能であり、測定試料に対する制約(表面状態や伝導性、温度等)が少ないという特徴を持つ[1, 2]。このため、実用構造材料の非破壊検査[3]、半導体や高分子材料の材料設計[4, 5]などに利用されている。

陽電子は正の電荷を持つため、原子核からのクーロン反発により、原子の近傍では存在確率が低く、格子間位置で高くなる。ここで、物質中に構造欠陥、即ち、結晶中の周期的な並びから原子が抜け落ちている場所が存在すると、陽電子の感じるポテンシャルは下がり、そのような場所に選択的に捕獲される。また、陽電子はこのような格子間位置にいる状態や欠陥に捕獲された状態とは別に、物質中の電子に束縛されたポジトロニウム(Ps)と呼ばれる状態となることがある。Ps は金属のような電子密度の高い物質中では形成されないが、分子性結晶や液体、気体中では形成される[1]。さらに Ps はスピン状態によって p-Ps(スピン一重項状態)と o-Ps(スピン三重項状態)のように区別される。このように、陽電子は物質中において様々な状態で存在し、各状態からの消滅によって、寿命や運動量分布が異なる[6]。

陽電子消滅法には、陽電子消滅寿命測定(PALS)、消滅光子ドップラー広がり測定(DBS)、陽電子消滅 2 光子角相関測定(ACAR)がある[1]。PALS は試料での陽電子の寿命を測定し、DBS、ACAR は試料中で消滅した電子-陽電子対の運動量分布を測定する。一般的に、これらの測定は独立した手法として利用されるが、PALS と DBS の同時計測によって寿命と運動量の相関関係を明らかにする陽電子寿命-運動量相関測定法(AMOC)と呼ばれる手法がある。AMOC では陽電子消滅時間と電子-陽電子対の運動量を軸とした二次元ヒストグラムが得られ、単独で用いた場合の PALS や DBS と比較してより豊富な情報を得ることができる手法である[7]。

AMOC では陽電子消滅時間で分解された運動量分布が観測できる。運動量分布の評価には、一般的に S パラメータが用いられる。AMOC で得られる時間と運動量を軸とした二次元ヒストグラムを$N(t,p)$とすると、S パラメータの時間依存性$S(t)$は、

$$S(t) = \frac{\int_{-\Delta p}^{\Delta p} N(t,p)dp}{\int N(t,p)dp} \quad (1)$$

と表される。ここでpは電子-陽電子対の運動量であり、Δpは運動量分布のピークを中心とするある運動量範囲である。Equation (1)から分かるように、時刻tにおける運動量分布が鋭化するほど$S(t)$は大きくなり、鈍化するほど小さくなる。$S(t)$によって得られる陽電子寿命と運動量分布の相関関係から、消滅した陽電子の状態を推測することができる。つまり、AMOC によって各陽電子状態における運動量分布を分離して観測することができる。例えば Ps を形成する試料の AMOC 測定を行う場合、o-Ps の寿命は格子間位置の陽電子や p-Ps と比較して長いため、$S(t)$の長時間領域は o-Ps の消滅に由来する運動量分布を示す。参考文献[5]では、Cs をドープしたアモルファス SiO_2 の AMOC 測定をすることで、o-Ps に由来す

yamamoto.ryohei@k.mbox.nagoya-u.ac.jp

る運動量分布を観測し、アモルファスSiO_2中の体積空間が Cs 元素に囲まれていることが確認されている。DBS では各状態における陽電子消滅が積算された運量分布しか見ることはできない。また、PALS では運動量分布は得られない。このように、AMOC では PALS や DBS では取得できない情報を得ることができ、陽電子消滅分光法をさらに発展させることができると期待される。

陽電子消滅法では、^{22}Na や ^{68}Ge などの β^+崩壊する放射性同位元素から発生する陽電子を外部から試料に入射する方法が広く利用されている。しかし、β^+崩壊で発生する陽電子は侵入深さが数百 μm 程度であるため[8]、厚さ数 cm に亘る試料の構造欠陥分析には利用できない。一方で、エネルギー1.022 MeV 以上のガンマ線を試料に照射し、対生成によって試料内部で陽電子を発生する方法がある。この手法では、ガンマ線の試料に対する透過力の高さから厚さ数 cm のバルク試料の測定が可能である。これは、ガンマ線誘起陽電子消滅法と呼ばれ、Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf の Electron LINAC with high Brilliance and low Emittance(ELBE)で発生する制動放射ガンマ線を用いて実施されている[9]。

本研究では、放射光施設 UVSOR-III で発生できる逆トムソン散乱(Inverse Thomson scattering: ITS)ガンマ線を利用し、ガンマ線誘起陽電子消滅寿命-運動量相関測定法(GiAMOC)およびデータ解析プログラムの開発を行っている。本プロシーディングスでは、開発した GiAMOC の概要と陽電子寿命の標準物質の測定結果に関して報告する。

2. GiAMOC の開発

開発した GiAMOC の概要を Fig. 1 に示す。UVSOR-III電子蓄積リングを周回する電子ビームに超短パルスレーザーを 90 度方向から衝突することで超短パルスガンマ線を発生する。そのガンマ線を試料に照射し、試料から発生する 2 本の消滅ガンマ線を高速時間応答のBaF_2シンチレータと高エネルギー分解能検出器である Ge 検出器によって検出する。デジタルオシロスコープを用いてそれぞれの波形を保存し、自作のプログラムを用いてデータ解析を行った。

2.1 ITS ガンマ線と検出器の配置

実験時の電子ビームは、エネルギーが 750 MeV、電流値が 300mA(マルチバンチ)で運転された。電子ビームのビームサイズは、水平方向が 550 μm (rms)、鉛直方向が 20 μm (rms)であり、バンチ長は 646 ps (FWHM)であった。レーザーシステムは Ti:Sa レーザーシステム(Coherent, Legend-HE)を使用しており、波長は 800 nm、パルスエネルギーは 1.5 mJ、繰り返し周波数 1 kHz、ビームサイズは水平方向、垂直方向ともに 6 μm (rms)、パルス幅は 4.7 ps (FWHM)であった。レーザーと電子ビームの衝突角度は水平方向 90 度であり、これらのパラメータを用いて理論式[10]によって計算される ITS ガンマ線の発生点での最大エネルギー、強度、パルス幅はそれぞれ、6.6 MeV、1.2×10^6 photons s^{-1}、2.7 ps (rms)であった。

ITS ガンマ線発生点から試料までの距離は 9.7 m であ

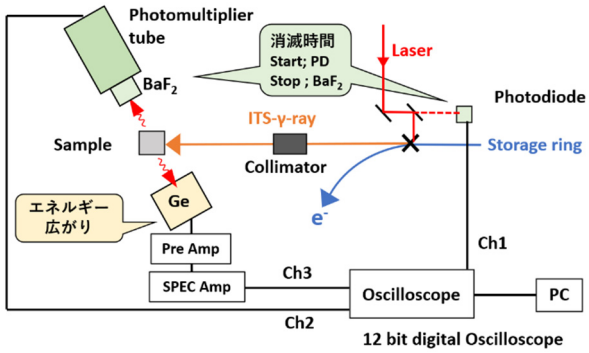

Figure 1: Schematic diagram of GiAMOC.

る。ガンマ線は、石英窓を透過して大気中に取り出され、Pb コリメータを通過し、試料に照射される。コリメータの開口直径は 3 mm、長さは 200 mm であった。BaF_2シンチレータおよび Ge 検出器は ITS ガンマ線の入射方向に対して 45 度傾けて、お互いに 180 度方向に向かい合うように配置させた。それぞれの検出器の試料からの距離は 45 mm、80 mm であった。蓄積リングで発生する制動放射ガンマ線が直接 BaF_2シンチレータおよび Ge 検出器に入射することによるバックグラウンドを除去するために、試料前方 260 mm に厚さ 100 mm の Pb ブロックを配置した。また、下流方向にあるガンマ線ストッパーからの後方コンプトン散乱によるバックグラウンドを除去するために同様の Pb ブロックを試料後方 460 mm に配置した。

2.2 デジタルオシロスコープを用いたエネルギー分解能の評価

帯域 8 GHz、サンプリングレート 20 GS s^{-1}、12 ビットの垂直分解能を持つデジタルオシロスコープ(LeCroy, WavePro 804HD)を用いて、Ge 検出器のエネルギー校正および分解能の評価を行った。使用した放射性同位元素は ^{137}Cs、^{85}Sr、^{60}Co であった。511 keV の消滅ガンマ線に対応する電圧波高値は 2.48 V であり、分解能は ^{85}Sr の 514 keV のガンマ線に対し 0.238 % (FWHM)であった。一方、電圧 10 V に対して 8192 チャネルを持つマルチチャネルアナライザを用いた場合、^{85}Sr の 514 keV のガンマ線に対する分解能は 0.247 % (FWHM)であった。これより、デジタルオシロスコープを用いた陽電子消滅ガンマ線のエネルギー測定は、マルチチャネルアナライザを用いた場合と比較して遜色のない分解能で行うことができることを確認した。

2.3 デジタルオシロスコープを用いたコインシデンス測定

電子ビームとの衝突点近傍にフォトダイオードを設置し、レーザーの検出信号をデジタルオシロスコープの Ch1 に伝送した。発生した ITS ガンマ線は試料に照射され、原子核との相互作用により試料中で対生成が起こり、陽電子が生成される。生成された陽電子は熱化された後、試料中の電子と対消滅し、2 本の消滅ガンマ線を放出する。2 本の消滅ガンマ線のうち、一方を BaF_2シンチレータによって検出し、光電子増倍管の出力信号を Ch2 に伝送した。また、他方を Ge 検出器によって検出し、プリアンプおよびスペクトロスコピーアンプで増幅させた信

号を Ch 3 に伝送した。Ch1,2,3 の 3 つの波形が同時に出力されるトリプルコインシデンスが起きた時にトリガーをかけ、全ての波形を保存した。
保存した波形データを自作のプログラムにより解析した。1 組の波形データのうちフォトダイオードからの信号(Ch1)をスタート信号、BaF_2 シンチレータからの信号(Ch2)をストップ信号とすることで、ITS ガンマ線が発生してから陽電子が消滅するまでの時間を陽電子消滅時間とした。また、Ge 検出器の信号(Ch3)の波高値から消滅ガンマ線のエネルギーを求め、運動量を計算した[2]。陽電子消滅時間と運動量を軸とした二次元ヒストグラムを計算し、Eq. (1)を用いて$S(t)$を計算した。本測定では、$\Delta p = 4$ [10^{-3} m_0c] (m_0 は電子の静止質量、c は光速) とした。

3. 陽電子寿命測定用標準物質の測定結果

3.1 試料

構築したシステムを用いて、産業技術総合研究所 計量標準総合センターが提供する陽電子寿命測定用の標準物質である、NMIJ RM 5607-a (SUS304 鋼)[11]の測定を行った。本試料は構造欠陥のない試料であり、陽電子寿命の参考値は 106.2±2.4 ps である。1 枚の角片のサイズは 3×15×15 mm であり、本実験では 2 枚の角片を重ね合わせて測定した。

3.2 計数率の向上

17 時間の測定により得られた、全イベントは 3.0×10^5 であり、計数率は 4.9 cps であった。
現在の実験セットアップになる前は、レーザーを鉛直 90 度方向から入射していた。レーザーサイズは、水平方向 290 μm、鉛直方向 600 μm だった。この時の測定では、開口直径 8 mm のコリメータを用いて 14 時間の測定で、イベント数が 8.0×10^4、計数率が 1.6 cps であった。今回の実験では、レーザーの入射方式の改善により、コリメータの径を小さくしたにも関わらず計数率が 3 倍向上した。現状のセットアップで直径 8 mm のコリメータを使用すると、ガンマ線 1 パルスに対して複数の消滅ガンマ線が同時に検出されるパイルアップが起きることを確認している。そのため直径 3 mm のコリメータを使用した。

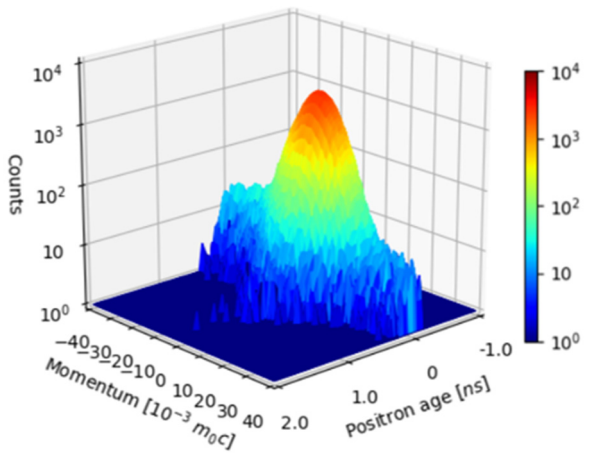

Figure 2: Two-dimensional histogram of reference materials (SUS304) for positron lifetime spectroscopy.

3.3 時間と運動量の二次元ヒストグラムおよび$S(t)$の測定結果

Figure 2 に測定された標準物質の二次元ヒストグラムを示す。また、Fig. 3 に$S(t)$を示す。Fig. 3 (a)は等時間間隔で S パラメータを表示した結果である。等時間間隔で表示すると、計数が低い時間で統計的な不確かさが大きくなる。そこで、各点の計数が同程度になるように$S(t)$を計算した。結果を Fig. 3(b)に示す。図中の点線は、積算した時間範囲を示している。Fig. 3(b)から標準物質の S パラメータは陽電子消滅時間によらず、一定値をとること

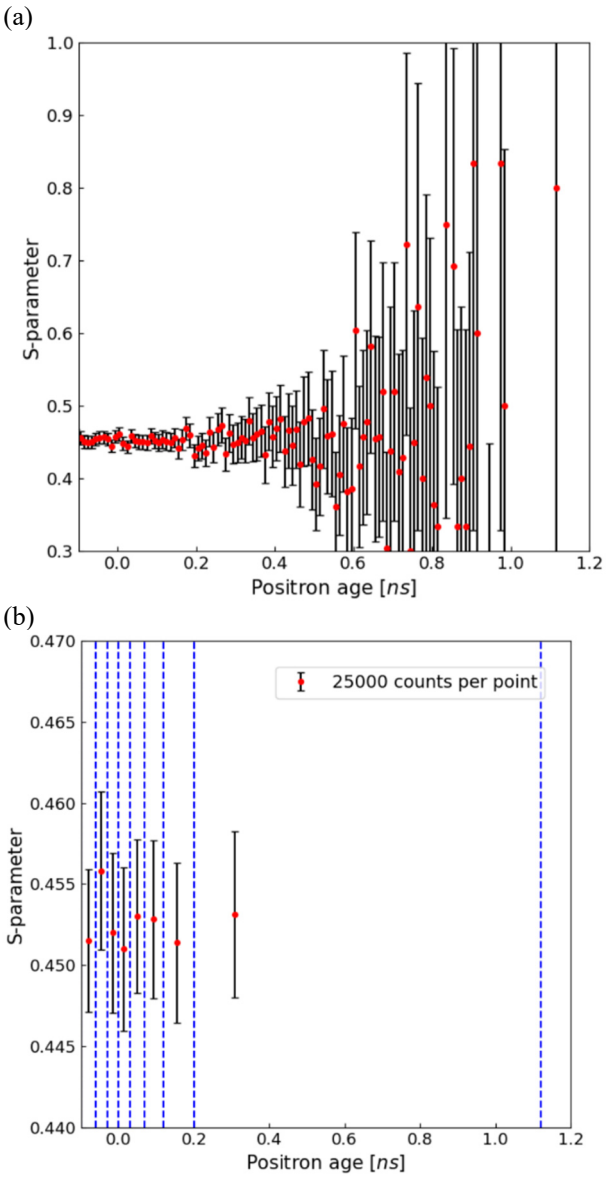

Figure 3: Time dependence of S-parameters of reference material (SUS304) for positron lifetime spectroscopy. (a); Equal time intervals are shown. (b); The counts at each point are the same. The dotted line in (b) shows the integrated time range.

が分かった。これは、測定試料が構造欠陥のない物質であることを示している。構造欠陥のない物質中の陽電子は格子間位置でのみ消滅するため、運動量分布は消滅時間によらず、S パラメータは一定となる。また、Fig. 3(b)に示した結果から、S パラメータの変化が 0.01 程度の試料であれば測定できることが期待される。例えば、SUS316 鋼の DBS では、転位密度の増加によって*S*パラメータは 0.01 - 0.02 程度変化したと報告されている[3]。

3.4 GiAMOCによる標準物質の陽電子寿命およびバックグラウンドの影響

Figure 4 に GiAMOC システムによって得られた標準物質の寿命スペクトルを示す。寿命解析ソフトである LT9 を用いて陽電子寿命の解析を行った。陽電子寿命は 1 成分とし、時間分解能関数は 1 つのガウス関数として解析された陽電子寿命は 110.9±0.3 ps であり、参考値である 106.2±2.4 ps と一致しなかった。そこで、Fig. 4 の赤色の実線で示すように時間分解能関数を3つのガウス関数として解析した。その結果、陽電子寿命は 107.9±0.6 ps となり、参考値と不確かさの範囲で一致した。この時、時間分解能関数の半値全幅はそれぞれ 174.9 ps、399.1 ps、135.5 ps であり、強度は 89.06 %、0.13 %、10.81 %であった。

Figure 4 に注目すると、時刻-0.5 ns 付近のスペクトルの立ち上がりにわずかな膨らみが観測され、また、時刻 2.7 ns 付近にわずかなピークが見られた。これらは、試料からの消滅ガンマ線に由来しないバックグラウンドの影響であると考えられる。時刻 2.7 ns 近辺のバックグラウンドは、試料後方に配置してある物質からの後方コンプトン散乱光子に起因していると考えられるが、時刻-0.5 ns 近辺のバックグラウンドの原因は分かっていない。これらのバックグラウンドについては、シミュレーションコード EGS5 を用いて今後調査を進めていく予定である。

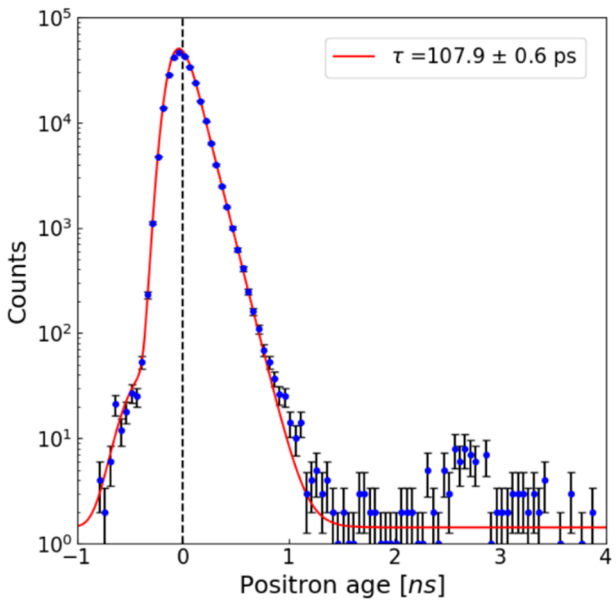

Figure 4: Positron lifetime spectra of a reference material (SUS304) for positron lifetime spectroscopy obtained by GiAMOC. The solid red line is the result of fitting with LT9.

4. まとめ

UVSOR-IIIにおいて ITS ガンマ線を用いた GiAMOC および解析コードの開発を行った。レーザーと電子ビームの衝突を鉛直 90 度衝突から、水平 90 度に変更し、また、レーザーのサイズを小さく絞ることで GiAMOC の計数率が約 3 倍に向上した。開発した GiAMOC システムを用いて、陽電子寿命測定用標準物質である SUS304 鋼の測定を行い、測定結果から S パラメータの変化が 0.01 程度の試料であれば測定できることを示した。今後は寿命スペクトルに見られたバックグラウンドの原因をシミュレーションによって調査し、バックグラウンドの影響を排除する他、内部に欠陥を形成した試料の測定を行う予定である。

謝辞

本研究は、JSPS 科研費 21H03740 の助成を受けています。

参考文献

[1] M. Hasegawa, Materia Japan, Vol. 35, pp. 93-102, 1996.
[2] A. Uedono, SCAS NEWS, Vol. 19, pp. 3-6, 2004.
[3] Y. Kawaguchi *et al.*, J. Japan Inst. Metals, Vol. 65, pp. 835-842, 2001.
[4] G.P. Karwasz *et al.*, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 382, pp. 244-251, 2004.
[5] K. Sato *et al.*, Macromolecules, Vol. 42, pp. 4853-4857, 2009.
[6] P. Castellaz *et al.*, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, Vol.3, pp. R1-R7, 2002.
[7] A. Uedono, RADIOISOTOPES, 41, pp. 474-482, 1992.
[8] J. Dryzek *et al.*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Vol. 267, pp. 3580-3589, 2009.
[9] M. Butterling *et al.*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Vol. 269, pp. 2623-2629, 2011.
[10] M. Washio *et al.*, Journal of The Surface Science Society of Japan, Vol.19, pp. 85-91, 1998.
[11] https://unit.aist.go.jp/qualmanmet/refmate/crm/cert/5607a_J.pdf