

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790091

研究課題名(和文)超短パルス制動ガンマ線を用いた欠陥分布3次元イメージングに関する研究

研究課題名(英文)Three dimensional imaging of defect distributions using ultra-short pulsed bremsstrahlung gamma rays

研究代表者

平 義隆 (TAIRA, Yoshitaka)

独立行政法人産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・研究員

研究者番号：60635803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、材料劣化の原因となる空孔型格子欠陥の分布を3次元イメージングする手法をガンマ線誘起陽電子消滅寿命測定法により達成することが目標である。実環境下測定及び空間分解能向上のため、従来よりも密度と有効原子番号が共に高い新型のシンチレータを用いた小型の高速応答検出器を開発することができた。また、この検出器を用いて3次元イメージングに向けた基礎実験を行い、課題を明確にすることができた。1つは測定システムの時間分解能を現状の180 psから100 psに改善すること。もう1つは、電子ビームの電流量を1000倍以上増大し、検出器を多数配置することで検出頻度を大幅に向上することである。

研究成果の概要(英文)：I propose a method for obtaining three-dimensional imaging measurements of the defect distribution inside industrial materials by using a photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy. A compact and fast response detector that uses an Yb<sup>3+</sup>-doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> scintillator and a photomultiplier tube was developed and tested to improve a spatial resolution and perform an in-situ measurement. I carried out a feasibility study for the three-dimensional imaging by using the developed detector. I found that time resolution is needed to improve for measuring short positron lifetime. An electron beam current is also needed to increase more than 1000 times and detectors is arrayed around the sample to increase an event rate.

研究分野：ビーム物理

キーワード：超短パルスガンマ線 陽電子消滅寿命測定 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータ 制動放射 電子加速器

### 1. 研究開始当初の背景

超臨界水用の配管や原子炉構造材料など、特殊条件下にある金属材料の経年劣化や余寿命には、材料内部に形成される空孔型格子欠陥が重要な影響を及ぼす。重大な事故を回避するためには、空孔型格子欠陥を高感度で測定し、材料破壊の起点をごく初期の段階で探知する必要がある。金属材料の非破壊分析には、超音波やX線が用いられているが、ナノメートルスケールの極小欠陥を測定することは極めて難しい。

それに対し、極小欠陥を測定する方法に電子の反粒子である陽電子を利用する方法がある。これは、陽電子が極小欠陥に容易に入り込む性質をもち、その欠陥の大きさと陽電子寿命に強い相関があることを利用している。陽電子消滅を用いた欠陥の非破壊分析は古くから行われてきたが、従来の手法では材料の表面数 mm の測定しか行えず、材料内部の劣化などを知ることはできなかった。

材料表面から数 cm 深部までの欠陥分析手法として、エネルギー 1 MeV 以上の高エネルギー光子(ガンマ線)を利用する手法がある。これは、ガンマ線が物質に対して高い透過性をもつことと、対生成によって陽電子を発生することを利用して、この手法は、光子誘起陽電子消滅寿命測定 (Photon induced Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy 以下 PiPALS)法と呼ばれ、アイダホ州立大学やヘルムホルツ研究所などで研究が進められている。金属材料の経年劣化や余寿命を正確に評価するためには、厚さ数 cm に及ぶ材料内部の欠陥分布を 3 次元で可視化する必要がある。

### 2. 研究の目的

申請者は、可搬型 PiPALS 装置を開発し、構造材料の欠陥分析を実環境下で行うことを目標としている。本研究では、その中核となる 3 次元イメージング測定技術と実環境下測定及び短時間測定、空間分解能向上を可能にする小型検出器を開発する。PiPALS 法の超短パルスガンマ線源には、産業技術総合研究所の S バンド小型線形加速器を用いる。実用材料の測定や検出器の小型化を念頭におき、研究期間内に下記の研究項目を達成する。

#### (1) 実環境下測定及び短時間測定、空間分解能向上のための小型検出器の開発

従来用いられている検出器の長さは約 250 mm ある。今後、陽電子寿命の測定を短時間で行うためには、検出器をアレイ配置する必要がある。また、3 次元イメージ像の空間分解能を向上するためには、検出器を小型化する必要がある。加えて検出器の小型化は、測定スペースが限定される実環境下での測定には重要な要件である。そのため、アレイ化可能な小型検出器をシンチレータ条件の最適化などから開発する。

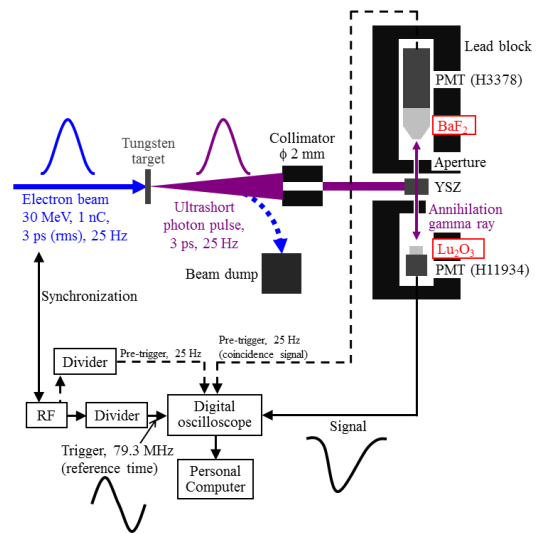


図 1: 本研究で用いた光子誘起陽電子消滅寿命測定システム。

#### (2) 3 次元イメージング測定手法の開発

欠陥の大きさは、材料内部で発生した陽電子の消滅寿命の変化から決定する。陽電子寿命の測定と同時に陽電子の消滅位置を特定し、材料を走査することで欠陥分布の 3 次元イメージ像を測定する手法を開発する。

### 3. 研究の方法

材料内部の欠陥分布を 3 次元測定するためには、まずビーム径が絞られた超短パルスガンマ線を材料に照射し、材料表面から数 cm の深さまで均一に陽電子を発生させる。次に対向配置した小型検出器で消滅ガンマ線を検出することで、ある領域内の平均的な欠陥の大きさを測定できる。最後に、材料を走査することで、欠陥分布の 3 次元イメージ像が測定される。

本研究では、1 対の検出器を用いた陽電子消滅寿命測定システムの構築を行い、検出器の評価を行った。測定の概要を図 1 に示す。超短パルスガンマ線は、エネルギー 30 MeV の電子ビームをターゲットに照射し、制動放射によって発生した。ターゲットには、汎用品の金属で密度が高い厚さ 0.1 mm のタングステン板を使用した。シミュレーションコード EGS5 を用いた計算では、制動放射の光子数はタングステン板の厚さに比例し、厚さが 0.1 mm の時の入射電子数に対する制動放射の発生効率は 20 % (エネルギー 0.1 MeV 以上) であることが分かった。

ターゲットから下流に直径 2 mm、厚さ 150 mm の鉛コリメータを設置して制動放射ガンマ線のビーム径を 2 mm に絞った。そのガンマ線をサンプルに照射し、サンプルから対向放射される 2 本の消滅ガンマ線を BaF<sub>2</sub> シンチレータと Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> シンチレータで同時検出した。消滅ガンマ線を同時検出することでバックグラウンドを低下することができる。

データ解析には、デジタルオシロスコープ

(LeCroy WaveRunner 204 Xi-A)を使用した。4chの内3chにトリガー信号を入力し、プレトリガーとして加速器の加速周波数から分周した25 Hzの信号と対向するシンチレータに付属の光電子増倍管の出力信号を利用した。低ジッタを実現するためにトリガー信号には分周した79.3 MHzの信号を利用した。このトリガーのタイミングでYb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータに付属の光電子増倍管から出力される信号をオシロスコープで全て保存し、パソコンを用いてデータ解析を行った。

#### 4. 研究成果

本研究で開発した小型の検出器について述べる。従来、陽電子消滅寿命測定に使用されるシンチレータはBaF<sub>2</sub>である。本研究ではBaF<sub>2</sub>よりも有効原子番号と密度が高い新型のシンチレータであるYb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を使用した(表1)。Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータは奈良先端科学技術大学院大学の柳田教授によって開発されたものである。密度と有効原子番号が高いためにシンチレータを小型にしても消滅ガンマ線への検出効率を高く保つことができる。また、Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータは可視光領域で発光することも大きな特徴であり、汎用品の可視光領域に感度をもつ高速応答の小型光電子増倍管を使用することができる。図2に本研究で開発した検出器の外観を示す。厚さ2 mm、直径10 mmのYb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータを使用し光電子増倍管には1辺の長さが30 mmの浜松ホトニクス社製H11934-200MODを使用した。エネルギー0.511 MeVの消滅ガンマ線に対する検出効率は21%である。シンチレータを厚

表1: BaF<sub>2</sub>シンチレータとYb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータの特性。

	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	有効 原子 番号	放射 波長 (nm)	発光量 (photons /MeV)
BaF <sub>2</sub>	4.9	54	210	2000
Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9.4	68.8	350, 460	500



図2: Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータを用いた消滅ガンマ線用検出器の外観。

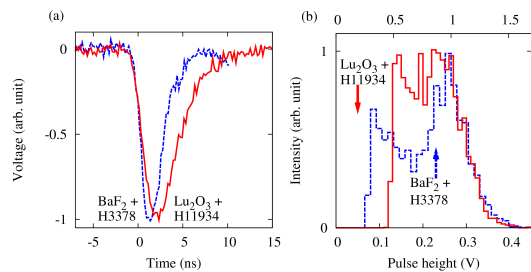


図3: (左)光電子増倍管の出力波形。(右)<sup>137</sup>Csに対する波高値分布。赤線はYb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータとH11934-200MOD光電子増倍管の組み合わせ。青線はBaF<sub>2</sub>シンチレータとH3378光電子増倍管の組み合わせの結果を示している。

くすることで検出効率は向上し、厚さが20 mmになると検出効率は90%になる。Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータを使用することで従来の検出器に対して約1/20の大きさの検出器を開発することができた。

図2に示す検出器を用いて測定した<sup>137</sup>Csから発生する0.662 MeVのガンマ線に対する波高値分布を図3に示す。図3左より、Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>シンチレータはBaF<sub>2</sub>シンチレータとほぼ同等の高速応答性を示すことが分かった。また、図3右に示すように波高値分布はBaF<sub>2</sub>に対して1/4になることが分かった。これは表1に示すように発光量が低いことに起因する。

図2に示す検出器を用いて陽電子の消滅寿命を測定した。測定サンプルには10 mm × 10 mm × 15 mm (厚さ)のイットリア安定化ジルコニア(YSZ)を使用した。YSZの陽電子寿命は182 psである。サンプルと2つの検出器の間には直径9 mm、厚さ50 mmの鉛アパーチャーを設置して測定した。測定した陽電子消滅寿命スペクトルを図4に示す。理論式のフィッティングより測定寿命が190 ± 10 psであることが分かり、理論値と一致することが分かった。

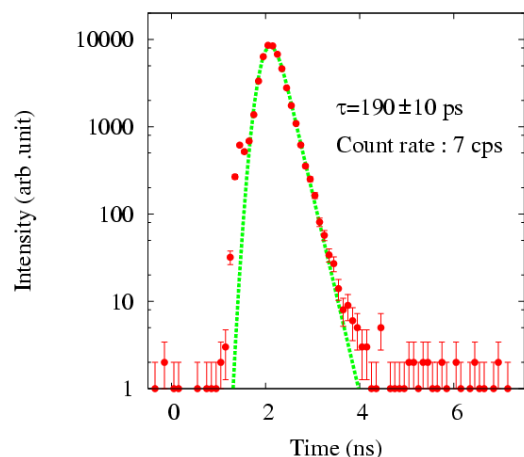


図4: YSZの陽電子消滅寿命スペクトル。赤点は測定データ、緑色の線は理論式によるフィッティングである。陽電子寿命の測定値は190 ± 10 psである。



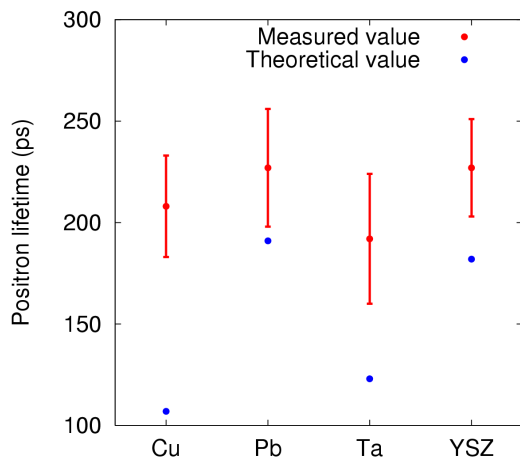


図 5: アパーチャーの直径を 5 mm にしたときの銅、鉛、タンタル、YSZ の陽電子寿命の測定値と理論値の比較。

次に、理論的な寿命値の異なる単結晶金属(銅、鉛、タンタル)の寿命測定を行った。1対の検出器を用いて3次元イメージングを行うためには、コリメータを用いて入射ガンマ線のビーム径を絞り、消滅ガンマ線の消滅位置を特定するためにアパーチャーを設置しサンプルを移動しながら寿命値を測定する必要がある。コリメータの直径を 2mm、アパーチャーの直径を 5mm として測定した場合、陽電子寿命の評価に最低限必要な 5000 カウントを測定するのに要した時間は鉛の場合で 48 分であった。イベントレートに換算すると 1.7 cps である。図 4 に示すようにアパーチャーの直径が 9 mm のときは 7 cps であったがアパーチャーの直径が小さくなったことに伴ってイベントレートが減少した。陽電子寿命の測定結果を図 5 に示す。材料による寿命の測定値は変化することが測定されたが、誤差の範囲を超えて寿命値が異なることを測定することはできなかった。これは、統計誤差が大きいため測定システムの時間分解能が悪かったことが原因と考えられる。時間分解能は 180 ~ 190 ps の間であり、その値よりも短い陽電子寿命を評価することはできない。時間分解能を 100 ps 程度にまで改善することも重要な課題である。

また、この測定結果から、3次元イメージングを行うためには高い電流量をもつ電子ビームが必要であることが分かった。現状は、1パンチ当たりの電荷量が 0.5 nC、繰り返し 25 Hz の平均電流 12.5 nA で電子ビームを発生している。それに対し、例えば、5 mm 立法の物体を 1 mm<sup>3</sup> の分解能で 1 時間以内に測定するためには、現在の 6200 倍の電流量である平均電流 78  $\mu$ A の線形加速器が必要であることが分かった。現在は検出器を 1 対使用しているが検出器の数を増やすことも測定時間短縮の有用な方法である。

##### 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 3 件)

1. Y. Taira, R. Kuroda, M. Tanaka, M. Kumaki, N. Oshima, B. E. O'Rourke, R. Suzuki, H. Toyokawa, "Photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy using an S-band compact electron linac", *Radiation Physics and Chemistry*, 査読有, 95 巻, 2014, 30-33. DOI:10.1016/j.radphyschem.2012.11.012
2. Y. Taira, R. Kuroda, M. Tanaka, N. Oshima, B. E. O'Rourke, R. Suzuki, H. Toyokawa, K. Watanabe, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagitani, "Development of a compact and fast response detector using Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> scintillator for lifetime sensitive positron emission tomography", *Journal of Instrumentation*, 査読有, 9 巻, 2014, C05036-1-8. DOI:10.1088/1748-0221/9/05/C05036
3. Y. Taira, R. Kuroda, B. E. O'Rourke, N. Oshima, R. Suzuki, M. Tanaka, H. Toyokawa, T. Yanagida, K. Watanabe, "Development of photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy using an S-band compact electron linac", *Proceedings of IPAC2013*, 査読無, 2013, 3660-3662. [http://epaper.kek.jp/IPAC2013/html/author.htm](http://epaper.kek.jp/IPAC2013/html/authhor.htm)

〔学会発表〕(計 6 件)

1. 平義隆、黒田 隆之助、安本 正人、田中 真人、池浦 広美、清 紀弘、小川 博嗣、三浦 永祐、豊川 弘之、山田 家和勝、「産総研 S バンド小型リニアック施設の現状」、第 11 回日本加速器学会年会、2014 年 8 月、リンクステーションホール青森(青森県青森市)
2. 平義隆、黒田隆之助、田中真人、大島永康、ブライアンオローク、鈴木良一、豊川弘之、渡辺賢一、柳田健之、八木秀喜、柳谷高公、「小型シンチレータを用いた欠陥分布の 3次元イメージングに関する研究」、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月、東海大学(神奈川県平塚市)
3. Y. Taira, R. Kuroda, M. Tanaka, N. Oshima, B. E. O'Rourke, R. Suzuki, H. Toyokawa, K. Watanabe, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagitani, "Development of a fast response detector using Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> scintillator for lifetime measurement positron emission tomography",

Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry, Jan. 2014, Mumbai (India).

4. 平義隆、黒田隆之助、田中真人、大島永康、  
ブライアンオローク、豊川弘之、鈴木良一、  
渡辺賢一、柳田健之、八木秀喜、柳谷高公、  
「Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> シンチレータと超短パルス  
ガンマ線を用いた欠陥分布イメージング  
に関する研究」、第 50 回アイソトープ・  
放射線研究発表会、2013 年 7 月、東京大  
学（東京都文京区）
5. Y. Taira, R. Kuroda, M. Tanaka, N.  
Oshima, B. E. O'Rourke, R. Suzuki, H.  
Toyokawa, K. Watanabe, T. Yanagida, H.  
Yagi, T. Yanagitani, "Development of a  
compact and fast response detector for  
lifetime measurement positron emission  
tomography", 15th International  
Workshop on Radiation Imaging  
Detectors, June 2013, Paris (France).
6. Y. Taira, R. Kuroda, B. E. O'Rourke, N.  
Oshima, R. Suzuki, M. Tanaka, H.  
Toyokawa, T. Yanagida, K. Watanabe,  
"Development of Photon-induced  
Positron Annihilation Lifetime  
Spectroscopy using an S-band Compact  
Electron Linac", International Particle  
Accelerator Conference 2013, May 2013,  
Shanghai (China).

〔その他〕

ホームページ

<https://staff.aist.go.jp/yoshitaka-taira/index.html>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

平 義隆 (TAIRA, Yoshitaka)

国立研究開発法人 産業技術総合研究所  
分析計測標準研究部門 研究員

研究者番号：60635803