

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月31日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：22360297

研究課題名（和文）加速器を用いた光子誘起陽電子消滅法による非破壊材料評価法の開発

研究課題名（英文）Development of a non-destructive inspection method using accelerator driven photon-induced positron annihilation

研究代表者

豊川 弘之（TOYOKAWA HIROYUKI）

産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員

研究者番号：80357582

研究成果の概要（和文）：

電子加速器を用いて発生した高エネルギーガンマ線ビームを物質に照射し、光子誘起陽電子消滅法によって金属材料の健全性を実環境で評価する手法の開発に成功した。具体的には、電子加速器を用いたレーザーコンプトン散乱によって MeV 領域の超短パルスガンマ線ビームを発生し、これを用いて陽電子パルスの生成、および金属サンプルにおいて光子誘起陽電子の寿命測定を行った。また、水素吸蔵合金の水素吸蔵量を非破壊でその場で観測する手法を開発する事ができた。

研究成果の概要（英文）：

A novel method for nondestructive inspection based on positron annihilation has been presented. It uses high-energy photon beam produced via the laser-Compton scattering and 511 keV annihilation photons produced inside a testing object by the photon beam.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	10,700,000	3,210,000	13,910,000
2011年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造・構造材料

キーワード：強度・靱性・破壊・疲労・クリープ・応力腐食割れ・超塑性・磨耗

1. 研究開始当初の背景

特殊環境下にある材料を、その場で検査するには、金属容器などに試料を密閉した状態で、非破壊分析を行う必要がある。これまでの基礎研究によって、原子炉構造材料や水素貯蔵タンクの健全性(脆性や靱性、寿命)には、応力、格子欠陥、空孔クラスター、不純物析出などが重要な役割を担っていることが分かったが、バルク内での現象は十分に解明されていない。燃料電池に利用される水素吸蔵

合金は、水素貯蔵タンクに水素吸蔵合金を封入して、水素ガスを加圧して合金に吸蔵させるが、その際、合金の空孔型格子欠陥濃度と水素吸蔵量の間に関連があることが最近の研究によって明らかになっている[1]。したがって空孔型格子欠陥の挙動を、材料が置かれた実環境で解明することには大きな意義がある。

これらの現象はナノ領域の空間で起こっており、これを観測する手法の一つとして陽

電子消滅法がある。陽電子は、電子と対消滅を起こす確率が非常に高いため表面の現象しか観察できなかった。しかし上記現象を特殊環境下においてその場で観察するには、陽電子を物質深部へ輸送しなくてはならない。

高エネルギー陽電子消滅法、および光子誘起陽電子消滅法を用いるとそれが可能となる。

物質に 1.02 MeV 以上のエネルギーの光子を照射すると電子・陽電子対が生成する。試料に光子ビームを照射して物質深部で陽電子を生成し、これが消滅する際に発生する陽電子消滅ガンマ線を用いて、材料内部の空孔型格子欠陥濃度や不純物を測定する手法を光子誘起陽電子消滅法という(図 1)。

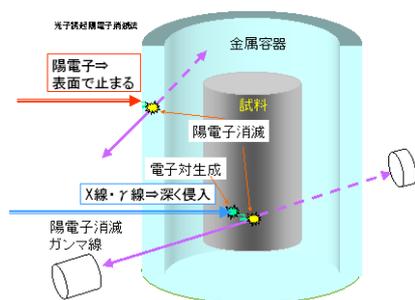


図 1 光子誘起陽電子消滅法の概要

高エネルギー陽電子消滅法とは、陽電子を数 MeV に加速してサンプル深部に打ち込む手法である。ドイツの Max-Planck 研究所 [2] やアメリカの Lawrence Livermore 研究所 [3] で研究されており、深さ約 1 mm までの測定が可能である。

光子誘起陽電子消滅法を用いると、深さ数 cm ～数 10 cm の測定が可能である。本手法は、電子加速器を用いて発生した、高エネルギー X 線と物質(試料)の相互作用によって試料内部に陽電子を発生させ、容器を透過してきた陽電子消滅ガンマ線を計測するものである。試料を非接触、遠隔で測定することができる特長を持つ。

アイダホ州立大学では 20 MeV の電子線形加速器を金属ターゲットに照射して得られる、高エネルギー制動 X 線を用いて陽電子を発生している。陽電子消滅ガンマ線のドップラー広がり測定や陽電子寿命測定を試みているが、陽電子強度の不足や散乱 X 線の影響などのため、実用化には多くの課題がある [4]。

ドイツの Martin-Luther University of Halle-Wittenberg では Forschungszentrum Dresden-Rossendorf (ドレスデン総合研究機構, FZD) の 40 MeV 超電導電子リニアック ELBE を使って高強度の制動 X 線パルスビームによる光子誘起陽電子測定装置 Gamma-induced Positron Spectroscopy (GiPS) を構築している [5]。GiPS では低エネ

ルギー X 線による散乱線、や高エネルギー X 線による中性子生成による強いバックグラウンド放射があるが、入念な遮蔽とパルス同期などの S/N 比を向上させる手段を講じることで、時間分解能 210 ps の PALS が可能となっている。

産業技術総合研究所(産総研)では電子蓄積リング TERAS を用いたレーザーコンプトン散乱(Laser Compton Scattering ; LCS)によって、高エネルギー単色光子ビームを発生する施設 AIST-LCS を運営している [6]。産総研では LCS 光子ビームを用いた非破壊検査手法に関する研究として透過型 CT (コンピュータド・トモグラフィ) システムを構築し、CT による断層像可視化を行った。AIST-LCS では数年前より、LCS 光子ビーム誘起陽電子計測法の開発を進めている [7]。最近では構造材の陽電子放出型 CT の実証に世界で初めて成功した [8]。

- [1] K. Sakaki et al., J. Alloys Compd. 477 (200) 205.
- [2] W. Bauer et al., Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. B50 (1990) 300.
- [3] F. A. Selim et al., J. Appl. Phys. 97 (2005) 113539.
- [4] D. P. Wells et al., Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. A 562 (2006) 688.
- [5] R. Krause-Rehberg et al., Appl. Surf. Sci. 255 (2008) 22.
- [6] H. Toyokawa et al., Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. A608 (2009) S41.
- [7] 平出哲也、豊川弘之、他 3 名「光子誘起による陽電子消滅 γ 線分光及び短寿命原子核準位の測定法」、特許第 4189836 号 (H20.9.26) .
- [8] H. Toyokawa et al., Proc. the 8th Intl. Topical Meeting on Nucl. Appl. and Util. of Accelerators (AccApp07), pp.331-335, 2008.

2. 研究の目的

高エネルギーガンマ線ビームを用いた光子誘起陽電子消滅法によって、材料の空孔型格子欠陥濃度や空孔クラスター生成過程等を、その場で測定する手法を実現し、本手法の有効性を実証する。これによって、特殊環境下にある材料の、空孔型格子欠陥濃度や空孔クラスター生成過程等を、その場で測定する手法を開発する。

最終的に (1) 高温下におけるステンレス鋼の空孔形成エネルギーに関して信頼性の高いデータを得る、(2) 金属材料に応力下で水素を注入する過程における、空孔型格子欠陥濃度変化や空孔クラスター生成過程を

その場で観察し、水素脆性の進展に関する新たな知見を得る、(3) 燃料電池自動車の水素貯蔵タンクに充填された水素吸蔵合金の、空孔型格子欠陥濃度や劣化状態を、遠隔かつ非破壊で測定し、それを可視化する手法を実現することを目指す。

3. 研究の方法

上記目的のため、本研究では電子加速器の高エネルギー電子(数 100 MeV)を用いて高エネルギーガンマ線(~10 MeV 程度)を発生し、これを用いて光子誘起陽電子消滅法を行う手法を実証する。

金属材料の劣化の起点として、空孔型格子欠陥や空孔クラスタリングが重要である。光子誘起陽電子消滅法によってこれらを測定する。具体的には、La 系水素吸蔵合金を用いて水素を加圧吸蔵させながら、その場で陽電子消滅法を行い、水素吸蔵量と空孔型格子欠陥濃度の相関を調べる。理想的な水素吸蔵反応では、水素が原子の格子間に入り込み、水素吸蔵・放出反応時において金属格子への影響はほとんどない。しかし、実際は吸蔵時に金属格子へ格子欠陥が形成されるため、繰り返し使用していく事で水素貯蔵特性が劣化する。水素吸蔵・放出反応時の格子欠陥形成挙動を非破壊で観察し、形成された格子欠陥と水素の相互作用の評価を行うことができれば、水素吸蔵特性の改善を図ることができる。

また、特殊環境下にある材料の空孔型格子欠陥濃度や空孔クラスター生成過程等を、その場で測定するために、高速時間応答の放射線検出器システムを開発し、光子誘起陽電子の寿命を測定するシステムを構築する。

上記研究によって、目的を達成するための基盤技術を開発するとともに、利用研究を進める。

4. 研究成果

La 系水素吸蔵合金を用いて、水素吸蔵量と S パラメータの相関をその場で観察した。S パラメータとは陽電子消滅ガンマ線のスペクトル幅(ドップラー広がり)を表す指標である。本実験の体系を図 2 に示す。ステンレス製のシリンダー内に封入した水素吸蔵合金に、シリンダー外部からガンマ線ビームを照射した。更に、シリンダーに水素を 4 MPa で加圧注入して、水素吸蔵合金に水素を吸蔵させながら、光子誘起陽電子消滅法によって陽電子消滅ガンマ線のエネルギースペクトルを測定した。測定結果は S パラメータ解析によって定量化した。

水素の吸蔵・放出に伴う格子欠陥の形成挙動を観察した結果、図 3、および図 4 に示し

たように、両者には強い相関がみられた。

平成 23 年度の研究において、陽電子寿命測定(PALS)を行うシステムを構築し、本手法によって寿命測定を行うことに成功した。産総研の加速器が震災で長期間故障したため、愛知県岡崎市にある分子科学研究所の電子蓄積リング UVSOR-II を用いて実験を行った。同装置にはパルス幅が数フェムト秒のチタンサファイアレーザーが備えてあり、同レーザーを用いたレーザーコンプトン散乱によってパルス幅 5 ピコ秒、エネルギーが約 6 MeV の超短パルスガンマ線を発生できるビームラインがある。

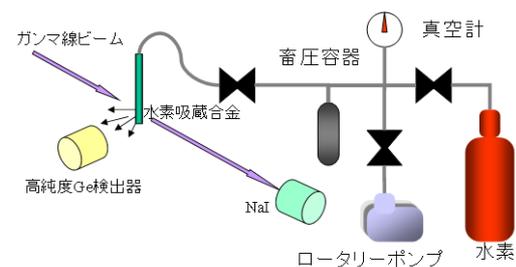


図 2 光子誘起陽電子消滅法を用いて、水素吸蔵合金内部の空孔型格子欠陥を定性的に調べる実験セットアップ。

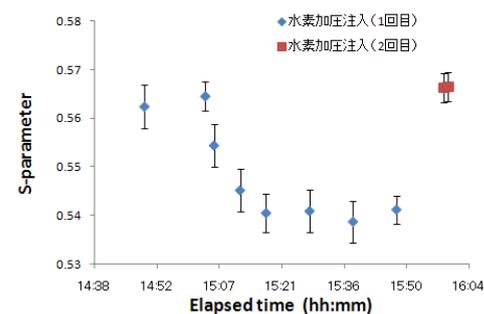


図 3 水素吸蔵時の S パラメータ経時変化。

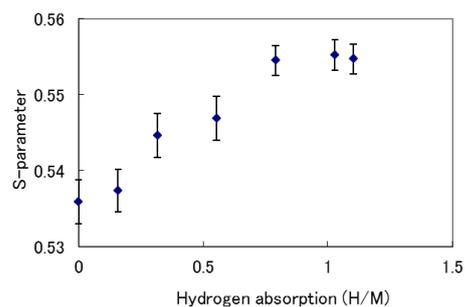


図 4 水素吸蔵量と S パラメータの相関。試料中の水素吸蔵量は金属原子に対する水素原子のモル比 H/M で表した。

同ガンマ線を厚さ 5 cm の鉛ブロック試料に照射して、試料内部から発生した陽電子消滅ガンマ線 (511 keV) を、試料傍に置いた

フッ化バリウム (BaF₂) シンチレータによって検出した。陽電子消滅ガンマ線の信号波形を高速のデジタルオシロスコープによってデジタル化し、チタンサファイアレーザーの繰り返し周波数(1 kHz)と電子蓄積リングの高周波信号(90 MHz)をオシロスコープのトリガーとして用いることで、十分に時間分解能の良い寿命測定を行った。実験のセットアップを図5に示す。

陽電子消滅ガンマ線の輸送に対してモンテカルロシミュレーションを行った。また、シンチレーション検出器内における光子輸送をモンテカルロシミュレーションコードによって解析し、検出器内での散乱に起因する時間分解能を見積もったところ約 60 psecであった。この値は実験的に得られた時間分解能 88 psec のかなりの部分を占めており、検出器素子を小さくすることで、時間分解能を数10%向上できることが分かった。

そこで、BaF₂よりも高密度で、かつ発光波長がより可視域に近いシンチレータ(Yb添加セラミックシンチレータ)を用いた陽電子寿命測定システムを試作し、寿命測定が可能であることを確認した。これによってシステムの時間分解能を70 psec以下とすることが可能であることが分かり、本手法によって金属試料の陽電子消滅寿命測定が可能であることを確認した。最終的に鉛試料の陽電子消滅寿命は194±15 psecと測定された(図6)。

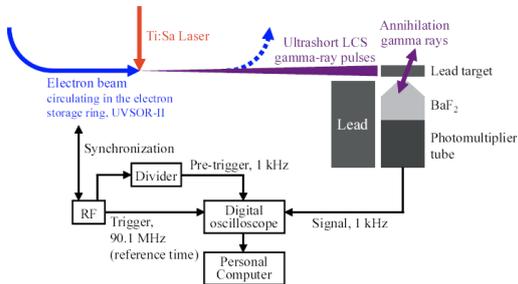


図5 光子誘起陽電子消滅法による、陽電子寿命測定実験のセットアップ。

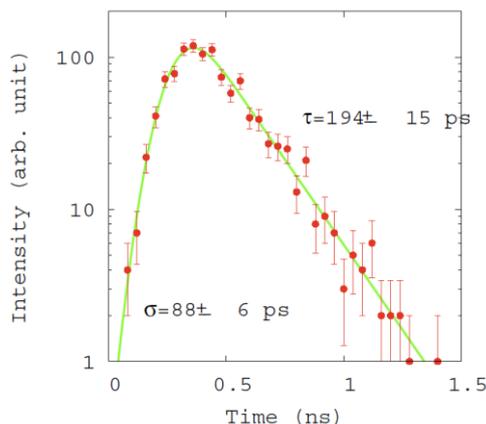


図6 鉛試料の陽電子寿命スペクトル。

以上の研究を行い、光子誘起陽電子消滅法を用いて空孔型格子欠陥濃度やクラスターサイズの測定が可能であること、および応用例として水素吸蔵合金の吸蔵特性の評価を行う事が可能であることが示された。本研究の当初の目的を達成するための基盤技術の開発に成功し、利用研究を進めるための準備が整ったと結論する。

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6件)

- ① 平義隆、Photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy using an S-band compact electron linac, RADIATION PHYSICS AND CHEMISTRY, in press, 2013、<http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2012.11.012i>
- ② 平義隆、Photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy using ultrashort laser-Compton-scattered gamma-ray pulses、Review of Scientific Instruments, 84巻 053305号、2013、1-5、<http://dx.doi.org/10.1063/1.4807701>
- ③ 平義隆、Feasibility Study of Gamma-induced Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy in an Electron Storage Ring, Proceedings of IPAC2012、1巻、2012、4103-4105、なし
- ④ 豊川弘之、レーザーと電子加速器を用いた光源装置開発と利用研究、0 plus E、33巻(2)、2011、127-129、なし
- ⑤ 豊川弘之、他10名、Two-Dimensional Isotope Imaging of Radiation Shielded Materials Using Nuclear Resonance Fluorescence、Japanese Journal of Applied Physics, RC、50巻 100209号、2011、1-3、DOI: 10.1143/JJAP.50.100209
- ⑥ 豊川弘之、他5名、Nondestructive inspection of explosive materials using linearly polarized two-colored photon beam、Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A、652巻、2011、21-24、doi:10.1016/j.nima.2011.01.158

[学会発表] (計14件)

- ① 平義隆、90度衝突レーザーコンプトン散乱を用いた超短パルスガンマ線の発生とその応用に関する研究、日本物理学会第

- 68 回年次大会 (招待講演)、2013/3/27、広島大学(広島県)
- ② 平義隆、超短パルスガンマ線と新規シンチレータを用いた欠陥分布イメージングに関する研究、日本物理学会第 68 回年次大会、2013/3/26、広島大学 (広島県)
- ③ 平義隆、Generation of ultra-short gamma ray pulses and application to photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy、2013 Asian Core Workshop on Advanced Quantum-Beam Sources and Applications (招待講演)、2013/3/1、Daejeon (韓国)
- ④ 豊川 弘之、レーザー逆コンプトン散乱ガンマ線の応用、放射線科学とその応用第 186 委員会 第 4 回委員会 (招待講演)、2012/12/13、名古屋大学 (愛知県)
- ⑤ 平義隆、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、ビーム物理研究会 2012、2012/12/1、広島大学 (広島県)
- ⑥ 平義隆、Development of positron annihilation lifetime spectroscopy using ultra-short photon pulses、12th International Symposium on Radiation Physics、2012/10/9、Rio de Janeiro (ブラジル)
- ⑦ 平義隆、産総研 S バンド小型リニアックを用いた光子誘起陽電子消滅寿命測定法の開発、第 55 回放射線化学討論会、2012/9/27、岩沼市(宮城県)
- ⑧ 平義隆、超短パルスガンマ線を用いた光子誘起陽電子消滅寿命測定法の開発、第 9 回日本加速器学会年会、2012/8/10、大阪大学 (大阪府)
- ⑨ 平義隆、超短パルスガンマ線の発生と陽電子消滅寿命測定法への応用、第 14 回放射線プロセスシンポジウム、2012/6/29、東京大学 (東京都)
- ⑩ 平義隆、Feasibility Study of Gamma-induced Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy in an Electron Storage Ring、International Particle Accelerator Conference 2012、2012/5/20、New Orleans (米国)
- ⑪ Orourke Brian、豊川 弘之、他 6 名、超短パルス電子加速器を用いる光子誘起陽電子寿命測定法の開発、日本物理学会第 67 回年次大会、2012/3/24、関西学院大学 (兵庫県)
- ⑫ 平義隆、豊川 弘之、他 6 名、超短パルスガンマ線のパルス幅測定手法の開発と陽電子消滅寿命測定への応用、第 25 回日本放射光学学会年会、2012/1/8、鳥栖市民文化会館 (佐賀県)
- ⑬ 豊川 弘之、他 17 名、産総研電子加速器施設の現状、第 8 回日本加速器学会年会、

- 2011/8/1、つくば国際会議場(茨城県)
- ⑭ 豊川 弘之、Novel imaging method for special nuclear materials and explosives in cargo containers using linearly polarized two-colored photon beam、12th Symposium on Radiation Measurements and Applications (SORMA XII)、2010/5/27、Ann Arbor (アメリカ合衆国)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊川 弘之 (TOYOKAWA HIROYUKI)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員
研究者番号：80357582

(2) 研究分担者

榊 浩司 (SAKAKI KOUJI)
産業技術総合研究所・エネルギー技術研究部門・主任研究員
研究者番号：20392615

平 義隆 (TAIRA YOSHITAKA)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・研究員
研究者番号：60635803

(3) 連携研究者

高井 健一 (TAKAI KENICHI)
産業技術総合研究所・エネルギー技術研究部門・主任研究員
研究者番号：50317509

鬼塚 貴志 (ONITSUKA TAKASHI)
日本原子力研究開発機構・安全研究センター・研究員
研究者番号：90422336

平出 哲也 (HIRADE TETSUYA)
日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹・主任研究員
研究者番号：10343899

友田 陽 (TOMOTA YO)
茨城大学大学院・理工学研究科・教授
研究者番号：90007782