

令和 6 年 6 月 27 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K05250

研究課題名（和文）時間およびエネルギー分析メスbauer分光法の開発

研究課題名（英文）Development of Time- and Energy-Resolved Mossbauer Spectroscopic System

研究代表者

北尾 真司 (Kitao, Shinji)

京都大学・複合原子力科学研究所・准教授

研究者番号：00314295

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は元素を選択した電子状態や磁気状態などの優れた分析手法であるメスbauer分光法において、時間分析およびシグナル波高（エネルギー）分析を同時に行う回路系を導入することにより、これまでほとんど行われてこなかった新たな分光法へ活用するための測定回路系の開発を目的とするものである。本研究で開発した手法により、放射性線源を用いる実験と、放射光を線源とする放射光メスbauer吸収分光法のいずれにおいても、時間分析およびエネルギー分析の実験が可能であることを実証した。この手法を用いることで時間分析およびエネルギー分析メスbauer分光の応用研究の展開の新しい道を開くことができ、さらなる発展が期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般的なメスbauer分光法は時間分析の手法はほとんど行われていなかったが、たとえば時間的に変動する系などの時間変化測定などといった新しい実験への応用が可能となる。またエネルギー分析の手法は、深さ分析によるメスbauer分光や、ノイズ除去により実験効率を向上などの、メスbauer分光法を深化させるために有用な手法となる。エネルギー分析と時間分析の手法は同時に行うことができるため、応用の幅は非常に大きくメスbauer分光法を用いた分析手法の活用範囲を大きく拡大することができる。

研究成果の概要（英文）：The main purpose of this research is development of the measurement system for time-resolved and energy-resolved Mossbauer spectroscopy. The system can be used for both Mossbauer spectroscopy using radioactive source and synchrotron-radiation-based Mossbauer spectroscopy. The effectiveness of this system has been successfully demonstrated by some experiments. This time-resolved and energy-resolved measurement system opens a new research areas in Mossbauer spectroscopy.

研究分野：放射線物性

キーワード：メスbauer分光 核共鳴散乱 放射光 時間分析 波高(エネルギー)分析

1. 研究開始当初の背景

メスbauer分光は、メスbauer効果(原子核のガンマ線無反跳共鳴吸収現象)を利用した、電子状態や振動状態などのさまざまな情報が得られる研究手法として広く用いられており、ある特定の核種についての情報が得られるという特徴から、複雑な物理現象から一つの核種についての情報を抽出するプローブとして不可欠な分光法の一つとして活用されてきた。しかしながら、従来のメスbauer分光では放射性線源を必要とすることもあり、線源の管理と入手の困難さから Fe と Sn 以外の核種の実験はほとんど行われていないのが現状であった。一方、放射光を線源の代わりに使用した放射光メスbauer吸収分光法が開発され、放射光のエネルギーを原子核の励起エネルギーに合わせることで、さまざまな核種のメスbauer分光が実施できるようになり、メスbauer分光に利用できる核種が格段に広がってきた(Fig.1)。放射光メスbauer吸収分光法は、従来のメスbauer分光とほぼ同様のスペクトルを取得することができ、得られる情報も従来のメスbauer分光と同様であり、メスbauer分光をさまざまな方向性へと発展させることが期待できる状況となってきた。放射光メスbauer吸収分光法では、検出器や測定系などの実験手法が従来の放射性線源を用いた分光法とは異なっており、実験手法は測定系の開発に追うところが大きく、測定手法の開発の余地がある分光法である。特に検出器や測定回路系、データ収集システムにおいては開発途上の面があり、測定手法としては確立しているものの、先端的な実験技術を駆使することにより、放射光メスbauer分光の研究対象を大きく進展させる可能性を持っていると言える状況である。

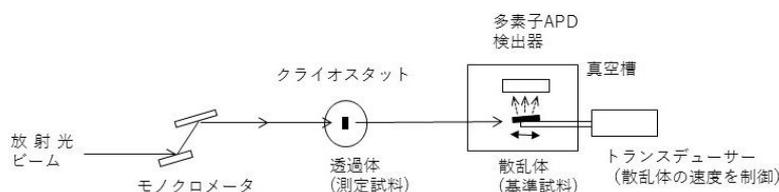


Fig.1 放射光メスbauer吸収分光法の模式図

2. 研究の目的

本研究は、放射光メスbauer吸収分光法において、実験技術の開発によりこれまで実施が難しかった多くの応用実験の展開をめざすものであり、検出器や測定回路系、データ収集システムの新たな開発により、時間分析とエネルギー分析を行うことが可能なメスbauer分光を確立し、これを用いた応用実験を行うことを目的として研究を実施した。放射光メスbauer吸収分光法では、放射線源を用いる場合と異なり、検出器としては時間分解能の非常に高い検出器であるアバランシュフォトダイオード(APD)検出器が使用される。通常、時間分解能の高いシグナルにおいてその波高分析を行うことが難しいことから、シグナルの波高(エネルギー)情報はほとんど用いられていなかった。本研究では、高い時間分解能を維持したままで波高分析を行う測定回路系を構築して、時間分析とエネルギー分析を同時に行うことを可能にする測定系の開発を目指した。これまで、このような手法が用いられていなかったのは、使用する高速検出器からのシグナルは非常に頻度が高く(毎秒数百万カウント)また非常に高い時間分解能を要する(ナノ秒オーダー)ため、これを処理する測定系の構築が困難であったからである。本研究では、これを実現するために、信号を2つに分けて、一方を高い時間分解能(0.5ナノ秒)のマルチチャンネルスケラ(MCS)を使用して、時間情報を記録すると同時に、もう一方は波高-時間変換器(ATC)を用いて、エネルギーの情報を時間に変換して、MCSに入力することで、エネルギー情報についても記録するという手法を開発した(Fig. 2)。非常に高速の信号をこのような手法で処理して記録する手法は、これまで行われておらず、高速信号を処理して蓄積する、独自の回路系である。また、通常、限られた実験日数で行う放射光実験では、設定を変えるごとに再測定をすると実験効率が悪いが、この手法では実験後に任意の時間やエネルギーで分析して、測定条件を再構築することができる。このような手法は、限られた放射光実験の実験時間を有効に活用し、これまでと同じ実験時間の測定により、あらたな情報を付加したデータ解析を行うことができるため、非常に有用な手法であると言える。この測定系を用いて、放射光メスbauer吸収分光法の応用実験

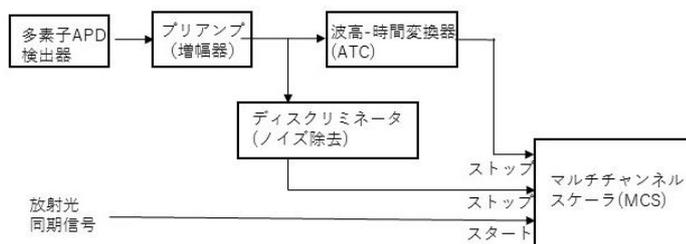


Fig.2 信号処理回路の模式図

の活用の幅を飛躍的に広げることができる。本研究では、通常メスバウアー分光では、これまでほとんど行われてこなかった、時間分析とエネルギー分析を同時に行うという手法を用いて、メスバウアー分光を新たなステージへ拡大するための応用実験を実現することを目的とする。例えば、シグナルの時間分析をする応用実験の例としては、任意の時間変化を測定する分光実験が可能になる。また、シグナルのエネルギー分析をする応用実験の例としては、試料からの深さに依存した情報を引き出すことが可能になる。本研究では、構築された測定系を用いてこれらの応用実験を実施し、これまでできなかった多くの実験に応用範囲を広げることが可能となることを実証し、これらの実験が実現可能な測定手法を構築することを目指した。

3. 研究の方法

本研究を実施するにあたり、下記のように測定系の開発を実施し、その応用実験を行った。

- 1) APD素子とプリアンプを複数組み込んだ多素子APD検出器を作成し、動作テストを行った。
- 2) 波高-時間変換器(ATC)を作成し、検出器素子ごとに回路系を構築して、最適化を行い、動作テストを行った。
- 3) マルチチャンネルスケーラ(MCS)にてデータを蓄積するテストを行い、データ処理ソフトの開発を行った。
- 4) 本測定系が時間分析とエネルギー分析が同時に測定可能であることを実証するために、 ^{181}Ta 放射線源を用いて、異なるエネルギーのシグナルを抽出して、その時間相関から励起状態の半減期の測定が可能であることの実証実験を行った。
- 5) 本測定系が放射光メスバウアー分光において測定可能であることを実証するために ^{151}Eu メスバウアー分光を用いて、エネルギーの違いにより表面と内部のそれぞれの情報が引き出せることによって電子状態の深さ分析に応用できることを実証する実験を行った。

4. 研究成果

1) 放射線源を用いた時間およびエネルギー分析の実証実験

本実験は放射線源を用いて、本研究で開発された時間およびエネルギー分析測定系を実証する実験である。放射線源は、Hf 箔を京大原子炉(KUR)にて照射し、 ^{181}Ta 線源を生成させた。 ^{181}Ta は 133keV の γ 線を放出して第一励起状態に遷移したのち、482keV の γ 線を放出し基底状態に遷移する。検出器としては BaF₂ シンチレーション検出器を用いて、検出されたシグナルの波高(エネルギー)と検出された時刻の両方を本測定回路系により記録して蓄積した。蓄積されたデータから 133keV のエネルギーを持つものと 482keV のエネルギーを持つものの時間差を分析することで、第一励起状態の半減期を測定することができた。得られた半減期は 10.6ns であり、文献値とほぼ一致する結果が得られた。この実験により、放射線源からのシグナルの時間およびエネルギーを同時に分析できる測定系が、良好に動作してさまざまな実験に活用できることが実証できた。(Fig.3)[1]

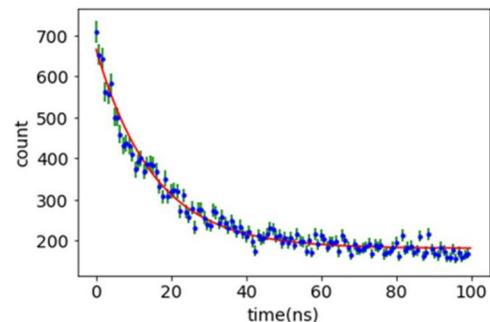


Fig.3 ^{181}Ta の第一励起状態の時間スペクトル[1]

2) エネルギー分析した放射光メスバウアー分光による深さ分析メスバウアー分光の実証実験

本実験では、 ^{151}Eu 放射光メスバウアー分光においてエネルギー分析の手法を用いて試料中の異なる深さにおける電子状態の違いを分析する手法についての実証実験を行った。測定試料は EuS(Eu²⁺)と EuF₃(Eu³⁺)の 2 層に重ねた試料を用い、基準となる参照試料としては EuF₃ を用いた。放射光メスバウアー分光では時間分析により電子散乱と核共鳴散乱を区別する必要があるため、時間分析とエネルギー分析を同時に行う必要がある。測定するシグナルは 21.5keV のガンマ線と 5.8keV の蛍光 X 線の両方を観測するが、蓄積したデータからそれぞれのエネルギーで区別してメスバウアースペクトルを再構成することにより、エネルギーの高いシグナルによる試料の深部の情報と、エネルギーの低いシグナルによる試料の表面付近の情報を区別して測定することに成功した。(Fig.4)[2]

文献

- [1] Development of a measurement system enabling the reconstruction of γ -ray time spectra by simultaneous recording of energy and time information
H. Tajima, S. Kitao, R. Masuda, Y. Kobayashi, T. Masuda, K. Yoshimura and M. Seto
Jpn. J. Appl. Phys. 58, 108001 (2019).

[2] Development of Time- and Energy-Resolved Synchrotron-Radiation-Based Mossbauer Spectroscopy
S. Kitao, R. Masuda, T. Fujihara, H. Tajima, N. Nagasawa, Y. Yoda, T. Masuda, K. Yoshimura
and M. Seto
J. Phys.: Conf. Ser. 2380, 012136 (2022).

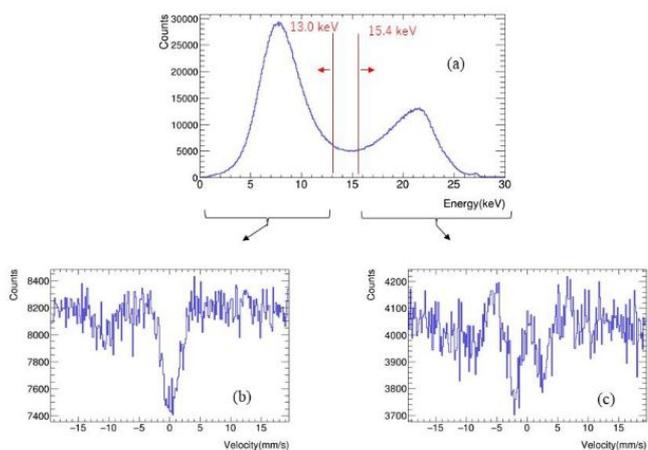


Fig.4 ^{151}Eu 放射光メスbauer分光におけるエネルギー分析により
再構成したメスbauerスペクトル例[2]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kitao S., Masuda R., Fujihara T., Tajima H., Nagasawa N., Yoda Y., Masuda T., Yoshimura K., Seto M.	4. 巻 2380
2. 論文標題 Development of Time- and Energy-Resolved Synchrotron-Radiation-Based Mossbauer Spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 12136
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/2380/1/012136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kitao Shinji, Kobayashi Yasuhiro, Kurokuzu Masayuki, Kubota Takumi, Seto Makoto	4. 巻 244
2. 論文標題 Preparation of Mossbauer sources for 161Dy, 166Er, and 169Tm	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Hyperfine Interactions	6. 最初と最後の頁 10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10751-023-01822-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tajima Hiroyuki, Kitao Shinji, Masuda Ryo, Kobayashi Yasuhiro, Masuda Takahiko, Yoshimura Koji, Seto Makoto	4. 巻 58
2. 論文標題 Development of a measurement system enabling the reconstruction of γ -ray time spectra by simultaneous recording of energy and time information	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 108001
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/1347-4065/ab3f19	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 S. Kitao, R. Masuda, T. Fujihara, H. Tajima, N. Nagasawa, Y. Yoda, T. Masuda, K. Yoshimura, and M. Seto
2. 発表標題 Development of Time and Energy Resolved Synchrotron Radiation based Mossbauer Spectroscopy
3. 学会等名 4th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021)（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Kurokuzu, T. Kubota, M. Seto
2. 発表標題 Development of Mossbauer Sources for 161Dy, 166Er, and 169Tm
3. 学会等名 International Symposium on the Industrial Applications of the Mossbauer Effect(ISIAME2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北尾真司、小林康浩、瀬戸誠
2. 発表標題 多元素メスbauer分光の現状
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第184 回秋季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北尾真司, 増田亮, 藤原拓, 田嶋寛介, 永澤延元, 依田芳卓, 瀬戸誠
2. 発表標題 時間およびエネルギー分析Eu-151放射光メスbauer吸収分光法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会(2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Kitao, R. Masuda, T. Fujihara, H. Tajima, N. Nagasawa, Y. Yoda, T. Masuda, K. Yoshimura, and M. Seto
2. 発表標題 Development of Time- and Energy-Resolved Synchrotron-Radiation-Based Mossbauer Spectroscopy
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北尾真司, 増田亮, 谷口博紀, 田嶋寛介, 依田芳卓, 瀬戸誠
2. 発表標題 核共鳴散乱のエネルギー分析による深さ依存メスパワー分光法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 北尾真司, 黒葛真行, 山下拓之, 増田亮, 永澤延元, 依田芳卓, 瀬戸誠
2. 発表標題 Er-166放射光メスパワー吸収分光法の開発
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会(2023)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Kitao, M. Kurokuzu, H. Yamashita, R. Masuda, N. Nagasawa, Y. Yoda, T. Masuda, K. Yoshimura, and M. Seto
2. 発表標題 Development of 166Er Synchrotron-radiation-based Mossbauer spectroscopy
3. 学会等名 International Conference on Hyperfine Interactions and their Applications (Hyperfine 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------