

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：63903
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2021～2023
課題番号：21H03740
研究課題名(和文) 超短パルスガンマ線を用いた陽電子寿命運動量相関測定法の開発と利用研究の推進

研究課題名(英文) Development of positron age-momentum correlation measurement using ultra-short pulsed gamma rays and promotion of utilization research

研究代表者
平 義隆 (Taira, Yoshitaka)
分子科学研究所・極端紫外光研究施設・准教授

研究者番号：60635803
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、研究代表者が放射光施設UVSORにおいて独自に開発した超短パルスガンマ線を用いて陽電子寿命運動量相関測定法(GIAMOC)の開発を行った。超短パルスガンマ線の最大エネルギーは6.6 MeV、パルス幅は5 psである。従来の陽電子寿命運動量相関測定法は、アナログモジュールを用いた複雑な測定システムであったが、本研究ではデジタルオシロスコープを用いた簡便な測定システムを構築することに成功した。複数の試料を測定し、消滅ガンマ線のエネルギー広がりが時間と共に変化する事が明瞭に測定され、GIAMOCの有用性を実証することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

陽電子消滅測定法は、結晶を構成する原子の一部が存在しない単原子空孔型欠陥や高分子中のsub-nm～数nm程度の微小空隙の測定を行える強力な手法である。本研究では、陽電子消滅測定法の一つであるGIAMOCの開発を行った。GIAMOCを用いることで、これまで困難であった厚さ数cmのバルク試料の測定や高温高圧など特殊環境下の試料の測定を行う事ができるようになる。

研究成果の概要(英文)：In this study, a positron age momentum correlation measurement using ultrashort pulsed gamma-rays (GiAMOC), which was originally developed by the principal investigator at the synchrotron radiation facility UVSOR, was developed. The maximum energy of the ultrashort pulsed gamma-rays is 6.6 MeV and the pulse width is 5 ps. The conventional positron age momentum correlation measurement is a complicated measurement system with analog modules, but in this study, a simple measurement system with a digital oscilloscope was successfully constructed. The measurement of multiple samples clearly showed that the energy spread of annihilation gamma rays changes with time, demonstrating the usefulness of GiAMOC.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：ガンマ線 トムソン散乱 コンプトン散乱 陽電子消滅

1. 研究開始当初の背景

電子の反粒子である陽電子は、図1に示すように電子と対消滅することで2本の消滅ガンマ線を放出する。陽電子が消滅するまでの寿命は陽電子周囲の電子密度に依存するため、陽電子が電子密度の低い材料中の欠陥で消滅すると寿命は長くなる。したがって、消滅ガンマ線の放出時間分布(陽電子寿命スペクトル)を測定することで、試料内部の欠陥の種類と大きさや濃度を非破壊で分析することができる。これは陽電子消滅寿命測定法(Positron annihilation lifetime spectroscopy: PALS)と呼ばれ、他の方法では測定困難な結晶を構成する原子の一部が存在しない単原子空孔型欠陥や高分子中のsub-nm~数nm程度の微小空隙の測定を行えることに大きな特徴がある。従来は放射性同位元素から発生する陽電子を試料に照射しているが(図1下)、エネルギー1.022 MeV以上のガンマ線を照射すると対生成によって陽電子を生成することができる(図1上)。後者は、ガンマ線誘起陽電子消滅寿命測定法(Gamma-ray induced PALS: GiPALS)と呼ばれる。PALSの時間分解能は、最も優れたもので120 ps(半値全幅)の装置が開発されている。それよりもパルス幅の短い超短パルスガンマ線をGiPALSに利用することで、時間分解能を悪化することなく陽電子寿命の測定を行う事ができる。研究代表者は、分子科学研究所の放射光源加速器UVSOR-IIIにおいて、パルス幅5 ps(半値全幅)、最大エネルギー6.6 MeVの超短パルスガンマ線発生法を独自に開発し、GiPALSへ応用することに成功している。

PALSでは、図2左に示すように2本の消滅ガンマ線の時間情報のみを測定している。これに対して、図2右に示すように片方の消滅ガンマ線は消滅時刻を測定し、もう片方の消滅ガンマ線はエネルギーを測定する方法も存在し、陽電子寿命運動量相関測定法(Age-momentum correlation: AMOC)と呼ばれる。これまでに、AMOCは放射性同位元素を用いて、ポジトロニウム形成の測定や空孔形成エネルギーの測定、ナノ粒子が埋め込まれた物質の測定などが行われてきた。AMOCは、PALSよりも豊富な情報を得る事ができる優れた方法であるが、アナログモジュールを用いて、消滅ガンマ線のエネルギーに関わる μs オーダーの波形と消滅時間に関わるnsオーダーの波形の同時測定を実現する測定システムの複雑さから幅広い利用には至っていない。

本研究で利用する超短パルスガンマ線は、90度衝突の逆トムソン散乱によって発生している。逆トムソン散乱は、高エネルギーの電子ビームにレーザーを衝突させ、エネルギーMeV領域のガンマ線を発生する手法である。図3上に示すように従来の逆トムソン散乱は、電子ビームとレーザーを正面衝突しているため、ガンマ線のパルス幅は電子ビームのそれと同じ数100 psである。それに対して放射光源加速器に使われる電子蓄積リングを周回する電子ビームは、そのパルス幅よりも横方向のビームサイズが1/100~1/1000以下の非常に小さい形状をしているため、図3下のように直角90度方向からフェムト秒レーザーを衝突させることで、パルス幅sub-ps~psのガンマ線を発生することができる。

2. 研究の目的

本研究は、UVSOR-IIIにおいて開発した超短パルスガンマ線を用いて簡便な測定システムのガンマ線誘起寿命運動量相関測定法(Gamma-ray induced AMOC: GiAMOC)を開発し、その有用性を実証することである。

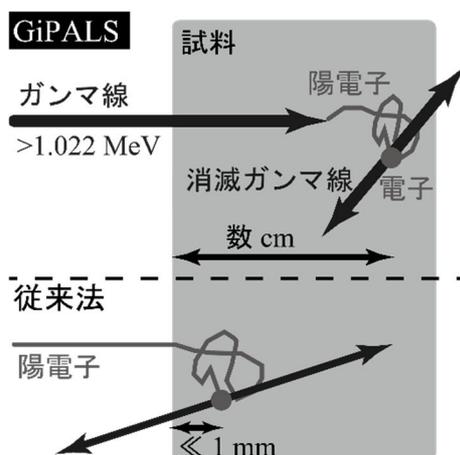


図1: GiPALS(上)と従来(下)の陽電子消滅寿命測定法の概要。

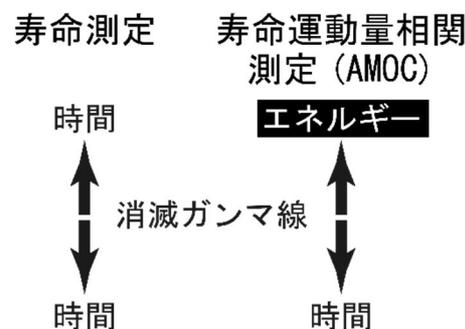


図2: 陽電子消滅寿命測定(PALS)と陽電子寿命運動量相関測定(AMOC)の違い。

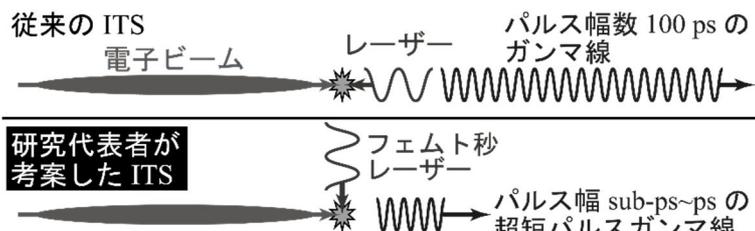


図3: 従来の逆トムソン散乱(ITS)(上)と研究代表者が考案した逆トムソン散乱(下)の概要。

放射性同位元素を用いた従来の AMOC と比べた GiAMOC の利点は下記の通りである。(1)ガンマ線の高い透過力によって厚さ数 cm のバルク試料や容器に封入された試料の測定が可能であるため、従来の放射性同位元素を用いた方法では困難であった、厚さ数 cm のバルク材料の測定や高温状態での測定、装置に実装され動作中の材料の測定を行うことができる。(2)従来の AMOC で測定される線源成分が無視できるほどに小さい。 ^{22}Na などの放射性同位元素を用いて測定を行う場合、密封線源とするために ^{22}Na はカプトン膜などに密封されている。陽電子が試料以外のカプトン膜で消滅し測定データに含まれる成分は線源成分と呼ばれる。それに対して、GiAMOC は線源成分が無視できるほどに小さく、試料由来のデータのみを測定することができる。

3. 研究の方法

本研究期間内に開発した GiAMOC の概要を図 4 に示す。詳細に関しては、Rev. Sci. Instr. 93 (2022) 113304 にまとめている。発生した超短パルスガンマ線は、厚さ 180 mm の鉛ブロックに直径 3 mm または 5 mm の貫通穴が開いたコリメータを通過させることでビーム径を成形し、試料に照射する。超短パルスガンマ線が照射された試料内部では、対生成によって陽電子が発生し同じ試料内でエネルギーを失い熱化する。この陽電子は、欠陥にトラップされた後に電子と対消滅することで 2 本の消滅ガンマ線を 180 度方向に放出する。したがって、試料を挟んで対向する位置に 2 本の検出器を配置することで、消滅ガンマ線のコインシデンス測定を行う。GiAMOC は図 2 右または図 4 に示すような測定方法であるため、片方の検出器は高速時間応答の BaF_2 シンチレータに光電子増倍管を接合した検出器(以下 BaF_2 検出器)を使用し、もう片方の検出器にはガンマ線検出器の中で最もエネルギー分解能の高い高純度 Ge 半導体検出器を使用する。

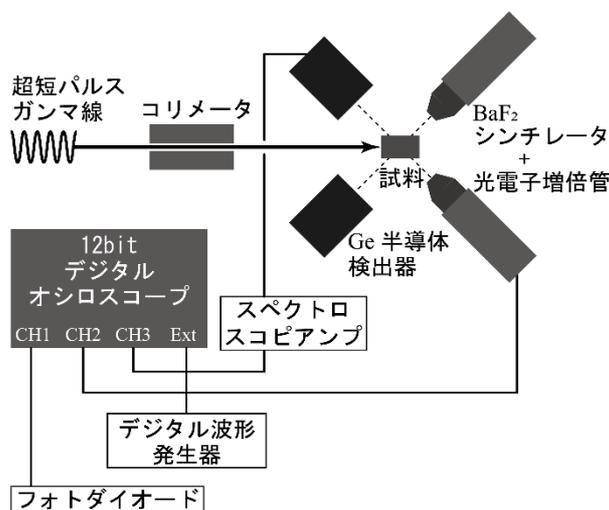


図 4: 本研究期間内に開発した GiAMOC の概要。1 組の Ge 半導体検出器と BaF_2 検出器を 1 台のデジタルオシロスコープに接続し、波形解析を行う。純鉄と合成石英の測定のみ同じ組み合わせを合計 2 組用意することで計数率を 2 倍にした。

消滅ガンマ線の放出時間とエネルギーの同時測定を行うため、デジタルオシロスコープ(DSO)を用いて波形解析を行った。DSO には、図 4 に示す通りフォトダイオード、 BaF_2 検出器、Ge 検出器、デジタル波形発生器の信号を入力した。フォトダイオードは、電子ビームとレーザーの衝突点近傍に設置され、陽電子寿命測定のためのスタート信号となるレーザーを検出している。GiAMOC の測定を行うためには、陽電子寿命測定のためのスタート信号とストップ信号(BaF_2 検出器)、エネルギー測定用の信号(Ge 検出器)を使ったトリプルコインシデンスを行う必要がある。使用している DSO のトリガー方式の制約から、それら 3 つの波形を用いてトリガーをかけられなかったためフォトダイオードの代わりにレーザーに同期したデジタル波形発生器の信号を利用した。デジタル波形発生器の波形は、Ge 検出器の出力波形のピーク位置と合うように遅延時間を調整した。DSO は、Qualified トリガーモードでトリガーをかけ、トリガー-A を BaF_2 検出器の波形、トリガー-B を Ge 検出器とデジタル遅延発生器のアンドトリガーとした。これにより、DSO は、上記のトリプルコインシデンスによりトリガーがかけられた。トリガーがかかった時にデジタル遅延発生器以外の波形を全て保存し、自作のプログラムを用いて波形解析を行った。消滅ガンマ線の放出時間は、フォトダイオードの信号と BaF_2 検出器の出力信号の時間差から計算した。消滅ガンマ線のエネルギーは、Ge 検出器の波形の波高値から計算した。使用した DSO は、縦軸の分解能が通常のおシロスコープよりも高い 12bit であるために、ガンマ線のエネルギー測定時に一般的に用いられるマルチチャンネルアナライザーとほぼ同等の分解能を達成できる。

4. 研究成果

本研究期間内に測定した 4 つの試料(純鉄、IF 鋼、合成石英、 BaF_2 結晶)の結果を述べる。試料の大きさはそれぞれ、純鉄(15×6×15 mm)、IF 鋼(10×4×60 mm)、合成石英(30×10×10 mm)、 BaF_2 結晶(15×10×10 mm)であり、測定時間はそれぞれ、純鉄(26.5 時間)、IF 鋼(17 時間)、合成石英(35.5 時間)、 BaF_2 結晶(18 時間)である。純鉄の GiAMOC スペクトルを図 5 に示す。横軸は、スタート信号とストップ信号の時間差を表しており、縦軸は 511 keV からのエネルギー差を消滅相手である電子の運動量に変換した値である。エネルギースペクトル全体の積分値に対する中心付近のみの積分値の比を S パラメータ $S(t)$ として計算した結果を図 6 に示す。横軸の時刻 0 は、陽電子が消滅し始める時間を表し、陽電子寿命スペクトルの解析ソフトである LT9 を用いて決定した。

純鉄試料の場合、 $S(t)$ は時間経過と共に変化していない。熱処理した純鉄試料を測定したため、内部に陽電子で検出できる欠陥が存在しないためと考えられる。一方で、IF鋼は時間経過と共に $S(t)$ が徐々に増加している。公称ひずみ10%まで変形したIF鋼を測定したため、内部に転位や空孔が形成されていると考えられる。陽電子が欠陥で消滅すると運動量分布の小さい電子と消滅することになるので、消滅ガンマ線のエネルギー広がりが小さくなり $S(t)$ の値は大きくなる。また、欠陥の陽電子寿命は格子間位置で消滅するよりも長くなる。以上の理由より、IF鋼の $S(t)$ が時間経過と共に大きくなったと考えられる。

合成石英の $S(t)$ は、時間経過と共に減少する結果となった。合成石英内部では陽電子と電子の結合状態であるポジトロニウムが形成される。ポジトロニウムには2種類あり、パラポジトロニウムは陽電子寿命が短くエネルギー広がりが小さい。オルソポジトロニウムは陽電子寿命が長くエネルギー広がりが大きい。そのため、時刻0付近ではパラポジトロニウムが主に消滅することで $S(t)$ が大きく、時間が経過するとオルソポジトロニウムの消滅が測定されるために $S(t)$ が小さくなる。

BaF_2 結晶は、時間経過と共に $S(t)$ がわずかに減少する結果となった。 BaF_2 結晶内部においてもポジトロニウムが形成される。しかし、 BaF_2 結晶内部には陽電子が捕獲される欠陥も形成されており、時間経過と共に $S(t)$ が増加する欠陥での消滅と $S(t)$ が減少するポジトロニウムの消滅が合わさる事で図6のような測定結果になったと考えられる。

異なる4つの試料を測定することでGiAMOCスペクトルが明瞭に変化することを測定する事ができ、開発したGiAMOCシステムの有用性を示すことができた。

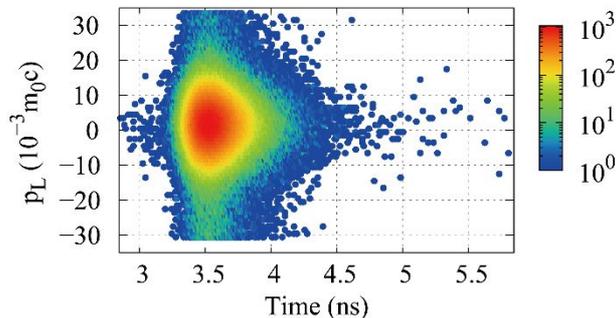


図5: 純鉄試料のGiAMOCスペクトル。

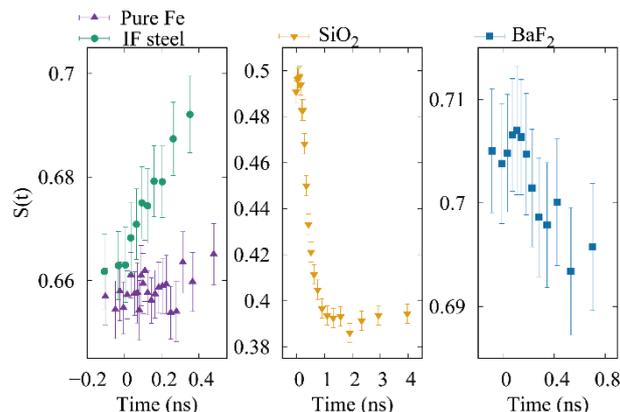


図6: 純鉄、IF鋼、合成石英、 BaF_2 結晶の S パラメータの時間変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Taira Yoshitaka, Yamamoto Ryohei, Sugita Kento, Okano Yasuaki, Hirade Tetsuya, Namizaki Shogo, Ogawa Toshio, Adachi Yoshitaka	4. 巻 93
2. 論文標題 Development of gamma-ray-induced positron age-momentum correlation measurement	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 113304 ~ 113304
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0105238	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 平義隆	4. 巻 20
2. 論文標題 UVSOR-IIIにおけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 陽電子科学	6. 最初と最後の頁 3-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Y. Taira, K. Sugita, R. Yamamoto, Y. Okano, M. Fujimoto, T. Hirade	4. 巻 -
2. 論文標題 ガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan	6. 最初と最後の頁 138-140
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 Y. Taira, Y. Okano, T. Hirade, A. Yabuuchi
2. 発表標題 Development of gamma-ray-induced positron annihilation spectroscopy at UVSOR-III
3. 学会等名 16th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques & Applications (SIoPos-16) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Taira, Y. Okano, T. Hirade
2. 発表標題 Gamma-ray-induced positron annihilation spectroscopy at UVSOR-III BL1U
3. 学会等名 The 14th International Particle Accelerator Conference (IPAC '23) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平義隆
2. 発表標題 UVSOR における超短パルスガンマ線を用いた陽電子消滅分光法の開発
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平義隆
2. 発表標題 UVSORにおけるガンマ線源開発と利用研究の現状
3. 学会等名 第30回FELとHigh-Power Radiation研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Taira, K. Sugita, Y. Okano, T. Hirade
2. 発表標題 Development of gamma ray induced positron annihilation spectroscopy
3. 学会等名 Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Taira, K. Sugita, Y. Okano, T. Hirade
2. 発表標題 Gamma ray induced positron annihilation spectroscopy at UVSOR-III
3. 学会等名 19th International Conference on Positron Annihilation (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Taira, K. Sugita, Y. Okano, T. Hirade
2. 発表標題 Ultra-short pulsed gamma rays and their application to material science
3. 学会等名 Asia-Oceania Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平義隆、杉田健人、岡野泰彬、平出哲也
2. 発表標題 UVSOR-IIIにおけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発
3. 学会等名 第59回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平義隆
2. 発表標題 高エネルギーガンマ線を用いた陽電子消滅分光法
3. 学会等名 第14回陽電子科学研究交流会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平義隆、杉田健人、岡野泰彬、平出哲也、遠藤駿典、全炳俊、静間俊行
2. 発表標題 UVSOR-IIIにおけるガンマ線源開発と利用研究
3. 学会等名 第19回日本加速器学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Taira, M. Fujimoto, Y. Okano, M. Kitaura, T. Hirade
2. 発表標題 Positron annihilation spectroscopy using ultra-short pulsed laser Thomson scattered gamma-rays
3. 学会等名 3rd International Conference on Nuclear Photonics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Taira, R. Yamamoto, Y. Okano, T. Hirade, K. Sugita
2. 発表標題 Gamma ray-induced positron annihilation spectroscopy using ultra-short pulsed gamma-rays generated by inverse Thomson scattering
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平義隆、杉田健人、山本涼平、岡野泰彬、藤本将輝、平出哲也
2. 発表標題 ガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発
3. 学会等名 第18回日本加速器学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平義隆、杉田健人、山本涼平、岡野泰彬、平出哲也
2. 発表標題 UVSOR-III におけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発
3. 学会等名 第64回放射線化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平義隆
2. 発表標題 高エネルギー電子ビームを用いた新規ガンマ線源開発と利用研究
3. 学会等名 電気学会 調査専門委員会 「放射線技術を利用した微量分析およびイメージング技術」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平義隆、杉田健人、山本涼平、岡野泰彬、平出哲也
2. 発表標題 ガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所専門研究会 「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2021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
研究協力者	平出 哲也 (Hirade Tetsuya)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	杉田 健人 (Sugita Kento)		
研究協力者	山本 涼平 (Yamamoto Ryohei)		
研究協力者	岡野 泰彬 (Okano Yasuaki)		
研究協力者	足立 吉隆 (Adachi Yoshitaka)		
研究協力者	小川 登志男 (Ogawa Toshio)		
研究協力者	浪崎 将吾 (Namizaki Shogo)		
研究協力者	藪内 敦 (Yabuuchi Atsushi)		

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
---------	---------