討論会の話題から

第64回放射線化学討論会

UVSOR-III におけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発

分子科学研究所 平義降

1 はじめに

エネルギー MeV 領域のガンマ線は,放射性同位元 素が崩壊する時に放出される放射線以外に,電子加速 器を用いて発生可能である.1つ目の方法は,高エネ ルギー電子をターゲットに衝突させて制動放射により ガンマ線を発生する方法である.2つ目の方法は,高 エネルギー電子と光の散乱による方法である.これ は,逆コンプトン散乱や,レーザー光を使っているた めにレーザーコンプトン散乱と呼ばれる.発生するガ ンマ線のエネルギーが電子エネルギーよりも十分小 さければ逆トムソン散乱 (inverse Thomson scattering: ITS) が正しい呼び方である¹⁾.たとえば,1GeV の電 子と1eV の光の ITS では,15 MeV のガンマ線が発生 する.ITS を用いれば比較的容易に MeV 領域のガン マ線を発生することができ,ITS ガンマ線は,後述す るように制動放射には無い優れた特徴を有する.

ガンマ線が物質に照射されると、対生成と呼ばれる 現象によって電子と陽電子が物質内部で発生する.陽 電子は、物質中でエネルギーを失い熱化することで周 囲の電子と対消滅する.その時に凝縮相中ではほとん どの場合2つの消滅ガンマ線をほぼ180度方向に同時 に放出する.陽電子は、物質中に存在する欠陥に捕獲 される特徴があり、消滅ガンマ線のエネルギー分布や 放出時間分布は欠陥に関する情報を反映する.そのた め、消滅ガンマ線を測定することで物質中の欠陥分析 を行うことができ、これは陽電子消滅分光法 (positron annihilation spectroscopy: PAS) と呼ばれる.

本研究では, 放射光施設 UVSOR-III において, 90 度

Development of gamma ray induced positron annihilation spectroscopy at UVSOR-III

Yoshitaka TAIRA (Institute for Molecular Sciences),

〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町西郷中 38

放射線化学 第113号(2022)

衝突の ITS によりパルス幅ピコ秒の超短パルスガン マ線を発生し,それをガンマ線誘起陽電子消滅分光法 (gamma-ray induced PAS: GiPAS) に利用している.本 論文では,ガンマ線源の特徴と GiPAS の概要について 述べる.

2 放射光施設 UVSOR-III におけるガンマ線源

愛知県岡崎市にある分子科学研究所の極端紫外光 研究施設 UVSOR-III (Fig. 1) は,可視光から極端紫 外,軟X線(エネルギー帯では数 eV から数 100 eV) を用いた放射光利用に特化した施設である.これらの 光は,電子蓄積リングを周回する電子ビームと磁場と の相互作用によって発生する.具体的には,偏向電磁 石や磁石列が交互に配置されたアンジュレータを通 過した時に電子ビーム進行方向に放射光が発生する. UVSOR-III には偏向電磁石とアンジュレータのビーム ラインが合計 14 本設置されている.

その内の一つ BL1U では,新しい光源開発とその 利用研究が行われている.これまでに,自由電子レー ザーやコヒーレント放射光,原子のコヒーレント制 御²⁾,光渦^{3,4)} やベクトルビーム⁵⁾ などの開発が行わ れてきた.一方で BL1U では電子ビームにレーザーを 衝突させ,ITS によりさらに短波長の MeV ガンマ線 を発生している.アンジュレータの磁場周期は数 cm であるのに対してレーザーの波長は 1 μm 程度なので アンジュレータに対して 1/10⁴ 波長の短い光を発生で きる.

ITS ガンマ線の特徴を制動放射と比較しまとめると 下記のようになる.

 エネルギー特性:制動放射ガンマ線のエネル ギースペクトルは、電子のエネルギーを最大と した幅広いエネルギー分布をもつ。それに対し て、ITS ガンマ線は、散乱角度によってエネル ギーが決まるため、鉛コリメータを利用して取

TEL: 0564–55–7400, E-mail: yostaira@ims.ac.jp



Figure 1. UVSOR-III electron storage ring.

り込む角度範囲を制限することでエネルギー広がり1%程度の準単色ガンマ線を得られる.また,そのエネルギーは電子ビームエネルギー,レーザーの波長,両者の衝突角度によって決まるためエネルギー連続可変ガンマ線を発生できる.このエネルギー連続可変かつ準単色ガンマ線を発生できる点が,放射性同位元素から発生するガンマ線や制動放射ガンマ線と比較した時のITSの大きな利点である.

- ・ 偏光制御:ITS では偏光ガンマ線を容易に発生で きる点も重要な特徴である. 直線偏光レーザー を使えば直線偏光ガンマ線が発生し,円偏光 レーザーからは円偏光ガンマ線が発生する. 偏 光ガンマ線を用いた原子核物理実験や磁気コン プトン散乱実験が行われている. また,円偏光 ガンマ線からはスピン偏極陽電子が発生する. これを用いて,素粒子実験用のスピン偏極陽電 子源の開発が行われており,また,UVSOR-III ではスピン偏極陽電子消滅分光法の開発を進め ている.
- 発散角:ガンマ線の発散角は、制動放射とITS どちらも電子ビームエネルギーに反比例する。
 10 MeV 電子ビームの制動放射と1 GeV 電子 ビームの ITS では、どちらも MeV ガンマ線が 発生するが、ITS の方が使用している電子ビー ムのエネルギーが 100 倍高いため、角度広がり 1 mrad 以下のガンマ線を発生できる。
- ・ 強度:発生する ITS ガンマ線の強度は、電子
 ビームの電荷量、ビームサイズ、バンチ長、レー

ザーのパルスエネルギー,ビームサイズ,パル ス幅に依存する.電荷量の高い電子ビームを小 さく収束し,小さく集光した高強度レーザーと 衝突することで高強度ガンマ線が発生する.米 国 Duke 大学では 10⁸ photons/s のガンマ線が利 用可能であり⁶⁾,ルーマニアの ELI-NP では,さ らに高強度の 10¹¹ photons/s のガンマ線発生が 計画されている⁷⁾. UVSOR-III でのガンマ線強 度は,発生点で 6×10⁵ photons/s である.

 パルス特性:ガンマ線のパルス幅は、電子ビー ムとレーザーの相互作用時間によって変化し, ビームサイズやパルス幅が小さい状態で衝突 することでパルス幅の短いガンマ線を発生でき る。UVSOR-IIIのような電子蓄積リングを周回 する電子ビームは,進行方向の長さ(バンチ長) に対する横方向のビームサイズが1/100以下の 扁平な形状をしている. したがって, 電子ビー ムの正面方向からレーザーを入射する場合では ガンマ線のパルス幅は数 100 ps になるのに対し て、Fig.2に示すように90度方向からレーザー を入射するとガンマ線のパルス幅は sub-ps から ps になり, 超短パルスガンマ線を発生できる. 90 度入射では、正面衝突に比べてガンマ線のエ ネルギーは 1/2 になる. UVSOR-III では, 波長 800 nm の超短パルスレーザーを使用しているた め、最大エネルギー 6.6 MeV のガンマ線が発生 する8).



Figure 2. Schematic illustration of 90-degree inverse Thomson scattering.

3 ガンマ線誘起陽電子消滅分光法

UVSOR-IIIの BL1Uでは、この超短パルスガンマ線 を用いた GiPAS の開発⁹⁾ とユーザー利用を行ってい る.UVSOR-III BL1Uで開発している GiPAS の概要 は下記の通りである。陽電子計測の詳細については、 日本陽電子科学会¹⁰⁾の会報に優れた記事があるので それを参考にして頂きたい。ここでは簡単に概要を述 べる.

- ガンマ線誘起陽電子寿命測定法(gamma-ray induced positron annihilation lifetime spectroscopy: GiPALS): 消滅ガンマ線の放出時間 分布を測定することで陽電子の寿命を測定する 手法である¹¹⁾. 寿命は陽電子密度と電子密度の 重なりによって変化するため,電子密度の低い 欠陥に捕獲された陽電子の寿命が長くなる. 欠 陥の種類や大きさ,濃度を分析できる. この測 定法では, BaF₂ など高速時間応答のシンチレー 夕が用いられる.
- ガンマ線誘起同時計数ドップラー広がり測定法(gamma-ray induced coincidence Doppler broadening: GiCDB): 消滅ガンマ線のエネルギー広がりを測定する手法である。多くの陽電子は熱化してから電子と消滅するため、消滅相手である電子の運動量がエネルギー広がりに反映される。2台のGe半導体検出器による同時計数で高いS/N比を実現し、元素固有である内殻電子の運動量分布が測定できるため、陽電子消滅サイト周囲の元素分析を行える¹²).
- ガンマ線誘起寿命運動量相関測定法(gammaray induced age-momentum correlation: GiAMOC): 消滅ガンマ線の放出時間とエネル ギー広がりを同時に測定する手法であり, 消滅 時刻に依存した消滅ガンマ線のエネルギー広が

り分布を測定できる. 空孔形成エネルギーの測 定¹³⁾ や溶液中などで形成されるポジトロニウム の測定などに利用されている¹⁴⁾.

スピン偏極陽電子消滅分光法:円偏光ガンマ線からスピン偏極陽電子が発生できる.この方法では、円偏光のヘリシティを反転することで陽電子スピンの向きを反転し、陽電子寿命やエネルギー広がりの非対称性を測定する手法である.その非対称性から電子のスピンに関する情報を得ることができ、磁性材料の分析に利用できる¹⁵⁾.

従来の陽電子を直接試料に照射する PAS と比較し た GiPAS の利点を述べる.²²Na から発生する陽電子 の最大エネルギーは 0.54 MeV であり,表面から 1 mm 以下の領域にしか侵入することができない.それに対 して GiPAS は,ガンマ線を使っているので表面から数 cm 深さまでほぼ均一に陽電子を発生することができ るため,バルク材料の測定が可能である.また,従来 法では,放射性同位元素を密封するのにカプトン膜な どが使われているため,試料以外の膜内での消滅成分 が寿命スペクトルやエネルギー広がりに含まれる.こ れは線源成分と呼ばれ陽電子計測の解析を困難にして いる点である.それに対して,GiPAS では試料の周囲 に物質が無ければ試料のみの寿命スペクトルやエネル ギー広がりを測定することができる.

GiPAS に使用するガンマ線のエネルギーと試料の 形状について簡単に注意点を述べる。対生成の断面積 は、エネルギーが上がるほど大きくなり、100 MeV を 超えると飽和する。それでは、ガンマ線のエネルギー は高い方がよいのかと考えると、一概にそうはいえな い.ガンマ線のエネルギーが高い場合,発生する陽電 子のエネルギーも高いので, 試料内でエネルギーを失 わずに試料外に飛び出す陽電子が増える.たとえば, 大きさ 10 mm の鉄試料を測定する場合は、10 MeV 付 近のガンマ線を使うことが目安になる。一方で試料の 形状については、先ほどと同様の考えで、試料の大き さが小さいと陽電子の発生確率が減る. 大きい試料を 使うと発生確率は上がるが、消滅ガンマ線が試料自体 に吸収されてしまい検出器に届かない. 大きさとして は、鉄の場合であれば10mm程度の大きさにすると消 滅ガンマ線の発生効率が高くなる.

また、パルス幅ピコ秒領域の超短パルスガンマ線を GiPAS に使用する利点として、一般的な陽電子消滅寿 命測定法の時間分解能は半値全幅(FWHM)で200 ps 程度であり、119 ps の装置も開発されている¹¹⁾. それ



Figure 3. Coincidence measurement of two annihilation gamma-rays.

よりも十分に短いパルス幅のガンマ線を用いることで 時間分解能を悪化することなく陽電子の寿命測定を行 うことができる.

BL1Uで開発している GiPALS の現状について簡単 に述べる. GiPALS では,スタート信号とストップ信 号の時間差分布を陽電子の寿命スペクトルとする.こ こでは,レーザーと電子ビームの衝突点近傍にフォト ダイオードを設置しレーザーの入射時間を検出するこ とで,それをスタート信号としている.ストップ信号 には BaF2 検出器の信号を使用している.Figure 3 に 示すように,試料を挟んで2本の検出器を対向位置に 設置し,対向放出される消滅ガンマ線のコインシデン ス測定を行う.試料からはコンプトン散乱ガンマ線も 発生するので,コインシデンス測定によりシグナルノ イズ比を上げることができる.実際には,対向配置さ れた2 組計4本の検出器を使用することで計数率を上 げている.

時間差の測定は、デジタルオシロスコープを用いた 波形解析により行っている.オシロスコープの CH1 にフォトダイオード, CH2 と3 に対向する BaF2 検出 器それぞれを入力し、それら全ての波形が出力された 時にトリガーをかける.トリガーがかかった時にパソ コンにそれらの波形を転送し、自作プログラムの波形 解析によって時間差分布を計算する.

Figure 4 に GiPALS で測定した陽電子寿命スペクト ルの一例を示す.対向配置された検出器のうち,超 短パルスガンマ線入射方向に対して上流側 2 個の検 出器から得られる寿命スペクトルの和をとったもの である.計数率は 8.3 cps であり,測定時間は 7.5 時 間である.試料は,産業技術総合研究所の計量標準総 合センターが陽電子寿命測定用の標準物質として供 給しているステンレス鋼である¹⁶⁾.寿命は 1 成分で 106.2 ± 2.4 ps である.陽電子寿命スペクトルは,寿 命解析ソフトである LT9¹⁷⁾を用いて陽電子寿命の解



Figure 4. Measured positron lifetime spectrum of stainless steel distributed by National Metrology Institute of Japan.

析を行った.陽電子寿命は1成分とし,時間分解能 は2つのガウス関数として fitting を行った.それらの FWHM は155.6 ps と178.0 ps であった.紫色の点が 測定データであり,青色の実線が fitting の結果である. また, Figure 4 の下に測定データと fitting スペクトル の差分を示している.Fitting 結果が測定データをよく 近似できていることがわかる.UVSOR-III で利用可能 な GiPALS を使えば,先に述べた線源成分が含まれな い寿命スペクトルを測定することができる.

ここでは、寿命が1成分の試料の結果を載せたが、 寿命が2成分ある試料の測定も行っている。寿命値 から内部に転位や空孔が存在していると考えられ、今 後論文発表する予定である。GiPALSの他に GiAMOC についても現在開発を進めており、試料測定が可能な 段階になっている。また、GiCDB とスピン偏極陽電子 についても準備を進めている。

4 まとめ

UVSOR-III で開発している超短パルスガンマ線と GiPAS の概要について述べた. GiPALS に関しては ユーザー利用が可能な状態であり,他の計測技術に関 しても順次ユーザー利用可能な状態に仕上げる予定で ある.

UVSOR は共同利用施設として国内外の利用者を受け入れている. ガンマ線源や GiPAS に興味のある方は yostaira@ims.ac.jp までメールして頂けると幸いである.利用のあたっては申請が必要であり,年2回6月と12月に募集している.ビームタイムに空きがあれば随時申請も可能である.UVSOR の年間運転時間は2160時間であり,1週間あたり60時間,年間36週運転している.大学や研究所に所属する方は無料で利用でき,旅費も支給される.企業所属の方は有料で利用することが可能である.

〈謝 辞〉

第64回放射線化学討論会において「UVSOR-IIIに おけるガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発」の題目 で口頭発表し,優秀賞(一般)を受賞することができ ました。これまでの多くの方々のご指導とご協力の賜 物です。超短パルスガンマ線の開発は、博士課程在籍 時に分子研加藤 政博教授と名大曽田 一雄教授のご指 導のもと進めてきました。GiPAS 開発にあたっては、 産総研豊川 弘之グループリーダーをはじめとする放射 線イメージン計測研究グループと X線・陽電子計測研 究グループの協力を得ました. 山形大学北浦 守教授に は、再び UVSOR において GiPAS の開発を行うきっか けを与えて頂き感謝致します. GiPAS 計測システムの 開発に関しては, 原子力機構平出 哲也研究主幹の多大 なるご協力を得ています。加速器の運転や BL1U の整 備に関して UVSOR スタッフの皆様にも心より感謝致 します、本研究は、科学研究費補助金 21H03740 の助 成を受けています.

〈参考文献〉

- G. A. Krafft, G. Priebe, Rev. Accel. Sci. Technol., 3 (2010) 147.
- Y. Hikosaka, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, H. Iwayama, M. Katoh, Nat. Commun., 10 (2019) 4988.
- M. Katoh, M. Fujimoto, N. S. Mirian, T. Konomi, Y. Taira, T. Kaneyasu, M. Hosaka, N. Yamamoto, A. Mochihashi, Y. Takashima, K. Kuroda, A. Miyamoto, K. Miyamoto, S. Sasaki, Sci Rep, 7 (2017) 6130.
- Y. Taira, M. Fujimoto, S. Ri, M. Hosaka, M. Katoh, New J. Phys., 22 (2020) 093061.
- S. Matsuba, K. Kawase, A. Miyamoto, S. Sasaki, M. Fujimoto, T. Konomi, N. Yamamoto, M. Hosaka, M. Katoh, Appl. Phys. Lett., 113 (2018) 021106.
- H. R. Weller, M. W. Ahmed, H. Gao, W. Tornow, Y. K. Wu, M. Gai, R. Miskimen, Prog. Part. Nucl. Phys., 62 (2009) 257.
- 7) https://www.eli-np.ro/rd2_second.php
- Y. Taira, M. Adachi, H. Zen, N. Yamamoto, M. Hosaka, K. Soda, M. Katoh, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 695 (2012) 233.
- Y. Taira, H. Toyokawa, R. Kuroda, N. Yamamoto, M. Adachi, S. Tanaka, M. Katoh, Rev. Sci. Instrum., 84 (2013) 053305.
- 10) https://positron-science.org/index.html
- 11) 斎藤晴雄, 陽電子科学, 2 (2014) 21.
- 12) 井上耕治, 永井康介, 陽電子科学, 6 (2016) 21.
- 13) N. Suzuki, Y. Nagai, Y. Itoh, A. Goto, Y. Yano, T. Hyodo, Phys. Rev. B, 63 (2001) 180101(R).
- 14) 平出哲也, 陽電子科学, 4 (2015) 3.
- 15) 河裾厚男, 陽電子科学, 4 (2015) 9.
- https://unit.aist.go.jp/qualmanmet/refmate/crm/cert/ 5607a_J.pdf
- J. Kansy, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 374 (1996) 235.