

## ガンマ線誘起陽電子消滅分光法の開発

### DEVELOPMENT OF GAMMA-RAY INDUCED POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY

平義隆<sup>#, A)</sup>, 杉田健人<sup>A)</sup>, 山本涼平<sup>B)</sup>, 岡野泰彬<sup>A)</sup>, 藤本将輝<sup>A)</sup>, 平出哲也<sup>C)</sup>

Yoshitaka Taira<sup>#, A)</sup>, Kento Sugita<sup>A)</sup>, Ryohei Yamamoto<sup>B)</sup>, Yasuaki Okano<sup>A)</sup>, Masaki Fujimoto<sup>A)</sup>, Tetsuya Hirade<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> Institute for Molecular Science

<sup>B)</sup> Nagoya University

<sup>C)</sup> Japan Atomic Energy Agency

#### Abstract

We develop gamma ray-induced positron annihilation spectroscopy at BL1U in UVSOR-III. It allows for the measurement of materials with a thickness of several centimeters, which is difficult to measure with conventional methods using a positron source. Gamma ray-induced positron annihilation lifetime spectroscopy is currently provided for user use. Coincidence Doppler broadening, age momentum correlation, and spin polarized positron spectroscopy are currently being developed. In this conference, we report on the current status of gamma ray-induced positron annihilation lifetime spectroscopy.

#### 1. はじめに

電子の反粒子である陽電子は、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。陽電子は材料中にある欠陥に捕獲される性質があるため、消滅ガンマ線の放出時間や角度、エネルギーの分布を測定することで捕獲された欠陥に関する情報が得られる。この性質を利用した陽電子消滅分光法は、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。

陽電子消滅寿命測定法(Positron annihilation lifetime spectroscopy: PALS)では、陽電子が放出されてから消滅するまでの時間分布である陽電子寿命スペクトルを測定する。陽電子の寿命は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、陽電子寿命から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[1]。この測定手法では、一般的に高速時間応答のシンチレータを用いて消滅ガンマ線が測定される。

2 光子角相関法では、消滅ガンマ線の放出角度分布が測定され、同時計数ドップラー 拡がり測定法(Coincidence Doppler broadening: CDB)では、消滅ガンマ線のエネルギー 拡がり測定される。電子-陽電子対の運動量によって、消滅ガンマ線の角度とエネルギーが変化する。放出角度は、消滅ガンマ線放出方向に対して横方向の運動量を反映し、エネルギーは、放出方向の運動量を反映する。陽電子は熱化してから消滅するために、消滅相手である電子の運動量分布がそれらに反映される。運動量分布を測定することで欠陥周囲の電子状態を調べることができ、内殻電子の運動量分布が元素固有であるため元素分析が可能である[2]。CDB では、高いエネルギー分解能をもつ半導体検出器を用いて消滅ガンマ線が測定される。

寿命運動量相関測定法(Age momentum correlation: AMOC) は、陽電子の寿命とエネルギー 拡がりを同時に測定する手法である。陽電子寿命の識別が困難なナノ粒子が埋め込まれた材料の分析[3]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。

スピン偏極した陽電子を用いた陽電子消滅分光法も開発されている。電子スピンの向きや陽電子スピンの向きを反転したときに生じる消滅ガンマ線のエネルギー 拡がりや陽電子寿命の非対称性から電子のスピンのに関する情報を得ることが可能である。磁性材料の分析技術に利用されている[4]。

従来の陽電子消滅分光法では、放射性同位元素から発生する陽電子を試料に照射することが行われている。それに対して、エネルギー1.022 MeV 以上のガンマ線を照射し、材料内部で対生成によって陽電子を生成する方法は、ガンマ線誘起陽電子消滅分光法(Gamma-ray induced positron annihilation spectroscopy: GiPAS)と呼ばれる[5-6]。GiPAS は、従来の陽電子を直接試料に照射する方法に比べて、厚さ数 cm のバルク材料を測定できる利点がある。また、従来法では、放射性同位元素の密封材で陽電子が消滅することで寿命スペクトルに試料以外の寿命成分が混入する。これは線源成分と呼ばれ寿命スペクトルの解析を困難にする。GiPAS では、ガンマ線を直接試料に照射するために線源成分が含まれないため、これまで線源成分に埋もれて解析が困難だった寿命成分の解析を行う事ができる。

分子科学研究所の極端紫外光研究施設 UVSOR-III の BL1U では、逆トムソン散乱で発生するパルス幅ピコ秒の超短パルスガンマ線を用いた Gamma ray induced PALS (GiPALS)の開発を行っている[7-8]。また、新しい測定手法として、Gamma-ray induced AMOC (GiAMOC) や Gamma-ray induced CDB (GiCDB)、円偏光ガンマ線を用いたスピン偏極陽電子消滅分光法の開発も行っている。GiAMOC については、THP051 において報告がある。本プロシーディングスでは、GiPALS の現状について簡単に述べる。

<sup>#</sup> yostaira@ims.ac.jp

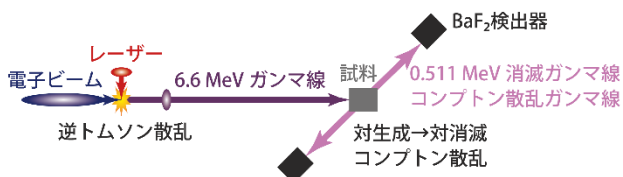


Figure 1: Schematic illustration of gamma-ray induced positron spectroscopy using inverse Thomson scattered ultra-short pulsed gamma-rays.

## 2. 超短パルスガンマ線

超短パルスガンマ線の発生とこれを GiPALS に適用した概要を Fig. 1 に示す。ガンマ線は、レーザーと高エネルギー電子ビームの逆トムソン散乱によって発生する。波長 800 nm のレーザーとエネルギー 750 MeV の電子を用いると、最大エネルギー 6.6 MeV のガンマ線が発生する。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わる。UVSOR-III の場合は電子ビームのバンチ長が数 100ps であるため、正面からレーザーを衝突させるとガンマ線のパルス幅は電子ビームのそれと同じになる。一方で、電子蓄積リングを周回する電子ビームが、進行方向に対する横方向の大きさが 1/100 以下の扁平な形状をしていることを利用し、サブピコ秒レーザーを 90 度方向から入射することでパルス幅サブピコ秒からピコ秒の超短パルスガンマ線が発生することが可能である。

超短パルスガンマ線のエネルギーは 1.022 MeV を超えているため、材料内部で対生成によって陽電子が発生する。その陽電子が同じ試料内部で熱化して電子と対消滅する事で 2 本の消滅ガンマ線が 180 度方向に発生する。消滅ガンマ線の他に試料からコンプトン散乱ガンマ線も発生するため、試料を挟む対向位置に検出器を置いて消滅ガンマ線の同時測定をすることでシグナルノイズ比を上げることができる。

## 3. GiPALS

GiPALS の検出器には、高速時間応答の BaF<sub>2</sub> シンチレータと光電子増倍管を組み合わせたものを使用している。1.はじめに述べた通り、寿命測定では基準信号に対する消滅ガンマ線の放出時間分布を測定する。UVSOR-III で開発している GiPALS では、電子ビームとレーザーの衝突点近傍にフォトダイオードを設置し、レーザーの信号を基準信号とし、光電子増倍管の出力信号の時間差分布を陽電子寿命スペクトルとしている。

Figure 2 に GiPALS で測定した陽電子寿命スペクトルを示す。試料は産業技術総合研究所の計量標準総合センターが供給している陽電子寿命測定用の標準物質のステンレス鋼である[9]。陽電子寿命スペクトルは、寿命解析ソフトである LT9 を用いて陽電子寿命の解析を行った。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。紫色の点が測定データであり、緑色の実線が fitting スペクトルの結果である。また、Figure2 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 スペクトルが測定データを良く近似できていることが分かる。寿命スペクトルの左側の立ち上がり

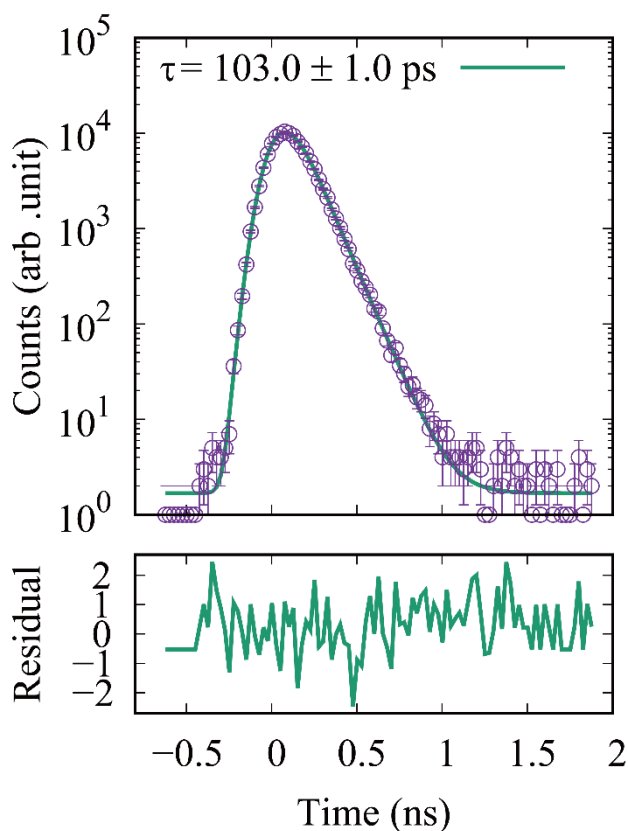


Figure 2: Positron lifetime spectrum of NMIJ SUS measured by GiPALS. Count rate was 22 counts per seconds.

は時間分解能を表しており、右側の立下りの傾きが寿命を表す。Fitting の結果、陽電子寿命は  $103 \pm 1$  ps と計算され、時間分解能関数の半値全幅は、それぞれ 161.3 ps と 206.5 ps であり強度は 44% と 56% であった。測定された寿命は、参考値  $106.2 \pm 2.4$  ps [9] と不確かさの範囲で一致している。

## 4. まとめ

UVSOR-III BL1U で開発している GiPALS の現状について述べた。GiPALS は、現在ユーザーに提供されており、触媒材料や金属材料の欠陥分析が行われている。今後は、高繰り返しレーザーの導入による計数率の向上や、GiAMOC、GiCDB やスピン偏極陽電子源の開発などを行う。GiPAS に興味のある方はまずは著者に連絡して頂きたい。

## 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 21H03740 の助成を受けています。

## 参考文献

- [1] J. Čížek, “Characterization of lattice defects in metallic materials by positron annihilation spectroscopy: A review”, *Journal of Materials Science & Technology* 34, 2018, pp. 577-598.
- [2] K. Inoue *et al.*, “陽電子消滅同時計数ドブラー広がり

- よる元素分析法”, 陽電子科学, 第 6 号, 2016, pp. 21-28.
- [3] K. Inoue *et al.*, “Time evolution of positron affinity trapping at embedded nanoparticles by age-momentum correlation”, *Physical Review B*, 83, 2011, pp.115459-1-5.
- [4] M. Mackawa *et al.*, “スピン偏極陽電子ビームによる空孔誘起磁性の研究”, 陽電子科学, 第 10 号, 2018, pp. 29-37.
- [5] M. Butterling *et al.*, “Gamma-induced positron spectroscopy (GiPS) at a superconducting electron linear accelerator”, *Nucl. Instr. Meth. B*, 269, 2011, pp. 2623-2629.
- [6] F. Selim, “Gamma induced positron annihilation: History, current, and future developments”, *Acta Physica Polonica*, 132, 2017, pp. 1450.
- [7] Y. Taira *et al.*, “Photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy using ultrashort laser-Compton-scattered gamma ray pulses”, *Rev. Sci. Instr.*, 84, 2013, pp. 053305.
- [8] K. Fujimori *et al.*, “Visualizing cation vacancies in Ce:Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub> scintillators by gamma-ray-induced positron annihilation lifetime spectroscopy”, *Appl. Phys. Exp.*, 13, 2020, pp. 085505.
- [9] [https://unit.aist.go.jp/qualmanmet/refmate/crm/cert/5607a\\_J.pdf](https://unit.aist.go.jp/qualmanmet/refmate/crm/cert/5607a_J.pdf)