

# DEVELOPMENT OF PHOTON-INDUCED POSITRON ANNIHILATION LIFETIME SPECTROSCOPY METHOD USING ULTRA-SHORT GAMMA RAY PULSES

Yoshitaka Taira <sup>#,A)</sup>, Masahiro Adachi<sup>B)</sup>, Sei-ichi Tanaka<sup>B)</sup>, Naoto Yamamoto<sup>C)</sup>, Masahiro Katoh<sup>B)</sup>, Hiroyuki Toyokawa<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology  
1-1-1 Umezono, Tsukuba, Ibaraki, 305-8568

<sup>B)</sup> UVSOR, Institute for Molecular Science, National Institutes of Natural Sciences  
Myodaiji-cho, Okazaki, Aichi, 444-8585

<sup>C)</sup> Nagoya University Synchrotron radiation Research center  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi, 464-8603

## Abstract

New techniques for photon-induced positron annihilation lifetime spectroscopy (PiPALS) are developed by using ultra-short laser Compton scattered gamma rays. The gamma rays are used to create positrons throughout the entire sample volume via pair production. Due to the ultra-short pulses with pulse width of 5 ps (FWHM), ultra-short laser Compton scattered gamma rays are suitable for PiPALS. In the proof-of-principle experiment, ultra-short gamma rays are incident upon a lead target with 5 cm in thickness. Annihilation gamma rays of energy 0.511 MeV are measured by the positron annihilation lifetime spectrometer based on BaF<sub>2</sub> scintillator, PMT and digital oscilloscope. A preliminary result of data analysis is shown in this paper.

## 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

### 1. はじめに

陽電子消滅寿命測定法(PALS)は、ナノメートルスケールの欠陥の分析に敏感な計測ツールである。陽電子が消滅するまでの時間(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空孔型格子欠陥にトラップされると、陽電子の寿命は長くなる。したがって、陽電子の寿命を測定することで、空孔型格子欠陥の大きさを非破壊で測定することが可能となる。

従来の PALS では、物質中における陽電子の飛程が短いために、厚さ数 10  $\mu\text{m}$  以下の薄いサンプルに限られていた。しかし、原子炉構造材料や超臨界水の配管など厚さ数 mm から数 cm に亘る分厚いサンプル全体の欠陥の種類や大きさを測定することは、安全上の観点からも重要である。高エネルギー光子(ガンマ線)が、物質に対して高い透過性をもつことと、物質中で対生成によって陽電子を発生することを利用して、厚さ数 cm に亘るサンプルの欠陥分析を行うことができる。ガンマ線には、エネルギーが 1.0 MeV 以上であることと、そのパルス幅が陽電子の寿命 100 ~ 400 ps よりも十分に短いことが要求される。この光子誘起陽電子消滅寿命測定法(PiPALS)は、超短パルス制動放射ガンマ線や陽子捕獲反応ガンマ線を用いていくつかの施設において実施されている<sup>[1-4]</sup>。

本研究では、超短パルスのレーザーコンプトン散乱(LCS<sup>[5]</sup>)ガンマ線を用いて PiPALS 法を開発して

いる。LCS ガンマ線は、電子蓄積リングを周回する電子ビームにレーザーを衝突させ、レーザー光子の逆コンプトン散乱によって発生される。そのガンマ線の発散角は mrad オーダーと非常に小さく、制動放射ガンマ線よりもバックグラウンドが低いという特徴がある。LCS ガンマ線の超短パルス化は、電子ビームの形状が垂直方向に扁平であることを利用し、電子ビームに対して 90 度方向から超短パルスレーザーを入射することで可能となる<sup>[6-7]</sup>。また、LCS によって電子ビームが失うエネルギーを、RF バケットハイトよりも低くすることで、放射光利用と共存して超短パルス LCS ガンマ線の発生を行うことが可能である。したがって、放射光利用施設において、陽電子消滅を用いた材料欠陥分析が可能となる。本論文では、放射光源用電子蓄積リング UVSOR-II において行った原理実証実験について述べる。

### 2. 原理実証実験

図 1 に実験の概要を示す。電子ビームのエネルギーは 750 MeV、電流値は 50 mA(シングルバンチ)で運転された。電子ビームの水平方向ビームサイズは 0.6 mm (rms)、鉛直方向ビームサイズは 0.03 mm (rms)であり、バンチ長は 400 ps (FWHM)であった。

レーザーは、電子蓄積リングの RF 加速に同期した Ti:Sa レーザーシステム(Coherent, Legend-HE)を使用した。波長は 800 nm、繰り返し周波数 1 kHz、パルス幅は 1.0 ps (FWHM)、パワー 2.5 W であった。レーザー本体から衝突点までは、約 20 m 離れてい

<sup>#</sup> yoshitaka-taira@aist.go.jp

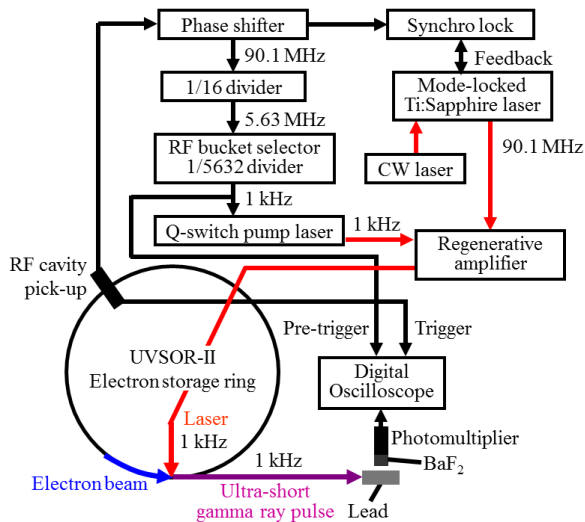


図 1: 光子誘起陽電子消滅寿命測定実験の概要。

るため、高反射率ミラーを用いて、空気中でレーザー光を輸送した。電子ビームに対して水平 90 度方向(軌道面内の方向)からレーザーをフッ化マグネシウム窓を通して直線部の真空ダクトに入射した。衝突点直前に、焦点距離 125 mm の凸レンズを設置し、衝突点でのレーザーサイズを 10  $\mu\text{m}$  以下に絞った。

超短パルスガンマ線は、電子ビームの軸上に散乱され、ビームラインの物質を透過して大気中に取り出される。発生点でのガンマ線の最大エネルギー、強度、パルス幅は、6.6 MeV、 $10^6$  photons  $\text{s}^{-1}$ 、5 ps (FWHM)である。

厚さ 5 cm の鉛ターゲットに超短パルスガンマ線を照射し、鉛内部で発生した陽電子が消滅するときに放出される対消滅ガンマ線を高速時間応答のフッ化バリウムシンチレータで測定した。シンチレータに付属の光電子増倍管の出力波形を、帯域 1 GHz、サンプリングレート 10 GS/s のデジタルオシロスコープ(LeCroy, WaveRunner 104 MXi)で測定した。1 kHz に分周した RF ピックアップの信号をプレトリガーとし、RF ピックアップの信号をトリガーとして、トリガーと同期して光電子増倍管から出力された波形をすべて保存し、オフラインでデータ解析を行った。

図 2 にオシロスコープで保存された光電子増倍管の出力波形例を示す。立下り時間 2 ns の高速応答性を示している。検出器のエネルギー校正のために、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  のガンマ線源を使用した。それぞれの線源に対するフッ化バリウムシンチレータの波高値分布を図 3 に示す。この測定によって、対消滅ガンマ線(エネルギー 0.511 MeV)が、0.25 V に相当することが分かった。

### 3. 結果

図 4 に、保存された 1,677 の波形のエネルギーと時間の相関を示す。図 3 に示したエネルギースペクトルの測定結果を用いて、波高値をエネルギーに変

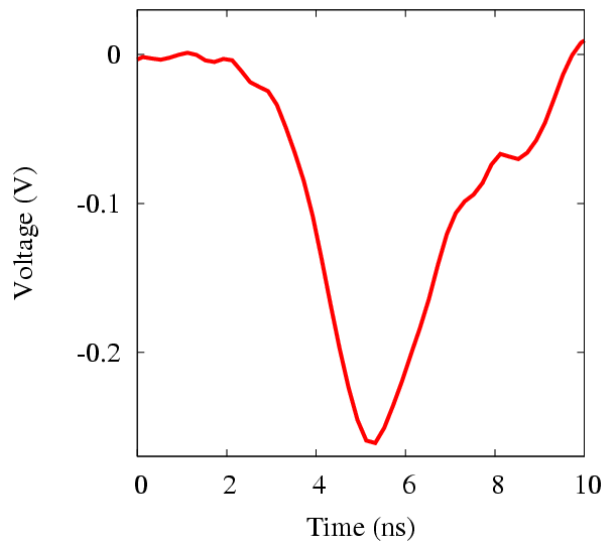


図 2: 光電子増倍管の出力波形例。

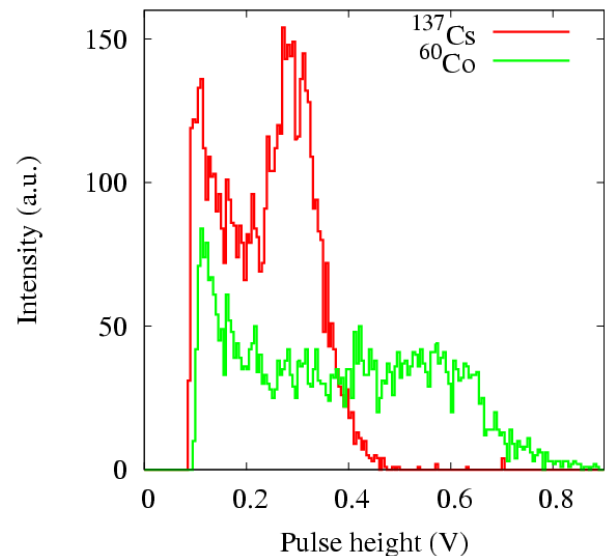


図 3:  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  に対する波高値分布。

換している。エネルギー 0.511 MeV の消滅ガンマ線を検出できていることが分かる。寿命スペクトルについては、解析を進めている最中である。

シミュレーションコード EGS5 を用いて、鉛から発生する消滅ガンマ線やコンプトン散乱ガンマ線のエネルギーと強度及び、それらに対するフッ化バリウムシンチレータの応答を計算した。EGS5 では、エネルギー keV ~ PeV の広範囲に及ぶ電子と光子の輸送計算が行える。LCS ガンマ線の発生には、エネルギーと微分散乱断面積の理論式を用いた。実験時の物質配置を模擬することで、LCS ガンマ線の照射によって鉛ターゲットから発生する消滅ガンマ線の強度分布及びコンプトン散乱ガンマ線のエネルギー分布、強度分布を計算することが可能である。また、対消滅ガンマ線とコンプトン散乱ガンマ線が、フッ化バリウムシンチレータに入射して損失するエネルギーを計算することで、シンチレータの応答を計算

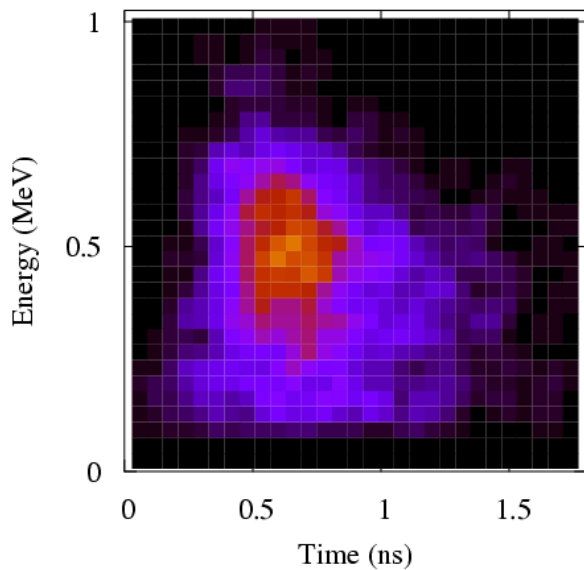


図 4: 測定された光子のエネルギーと時間の相関。

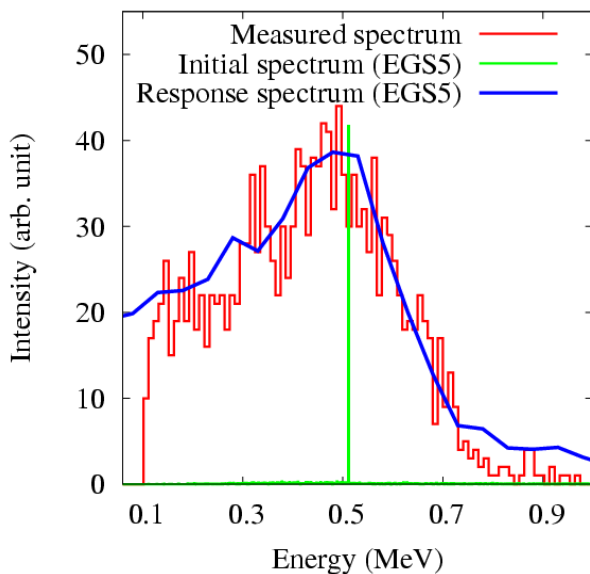


図 5: 測定されたエネルギースペクトル(赤線)、EGS5 で計算したフッ化バリウムシンチレータに入射する光子のエネルギースペクトル(緑線)、EGS5 で計算した入射光子に対するシンチレータの応答スペクトル(青線)。

できる。

フッ化バリウムシンチレータで測定されたエネルギースペクトルと EGS5 を用いて計算したシンチレータに入射するガンマ線のエネルギースペクトル及びそれらに対するシンチレータの応答の計算結果を図 5 に示す。シンチレータに入射するガンマ線の計算から、消滅ガンマ線とコンプトン散乱ガンマ線の比は、1:1.6 であることが分かった。応答スペクトルの計算では、フッ化バリウムシンチレータのエネルギー分解能を図 3 の測定から算出した 35 %

(FWHM)とした。フッ化バリウムシンチレータで測定されたエネルギースペクトルと EGS5 で計算したスペクトルの形状が良く一致していることが分かる。しかし、エネルギースペクトルの強度の絶対値は一致しておらず、計算結果の方が測定結果よりも 18 倍強度が強い。この原因は現在検証中である。

PiPALS では、超短パルスガンマ線 1 パルス当たり、1 本の消滅ガンマ線がシンチレータに入射する測定条件が理想的である。EGS5 のようなシミュレーションコードを用いることで、任意のターゲット、任意の物質配置での消滅ガンマ線の放出頻度を計算することができ、実験の計画を立てる上で非常に有益な情報が得られる。

#### 4. まとめ

超短パルスレーザーコンプトン散乱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を行った。パルス幅 5 ps のガンマ線を厚さ 5 cm の鉛板に照射し、内部で発生した陽電子が消滅時に放出する消滅ガンマ線をフッ化バリウムシンチレータで計測した。エネルギー 0.511 MeV の消滅ガンマ線を計測することに成功し、そのエネルギースペクトルの形状が、EGS5 を用いて計算した結果と良く一致することが分かった。今後は、寿命の解析を進める他、内部に欠陥を形成したサンプルの測定を行い、寿命の変化が測定できるのか検証する。

#### 謝辞

本研究を行うにあたり、ご協力頂いた分子科学研究所の山崎潤一郎氏、林憲志氏に深く感謝します。

#### 参考文献

- [1] F. A. Selim et al., Rad. Phys. and Chem. 68 (2003) 427.
- [2] D. P. Wells et al., Nucl. Instr. and Meth. A 562 (2006) 688.
- [3] M. Butterling et al., Nucl. Instr. and Meth. B 269 (2011) 2623.
- [4] P. K. Pujari et al., Nucl. Instr. and Meth. B 270 (2012) 128.
- [5] J. Stepanek, Nucl. Instr. and Meth. A 412 (1998) 174.
- [6] Y. Taira et al., Nucl. Instr. and Meth. A 637 (2011) S116.
- [7] Y. Taira et al., Nucl. Instr. and Meth. A 652 (2011) 696.