

UVSOR-IIIにおけるガンマ線誘起 陽電子寿命-運動量相関測定法の開発

山本 涼平^{#, A)}, 平 義隆^{B)}, 杉田 健人^{B)}, 平出 哲也^{C)}, 高嶋 圭史^{D)}, 加藤 政博^{B, E)}

A) 名古屋大学院 工学研究科

B) 自然科学研究機構 分子科学研究所 極端紫外光研究施設

C) 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 原子力科学研究所

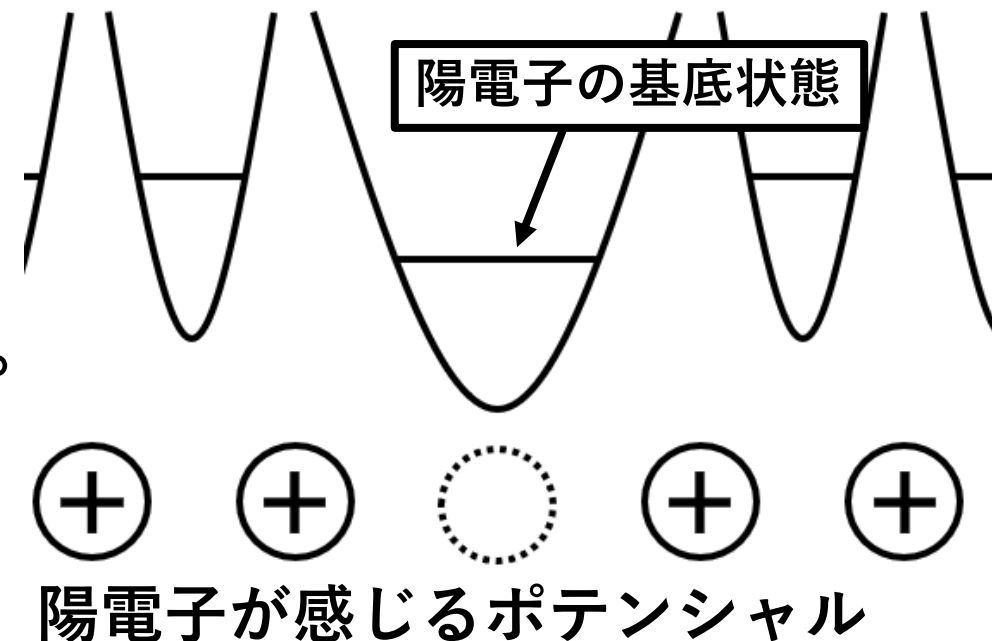
D) 名古屋大学 シンクロトロン光研究センター

E) 広島大学 放射光科学研究センター

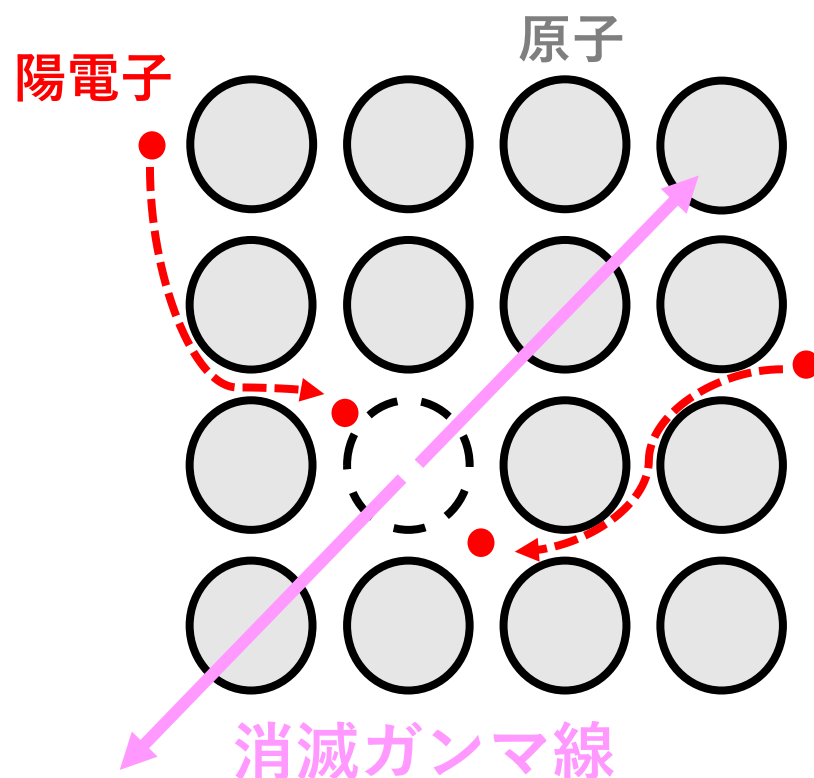
陽電子消滅分光法 (PAS)

陽電子とは

- 電子の反粒子であり、正の電荷を持つ。
- 原子核からのクーロン反発により、原子核分布の希薄な場所に捕獲されやすい。
- 空孔型格子欠陥など、nm スケールの欠陥検出に利用される。



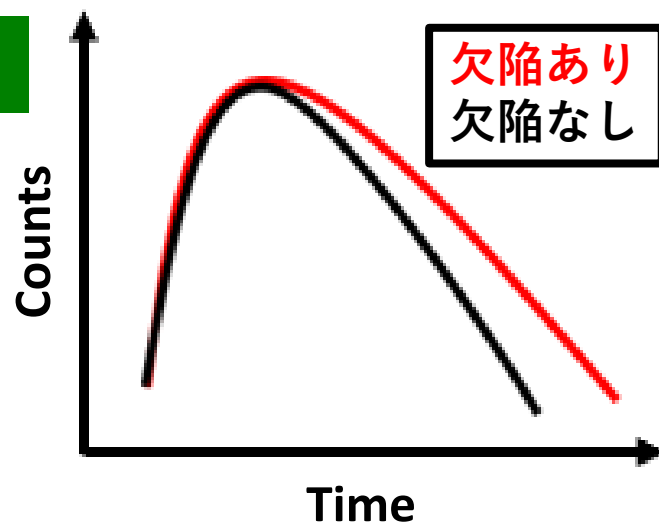
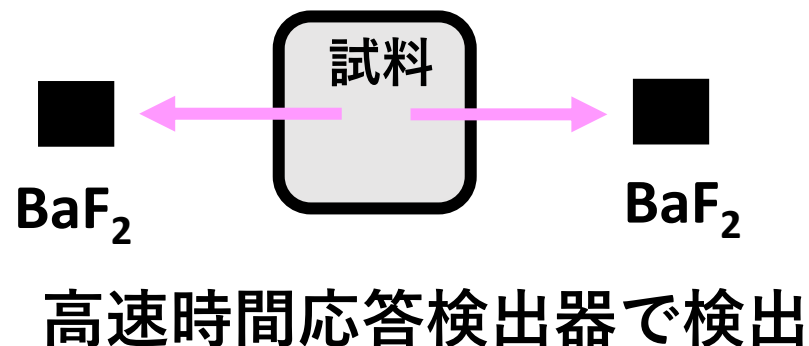
陽電子消滅分光法 (PAS)



- 陽電子は試料中の電子と消滅することで、2本の消滅ガンマ線を放出する。
- 消滅ガンマ線のエネルギーは $511 \pm \Delta E \text{ keV}$ である。

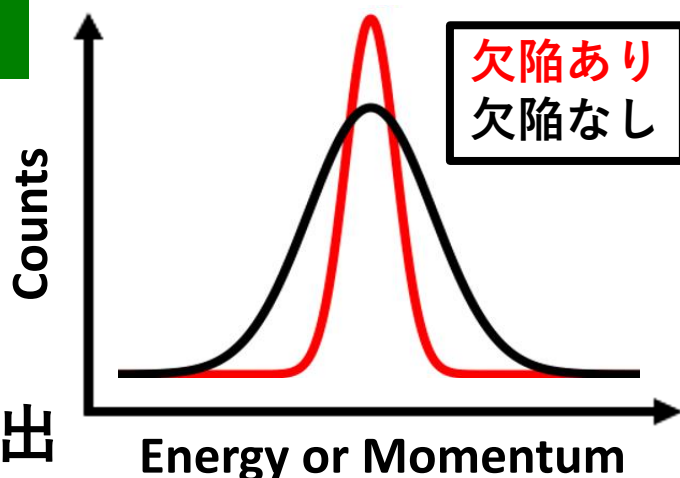
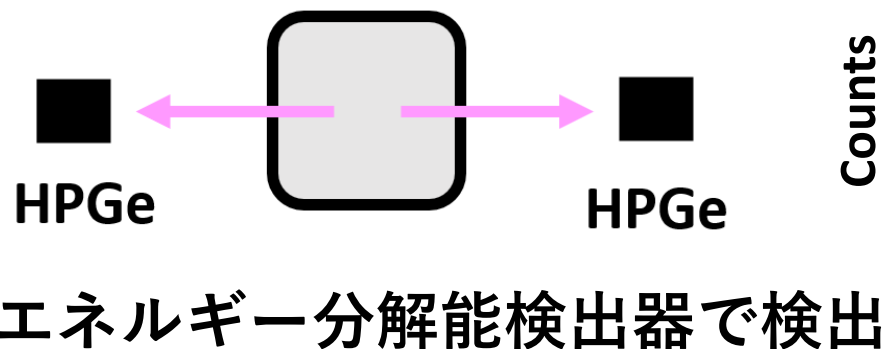
陽電子消滅分光法 (PAS)

陽電子寿命測定 (PALS)



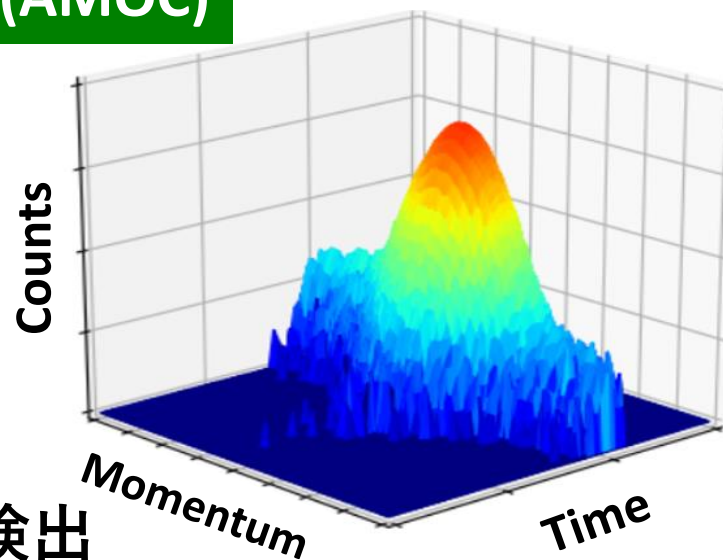
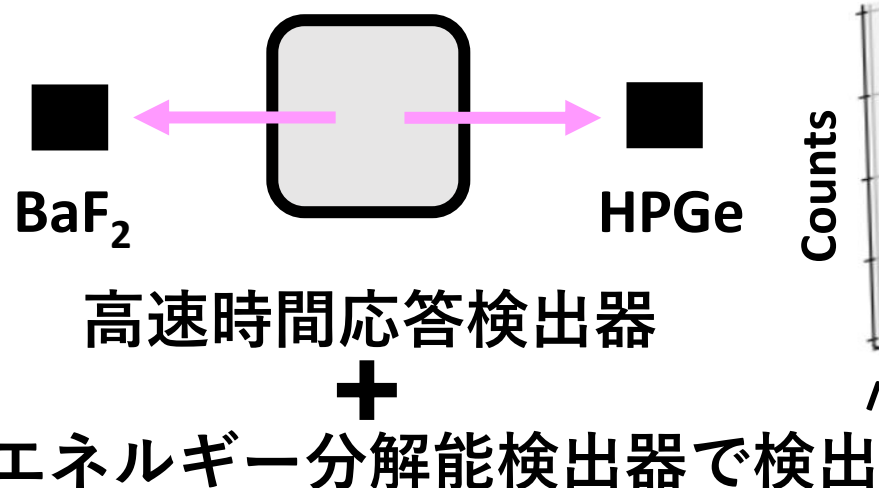
- ・ 消滅ガンマ線の発生時間分布を測定する。
- ・ 電子密度を反映する。
- ・ 欠陥の種類、濃度を分析できる。

ドップラー拡がり測定 (DBS)



- ・ 消滅ガンマ線のエネルギー分布を測定する。
- ・ 消滅相手である電子の運動量分布を反映する。
- ・ 元素分析ができる。

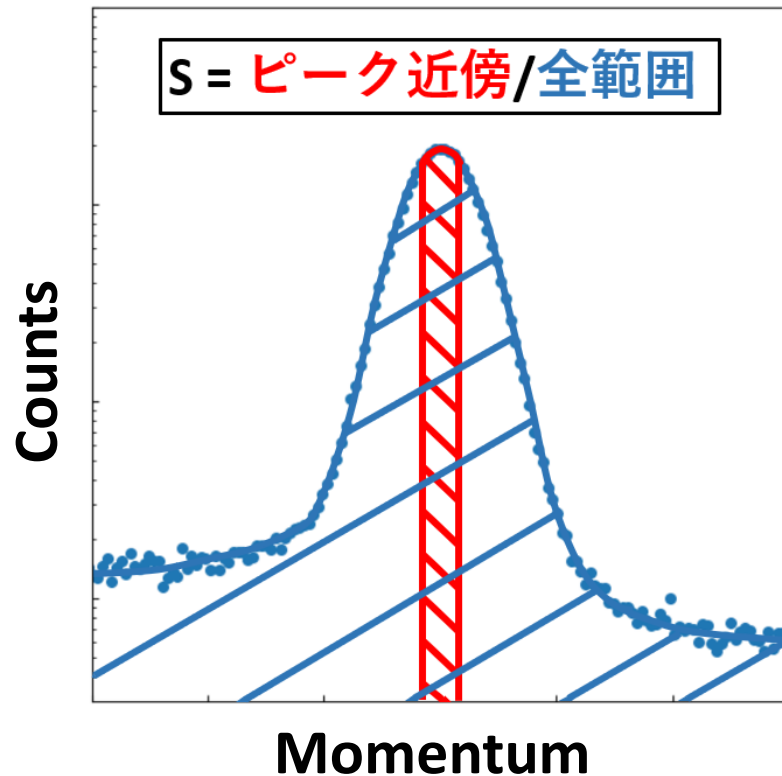
陽電子寿命-運動量相関測定 (AMOC)



- ・ 消滅ガンマ線の発生時間分布と運動量分布を同時に測定する。
- ・ PALSやDBSでは測定できない欠陥についての情報が得られる。

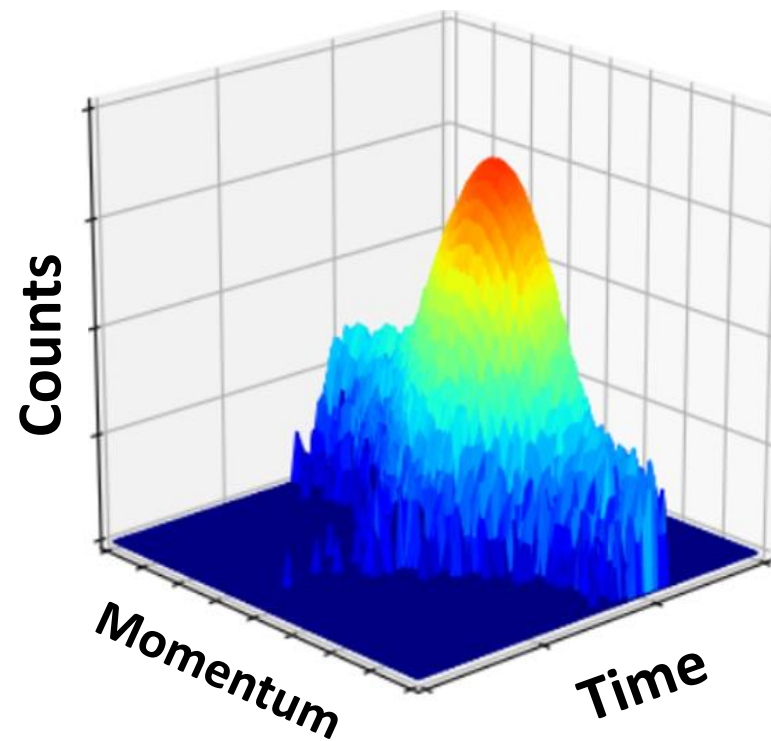
陽電子寿命-運動量相関測定(AMOC)

運動量分布の評価方法



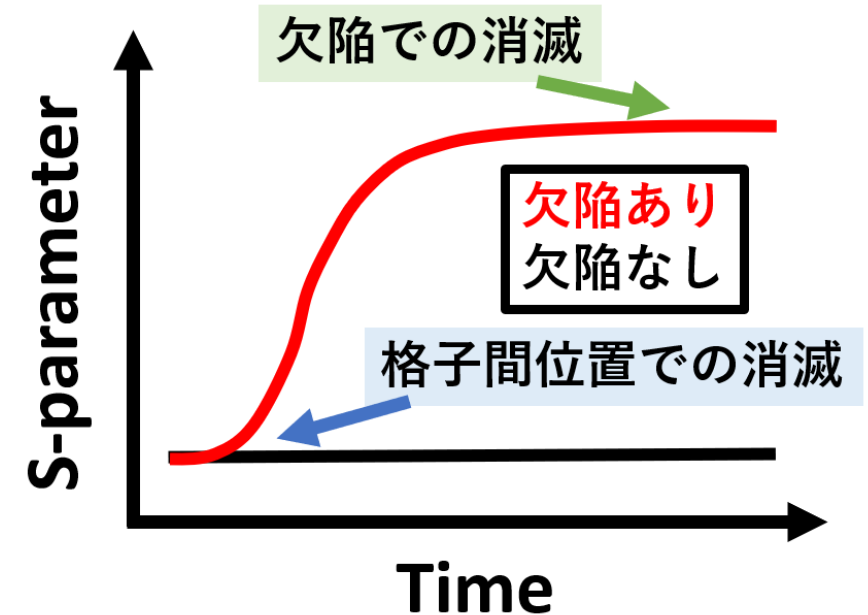
運動量分布の評価には
Sパラメータを用いる。

二次元ヒストグラム



時間と運動量についての
ヒストグラムを作成する。

Sパラメータの時間変化



欠陥の有無で $s(t)$ が変化する。
特定の消滅サイトの
Sパラメータを抽出できる。

利用例① Inの空孔形成エネルギーの測定

AMOCにより、空孔型欠陥のみの
Sパラメータを測定することで、
空孔形成エネルギーの測定をした。

[1] K. Sato et al., Macromolecules,
Vol. 42, pp. 4853-4857, 2009.

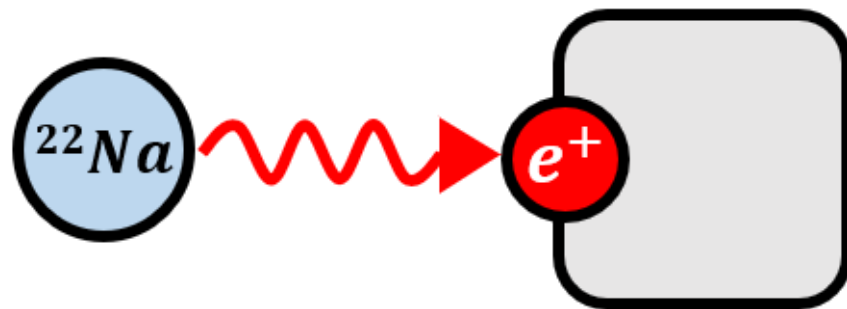
利用例② Fe-Cu合金中のCuナノ析出物の測定

AMOCにより得られた、 $S(t)$ を理論モデル
でフィッティングすることにより
Cuナノ析出物の数密度を測定した。

[2] K. Inoue et. al, PHYSICAL REVIEW B 83, 115459, 2011.

逆トムソン散乱(ITS)ガンマ線による陽電子の生成

従来の陽電子源（放射性同位元素）



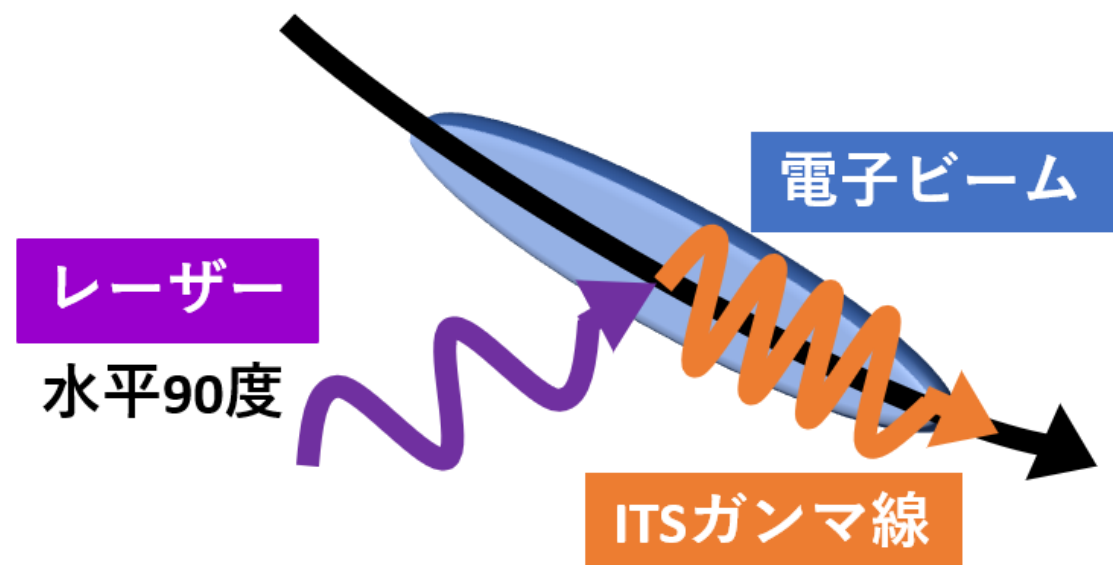
- ・ 侵入深さが数百 μm であるため、厚さ数cmのバルク試料の測定には適さない。
- ・ 寿命スペクトルに線源成分と呼ばれる、線源の密封に使用するカプトン膜の寿命が含まれる。

ガンマ線誘起陽電子消滅分光法(GiPAS)



- ・ ガンマ線の透過力は高い。試料内部で、電子対生成により陽電子が生成する。バルク試料の測定が可能である。
- ・ 寿命スペクトルに線源成分が原理的に含まれない。

UVSOR-IIIで発生されるITSガンマ線



ITSガンマ線パラメータ

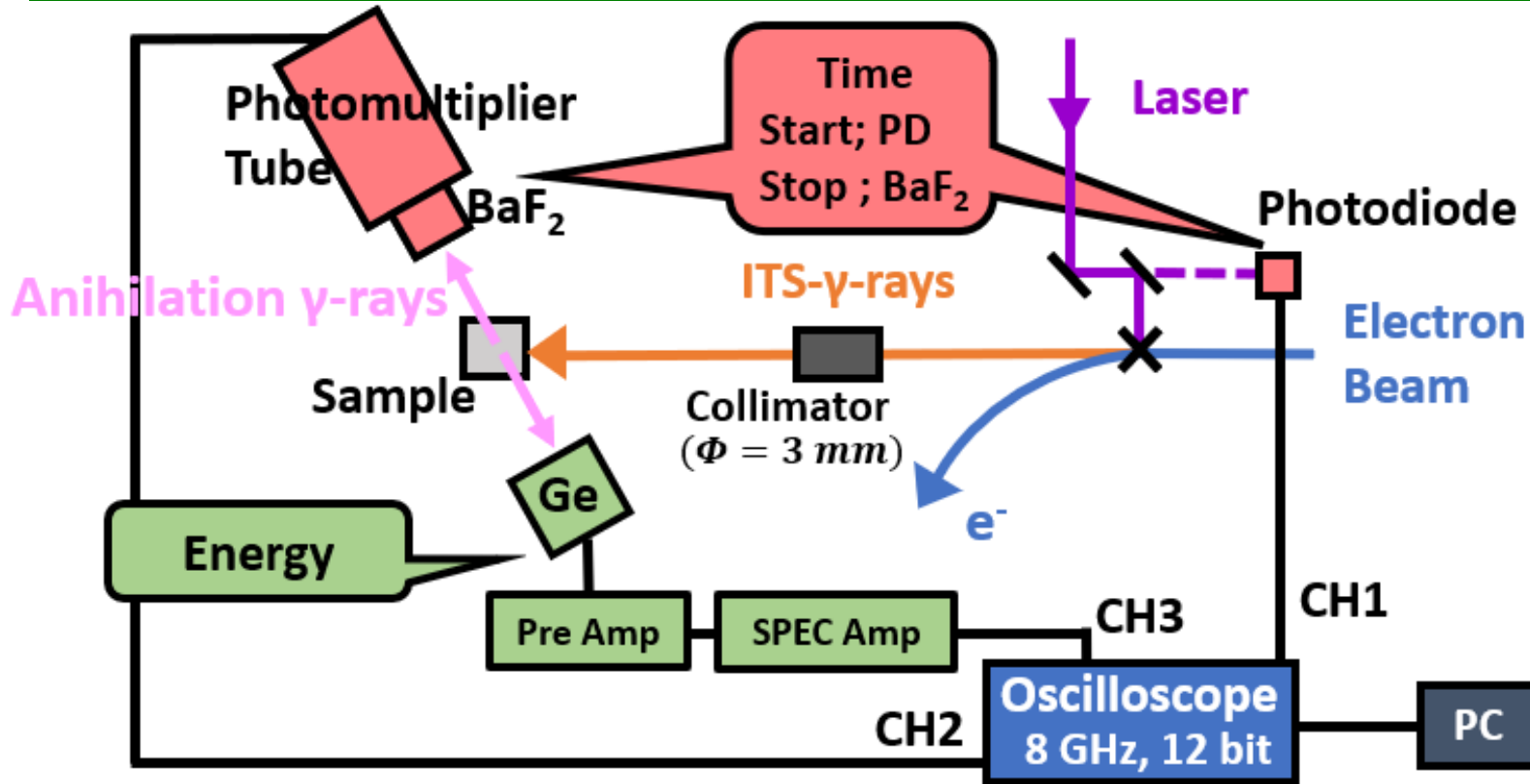
最大エネルギー (MeV)	6.6
パルス幅 (ps)	2.0 (rms)
強度 (photons/s)	1.2×10^6

電子ビームエネルギー; 750 MeV

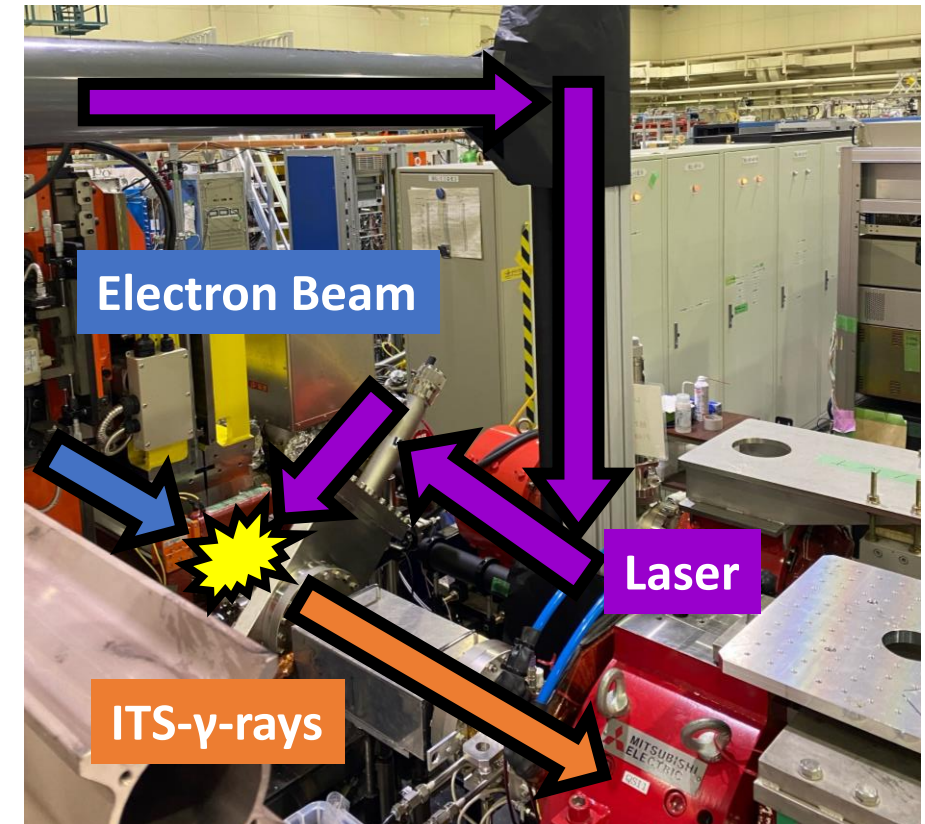
この超短パルスガンマ線を用いて、陽電子消滅分光法の開発を行っている。

ガンマ線誘起陽電子寿命-運動量相関測定(GIAMOC)

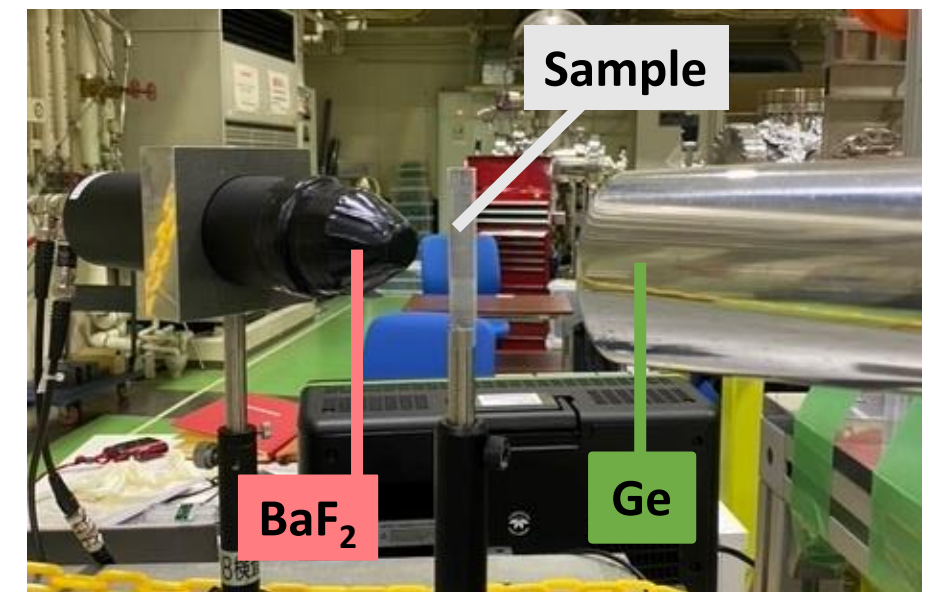
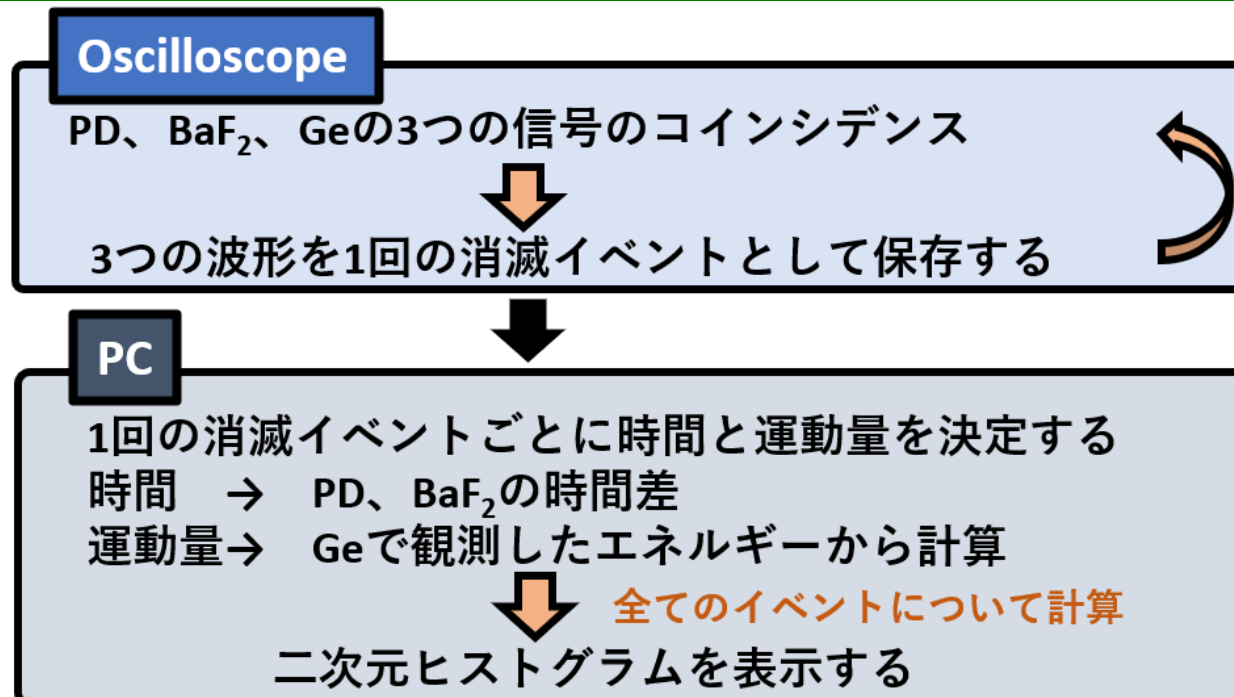
測定システムの模式図



衝突点(上)、試料付近(下)の写真

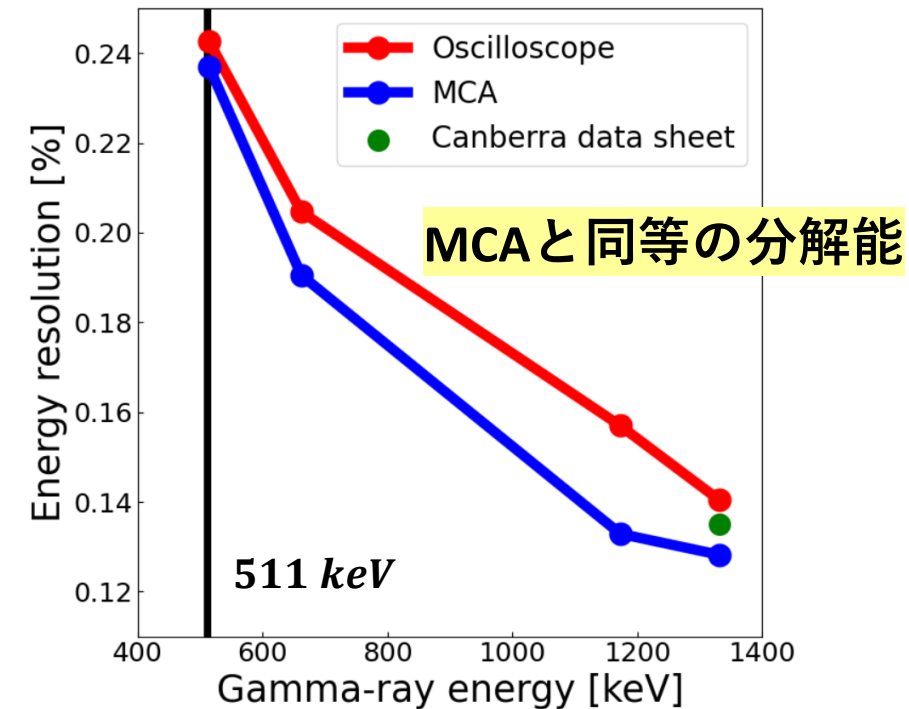
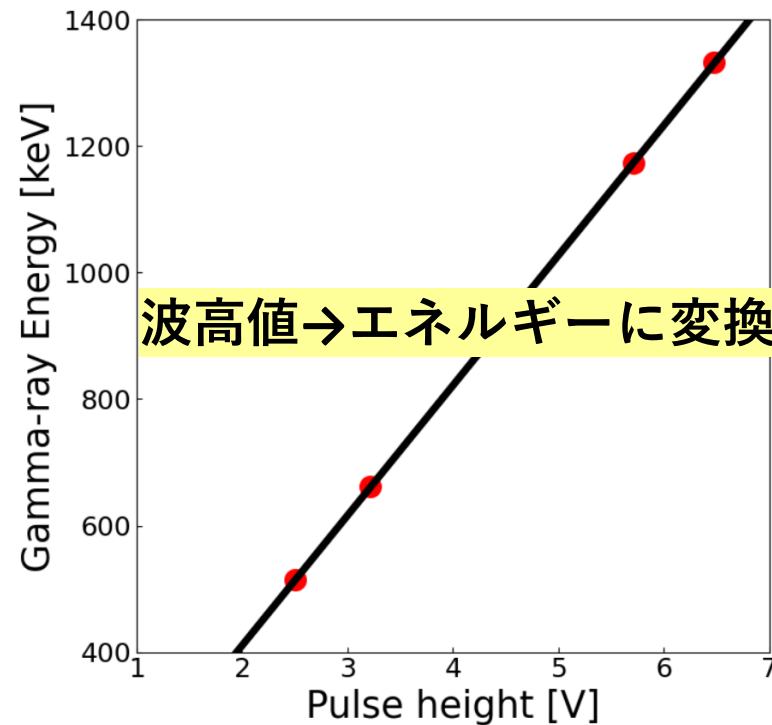
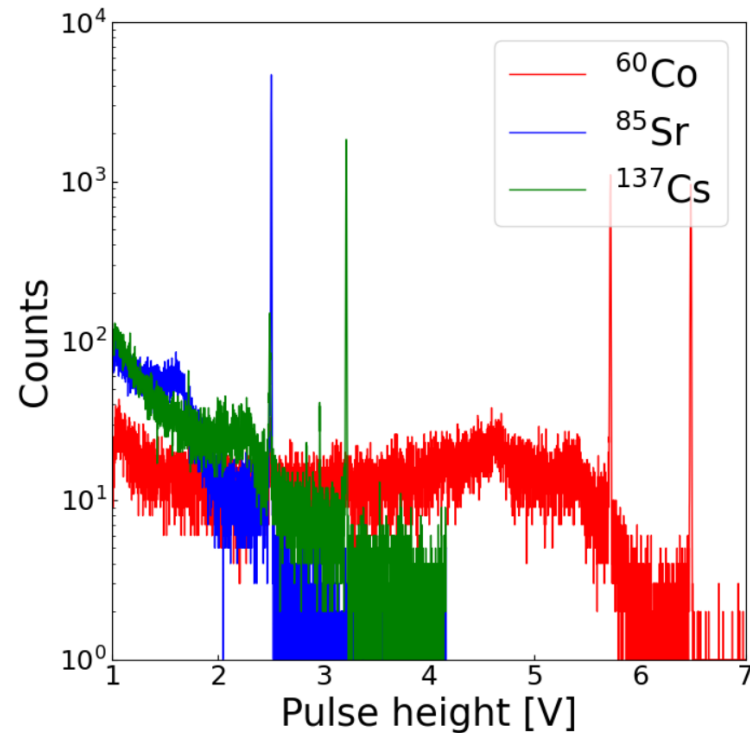


データの取得

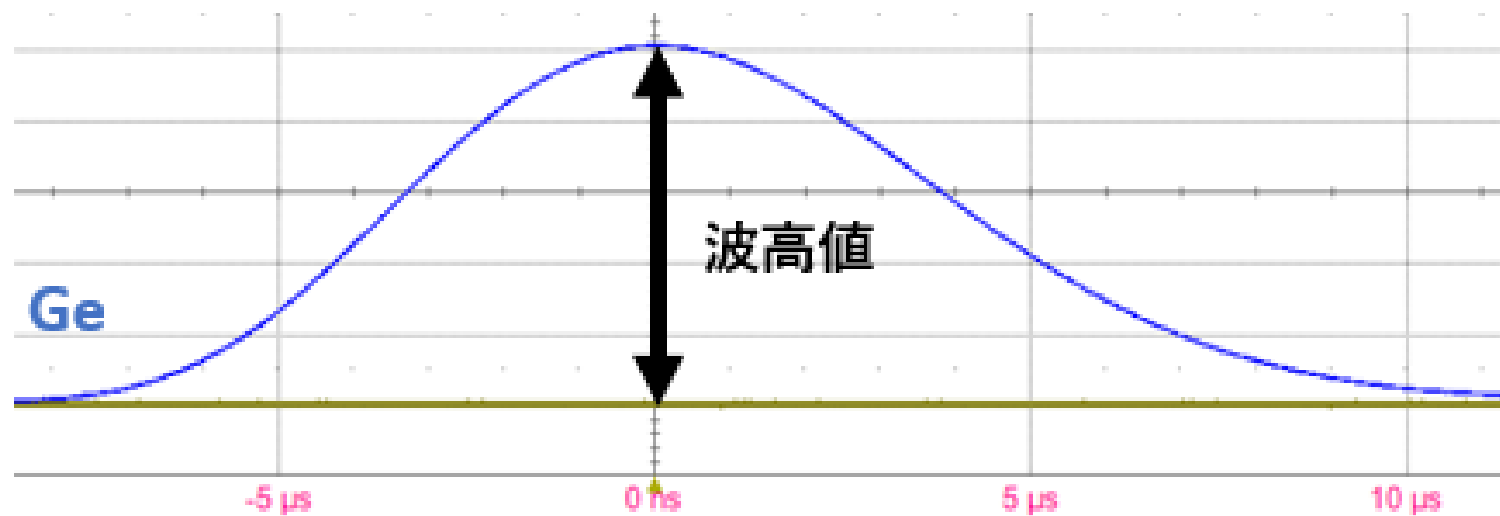


12 bit オシロを用いたエネルギーの測定方法

Ge検出器のエネルギー校正およびエネルギー分解能 ($\Delta E/E$) の評価



消滅ガンマ線エネルギーの測定と運動量の計算



- Ge検出器で消滅ガンマ線の波高値を測定する。
- エネルギー校正の結果から波高値→エネルギーに変換
- 理論式を用いてエネルギー→電子の運動量に変換

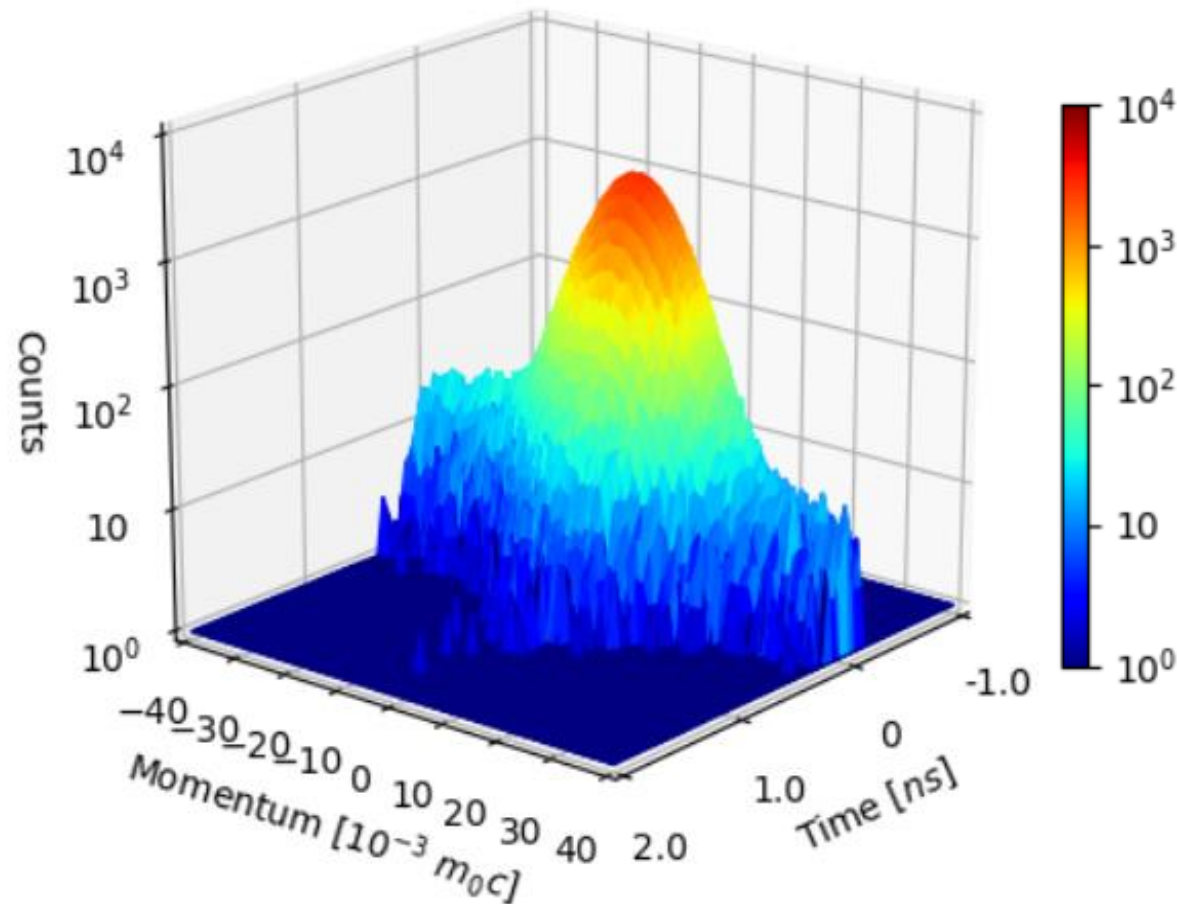
$$p = 2(E - mc^2)/mc^2$$

mc^2 ; 電子の静止エネルギー

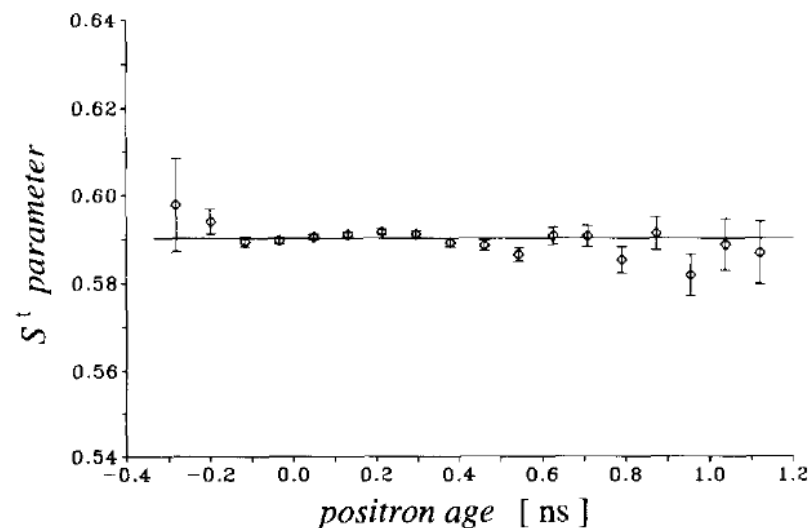
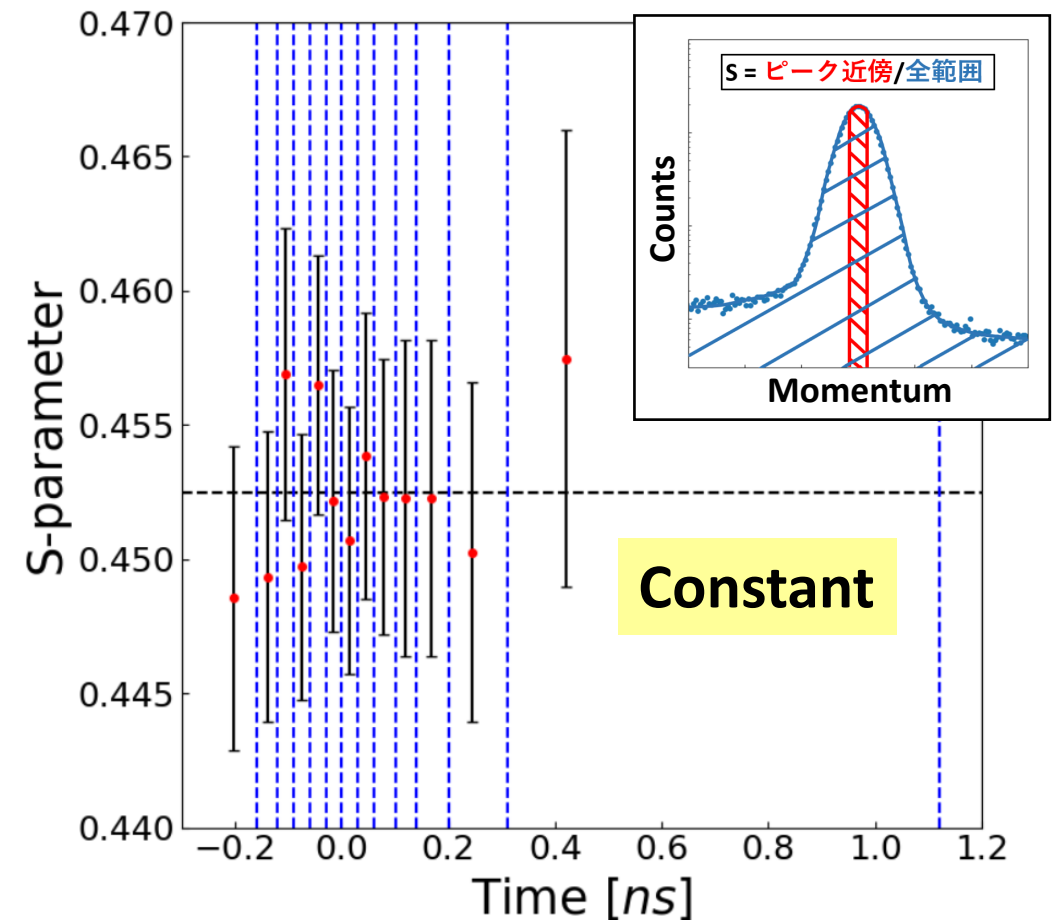
空孔型欠陥のない試料のGiAMOC測定 (NMIJ SUS)

ステンレス鋼 (NMIJ 標準物質 SUS304) のGiAMOC測定 試料サイズ; $15 \times 15 \times 6 \text{ mm}^3$

二次元ヒストグラム



Sパラメータの時間依存性



- $S(t)$ が一定となるのは、陽電子が欠陥に捕獲されず、格子間位置でのみ消滅するためである。
- [3]では欠陥のないAlのAMOC測定結果が報告されており、同様の結果を示している。

GiAMOC測定で欠陥のない試料の測定に成功した。

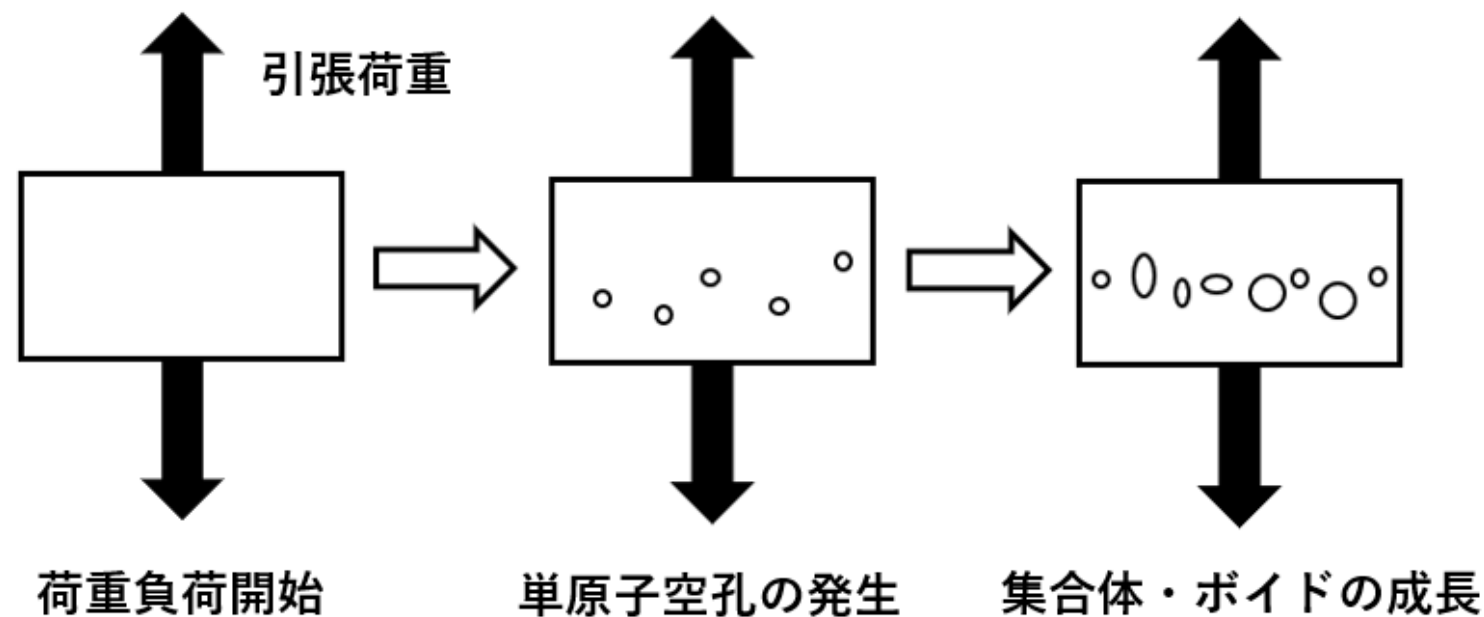
空孔型欠陥を含む試料の作成 (IF鋼)

IF鋼とは

- ・ 自動車の外板、内板に使用される極低炭素鋼である。
- ・ 延性破壊メカニズムの初期に当たる空孔型欠陥の形成、成長過程を知ることは重要である。

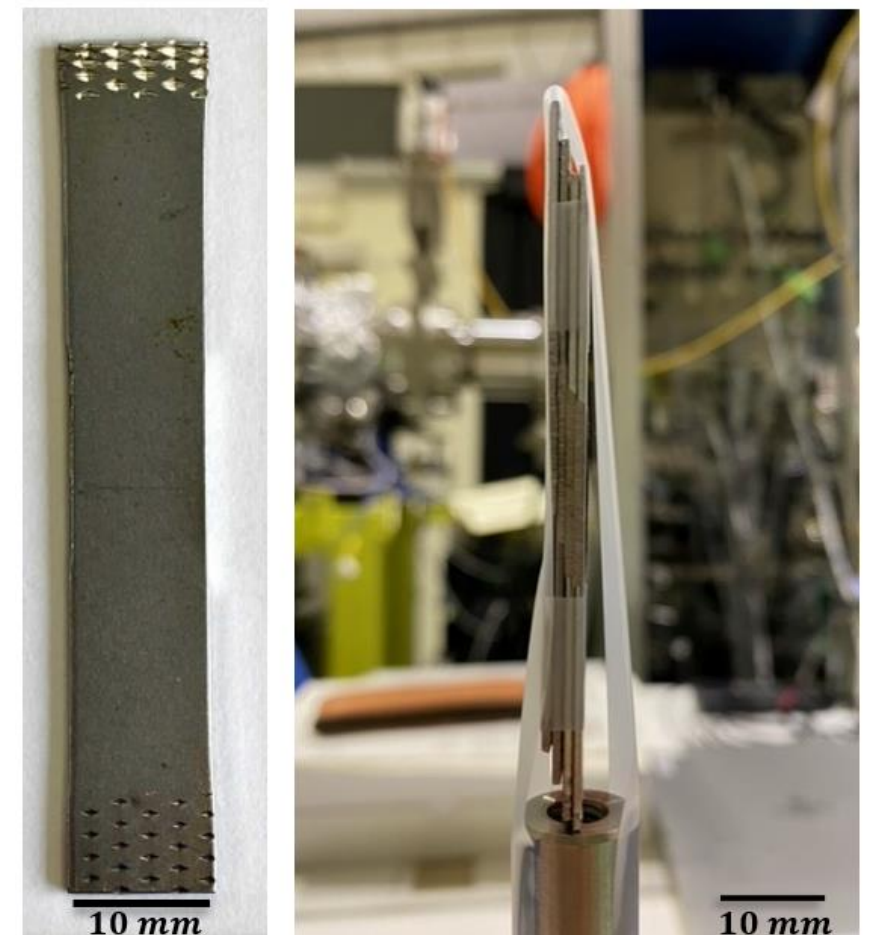
	C	Si	Mn	P	S	Al	N	Ti	Fe
wt %	0.002	0.01	0.14	0.01	0.004	0.05	0.002	0.046	Bal.

塑性変形による欠陥の導入



[4]では、IF鋼に5~25%の公称ひずみを加えると単一原子空孔が導入されることが陽電子寿命測定により確認されている。

[4] 佐藤紘一 他, 鉄鋼インフォマティクス研究会, 203-212, 2014.

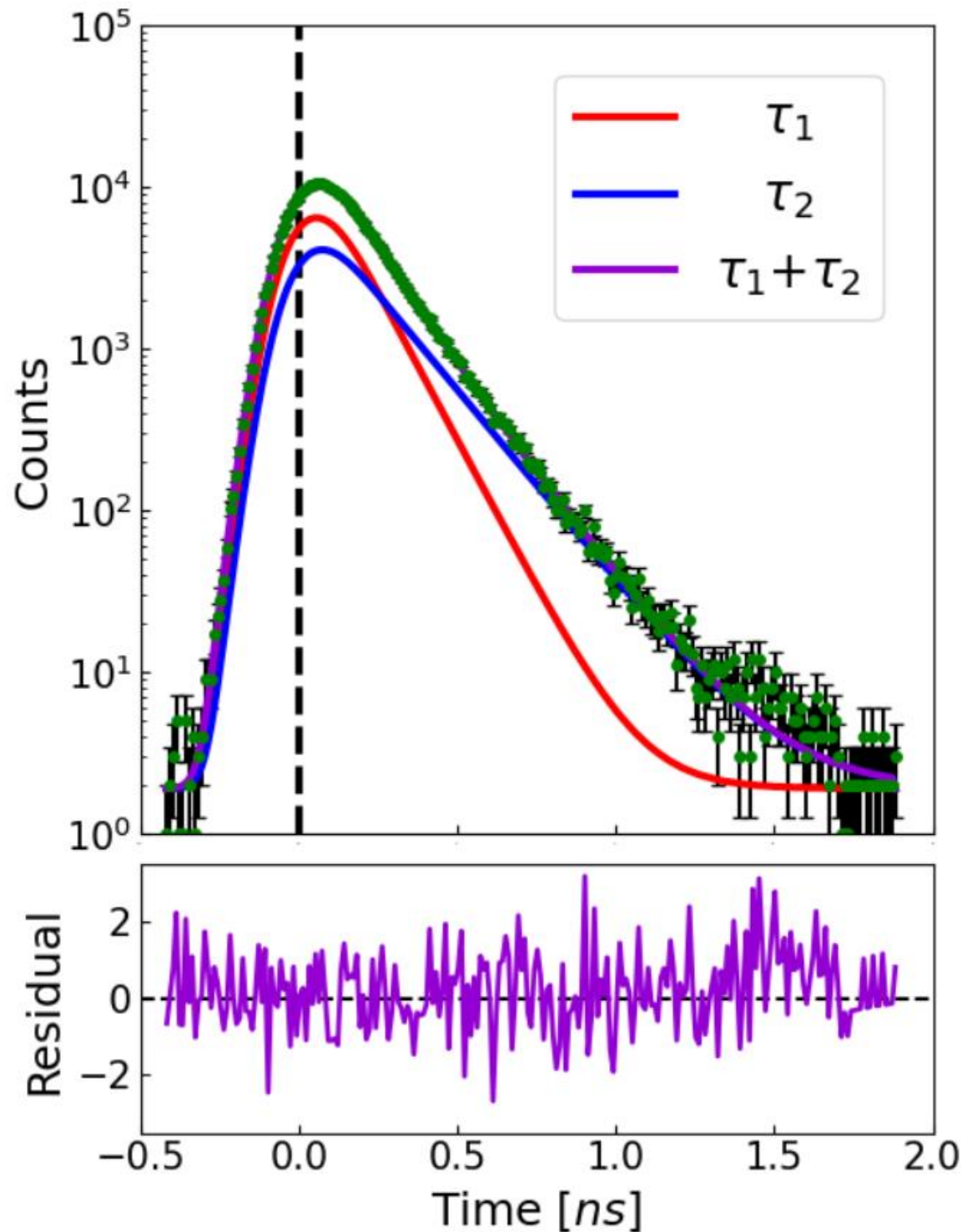


試料サイズ (1枚); $60 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$

ひずみ量10%のIF鋼引張試験片を測定試料とした。

ひずみ量10% IF鋼の陽電子寿命測定

ひずみ量10% IF鋼の寿命スペクトル

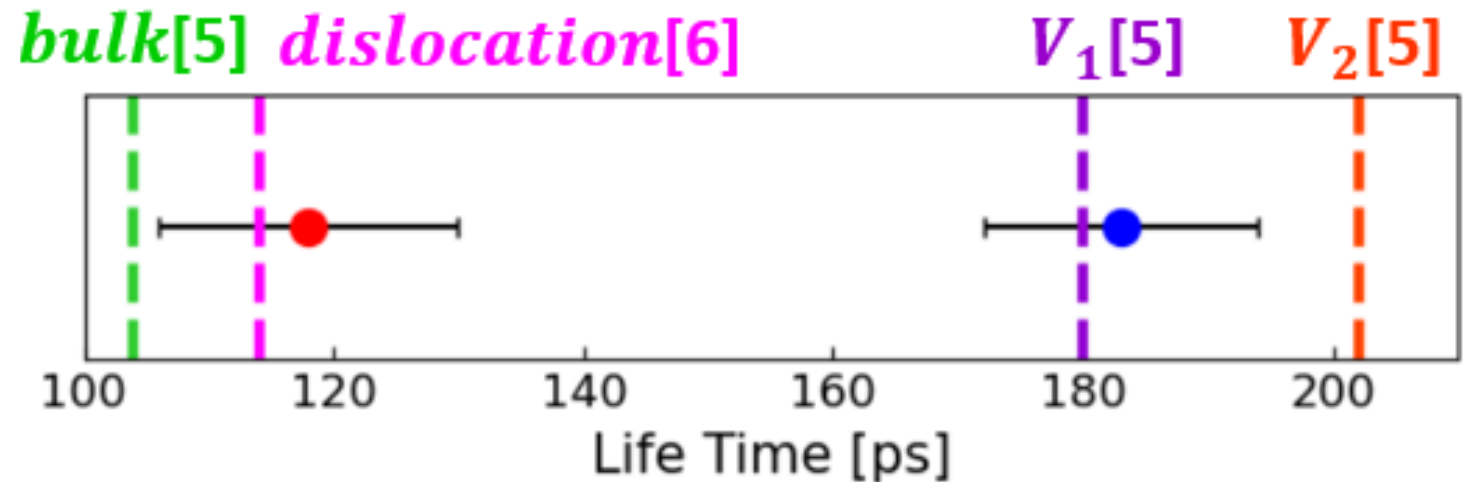


寿命スペクトルの解析結果

時間分解能関数を2つのガウシアン分布
 193.6[ps] (85%)、129.2[ps] (15%) とし、
 2成分の寿命でフィッティングした。

	第一成分 (τ_1)	第二成分 (τ_2)
寿命値 [ps]	118 ± 12	183 ± 11
相対強度 [%]	56.2 ± 9.5	43.8 ± 9.5

寿命測定値と計算値[3,4]の比較



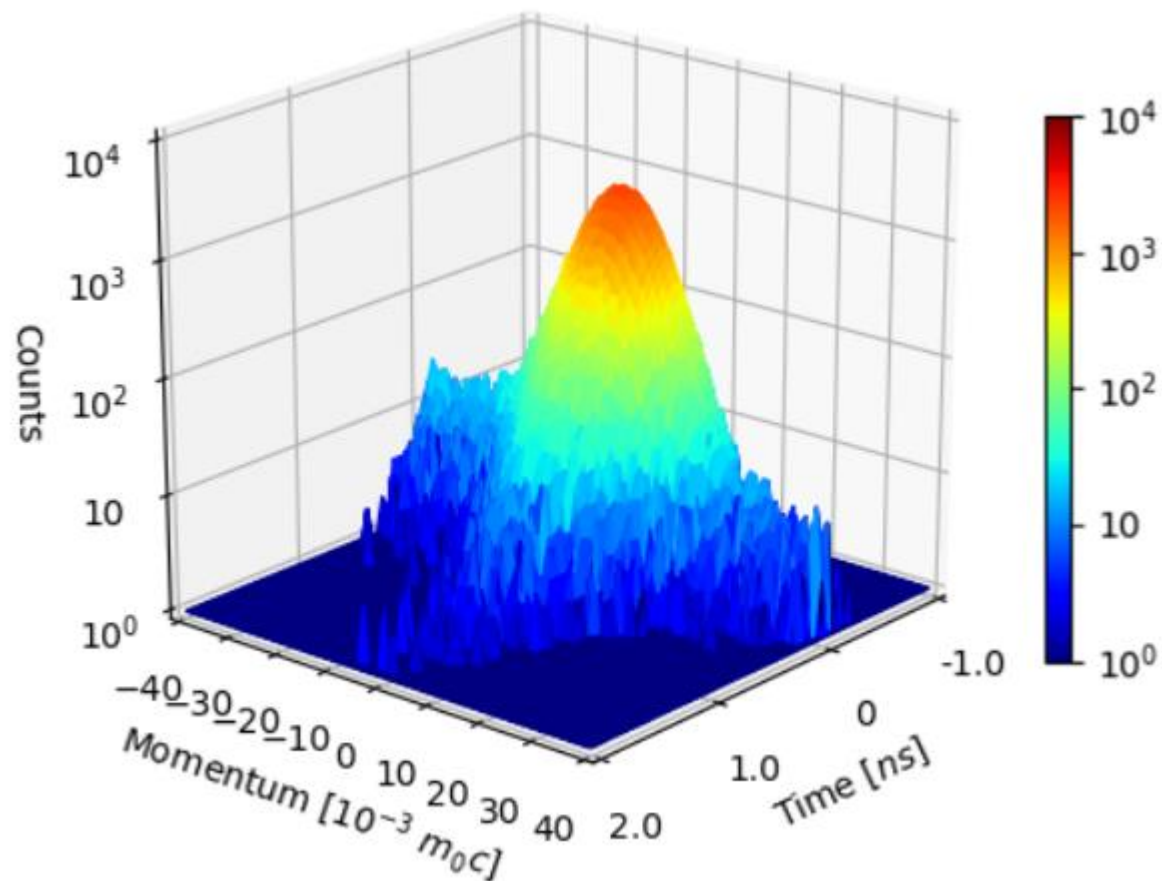
[5] H. Ohkubo et.al, Mater. Sci. Eng. A 305 (2003) 95.

[6] E. Kuramoto et.al, Compt. Mater Sci. 14 (1999) 28.

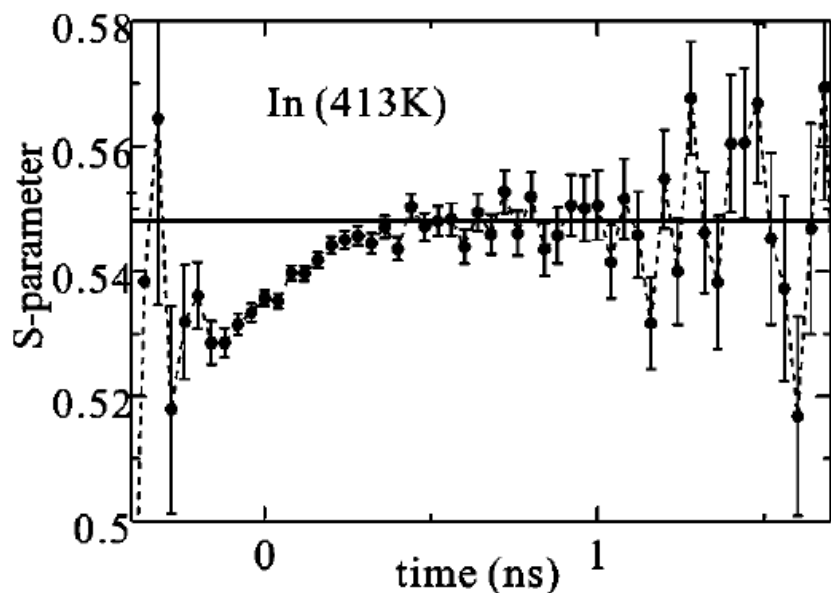
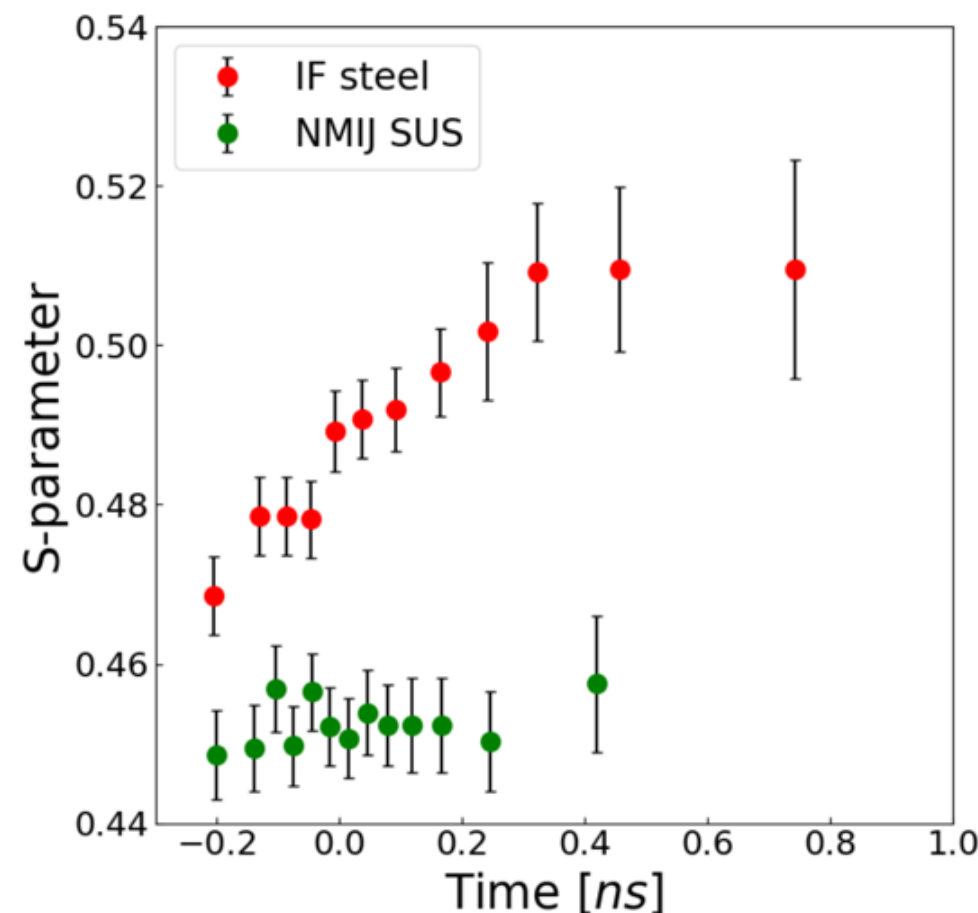
第二成分が単一原子空孔の寿命値にあたる。
 空孔型欠陥が導入されたことが確認できた。

ひずみ量10% IF鋼のGiAMOC測定

二次元ヒストグラム



ひずみ量10%IF鋼のSパラメータ時間依存性



- 時間が経つにつれて、主な消滅サイトが転位から空孔型欠陥になることで $S(t)$ が上昇した。
- 空孔形成エネルギーの測定をした[1]では、加熱により空孔型欠陥を導入したInのAMOC測定結果が報告されている。

GiAMOC測定で欠陥のある試料の測定に成功した。

まとめ

■ UVSOR-IIIでガンマ線誘起陽電子寿命-運動量相関測定法の開発を行っている。

- 空孔型欠陥のないNMIJ SUSの測定では、 $S(t)$ が一定となった。
- 空孔型欠陥を導入したIF鋼の測定では、陽電子が消滅するまでの時間に応じて $S(t)$ が増加する結果となった。
- これらの結果は先行研究の結果と矛盾がない。

■ 今後の展開

- 他の試料のGiAMOC測定を行う。(ひずみ量の違うIF鋼など)
- 検出器の組数を増やすことで、計数率の向上を行う。

■ 謝辞

- 試料提供
名古屋大学 構造形態制御工学研究室
足立吉隆 教授、小川登志男 講師、浪崎将伍 様
- 本研究は、JSPS科研費21H03740の助成を受けています。
- 本研究は、UVSOR-III BL1Uで実施されました。