



技術解説

陽電子を用いた材料評価

白井 泰治*

Materials Evaluation by Using Positrons

Key Words : positron annihilation, lattice defects, non-destructive evaluation

1. はじめに

陽電子消滅がその評価の対象とするのは、ナノメートルスケールの構造欠陥である。これは別の言葉で言えば結晶格子欠陥であり、具体的には原子空孔、空孔集合体、ボイド、転位、結晶粒界、ナノクラック等である。これらは、材料特性(機械的、電気的、磁氣的)に直接的な影響を及ぼす重要な因子であり、その評価技術として陽電子消滅は高い潜在能力を有している。

この手法のもう一つの特長は、完全に非破壊・非接触で上記のナノ欠陥を検出できる点にある。各種の実用構造材料においては、上記のナノ欠陥の挙動が材料強度特性を支配している。供用中の機器や構造物の余寿命を非破壊で精確に評価するためには、破壊を引き起こすマクロ欠陥が発生してから検出していたのでは手遅れで、それに至る前段階すなわちナノ欠陥の段階で検出することが重要である。この意味において、実用構造材料の非破壊検査の分野においても、ナノ欠陥を極めて敏感に検出できる陽電子消滅法の今後の活用が期待される。

本稿では、陽電子消滅法による材料評価の原理、実際の装置の概要・特長などを解説した後、著者らが独自に開発を進めている、小型検出器を備えた可搬型の陽電子消滅材料評価装置を紹介する。

2. 陽電子消滅法の原理

陽電子(e^+)とは、電子(e^-)の反粒子であり、質量(m)は電子と同じであるが正の電荷を持っている。陽電子は、市販の密封陽電子線源(β^+ 崩壊核種)を購入すれば簡単に利用することができる。線源から放出される陽電子を直接試料に入射させる方法が最も簡便である。図1は最もよく用いられる陽電子線源 ^{22}Na を例に、基本的な陽電子消滅実験の原理を示したものである⁽¹⁾。 ^{22}Na は、陽電子を放出するのとはほぼ同時に1.28MeVのエネルギーをもった γ 線を放出する。材料に入射した陽電子は、有限の寿命

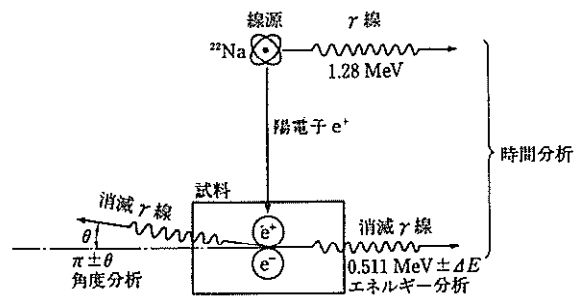
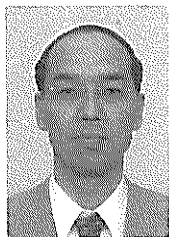


図1 陽電子消滅の測定原理を示す模式図。時間分析を行うのが寿命法、角度分析を角相関法、エネルギー分析をドブラー拡がり法と呼ぶ。



* Yasuharu SHIRAI
 1950年7月生
 昭和54年京都大学大学院工学研究科博士課程修了
 現在、大阪大学大学院工学研究科・原子分子イオン制御理工学センター、センター長、教授、工学博士、材料科学
 TEL 06-6879-7490
 FAX 06-6879-7492
 E-Mail shirai@mat.eng.osaka-u.ac.jp

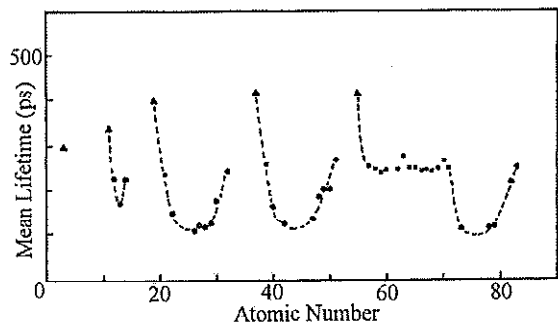


図2 金属中の陽電子寿命値。

($\sim 10^2 - 10^3$ ps) ののち材料中の電子と対消滅し、エネルギー 0.511MeV (電子・陽電子の質量 m に対応、 $=mc^2$, c は光速) の消滅 γ 線 2 本をほぼ正反対 (π ラジアン) 方向に放出する。陽電子の誕生を告げる 1.28MeV のエネルギーをもつ γ 線を検出してから、陽電子の消滅を告げる 0.511MeV のエネルギーをもつ γ 線を検出する迄の時間差を計測すれば、陽電子寿命が得られる (γ - γ 同時計測法)。陽電子寿命は、消滅位置における電子密度で決定され、それに反比例する。十分焼鈍された金属中の陽電子寿命は、図 2 に示すように周期律表とよい対応を示す⁽²⁾。

一方、陽電子・電子対の運動量 p は陽電子・電子対の消滅後も保存される。従って、 p の γ 線に垂直な成分 p_{\perp} によって、2 本の消滅 γ 線は π から $\Delta\theta$ のずれ ($\Delta\theta = p_{\perp}/mc$) をもって放出される (図 1)。消滅前の陽電子の運動量は結晶中の電子のそれに比べて無視できる程度なので、このずれを測定すれば消滅前に電子が持っていた運動量が分かる。すなわち各 θ における消滅 γ 線の数 $N(\theta)$ (角相関曲線) を測定することによって材料中の電子の運動量分布を知ることができる。

陽電子・電子対の運動量の γ 線方向の成分 p_{\parallel} は、消滅 γ 線のエネルギー $E (=0.511\text{MeV})$ にドップラーシフト ($\Delta E = p_{\parallel}c/2$) を与える (図 1)。従って、消滅 γ 線のエネルギー分布 $N(E)$ を精密に測定することによっても、材料中の電子の運動量分布を知ることが可能である。

3. 材料欠陥を探る陽電子

欠陥のない材料では、陽電子はその正電荷の故にイオン殻から離れた位置すなわち格子間位置で存在確率が最も高い。ところが、材料中に空孔やその集合体、転位などイオン殻密度が低い部分が存在する

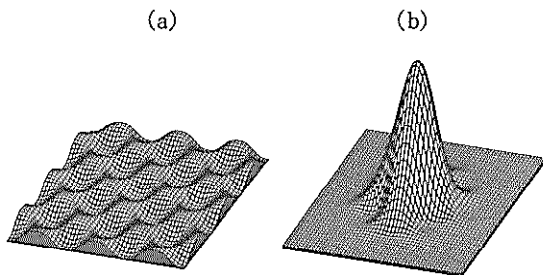


図 3 アルミニウム中の陽電子密度の計算値。
(a) 完全結晶中の陽電子。
(b) 空孔に捕獲され局在した陽電子。

と、陽電子はそこに捕獲され、その位置で電子と対消滅する。図 3 にアルミニウム中の原子空孔に捕獲された陽電子の密度を示す⁽³⁾。

このような空孔型欠陥においては、陽電子は大き

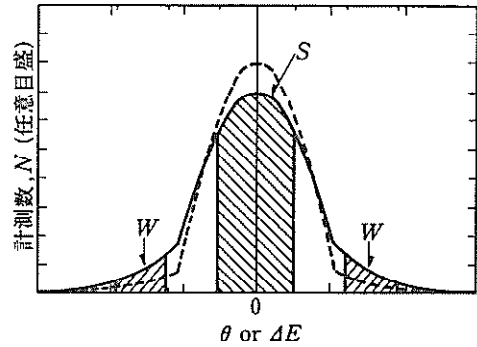


図 4 1 次元角相関またはドップラー拡がりの測定によって得られる結晶中の消滅陽電子・電子対の運動量分布の模式図。実線はよく焼鈍された試料、破線は欠陥を含む場合。

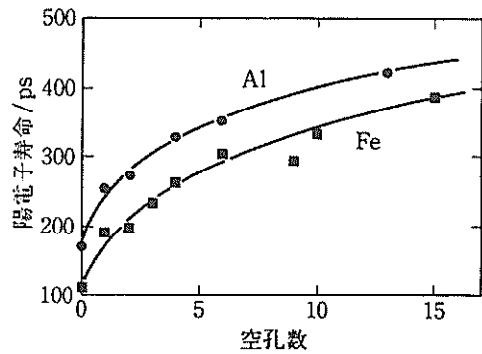


図 5 Al および Fe 中の三次元空孔集合体における陽電子寿命の計算値。

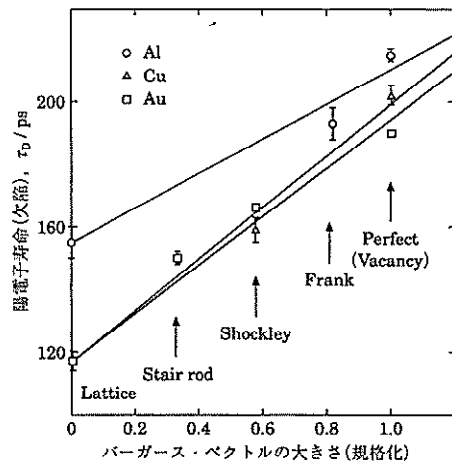


図 6 各種転位中の陽電子寿命。

な運動量をもつ内殻電子と消滅する割合が減少するため $N(\theta)$ や $N(E)$ の分布の幅は狭くなる(図4参照). 一方, 格子欠陥中では電子密度が低いため陽電子寿命は長くなる. 図5に微小空孔集合体中の陽電子寿命の値(計算)⁽⁴⁾を, 図6に各種転位における陽電子寿命の値(実測)⁽⁵⁾を示す.

一般に金属中での陽電子消滅寿命スペクトル $T(t)$ は, 次のような形で表される.

$$T(t) = I_0/\tau_0 \exp(-t/\tau_0) + \sum I_i/\tau_i \exp(-t/\tau_i) \quad (3.1)$$

ここで, τ_i ($i=1, 2, \dots, n$)は各欠陥種における陽電子寿命, I_i はそれぞれの寿命成分の相対強度である. 第1成分 τ_0 は, マトリックス成分であり, 格子欠陥がない場合($I_0=1$)のみ, 完全結晶中での陽電子寿命となる. 実測スペクトルの計算機を用いた成分解析によって各 τ_i, I_i を求め, τ_i の値から欠陥種(図5, 図6参照)を, I_i の値からその量を推定することができる⁽¹⁾.

図1で示した3つの測定手法を材料欠陥評価法として見た場合, 角相関測定は通常10mを超す大きな装置と長時間の測定を必要とし, 実用的ではない. ドップラー幅拡がり法の測定は, 角相関測定よりは小形の装置で短時間で行なえる利点があるが, 角相関に比べて分解能が悪く, 測定された $N(E)$ 曲線から欠陥種やその濃度を決定することは困難である. ドップラー幅拡がり法では通常は図4に示したSパラメータ(斜線で示した中心部の比面積)またはWパラメータ(両翼斜線部の比面積)を指標に用いる. 金属材料では, 十分焼きなまされた状態の場合にSパ

ラメータの値は最も小さく, Wパラメータ値は最も大きい. ナノ欠陥濃度が増加するに従ってS値は上昇し, W値は減少する. しかし, これらの絶対値に物理的意味がある訳ではない.

陽電子寿命の絶対値は, それ自身が物理量で, 実験値を第1原理計算から理論的に予測される値と直接比較することが可能である⁽⁶⁾. そのため, 実験で得られた陽電子寿命スペクトルの成分解析(式(3.1)参照)から, 材料中に存在する各欠陥の種類と量を独立に知る事ができる⁽⁷⁾. そのうえ, 測定に用いる検出器のサイズは, 図1に示した三種の測定法の中で最もコンパクトであり, 材料評価法として最適と考えられる. 以下ではこの陽電子寿命法による材料中の欠陥構造計測に話題を限定する.

4. 新しい陽電子寿命スペクトロメータ

図1の原理から明らかなように, 陽電子消滅法は本来非破壊・非接触であり, また電子顕微鏡のように薄膜試料を作成する必要もない. しかし, 従来の陽電子寿命測定においては, 陽電子寿命の時間の起点に陽電子源から発せられる即発 γ 線(図1中の1.28 MeV γ 線)を用いることが一般的であった. (γ - γ 同時計測法)この場合, 陽電子が試料中で消滅することを保証するために, 陽電子線源を試料で被う必要がある. そのため通常は一円玉程度の大きさの試料板を2枚切り出し, この試片で陽電子線源をサンドイッチする. ドップラー幅拡がり法においても状況はほぼ同じである.

上述のように, 従来法では測定条件(温度等)や試

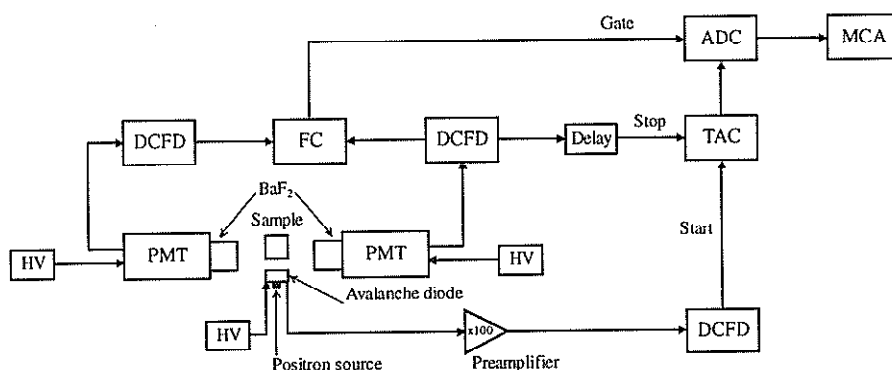


図7 新しい β^+ - γ 同時計測法の装置のブロック図. (略語: PMT, photomultiplier tube; HV, high voltage power supply; DCFD, differential constant fraction discriminator; FC, fast coincidence; TAC, time-to-amplitude converter; ADC, analog-to-digital converter; MCA, multichannel analyzer.)

片の形状・形態などに大きな制約が加わる。これらの制約を取り除くために、線源と試料が空間的に離れた状態でも陽電子寿命測定が可能な $\beta^+-\gamma$ 同時計測による陽電子寿命スペクトロメータを試作した⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

この場合、陽電子(β^+)そのものを検出してスタート信号とし、試料中の電子と陽電子との対消滅の際に放射される0.511MeVの γ 線をストップ信号とし、両者の時間差測定により陽電子寿命スペクトルを得る。陽電子の通過信号(スタート信号)を取り出すために、従来は薄いプラスチックシンチレータと光電子増倍管の組み合わせが用いられてきた。最近筆者らは、アバランシェフォトダイオード(Si, $5 \times 5 \times 0.2 \text{mm}^3$)によって高速のスタート信号を取り出すことに成功した。これによってスタート検出器を一気に数百分の1に小型化することが可能となった⁽⁹⁾。

図7に新しい $\beta^+-\gamma$ 同時計測法の装置のブロック図⁽¹⁰⁾を示す。試料に入射する陽電子のみが、アバランシェフォトダイオードを通過してスタート信号を与える。スタート時間信号を与えた陽電子は、試料に入射し、試料中の電子と対消滅して2本の消滅 γ 線を放出する。この γ 線を検出してストップ信号とする。

5. 適用例：ステンレス鋼の疲労診断

原子力発電所の一次系配管等に多く用いられるステンレス鋼SUS316について、疲労による損傷度を非破壊的に評価するため、新しく開発した $\beta^+-\gamma$ 陽電子寿命測定法を適用した⁽¹⁰⁾。疲労損傷については、初期亀裂が発生するまでの潜伏期間が長く、亀裂の進展は速い。そのため、潜伏期間における疲労の蓄積程度を把握することが重要となる。

疲労試験は完全引張圧縮荷重制御またはひずみ制御で、室温大気中にて行なった。荷重制御試験では応力振幅220MPa(降伏応力284MPa)、周波数1.7Hzの正弦波、ひずみ制御試験では全ひずみ振幅0.31%、ひずみ速度0.4%/sの三角波とした。荷重制御試験およびひずみ制御試験についてそれぞれ破断まで行ない、破断繰り返し数 N_f を求めた。次いで、繰り返し数を N 、疲労寿命比を N/N_f とし、いくつかの N/N_f に相当する途中止め試験片を製作し、中央部を切断して陽電子寿命測定を行なった。

本実験で用いられたステンレス鋼SUS316の未損傷試験片標準試料における陽電子寿命測定を行なっ

た結果、103psの陽電子寿命値が得られた。これは鉄合金における完全結晶中の陽電子寿命値であり、溶体化処理されたSUS316試験片では転位や空孔などの格子欠陥が消滅していることを示している。透過型電子顕微鏡(TEM)によるマイクロ組織観察においても、転位などの欠陥が少なく、析出物も観察されなかった⁽¹¹⁾。

応力振幅220MPaの荷重制御試験およびひずみ振幅0.31%のひずみ制御試験における疲労寿命比 N/N_f と平均陽電子寿命値 τ_m の関係を図8に示す。未損傷試験片における陽電子寿命値もあわせて示した。荷重制御試験およびひずみ制御試験いずれの場合も繰り返し数あるいは疲労寿命比の増加に伴い平均陽電子寿命値 τ_m は単調に増加し、この場合ひずみ制御では荷重制御に比べ、疲労初期において τ_m は早くから上昇することがわかる。また τ_m は、疲労末期において荷重制御とひずみ制御ではほぼ同じ値(約136ps)となる。

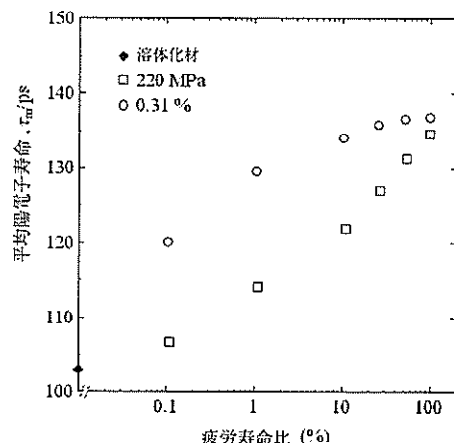


図8 荷重制御およびひずみ制御試験における疲労寿命比と平均陽電子寿命値の関係。

以前に報告されたドップラー幅広がり測定を用いた陽電子消滅法によるステンレス鋼SUS316の疲労損傷過程におけるSパラメーターの解析結果⁽¹¹⁾と本研究の平均陽電子寿命 τ_m の解析結果は、極めてよく似た変化を示し、疲労寿命比の増加に伴って単調に増加する。ここで注意すべきことは、ドップラー幅広がり測定法のSパラメーターは相対変化量で評価するものであり、従って疲労の進行度を評価するためには、あらかじめマスターカーブの作成を必要とする。一方、陽電子寿命測定法の τ_m は物理量で

あり、絶対値そのもので材料評価が可能である。さらに、次に示すように陽電子寿命スペクトルの2成分解析を行なうことによって、格子欠陥の種類やその濃度を評価することが可能である。陽電子寿命スペクトルの2成分解析を行なった結果を図9に示す。欠陥成分の陽電子寿命 τ_d は疲労寿命比による変化はほとんどなく、その値は約150psである。欠陥成分の相対強度 I_d は疲労寿命比に伴い増加し、疲労初期ではひずみ制御のほうが荷重制御より高い値を示し、疲労末期ではいずれもほぼ同じ値(約85%)を示す。欠陥成分の陽電子寿命150psは、鉄の冷間圧延においても同じ寿命値が観測され⁽¹²⁾、鉄中の単空孔における寿命(175ps⁽¹³⁾)より短いことから、転位での寿命であると考えられる。その相対強度 I_d は転位密度に対応する。図9の結果は、荷重制御試験およびひずみ制御試験いずれの場合においても、疲労の蓄積に伴い転位密度が増加していき、疲労限に達するときにはほぼ同じ転位密度になっていることを示している。この場合荷重制御に比べひずみ制御のほうは疲労の初期から転位密度が高く、疲労初期における損傷が大きい。TEMによる観察においても同様の観察結果が得られた⁽¹¹⁾。この例から明らかかなように、疲労損傷度の非破壊評価方法として陽電子寿命測定法は極めて有効と考えられる。

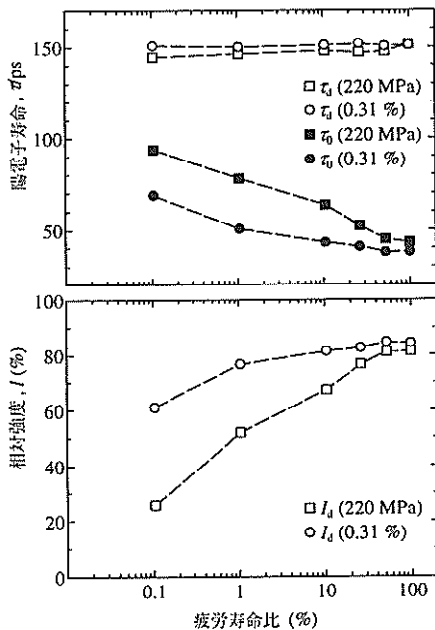


図9 2成分解析結果。

6. 現場での材料診断に向けて

新しい $\beta^+-\gamma$ 同時計測陽電子寿命法を用いて、材料の余寿命が予測でき、さらにその成分解析により欠陥種と量の情報も得られ、疲労による蓄積損傷をより詳細に評価することができることを示した。しかし図7の陽電子寿命測定装置は、従来の $\beta^+-\gamma$ 装置と同様に試料位置に消滅 γ 線の検出器2本を対向させて設置しなければならないため、実際に現場で疲労損傷を測定することは困難である。また、計測器システムもいくつものアナログ精密電子計測機器を組み合わせたものから成っているため、様々な現場までの運搬には不向きである。非破壊検査器として実用化するためにはこれらの問題点を解決する必要がある。その方法として陽電子検出および消滅 γ 線検出を含めた検出部の改良、計測器システムの簡略化・小型化などが挙げられる。

現場での非破壊その場測定に使用しやすいように γ 線検出用のBaF₂シンチレータと光電子増倍管(PMT)を陽電子検出用のアバランシェシリコンダイオード(APD)と一体化させた(図10)。APDを通過しスタート信号を与えた陽電子のみが被測定材料に入射するように設計し、2本の消滅 γ 線の同時性を取る必要をなくすことで、一体化された1本の検出器のみで陽電子寿命測定が可能になる。この一体型検出器の外径は約3cm長さ15cm程度である。この一体型検出器を用いて、いくつかの材料における陽電子寿命の測定を行った結果、装置全体の時間分解能を損なわずに陽電子寿命の測定に成功している。さらに、2本の消滅 γ 線の同時性を取る必要がなくなったため、装置の計数率が大幅に向上した。

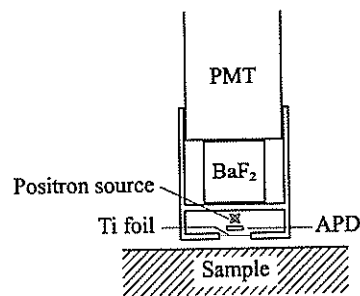


図10 新しく開発した陽電子検出および γ 線検出の両方を備えた一体型検出器の模式図。

文 献

一方、現場で実用する非破壊検査器としては、いくつかのアナログ電子計測機器を組み合わせたものから成っている(図7参照)現状の計測器システムでは不向きである。この複雑ないくつもの精密機器を簡略・小型な計測システムにし、可搬型にする必要がある。これは、計測器システム全体を最新の高性能なデジタル・オシロスコープで代用することにより達成できる。従来の陽電子寿命測定用の計測システムにデジタル・オシロスコープを利用する試みは最近Saitoら⁽¹⁴⁾とRytsolaら⁽¹⁵⁾によりなされている。筆者らが開発した一体型陽電子・ γ 線検出器とデジタル・オシロスコープを組み合わせれば、システム全体が簡略・小型であるため運搬が容易になり、様々な現場でのその場非破壊検査器として実用できる。

7. おわりに

1970年前後に、陽電子は物質中の原子空孔型欠陥に捕獲され、その位置で電子と対消滅することが正しく認識された。材料欠陥中では電子密度が低いいため陽電子寿命は長くなり、それぞれの欠陥種に固有の値(150ps~500ps)になる。原子空孔の場合通常1ppm程度でも測定に掛かり、100ppmあればほぼ全ての陽電子は原子空孔に捕獲されて消滅する。つまり、陽電子は微弱な欠陥の情報をおよそ 10^4 倍に増幅してくれる訳で、この手法のもつ優れた特徴となっている。

陽電子寿命法は元来非破壊で高感度にその場測定が可能であり、しかも各欠陥種とその濃度を独立に求めることができる。最近我々は、陽電子の検出に透過型アバランシェ・シリコンダイオードを用いて、高速タイミング信号を取り出すことに成功した。これによって、各種材料中のナノ欠陥その場計測はもとより、計測装置自体の小型化による現地使用なども可能となり、今後非破壊計測器としての実用化が期待される。

- (1) 白井泰治, 日本金属学会会報27(1988)869-877.
- (2) I. K. MacKenzie, T. E. Jackman and N. Thrane, Phys. Rev. Lett. 34(1975)512.
- (3) M. Mizuno and Y. Shirai, unpublished.
- (4) M. J. Puska and R. M. Nieminen, J. Phys. F 13(1983)333.
- (5) Y. Shirai, K. Matsumoto, G. Kawaguchi and M. Yamaguchi: J. Mater. Sci. Forum 1225(1992)105-110.
- (6) 白井泰治, まてりあ 39(1998)567-570.
- (7) 白井泰治, まてりあ 37(2000)61-67.
- (8) P. Chalermkarannon, 宍戸逸朗, 柚賀正雄, 荒木秀樹, 白井泰治, 日本金属学会誌 66(2002)1004-1008.
- (9) P. Chalermkarannon, 柚賀正雄, 中田智, 岸本俊二, 荒木秀樹, 白井泰治, RADIOISOTOPES 50(2001)576-580.
- (10) P. Chalermkarannon, 河口恭寛, 荒木秀樹, 白井泰治, 日本金属学界誌66, (2002)1293-1296.
- (11) 河口恭寛, 中村規子, 日本金属学会誌65(2001)835-842.
- (12) C. Hidalgo, G. González-Doncel, S. Linderot-hand J. San Juan, Phys. Rev. B 45(1992)7017-7021.
- (13) A. Vehanen, P. Hautojärvi, J. Johansson, J. Yli-Kaupilla and P. Moser, Phys. Rev. B25(1982)762-780.
- (14) H. Saito, Y. Nagashima, T. Kurihara and T. Hyodo, Nucl. Instrum. Methods A 487 (2002)612-617.
- (15) K. Rytsola, J. Nissilä, J. Kokkonen, A. Laakso, R. Aavikko and K. Saarinen, Appl. Surf. Sci. 194(2002)260-263.

