

陽電子によるサブナノスケール欠陥の検出



技術解説

白井 泰治*

"New positron lifetime spectrometer to inspect sub-nano scale defects in materials"

Key Words : Positron Annihilation, Positron Lifetime, Defects, Materials, Non-Destructive Inspection

1. はじめに

陽電子消滅法が、独自の有用性を持っているのは、物質中の高分解能電子顕微鏡でも見えない原子スケールの格子欠陥の種類と量を非破壊で検出できるからである。原理は簡単で、金属材料中に転位や空孔やボイド等が存在すると、それらの欠陥は周囲に比べて負に帯電しているため、正の電荷をもつ陽電子はそれらの欠陥に捕獲される。一方、空孔やボイド中は電子密度が低いために、捕獲された陽電子は対消滅する相手の電子と出会う確率が減少し、結果的に長生きする。つまり、陽電子を被検査物に照射し、陽電子が内部の電子と対消滅して線となって放射されるまでの時間を計測すれば、非接触で内部の欠陥種とその量を知ることができる。ただし、実際に非破壊検査装置として用いる場合、従来から物性研究に用いられてきた陽電子寿命測定法では多くの制約がある。これらの制約を取り除くために、我々が新しく開発している計測手法を、以下で説明する。

2. 従来の陽電子寿命測定システム (同時計測法)

まず、一般的に用いられている陽電子寿命測定システム全体の構成と原理(図1参照)について述べる〔1〕。²²Na線源から放出された陽電子はそれをはさむ試料中に入射し、その中の電子と対消滅し2

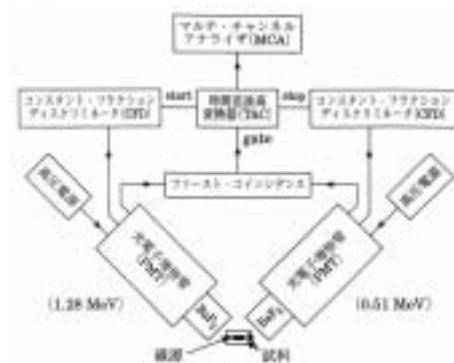


図1 従来の陽電子寿命測定システム(同時計測法)の構成。各モジュールの詳細は本文参照。

本の消滅線(電子、陽電子の質量に対応し、それぞれ $E=mc^2=0.511\text{MeV}$ のエネルギーを持つ)になる。陽電子の生成時刻は、陽電子とほとんど同時に線源から放出される 1.275MeV の線を検出することによって代用し、消滅時刻は 0.511MeV の消滅線を検出した時刻とする。各線の検出には BaF_2 シンチレーターと光電子増倍管(Photomultiplier Tube, PMT)の組み合わせを用いる。 BaF_2 シンチレーターは、蛍光の減衰時間が短いため時間分解能が良く、さらに密度が高いため線吸収率が高く計数効率も良い。 BaF_2 シンチレーターに入射した線は、約 $200\sim 400\text{nm}$ の波長の蛍光に変換され、それをPMTが光電子に変換し、電気的におよそ 10^7 倍程度に増幅し、入射線のエネルギーに対応した波高のパルス信号として取り出される。

PMTから出力されるパルス信号は、コンスタント・フラクション・ディスクリミネーター(Constant Fraction Discriminator, CFD)に送られる。スタート側のCFDにはスタート信号(1.275MeV の線に対応する光電子ピークとコンプトン散乱による信号の一部)、ストップ側のディファレンシャルCFD(Differential Constant Fraction Discriminator, DCFD)にはストップ信号(0.511MeV の線に対応する光



*Yasuharu SHIRAI

1950年7月生
 京都大学大学院工学研究科博士後期課程(1979年)
 現在・大阪大学大学院工学研究科 教授
 工学博士 材料物性
 TEL: 06-6879-7490
 FAX: 03-6879-7492
 E-mail: shirai@mat.eng.osaka-u.ac.jp

電子ピーク)のエネルギーに対応したエネルギー範囲を設定しておき、これによりそれぞれの信号を区別し、波高依存のないスタートとストップのタイミング信号を得る。この方法は、スタート信号もストップ信号も線を用いるので、同時計測法と呼ばれる。

このタイミング信号は時間差波高変換器 (Time-to-Amplitude Converter, TAC) に送られ、スタート側のタイミング信号とストップ側のタイミング信号の時間差が電圧 (波高) に変換される。このとき、装置の有限な時間分解能のために生じる見掛けの負の時間部分も取り入れるために、ナノ・ディレイ (nano delay) を用いてストップ側のタイミング信号を一定時間遅延させる。TAC の出力はアナログ・デジタル変換器 (Analog-to-Digital Converter, ADC) により AD 変換され、マルチチャンネル・アナライザー (Multichannel Analyzer, MCA) に蓄積される。MCA に蓄積される陽電子寿命のヒストグラム (横軸; 時間、縦軸; 消滅陽電子数) が陽電子寿命スペクトルである。このスペクトルを専用ソフトで解析し、試料中の結晶格子欠陥の種類と量を知ることができる [1]。

3. 同時計測陽電子寿命測定システム

従来用いられてきた同時計測法 (上記) では、陽電子が被検体に入射したことを保障するため陽電子線源を試料で包み込む必要があり、非破壊での陽電子寿命測定がほとんど不可能である。一方、従来ほとんど用いられることのなかった同時計測法という陽電子寿命測定法がある。これは、検査体に入射する陽電子 (β^+) そのものを直接検出してスタート信号とし、ストップ信号として試料中での電子との対消滅の際に放出される消滅線を検出して、その時間差測定により陽電子寿命スペクトルを得る方法である。この方法では被検査物に入射する陽電子を直接検知するため、従来法のように陽電子線源を被検査物に埋め込む必要がなく、線源と試料を分離することができる (図2 参照)。

近年、実用構造材料の材質劣化診断分野において、ナノ欠陥を極めて敏感に検出できる陽電子消滅法が注目されている。欠陥が蓄積し破壊を引き起こす以前のナノ欠陥の段階で検出でき、供用中の機器や構造物の余寿命を非破壊で評価できると期待されてい

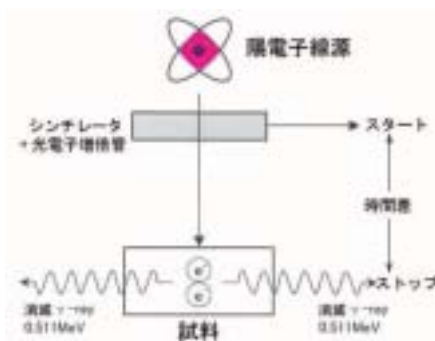


図2 同時計測陽電子寿命測定の実験原理

るからである。しかしながら、従来の同時計測法やドップラー幅広がり法では、実際に現場で陽電子寿命測定による非破壊検査を行うことはほとんど不可能であった。図2の同時計測法を適用すれば、従来法と異なり試料の形状や測定条件を選ばず、非破壊・非接触で陽電子寿命測定ができ、現場での非破壊検査器として利用できる。我々は、稼働中の機器や構造物などの重要部材の損傷度・余寿命を現場で診断することが可能な非破壊検査器の実現を目指し、同時計測法を用いた携帯型非破壊診断陽電子寿命測定装置の開発をすすめている。

4. アバランシェ・フォトダイオードによる陽電子検出

上述のように、同時計測の場合、試料と線源の距離が離れていても、試料に入射する陽電子を直接検出してスタート信号を得ることにより陽電子寿命測定が可能である。陽電子を直接検出する手段として、従来はプラスチック・シンチレーターとライトガイドと光電子増倍管の組み合わせが採用されてきたが、検出器が大きく検出効率にも問題があった (図3)。それを改良するために、電子やX線などを高時間分解能かつ高い検出効率で検出できる半導体放射線検出器の1つであるアバランシェ・フォトダイオード (Avalanche Photodiode, APD) に着目した。我々はAPDにより世界で初めて直接陽電子を検出し [2]、APDによる同時計測陽電子寿命測定に初めて成功した [3]。

有効領域 5 mm × 5 mm、厚さ 110 μm の透過型 Silicon Avalanche Photodiode (EG&G Optoelectronics; C30626 - CD2276) を用いた。降伏電圧が 340V であり、300V の電圧をかけた状態で使用した。APD の内部増幅のみでは出力信号が小さ過ぎるため、

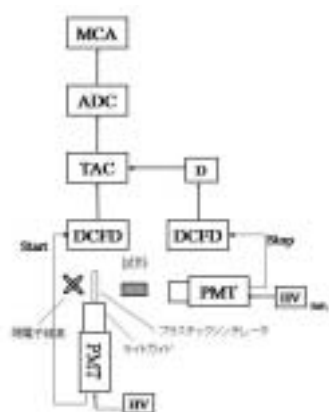


図3 プラスチックシンチレータを用いた
+- 同時計測陽電子寿命測定システム。

増幅率 100 倍の低ノイズプリアンプ（Phillips Scientific; 6954）を用いた。陽電子線源は、12.7mm の 10g/m² ポリイミドフィルム（カプトン箔）中に密封された 1.2MBq の ²²Na 線源（Isotope Products Laboratories; POSK - 22）を用いた。

陽電子による出力信号として、立ち上がり時間（risetime）約 1.6ns、パルス高さ最大約 1.5V の APD による ²²Na 密封線源からの陽電子検出信号が得られている（図4）。装置の時間分解能を左右する

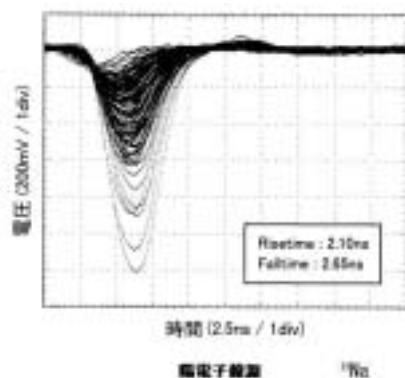


図4 アヴァランシェ・フォトダイオードによる
透過陽電子検出信号。陽電子線源は²²Na。

と考えられる検出信号の立ち上がり時間は、BaF₂ シンチレータとPMTによる線検出信号（立ち上がり時間1.2ns）と比較すると、APDの方がやや遅いものの、それほど大きな差ではなく、実用上十分早い立ち上がり時間である。

線源からは、種々のエネルギーを持った陽電子が放射される。APDを通過する陽電子のエネルギーによって失うエネルギーも違ってくるため、種々の大きさの出力信号が検出される。実際にAPDからの検出信号のパルスの高さ（陽電子が失うエネルギ

ーに対応するもの）の分布をディファレンシャル・コンスタント・フラクション・ディスクリミネーター（Differential Constant Fraction Discriminator, DCFD）を用いて測定すると、陽電子のエネルギー分布に対応する波高分布が観測される。

5. アバランシェ・フォトダイオードを用いた陽電子寿命測定

透過型 APD による陽電子の直接検出に成功したので、これをスタート信号として使い、+- 同時計測陽電子寿命測定を行った〔3〕。ストップ信号は試料からの消滅線を BaF₂ シンチレータと PMT により検出した。APD の直近に 1.2MBq の ²²Na 密封線源をセットし、APD の反対側に試料をセットした。APD を透過した陽電子はすべて試料内で消滅する。PMT でストップ信号をとる際、APD のホルダーなど試料以外からの消滅線を除去するため、BaF₂ と PMT の検出システムをもう 1 本対向させ、同時検出系を構成した。すなわち、消滅線はほぼ正反対の方向に 2 本放出されるため、陽電子が試料内で消滅した時にのみ 2 本の消滅線が両方の PMT に同時に入射することを利用した。この同時信号を、時間差波高変換器（Time-to-Amplitude Converter, TAC）から出力される陽電子消滅寿命の信号のゲートとしてスペクトル測定を行い、試料の陽電子スペクトルを得た。

BaF₂ シンチレータによる消滅線の検出効率は悪い（約 10%）のため、上記の方法で装置の計数率は約 50cps であった。陽電子が線源から試料へ入射する立体角と、試料からの消滅線がストップ検出系と同時検出系に同時に入射できる立体角を大まかに見積もると、10⁻² オーダーの割合の計数率であり、これに BaF₂ と PMT の消滅線の検出効率と合わせると 10⁻⁴ になる。1 MBq の強さの線源を使用しているため、陽電子検出器を通過できないものも考慮すれば、装置全体の計数率は 1 秒に 50 カウント程度となる。

APD を用いた +- 同時計測陽電子寿命測定装置を検証するために、焼鈍された Ni と石英を試料として使い、それぞれ室温にて陽電子寿命測定を行った。測定は、1 つの寿命スペクトル当たり約 10⁶ カウントを収集した。それぞれの試料について、- 同時計測法と同様の、両物質に固有のスペクトル

が得られた(図5)。Niの寿命スペクトルについてPATFIT-88プログラムのRESOLUTIONで解析すると、約120psの陽電子寿命値が得られ、時間分解能(FWHM)は約240psであった。石英の寿命スペクトルについても同じ時間分解能が得られ、約330psと1.4nsの2成分の陽電子寿命値が得られた[3]。この時間分解能は、プラスチック・シンチレーターを用いた過去の+-同時計測法の値と比べて明らかに優れたものである。

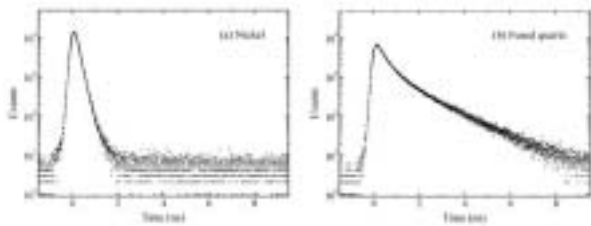


図5 アヴァランシェ・フォトダイオードを用いた+-同時計測陽電子寿命測定システムで得られた寿命スペクトル。左はニッケル、右は石英のもの。

6. +-同時計測法の材料劣化非破壊評価への応用

世界で初めてAPDを用いた新しい+-同時計測陽電子寿命測定装置を適用し、ステンレス鋼SUS316の疲労損傷度を精度良く評価できることが明らかとなった(図6)。本装置は、3.7MBq(100μCi)以下の⁶⁸Ge陽電子密封線源を用いた。システム全体の時間分解能(FWHM)は、Somieskiらの300psとHansenらの280psに比べて、220psという優れたものであった[3,4]。

しかし、上記の装置においては、陽電子や消滅線などの検出に2本のPMTを使用しなければなら

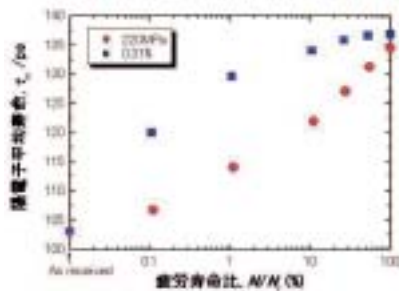


図6 SUS316ステンレス鋼の疲労の進展に伴う陽電子寿命変化(アヴァランシェ・フォトダイオードを用いた+-同時計測陽電子寿命測定システムによる)。四角印は一定歪(0.31%)、丸印は一定応力(220MPa)負荷試験にそれぞれ対応。

ないため、実際に稼働中の機器や構造物などの重要部材の損傷度・余寿命を現場で測定することは困難である。また、装置の計測器システムもいくつもの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。現場でのその場非破壊検査装置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り、以下に述べる陽電子検出および消滅線検出を含めた検出部の改良および計測器システムの簡略化・小型化を進めた。

7. 一体型検出器の開発

現場での非破壊その場測定に使用しやすいように陽電子検出および消滅線の両方を備え、陽電子寿命測定が可能な新しい検出器の開発を試みた。消滅線検出用のBaF₂シンチレーターとPMTを陽電子検出用のAPDと一体化させた。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本の消滅線の同時性を取る必要をなくすことで、一体化された1つの検出器のみで陽電子寿命測定が可能になる。現場測定の簡便さを考慮しての検出器の小型化を図るために、外形の小さい1インチのPMTを用いた。

開発した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。その結果、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た。さらに、2本の消滅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。これにより1つの寿命スペクトルの測定時間が大幅に短縮され、実用上有用である。

8. デジタル・オシロスコープの利用

現場で実用する非破壊検査器としては、いくつものアナログ精密電子計測機器を組み合わせた(BIN電源とNIMモジュール)これまでの計測システムは不向きである。この複雑なアナログ機器を簡略・小型な計測システムにし、携帯に適したシステムにする必要がある。我々は、従来のアナログ電子計測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、この問題を解決した。

従来の陽電子寿命測定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[5]らとRysola[6]によりなされている。従来のアナロ

グ計測システムに比べてやや計数率が低いものの、デジタル・オシロスコープを用いた陽電子寿命スペクトルの測定が可能であることが示された。Saitoらが使用した、サンプリング速度4GS/s、周波数帯域2GHzの高性能デジタル・オシロスコープを用いた場合、従来のアナログ計測システムの時間分解能(FWHM)を大きく上回る144psという優れた性能が得られた。

現在、一体型検出器とデジタル・オシロスコープの組み合わせによる陽電子寿命測定に成功し、さらなる計数率、時間分解能の向上を目指している。近い将来、様々な現場での非破壊・非接触携帯型検査器として実用できるものと期待している。

参考文献

- (1) 白井泰治、陽電子による構造解析技術；まてりあ、第37巻、第1号(1998)、pp61-67。
 (2) P. Chalermkarnnon、柚賀正雄、中田智、岸

本俊二、荒木秀樹、白井泰治、LADIOISO TOPES 50(2001)576-580。

- (3) P. Chalermkarnnon、河口恭寛、荒木秀樹、白井泰治、日本金属学会誌 66(2002)1293-1296。
 (4) Y. Kawaguchi and Y. Shirai, Fatigue Evaluation of Type 316 Stainless Steel Using Positron Annihilation Lineshape Analysis and $^{+}$ -Coincidence Positron Lifetime Measurement, J. Nuclear Science and Technology, 39(2002) 1033-1040。
 (5) H. Saito, Y. Nagashima, T. Kurihara and T. Hyodo, Nucl. Instrum. Methods A 487(2002) 612-617。
 (6) K. Rytola, J. Nissila, J. Kakkonen, A. Laakso, R. Aavikko and K. Saarinen, Appl. Surf. Sci. 194(2002), 260-263。

