

称号及び氏名 博士（工学） 安藤 太一

学位授与の日付 令和3年3月31日

論文名 「革新的陽電子寿命測定システムの開発」

論文審査委員 主査 松浦 寛人

副査 古田 雅一

副査 宮丸 広幸

副査 秋吉 優史

副査 堀 史説

## 論文要旨

半導体デバイスの大容量化や高速化は、半導体高集積回路(Large scale integration: LSI)パターンの微細化を加速させ、1980年後半で $1\mu\text{m}$ 程度であったLSIパターンの幅は、

陽電子は1928年にDiracにより初めて存在が予言され、1932年にはAndersonによる宇宙線の霧箱による観察から反粒子の存在が初めて検証された。陽電子は電子の反物質であり、電荷の極性が正である点を除き、質量、電荷量ともに電子と同じである。陽電子は電子と衝突すると対消滅し、エネルギーが $0.511\text{MeV}$ の消滅 $\gamma$ 線を2本 $180^\circ$ 方向に放出する。金属、半導体に入射した陽電子は一定の深さに到達すると熱エネルギー程度に減速(熱化)される。この熱化した陽電子は結晶中を $100\text{nm}$ 程度の距離を拡散移動し、 $100\sim 200\text{ps}$ 程度の寿命で周囲の電子のうち一個と対消滅する。陽電子は正電荷を持つので、結晶を構成する正の原子核から遠ざかる性質があり、結晶中の主な陽電子の消滅相手は最外殻の束縛電子や伝導電子である。しかし結晶中に正イオンが抜けた原子空孔型の格子欠陥が存在すると、相対的に負電位となるので、陽電子が引き寄せられ、捕捉される。この原子空孔にトラップされた陽電子の対消滅率は陽電子の位置での電子密度に比例する。この性質を利用することにより、金属、半導体などの結晶中の空孔型欠陥を極めて敏感に検出することが出来る。

陽電子寿命測定には陽電子線源が必要となる。この線源としてNa-22が使用される。Na-22は陽電子放出と同時に $1.28\text{MeV}$ の $\gamma$ 線を放出する。この $\gamma$ 線と陽電子の対消滅時に放出される $0.511\text{MeV}$ の $\gamma$ 線を検出し、その時間差を計測することで、陽電子の寿命を計測することができる。一方、 $\gamma$ 線は光速で進むが極めて高速の測定のため、検出器の距離の分だけ

実際の消滅時刻との間にずれが生じる。このため寿命値の測定を複数回(通常 106 - 107 イベント)繰り返し、横軸を時間、縦軸を回数とした頻度分布として陽電子寿命スペクトルを作成し、解析を行う。

1 章は緒言として位置づけられており、本研究の総合的理解を深める為に、陽電子寿命計測法 (PALS) の理論や方法、種類等について述べる。

2 章では新たに開発した微小試験片を用いた陽電子寿命測定の方法とその性能について述べる。

現在、核融合炉におけるダイバータの候補材料としてタングステン材料が注目されている。日米科学技術協力事業核融合分野 PHENIX プロジェクトにおいて、照射後試料は放射化を起こし、体積が大きいと取り扱い可能な放射能のレベルにまで減衰するのに時間を要する。一度に照射できる個数を増加させ、放射能を低減させるためには測定試料の微小化が強く求められている。そのため  $\phi 3 \times 0.5 \text{ mm}$  サイズの微小試験片を用いた様々な照射後物性測定が行われている。特に熱拡散率の評価は重要であるが、タングステン材料は核変換によるレニウムの生成により電子伝導が低下する寄与と、格子欠陥によりフォノン伝導が低下する寄与の両方について検討を行う必要がある。このため、格子欠陥、特に熱伝導率に大きな影響を及ぼす空孔の存在状態について選択的に測定を行う事の出来る、陽電子寿命計測測定(PALS)が注目されている。しかし、陽電子寿命測定は測定を行いたい試料に対し、陽電子をすべて試料に入射させる必要がある。放射線管理区域外で PALS 測定を行うためには下限数量 (Na-22 の場合 1 MBq) 以下の密封線源を使用する必要があるが、密封線源として販売されている線源の線源径 (アクティブエリア) は 10 mm 程度であり、管理区域内での非密封線源を自作する場合も十分な強度の線源はそれほど小さくすることはできない。そのため従来の PALS 測定では試料の形状を線源より大きくする ( $\phi 10 \text{ mm}$  程度) 上に同一の試験片を 2 枚用意する必要がある。そのため、 $\phi 3 \times 0.5 \text{ mm}$  サイズの微小試験片 1 枚では、陽電子寿命測定を行うことができない。そこで本研究では微小試験片 ( $\phi 3 \text{ mm}$  程度) 1 枚のみで陽電子寿命測定が可能なシステムの開発を行った。本研究で開発したシステムは 1 枚の試験片とプラスチックシンチレータで陽電子線源を挟み込み、シンチレータで陽電子を検出した場合の信号は排除処理 (アンチコインシデンス) することによって、試料 1 枚に入射した陽電子の寿命のみを計測する構成になっている。このアイデアを応用すれば試験片の大きさ、形に左右されない陽電子寿命測定が可能になると考えられる。

3 章では計数率を上げ、短時間で計測を行える手法についての詳細な説明と実験結果について述べる。本研究で開発を行った微小試験片計測システムは試験片が単体かつ微小であるため、試料に入射する陽電子は従来型と比べ相対的に少なくなり計数率が低い弱点がある。計数率と時間分解能はトレードオフ関係にあることから、計数率向上によって、時間分解能の向上も図れる可能性があり、より信頼性の高い計測を行う為に重要である。従来は測定装置には 2 つの検出装置を使う事が一般的であったが、本研究ではシンチレーション検出器の数を増やすことで、高計数率の陽電子寿命測定手法の開発を行った。一方、単純に検出器を追加し検出信号を増やすだけでは検出器の個体差により、測定値の時間分解能が低下してしまう問題が発生する。そこで本システムでは、検出器の出力部にループ状のアッテネータ (ATT) を挿入した回路を作り、わざと信号の後に遅れて現れる小さな信号を作り、検出器から出力される信号に特徴を付加した。その特徴の違いで検出器を弁別し、各検出器からの信号の時間軸上のずれを補正しながらスペクトルを作るシステムを構築した。このアイデアにより、単順に 1 本追加すれば 2 倍、2 本追加すれば 3 倍の計数率で計測を行うことが出来る。

4 章では開発した 2 つの陽電子寿命スペクトルを同時に作成する新しい計測手法について

述べる。従来の陽電子寿命測定法では2つの検出器を使い、検出器毎にスタート信号計測(1.28 MeV)とストップ信号(0.511 MeV)の $\gamma$ 線を波高弁別(エネルギー弁別)し、寿命計測に使用する。3章で述べた新しい手法では検出器の判別を行い、それぞれの検出器ごとの陽電子寿命のヒストグラムからずれを評価し補正を行うが、この解析手法を応用する事で、それぞれの検出器でスタート信号もストップ信号も計測するように波高弁別を行い、スタートとストップ計測の役割を入れ替えた信号も同時に取り込み、2つの陽電子寿命スペクトルを同時に作成する新しい計測手法も開発した。この同時に取得した2つの陽電子寿命スペクトルを重心が一致するように合成しながら、陽電子寿命スペクトルを作成することで同じ時間で2倍の計数を獲得できる。

5章では検出器を1つ増やすだけで6倍の計数率が得られる手法について述べる。3章で述べた、検出器を追加し計数率向上させる手法と4章で述べた1つの検出器でスタート信号とストップ信号を取得する手法を組み合わせることで、3つの検出器を使用し、6つのペアの陽電子寿命スペクトルを作ることができる。この画期的な手法は従来の計測体系に1つの検出器を追加するだけで、従来の6倍の計数率を確保することができる。本システムでは、3つの検出器のうち2つの検出器で信号を検出した場合のみ、デジタルオシロスコープでトリガをかけ、信号を取り込む。取り込んだ信号の波高と検出器の組み合わせから、6パターン中のスペクトルのうち、どのスペクトルに分類されるか解析する。解析したのち、該当する寿命スペクトルに加算することで寿命スペクトルの作成を行っていく。

6章では陽電子寿命測定システムを応用して、通常の検出器ではパイルアップをしてしまい、正確な線量計測ができない、高線量率の $\gamma$ 線、X線の測定について述べる。

平成29年3月に公布された中学校学習指導要領の改訂に伴い、「真空放電と関連付けながら放射線の性質と利用にも触れること」という内容が追加され、従来から授業で実演が行われてきたクルックス管に対する放射線安全管理が注目されている。運用条件によっては低エネルギーではあるが、15 cmの距離で70  $\mu$ m線量当量が200 mSv/hに達する高い強度のX線を放出する製品が存在する。教育現場で安心してクルックス管を使用する為に線量の測定や安全対策を行う必要がある。クルックス管は誘導コイルを用いた電源により、高電圧を印加し稼働する。クルックス管に高電圧を印加することにより、陽イオンが陰極に引き付けられ、電子をたたき出す。その電子が印加された電圧によって加速される。電子がガラス管の壁に衝突するとき制動放射X線が放出される。このような簡単な構造により電子ビームを発生させる事が可能だが、高い電圧が必要なため、誘導コイルを用いた電源装置が用いられる。この誘導コイル電源のパルス状の電圧に依存したX線が放出されるので、短い時間の領域で大量のX線が放出される事から、一般的な検出器ではパイルアップを起こし、まとまった信号を1つのX線と判断して評価を行ってしまっており、正常な測定ができない。

そこで本研究では陽電子寿命測定で使用したシステムとBaF<sub>2</sub>シンチレータを使用し、高時間分解能の測定を行いクルックス管から放出されるX線の観察を行った。このX線から線量を見積もり、計測結果の有用性についても検討した。

以上の通り、本研究では陽電子寿命測定手法について微小試験片で計測可能にし、計数率を格段に向上させる革新的陽電子寿命システムの開発を行った。今後この手法をさらに応用する事で試料や時間に制限なく、陽電子寿命測定が行えるようになると考えられ、様々な分野への応用が期待できる。

## 審査結果の要旨

本論文は、金属や半導体の結晶中の空孔型欠陥を極めて高感度で検出できる陽電子消滅寿命分光法(PALS)のシステム改良を行ったものである。陽電子はポジトロンとも呼ばれ、放射性同位体のベータ崩壊や高エネルギーX線による対生成で生み出され、結晶中においては、周りの電子と対消滅して2本のガンマ線にかわる。この消滅までの寿命が結晶構造、特に空孔に依存することから、PLASは有用な分析法として広く利用されている。しかし、放射線照射を受ける原子炉や核融合炉の構造材の研究に応用しようとすると、サンプルサイズの縮小や計数率の向上が必要となる。本研究ではこれらの問題に対する解決法を提案し、既存の測定システムと遜色ないデータを得るためのシステムを構築している。特に注目すべき成果は以下のとおりである。

(1) 放射性同位体を線源とした既存のPALSシステムでは、試料以外の構造体などでの消滅ガンマ線の信号を減らすために、線源を完全に覆う同一形状の試料を2つ用意する必要があった。本研究では、試料以外で消滅した陽電子の信号を取り除くことにより、任意のサイズの単一の試料で測定を行えるPALSシステムを提案した。これにより中性子照射をうけた原子炉材料の評価がより簡便に行えることが期待される。

(2) (1)で提案した微小試験片でのPALS測定では、計数率が小さく、そのために寿命測定の時間分解能を上げることができないという問題がある。本研究では、ガンマ線検出器の数を増やすのみならず、陽電子の生成信号と消滅信号に特化していた検出器の役割を多重化して効率よく使うシステムを考案し、実証した。このアイディアは検出器をさらに増やした場合にも、そのまま拡張、応用が可能である。

(3) (1)および(2)の研究を通して構築した計測システムは、極短パルスの信号を正確に計測する能力を持っており、PALS以外の放射線計測にも応用が可能である。本研究では、教育現場での利用が増えているクルックス管からの低エネルギーX線の測定に応用し、吸収線量の評価に成功している。

以上の諸成果は、今後、日米科学技術協力事業のもとで米国研究炉で照射済試料の解析に直ちに供せられるばかりでなく、薄膜や棒状試料、さらには液体や気体の測定の可能性など極めて広範な対象を測定可能とし、陽電子寿命測定の新たな地平を切り開く物である。

本研究は、このように単なる放射線を用いた計測法の改良にとどまらず、原子力分野で問題となる、材料の放射線損傷を研究する極めて有用なツールを提供するものであり、関連分野の学術的・産業的な発展に貢献するところ大である。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識を有することを証したものである。

学位論文審査委員会は、本論文の審査および最終試験の結果から、博士(工学)の学位を授与することを適当と認める。