

## Generation and Application of Positrons and NRF Gamma-rays Induced by MeV-photon Beam

Hiroyuki Toyokawa

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

1-1-1 Umezono, Tsukuba, IBARAKI 3058568, Japan

### Abstract

A photon beam facility, which generates photons of million-electron-volt range, dedicated for development of industrial science and technology is introduced. The photon facility is operated by National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST). Two topics for industrial applications using the MeV-photon beam are introduced; one is a MeV-photon beam induced positron annihilation spectroscopy, and the other one is a nuclear resonance fluorescence excited by the MeV-photon beam.

### MeV光子ビームによる陽電子生成および核共鳴ガンマ線を用いた利用研究

#### 1. はじめに

近年、レーザーコンプトン散乱 (LCS) によって光子ビームを生成する技法に注目が集まり、世界各地で開発が進められている。利用分野は原子力、国家安全保障 (ホームランドセキュリティ)、X線天文学、原子核物理、天体核物理、物性研究、非破壊検査、医療診断および治療技術など多岐にわたる。

産業技術総合研究所 (茨城県つくば市) には、産業応用技術開発を目的とした電子加速器施設 [1] がある。TERASは1980年に作られた電子蓄積リングであり、LCSによるMeV領域の光子ビーム生成とその利用研究 [2]、および偏光変調可能なVUVアンジュレタ光による円二色性の研究 [3] を行っている。2005年にはフォトカソードRF電子銃を用いた40 MeVの電子線形加速器を導入し、これを用いた硬X線ビーム発生手法の開発とその応用研究を行っている [4]。

TERASの入射器は300 MeVの電子線形加速器TELLであり、ピーク100 mA $\times$ 1  $\mu$ s $\times$ 2 ppsの電流を300 MeVに加速してTERASに入射する。入射効率は諸条件によって変わるが、おおむね2 mA/秒でTERASに蓄積し、約3分で入射を完了する。その後、数分間シンクロトロンモードでエネルギーを上昇した後、蓄積モードとなる。近年、TERASは放射光源として利用されることはあまり無く、多くの運転時間をLCSや円偏光等のエネルギー可変運転モードに割り当てている。

TERASには10 WのCWレーザー (波長1064 nm) が備え付けられており、これを用いて1~10 MeVのレーザーコンプトン光子ビームを発生している。TERAS周辺と実験室の平面図を図1に示す。光子ビーム強度は $10^5$ 光子/秒程度で、エネルギー広がりは2~3%である。光子ビーム強度はレーザーの出力を調整することによって自由に調整できる。

コンプトン散乱光子のエネルギーは、電子ビーム軌道に対するレーザー光の散乱角によって可変であるので、電子ビーム軌道の延長上にコリメータを置き、立体角を制限することで光子エネルギーを単色

化して、任意のエネルギーとエネルギー幅の単色光子ビームを得ている。またレーザーの偏光がそのままコンプトン散乱光子に反映されることも利用して、原子核同位体の非破壊検知による、ホームランドセキュリティ技術への応用を進めている。

産総研LCS光子ビームは直径数mmの細いビームに整形して実験室に輸送し、ユーザー利用へ供する。ビームサイズは0.5~20 mmまで選択でき、強度、エネルギー、エネルギー広がり等を考慮して最適なものを使用する。実験室は光源から約10 m下流にあり、厚さ2 mのコンクリートによって遮蔽されている。ユーザーは10 m<sup>2</sup>程度の実験スペースを自由に利用できる。

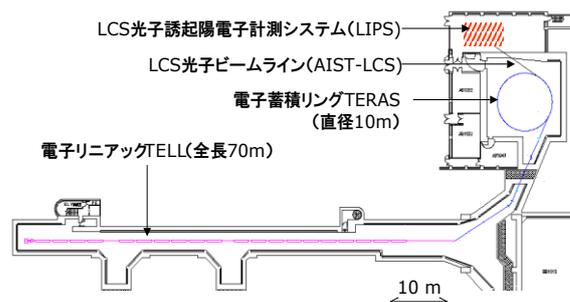


図1 電子蓄積リングTERASのLCSビームライン、及び実験室の概略図。

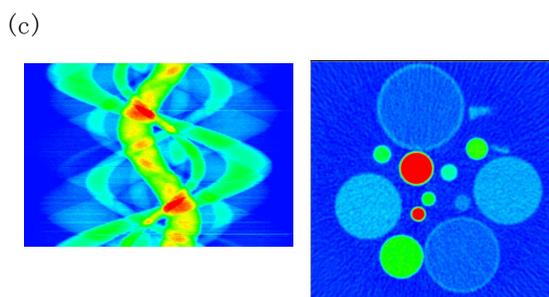
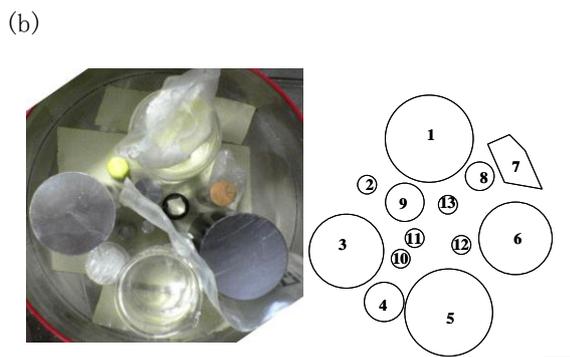
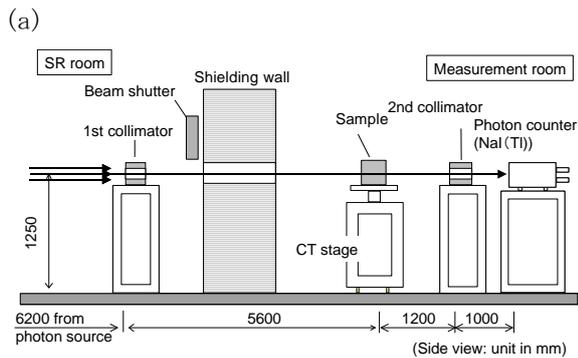
TERASの役割は、入射器から供給された電子を長時間安定に保持し、MeV光子ビームを安定に生成することであるため、エネルギーやベータトロン振動数の変更に対して不安定動作領域を少なくすることが重要である。また産業応用を念頭においているため、運転コストを抑えることも必要である。TERASは蓄積リングとしては比較的大きなエミッタンス (600~700  $\mu$ m-mrad) を持ち、低いベータトロン振動数 (横方向2.3、縦方向1.3) で運転している。また加速空洞に供給するマイクロ波出力をできるだけ下

げることによってパンチ長を長くし、高次モード等の不安定性を抑制して、蓄積電流の増大と寿命の延長を図っている。

TERASの入射器として重要なことは運転・維持コストを下げ、設置面積を小さくすることである。諸検討の結果、マイクロトロンのような多周回型加速器が適していることが分っており、導入を検討している。

## 2. MeV光子ビームの産業応用研究

産総研ではMeV光子ビームを用いた様々な基礎研究や応用研究を行っている。これまでに最初に行った産業応用研究は、MeV光子ビームを用いたラジオグラフィである[5, 6]。図2(a)~(d)に、本手法によるコンピューテッド・トモグラフィ (CT) 実験配置と画像の一例を示す。極めてアーチファクトの少ないCT画像が得られることが特長であり、これまでに鉄筋コンクリート、各種金属材料、ロケット燃焼器等の非破壊検査に利用されてきた。



(d)

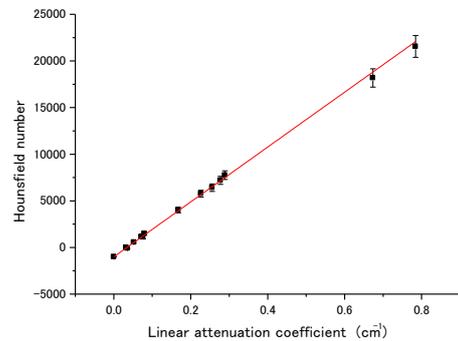


図2 MeV光子ビームを用いたCT測定手法[5]。(a)CT実験用セットアップの模式図。(b)CT測定に用いた試料: (1) heavy water ( $D_2O$ , in a bottle), (2) chromium, (3) aluminum, (4)  $Bi_4Ge_3O_{12}$  (BGO, a scintillation material used for high-energy photon counting), (5) water in a beaker, (6) silicon crystal, (7) rock quartz, (8) copper, (9) tantalum, (10) tungsten, (11) stainless steel (SUS304), (12) magnesium, (13)  $BaF_2$ , and (14) airを示す。(c)左側: 上記サンプルのサイノグラム、右側: FBP法再構成CT画像。(d)各種材料の線減弱係数の文献値に対するCT測定値。よい線形製を保っているためアーチファクトが少ない。

上記研究は文部科学省の原子力試験研究によって産総研で行った研究成果である。

以下、二例であるが、将来産業に役立つと思われる、あるいは新規産業分野を開拓する可能性のある利用研究について簡単に紹介する。これらの成果もまた、画像化やCTなどの手法を取り入れており、非破壊検査手法の一つとして大変興味深く、それぞれに明確な利用分野を想定している。

### 2.1 光子誘起陽電子消滅法

材料の強度や靱性には転位や格子欠陥などが重要な役割をしている。これらは陽電子を用いて測定することができる。陽電子は電子の反粒子であり、物質中で速やかに電子と再結合する。従来の陽電子消滅法は陽電子を外部から照射ため、表層約  $1 \mu m$  を観察している。そのため  $1 mm$  以上の深い位置の測定は困難であった。

本研究では光子誘起陽電子消滅法を用いることによって陽電子を物質深部へ輸送することを試みる。光子誘起陽電子消滅法とは、高エネルギーX線を試料に当て、内部で電子・陽電子対生成反応によって陽電子を発生させ、その陽電子の対消滅ガンマ線を計測して物性を測定する手法である(図3)。陽電子を光子の形で物質深部へ輸送すると考えることもできる。陽電子消滅ガンマ線は、厚さ  $1 cm$  程度の金属を容易に透過するので、深部に発生した陽電子消滅ガンマ線を外部で検知できる。そのため、本手法は試料を容器に封入し、内部を高温・高圧/低温・低

圧等にしたまま、試料を測定できることが特長である[7]。

そこで、試料中の空孔型格子欠陥濃度の変化(場所や時間)を測定し、機械特性との相関を求めことで材料の劣化を診断する手法を開発することにした。

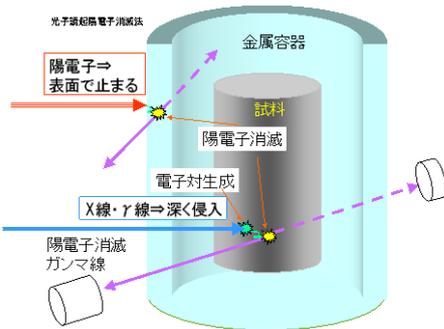


図3 光子誘起陽電子消滅法の概略図。

陽電子消滅法には、陽電子消滅ガンマ線エネルギースペクトルのドップラー広がり測定する方法(Doppler Broadening Spectroscopy; DBS)と、消滅までに要した時間(寿命)を計測する方法(Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy; PALS)がある。

DBSは、陽電子と対消滅する電子の運動エネルギーをドップラー広がりとして観測する手法である。陽電子の周囲に自由空間が多い場合は、原子の外殻電子と対消滅する確率が高い。外殻電子は運動エネルギーが低いのでドップラー広がり小さくなるので、エネルギースペクトル幅は狭い。結晶構造が比較的健全であり、格子欠陥の少ない状態であれば、内殻電子と対消滅を起こす確率が高く、ドップラー広がり大きくなる。

本手法を用いて、水素吸蔵合金が水素を吸蔵していく様子を観測した例を紹介する。水素を吸蔵する性質を持つ水素吸蔵合金は、水素を貯蔵する効率のよい手法として知られており、燃料電池自動車への搭載が検討されている。通常、水素は数MPaという高い圧力で水素貯蔵容器に密封され、合金に吸蔵される。この状態で水素吸蔵量を外部から非破壊で観測することができれば、より効率的で安全な水素貯蔵と輸送が可能となる。

水素吸蔵合金は、合金中に水素が吸蔵されていく過程で格子欠陥が増大することが知られている[8]。そこで、La系の水素吸蔵合金に数MPaの圧力で水素を吸蔵させ、陽電子消滅ガンマ線エネルギースペクトルを時間を追って測定した[9]。ドップラー広がりをSパラメータで表し、その経時変化の様子を図4に示す。水素吸蔵と共にスペクトル幅が小さくなっていく様子が見られた。

現在、本手法を用いて、水素吸蔵の様子を可視化する研究に取り組んでいる。本手法が実現すると水素貯蔵タンク内の冷却配管等も含め、水素吸蔵合金

の水素吸蔵量を非破壊で観測することができるようになり、水素の安全な輸送や貯蔵に有用である。

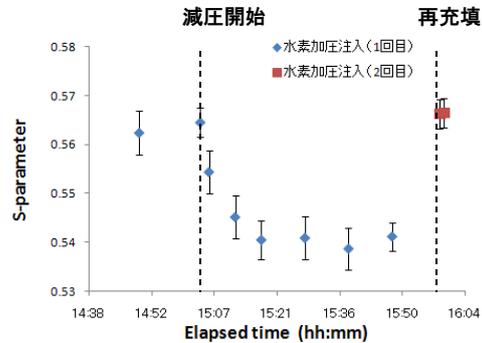


図4 水素吸蔵合金に水素を吸蔵させた場合のSパラメータの経時変化[9]。

## 2.2 核共鳴蛍光を用いた同位体非破壊検査技術

国際的なテロ活動への対応として、各国でホームランドセキュリティ関連の技術開発が行われている。特に、アメリカでは国外からの輸送機器を用いたテロ行為に対して特に強い警戒を示している。核燃料物質の拡散防止や通常の爆発物による爆破テロの阻止を目的として、コンテナやスーツケース等に隠匿されたウランやプルトニウムなどの核物質や、炭素、酸素、窒素などから構成される爆発物の組成をMeV光子ビームによって非破壊かつ遠隔で検査する研究を、産総研・原子力機構・京大が連携して行っている。

原子核は陽子と中性子の数により、固有の振動数(励起準位)を持つ。この振動数に一致したエネルギーの光子が原子核に吸収されると、ごく短時間の間に励起と緩和が生じ、蛍光ガンマ線が放出される。この現象は原子核共鳴蛍光(Nuclear Resonance Fluorescence, NRF)[10]と呼ばれ、その際に放出されるガンマ線をNRFガンマ線と呼ぶ。エネルギー数MeVのNRFガンマ線を用いると、厚さ数cmの鉄板を透過できるため、コンテナ内部に隠匿された物質の同位体比を遠隔・非破壊で調べることができる[11, 12]。

$^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ は核分裂性物質であり、核兵器の原材料となりうるため、その取り扱いと輸送が特に厳しく制限されている。安定同位体と核分裂性物質を、遠隔かつ非破壊で迅速に識別する技術は、核テロの防止や拡散防止にとって非常に重要である。

原子核の固有振動の幅は非常に狭いため、特定の準位を効率よく励起するには励起光子エネルギー幅が十分に狭いことが必要である。制動放射X線はエネルギーが広範囲にあり、NRFにそのまま適用することは簡単ではない。LCSは単色性、エネルギー可変性に加えて、放射線バックグラウンドが低く、中性子も原則的に発生しないため遮蔽が簡便で良いなどの利点があり、特定の準位を効率よく励起することに適している。更に、原子核準位の偏極特性をう

まく使うことによって測定精度を上げ、測定時間を短縮することができるためこのような検査に適している[13]。

産総研TERASのMeV光子ビーム発生装置を用いて、同位体イメージング実験を行った[14]。エネルギー570 MeVの電子ビームに対して、波長1064 nmのレーザーを照射し、5.7 MeV のLCS光子ビームを発生させた。光子ビームは直径3 mmにコリメートして測定室に導き、サンプルに照射した。サンプルは2 cm×2 cm×5 cmの鉛ブロックであり、これを5 cm×5 cm×5 cmの鉄箱に隠匿した。鉄箱の最大厚さは1.5 cmである。

試料から放出されたNRFガンマ線のエネルギースペクトルを高純度Ge（ゲルマニウム）半導体検出器（ORTEC GEM-120225-P）で測定したところ、<sup>208</sup>Pbから放出されたエネルギー5512 keV のNRFガンマ線が明確に観測された。光子ビーム照射位置に対するNRFガンマ線強度の関係を測定することによって、鉄ブロック中に隠蔽された鉛の位置と形状を知ることができた（図5）。

NRFは軽元素の同位体検知にも適用できる[15]。爆薬には炭素、窒素、酸素が用いられている。これらの元素比を測定することで爆薬の種類を同定できる。<sup>12</sup>C、<sup>14</sup>N、<sup>16</sup>Oにはそれぞれ5 MeVと7 MeV付近に励起レベルがいくつかあり、NRFガンマ線を用いて元素比が測定でき、これによって爆発物の同定が可能である。

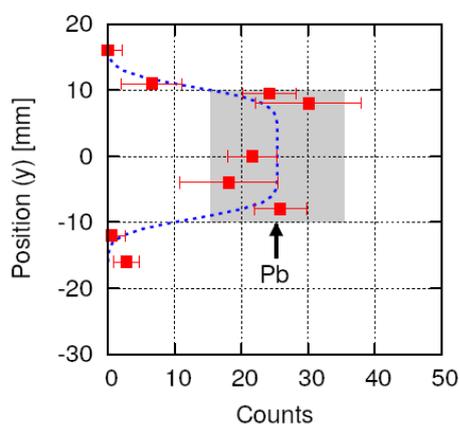


図5 鉛同位体 (Pb-208) 試料の空間分布 [14]。

そのために5 MeVと7 MeVの2波長のLCS光子ビームが必要であるため、それらの生成を行った。エネルギー640 MeVの電子ビームに波長1540 nmおよび1064 nmのレーザー光を同一軸上にマージして照射し、5 MeVと7 MeVの2波長LCS光子ビームを発生した例を示す[13] (図6)。今後、様々な波長のレーザーを組み合わせ、それを一つの電子ビームに照射することによって、利用目的に合わせたエネルギーと偏光特性を持つMeV光子ビームを同軸上に発生するシステムを実用化し、利用可能としていく予定である。

### 3. まとめ

産総研LCS光子ビーム施設の概要を紹介し、応用

研究として光子誘起陽電子消滅法と核共鳴蛍光を用いた同位体の非破壊検査技術を紹介し、それらの最新の成果について述べた。

MeV光子ビームの利用研究においては、特に原子核物理、天体核物理研究において優れた成果が多く生み出されており、日本が世界をリードしている。さらに、近年ではSPring-8、NewSUBARU [16]、SAGA-LS [17] などでもMeV光子ビーム生成に成功しており、今後、全国的に急ピッチでMeV光子ビームの応用技術研究を進めていくことになる。上記以外にも、現在建設中の電子加速器においてMeV光子ビーム生成を検討している施設もあり、全国的にMeV光子ビームの利用研究が進むことを希望する。

MeV光子ビーム利用施設がこれだけ普及しているのは日本だけであり、原子核物理や天体核物理を始め、放射線計測、加速器科学など国内の各分野の科学者たちが、これまで精力的に活動を続けてきた努力が形となってきたものである。様々な分野で、今後とも日本が当該分野でイニシアティブを保持し続けるために、各機関が有効に連携し、それぞれに特長のある利用研究を育てるとともに、国内科学技術と産業を活性化する努力を継続することが必要であると考えます。今後とも、関係各位の活動を皆で支援しあうと共に、協力して当該分野を大きく育てたいと考えます。

産総研のMeV光子ビーム装置は共同研究や技術研修などを通して外部の人も利用できる。利用に当たっては事前に内部の委員会等において審査を行うため、計測フロンティア研究部門（代表：029-861-5300）か、電子加速器関係者に事前に連絡をお願いする。

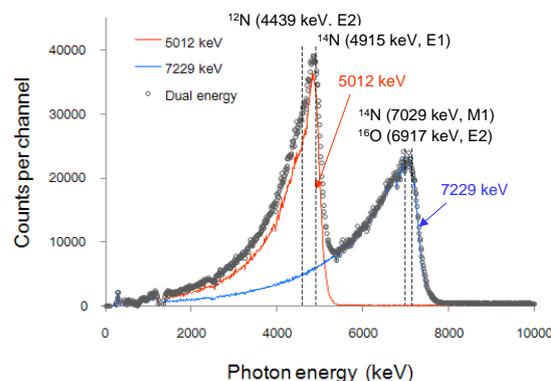


図6 2波長LCS光子ビームのエネルギースペクトル。<sup>14</sup>Nと<sup>16</sup>Oの励起レベルを同図に示す。

### 謝辞

本研究の一部は文部科学省、科学研究費補助金基盤B(22360297)、およびB(21360467)によって行われたものである。

## 参考文献

- [1] T. Tomimasu, T. Noguchi, S. Sugiyama, T. Yamazaki, T. Mikado, and M. Chiwaki, IEEE Trans. Nucl. Sci. 30 (1983) 3133.
- [2] H. Toyokawa et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (2008) 3571.
- [3] M. Tanaka, K. Yagi-Watanabe, F. Kaneko and K. Nakagawa, Journal of Synchrotron Radiation 16 (2009) 455.
- [4] R. Kuroda et al., Proc. Particle Accelerator Society Meeting 2009, pp. 785-787, Tokai, Japan 2009.
- [5] H. Toyokawa, Proc. 3rd International Workshop on Process Tomography (IWPT-3), Tokyo, Japan 2009.
- [6] H. Toyokawa, T. Mikado, K. Yamada and H. Ohgaki, Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 3358.
- [7] H. Toyokawa, T. Hirade, R. Kuroda, R. Suzuki, T. Ohdaira, Proc. of the Eighth International Topical Meeting on Nuclear Applications and Utilization of Accelerators (AccApp07), pp.331-335, 2007.
- [8] Y. Shirai, H. Araki, T. Mori, W. Nakamura and K. Sakaki, Journal of Alloys and Compounds vols. 330-332 (2002) 125.
- [9] 豊川弘之、第57回応用物理学関係連合講演会概要集、2009年3月17日。
- [10] F. R. Metzger, Phys. Rev. C 11 (1975) 2085.
- [11] W. Bertozzi, S. E. Korbly, R. J. Ledoux, W. Park, Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. B261 (2007) 331.
- [12] J. Pruet et al., J. Appl. Phys. 99 (2006) 123102.
- [13] H. Toyokawa et al., Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. A, (submitted).
- [14] N. Kikuzawa et al., Applied Physics Express 2 (2009) 036502.
- [15] T. Hayakawa et al., Rev. Sci. Instrum. 80 (2009) 045110.
- [16] S. Amano, S. Miyamoto, K. Horikawa, T. Mochizuki, Proc. Particle Accelerator Society Meeting 2009, pp. 149-151, Tokai, Japan 2009.
- [17] T. Kaneyasu, Y. Takabayashi, Y. Iwasaki, S. Koda, Proc. Particle Accelerator Society Meeting 2009, pp. 149-151, Tokai, Japan 2009.