博士論文

貴ガス中における陽電子および
ポジトロニウム減速過程の研究

佐野陽祐

平成２７年

目次

第 1 章　陽電子およびポジトロニウムの性質と研究目的 5

1.1　陽電子の性質 6

1.2　低速陽電子の応用 7

1.3　気体中での陽電子減速およびポジトロニウム生成 8

1.4　ポジトロニウムの性質と応用 11

1.5　ポジトロニウムの減速および衝突断面積と研究目的 15

第 2 章　陽電子消滅寿命測定法による Ar ガス中における陽電子減速過程の研究 19

2.1　陽電子消滅寿命測定法 22

2.2　Ar ガス中における自由陽電子消滅速度および熱化時間の密度依存性 27

2.3　陽電子減速材および Ar ガス密度の最適化 34

第 3 章　陽電子消滅時刻運動量同時測定（AMOC）測定装置 39

3.1　2 次元 MCA–AMOC 測定装置 42

3.2　間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドの見積もりと測定条件の決定 48

3.3　線源成分のドップラー広がり 52

3.4　2 次元 MCA-AMOC 測定におけるバックグラウンドの見積もり 53

3.5　デジタルオシロスコープ AMOC 測定装置 56

3.6　デジタルオシロスコープ AMOC 測定におけるバックグラウンド 63

3.7　Coincidence-Doppler 法による線源成分のドップラー広がり 65

第 4 章　AMOC 法による Ar ガス中における陽電子減速過程の研究 69

4.1　Ar ガス 7.5 MPa における *S*-parameter と *W*-parameter の時間変化 71

4.2　結果と考察 74

第 5 章　AMOC 法による貴ガス中における Ps 減速過程の研究 77

5.1　概要 78

5.2 2 次元 MCA–AMOC システムによる実験結果および解析 80
5.3 Ps–貴ガス運動量移行断面積についての考察 85
5.4 デジタルオシロスコープ AMOC システムによる実験結果および解析 92
5.5 Ps–Ar 運動量移行断面積のエネルギー依存性についての考察 95
5.6 電極付き耐圧セルの開発および電場計算 100
5.7 電場印加条件による陽電子寿命測定の実験方法 106
5.8 結果と考察 107

第 6 章 総括 113

謝辞 117

付録 A AMOC 測定で得られた実験データ 119

付録 B 電場計算に用いた入力パラメータ 121

参考文献 125

第１章

陽電子およびポジトロニウムの性質と研究目的

1.1　陽電子の性質

陽電子（positron : e^+）は，電子の反粒子である．質量 (511 keV) や電荷の絶対値は電子と同じで，電荷の符号は電子と反対である．陽電子は，1928 年に P. Dirac が量子論にアインシュタインの相対性理論を取り入れた方程式 (Dirac 方程式) を整理する中で，その方程式の負の解として予言された [1, 2]．実験的には 1932 年に，C. D. Anderson が宇宙線の軌跡を Wilson cloud chamber で観測することで陽電子を発見した [3]．宇宙線由来以外で陽電子を入手する方法は主に

- 対生成反応
- β^+ 壊変

の 2 種類存在する．対生成反応とは，陽電子と電子の質量エネルギーの和である 1022 keV 以上のエネルギーを持った光子（γ 線）が原子核の近傍を通るとき，原子核からの光子と相互作用することで電子と陽電子を同時に生成する反応である．対生成反応に必要な γ 線は，電子線による制動放射線を源とする場合が多い．対生成反応由来の陽電子を利用する場合は，β^+ 壊変由来の陽電子に比べ高輝度の単色陽電子ビームを得られるメリットを有する反面，加速器を含む大規模施設が必要となる．一方，β^+ 壊変では，陽子過剰核種が陽電子と電子ニュートリノ（ν_e）を放出する過程を通じて陽電子が得られる．

$$p \longrightarrow e^+ + n + \nu_e$$

代表的な核種は，^{22}Na（半減期 : 2.6 年），^{68}Ga（半減期 : 68 分）等があげられる．β^+ 壊変で放出された陽電子は，最大数百 keV のエネルギー程度の広い分布を持つ．対生成反応由来の陽電子と異なり，加速器のような大規模装置を必要とせず，実験室レベルの場所でも陽電子が得られることが最大の特徴である．

1.2　低速陽電子の応用

正の電荷を持つ陽電子は，金属中では 10 ps 以下の短い時間スケールで速やかに熱化し，正の電荷を持つ陽イオンから遠い位置，つまり格子欠陥等に局在化する．局在化した陽電子は周囲の電子状態を反映し一定の消滅速度で消滅する（自由陽電子消滅速度:λ_f）．消滅速度を陽電子寿命測定法（Positron annihilation lifetime : PAL）で測定することで，金属欠陥サイズの測定が行われてきた．消滅時に放出される γ 線は，消滅直前の電子–陽電子の重心系の運動エネルギーを反映してドップラー広がりを生ずる．このドップラー広がりを，1 つまたは 180 度方向に配置した 2 つの検出器で検出することにより（陽電子消滅 γ 線角相関測定，Angular correlation of positron annihilation radiation : ACAR） [4–6]，金属におけるフェルミエネルギーや陽電子と消滅する電子の原子中の軌道を知ることができる [7, 8]．このように陽電子の物質内部で対消滅をし、その物質内部の情報を透過力の高い γ 線として外部に放出する性質を持つ．この性質から，陽電子は物性を非破壊で測定できるほぼ唯一の手法であり，1950 年代から物性の研究へ応用されている [9].

1990 年代に入ると，低速陽電子ビームの制作されるなど [10–14]，陽電子ビームを使った研究が盛んに行われるようになった．例えば，低速陽電子と原子分子の散乱断面積 [15] の測定や，反水素原子合成 [16] や Ps^- イオン源 [17]，全反射高速陽電子回折（Total-reflection high-energy positron diffraction，TRHEPD）による物質の再表面原子層の回折像の観測や対消滅を利用した材料表面からの原子選択的脱離への応用 [18] などがあげられる．低速陽電子を使った研究が幅広い分野で行われより一層低速陽電子の需要が高まりつつある [19].

低エネルギー陽電子は主に，金属などの減速材の利用やガス中での減速で得ることができる．Cu，Ni，W などの金属は陽電子に対して負の仕事関数を示す．対生成反応や β^+ 壊変で得られた高いエネルギーの陽電子をこれら金属中に入射させると，陽電子は金属中で室温までエネルギーを失い熱化する．金属中で熱化した陽電子のうち，金属表面付近の陽電子は負の仕事関数で決まる 3 eV 程度の運動エネルギーを持って金属外に放出される [20]．固体 Ne などの貴ガス固体中では陽電子の拡散長が長く，減速材として用いられることもある [21–23].

ガス中で陽電子は，ガス分子と散乱することでエネルギーを失う．多段階の電位勾配を設けたセル中で Ar や N_2 などのガスと散乱させることで低速陽電子を生成できる．陽電子は高エネルギーでは，電子励起や振動励起に比べて消滅断面積が小さい [24]．しかしながら，陽電子はエネルギーが低下するにつれて消滅断面積が大きくなり，数 ns の時間をかけて陽電子が熱化する過程において一部の陽電子が消滅する．低速陽電子を効率的に生成させるためには，低速陽電子と原子分子の衝突断面積を正確に測定することが重要である [25–27]. 低速陽電子と原子分子の散乱断面積には，共鳴構造 [28, 29] やラムザウワータウンゼント効果のような特徴的な量子力学的効果が現れる [30]．量子力学的散乱問題の解明につながるため，低速陽電子と原子分子の散乱について現在でも多くの散乱断面積や消滅断面積の理論計算や精密測定が行われている [31–47].

1.3　気体中での陽電子減速およびポジトロニウム生成

陽電子の物質中での減速過程の研究は，PAL を用いて 1950 年代から始まった．密度の高い固体などの物質中では，10 ps 以下の時間で熱化するが，貴ガスのような単原子分子中では陽電子の熱化時間が長くなる．Ar ガス中で測定された陽電子寿命スペクトルを図 1.1 に示す．（a）は Ar ガス 3.5 MPa 中における陽電子寿命スペクトル，（b）は CO_2 ガス 3.5 MPa 中における陽電子寿命スペクトルである．β^+ 壊変由来の 100 keV オーダーのエネルギーを持つ陽電子が貴ガス中に入射すると，陽電子は原子のイオン化反応や電子励起反応等を繰り返しながら減速する．Ar ガスの場合は単原子分子気体であるため，最低電子励起しきい値の 11.7 eV までは非弾性散乱により速やかにエネルギーを失う．その後は弾性散乱によりエネルギーを失うため，陽電子がガス中で室温までエネルギーを失う時間（熱化時間）が数 ns–数百 ns 程度まで長くなることが知られている [23, 48, 49]．時間の経過と共に陽電子が減速する様子が寿命スペクトル中のショルダー構造として観測される．図 1.1 においては，2–10 ns 付近のプラトーな領域がショルダー構造である．このショルダー構造は，陽電子の減速過程に対応して時々刻々と陽電子消滅速度が変化している領域である．このショルダー構造の傾きの変化から陽電子の減速過程や消滅速度について議論されてきた [50, 51].

ガス中では陽電子の減速過程において，ポジトロニウム（Positronium : Ps）が生成する．ガス中での Ps 生成は，陽電子による原子の電子引き抜き反応により生じる．

$$e^+ + A \longrightarrow Ps + A^+$$

生成した Ps の運動エネルギー（E_{Ps}）は陽電子の運動エネルギーに依存する．

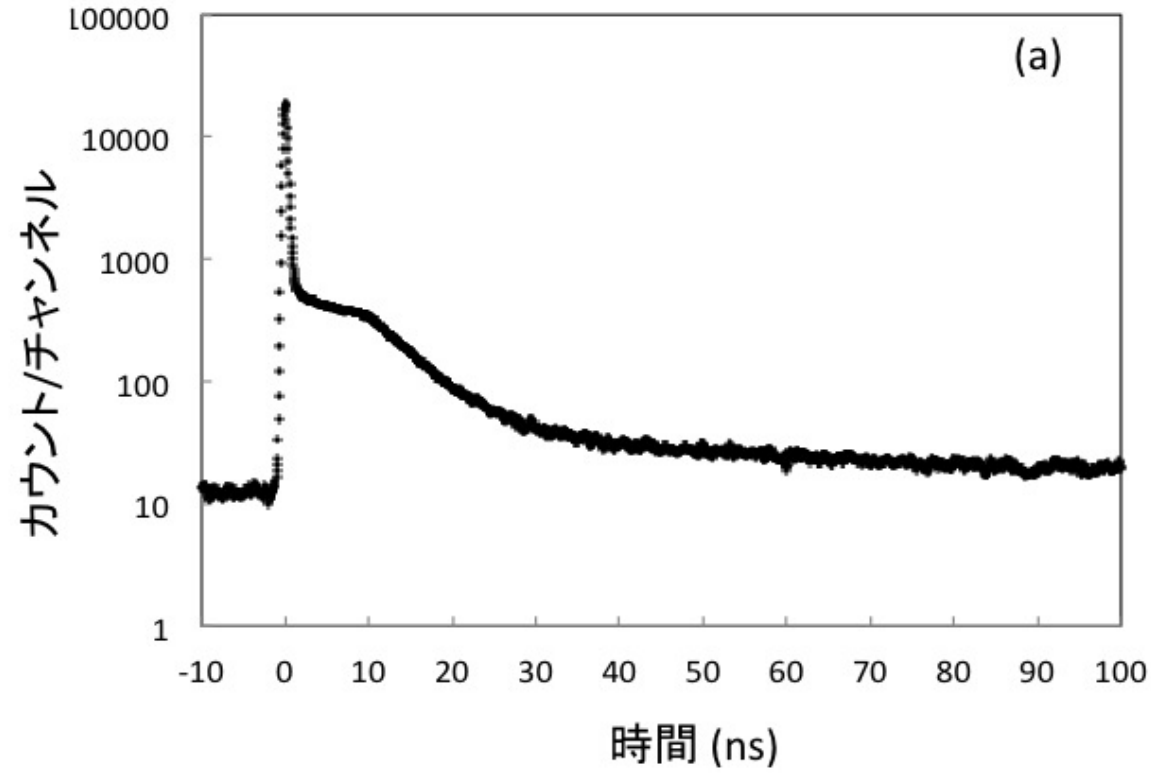
$$E_{Ps} = E_{e+} + 6.8 - E_{ion}$$

ここで，E_{e+} は陽電子の運動エネルギー，E_{Ps} は Ps の運動エネルギー，E_{ion} は原子のイオン化エネルギー，6.8 eV は Ps の束縛エネルギーである．Ar 原子のイオン化エネルギーは 15.8 eV であり，Ar ガス中での Ps 生成しきい値は 9.0 eV である．Ps 生成しきい値から電子励起しきい値までのエネルギー範囲では，非弾性散乱チャンネルは Ps 生成のみである．そのため，このエネルギー領域でとりわけ Ps 生成が生じやすいと考えられ，オーレギャップと呼ばれている．ガス中における Ps 生成はオーレモデルで記述される．貴ガス中における Ps 生成率や励起 Ps 生成について議論されてきた [52–57].

一方で，固体や液体などの密度の高い物質中では，別のメカニズムで Ps を生成する．陽電子が物質に入射すると，イオン化や励起を繰り返し減速していく．このイオン化や励起が生じる小さな領域はスパー（spur）と呼ばれている．1000 eV 程度のエネルギーに達すると LET (Linear energy transfer) が急に大きくなり，イオン化領域が重なり合う．末端スパーは多くのイオン化が含まれた構造となり，末端スパー内の過剰電子の一つと陽電子が結合して Ps を生成するモデルをスパーモデルと呼んでいる．このように Ps 生成メカニズムは 2 つのモデルが提案されており，Ps の生成時間および Ps 生成時の初期運動エネルギーといった，基礎過程に興味が

持たれている [58–62]．低温高密度ガス液体や固体中においても陽電子の周りに原子が集まってくる陽電子スノーや，陽電子減速過程や消滅速度，Ps 生成過程について議論が続いている [63–66]．

また，シリカエアロゲル中では Ps の固体に対する仕事関数の為に，Ps は細孔内に局在する．シリカエアロゲル中や他の物質中における Ps の生成量や Ps バブル，消滅速度等，Ps の物質内での振る舞いを明らかにするために盛んに研究が行われている [67–72]．また金属表面から Ps 負イオンの生成も観測されている [73]．



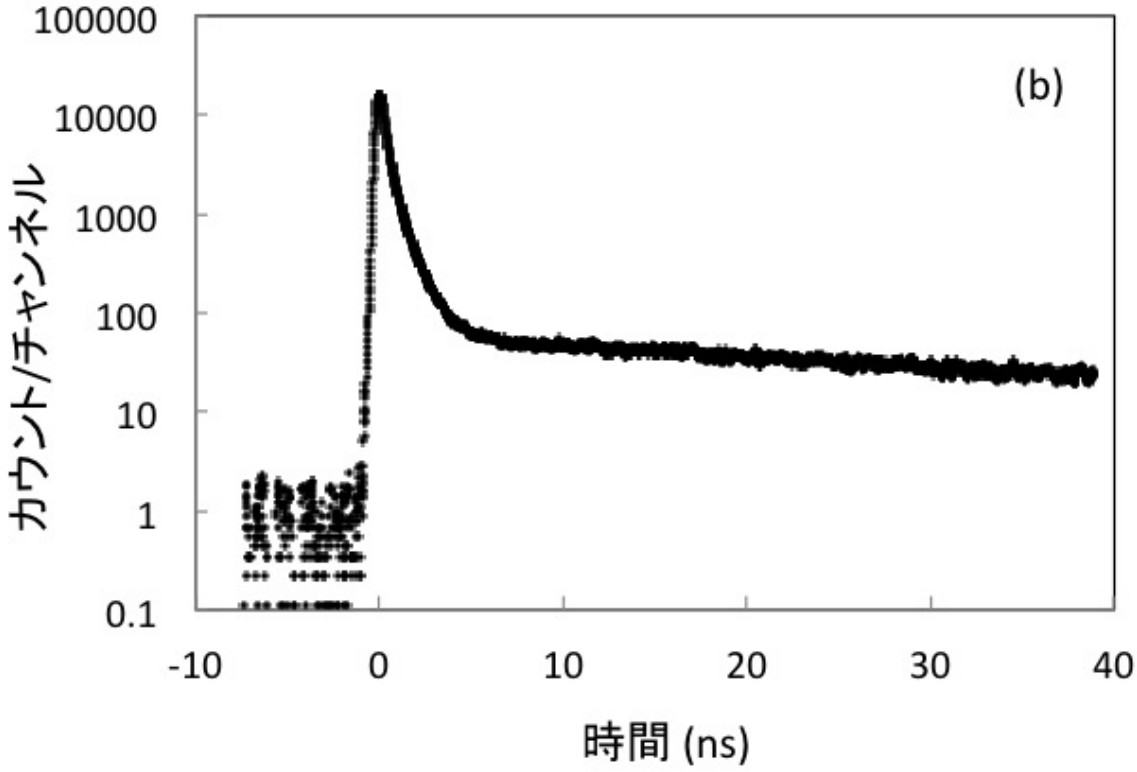


図 1.1　（a）Ar ガス 3.5 MPa 中における陽電子寿命スペクトル．（b）CO_2 ガス 3.5 MPa 中における陽電子寿命スペクトル．縦軸は MCA1 ch あたりのカウント数で，横軸は時間（ns）．Ar ガス中には 0–10 ns 付近にショルダー構造が見えるが，CO_2 ガス中では見えない．

1.4　ポジトロニウムの性質と応用

Ps は陽電子と電子が電磁相互作用により束縛した水素様原子であり，水素原子の陽子を陽電子に置き換えた構造を持つ（図 1.2）．これは Mohorovičić により，1934 年に予言された [74]．Ps の性質を水素と比較すると次の 3 つの特徴がある．

1. 水素原子の重心は原子核，Ps の重心は陽電子と電子の中間で，Ps の陽電子–電子間距離と水素原子の直径が等しい
2. Ps のイオン化エネルギーは水素原子の半分 (6.8 eV)
3. Ps を構成する電子と陽電子で自己消滅をする

基底状態の Ps は電子と陽電子のスピンの組み合わせにより，スピン 1 重項のパラ-Ps（*p*-Ps）とスピン 3 重項のオルソ-Ps（*o*-Ps）の 2 つの状態に分類される（図 1.3）．*p*-Ps と *o*-Ps は 1:3 の比で生成し，真空中ではそれぞれ 0.125 ns と 142 ns の寿命で自己消滅する．消滅時には，エネルギー，運動量，パリティ，角運動量を保存して消滅 γ 線を放出する．通常，*p*-Ps は 180 度方向に 2 光子，*o*-Ps は 3 光子放出して消滅する．

物質中では，長寿命の *o*-Ps は物質中で周りの原子と反応を起こして短寿命化することが知られている (*p*-Ps は寿命が短く，物質中でもほぼ自己消滅により消滅する)．*o*-Ps の物質中での短寿命化は以下の 3 種類の反応によって生じる．

1. 化学反応
   - 置換 · 引き抜き反応

     例 : $\mathrm{Ps + Cl_2 \longrightarrow PsCl + Cl}$
   - 付加反応

     例 : $\mathrm{Ps + NO_2 \longrightarrow PsNO_2}$
   - 酸化反応

     例 : $\mathrm{Ps + Fe^{3+} \longrightarrow e^{+} + Fe^{2+}}$
2. スピン転換反応

   例 : $o\text{-Ps}(\Uparrow\uparrow) + \mathrm{NO_2}(\downarrow) \longrightarrow p\text{-Ps}(\Uparrow\downarrow) + \mathrm{NO_2}(\uparrow)$
3. ピックオフ消滅

   例 : $\mathrm{Ps + Ar \longrightarrow e^{-} + Ar^{+} + 2\gamma}$

ここで，$\Uparrow$ は陽電子のスピン，$\uparrow$ は電子のスピンを意味する．

スピン転換反応とは，Ps が他の原子分子と衝突する際に，Ps 自身の電子と衝突相手の電子のスピンを交換する反応である．この反応は，スピンを交換する際に電子を励起する必要がない原子分子，すなわちスピン状

態が，２重項もしくは３重項以上の多重項状態にある原子分子と衝突する際に生じやすい．スピン転換反応により，*o*-Ps が *p*-Ps になることで短寿命化する [75].

ピックオフ消滅とは *o*-Ps が自己消滅する前に Ps 内の陽電子が Ps 内の電子と自己消滅する前に，周囲の電子と消滅する過程である．この消滅過程は，*o*-Ps の自己消滅過程と異なり 2 光子を放出する．Ps は室温まで減速する（熱化）と一定の寿命で消滅し，主に２本の γ 線を放出する．この寿命は物質の種類や性質により変化する．また磁場存在下では，*o*-Ps と *p*-Ps の状態が混ざり，*o*-Ps は短寿命化，*p*-Ps は長寿命化する [76, 77].

Ps は電気的に中性である．高分子などのソフトマター中では，空隙のような電子密度の小さなナノメートルサイズの領域に局在化し，空隙表層の電子とピックオフ消滅することにより短寿命化し，Ps の周りの電子密度に依存した寿命で消滅する．*o*-Ps の消滅速度を PAL で測定し，Tao-Eldrup の式からソフトマターの空隙サイズがわかる [78]．また，ピックオフ消滅 γ 線のドップラー広がりからは，空隙表層の電子状態が分かる．物質中の空隙は物質の力学的特性，静電物性，光学物性，熱物性，物質移動物性などに影響を及ぼす因子である [79]．このように Ps は空孔サイズや空孔表面の電子状態測定に応用されており [80, 81]，他の分析手法と相補的にソフトマターの物性の測定に使われている [82–85].

物性分野で応用研究される一方で，Ps は基礎物理分野でも重要な役割を果たしている．Ps はレプトンのみから成る最も軽い水素様原子であり，原子物理学の分野では，量子電磁気学（QED）精密検証において電子の *g* 因子の値を精密測定する手法として，他の測定方法に対する相補的役割を担っている．また，Ps による Bose-Einstein 凝縮（BEC）の達成も期待されている [86]．電子と陽電子からなる Bose 粒子である Ps による BEC の達成は，反粒子を含む系として初めて BEC を実現することの基礎物理学的な興味の他，対消滅を利用した 511 keV のコヒーレントレーザーへの応用でも意義深い．また，近年は欧州原子核研究機構（CERN）において，反水素の合成が行われている．反水素は，陽子の反粒子である反陽子と陽電子から成る系である．反水素合成の反応として，Ps と反陽子の衝突による組み替え過程が期待されている．この反応は反跳が小さく，低速 $\bar{\mathrm{H}}$ を用いた実験を行う際に優位な低速 $\bar{\mathrm{H}}$ を得ることができる [87].

$$\bar{\mathrm{p}} + \mathrm{Ps} \longrightarrow \bar{\mathrm{H}} + \mathrm{e}^{-}$$

これらの達成には数 eV 以下のエネルギーの低速 Ps が必要で，近年益々低速 Ps の需要が高まりつつある．

ロンドン大学の Larricia らのグループと東京理科大学の長嶋らのグループが Ps ビームを生成している．Larricia らのグループは，wien filter にてエネルギー選別した β^{+} 崩壊由来の陽電子を，Ar などのガス中に入射させ，電子引き抜き反応により 10 eV 程度の運動エネルギーを持つ Ps を生成させている [88]．一方で長嶋らのグループは，陽電子を金属 Na を表面に蒸着させた W 膜に打ち込み，負の仕事関数により表面からで出てきた Ps^{-} イオンを電場で加速し光解離化過程を経て [89]，数 keV 程度の運動エネルギーを持つエネルギー可変 Ps ビームの制作に成功している [90, 91].

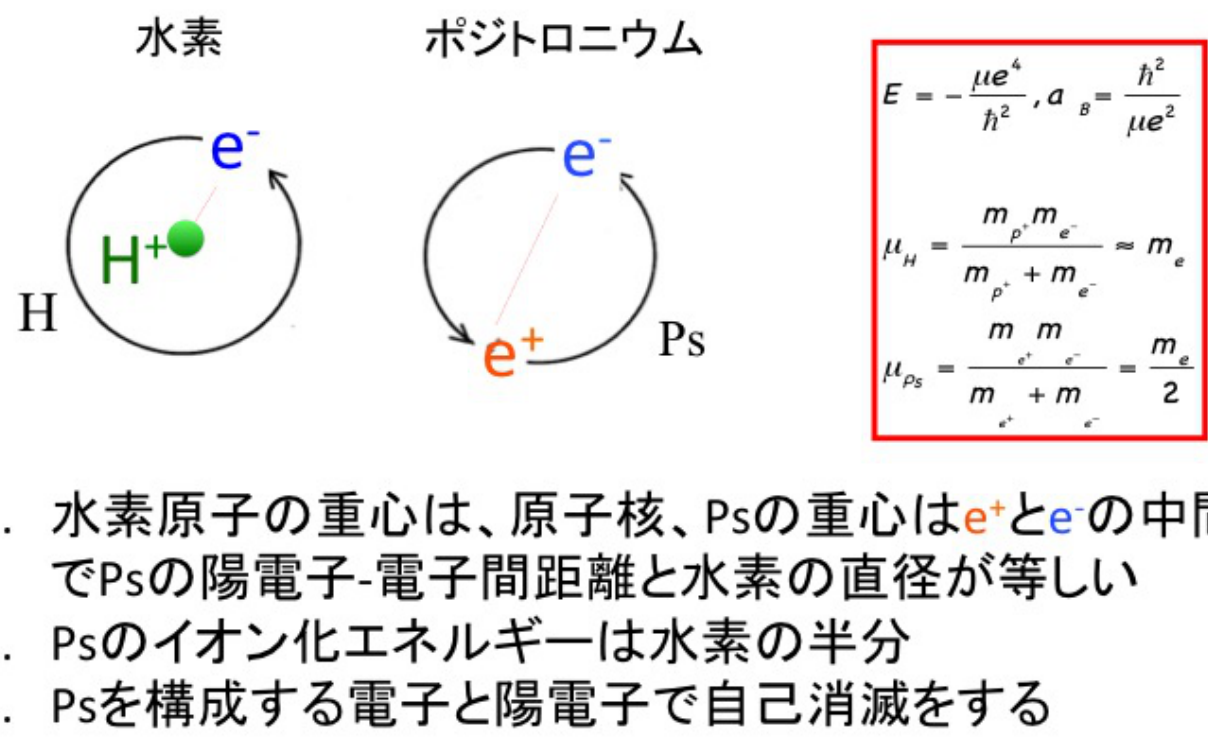


図 1.2　水素原子と Ps の比較．図枠内は，水素と Ps の束縛エネルギーおよびボーア半径，換算質量を示した．

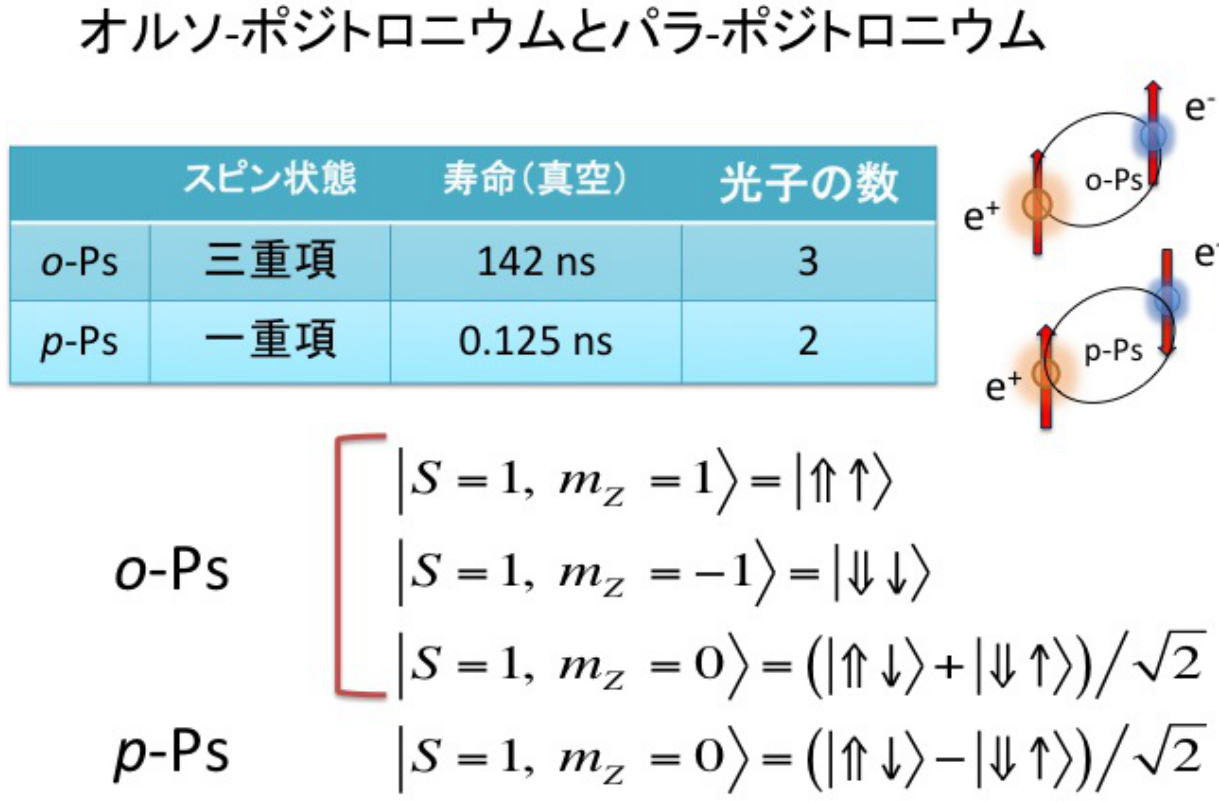


図 1.3　Ps の 2 つのスピン状態．陽電子と電子のスピンの状態により，Ps はオルソ–ポジトロニウムとパラ–ポジトロニウムに区分される．S は全スピン，m_z はスピン磁気量子数，⇑は陽電子のスピン，↑は電子のスピンを意味する．

1.5　ポジトロニウムの減速および衝突断面積と研究目的

Ps は基礎物理定数測定，原子分子と Ps のピックオフ消滅 γ 線を利用した原子分子の反応性を検討するために重要なツールであるが，それらの達成のためには 10 eV 以下の低速 Ps が必要である．*o*-Ps は最大 142 ns の寿命で消滅するため，その寿命以内に効率よく Ps を減速する必要がある．低速 Ps を得るためには生成時の Ps の初期運動エネルギーおよび Ps と原子の衝突断面積を知ることが重要である．

Ps の初期運動エネルギーは，Ps 生成直前の陽電子の運動エネルギーに依存する．図 1.4 に Ar ガス中での Ps 生成断面積の陽電子運動エネルギー依存性を示した [92]．貴ガス中における Ps 生成は，陽電子における電子引き抜き反応で生じるため，イオン化エネルギーと同程度のエネルギーで Ps を生成する．Ar ガスの場合は 9-100 eV で，Ps 生成断面積から予想される Ps の初期運動エネルギーは 100 eV 以下であるが，実際には Ps の Break-up 過程が存在するために，Ps 自身の束縛エネルギー以下 (6.8 eV) の運動エネルギーを持った Ps のみがガス中で減速する．

$$\mathrm{Ps} \longrightarrow \mathrm{e}^{+} + \mathrm{e}^{-}$$

Ps の Break-up 過程とは，6.8 eV 以上の運動エネルギーを持つ Ps が原子分子と散乱する際に陽電子と電子に解離する現象である [93]．比較的密度の高いガス中では，生成直後の Ps は自己消滅よりも短い時間で周囲の原子分子と散乱し解離する．結果的に，比較的密度の高いガス中では Ps の初期運動エネルギーは 6.8 eV 以下となる．また，固体やガス中で Ps の初期運動エネルギーの測定が試みられてきたが [94]，Ps 生成直後では陽電子が耐圧セルなどの実験装置中で消滅する成分や自由陽電子消滅成分などのバックグラウンドと重なるため，正確には測定されていなかった [95].

Ps と原子分子の衝突断面積の測定は，大きく分けて 2 つの手法がある．

1. Ps ビームを用いた気体中での Ps の散乱実験
2. *o*-Ps 消滅 γ 線のドップラー広がり測定

Ps ビームは，ロンドン大学の Larricia らのグループにより行われてきた [96–98]．Ps 生成用セル内でガスと散乱させることにより生成した低速 Ps ビームを，後方の Ps–ガス散乱セルに導入する．ガスが存在する場合とガスが存在しない場合の Ps 減衰割合の差から，15 eV 以上のエネルギー領域で Ps の衝突断面積を求めた．

o-Ps 消滅 γ 線のドップラー広がり測定は，長嶋らのグループ [99] と M. Skalsey らのグループ [95] により行われてきた．Ps と Ar の衝突断面積の先行研究を図 1.5 に示した．長嶋らのグループは，シリカエアロゲルの空隙中で生成した Ps とガスを磁場中で散乱させ，磁場クエンチングにより 2 光子消滅した *o*-Ps のドップラー広がりから衝突断面積を測定した．M. Skalsey らのグループは，短寿命の *p*-Ps や自由陽電子消滅が終わり，長寿命の *o*-Ps 消滅のみが観測される時間領域における 2 光子消滅 γ 線のドップラー広がりから 2 eV 以下のエネルギー領域で Ps–Ar の運動量移行断面積を測定した．それぞれの測定では，実験で観測された時間においては

Ps の運動エネルギーを一定と仮定しているため，Ps–Ar の衝突断面積におけるエネルギー依存性は議論されてこなかった．また，Ar を含む貴ガスにおいては陽電子消滅 γ 線角相関（ACAR）測定により運動量移行断面積が見積もられている [100, 101]．Xe ガスにおいては *o*-Ps と Xe ガスのスピン転換反応由来の 2 光子消滅 γ 線の時間変化を陽電子消滅時刻運動量同時（AMOC）測定で観測し，運動量移行断面積が求められている [102]．また，磁場下における希薄な He ガスにおいて AMOC 測定により *o*-Ps 由来の γ 線から運動量移行断面積が求められている [103, 104]．しかしながら，Ps–貴ガスの運動量移行断面積が貴ガスの種類によりどの程度異なるのか，また，そのエネルギー依存性について詳しくはわかっていない現状にあった．

原子の持つ原子内の価電子のエネルギーと等しいような 10 eV 以下の低エネルギー領域においては，入射粒子の種類やエネルギーにより大きく断面積が変化する．陽電子と原子分子の散乱においては，原子核との斥力の効果を分極の引力の効果がキャンセルするために，電子の散乱断面積に比べ小さい．また，Ps は弱い結合と弱い拡散性質を示すため，陽電子の散乱に比べ電子の散乱に近くなると予想されている [105–112]．より低エネルギーにおいて，Ps–原子散乱断面積は電子–原子の散乱断面積と近い値になるのか議論がなされており，より低エネルギー領域における Ps–原子分子の散乱断面積の測定が求められている [113]．

Ps–原子分子散乱は理論的にも非常に難しく，量子力学的な散乱問題として興味をもたれている．Ps は軽いため量子効果が大きく現れ，さらに電子や陽電子と異なり内部自由度をもつ．中性粒子である Ps は，散乱時において直接的な電荷相互作用が存在しない．電荷相互作用が電子交換相互作用に比べて小さいため，電子–原子分子散乱と比較することで散乱時における電子交換の影響が解明される．しかしながら，Ps と原子分子散乱時における電荷交換は，Ps と原子分子の異なる 2 つの中心間で計算する必要がある．Ps–原子衝突の理論手法のさらなる進歩が期待されている．

Ps–Ar 散乱に対しての理論計算は，主に P.K. Biswas [114] と J.E. Blackwood [115] の 2 グループにより行われている．彼らは，Ps と貴ガスが弾性散乱のみで減速するエネルギー領域において，それぞれ three-Ps-state coupled-channel model と coupled pseudostate expansions を使った frozen target approximation で計算している．Ps のエネルギーが増加するにつれ，衝突断面積が減少する傾向は一致しているものの，計算途中に実験値に合わせるような fitting parameter を含んでいることや，理論計算値間でも運動量移行断面積が 2 倍以上の差があるなどの問題点もある．

本研究は，貴ガス中で陽電子の減速過程および Ps の生成とその減速過程に着目した．*p*-Ps は自己消滅で 2 光子を放出するため，その消滅 γ 線のドップラー広がりからは，消滅直前の *p*-Ps の運動量がわかる．*p*-Ps の消滅 γ 線のドップラー広がりを時間の関数として観測することで，Ps のエネルギー変化がわかる．Ps のエネルギー変化と Ps 減速モデルにより，Ps–貴ガスの衝突断面積を求めることを目的とした．Ps の初期運動エネルギーや運動量移行断面積を明らかにすることで，量子力学的散乱問題が明らかになり，さらに低速 Ps を使った新たな研究分野が開ける [116]．

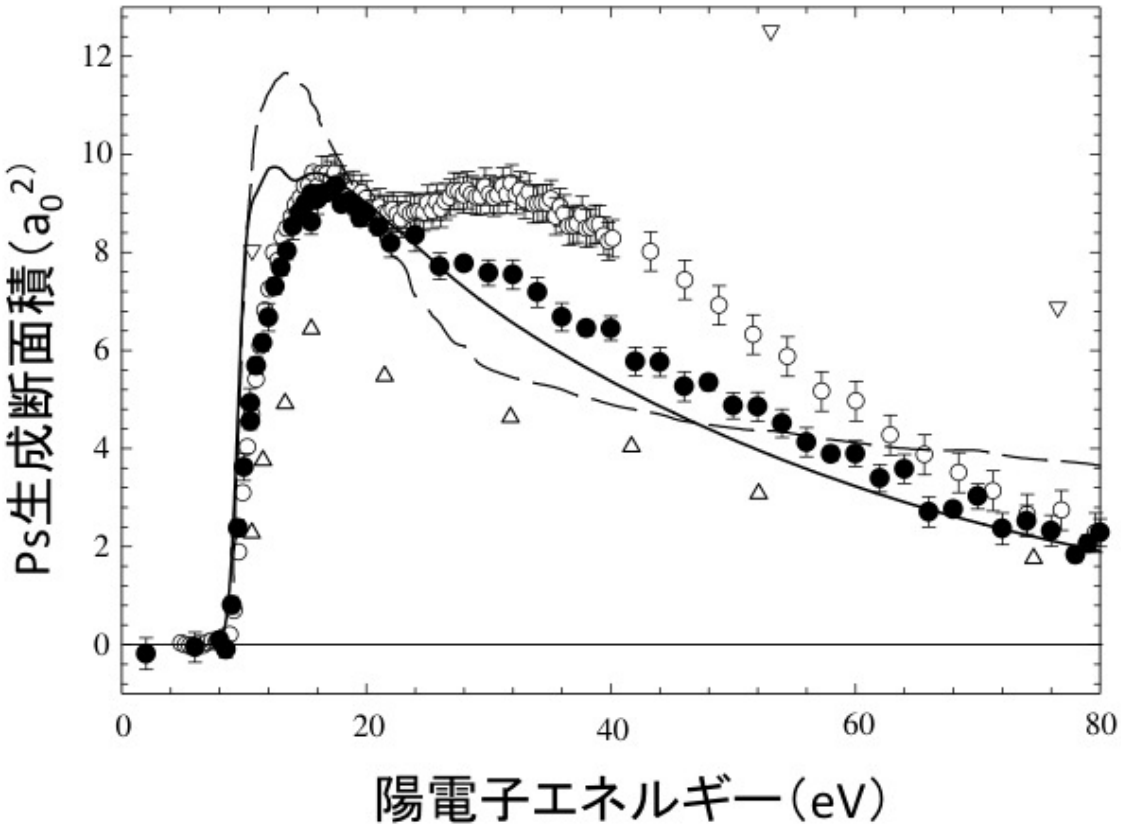


図 1.4　陽電子–Ar の Ps 生成断面積の陽電子運動エネルギー依存性．（●）実験結果 [92];（◯）実験結果 [42];(△，▽) 実験結果により求められた，上限値と下限値 [117];（– –）理論計算 [118];（—-）McAlinden らによる，理論計算の更新データ（0.5 倍にスケーリングされている）．（Reprinted from Experimental studies of the interaction of low energy positrons with atoms and molecules, 221, J.P. Marler and L.D. Barnes and S.J. Gilbert and J.P. Sullivan and J.A. Young and C.M. Surko, Annihilation below Ps formation, Pages No. 86, Copyright (2004), with permission from Elsevier.）

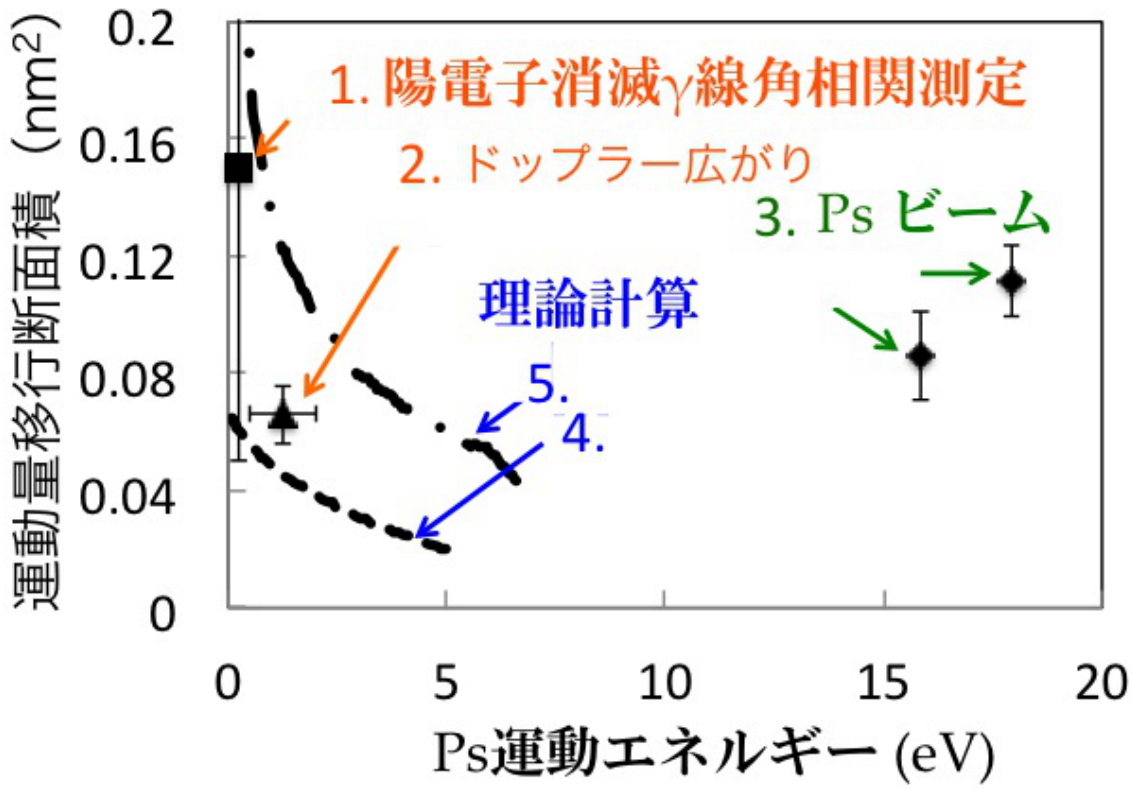


図 1.5　Ps-Ar の衝突断面積の Ps 運動エネルギー依存性．1. 陽電子消滅 γ 線角相関測定法 [99]，2. ドップラー広がり法 [95]，3.Ps ビーム [97]（全断面積），4. 理論計算 [114]，５. 理論計算 [115]

第 2 章

陽電子消滅寿命測定法による Ar ガス中における陽電子減速過程の研究

陽電子消滅寿命（PAL）測定法とは，陽電子が物質中に入射してから対消滅するまでの時間を測定する方法である．PAL は近年ではパルス化した陽電子ビームを陽電子線源として使う手法も存在するが，過去に行われてきた多くの実験では ^{22}Na を陽電子線源として利用している（図 2.1）．^{22}Na は β^+ 壊変する際に，半減期 3.63 ps で 1275 keV の γ 線を放出する．この γ 線を検出することで，陽電子が放出された時刻を知ることができる．一方で，陽電子の対消滅 γ 線を検出することで，陽電子が消滅した時刻を知ることができる．これらの時間差から陽電子や Ps の寿命を測定する手法である．

Ar ガス中における陽電子寿命スペクトルには，単一の指数関数で表すことができない陽電子の減速を反映したショルダー構造が存在している．Falk らは，ガスに電場を印加することにより陽電子を加速させることで，ショルダー構造が小さくなる様子を観測した [119]．陽電子の消滅速度は，陽電子の熱化直前に急激に大きくなる [92, 120]．また，陽電子を電場により加速させることで，陽電子の消滅速度が十分に大きくならず，ショルダー構造が消える [121]．Ar ガス中でのショルダー構造は，熱化直前の陽電子の減速過程を反映しており，ショルダー構造の終点が陽電子の熱化時間に対応する [49]．

このように，Ar ガス中では陽電子消滅速度が陽電子の運動エネルギーに依存する性質を利用して，Ar ガス中における陽電子熱化過程を自由陽電子消滅速度（λ_f）の変化から研究されてきたが，陽電子が Ar ガスに入射した直後（1 ns 以内）の減速過程は観測されていなかった．線源から放出された陽電子は，線源を封じる際に使用した薄箔を通過し，ガス中に入射する．ガス中に入射した後はガスとの散乱過程を通じて減速し，Ps 生成や対消滅により陽電子は減衰する．この時間領域では，Ps 生成や Ar ガス中以外での消滅成分（ガスを封じるのに用いる耐圧セル中で陽電子が消滅する成分や陽電子線源を封じるために用いた材料の成分）等の影響を受けるため，自由陽電子消滅速度の変化を議論するのが難しい．結果として，陽電子消滅速度の変化から陽電子のエネルギー変化を観測することができなかった．早い時間における Ps 由来の対消滅 γ 線の寿命やドップラー広がりを解析するためには，Ar ガス中で消滅する陽電子のエネルギーおよび強度を求めること，また耐圧セル中で消滅した陽電子の強度を求めその成分を除くことが重要である．

本研究では，まず Ar ガスの密度を変化させて陽電子寿命測定を行い，陽電子寿命スペクトルにおける自由陽電子消滅速度の陽電子消滅時間に対する変化から陽電子の熱化時間および陽電子消滅速度の数密度依存性を求め，多体効果の影響が生じない上限を見積もることを目的とした．次に陽電子線源の周りに金属の減速材を置き，Ar ガス中で陽電子消滅寿命測定を行った．Ar ガス中における自由陽電子消滅成分の割合や o_{PS} 成分の割合の金属の減速材の厚みに対する変化から，Ar ガス中における陽電子減速過程を観測し，Ar ガス中における陽電子の最大飛程を求め，陽電子を Ar ガス中で吸収できる下限の数密度を見積もることを目的とした．

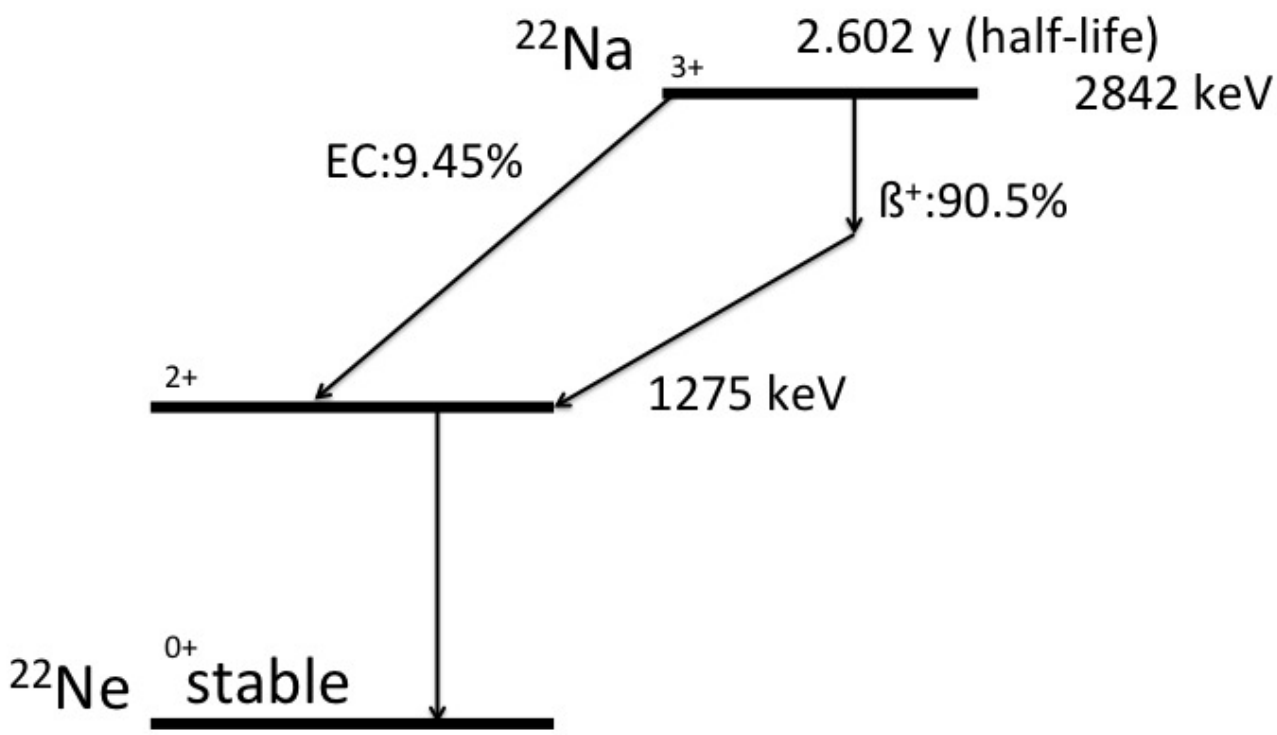


図 2.1　^{22}Na の壊変図式．^{22}Na は半減期 2.602 年で壊変し，90.5 % が陽電子を放出する．また，陽電子の放出とほぼ同時に，1275 keV の γ 線を放出する．

2.1　陽電子消滅寿命測定法

■ 陽電子寿命測定装置

陽電子寿命測定法とは，陽電子が物質中に入射した時刻と陽電子が物質中で消滅した時間差を測定する手法である．陽電子線源である ^{22}Na は β^+ 壊変する際に，それとほぼ同時に 1275 keV のエネルギーの γ 線を放出する．これを陽電子が物質中に入射した時刻として検出する．物質中で陽電子が消滅した時刻は，陽電子が消滅する際に放出する 511 keV のエネルギーを持つ γ 線を検出することで測定する．1275 keV の γ 線と 511 keV の γ 線の時間差から陽電子の消滅時間がわかる．

1275 keV の γ 線および対消滅 γ 線はプラスティックシンチレータ（直径 4 cm, 高さ 3 cm，応用光研）で検出した．シンチレータ内に入射した γ 線は，シンチレータ内の分子を励起し，脱励起の際に蛍光を放出する．この蛍光を光電子増倍管 (photomultiplier, PM : H1949-50，H7195, 浜松フォトニクス) の光電面で電子に変換し，約 −1800 V の電圧を多段階に印加して電子増幅した．増幅された電子パルスは，Constant Fraction Discriminator（CFD : 583, ORTEC 社）にて波高弁別することで，511 keV の陽電子対消滅 γ 線と 1275 keV の γ 線を弁別した（図 2.2）．1275 keV の START シグナルを弁別する際には，CFD の window のエネルギーレンジを 1.5–4.3 V とした．511 keV の STOP シグナルを弁別する際には，CFD の window のエネルギーレンジを 0.8–1.2 V とした．CFD によりエネルギー弁別したパルスのうち，STOP シグナルは DELAY モジュールを通して，START シグナルは直接 Time-to-amplitude-converter（TAC : 566, ORTEC 社）に通じ，時間差に比例した波高を得た．TAC からのアウトプットシグナルを Multi channel analyzer（MCA : MCA600, Labo:社）で波高を弁別することで陽電子寿命スペクトルを得た．MCA には 4096 のチャンネルが存在する．1 チャンネルあたりの時間幅は，Time-caliblator（462，ORTEC 社）で求めた．TAC 全体の時間幅が 100 ns の際には，1 チャンネルあたり 0.0245 ns であった．PAL 測定法の実験装置を図 2.3 に示した．

■ 耐圧セルとガスの充填

ガスを封じるための耐圧セルは内径 2.85 cm，高さ 8.5 cm の円筒形とした．セル上部の蓋と本体の間には，silicone ゴムでできた O-ring を用いた．実験に使用した Ar ガスは，G1 grade(>99.9999 %) のものを（株）田沼酸素から購入した．Ar 以外のガスの純度はそれぞれ，$CO_2 < 0.1$, $O_2 < 0.1$, $H_2 < 0.1$, $CO < 0.1$, $N_2 < 0.3$ (ppm) である．測定用のガスを耐圧セルに充填する前に，リボンヒーターで 200 ℃ に加熱しながらダイアフラムポンプで減圧し不純ガスを取り除いた．その後，ガスを 5 回交換してから室温 (20 ℃) で実験を行った．ガス圧力の制御は，セル後方に pressure transducer(SCF-Bpg, JASCO) を用いて行った．ガス圧からガスの数密度への変換には，低圧から臨界点付近までよい一致を示すペンロビンソン状態方程式を用いた．ペンロビンソン状態方程式を以下に示す．

$$P = \frac{RT}{V-b} - \frac{a\alpha}{V(V+b)+b(V-b)} \tag{2.1}$$

ここで,

$$\alpha = \left[1 + S\left\{1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^{0.5}\right\}\right]^2 \tag{2.2}$$

$$S = 0.37464 + 1.5422\omega - 0.26992\omega^2 \tag{2.3}$$

$$a = 0.45724\frac{R^2T_c^2}{P_c} \tag{2.4}$$

$$b = 0.07780\frac{RT_c}{P_c} \tag{2.5}$$

である．R は気体定数，ω は acentric factor と呼ばれており Ar の場合は −0.002 である．P_c は臨界圧力，T_c は臨界温度，b は分子サイズに由来するパラメータで，a は分子間力よって決まるパラメータである．

■ 線源の作製および陽電子減速材

最大容量 20 µl のマイクロピペットを使い，^{22}NaClaq を 1 µl ずつ分注することで 0.4 MBq の線量になるように，厚み 20 µm の Kapton 箔に滴下した．作製した線源を 0.16 ns の陽電子寿命を持つ厚み 2 mm の Al 板ではさみ陽電子消滅寿命測定を行った．PATFIT プログラム [122] により二成分解析を行い，カプトン中での陽電子の寿命（0.37 ns）およびそれに対応する消滅割合 (14 %) を求めた．装置の時間分解能は FWHM（Full width at half maximum）で 320 ps であった．

陽電子の減速材として，Ni（厚み：5–20 µm）, Cu（10–50 µm）, Ta（12–60 µm）, Al（10–300 µm）, Au（5 µm）の金属箔を用いて実験を行った（図 2.4）.

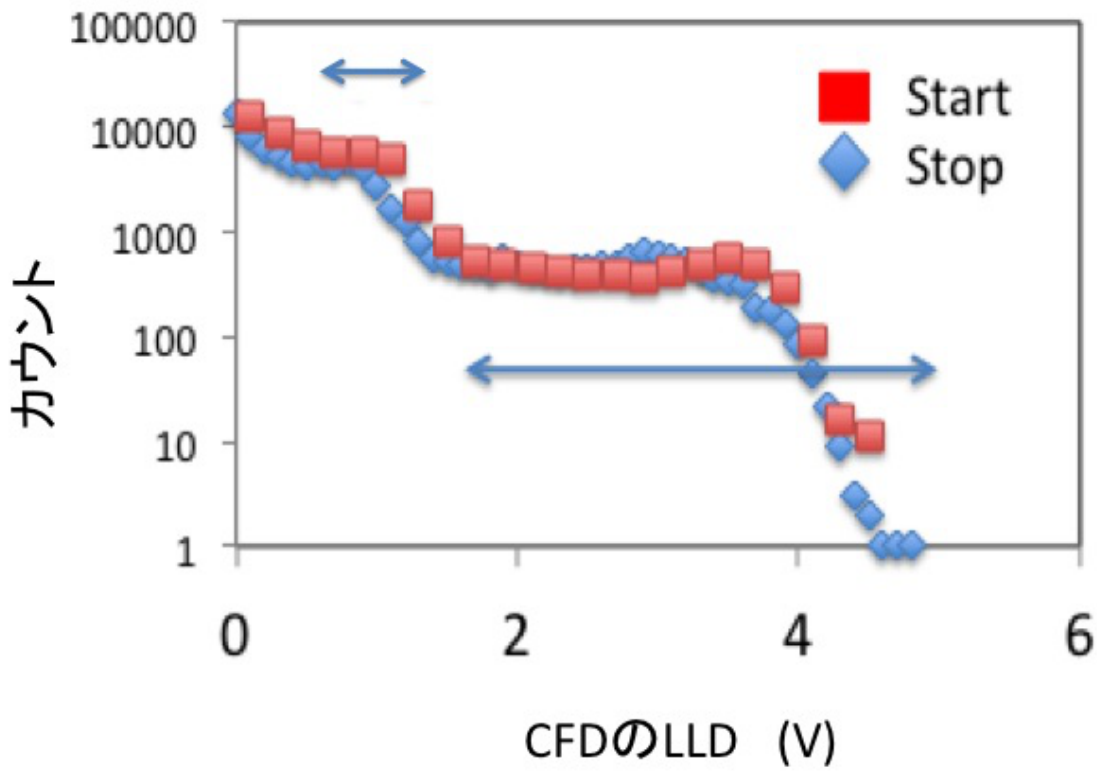


図 2.2　CFD の LLD（Lower level Discriminator）に対する γ 線のカウント数．ウインドウ幅は 0.1 V で測定した．縦軸は γ 線のカウント，横軸は，CFD の LLD（Lower level Discriminator）である．1.5 V 付近に 511 keV の γ 線由来のビークおよび，4.0 V 付近に 1275 keV の γ 線由来のビークが観測されている．図内両矢印は実際に測定時に開いた CFD の window の幅に対応する．

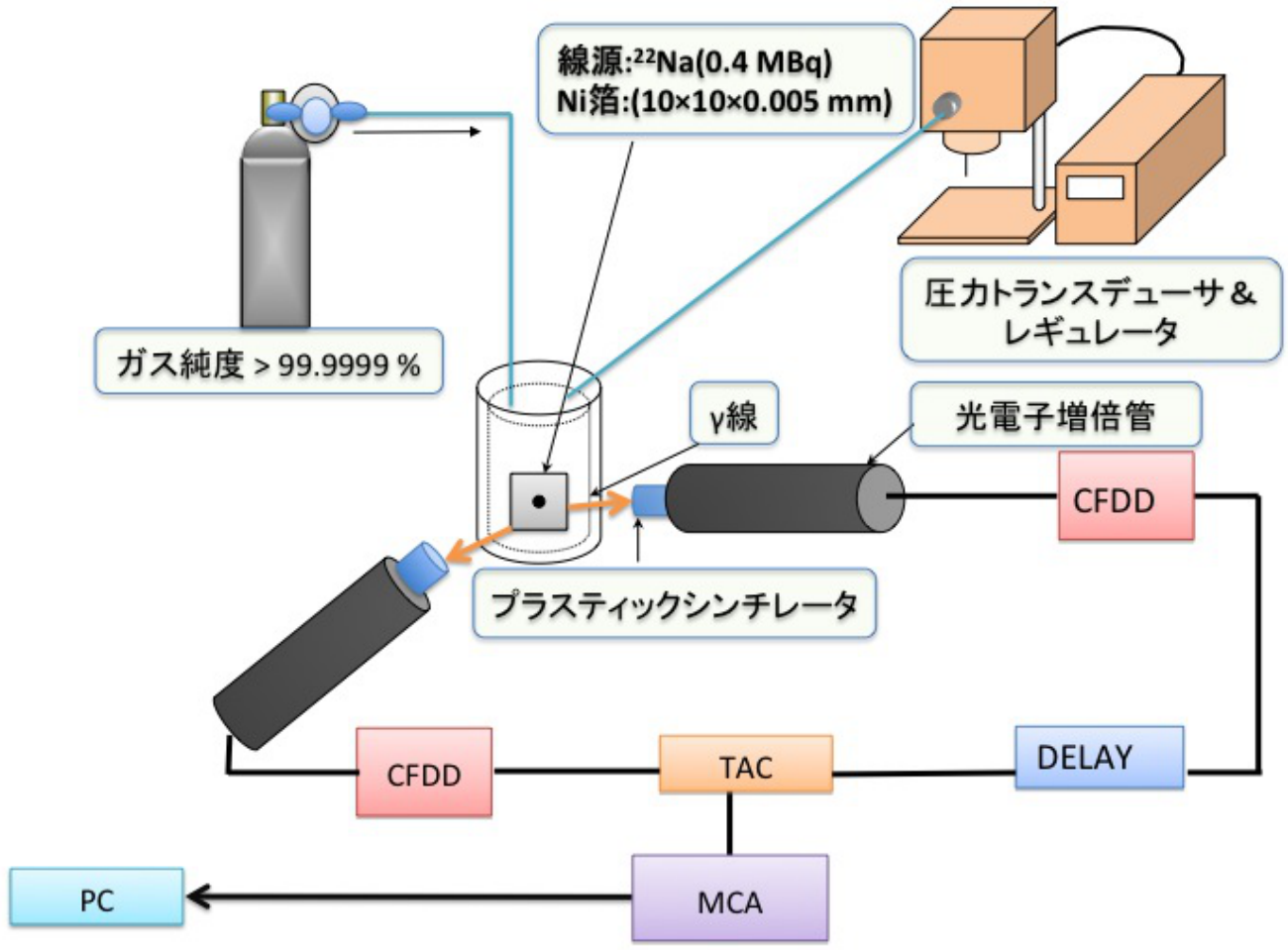


図 2.3　PAL 測定法の実験装置図

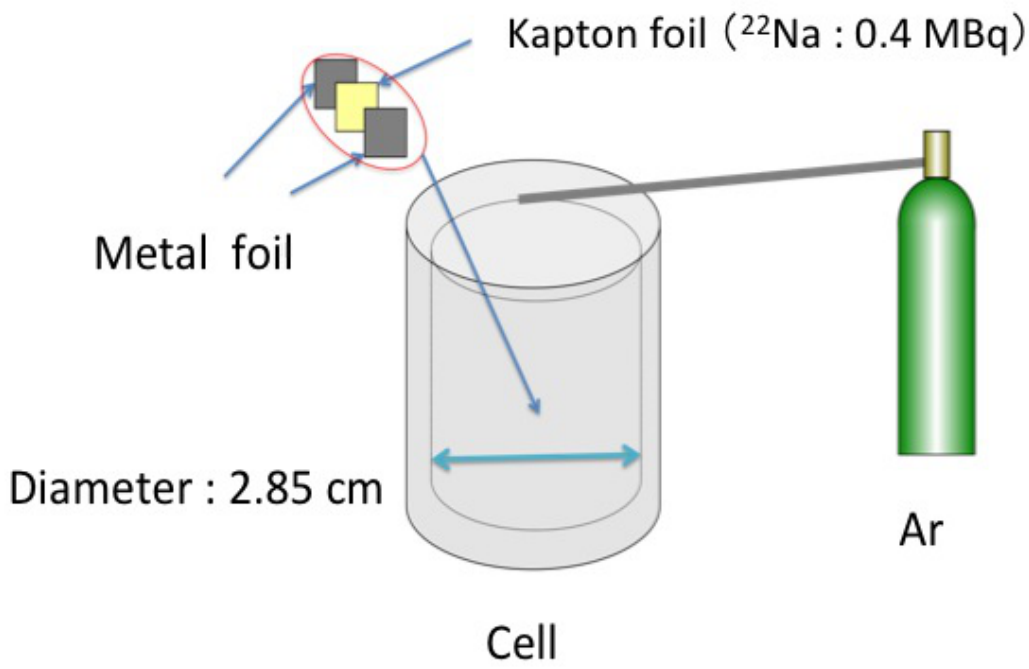


図 2.4　陽電子線源の構造と，ガスを封じるセルの構造模式図．^{22}Na をカプトン箔に封じ，陽電子線源とした．陽電子線源をアルミニウムなどの金属箔で挟み陽電子消滅寿命測定を行った．

2.2　Ar ガス中における自由陽電子消滅速度および熱化時間の密度依存性

図 2.5 に Ar ガス 7.5 MPa 中で測定した陽電子寿命スペクトルを示す．挿入図にショルダー構造を拡大して示した．陽電子寿命スペクトルには，消滅速度の違い（陽電子寿命スペクトルにおける傾きの違い）により p-Ps と線源成分の第一成分（$N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{p}}(t)$），ガス中での陽電子の自由消滅に起因する第二成分（$N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{f}}(t)$），長寿命の o-Ps 成分（$N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{o}}(t)$），バックグラウンド成分（$B$）が存在する．陽電子寿命スペクトルの各チャンネル（i）ごとのカウント数は関数として以下の式でかける．

$$G_{\mathrm{i}}(t) = N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{p}}(t) + N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{f}}(t) + N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{o}}(t) + B \tag{2.6}$$

自由陽電子消滅速度（λ_{f}）は，寿命スペクトルから o-Ps 成分を除きいた後，寿命スペクトルの傾きから求めることができる．

$$S_{\mathrm{i}}(t) = G_{\mathrm{i}}(t) - N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{o}}(t) - B = N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{p}}(t) + N_{\mathrm{i}}^{f}(t) \tag{2.7}$$

ここで S_{i} は，p-Ps とガス中での陽電子の自由消滅に起因する第二成分（$N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{p}}(t)$）の和である．

$$\lambda_{\mathrm{f}} = \frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{f}}(t)/\,\mathrm{d}t}{N_{\mathrm{i}}^{\mathrm{f}}(t)} = \frac{S(t)}{\int_{\mathrm{t}}^{\infty} S(t')\,\mathrm{d}t'} \tag{2.8}$$

陽電子が原子分子と散乱時に消滅する際，２体衝突の範囲では λ_{f} は陽電子の消滅断面積（σ_{a}），電子密度（n_{e^-}），陽電子速度（v_{e^+}）に比例する．

$$\lambda_{\mathrm{f}} = n_{e^-} v_{\mathrm{e}^+} \sigma_{\mathrm{a}} \tag{2.9}$$

ここで，σ_{a} は Dirac によって，古典電子半径（$r_0 = e^2/4\pi\epsilon_0 m_e c^2$，（$m_e$ は電子の質量） [123]，光速（c），陽電子の静止質量（m_0）を用いて以下の式で表されている．

$$\sigma_{\mathrm{a}} = \pi r_0^2 \frac{1}{\gamma+1}\left[\frac{\gamma^2+4\gamma+1}{\gamma-1}\log\left(\gamma+\sqrt{\gamma^2-1}\right) - \frac{\gamma+3}{\sqrt{\gamma^2-1}}\right] \tag{2.10}$$

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} = \frac{E}{m_0 c^2} \tag{2.11}$$

$$\beta = \frac{v_{\mathrm{e}^+}}{c} \tag{2.12}$$

本研究では，10 eV 以下の低エネルギーで陽電子の消滅速度を議論するので，

$$v_{\mathrm{e}^+} \ll c \tag{2.13}$$

と近似できる．σ_{a} は，

$$\sigma_{\mathrm{a}} \approx \frac{\pi r_0^2 c}{v_{\mathrm{e}^+}} \tag{2.14}$$

であるため，λ_{f} は，

$$\lambda_{\mathrm{f}} = \pi r_0^2 c n_{\mathrm{e}^-} \tag{2.15}$$

となる．

原子中の n_{e^-} は，原子 (Ar を例とする) の原子番号（Z）と原子の電子密度（n_{Ar}）の積（$n_{\mathrm{e}^-} = n_{\mathrm{Ar}} Z$）で表すことができる．そのため，陽電子–原子系において陽電子や電子の波動関数の歪曲成分が存在しない場合は，

$$\lambda_{\mathrm{f}} = n_{\mathrm{Ar}} Z \pi r_0^2 \tag{2.16}$$

となる．一般的に，陽電子は原子中の電荷分布に影響をあたえ，さらに陽電子が内殻電子と消滅する確率は外殻電子との消滅確率に比べ小さいなど，陽電子自身周辺の実効的な電子密度を変化させる．定数 Z を陽電子に対する有効電子密度（Z_{eff}）に置き換えて議論を進めた．

$$\lambda_{\mathrm{f}} = n_{\mathrm{Ar}} Z_{\mathrm{eff}} \pi r_0^2 \tag{2.17}$$

陽電子寿命スペクトルから，Z_{eff} は以下の式で求まる．

$$Z_{\mathrm{eff}} = \frac{S(t)}{n_{Ar} Z_{\mathrm{eff}} \pi r_0^2 c \int_t^\infty S(t')\,\mathrm{d}t'} \tag{2.18}$$

Z_{eff} を使って，100 K 程度の低温中や高密度 Ar 中において消滅速度の変化が議論されてきた [124–126]．Ar ガス中で測定した陽電子寿命スペクトルを図 2.5，λ_{f} および Z_{eff} の時間変化を図 2.6 に示す．Ar ガス 3.5 MPa, 室温中で測定した陽電子寿命スペクトルから求めた，λ_{f} および Z_{eff} の時間変化．図内点線の領域（2–10 ns）が陽電子の減速に対応している．10 ns 以降は，熱化後の陽電子の消滅に対応している．陽電子熱化時間としては，$Z_{\mathrm{eff}}(\tau)$ を定義した．

$$Z_{\mathrm{eff}}(\tau) \stackrel{\mathrm{def}}{=} {}^{c}Z_{\mathrm{eff}} - 0.1\Delta Z_{\mathrm{eff}} \tag{2.19}$$

$$\Delta Z_{\mathrm{eff}} \stackrel{\mathrm{def}}{=} {}^{c}Z_{\mathrm{eff}} - {}_{\mathrm{min}}Z_{\mathrm{eff}} \tag{2.20}$$

ここで，${}_{\mathrm{min}}Z_{\mathrm{eff}}$ は Z_{eff} の最小値，${}^{c}Z_{\mathrm{eff}}$ は熱化後 Z_{eff} が一定となった後の値である．${}_{\mathrm{min}}Z_{\mathrm{eff}}$ は Ar の数密度の変化に対して一定であったが，${}^{c}Z_{\mathrm{eff}}$ は Ar の数密度が増加するにつれ小さな値を示した．Ar ガスの数密度に対する λ_{f} の値を先行研究（実験値: Tao [49]，実験値: Griffith [127]）と合わせて，図 2.7 に示した．本研究では，先行研究の値とよい一致を示した．消滅速度はおよそ 2 nm^{-3} から，Ar の数密度に対して線形に増加しなくなっ

た．これは密度が高くなり Ar の数密度に比例して，Ar 原子が陽電子周辺に集まることができなくなったためと考えられる．多体効果の影響が生じ，消滅時に陽電子と相互作用をする Ar の持つ電子の数が小さくなるために，Z_{eff} が小さくなることがわかった．

一方で，図 2.8 に Ar ガス中における陽電子熱化時間の値を数密度の関数として先行研究 [49] と合わせてプロットした．縦軸は，ΔZ_{eff} を用いて求めた，時間の逆数の次元をもつ量（1/（ショルダーの長さ））である．直線は Tao が自身の実験から求めた，Ar の数密度に対する陽電子熱化時間を見積もった結果である．先行研究では 2 nm^{-3} 以下の数密度での測定にとどまっており，陽電子熱化時間は，単純に Ar の数密度に反比例すると考えられてきた．本研究で陽電子熱化時間においても，2 nm^{-3} 以上の数密度で線形性からのずれが生じ，2 nm^{-3} 以上では多体効果の影響が生じることがわかった．多体効果の影響が現れない Ar ガスの数密度の上限値を見積もった．

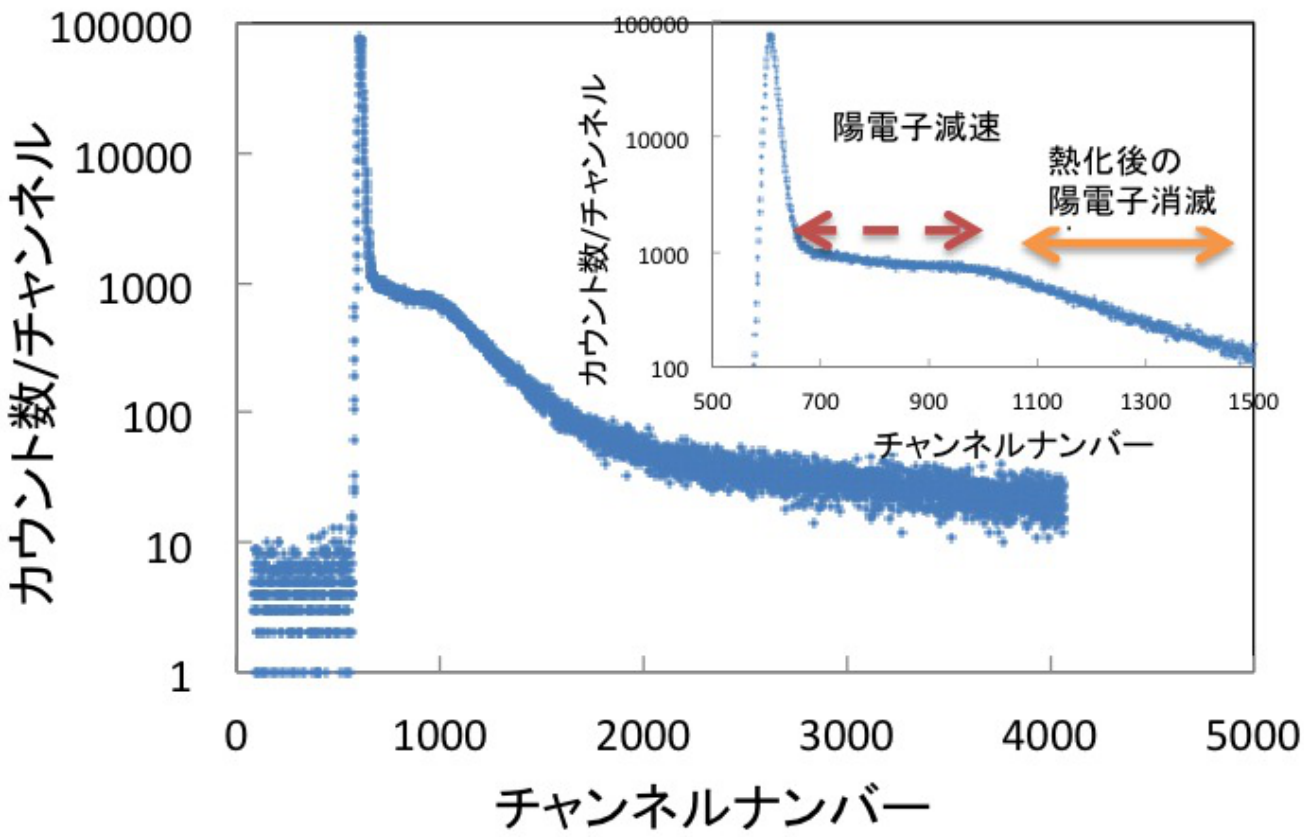


図 2.5　Ar ガス 3.5 MPa，室温中で測定した陽電子寿命スペクトル．ショルダー部分を拡大して測定したため，スペクトル後方ではバックグラウンドレベルまで落ちていない．挿入図にショルダー構造を拡大して示した．

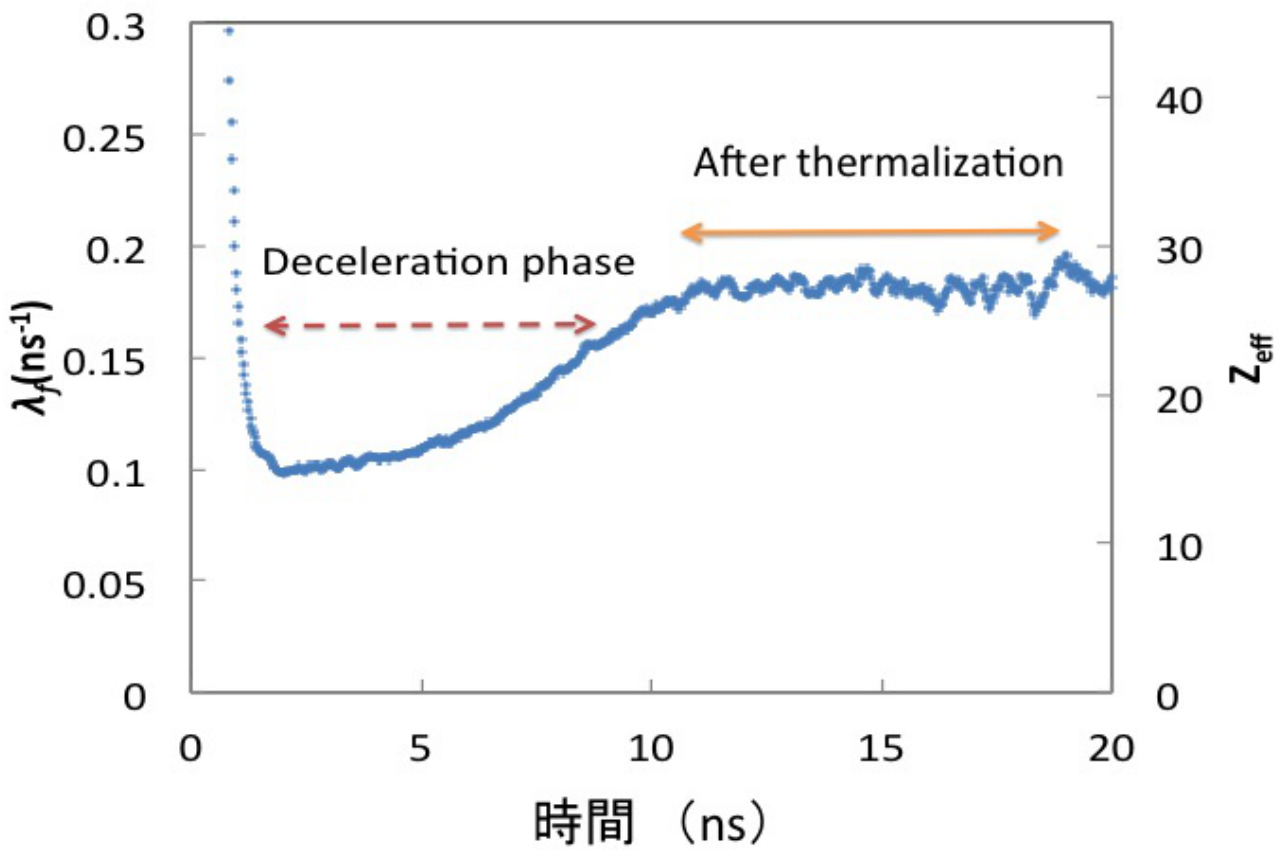


図 2.6　Ar ガス 3.5 MPa，室温中で測定した陽電子寿命スペクトルから求めた，λ_f および Z_{eff} の時間変化．図内点線の領域（2–10 ns）が陽電子の減速に対応している．10 ns 以降は，熱化後の陽電子の消滅に対応している．

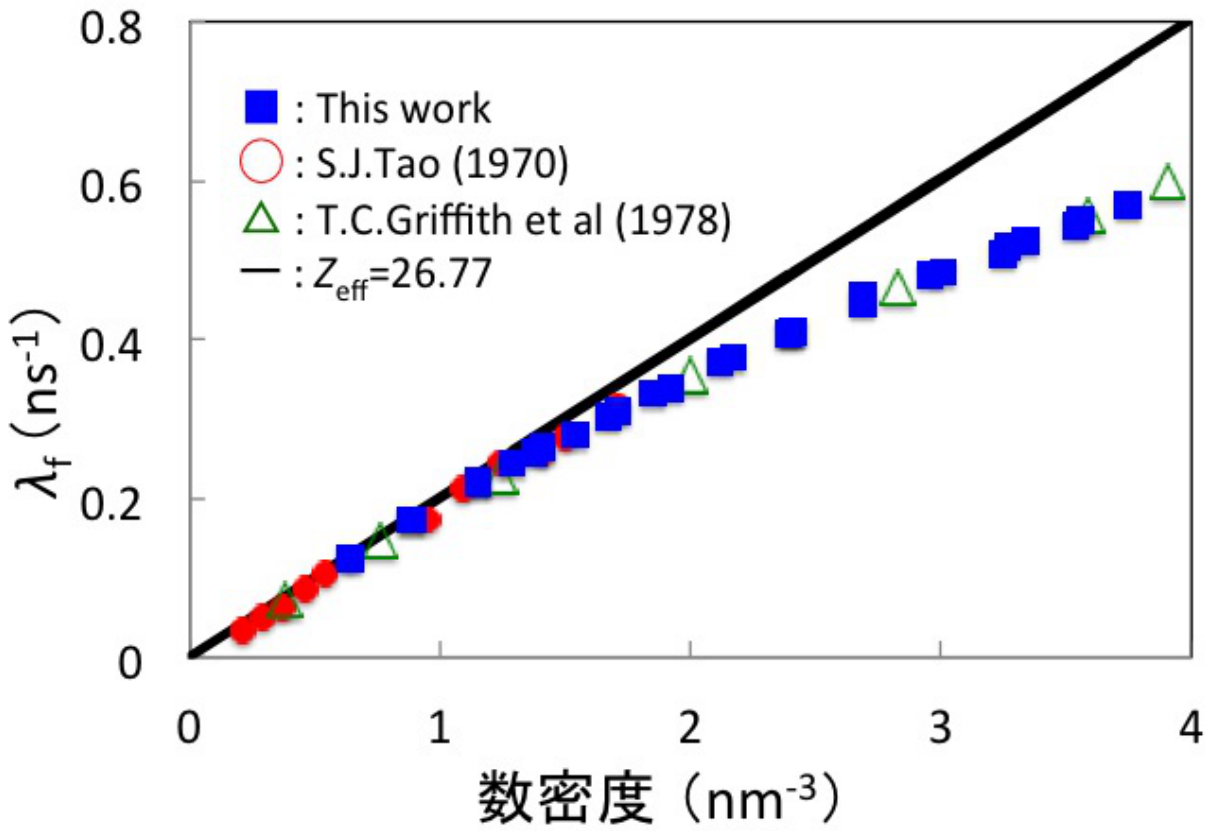


図 2.7　Ar ガスの数密度に対する消滅速度 λ_f の依存性．実験値: Tao [49]，実験値: Griffith [127]．実線は低密度 Ar ガスと陽電子の消滅速度を傾きとした場合に高密度側での消滅速度を予測した値である [49].

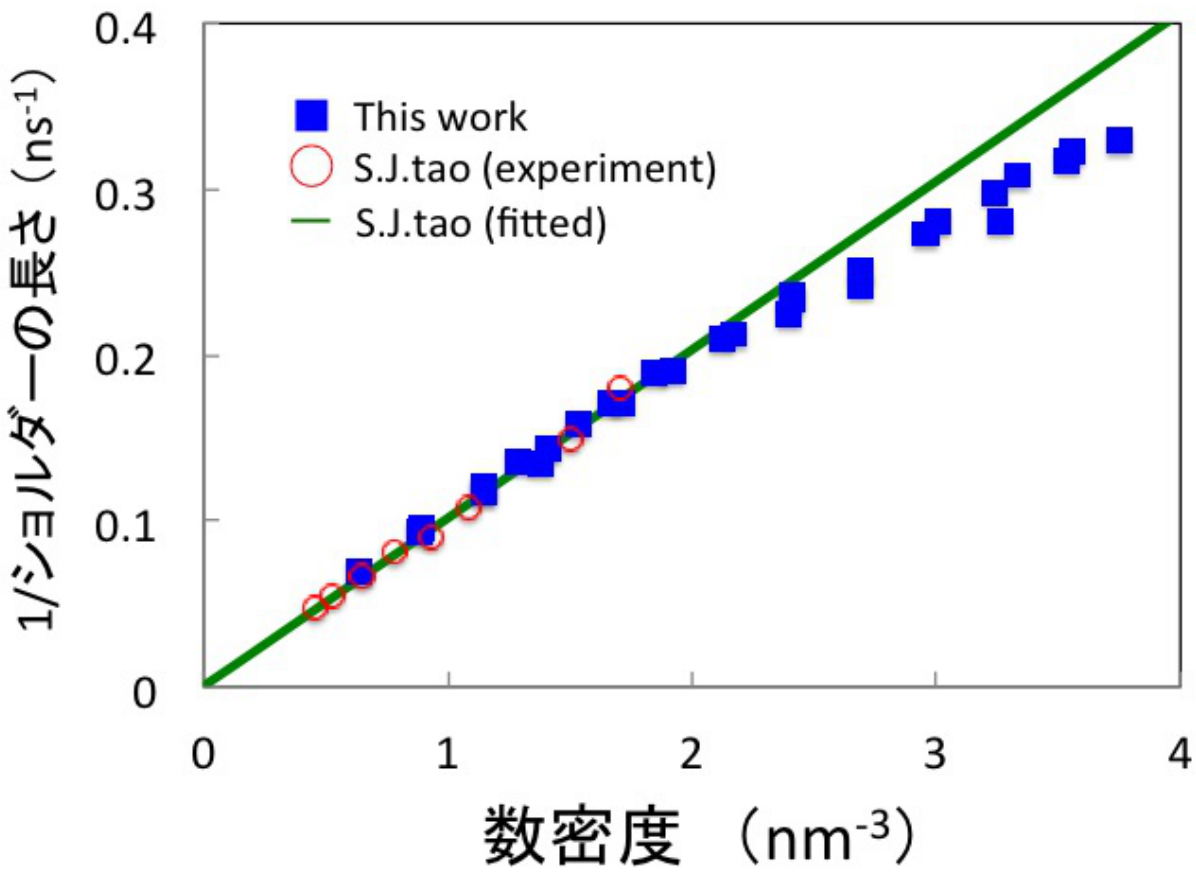


図 2.8　Ar ガスの数密度に対する陽電子熱化時間の依存性．直線は Tao の実験により得られた，陽電子の熱化時間の Ar の数密度依存性である [124]．縦軸は，ΔZ_{eff} を用いて求めた，時間の逆数の次元をもつ量（1/（ショルダーの長さ））である．

2.3　陽電子減速材および Ar ガス密度の最適化

^{22}Na の β 壊変由来の陽電子は最大運動エネルギー 540 keV を持って放出されるために，1 MPa 程度の圧力のガス中では数 cm 程度の飛程を持つ．陽電子の消滅速度や陽電子消滅 γ 線のドップラー広がりを解析する際に，ガスを封じる際に用いる耐圧セル中での陽電子消滅成分を正確に全消滅成分から除くことが重要である．また，Ps とガスの散乱を実験する際には検出効率の観点から，ガス中で効率よく陽電子を止め，狭い領域に Ps を生成させることが重要である．そこで我々は，陽電子の飛程の制御を行うために，Ar ガスの密度および陽電子減速材の最適化を行った．

図 2.9(a) から (c) に陽電子寿命スペクトルから求めた，第一成分（I_1），第二成分（I_2），第三成分（I_3）の強度を減速材の厚みの関数として示した．ここでは，第一成分をカプトン成分 (A) と金属中で消滅した成分 (B) と耐圧セル中で消滅した成分 (C) とガス中で消滅した *p*-Ps の成分 (D) とし，第二成分はガス中で陽電子が熱化後に消滅した成分 (E) と熱化前に消滅した成分 (F)，第三成分はガス中で消滅した *o*-Ps の成分 (G) とした．

まず始めに，PAL スペクトルの時間方向に時間に対して一定に発生するバックグラウンド成分を全体のスペクトルから除いた．*o*-Ps の消滅速度をピックオフ消滅を含む有効消滅速度（$^1Z_{\mathrm{eff}} = 0.314$ [127]）とし，消滅速度に対するピックオフ補正をかけた値を I_3 の強度とした．次に，ショルダー部分を $t = 0$（ns）まで外挿し，ショルダー以後のカウント数は，過去の消滅速度の値を元に決定し [127]，それらの和を I_2 とした．残りのカウント数から強度を求め I_1 とした．

図内シンボル，（◯），（△），（□），（◇）はそれぞれ，Al，Ni，Cu と Ta 箔をカプトン箔で封じた陽電子線源に被せて陽電子寿命測定を行った結果である．◆は再現性の確認のために，Ta 箔を被せてデジタルオシロスコープを使って陽電子寿命測定を行った結果である．I_1 は全ての系列で，減速材の厚み（g cm^{-2}）の増加に対して単調に増加し，I_2 および I_3 は減速材の厚み（g cm^{-2}）の増加に対して単調に減少した．I_2 および I_3 の減少は，金属の種類によらず 7 % の範囲で一致していた．金属の厚みが増加するにつれ金属中で止まる陽電子の割合が増加し，ガス中に放出される陽電子が減少したためであった．

図 2.10 中に，Cu 箔の厚みに対する Ar ガス 5.0 MPa 中における陽電子の消滅速度の変化をプロットした．Cu 箔の厚みによらず陽電子が 8 ns で熱化していることがわかった．Ar ガス中において陽電子は数 ps 以内の時間に非弾性散乱を終え，非弾性散乱しきい値（9 eV）まで減速する．9 eV 以下のエネルギーにおいては，陽電子は弾性散乱によりエネルギーを失い，1 ns 以上の時間をかけて熱化する．陽電子消滅速度の時間変化が Cu の厚みにかわらず一定であったことから，金属からの再放出による陽電子の寄与は小さく，金属の厚みによらず金属から放出された大部分の陽電子は 9 eV 以上の運動エネルギーを持っていることがわかった．

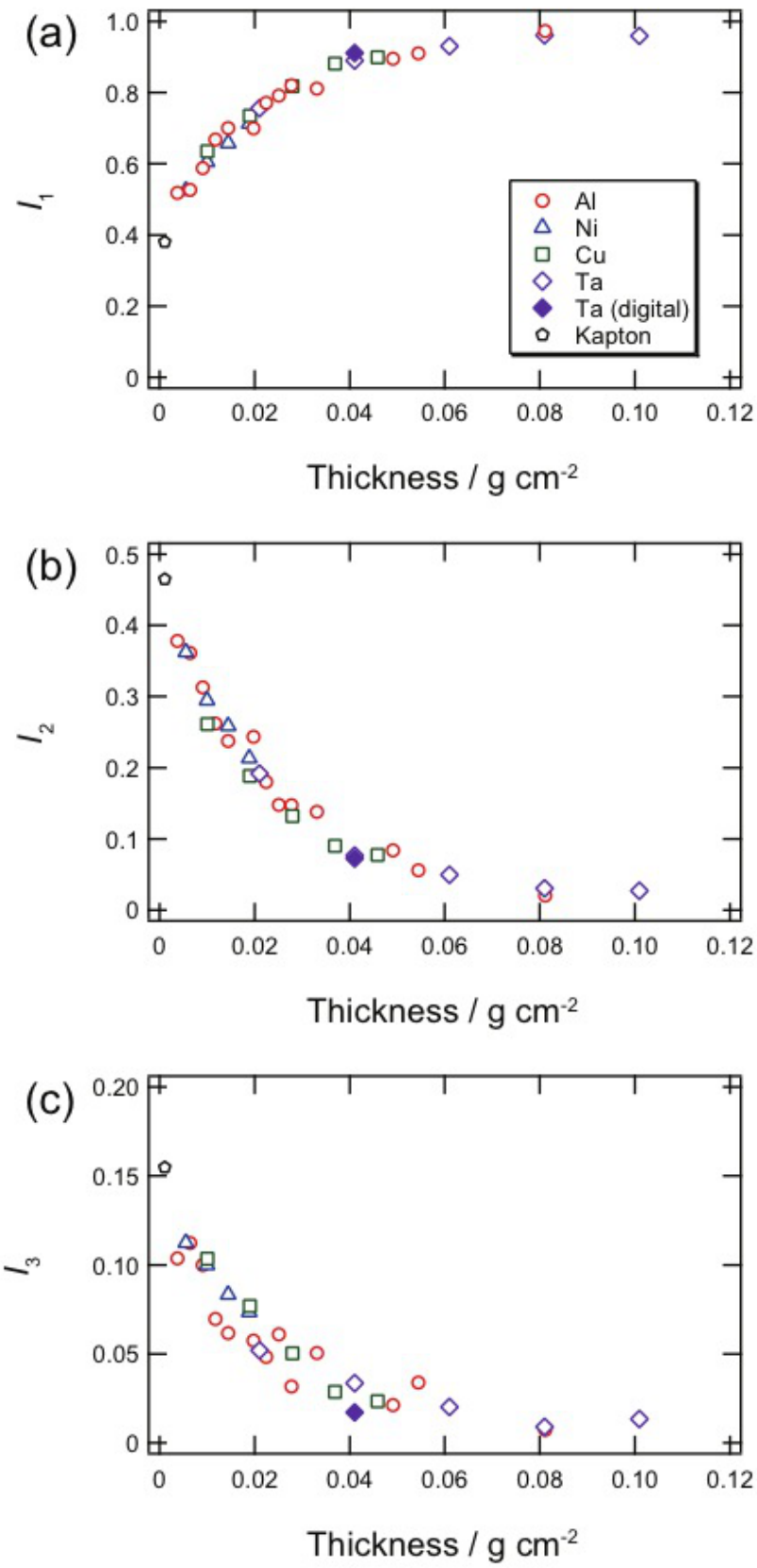


図 2.9　各種金属の厚みを変えた際の (a): I_1,(b): I_2, (c): I_3 の強度変化．Ar ガスは，1.5 MPa (0.4 nm^{-3}), 室温で測定した．（Reprinted from Optimisation of the thickness of the moderator for positron annihilation process study in Ar gas, 68, 2014, 2, Results and discussion, Oka, Toshitaka and Sano, Yosuke and Kino, Yasushi and Sekine, Tsutomu, with permisson from European Physical Journal D.）

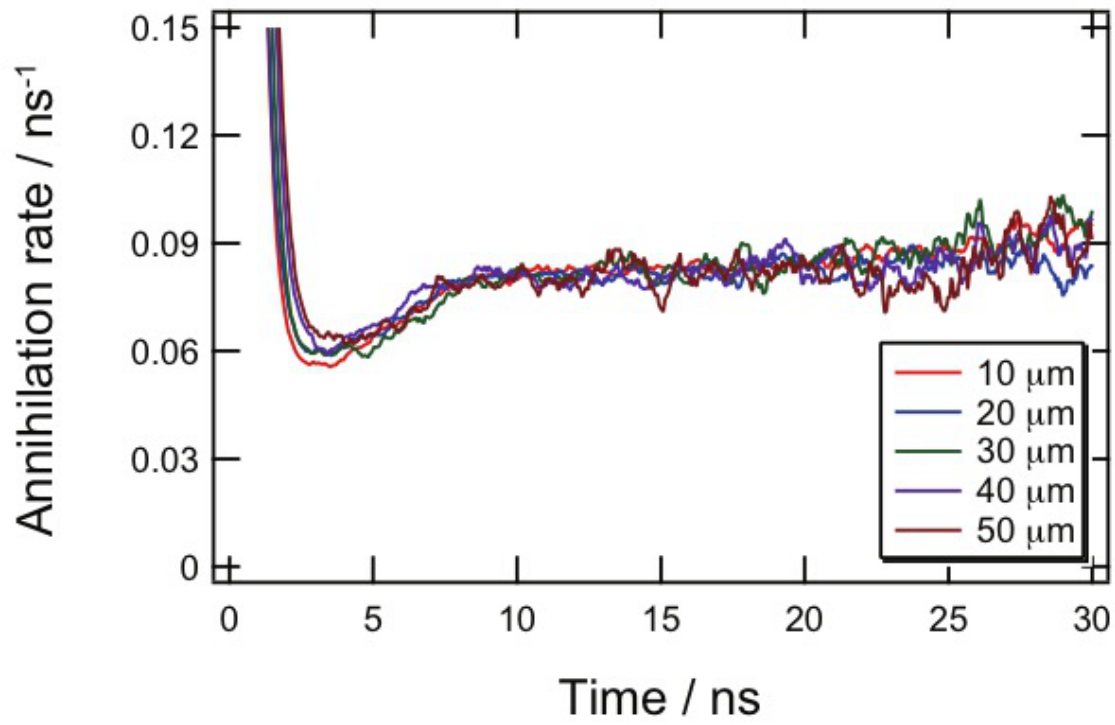


図 2.10　陽電子消滅速度の時間依存性を減速材（Cu）の厚みの変変えて測定した結果．Ar ガス 5.0 MPa, 室温条件で測定した．（Reprinted from Optimisation of the thickness of the moderator for positron annihilation process study in Ar gas, 68, 2014, 3, Results and discussion, Oka, Toshitaka and Sano, Yosuke and Kino, Yasushi and Sekine, Tsutomu, with permisson from European Physical Journal D.）

次に，陽電子寿命スペクトルに含まれる金属箔と耐圧セルの成分を詳しく調べるために，I_1 の成分をさらに金属箔の厚み ρ の関数として 5 成分に分割して解析した．

$$1 = I_{\mathrm{Kapton}}(\rho) + I_{\mathrm{metal}}(\rho) + I_{\mathrm{vessel}}(\rho) + \frac{4}{3} I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(\rho) + I_{\mathrm{free}}(\rho) \tag{2.21}$$

左辺の 1 は，実験で測定されたスペクトルのカウント数からバックグラウンド成分を除いた全カウント数である．$I_{\mathrm{Kapton}}(\rho)$ は，カプトン線源を 2 mm の厚みをもつ Al の板ではさみ得られた陽電子寿命スペクトルを PATFIT プログラムで求めた値（14 %）を用いた．p-Ps の強度は o-Ps の強度の 1/3 とし，o-Ps の強度と合わせて $4\, I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(\rho)/3$ を Ps の強度とした．

次に，耐圧セル中で消滅した成分強度 $I_{\mathrm{vessel}}(\rho)$ は，金属箔を被せない場合 $I_{\mathrm{vessel}}(0)$ との比を $R_1(\rho)$ と定義して解析を進めた．

$$R_1(\rho) = \frac{I_{\mathrm{vessel}}(\rho)}{I_{\mathrm{vessel}}(0)} \tag{2.22}$$

同様に，密度 ρ の金属箔を減速材として使用した際と減速材を使わない条件における Ar ガス中で消滅した陽電子の割合を $R_2(\rho)$ とした．

$$R_2(\rho) = \frac{\frac{4}{3} I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(\rho) + I_{\mathrm{free}}(\rho)}{\frac{4}{3} I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(0) + I_{\mathrm{free}}(0)} \tag{2.23}$$

$R_1(\rho)$, $R_2(\rho)$ を (21) 式に代入することで，$I_{\mathrm{Kapton}}(\rho) + I_{\mathrm{metal}}(\rho)$ を $I_{\mathrm{vessel}}(\rho)$ の関数として求めることができる．

$$I_{\mathrm{Kapton}}(\rho) + I_{\mathrm{metal}}(\rho) = 1 - R_1(\rho)\left(\frac{4}{3} I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(0) + I_{\mathrm{free}}(0) + I_{\mathrm{vessel}}(0)\right) = 1 - R_1(\rho) \times (0.67 + I_{\mathrm{vessel}}(0)) \tag{2.24}$$

ここで，$I_{o\text{-}\mathrm{Ps}}(0)$ と $I_{\mathrm{free}}(0)$ は，図 2.10 の (a)，(b) から求めた．$I_{\mathrm{Kapton}}(\rho) + I_{\mathrm{metal}}(\rho)$ と $I_{\mathrm{vessel}}(0)$ の ρ に対する変化を図 2.11 に示した．$I_{\mathrm{vessel}}(\rho)$ は，金属の厚みに対して単調に減少した．本研究では，$I_{\mathrm{vessel}}(\rho)$ が全体の 1 % となる値，すなわち金属箔 0.06 g cm^{-2} を用いた場合に，陽電子が耐圧セルまでに到達せずガス中で静止する最大飛程になるとした．金属箔 0.06 g cm^{-2} を用いることで，陽電子は耐圧セルに到達しない．一方で，セル半径 1.4 cm における Ar ガス 1.5 MPa では 0.04 g cm^{-2} の厚みとなる．それ故に，金属箔の厚みと合わせて，計 0.10 g cm^{-2} の厚みがあれば，Ar ガス中で全ての陽電子を吸収できることがわかった [128].

Ar ガス中における陽電子消滅速度の時間変化から陽電子減速過程を研究し，陽電子消滅速度と陽電子熱化時間の数密度依存性を求めた．多体効果が現れない Ar ガスの数密度の上限値を見積もった．また，陽電子線源の厚みを変化させ陽電子寿命測定をおこなった．Ar ガス中での陽電子や Ps の消滅強度を金属の密度の関数として求め，陽電子が Ar ガス中で完全に吸収される Ar ガスの数密度の下限値を見積もった．

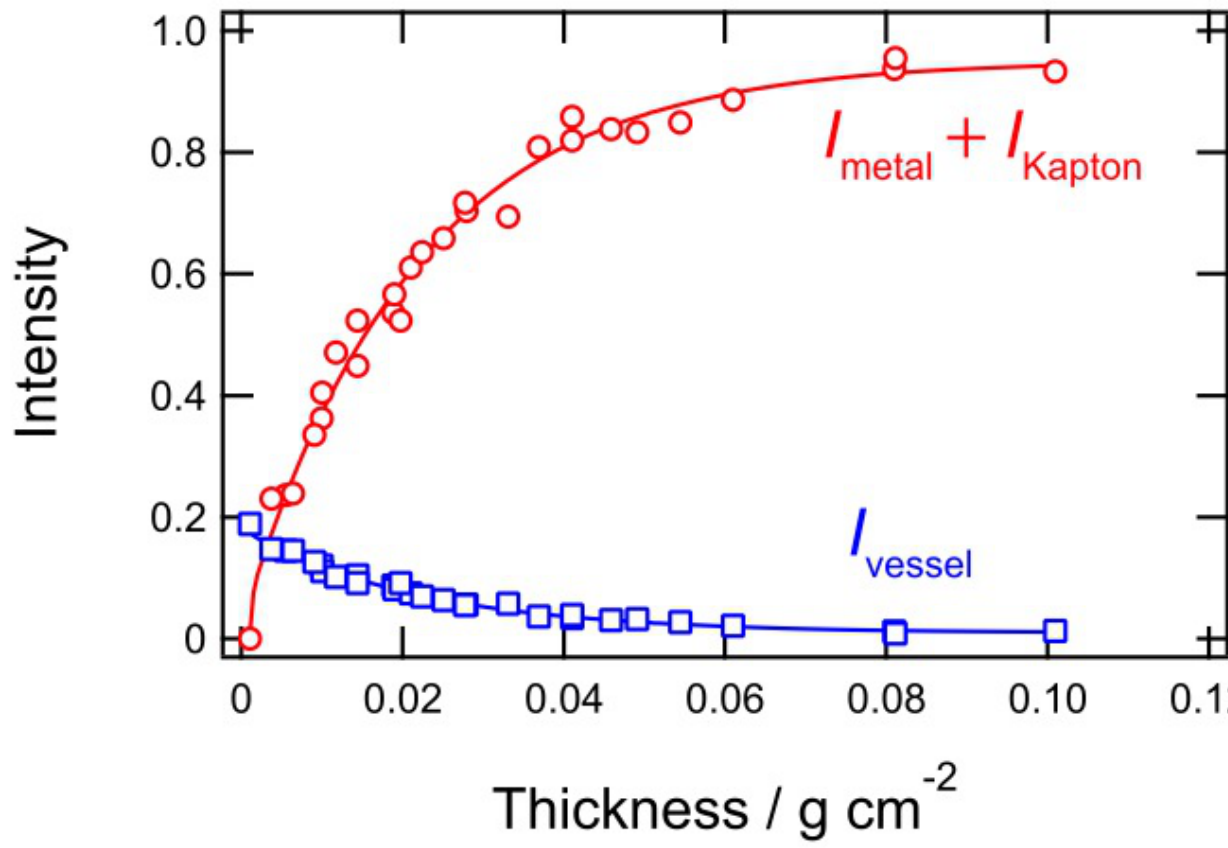


図 2.11　減速材の厚み（ρ）対する $I_{Kapton}(\rho) + I_{metal}(\rho)$ と $I_{vessel}(\rho)$ の変化．Ar ガス 1.5 MPa 室温で測定した．（Reprinted from Optimisation of the thickness of the moderator for positron annihilation process study in Ar gas, 68, 2014, 3, Results and discussion, Oka, Toshitaka and Sano, Yosuke and Kino, Yasushi and Sekine, Tsutomu, with permisson from European Physical Journal D.）

第 3 章

陽電子消滅時刻運動量同時測定（AMOC）測定装置

Ar ガス中に入射した陽電子は，Ar ガスの Ps 生成しきい値を除いた非弾性散乱しきいエネルギー（第一電子励起: 11.6 eV）までは，非弾性散乱により一度の散乱で平均 30 eV 程度の運動エネルギーを失い速やかに減速する [48]．11.6 eV 以下のエネルギーでは，Ps を生成しなかった陽電子は Ar ガスと弾性散乱のみにより運動エネルギーを失う．1 度の弾性散乱では，陽電子と Ar の質量比に応じて運動エネルギーを失うため，10 eV の衝突エネルギーによる衝突時には 0.1 meV 程度の運動エネルギーを失う．非弾性散乱に比べ 5 桁程運動エネルギーロスが少なくなるため，陽電子の熱化時間は主に弾性散乱の時間によって決まる．図 3.1 に Ar ガス中における一連の陽電子減速過程について示した．Ps 生成しきい値（9 eV）近傍のエネルギーにおける陽電子の減速は，消滅速度が陽電子の運動エネルギーに対してほぼ一定の値をとるために，陽電子寿命測定法から求めることができなかった．生成後の Ps は周りのガスとの散乱過程を経て減速するが、Ps の束縛エネルギーの 6.8 eV 以上の運動エネルギーを持つ場合は、散乱時に解離して陽電子と電子を再放出する。一方で 6.8 eV 以下の運動エネルギーを持つ Ps は、陽電子の場合と同様に Ar ガスと弾性散乱することで熱化する．消滅 γ 線のドップラー広がりを時間の関数として観測することで，Ps 生成しきい値近傍での陽電子のエネルギー変化やガス中で生成した Ps のエネルギー変化を観測することが可能となる．

本章では，陽電子消滅時刻運動量同時測定（AMOC: Age-Momentum Correlation Measurement） [129, 130] システムにおいて，バックグラウンドなどを見積もることにより AMOC 測定の測定効率が最適となる条件を求めることを目的とする．

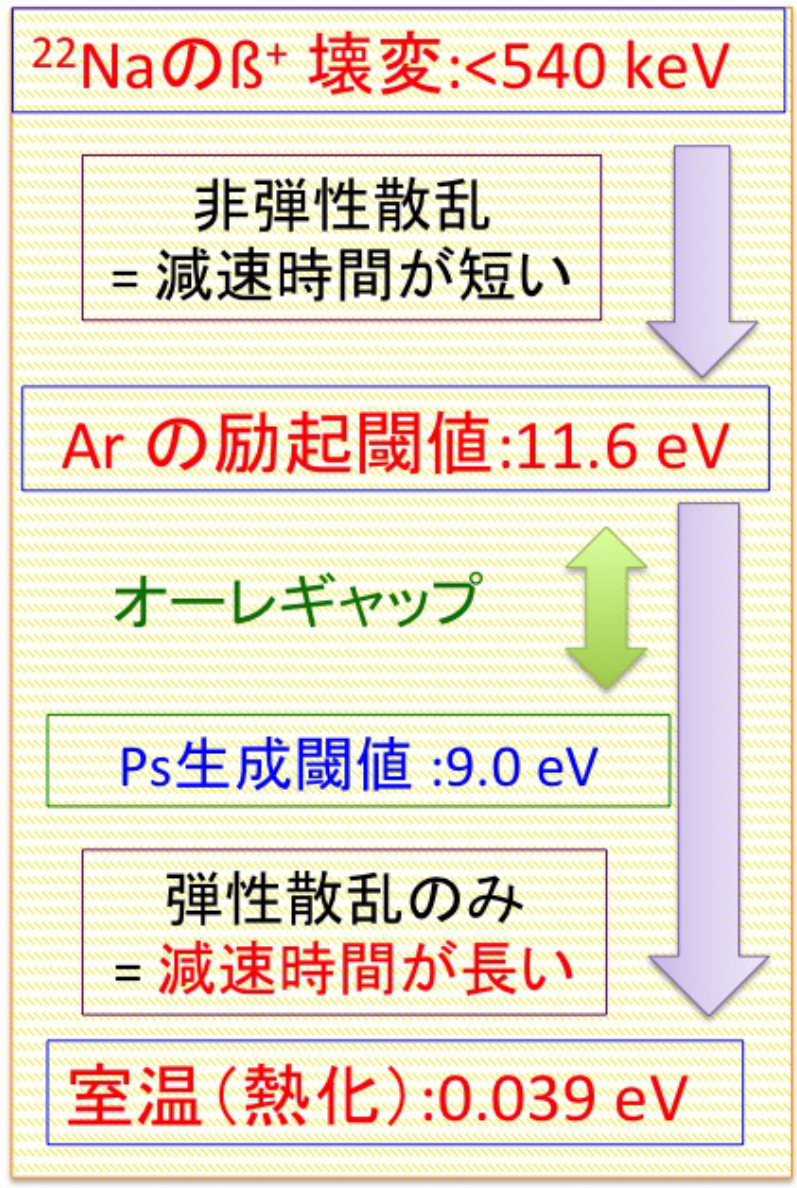


図 3.1　Ar ガス中における陽電子減速過程．Ar の非弾性散乱しきい値の 11.6 eV までは，陽電子は非弾性散乱により減速するため，陽電子の減速時間は短い．それ以下のエネルギーにおいては，弾性散乱により減速するため，陽電子の減速時間は長い．また，Ar ガス中における Ps の生成しきい値は 9.0 eV である．9.0–11.6 eV の領域は，オーレギャップと呼ばれている．

3.1　2 次元 MCA–AMOC 測定装置

陽電子消滅時刻運動量同時測定法（AMOC）とは，陽電子が物質中に入射した時刻と陽電子が物質中で消滅した時間差を測定すると同時に，消滅 γ 線のエネルギーを測定する手法である．^{22}Na が陽電子を放出する直後に放出する 1275 keV の γ 線と，陽電子が対消滅する際に放出する 511 keV の 2 本の γ 線のうちの一方をシンチレータ検出器で検出することで陽電子消滅時間を求めた．それと同時にもう一方の対消滅 γ 線を Ge 半導体検出器で検出し，SPECTROSCOPY AMPLIFIER(ORTEC 社: 672) で増幅したシグナルを解析することで，陽電子対消滅 γ 線のエネルギーを得た．

陽電子の寿命は，前章で記載した陽電子寿命測定法で用いた装置を用いた．消滅 γ 線のエネルギーを測定する Ge 半導体検出器は ϕ5.4 cm × 5.2 cm の結晶サイズをもつ ORTEC 社の GEM20P470，2 次元 MCA は (株) ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーションの NT-24 DUAL を用いた．511 keV における Ge 半導体検出器のエネルギー分解能およびキャリブレーションは，^{60}Co の 1332 keV，^{85}Sr の 514 keV，^{133}Ba の 356 keV および ^{152}Eu の 779 keV，964 keV，1086 keV，1112 keV，1408 keV のエネルギーを持つ γ 線を用いて行った（図 3.2–図 3.4）．2 次元 MCA は，1 ch あたり 0.34 keV で，Ge 半導体検出器のエネルギー分解能は，511 keV のエネルギーで 1.23 keV（FWHM）であった．また，陽電子寿命測定に関する時間分解能は，300 ps（FWHM）であった．これは，単一成分の Ni 箔中において AMOC 測定を行い，エネルギー軸方向に射影したスペクトルを PATFIT プログラムで解析することで求めた．対消滅 γ 線は，消滅直前の電子と陽電子の重心の運動量を反映してドップラー広がりを生じるが，その二本の γ 線はほぼ 180 度方向に放出される．同じ対消滅イベントで放出された 2 本の γ 線からストップシグナルとエネルギーシグナルを得るために，ストップシグナルを検出するためのプラスティックシンチレータと消滅 γ 線のドップラー広がりを測定するための Ge 半導体検出器は 180 度方向に設置し，スタートシグナルを検出するためのシンチレータはストップ用シンチレータと Ge 半導体検出器から 90 度方向に配置した図 3.5．TAC からの陽電子寿命シグナルをオシロスコープの 1 ch に入れ，Ge 半導体検出器の後方にある AMP からのアウトプットシグナルをオシロスコープの 2 ch に入れ，オシロスコープ上で TAC のシグナルと AMP のシグナルが同時に 2 次元 MCA に入るようにパルスの時間を合わせた（図 3.6）．この際，対消滅 γ 線由来の 511 keV はシグナルの波高および頻度から判断した．

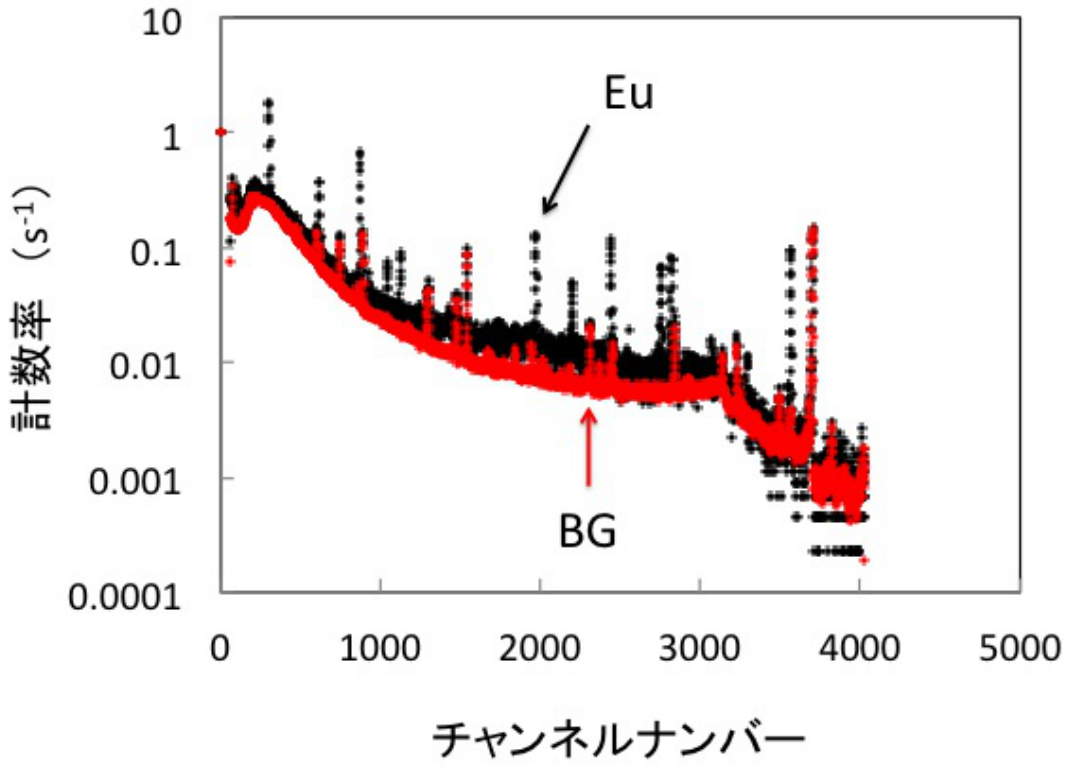


図 3.2　Ge 半導体検出器で検出した γ 線のエネルギーを 1 次元 MCA を用いて弁別して得た，Eu，バックグラウンド（BG）の γ 線スペクトル.

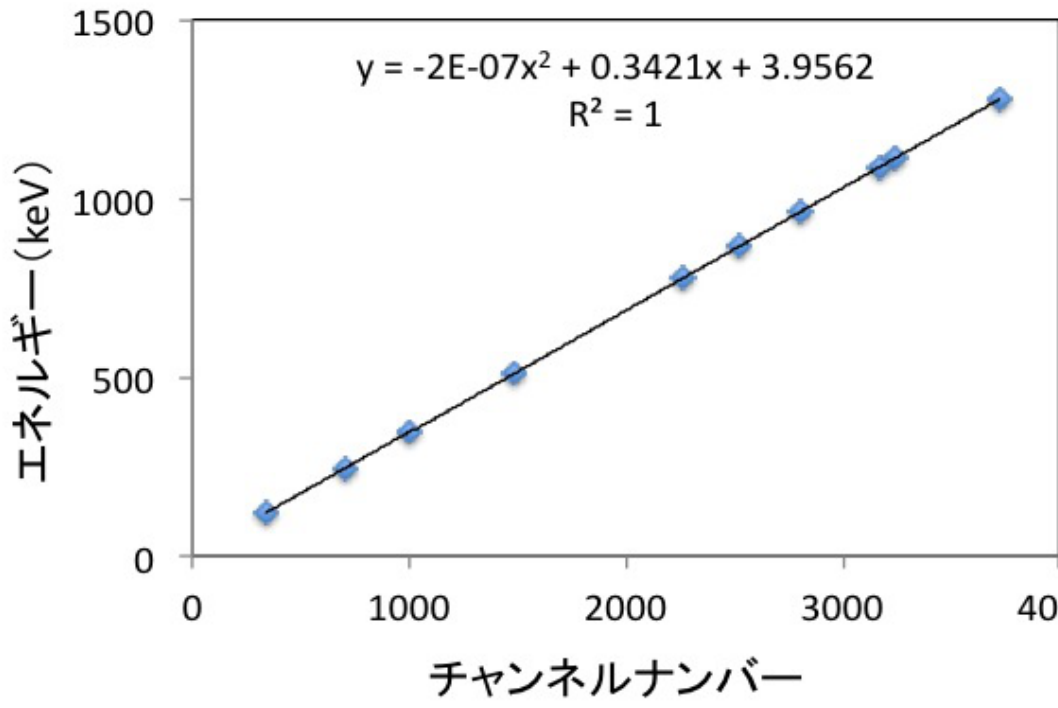


図 3.3　1 次元 MCA のチャンネルナンバーに対する消滅 γ 線のエネルギー．◆ は実測点．実測点間には 2 次関数を用いた（–）．

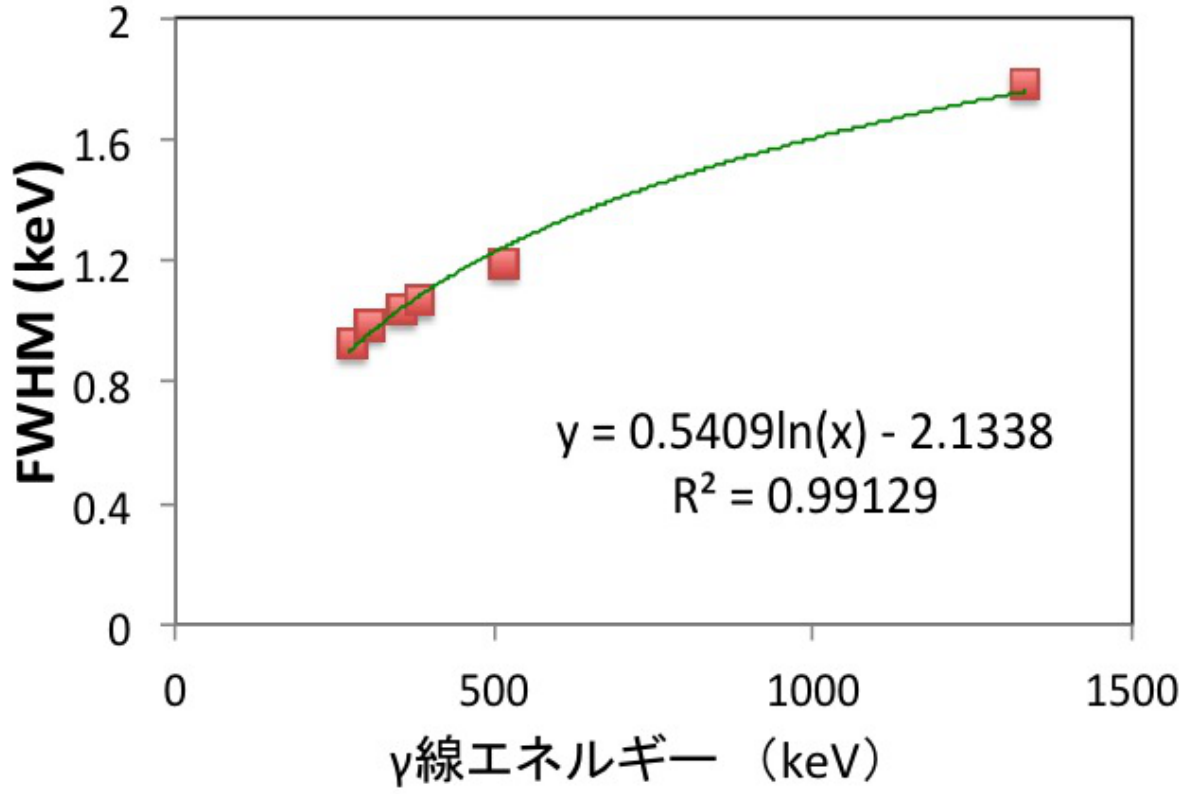


図 3.4　Ge 半導体検出器のエネルギー分解能の消滅 γ 線のエネルギー依存性．装置分解能の実測点間には，関数として自然対数を用いた．

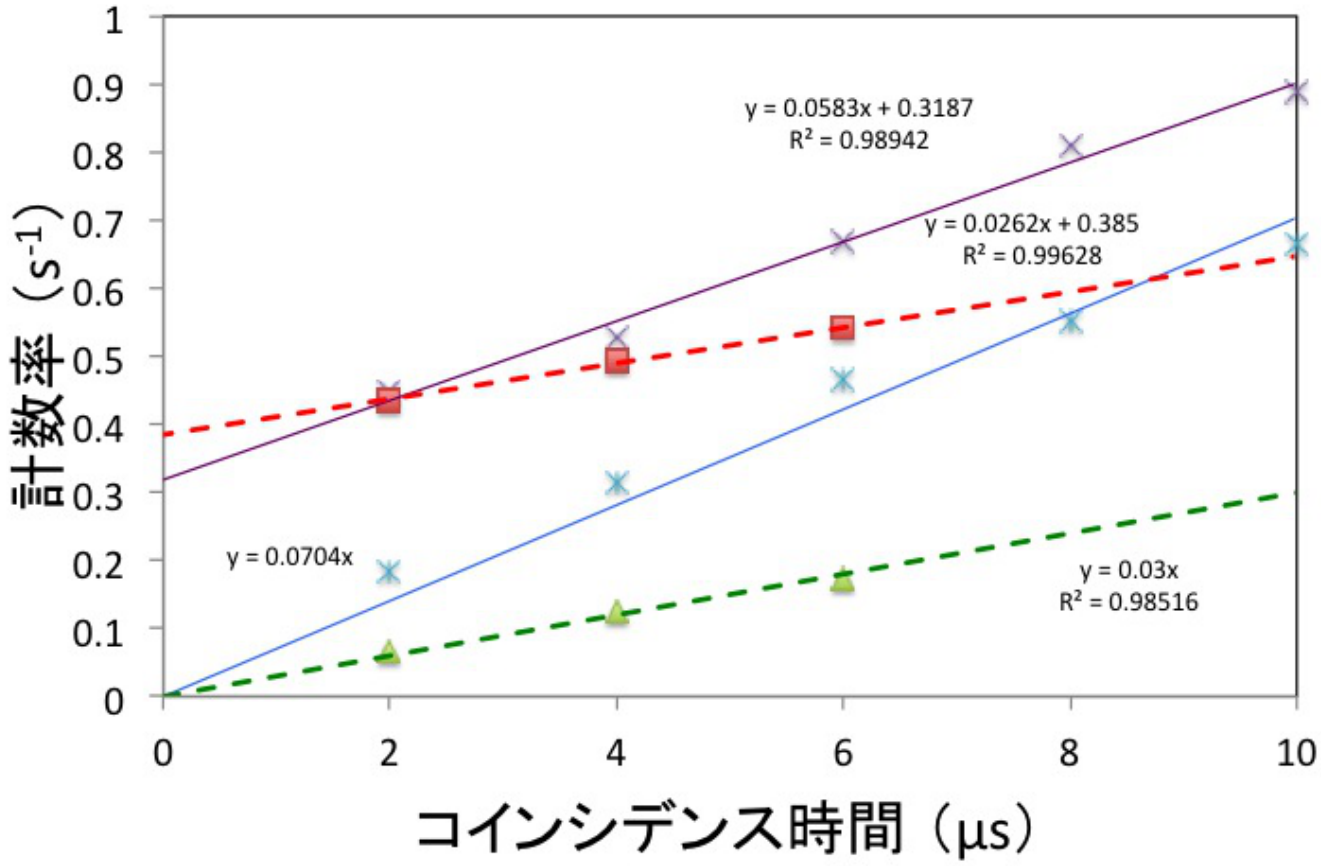


図 3.5　間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドの見積もり．STOP シグナル用検出器を耐圧セル表面ぎりぎりの距離に配置し，2 次元 MCA のコインシデンス時間を 2–10 μs と変化させて全計数率を測定した結果（×）．STOP シグナル用検出器を耐圧セル表面ぎりぎりの距離に START と STOP シグナル用の検出器の配置を入れ替え，Ge 半導体検出器と STOP シンチレータを 90 度方向に配置し測定した結果（∗）．同様に STOP の検出器のみを耐圧セルから 2 cm 下げ，Ge と STOP シンチレータを 180 度方向に設置し測定した結果（■）および，STOP と Ge の半導体検出器を 90 度方向に設置し測定した結果（▲）．

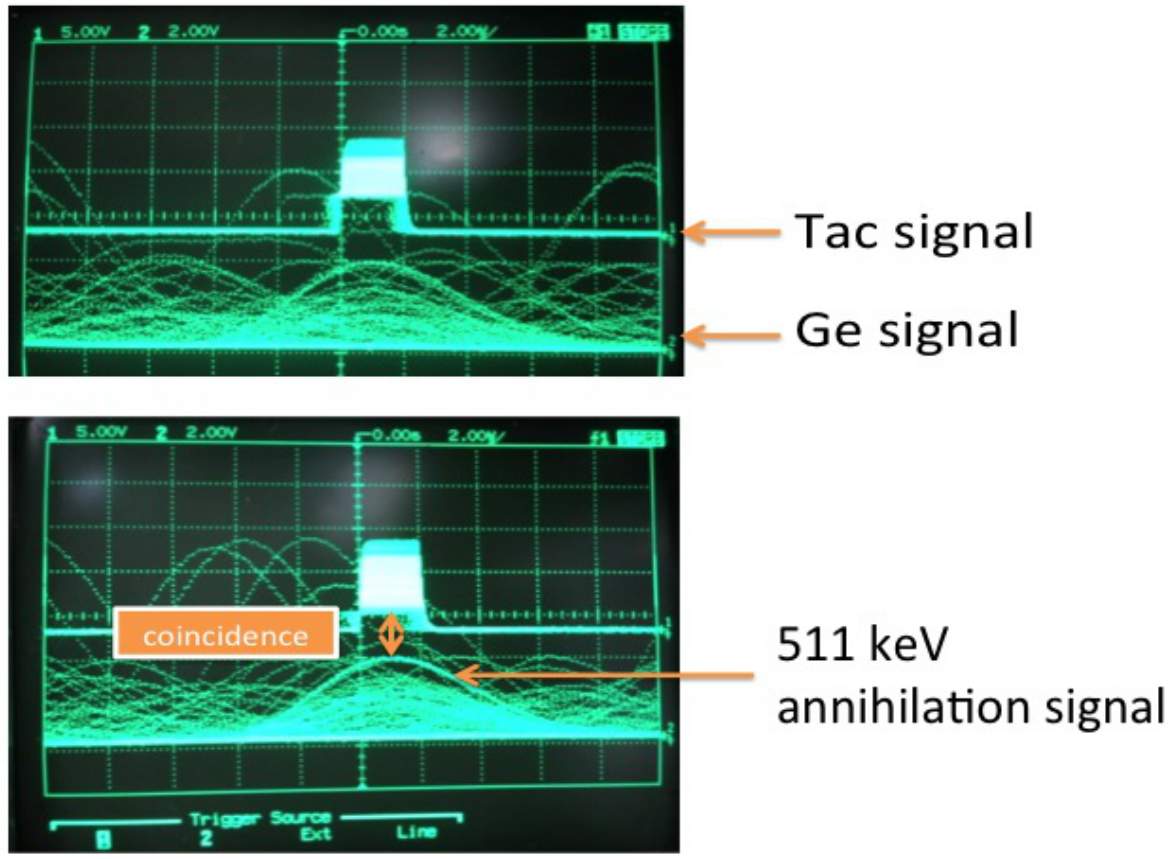


図 3.6　TAC シグナルと Ge（AMP）シグナルをオシロスコープ上でモニターした図．Tac 由来のシグナルをオシロスコープの 1 ch で，Ge 半導体検出器由来のシグナルを 2 ch でモニターした．

3.2　間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドの見積もりと測定条件の決定

AMOC 測定では，スタート，ストップ，エネルギーシグナルの 3 光子同時測定を行う．本研究において，2 次元 MCA を用いた AMOC システムでは，陽電子寿命を測定するシグナルとエネルギーシグナルの間でコインシデンスをとっている．2DMCA では，1 μs 間隔でコインシデンス時間を設定することができるが，その間にもランダムなコインシデンス（Ge 半導体検出器で正しいイベントを検出できず，次のイベントとの間でコインシデンスをとってしまう）等がコインデンス時間の関数として観測される．また，これは検出器と線源の距離に依存する．検出器の距離やコインシデンス時間の最適化を行うことで，正しいシグナルを選択的に測定することで，測定装置の S/N 比を向上させることを目的とした．

STOP シグナル用検出器を Ge 半導体検出器に対して 180 度方向に，耐圧セル表面ぎりぎりの距離に配置し，2 次元 MCA のコインシデンス時間を 2–10 μs と変化させて全計数率を測定した（図 3.5: ×）．次に，START と STOP シグナル用の検出器の配置を入れ替え，Ge 半導体検出器と STOP シンチレータを 90 度方向に配置した．STOP と START 検出器の線源からの距離を一定と保ち，陽電子寿命に対する計数率を保ったまま，ゲートを開いていた時間に依存したバックグラウンドの計数率のみを見積もった（図 3.5: ∗）．× と ∗ のコインシデンスタイムに対する計数率の傾きは，ほぼ一定であった．STOP 用の検出器を耐圧セル表面ぎりぎりの距離に配置した場合における上記実験と同様に，STOP の検出器のみを耐圧セルの表面から 2 cm 下げ，陽電子消滅寿命測定を行った．正しいシグナルの計数率は変化せず，正しい STOP シグナルの空検出に起因するバックグラウンドの計数率が小さくなる．STOP と Ge の半導体検出器を 180 度方向に設置した時と（図 3.5: ■），STOP と Ge の半導体検出器を 90 度方向に設置した場合（図 3.5: ▲）を図 3.5 に示した．コインシデンスタイムは 2 μs において，STOP シンチレータを耐圧セル表面ぎりぎりの距離に配置した場合では，全計数率（0.42 s^{-1}）に対して約 40 %（0.18 s^{-1}）が間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドに起因していたが，STOP シンチレータを耐圧セルから 2 cm 下げた場合では，10 %（0.04 s_{-1}）程度が間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドに起因していた．また，コインシデンス時間は短い方が正しい STOP シグナルの空検出に起因するバックグラウンドを減らすことができる．本研究では，STOP シンチレータを耐圧セルから 2 cm，2 次元 MCA のコインシデンスタイムは 2 μs とした．ゲートに依存したバックグラウンドを全計数率のうちの 40 % から 10 % まで減らすことができた．

陽電子線源は，^{22}Na を独立した二枚のポリイミド箔（カプトン箔）の中央に滴下し，アラルダイド等の有機接着剤にて封じられたものが多い．しかしながら，陽電子消滅 γ 線のドップラー広がりや陽電子の寿命などを解析する際には，線源を構成するポリイミド箔や有機接着剤の成分もバックグラウンドとなりえる．本研究では，陽電子線源成分をできるだけ簡単にするために，接着剤を使わずに陽電子を封じた．陽電子線源の材料としては Ni 箔を用いた．厚み 5 μm（純度 > 99 %）の Ni フィルム（ニラコ社）に 0.4 MBq の ^{22}Na を滴下し，Ni 箔を折り畳むことで 1 cm×1 cm の線源を作製した．

線源は，半径 2.85 cm，高さ 5 cm のステンレス製耐圧セルの中心に設置した．Ar ガス（>99.9999 %）を 7.5MPa に保ち室温で測定した．第 2 章で述べたように，7.5 MPa 中ではガス中で全ての陽電子を吸収することができる．Ge 半導体検出器は γ 線を検出すると，波形が μs オーダーのアウトプットシグナルを出す．消滅 γ 線のエネルギーを測定する際に，Ge 半導体検出器のアウトプットシグナルの時間幅よりも短い時間に消滅 γ 線が複数本入射すると，アウトプットシグナル同士が重なり（パイルアップ），ピークの形状が変化するため正確なエネルギーを測定できない．パイルアップを防ぐために，Ge 半導体検出器を線源から 16 cm 後方に下げた．これによりパルスの重なりによる Ge 半導体検出器の不感時間が小さくなり，Ge 半導体検出器の Dead-time は 1 % 以下であった．対消滅 γ 線を Ge 半導体検出器と STOP 用シンチレータで検出する際に，線源中心からみて Ge 半導体検出器と STOP シンチレータの立体角を等しくすることで，検出効率を最大にすることができる．例えば，片一方の立体角が大きな場合は，正しいシグナルの検出効率が立体角の小さい検出器に依存するため，結果としてランダムコインシデンスが増加する．線源から見た Ge 半導体検出器の立体角と一致するように，Ge 検出器と 180 度方向に STOP シグナル用のシンチレータをマウントした PMT を設置した．START 用の PMT は検出器に可能な限り近づけた．3 つの γ 線を同時測定した際の計数率は 0.8 cps（count per second）で，16 日で 1 スペクトル（図 3.8:約 110 万カウント）を測定した．AMOC 装置の全体図を図 3.7 に，Ar ガス 7.5 MPa で測定した際の AMOC 3 次元スペクトルを図 3.8 に示した．垂直方向軸はカウント数．平面方向横軸は時刻（ns），平面方向縦軸は対消滅 γ 線の運動量（mc）である．このスペクトルを時間軸方向に射影すると，陽電子寿命スペクトルが得られ，運動量軸方向に射影すると，511 keV 付近のエネルギーでのドップラー広がりが得られる．時刻 0–5 ns まで，陽電子の減速過程を反映したショルダー構造が観測されている．

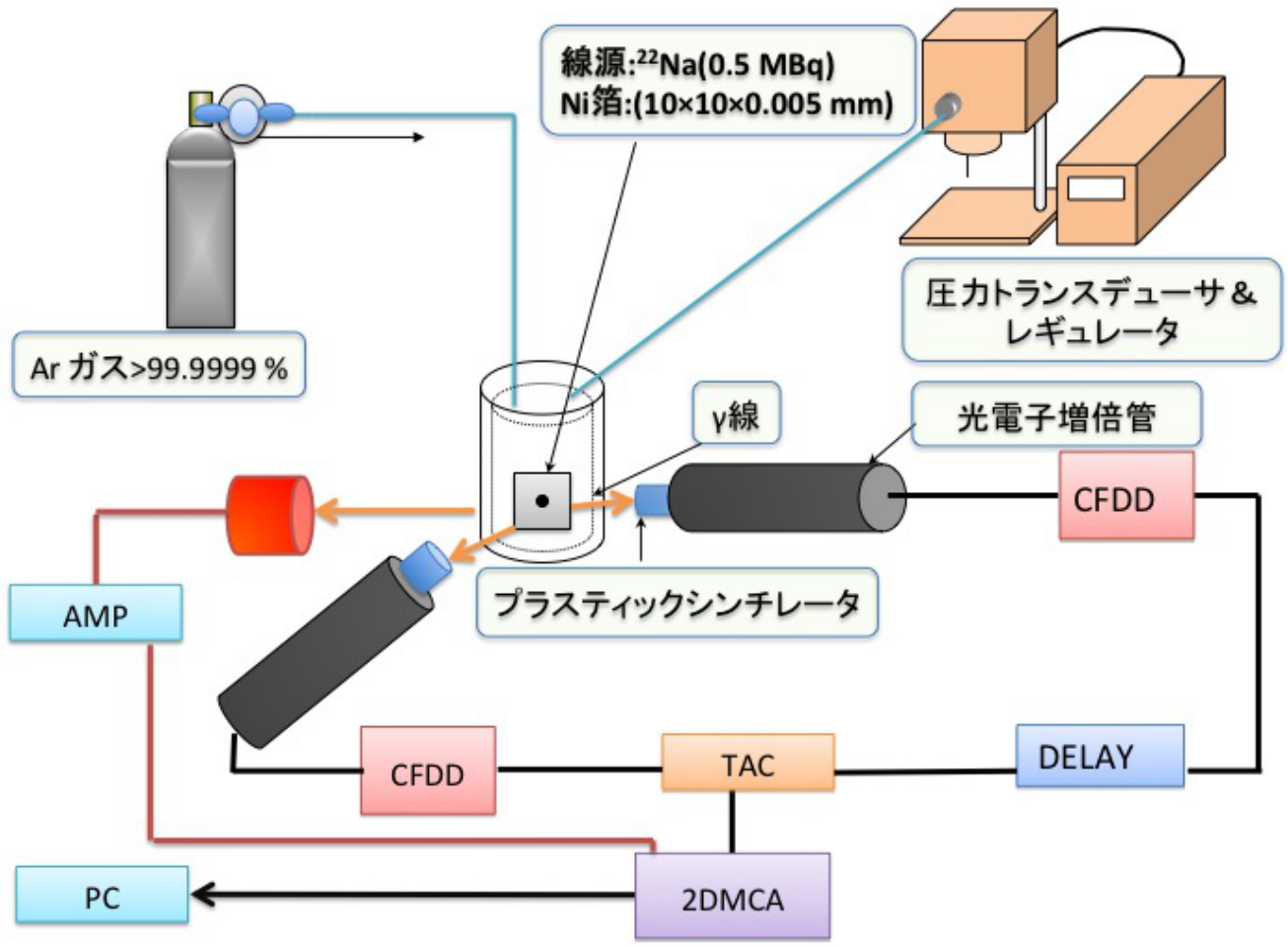


図 3.7　2 次元 MCA–AMOC 測定装置の概略図

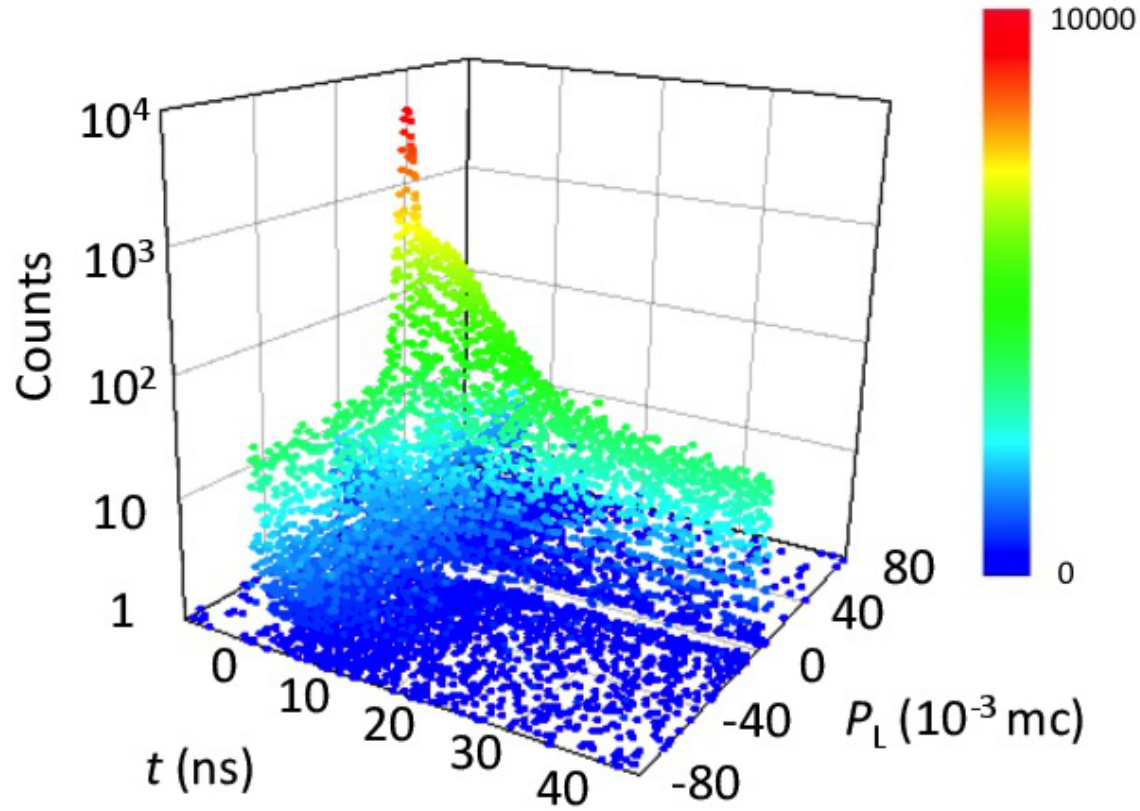


図 3.8　Ar 7.5 MPa 室温で測定した AMOC 3 次元スペクトル．垂直方向軸はカウント数．平面方向横軸は時刻（ns），平面方向縦軸は対消滅 γ 線の運動量（mc）である．

3.3　線源成分のドップラー広がり

Ar ガス中で測定した AMOC 3 次元スペクトルから線源成分を除くために，作製した陽電子線源中で消滅した陽電子の消滅割合を陽電子寿命測定法で測定し，消滅 γ 線のドップラー広がりを Ge 半導体検出器で測定した．

作製した 5 μm の厚みをもつ Ni 箔に封じられた陽電子線源を，さらに厚み 2 mm のポリイミドフィルムではさみ，陽電子寿命測定法で測定し，PATFIT プログラムで 2 成分解析を行った．3 成分目を解析に加えると 2 成分目と 3 成分目の関数のドップラー広がが一致したため，2 成分で十分であると判断した．1 成分目は，Ni 箔で消滅する陽電子消滅成分，2 成分目がポリイミド箔内で消滅した陽電子消滅成分である．Ni 箔，ポリイミド箔内で消滅した陽電子の寿命はそれぞれ 0.20 ns，0.37 ns であった．また，Ni 箔中で消滅した陽電子の割合は 14 % であった．

ドップラー広がりの測定は，5 μm の Ni 箔に封じられた陽電子線源を厚さ 1.5 mm の Ni 板で挟み，陽電子が Ni 中でのみ消滅する条件で Ge 半導体検出器を用いてドップラー広がり測定を行った．得られた Ni 中における陽電子のドップラー広がりの結果を図 3.9 に示す．実験値から，1275 keV の γ 線などの Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンドを除いた後に，最適化した 2 つのガウス関数を用いて Ni 成分のドップラー広がりを求めた．それぞれ，関数 1 : 2.12 keV, 関数 2 : 4.26 keV の半値幅であった．また関数の強度比は，0.80 : 0.20 であった．

3.4　2 次元 MCA-AMOC 測定におけるバックグラウンドの見積もり

Ar ガス中で測定した AMOC スペクトルから，ガス中で消滅した陽電子の成分を抜き出すには，いくつかのバックグラウンドを差し引かなくてはならない．本研究ではバックグラウンドの成分として以下の４つのバックグラウンドを生のスペクトルから減じた．

- Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンド
- Ni 成分の除去
- PAL のスペクトルのバックグラウンド
- 間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンド

■Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンド

Ar ガス 7.5 MPa 中で測定した AMOC– ３次元スペクトルにおいて，あるチャンネルのカウント数を

$$A(E_{\mathrm{i}}, T_{\mathrm{j}}) \tag{3.1}$$

と定義する．Ge 半導体検出器によるバックグラウンドは低エネルギー側と高エネルギー側それぞれのバックグラウンドを求め，AMOC–3 次元スペクトルの各時刻において一次関数を仮定して減じた．ある時刻 j におけるバックグラウンド（BG）は，以下の式で定義した．

$$BG_{\mathrm{Ge}}(E_{\mathrm{k}}, T_{\mathrm{j}}) = BG_{\mathrm{low}}(T_{\mathrm{j}}) \times \frac{ch + 1 - k}{ch} - BG_{\mathrm{high}}(T_{\mathrm{j}}) \times \frac{1 - k}{ch} \tag{3.2}$$

ここで，消滅 γ 線のスペクトルはエネルギー方向に対するピーク中心から $|\Delta E| < 5.0$ keV とし，k はピーク内のチャンネルである．また，ch はピークの全チャンネル数（31 ch）である．$BG_{\mathrm{low}}(T_{\mathrm{j}})$ はピーク左部分の低エネルギー領域でのバックグラウンド，$BG_{\mathrm{high}}(T_{\mathrm{j}})$ はピーク右部分の高エネルギー領域のバックグラウンドである．バックグラウンドはピークチャンネルの左右それぞれ 3 ch（1 keV）の平均値とした．これは，全カウント数に対して，11 % の強度であった．

■Ni 成分の除去

Ar ガス中で測定した 3 次元スペクトルから Ni 成分を除くために，Ni 中で測定した AMOC 測定で得られた 3 次元スペクトルから Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンドを除き，Ni 箔成分のみが含まれる 3 次元スペクトルを求めた．Ni 箔成分のみが含まれる 3 次元スペクトルを，Ar ガス中で測定した AMOC 測定で得られた 3 次元スペクトルから除いた．その際 Ni 箔の成分の強度は，全体強度に対して 14 % とした（3.4 章参照）．

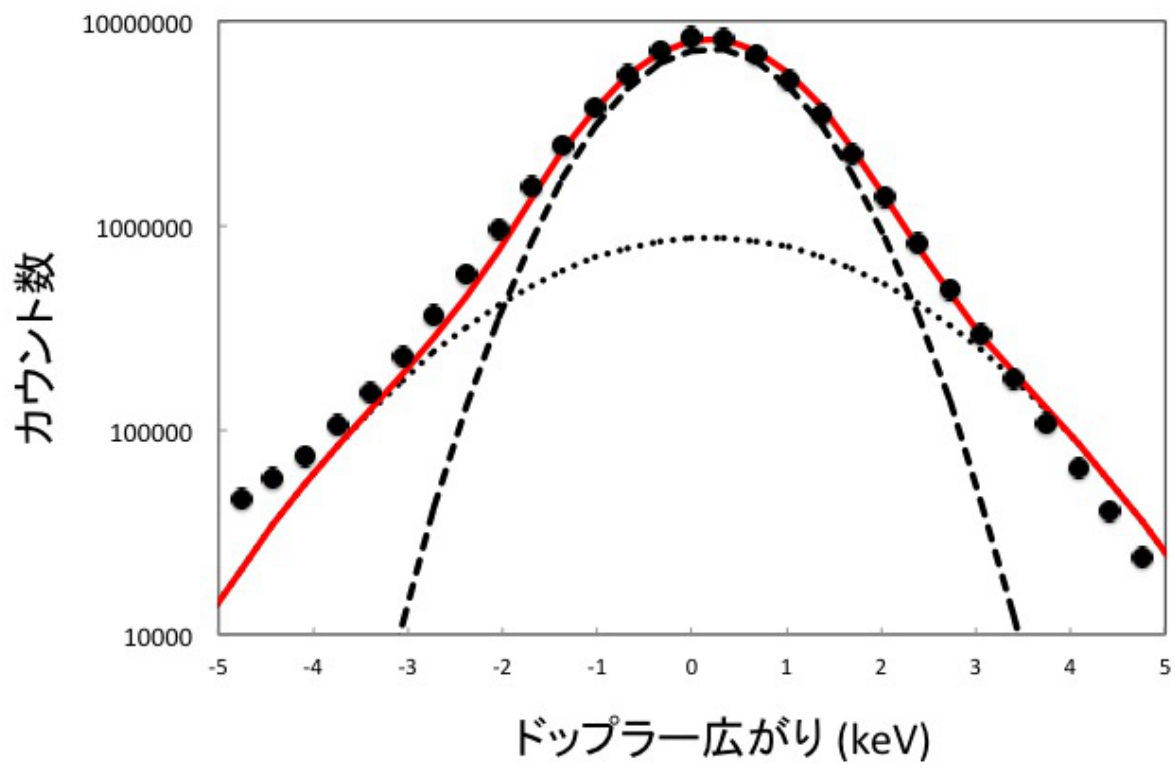


図 3.9　Ni 中で測定した陽電子消滅 γ 線のドップラー広がり．●:実験値，破線は関数 1，点線は関数 2，実線は関数 1 と関数 2 の和

■PAL スペクトルのバックグラウンド

PAL スペクトルのバックグラウンド（$BG_{\mathrm{PAL}}(E_{\mathrm{i}})$）は，時間に依存しない．時間軸方向のピーク以前の時間方向 10 ch の平均値に対してガウス関数で近似することで，関数を決定した．このようにして得られたガウス関数を用いて，全スペクトルから PAL スペクトルのバックグラウンドを減じた．強度は，全カウント数に対して 13 % であった．

■ 間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンド Coincidence-time を 2 μs とした時の全体のスペクトルに対するランダムコインデンスの割合（R_{co}）は図 3.5 より

$$R_{\mathrm{co}} = \frac{0.03 \times 2}{0.0262 \times 2 + 0.385} \simeq 0.13 \tag{3.3}$$

である．ここで，分母は 2 μs のゲートを開いた際における全計数率で，分子は 2 μs の間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドある．ここから，Ge によるバックグラウンド（全カウント数に対して 11 % の強度）と Ni 成分（全カウント数に対して 14 % の強度）および PAL（全カウント数に対して 13 % の強度）のスペクトルのバックグラウンドを除いたことを考慮した（これらにも同様に間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドが含まれているため，2 重に引かないようにした）．それらを（3.3）の 13 % からの補正とし，最終的に全スペクトルの 4 %（$0.13 \times (0.14 + 0.11 + 0.13)$）となるように，全スペクトルから間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドを減じた．関数はピーク部分のエネルギー範囲において，時間方向の総和に対してガウス関数を近似したものとした．

$$f(E_{\mathrm{k}}) = \sum_{j=1}^{512} A(E_{\mathrm{k}}, T_{\mathrm{j}}) \tag{3.4}$$

これは，全カウント数に対して，13 % の寄与であった．

これらバックグラウンドを除くことにより正しいシグナルの割合を求めると，全スペクトルに対して 49 % であった．スペクトルの内訳をまとめると，以下であった．正しいシグナル 49 %，Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンド 11 %，Ni 箔の成分 14 %，PAL スペクトルのバックグラウンド 13 %，間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンド 13 %．

3.5　デジタルオシロスコープ AMOC 測定装置

2 次元 MCA-AMOC 法により，貴ガスと Ps の運動量移行断面積を求めることに成功したが，計数率が低く Ps のエネルギーに依存した形で運動量移行断面積を求めることができなかった．理論計算からは，Ps と貴ガスの衝突断面積にエネルギー依存性が示唆されていた [131]．また低速 Ps を得るためには，Ps の寿命以内の時間スケールで Ps を熱化させる必要がある．Ps の熱化時間は運動量移行断面積に依存するため，低速 Ps の応用への観点からも Ps–貴ガスの運動量移行断面積のエネルギー依存性を正確に測定することが重要である．検出効率の改善およびバックグラウンドを減少させ，より詳細に Ps の減速過程を観測することを目的とし AMOC 測定装置の改善を行った．

デジタルオシロスコープ AMOC システムの概略図を図 3.10 に示した．2 次元 MCA の代わりにデジタルオシロスコープを用いて陽電子寿命とエネルギーの同時測定を行った．デジタルオシロスコープ AMOC システムでは，511 keV を検出する STOP シグナル用のシンチレータおよび 1275 keV の γ 線を検出する START シグナル用のシンチレータとして，直径 5 cm，高さ 3 cm の円筒形 BaF_2 を用いた．BaF_2 はそれぞれ浜松フォトニクス社の PMT（H3378）へマウントし，その PMT を用いて消滅 γ 線を検出した．陽電子線源は，0.5 MBa の ^{22}Na を厚み 5 μm の Ni 箔に封じ，内径 2.85 cm，高さ 8.5 cm の円筒形耐圧セルの中心に設置した．Ge 半導体検出器（ORTEC 社: GEM20P470）は，パイルアップを防ぐために陽電子線源から 25 cm の距離に設置し，STOP シンチレータも Ge 半導体検出器と同じ立体角にするために線源から 25 cm の距離に設置した．START シンチレータは耐圧セルの表面まで近づけて測定した．Ar ガス (> 99.9999 %) を耐圧セルに封入し，室温，ガスの圧力 7.5 MPa の条件下で測定を行った．

本研究でのデジタルオシロスコープを用いた AMOC システムでは，START シグナルと STOP シグナルを分岐し，CFD，TAC モジュールを用いて得られたパルスを GATE & DELAY GENERATOR を通すことにより GATE を発生させた．その GATE シグナルと Ge 半導体検出器で検出したエネルギーシグナルをデジタルオシロスコープ上で同時測定した．

PMT はそれぞれ，電源（HAMAMATSU 社, MODEL，C3360）から –2700 V 印加した．START シグナル（1275 keV）を検出した PMT のアウトプット（A1）からでたシグナルを T 字型分配器で 2 つに分岐させ，片方をデジタルオシロスコープの 1 ch に入れた．もう片方は，CFD（ORTEC 社: 583）で 0.26–1.88 V の間で window を開きシグナルを弁別し，CFD のアウトプットからシグナルを取り出し，TAC/SCA モジュール（ORTEC 社，567）の START インプットに入れた．STOP シグナル（511 keV）を検出した PMT の A1 からでたシグナルも同様に 2 つに分岐し，一方をデジタルオシロスコープの 2 ch へいれ，もう一方は，CFD でエネルギー弁別（0.1–0.5 V）した．CFD のアウトプットから出た STOP シグナルは，DELAY モジュール（ORTEC 社，425A）で遅延（本研究では 31 ns）を加え，TAC/SCA モジュール（ORTEC 社，567）の STOP インプットに入れた．START シグナルと STOP シグナルの時間差で生じるシグナルを，TAC/SCA モジュール背面の

SCAoutput から取り出し，GATE & DELAY GENERATOR モジュール（ORTEC 社:416A）の positive input に入れた．16 μs の遅延をかけた後に，positive output からシグナルを取り出し，デジタルオシロスコープの Ext トリガーに入れた．

Ge 半導体には，5 kV BIAS SUPPLY モジュール（ORTEC 社:659）を用い +3000 V 印加した．Ge 半導体検出器からのアウトプットシグナルは，SPECTROSCOPY AMPLIFIER（ORTEC 社: 672）を用いシグナルを増幅した．その際，FINEGAIN は 1.2 倍，COARSE GAIN は 50 倍，SHAPING TIME は 6 μs で行った．Ge のアウトプットシグナルを２つに分配して，400MHz の周波数帯域とサンプリングレート 20GS/s のデジタルオシロスコープ（LECROY 社: WaveRunner 604Zi）の 3 ch，4 ch でモニターした．

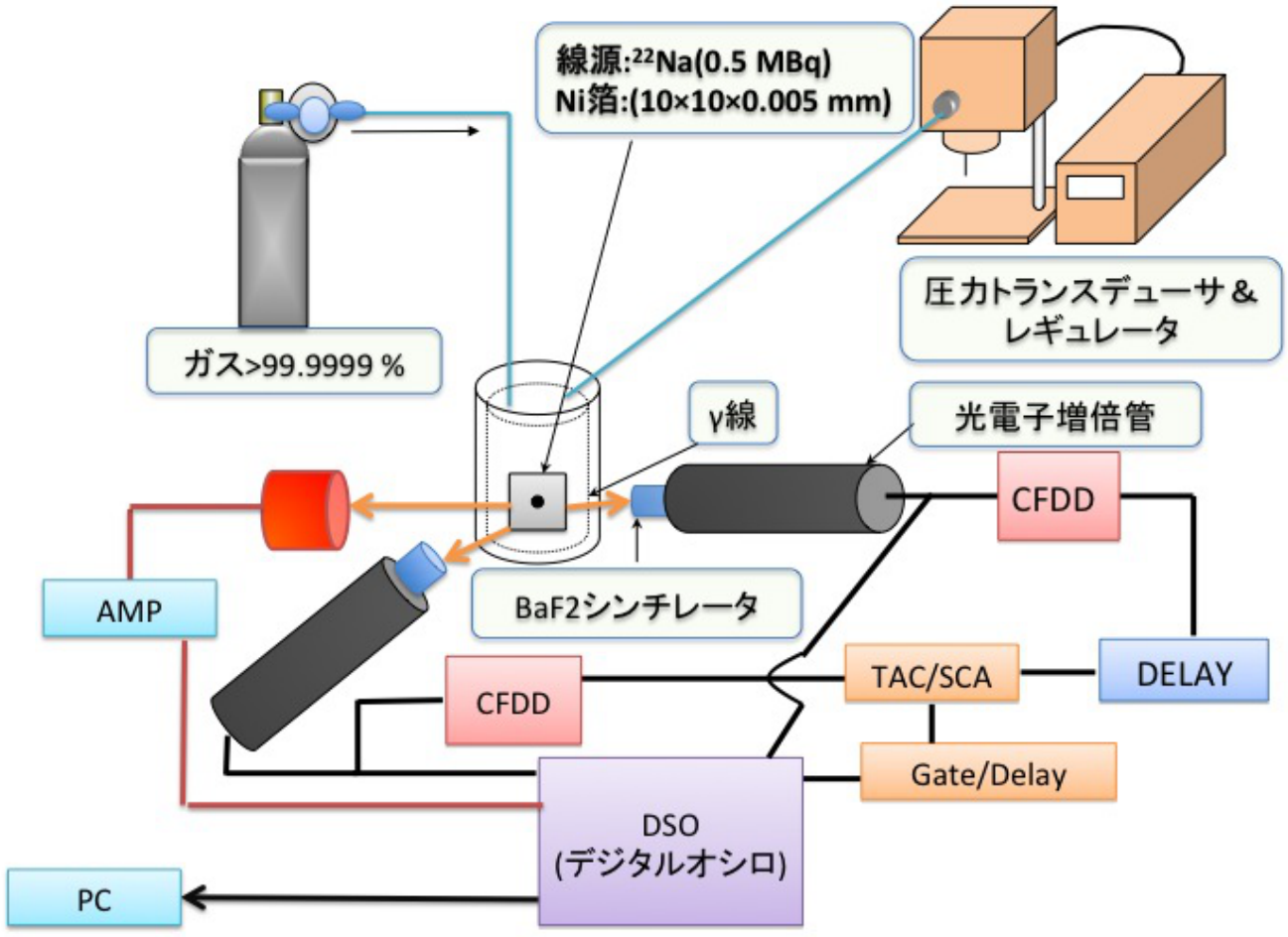


図 3.10　デジタルオシロスコープ AMOC システムの概略図

本研究では，デジタルオシロスコープ上でシグナルを弁別する際に，以下の条件で行った．具体的な数値と共に記す．START シグナルを入れたデジタルオシロスコープ上のチャンネル１（C1）の設定は，Vertical Scale を 114 mV/div とし，Offset は 392 mV とした．STOP シグナルを入れた C2 は，Vertical Scale を 90 mV/div とし，Offset は 301.5 mV とした．Ge 由来のシグナルを入れた C3 は，511 keV の γ 線の波高のピークの高さ選別するために，Vertical Scale を 250 mV/div，Offset を-4 V とした．Ge 由来のシグナルを入れた C4 は，パイルアップしたバックグラウンドとなるシグナルを排除するために，Vertical Scale を 250 mV/div，Offset を 0 V とした．

Timebase の条件について，Sampling Mode は Sequence モード，Timebase Mode は 5.00 µs，Delay は-2.9 µs，Real Time Sampling Rate は 5 GS/s とした．Trigger は，MultiStage Type，Qualified（Arm trigger on Event ‘A’ : State，Then trigger on Event ‘B’ : Edge，When ‘B’ occurs : Any Time）に設定した．Ge 由来の 511 keV シグナルは，およそ 5 V の波高であった．Event ‘A’ には，C3 に Above 2.976 V の条件をかし，511 keV 由来のシグナルが来た場合は常に Event ‘B’ に移行させた．Event ‘B’ では，陽電子寿命により発生させた GATE & DELAY GENERATOR モジュールからのシグナルの判別を行った．GATE & DELAY GENERATOR モジュールは，波高 5 V の正の矩形波を出力していたため，positive slope の 0.41 V とした．これらを Any Time で従属させることにより，トリプルコインシデンスをとった．10 イベント観測時の例を図 3.11 に示す．最上段は，対消滅由来の 511 keV の γ 線を Ge 半導体検出器を用いて検出したシグナルのピーク．2 段目が同シグナルの裾野．３段目と４段目はそれぞれ，陽電子寿命を測定するためのスタートシグナルとストップシグナル．1 段目では正しく 511 keV のエネルギーの γ 線を検出できているかをモニターし，2 段目ではシグナル同士が重なり合ってパイルアップが生じていないかをモニターしている．3 段目と 4 段目に関しては，スタートシグナルとストップシグナルの波形および測定頻度をモニターしている．スタートシグナル用の PMT は耐圧セルにベタづけであるため，ストップシグナルに比べてバックグラウンドが高かった．

10 イベントごとを 1 データとし LAN ケーブルで PC にデータを送り，プログラムで解析することで 3 次元スペクトルを得た．時間方向は，1 ch あたり 10 ps であった．2 次元 MCA-AMOC システムでは MCA1 ch あたりのエネルギー（keV）を求めるために，511 keV の γ 線に加えて 1275 keV の γ 線もモニターしていた．2 次元 MCA のチャンネル数も 512 ch と限られていたため，エネルギー分解能は，0.34 keV/チャンネルに制限されていた．本研究において用いたデジタルオシロスコープでは 511 keV 周辺のエネルギーを拡大し，詳細に測定した．本来は，2DMCA でのエネルギーキャリブレーション方法と同様に 511 keV 付近のエネルギーを放出する放射性核種を用いてキャリブレーションするべきであったが，デジタルオシロスコープでの AMOC システムにおけるキャリブレーションは以下の方法で見積もった．消滅 γ 線のドップラー広がりから，Ps の運動エネルギーを求める際には，1 ch あたりのエネルギー幅（keV）を正確に求める必要がある．Ar ガス中における熱化陽電子の対消滅 γ 線のドップラー広がりは FWHM で 2.30 keV である [7]．デジタルオシロスコープ AMOC 測定装置で測定した，Ar ガス中における熱化陽電子の対消滅 γ 線のドップラー広がりを用いて，エネルギーキャリブレーションをおこなった．デジタルオシロスコープ AMOC 測定装置では，1 ch あたりのエネ

ルギーは 0.059 keV とした．

デジタルオシロスコープ-AMOC システムにより測定された，Ar 7.5 MPa 中における AMOC–3 次元スペクトルを図 3.12 に示す．2 次元 MCA-AMOC システムで測定したデータ（図 3.8）比べ，511 keV 周辺のみ計測されている．

一方で，γ 線を検出するためのシンチレータの種類やサイズを検討し，γ 線の検出効率の改善を行った．従来は γ 線の検出にプラスティックシンチレータを用いていたが，より密度の大きな BaF_2 シンチレータを導入した．BaF_2 シンチレータのサイズは対消滅 γ 線を検出する際に，幾何効率が Ge 半導体検出器と同程度となるように，直径を決めた．これにより，線源から Ge 半導体検出器と BaF_2 シンチレータを同じ距離におくことで，線源からの立体角を合わせることができる．また，高さは陽電子消滅寿命スペクトルの時間分解能が 300 ps 以下となるような最大の大きさとした．直径 5 cm，高さ 3 cm の円筒形の BaF_2 を導入することでプラスティックシンチレータに比べ，陽電子消滅寿命測定法の検出効率が 12.6 倍に向上した．2 次元 MCA を使った AMOC システムで，プラスティックシンチレータから BaF_2 シンチレータへ交換した際の計数率の変化を見積もると，プラスティックシンチレータでは計数率が $0.23s^{-1}$ であったが，BaF_2 では $2.48s^{-1}$ となり，およそ１０.8 倍程度改善した．

実際にデジタルオシロスコープを用いた AMOC 測定においては，dead-time が 2 % 以下となる距離（25 cm）まで離して測定した．計数率は 4.2 cps で，プラスティックシンチレータを用い 2 次元 MCA–AMOC システムで測定した場合に比べて，トリプルコインシデンスによる計数率は 5 倍であった．



図 3.11　デジタルオシロスコープの設定および，トリプルコインシデンスを１０データ表示した結果．最上段は，対消滅由来の 511 keV の γ 線を Ge 半導体検出器を用いて検出したシグナルのピーク．2 段目が同シグナルの裾野．３段目と４段目はそれぞれ，陽電子寿命を測定するためのスタートシグナルとストップシグナル．1 ch の縦軸は 114 mV/div，2 ch の縦軸は 90 mV/div，3 ch の縦軸は 250 mV/div，4 ch の縦軸は 250 mV/div，横軸は 5 µs である．スタートシグナル用の PMT は STOP シグナル用のシンチレータに比べ耐圧セルに近い．そのため，γ 線の計数率が高かった．

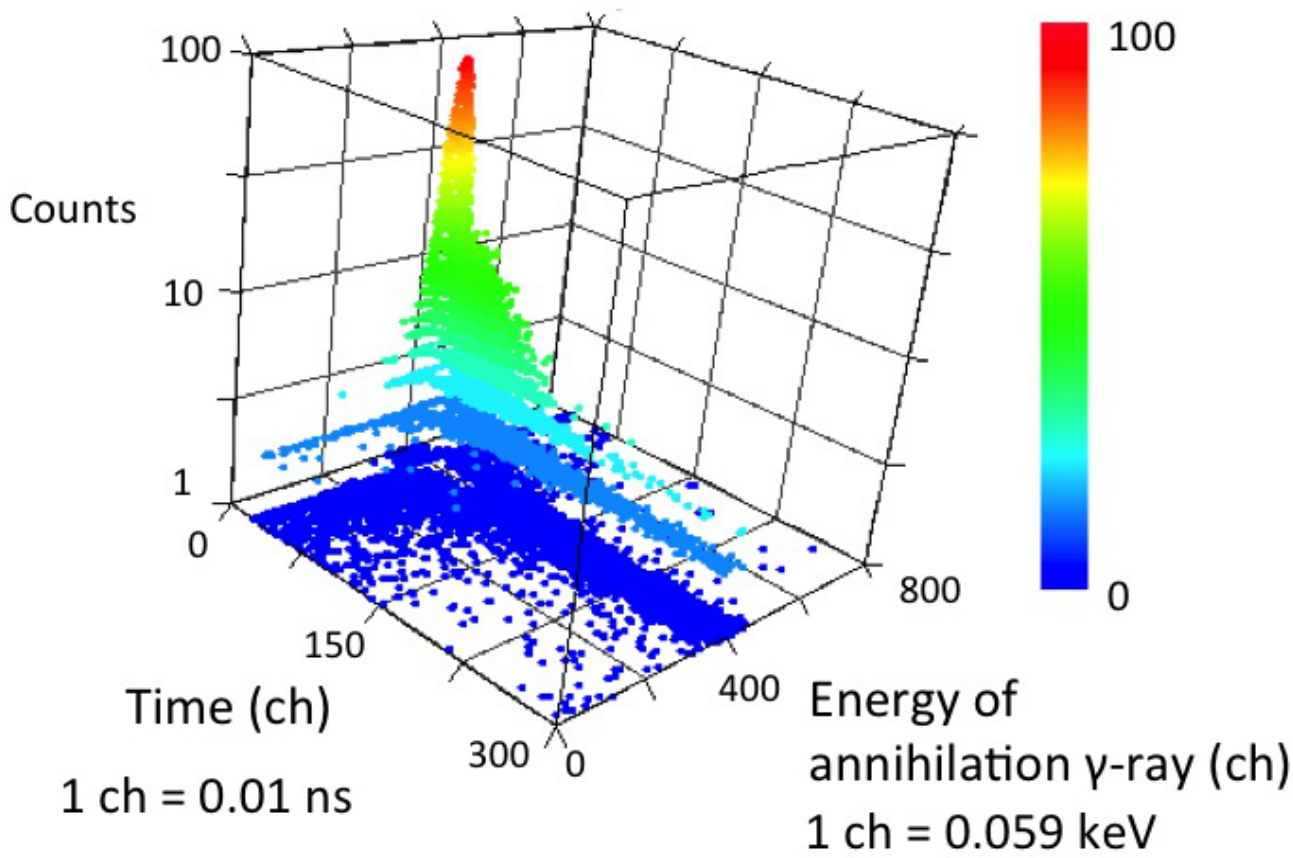


図 3.12　デジタルオシロスコープ AMOC システムで測定した Ar 7.5 MPa 中における 3 次元スペクトル．垂直方向軸はカウント数．平面方向横軸は時刻（ns），平面方向縦軸は対消滅 γ 線のエネルギーである．

3.6 デジタルオシロスコープ AMOC 測定におけるバックグラウンド

デジタルオシロスコープ AMOC システムでは，陽電子の寿命と消滅 γ 線のコインシデンスをとる際に必要なゲートをデジタルオシロスコープ外のモジュール類を用いて発生させている．その方法は，陽電子の寿命シグナル（START シグナルおよび STOP シグナル）を 2 つに分岐させる．一方はデジタルオシロスコープで陽電子の寿命測定に用い，もう一方でゲートを作る．分岐したゲート用 START および STOP シグナルを CFD でエネルギー弁別し，その後 TAC を通して得たブロック波を用いて，GATE&DELAY GENERATOR モジュールでエネルギーシグナルを選別するためのゲートを発生させた．GATE&DELAY GENERATOR で発生したゲートはデジタルオシロスコープ上で，分岐した陽電子の TAC シグナルと Ge 半導体検出器由来のエネルギーシグナルとコインシデンスをとっている．この AMOC システムにて，Ge 半導体検出器と STOP シンチレータの幾何配置を 180 度からずらしてトリプルコインシデンス測定を行うと，その計数率は 0 となった．この原因としては，以下の理由が考えられる．2 次元 MCA を用いた AMOC システムでは，線源からの距離を 2 cm としたために間違った STOP シグナルを検出することによるゲートの発生頻度が高かったが，デジタルオシロスコープを用いた AMOC システムでは STOP シンチレータを 16 cm 下げたことにより，間違った STOP シグナルを検出することによるゲートの発生頻度が低下したためと考えられる．すなわち，図 (3.5) にて、点線の傾きがほぼ 0 になることを意味する．

実際に，今回デジタルオシロスコープ AMOC 測定によるデータを解析する際のバックグラウンドは，

- Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンド
- PAL スペクトルのバックグラウンド
- Ni 成分の除去

である．

■Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンドおよび，PAL スペクトルのバックグラウンドについては，2 次元 MCA-AMOC システムと同様に除いた．全カウント数に対する Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンドは 6 % であった．デジタルオシロスコープ AMOC システムにおける Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンドが，2 次元 MCA-AMOC システム（11 %）に比べ小さい理由は，デジタルオシロスコープ上で offset によりエネルギーを選別し低いエネルギーの γ 線を除くことができるためである．

■ また，デジタルオシロスコープ AMOC システムにおける PAL スペクトルのバックグラウンドは 6 % で，2 次元 MCA-AMOC システムに比べ小さい値であった（13 %）．これは，デジタルオシロスコープ AMOC シス

テムでは陽電子消滅時間の時間幅を 30 ns で測定したのに対し，2 次元 MCA-AMOC システムでは 40 ns と長い時間間隔で測定していたためと考えられる．

■Ni 成分の強度は，Ni 線源に厚み 2 mm のポリイミド箔を被せることで PAL 測定し，PATFIT プログラムで解析することで 14 % と決定した．また，Ni 成分のドップラー広がりは，Coincidence-Doppler 法で決定した (3.9)．

これらバックグラウンドを除いた残りの正しいシグナルは，全カウント数に対して 74 % であった．デジタルオシロスコープ AMOC システムにおける全カウント数を勘定する時間は –2.53–31.7 ns で，エネルギーは 488.3 – –535.8 keV であった．2 次元 MCA では正しいシグナルの割合が全カウント数に対して 49 % であったが，これはデジタルオシロスコープ AMOC システムで測定した際には，アナログシステムでの測定に比べ t = 0 ns の 511 keV のピーク付近を拡大して測定していたためである．弱い線源を使うことや，STOP シンチレータを後方に下げることにより，間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドを減らすことが重要である．

3.7 Coincidence-Doppler 法による線源成分のドップラー広がり

Ni 箔を 2 mm の厚みの Ni 板にはさみ，ドップラー広がりを測定した．Ni 箔中における陽電子対消滅 γ 線のドップラー広がりの測定は，Coincidence-Doppler 法を用いた．Coincidence-Doppler 法とは陽電子対消滅 γ 線の二本のシグナルを，２台の Ge 半導体検出器で検出する手法である．Coincidence-Doppler 法では ^{22}Na から放出される 1275 keV の γ 線のコンプトン散乱など，バックグラウンド成分を除くことができる．１つの Ge 半導体検出器でドップラー広がりを測定するよりも，より詳細にドップラー広がりを測定することができる．

Coincidence-Doppler 法の調整は，パルスジェネレイターを用いて行った．パルスジェネレイター（大阪電波，GEM20P470）の output シグナルを T 字分配器で分配し，２つの Ge 半導体検出器の TEST にいれ，Ge の output シグナルを AMP で増幅し，オシロスコープでほぼ同時刻に波形がくるように時間を合わせた（図 3.13:(a)）．サンプルは，厚さ 1.5 mm の 1 cm 四方の Ni の中心に ^{22}Na を直接滴下し，同サイズの板ではさみ線源とした．２つの Ge 半導体検出器に入射して発生した，Ni 中で消滅した ^{22}Na の 511 keV 対消滅 γ 線由来のシグナルをオシロスコープで確認した（図 3.13:(b)）．Ge 半導体検出器のキャリブレーションは，^{22}Na 線源の 511 keV および 1275 keV，^{137}Cs の 662 keV の γ 線を用いて行った．Ge 半導体検出器は 1 ch あたりそれぞれ 0.30 keV/ch(Ge1: ORTEC 社，GEM20P470)，0.31 keV/ch（Ge2: ORTEC 社，GEM20P470-Rb）．また，2 次元 MCA（(株）ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション，NT-24 DUAL）の coincidence-time は 1 μs とし，512 ch × 512 ch で測定した（図 3.14:(a)）．計数率は，0.09 cps であった．得られた実験結果を図 3.14 の (b) に示す．縦軸と横軸の 1ch あたりのエネルギー間隔が近いため，軸に対してほぼ 45 度方向にピークが広がって見える．Ni 箔の成分を決める際に，斜めの成分を抜き出して解析した．

Ni 箔のドップラー広がりは，2 つのカウス関数を実験値に最適となるように適合することで決定した．関数 1 の FWHM（keV）は 4.8，関数 2 の FWHM は 2.37 であった．それぞれの強度比は，0.37 : 0.63 であった．

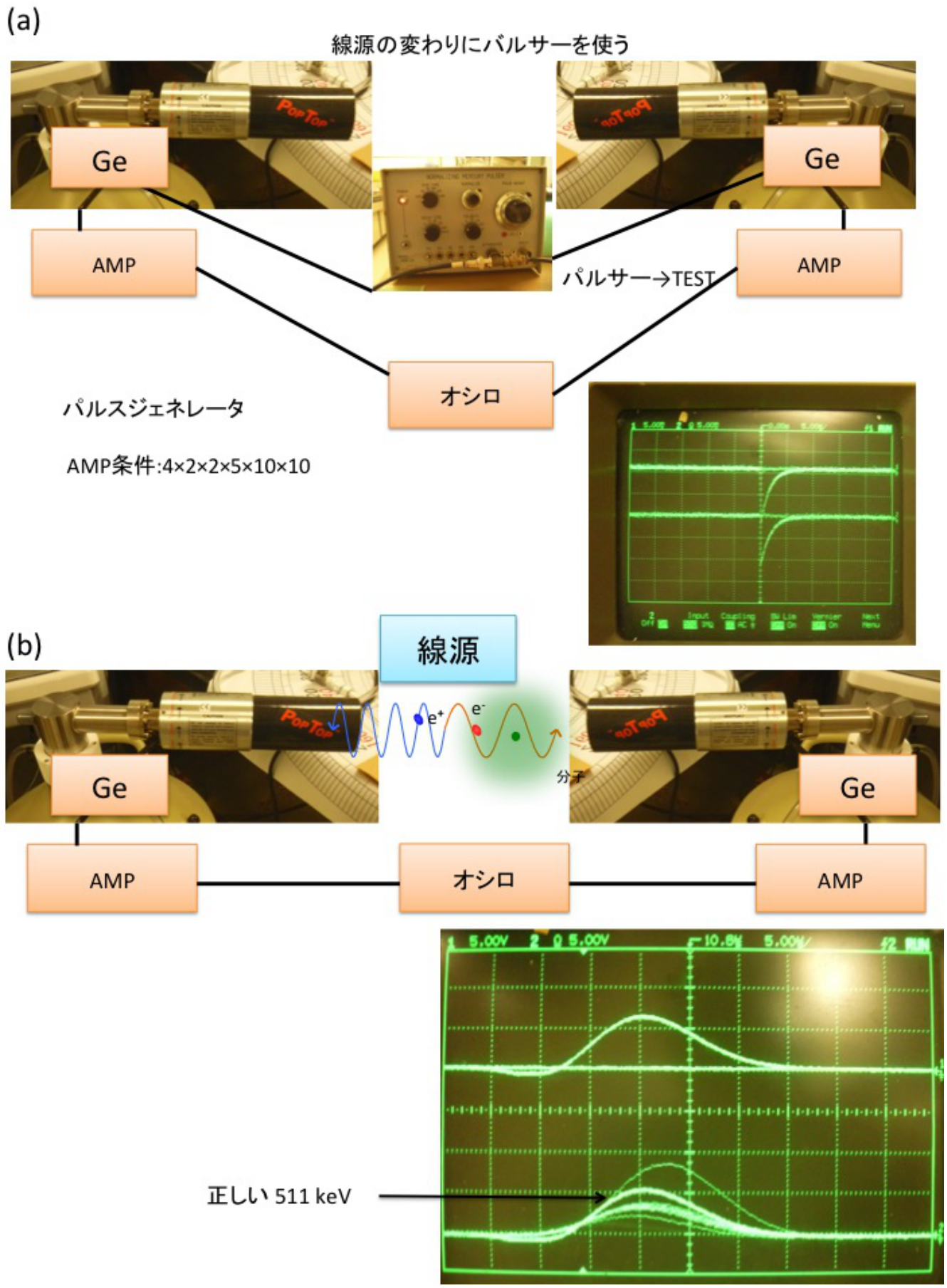


図 3.13　Coincidence-Doppler 実験装置調整図．(a) パルスジェネレータを使い，シグナルの調整時における装置図とオシロスコープの画面を示した．(b)^{22}Na を使って，実際の対消滅 γ 線の確認した際の装置図とオシロスコープの画面を示した．

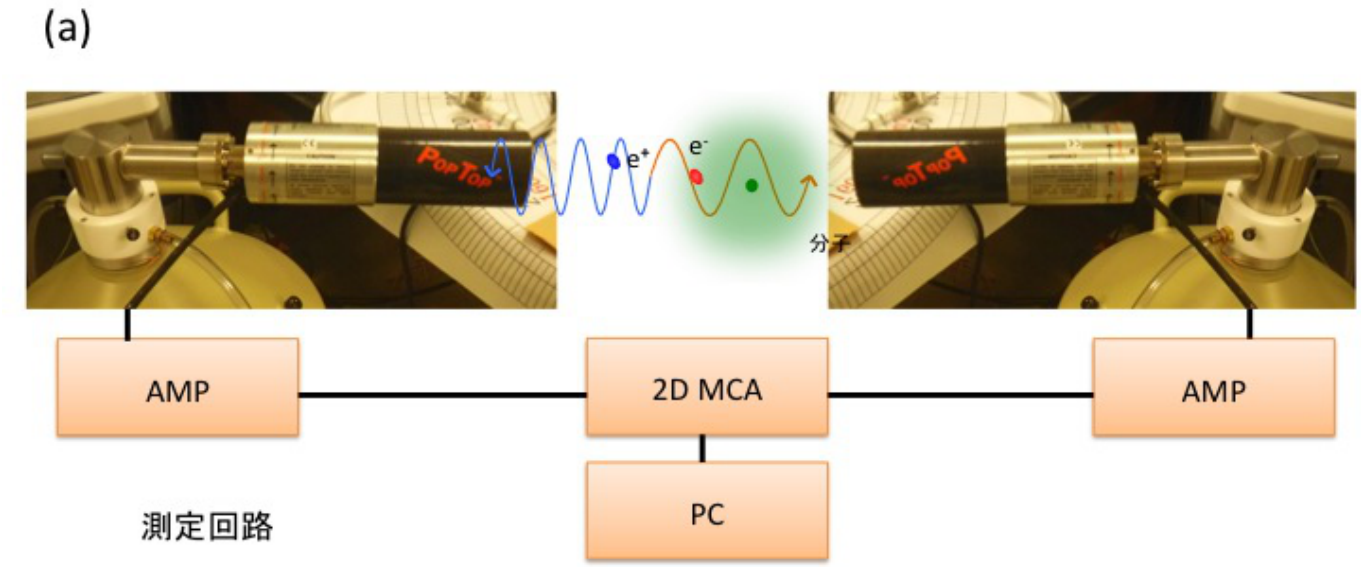


図 3.14　(a):Coincidence-Doppler 実験装置図．(b):Ni1.5 mm 中で消滅した陽電子の Coincidence-Doppler 測定の結果をしめした．左上の図は，３次元スペクトルを鳥瞰視したもの．右上は，横方向に和をとり，縦方向に切り出した図．左下は，縦方向に和をとり，横方向に切り出した図．四角は，バックグラウンドを含む値．ダイアモンドはバックグラウンドを除いた値である．縦軸はカウント数，横軸は 511 keV からのドップラー広がりである（keV）．右下は，３次元スペクトルを左下側横方向から見た図．

第 4 章

AMOC 法による Ar ガス中における陽電子減速過程の研究

Ar ガス中における陽電子減速過程は，陽電子寿命スペクトルのショルダー構造を使って議論されてきた．図 4.1 に Ar ガス 7.5 MPa における陽電子寿命スペクトルを示す．挿入図は，ショルダー部分を拡大したものである．ショルダー構造の終端が陽電子の熱化（0.039 eV）時間に対応し，Ar ガス 7.5 MPa においては陽電子はおよそ 5 ns で熱化することがわかった．しかしながら，1 ns 以内の早い時間では，陽電子の自由消滅過程と *p*-Ps や線源成分の消滅過程が混在するため，寿命スペクトルから陽電子の減速過程を観測することができなかった．そこで本研究では，陽電子のガス中における減速過程において，消滅した際に放出する γ 線の運動エネルギーの時間変化に着目し，Ar ガスの非弾性散乱しきい値直下のエネルギーにおける陽電子の減速過程を研究することを目的とした．

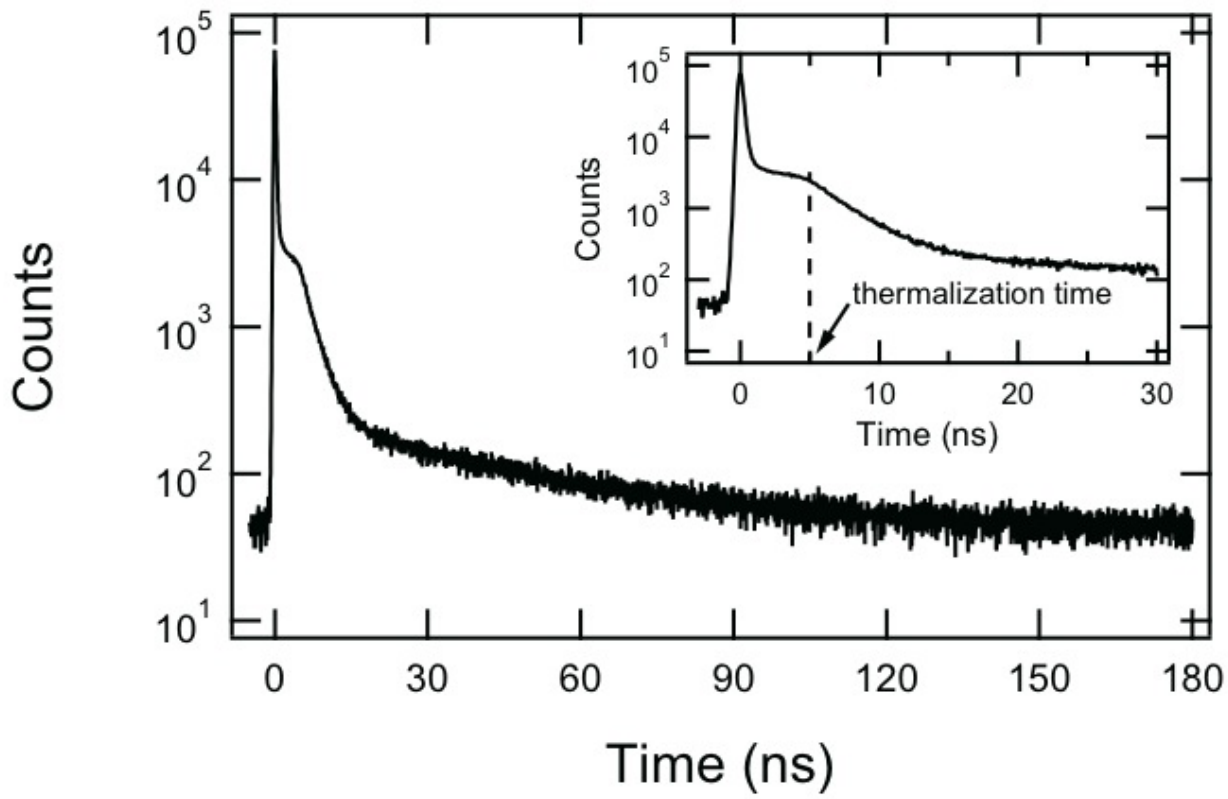


図 4.1　Ar 7.5 MPa における陽電子寿命スペクトル．挿入図はショルダー部分の拡大図．（Reprinted from Optimisation of the thickness of the moderator for positron annihilation process study in Ar gas, 68, 2014, 2, Results and discussion, Oka, Toshitaka and Sano, Yosuke and Kino, Yasushi and Sekine, Tsutomu, with permisson from European Physical Journal D.）

4.1　Ar ガス 7.5 MPa における S-parameter と W-parameter の時間変化

陽電子対消滅 γ 線の運動エネルギーは，消滅直前の陽電子の運動エネルギーと消滅相手の電子の運動エネルギーに依存する．図 4.2 に Ar ガス 7.5 MPa 中における t = 0.4 ns でのドップラー広がりを示した．運動エネルギーの 1 ns 以前の時間変化を詳細に調べるため，ここでは S-parameter と W-parameter という指標を導入した．陽電子の対消滅 γ 線のうち，ドップラー広がりの小さい成分の割合を S-parameter，大きい成分の割合を W-parameter として 1 ns 以前の時間における陽電子の運動エネルギーの時間変化についてドップラー広がりを解析した．本研究では，陽電子と電子の静止質量エネルギーの 511 keV を中心として，$|\Delta E| < 5.0$ keV を対消滅 γ 由来のピークとした．S-parameter を定義する際に狭い成分は，ピーク中止から $|\Delta E| < 0.5$ keV，W-parameter はピークの両端 3.0 keV ($|\Delta E| > 2.0$ keV) とした．小さな運動量を持った陽電子が消滅した際に放出する γ 線の割合が高い場合，S-parameter が大きな値となる．それに対して，大きな運動量を持った陽電子が消滅した際に放出する γ 線の割合が高い場合，W-parameter の値が大きな値を示す．この図において S-parameter は 0.344，W-parameter は 0.127 であった．

図 4.3(a) に W-parameter の時間発展を，図 4.3(b) に S-parameter の時間発展を示した．Iwata らによれば陽電子の運動エネルギーが Ar の価電子の運動エネルギーよりも十分小さな場合において，Ar ガスと熱化陽電子による対消滅 γ 線のドップラー広がりは，FWHM で 2.30 keV であった [7]．本研究において Ar ガス中における陽電子のドップラー広がりが，正しく測定されていることを確かめるために，陽電子が熱化した 5 ns におけるドップラー広がりをデコンボルーションし，ドップラー広がりを求めた．ドップラー広がりは，2.25 ± 0.04 keV であり，Iwata らの結果とほぼ同等だった．

W-parameter は，t = 0 において 0.147 の値をとり，1 ns の間に 0.090 まで減少し，その後陽電子が熱化する (5 ns) 以前に一定値となった．陽電子と対消滅をする Ar の価電子の運動エネルギーは，Ar のイオン化エネルギーと同程度であると考えられる（15.7 eV）．陽電子の減速過程は，Ar の電子励起しきい値 (11.6 eV) から減速を始める．1 ns 以降では，陽電子の運動エネルギーが Ar の価電子の運動エネルギーより十分小さくなり，陽電子の運動エネルギー変化がドップラー広がりに反映されなくなったためである．

S-parameter は，1 ns の間に 0.358 まで上昇し，その後一定値となった．S-parameter には，ドップラー広がりの狭い p-Ps の成分が含まれている．陽電子寿命スペクトルの o-Ps 成分から，t = 0 ns において p-Ps の成分の寄与を計算すると，S-parameter におよそ 30 % の影響を与えていた．p-Ps の成分を除くと，S-paramter は t = 0 ns で 0.286 であった．S-parameter も W-parameter と同様に陽電子減速過程を反映して，時間と共に増加していることがわかった．

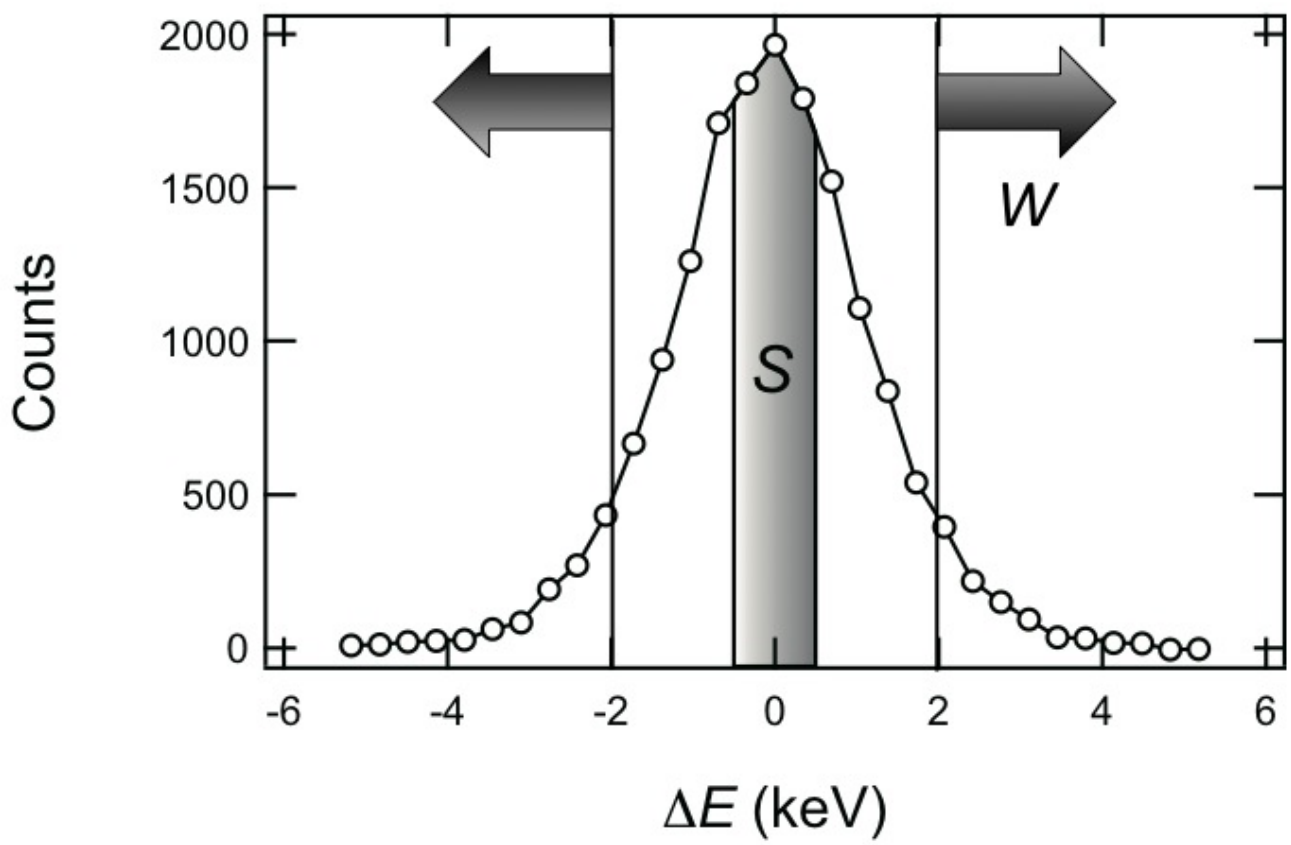


図 4.2　Ar 7.5 MPa で測定した t = 0.4 ns におけるドップラー広がり．S-parameter は全体の面積に対する図中央部分の割合で定義した．W-parameter は全体の面積に対する，図の両端部分の面積で定義した．（Reprinted from Energy loss of positrons below the excitation threshold in Ar gas, Yosuke Sano and Yasushi Kino and Toshitaka Oka and Tsutomu Sekine, Results and Disscusion, 2, Copyright (2014), with permission from JSAP Journals.）

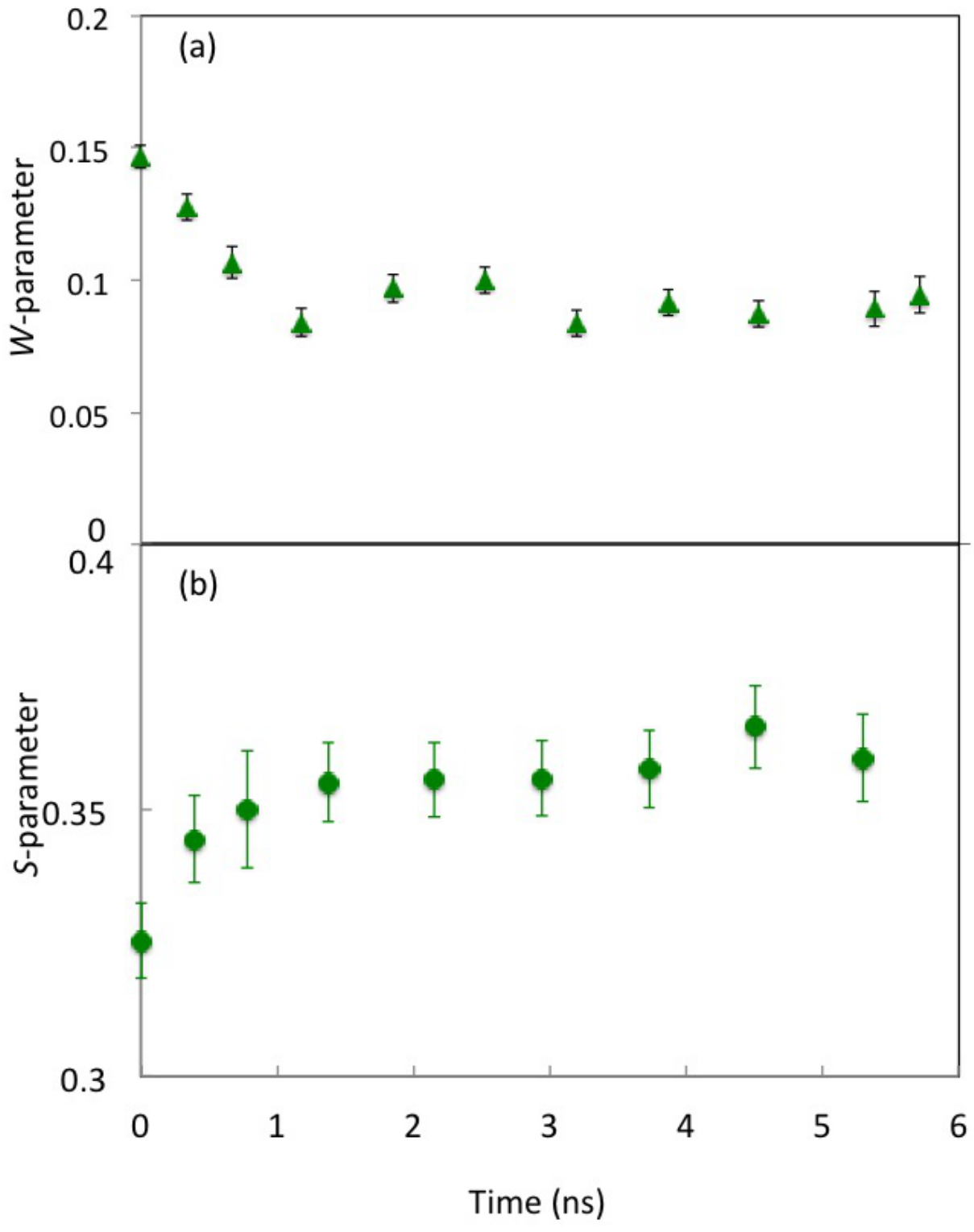


図 4.3　Ar 7.5 MPa における，(a) *W*-parameter と (b) *S*-parameter それぞれの時間発展．（Reprinted from Energy loss of positrons below the excitation threshold in Ar gas, Yosuke Sano and Yasushi Kino and Toshitaka Oka and Tsutomu Sekine, Results and Disscusion, 3, Copyright (2014), with permission from The Japan Society of Applied Physics.）

4.2　結果と考察

陽電子は Ar ガスに入射すると，Ar ガスの第一電子励起しきい値（11.6 eV）まで速やかに減速する．それ以下のエネルギーにおいては陽電子は弾性散乱によってのみエネルギーを失う．その際，陽電子のエネルギーを受け取る陽電子の衝突相手である Ar は，室温のエネルギー（0.039 eV）を持つ．陽電子と衝突するターゲット粒子もエネルギーを持つ際に有用な陽電子減速モデルを用いて，Ar ガス中における陽電子減速過程について考察した．陽電子の運動エネルギーの時間変化は以下の微分方程式で記述することができる [99, 132].

$$\frac{\mathrm{d}E_{\mathrm{e}^+}(t)}{\mathrm{d}t} = -\frac{2n_{\mathrm{Ar}}\sigma_m M_{\mathrm{Ar}}}{(M_{\mathrm{Ar}} + m_{\mathrm{e}^+})^2}\sqrt{2m_{\mathrm{e}^+}E_{\mathrm{e}^+}(t)}\left(E_{\mathrm{e}^+}(t) - \frac{3}{2}k_{\mathrm{B}}T\right) \tag{4.1}$$

ここで，σ_{m} は，e^+–Ar の運動量移行断面積 M_{Ar} は Ar の質量，m_{e^+} は e^+ の質量，n_{Ar} は Ar の数密度，k_{B} はボルツマン定数，T は温度である．運動量移行断面積は McEachran らの値を使い [131]，陽電子の初期運動エネルギー（$E_{\mathrm{e}^+}(0)$）を 11.6 eV として陽電子運動エネルギーの時間変化を計算した（図 4.4）.

陽電子減速モデルから得られた結果より，陽電子は Ar ガス 7.5 MPa 中において 1.0 ns の間に 2.5 eV の運動エネルギーまで減速することがわかった．その後，2.5 eV 以下では緩やかにエネルギーを失い，5 ns で 0.039 eV まで減速し熱化することが分かった．計算結果より求められた陽電子熱化時間（5 ns）は，陽電子寿命スペクトルにおけるショルダー構造から見積もられた陽電子熱化時間と一致した．*S*-parameter と *W*-parameter は，それぞれ 1.0 ns まで増加および減少し，その後一定の値であった．陽電子減速モデルと比較すると，*S*-parameter と *W*-parameter によって，2.5 eV まで Ar ガス中における陽電子の減速を観測することができた．一方で，1.0 ns 以降では，*S*-parameter と *W*-parameter が変化しなかった．1.0 ns 以降では，陽電子は 2.5 eV 以下の運動エネルギーしか持たず，その際に放出する γ 線のドップラー広がりは，陽電子の消滅相手である Ar 原子の価電子のもつ運動エネルギーが反映され，陽電子自身のエネルギーがドップラー広がりに反映されないためと考えられる．陽電子寿命スペクトルにおける陽電子消滅速度の変化からは観測することができなかった，Ar ガスの非弾性散乱しきい値直下（11.6 eV–2.5 eV）のエネルギーにおける陽電子の減速過程を，*S*-parameter と *W*-parameter によって観測することに成功した [133].

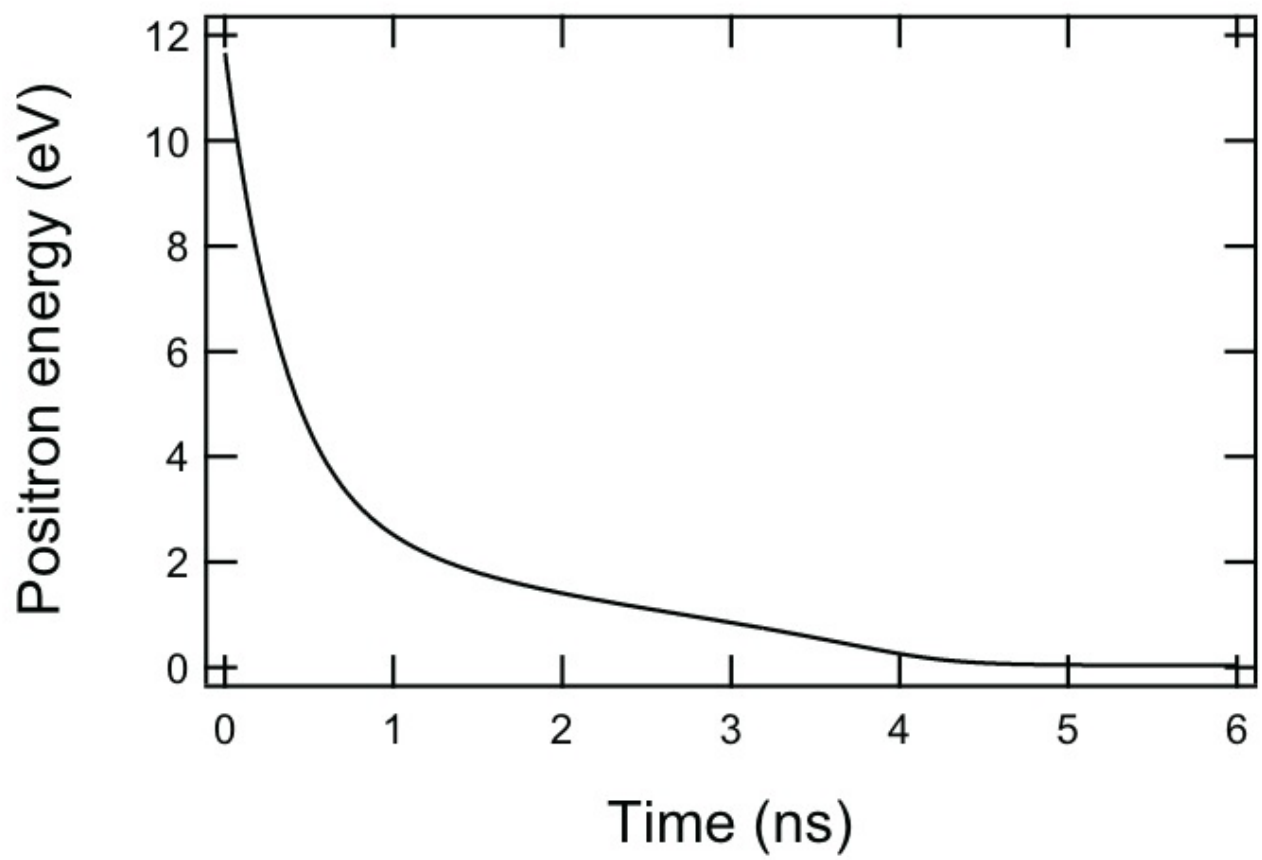


図 4.4　陽電子減速モデルによる Ar 7.5 MPa における陽電子エネルギーの時間依存性．（Reprinted from Energy loss of positrons below the excitation threshold in Ar gas, Yosuke Sano and Yasushi Kino and Toshitaka Oka and Tsutomu Sekine, Results and Disscusion, 3 , Copyright (2014), with permission from JSAP Journals.）

第 5 章

AMOC 法による貴ガス中における Ps 減速過程の研究

5.1　概要

貴ガス中に入射した陽電子は，貴ガスの Ps 生成しきい値（Ar の場合は，9 eV）までは非弾性散乱により数 ps で減速する．その後は弾性散乱により，1 ns 以上の時間をかけて減速する．貴ガス中での陽電子寿命スペクトルには陽電子の減速過程を反映した特徴的なショルダー構造が存在する（図 4.1）．ガス中で生成した Ps の運動エネルギーは入射陽電子の運動エネルギーに依存する．Ps 生成は陽電子の運動エネルギー（E_0）が原子のイオン化エネルギー（E_I）から Ps の束縛エネルギー（E_Ps = 6.8 eV）を除いた値よりも大きい場合にのみ起こる．

$$E_0 > E_\mathrm{I} - E_\mathrm{Ps} \tag{5.1}$$

また，E_ex を原子の第一電子励起エネルギーとすると，陽電子の運動エネルギーが $E_0 < E < E_\mathrm{ex}$ の範囲に存在するときには，非弾性散乱過程として Ps 生成のみが生じる．このエネルギーレンジはオーレギャップと呼ばれており，Ps の平均初期運動エネルギーや Ps 生成割合が見積もられてきた．Ar ガスの場合は，オーレギャップは 9 eV （Ps 生成しきい値）から 11.7 eV （第一電子励起エネルギー）である．

生成後の Ps も陽電子と同様に周囲のガスと散乱して減速するが, Ps の場合は自身の束縛エネルギー（6.8 eV）よりも高い運動エネルギーを持つと，散乱時に解離して電子と陽電子を放出する．結果として，6.8 eV 以下の運動エネルギーを持つ Ps は（Ps の励起過程を除いて）弾性散乱にのみよりエネルギーを失うが，Ps の減速過程が解明されていなかった．貴ガス中における Ps の減速過程を観測することで，貴ガスと Ps の運動量移行断面積を求めることができる．貴ガスとの散乱においては，貴ガスの最低励起しきい値以下かつ入射粒子が等方的に散乱される低エネルギーで，運動量移行断面積が全断面積と等しくなる．

先行研究において，15 eV 以上のエネルギーでは電子と陽電子からなる Ps–原子分子の散乱断面積が電子-原子分子の散乱断面積と近くなることがわかり [113]，155 eV 以下での Ps-原子分子の散乱断面積の振る舞いが電子と原子分子の散乱断面積と同様に振る舞うのか議論がなされてきた [91]．15 eV 以下のエネルギーにおける Ps–貴ガスの散乱断面積は，陽電子消滅 γ 線角相関測定 [99] や時間分解ドップラー広がり法 [95] で測定されている．陽電子消滅 γ 線角相関測定法を用いた測定では，シリカエアロゲル中で生成した Ps に磁場を作用させる．*o*-Ps を磁場クエンチングにより 2 光子消滅させ，その消滅 γ 線のドップラー広がりから運動量移行断面積を求めている．一方で，ドップラー広がり法では希薄な貴ガス中において，*o*-Ps が消滅する時間領域のドップラー広がりを選別し運動量移行断面積を求めている．本研究の新規性は，ガス中で生成した *p*-Ps のエネルギー変化を時間の関数として観測することである．*p*-Ps の自己消滅過程では 2 光子を放出するため，磁場などによるクエンチングをさせる必要がなく運動量を求めることができる．また *p*-Ps は消滅速度が速いため、生成直後のエネルギー変化を観測しやすい．その γ 線のドップラー広がりを時間の関数として観測することで，生成直後からの運動量変化を知ることができる．Ps ビーム実験と比べ，小規模な実験装置で散乱断面積を測定できるメリットもある．

本研究は，貴ガス中における Ps の弾性散乱による減速過程を解明し，Ps と貴ガスの運動量移行断面積を求めた.

5.2　2 次元 MCA–AMOC システムによる実験結果および解析

Ar ガス 5.0，7.5 MPa，Ne ガス 5.0，7.5 MPa 中において，3 章の実験装置を用い AMOC 測定を行った．この実験条件では，陽電子と貴ガスにおいて多対効果が生じずかつ貴ガス中で陽電子が止まる（第 2 章）．陽電子線源の線量や，2 次元 MCA のコインデンス時間など他の実験条件は同様である．

p-Ps は 0.125 ns の寿命で自己消滅する．また，*p*-Ps は自己消滅するためその消滅 γ 線のドップラー広がりは他のピックオフ消滅過程によるドップラー広がりよりも狭い．本研究では，ドップラー広がりを関数を用いて実験値に最適となるように適合することで *p*-Ps と他の成分に分離して，*p*-Ps の運動エネルギー変化を解析した．$t = 0$ 付近の早い時間では，*o*-Ps のピックオフ成分は *p*-Ps 成分や自由陽電子成分に比べて十分に小さい．また，自由陽電子消滅成分や *o*-Ps のピックオフ消滅成分のドップラー広がりは Ar の価電子の運動量に影響されるため，近い値を示す．そのため，*p*-Ps 成分の細い成分と自由陽電子消滅や *o*-Ps のピックオフ消滅成分に起因する広い成分を表現するためにガウス関数を 2 つ用いた．3 成分による解析も試みたが，2 成分の解析に時に得られた幅の広い成分を 2 つに分割する結果となったため，解析には 2 成分で十分と判断した．関数を実験値に適合する際に *p*-Ps と他の成分の強度は陽電子寿命測定法から見積もり，*p*-Ps と他の成分のエネルギー（ガウス関数の幅）を変数とした．図 5.1 に，Ar 7.5 MPa で測定した時刻 0，0.4，2.4 ns における，消滅 γ 線のドップラー広がりを示した．縦軸はカウント数，横軸は陽電子と電子の静止質量エネルギー（511 keV）を中心としたドップラー広がり（keV）である．*p*-Ps の成分は，自身の寿命のため，1 ns 以内で観測された．

消滅 γ 線のエネルギーは，陽電子と電子の重心の質量エネルギーからの縦ドップラーシフトとして観測される．

$$E = 511 \pm \frac{p_{\parallel} c}{2} \tag{5.2}$$

ここで, c は光速, $p_{\parallel}$ は消滅 γ 線放出方向の消滅直前の陽電子–電子重心の運動量である．ϵ を $m_{\mathrm{e}}c^2 = 511$（keV）からのドップラー広がりとして以下の式で表す．

$$\epsilon = \frac{p_{\parallel} c}{2} = \frac{pc}{4} = \frac{m_{\mathrm{Ps}} v c}{4} = \frac{511}{2}\beta \tag{5.3}$$

ここで,

$$\beta = \frac{v}{c} \tag{5.4}$$

である．

三次元方向の Ps の運動エネルギーを求めるために，垂直方向の運動量 $p_{\parallel}$ に対して角度平均をとった．

$$p_{\parallel} = \int_0^{\frac{\pi}{2}} p \cos x \sin x dx = \frac{p}{2} \tag{5.5}$$

p は，3 次元方向の運動量である．

また，Ps の運動エネルギーは，単位を eV として

$$E_{\mathrm{Ps}} = 511 \times 10^3 \beta^2 \tag{5.6}$$

となる．よって，Ps の平均運動エネルギー (E_{Ps}) は

$$\langle E_{\mathrm{Ps}} \rangle = \frac{\left\langle p^2 \right\rangle}{2m_{\mathrm{Ps}}} = \frac{4 \times 1000}{511} \left\langle \epsilon^2 \right\rangle \tag{5.7}$$

となり，ドップラー広がりの 2 乗に比例する．

また，ドップラー広がりの期待値 $\sqrt{\langle \epsilon^2 \rangle}$ は，

$$\sqrt{\langle \epsilon^2 \rangle} = \sqrt{\frac{\int_0^\infty \epsilon^2 \exp(-\alpha \epsilon^2)\, \mathrm{d}\epsilon}{\int_0^\infty \exp(-\alpha \epsilon^2)\, \mathrm{d}\epsilon}} \tag{5.8}$$

と表すことができる．このようにして，観測したドップラー広がりから Ps の運動エネルギーを求めた．

ドップラー広がりから求めた，Ar ガス 7.5 MPa（▲）と 5.0 MPa（■）中における Ps の平均運動エネルギーの時間変化を図 5.2 に示した．横軸の誤差は，2 次元 MCA に依存した測定時間間隔，縦軸の誤差はシンボルの大きさよりも小さい．Ar ガス 5.0 MPa 中において，Ps は 0–0.2 ns の間は 3.7 eV の平均運動エネルギーを持っており，その後 1 ns までに 2.0 eV まで減速する様子が観測された．Ar ガス 7.5 MPa 中では，Ps は 0–0.2 ns の間は 3.5 eV の平均運動エネルギーを持っており，その後 1 ns までに 1.0 eV まで減速する様子が観測された．

同様に，Ne ガス 7.5 MPa（▲）と 5.0 MPa（■）中における Ps の平均運動エネルギーの時間変化を図 5.3 に示した．Ne ガス 5.0 MPa 中において，Ps は 0–0.2 ns の間は 4.3 eV の平均運動エネルギーを持っており，その後 1 ns までに 1.9 eV まで減速する様子が観測された．Ne ガス 7.5 MPa 中では，Ps は 0–0.2 ns の間は 3.5 eV の平均運動エネルギーを持っており，その後 1 ns の間に 0.3 eV まで減速する様子が観測された．

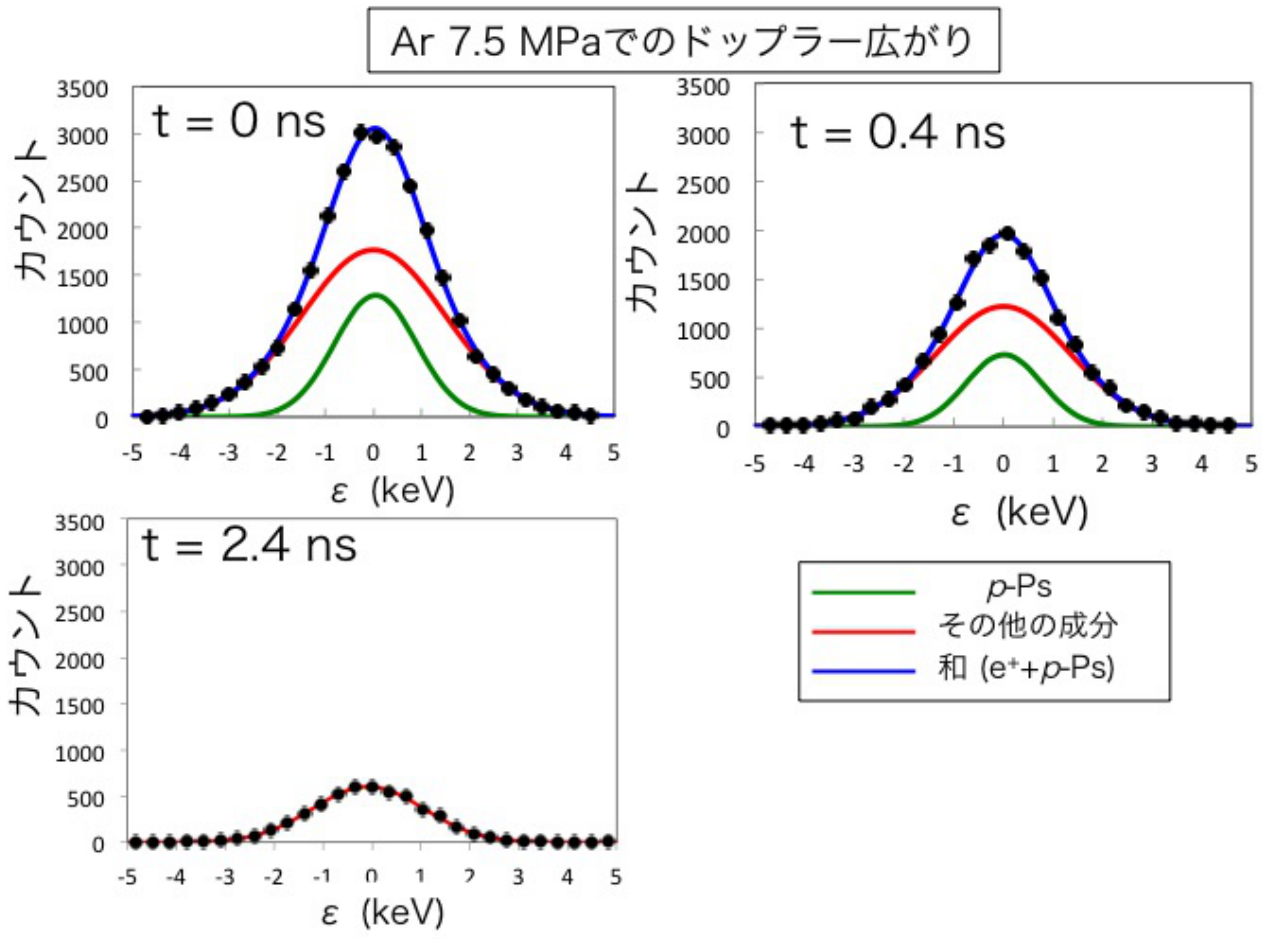


図 5.1　(a):Ar ガス 7.5 MPa 中における，時刻 0，0.4，2.4 ns でのドップラー広がり．$\epsilon = 0$ は電子と陽電子の静止質量エネルギー（511 keV）と等しい．0，0.4 ns では，*p*-Ps 成分と他の成分が観測されたが，2.4 ns では 1 成分のみが観測された．

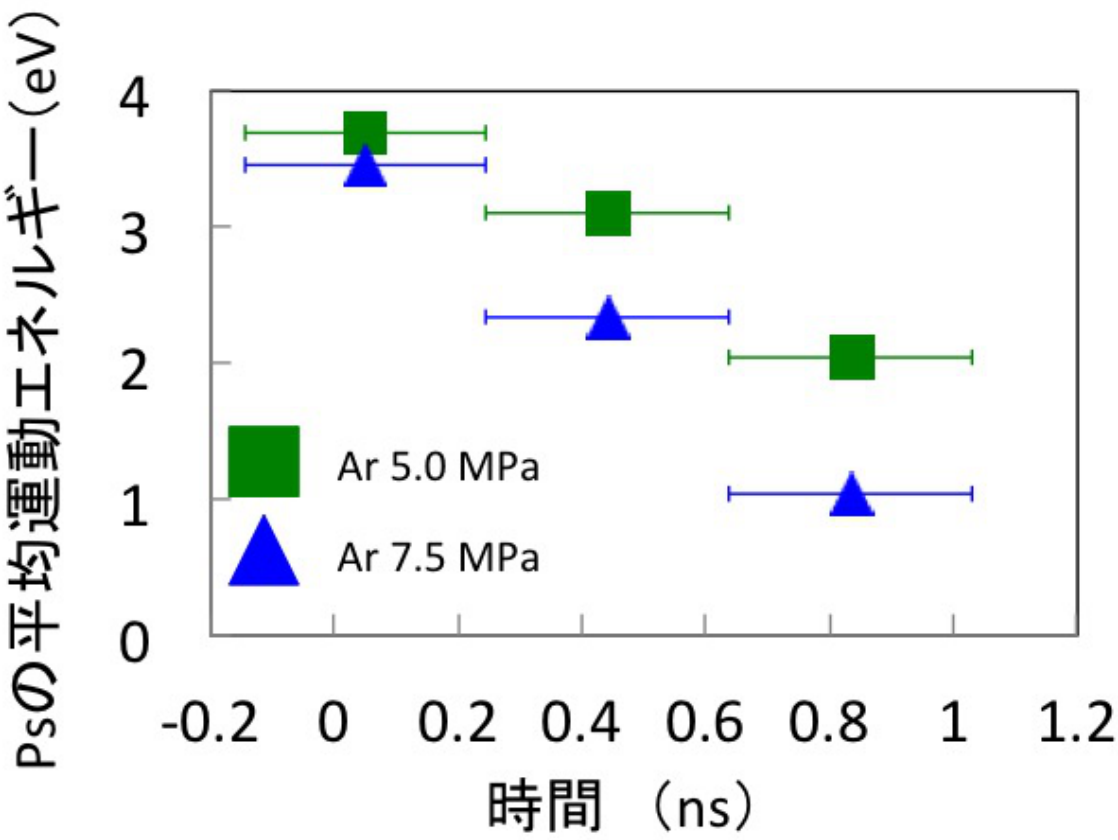


図 5.2　Ar ガス 7.5 MPa における時間に対する Ps のエネルギー変化（▲）．Ar ガス 5.0 MPa における時間に対する Ps のエネルギー変化（■）.

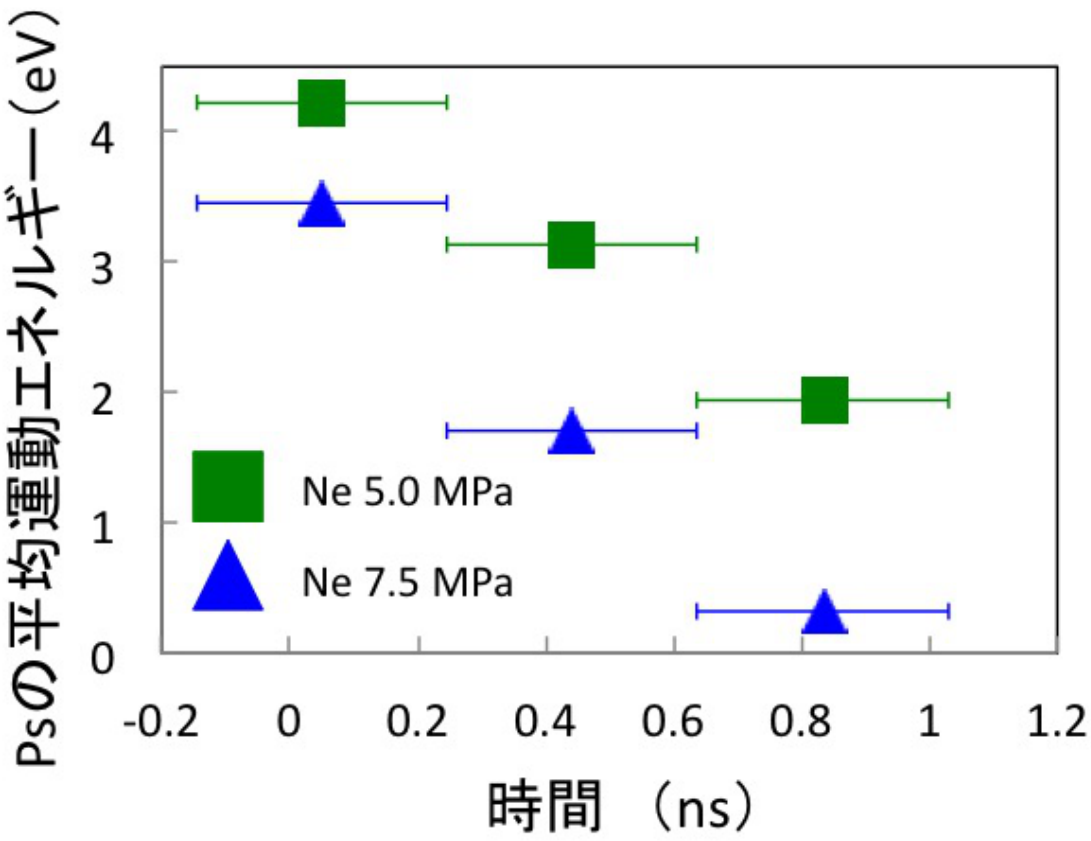


図 5.3　Ne ガス 7.5 MPa における時間に対する Ps のエネルギー変化（▲）．Ne ガス 5.0 MPa における時間に対する Ps のエネルギー変化（■）．

5.3　Ps–貴ガス運動量移行断面積についての考察

実験値から Ps の運動量移行断面積（σ_m）を求めるために，Ps 減速モデルを用いた [99,132]．Ps 減速モデルは，以下の微分方程式で記述される．

$$\frac{dE_{\mathrm{Ps}}(t)}{dt} = -\frac{2n_{\mathrm{Ar}}\sigma_m M_{\mathrm{Ar}}}{(M_{\mathrm{Ar}} + m_{\mathrm{Ps}})^2}\sqrt{2m_{\mathrm{Ps}}E_{\mathrm{Ps}}(t)}\left(E_{\mathrm{Ps}}(t) - \frac{3}{2}k_{\mathrm{B}}T\right) \tag{5.9}$$

ここで，σ_{m} は Ps–Ar の運動量移行断面積，M_{Ar} は Ar の質量，m_{Ps} は Ps の質量，n_{Ar} は Ar の数密度，k_{B} はボルツマン定数，T は温度である．σ_{m} は Ps の解離（break-up）エネルギー以下のエネルギー領域では，Ps の運動エネルギーに依存するが，Ps の平均運動エネルギーの時間変化を各圧力（5.0，7.5 MPa）において 3 点しか測定できなかったため，ここでは σ_{m} が運動エネルギーに対して一定と仮定し解析を進めた．

Ps 運動エネルギーの時間平均は，以下の式でかける．

$$\overline{E_{\mathrm{Ps}}}(t_1,\ t_2) = \frac{1}{t_2 - t_1}\int_{t_1}^{t_2} E_{\mathrm{Ps}}(t)dt, \tag{5.10}$$

ここで，t_1 と t_2 は消滅時間の下限と上限の時刻である．運動量移行断面積は，実験値と計算値の差が最小となるようにして求めた．計算値を実験値に最適となるように適合する際に，数密度 × 時間の次元を横軸とした．7.5 MPa と 5.0 MPa の圧力に対して得られた実験値（合計 6 点）に対してまとめて解析を行った．図 5.4 に，実験値と最適となるように適合した関数の結果を合わせて示した．表 5.1 に実験値と Ps 減速もモデルから得られた計算値による Ps 平均運動エネルギーの値を示した．Ps–Ar の運動量移行断面積は，1.0–3.7 eV のエネルギー範囲で 0.019 ± 0.010 nm^2 であった．図 5.5 に先行研究と合わせて 1 つの図に示した．▲ は本研究 [133]，■ は長嶋らの結果 [99]，♦ は Skalsey らの結果 [95] である．実線は（– –）P. K. Biswas らによる理論の結果である [114].

横軸のエラーバーは今回測定された Ps エネルギー変化の範囲を意味する．また，縦軸のエラーバーは統計誤差である．本研究結果は先行研究に比べ高いエネルギー領域で運動量移行断面積を求めた．理論計算では，Ps の運動エネルギーの増加に伴い運動量移行断面積が減少することが予測されていたが，その傾向を指示する結果であった．また，本研究において Ps の生成時のエネルギー（$E_{\mathrm{Ps}}(0)$）は 3.9 eV であった．これは，Ar ガス中におけるオーレギャップの上限値（2.6 eV）よりも大きい．Ar ガス中における Ps の生成断面積は，陽電子の運動エネルギーが 20 eV 付近において最大値を持つ [92]．陽電子減速過程からは，陽電子の電子引き抜き反応で生成した場合，$20 - 6.8 = 13.2$ eV の運動エネルギーを持つ Ps が生成することが予想される．しかしながら，6.8 eV 以上の運動エネルギーを持った Ps は Ar ガスとの散乱時において，break-up して電子と陽電子を再放出する本実験のような高密度の条件では，数 ps の間に Ps は 6.8 eV 以下まで減速したと考えられる．

このように，Ps は 6.8 eV 以下のエネルギー分布を持ち生成したことがわかった．オーレモデルによって生成した Ps の初期運動エネルギー分布は，エネルギーを持った Ps の break-up 過程に依存することがわかっ

た [134].

Ne ガス 7.5 MPa，5.0 MPa で得られた結果についても，Ar の場合と同様に運動量移行断面積を求めた．図 5.6 には，Ps–Ne の運動量移行断面積を求める際に実験値に対して Ps 減速モデルが最適となるように適合した結果を示した．今回得られた運動量移行断面積を過去の結果と比較し，図 5.7 に示した．▲ は本研究，■ は長嶋らの結果 [135]，♦ は Skalsey らの結果 [95] である．実線は（–）P. K. Biswas らによる理論の結果である [114]．0.3 – 4.3 eV の範囲における Ps–Ne の運動量移行断面積は，0.015 ± 0.008 nm^2 であった．このエネルギー範囲で得られた運動量移行断面積は，より低いエネルギーで求めた先行研究よりも小さな値だった [95, 135]．Ps–Ne の運動量移行断面積は，Ps の運動エネルギーが増加するにつれて減少することがわかった．理論値と比較すると，2 eV 以上でよく一致することがわかった．

Ps–Ar の運動量移行断面積は，Ps–Ne の結果はこの値よりも小さかった．1990 年代前半には貴ガスと Ps の運動量移行断面積は，貴ガスの種類によらず同程度の断面積であると報告されていた [100]．一方で 1990 年代後半から 2000 年代前半では長嶋らや Skalsey らにより，2 eV 以下のエネルギー領域いおいては Ps–Ar の運動量移行断面積が Ps–Ne の運動量移行断面積よりも大きな値を示すと報告されていた．本研究では，2–4 eV のエネルギー領域においても，Ps–Ar の運動量移行断面積が Ps–Ne の運動量移行断面積よりも大きな値を示した．4 eV 以下のエネルギー領域において，Ps–Ar の運動量移行断面積が Ps–Ne の運動量移行断面積よりも大きな値を示すことがわかった．

表 5.1 Ar ガス中における，実験値と Ps 減速もモデルから得られた計算値による Ps 平均運動エネルギー. $\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}(t_1,\ t_2)$ and $E_{\mathrm{Ps}}(t_1,\ t_2)$.（Reprinted from Kinetic energy of Ps formed by Ore mechanism in Ar gas, 618, Yosuke Sano and Yasushi Kino and Toshitaka Oka and Tsutomu Sekine, Results and disscusion, 2, Copyright (2015), with permission from Journal of Physics: Conference Series.）

圧力 (MPa)	5.0		7.5	
数密度 (nm^{-3})	1.3		2.0	
時間幅 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}$ (eV)	$\overline{E_{\mathrm{Ps}}}$ (eV)	$\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}$ (eV)	$\overline{E_{\mathrm{Ps}}}$ (eV)
0.0 ~ 0.2	3.7	3.7	3.7	3.5
0.2 ~ 0.6	2.5	3.1	2.0	2.3
0.6 ~ 1.0	1.8	2.0	1.4	1.0

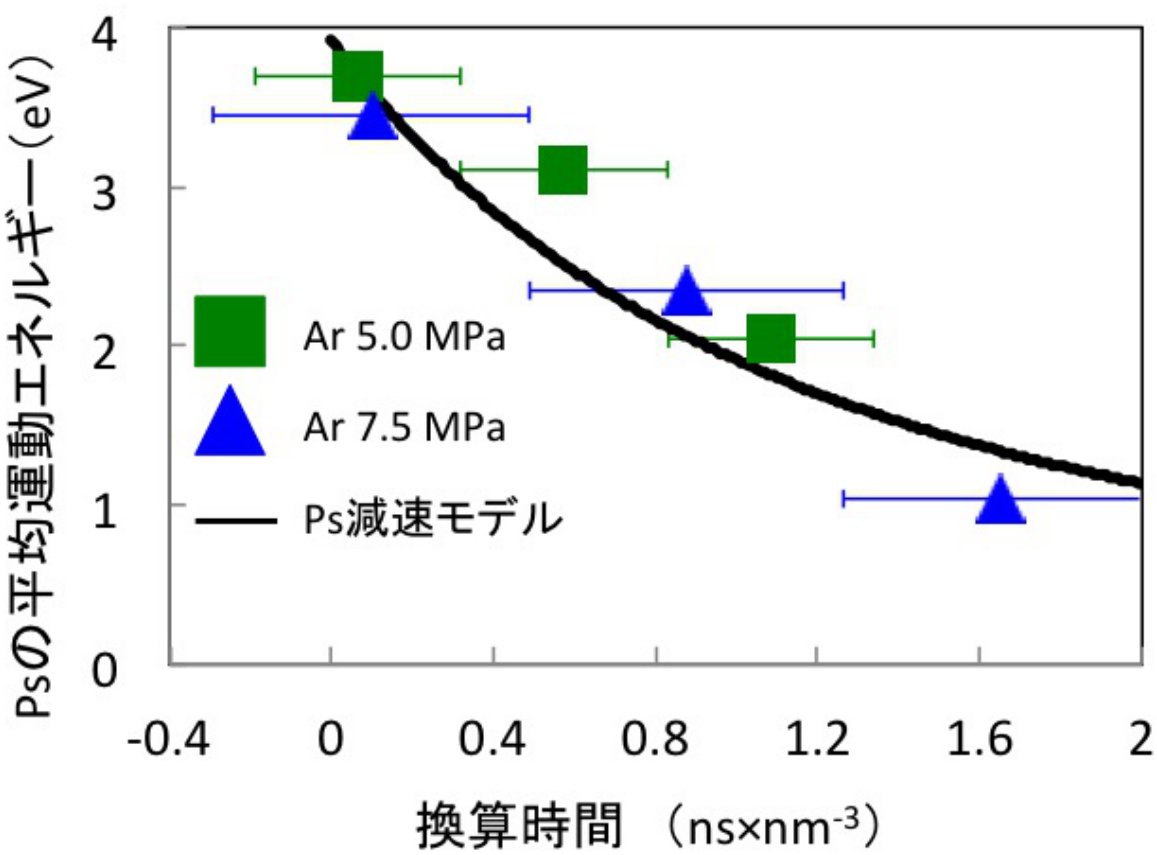


図 5.4　Ar ガス 7.5 MPa（▲）および 5.0 MPa（■）における Ps の平均運動エネルギーの換算時間依存性．縦軸は Ps の平均運動エネルギー，横軸は換算時間（ns × nm^{-3}）．

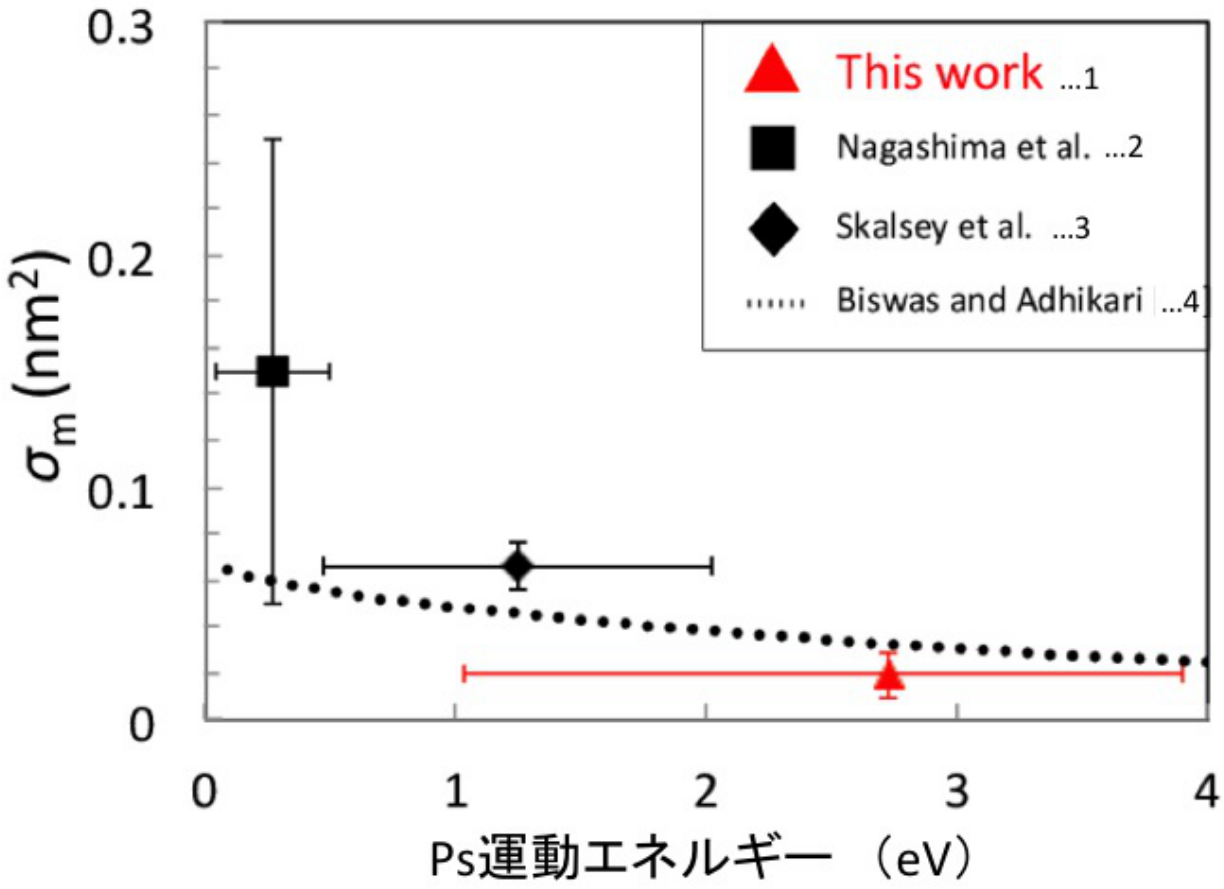


図 5.5　Ps-Ar 衝突における，Ps の運動エネルギーに対する運動量移行断面積．1. 本研究 [133]，2. 陽電子消滅 γ 線角相関測定法 [99]，3. 時間分解ドップラー広がり法 [95]，4. 理論計算 [114].（Reprinted from Kinetic energy of Ps formed by Ore mechanism in Ar gas, 618, Yosuke Sano and Yasushi Kino and Toshitaka Oka and Tsutomu Sekine, Results and disscusion, 3, Copyright (2016), with permission from Journal of Physics: Conference Series.）

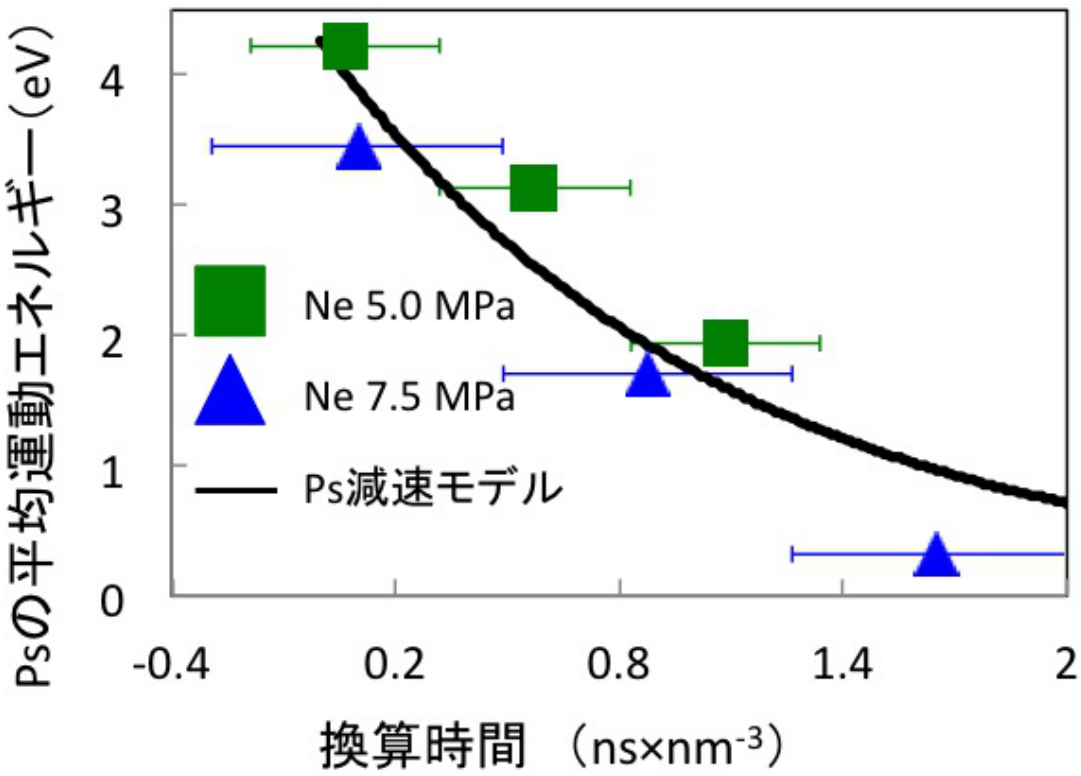


図 5.6　Ne ガス 7.5 MPa（▲）および 5.0 MPa（■）における Ps の平均運動エネルギーの換算時間依存性.

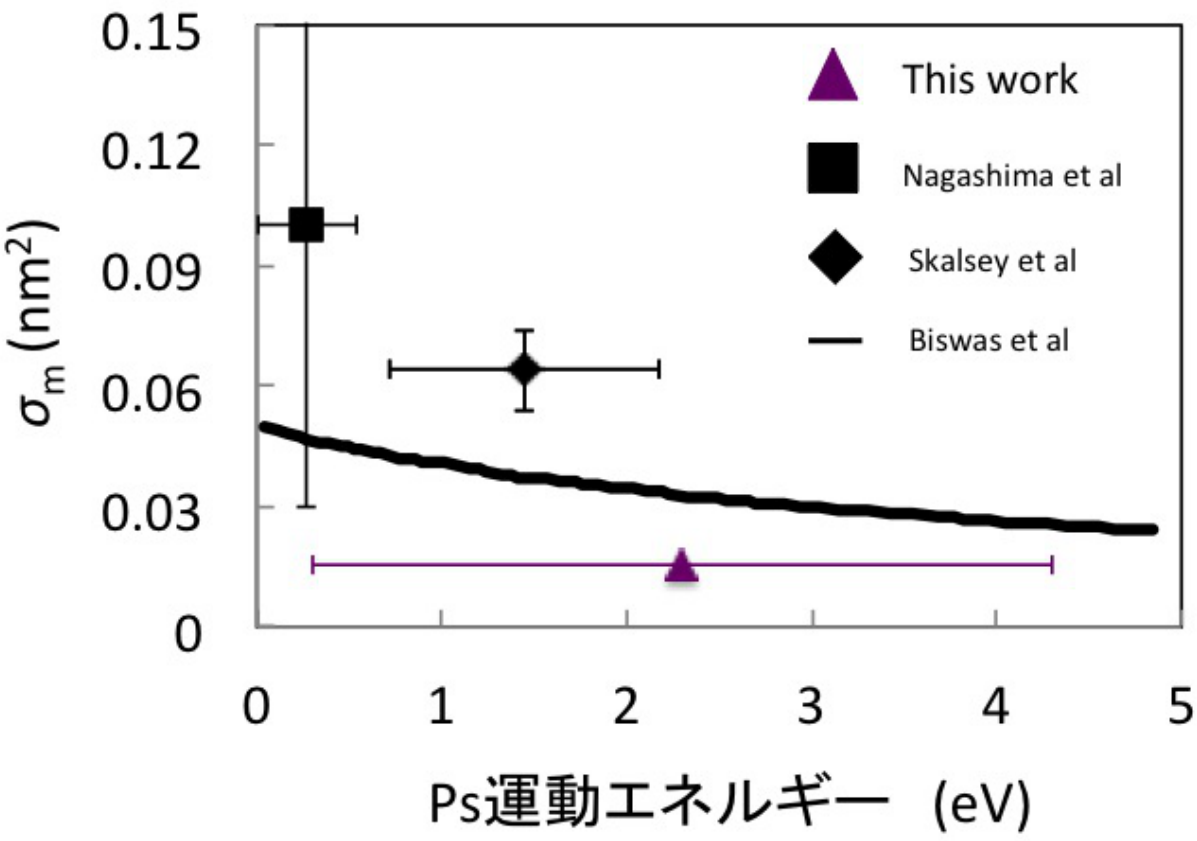


図 5.7　Ps-Ne 衝突における，Ps の運動エネルギーに対する運動量移行断面積．▲は本研究，■は長嶋らの結果 [135]，♦は Skalsey らの結果 [95] である．実線は（–）P. K. Biswas らによる理論の結果である [114]．0.3 – 4.3 eV の範囲における Ps–Ne の運動量移行断面積は，0.015 ± 0.008 nm^2 であった．

5.4　デジタルオシロスコープ AMOC システムによる実験結果および解析

図 5.8 に，Ar 7.5 MPa 中における各時刻でのドップラー広がり（(a) : t = 0.1 – 0.2 ns，(b) : t = 0.4 – 0.5 ns，(c) : t = 1.1 – 1.2 ns）を示した．縦軸はカウント数，横軸は 511 keV を中心としたドップラー広がりである．2 次元 MCA-AMOC 法の場合と同様に，２つのガウス関数を用いて実験値に最適となるように適合することで p-Ps と他の成分に分離した（図内実線）．関数を実験値に適合する際に，p-Ps と他の成分の強度は陽電子寿命測定法から見積もり，p-Ps と他の成分のエネルギー（ガウス関数の幅）を変数とした．

t = 0.1 – 0.2 ns においては，p-Ps のピーク値は他の成分のピーク値よりも大きい．t = 0.4 – 0.5 ns では，寿命の短い p-Ps が減衰したため他の成分よりも強度が小さくなっていた．t = 1.1 – 1.2 においては，p-Ps がほぼ完全に消滅したため，p-Ps のシグナルが観測されなかった．p-Ps は，0.8 ns 以内の時間で観測された．2 次元 MCA-AMOC システムでは，1 ns 以内の時間で p-Ps のシグナルが観測されていたが，これは 1 ch あたりの時間間隔の違いが原因である．デジタルオシロスコープ AMOC システムでは最大 0.01 ns 刻みの時間間隔で解析できる．本研究にて，0.39 ns の時間幅で測定していた 2 次元 MCA-AMOC システムに比べ，より細かな時間間隔でドップラー広がりを解析することが可能となった．

図 5.9 に，デジタルオシロスコープ AMOC 法で求めた Ar ガス 7.5 MPa 中における Ps 減速の結果を 2 次元 MCA-AMOC 法での結果と合わせて示した．横方向のエラーバーは，測定時間間隔を意味し，プロットは消滅時刻の平均値にとった．ドップラー広がりからの Ps の運動エネルギーの導出は，2 次元 MCA-AMOC システムでの結果と同様に行った（式 5.7）．

計数率の高い t = 0 付近は，0–0.02 ns をまとめて 1 つのデータとした．時刻 0 ns は本実験装置にて（0.3 ns），単一成分の Ni 箔中で AMOC 測定を行って得られた寿命スペクトルを PATFIT プログラムで解析することで決定した．ピークトップから 0.1 ns 以前の点を時刻 0 ns とした．2 点目は 0.03–0.07 ns，3 から 5 点目は 0.1 ns ずつ，６点目は 0.2 ns，７点目は 0.3 ns の時間間隔とした．消滅時刻および Ps の運動エネルギー（$\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}$）を表 5.2 に示した．Ps は，Ar ガス 7.5 MPa 中で 3.7 eV の運動エネルギーを持って生成した．その後 0.8 ns の間に 0.6 eV まで減少した [136].

2 次元 MCA-AMOC 法で求めた結果と同様に，Ps 減速モデルを最適となるように実験値へ適合することで Ps–Ar の運動量移行断面積を求めた．その際，0–0.02 ns までの短い時間ではエネルギーを一定と仮定し，Ps の初期運動エネルギーを E_0 = 3.7 eV とした．式に含まれる変数は運動量移行断面積のみとし，次の時間で観測された Ps の平均運動エネルギーを再現するように実験値に微分方程式を最適化することで運動量移行断面積を決定した．運動量移行断面積を決定すると，その測定点における終端時間における Ps の平均運動エネルギーが求まる．これを次の点の初期運動エネルギーとして，以下同様に観測された Ps の平均運動エネルギーを再現するように，実験値に微分方程式を最適化することで運動量移行断面積を求めた．得られた運動量移行断面積は表 5.3 に示した．また，過去の結果と合わせて示した（図 5.10）．

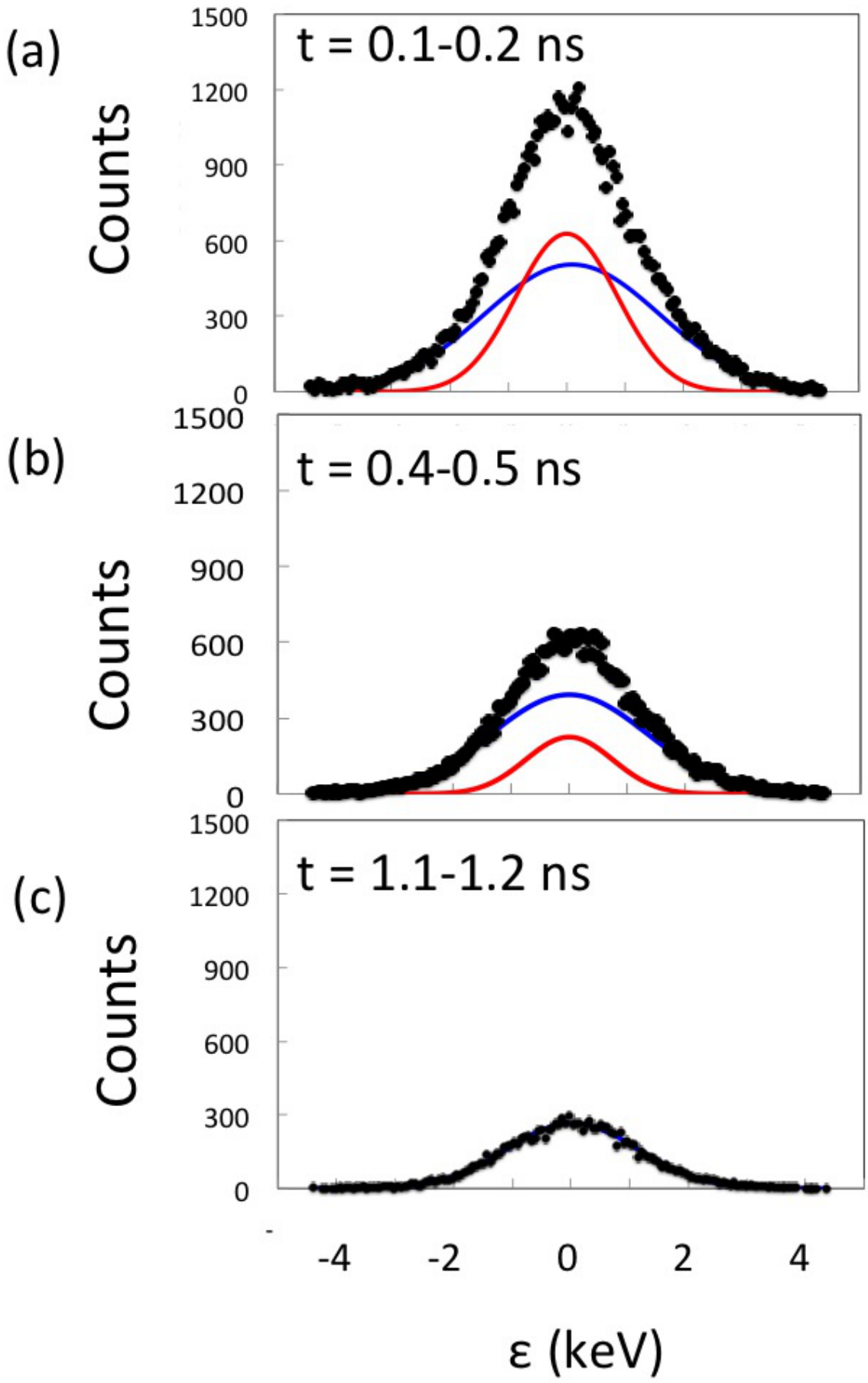


図 5.8　Ar 7.5 MPa 中における各時刻でのドップラー広がり（(a) : t = 0.1 – 0.2 ns，(b) : t = 0.4 – 0.5 ns，(c) : t = 1.1 – 1.2 ns）．縦軸はカウント数，横軸は 511 keV を中心としたドップラー広がり．狭い赤線は，p-Ps の成分．広い青線はその他の成分．

表 5.2　Ar 7.5 MPa 中において観測された各時刻における Ps の運動エネルギー $\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}(t_1,\ t_2)$

Pressure (MPa)	7.5
Number density (nm^{-3})	2.0
Time range $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)
0 ~ 0.02	3.7
0.03 ~ 0.07	3.6
0.08 ~ 0.17	3.2
0.18 ~ 0.27	2.7
0.28 ~ 0.37	2.0
0.38 ~ 0.57	1.3
0.58 ~ 0.87	0.6

表 5.3　Ps-Ar 運動量移行断面積のエネルギー依存性

E_{Ps} (eV)	$\sigma_m(nm^2)$
3.7 ~ 3.5	0.012
3.5 ~ 3.0	0.020
3.0 ~ 2.4	0.028
2.4 ~ 1.7	0.057
1.7 ~ 0.9	0.061
0.9 ~ 0.3	0.110

5.5　Ps–Ar 運動量移行断面積のエネルギー依存性についての考察

図 5.10 において，Ps の運動量移行断面積は，Ps の運動エネルギーが増加するにつれ減少した．0.6 eV における運動量移行断面積は，0.3 eV で測定された長嶋らの結果 [99] と近い値であった．1.3 eV における運動量移行断面積は M. Skalsey らの結果 [95] と一致した．また，2.7 eV における運動量移行断面積は 2 次元 MCA により求めた運動量移行断面積と一致し，よい再現性を得た．理論との比較においては，1 eV までは，P.K. Biswas らと J. E. Blackwood らの結果の中間であった．1 eV 以上においては，J. E. Blackwood らの結果とよい一致を示した．Ps–Ar の運動量移行断面積を陽電子–Ar および電子–Ar の運動量移行断面積と合わせて，図 5.11 に示す．縦軸が運動量移行断面積で横軸は，粒子の運動エネルギーである．ロンドン大学のグループは，Ps ビームにより低エネルギー Ps と原子分子の散乱断面積を測定している [113]．15 eV 以上のエネルギー領域では，Ps と電子の散乱断面積のエネルギー依存性が近い値となった電子は原子に対して引力的に相互作用をする一方で，陽電子が斥力的に相互作用するため，Ps の散乱描像は，電子の散乱描像と近いと考えられてきた．一方で，電子–Ar の運動量移行断面積が 0 になるラムザウワーミニマムが 1 eV 以下のエネルギーで観測されている．このエネルギー領域における Ps–Ar の散乱描像は，陽電子–Ar の散乱描像と類似していた．

図 5.12 に運動量移行断面積を粒子の速度に対してプロットした．速度に対して比較することで，等速直線運動で散乱する際には粒子の違いによらず散乱時における相互作用時間が等しくなる．先行研究 [113] では 1.0 a.u. 以上の速度において，Ps–原子分子の散乱断面積が電子–原子分子の散乱断面積に近い値となっていたが，0.3 a.u. 以下の速度では，Ps と Ar ガスの散乱断面積は電子と Ar ガスの散乱断面積よりも大きな値であり，異なるふるまいを示すことがわかった．デジタルオシロスコープで得られた運動量移行断面積の結果では，陽電子寿命測定に起因する時間方向の装置分解能（FWHM で 300 ps）を除ききれていない．特に早い時間（運動量移行断面積では，3.7 eV 付近）で装置分解能の影響が大きく，運動量移行断面積を過小評価している可能性がある．時間分解能をさらに考慮する必要がある．

また，今回求めた 3.7–0.6 eV における Ps-Ar の運動量移行断面積と長嶋らの結果を用いて，7.5 MPa の Ar ガス中における Ps の熱化時間を見積もるとおよそ 3 ns であった．Ar ガス中では陽電子はおよそ 5 ns で熱化する．Ar ガス中においては，Ps は陽電子の半分程度の時間で熱化することがわかった．

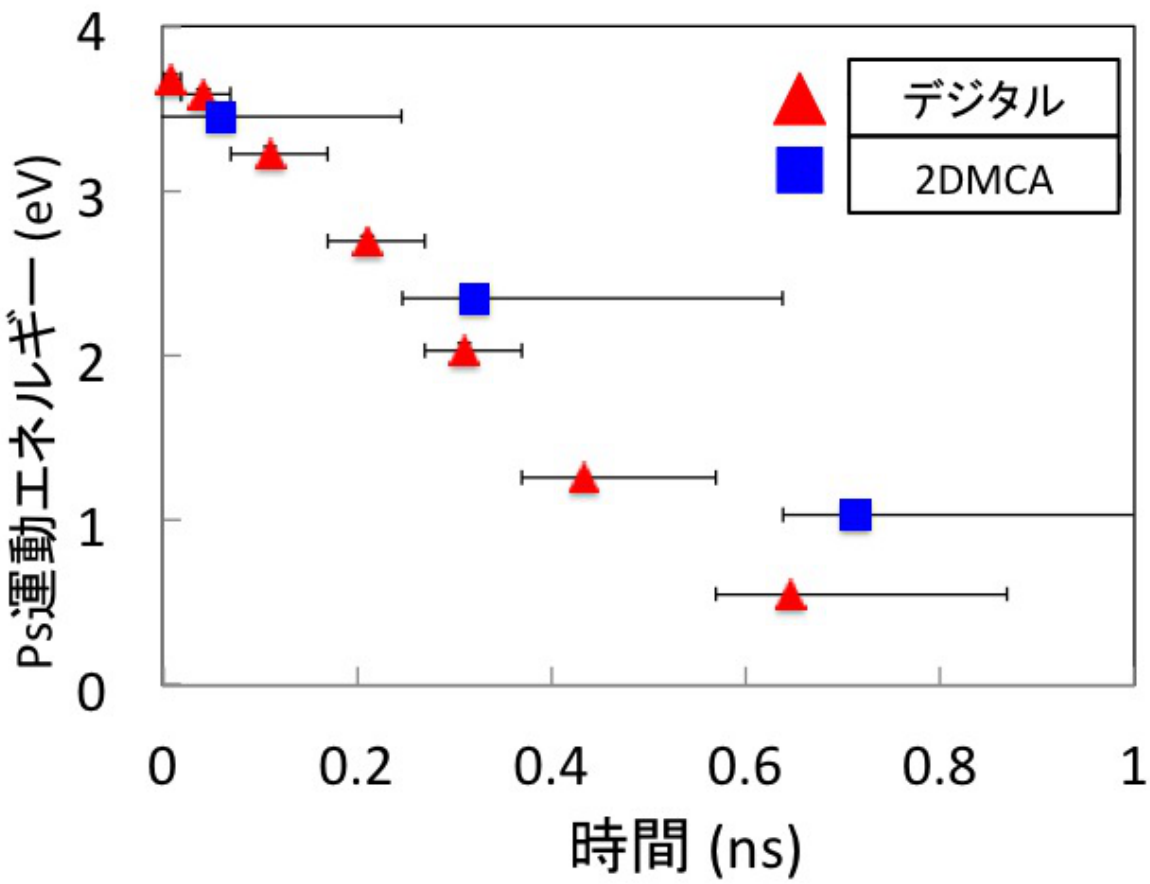


図 5.9　Ar 7.5 MPa 中における，Ps 平均運動エネルギーの時間依存性．縦軸は Ps の平均運動エネルギー，横軸は時間である．▲はデジタルオシロスコープ AMOC システムで測定した結果，■は 2 次元 MCA-AMOC システムで測定した結果．横方向のエラーバーは，測定時間間隔に対応する．

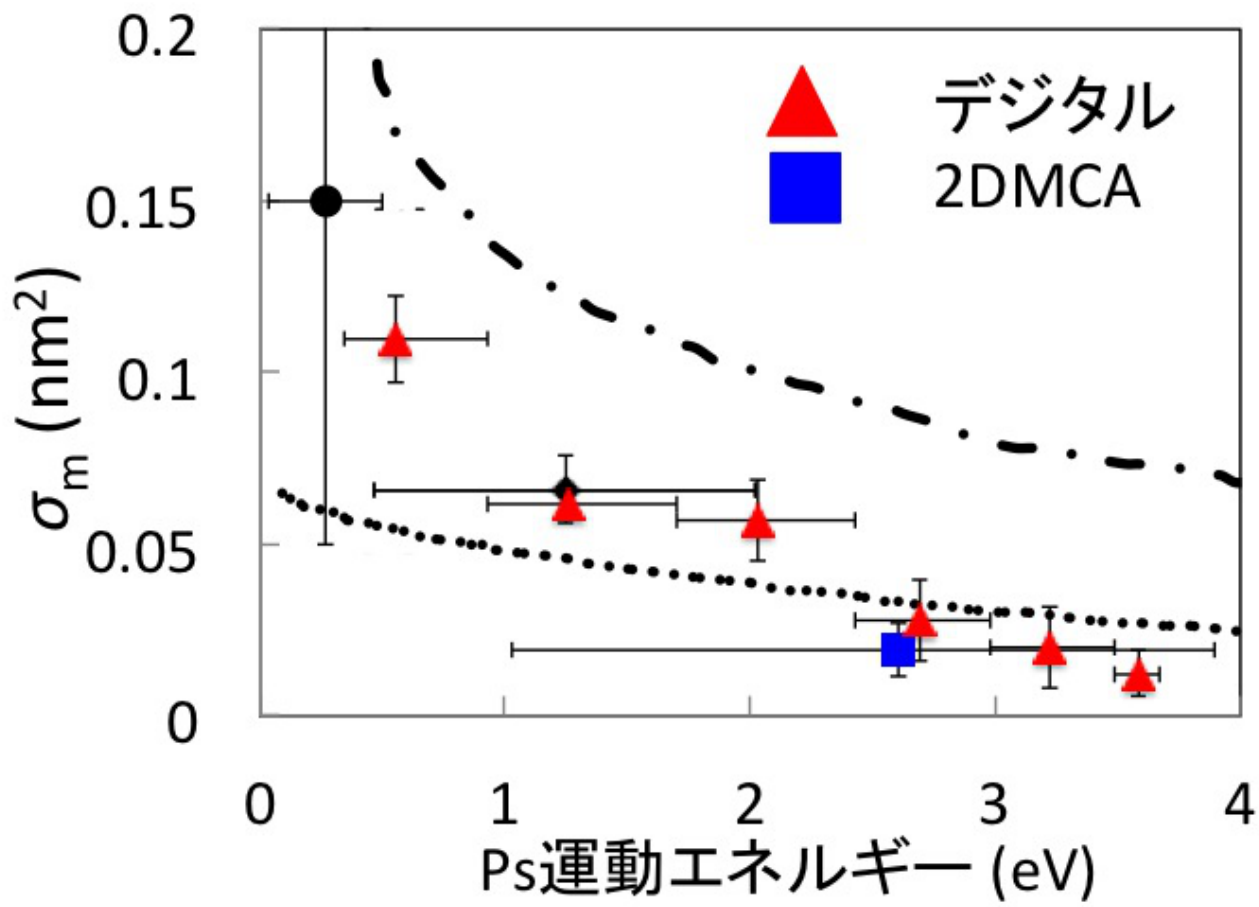


図 5.10　Ps-Ar 運動量移行断面積の Ps 運動エネルギー依存性．縦軸：運動量移行断面積，横軸：Ps の運動エネルギー．▲はデジタルオシロスコープ AMOC システムで測定した結果，■は 2 次元 MCA-AMOC システムで測定した結果．●: 陽電子消滅 γ 線角相関測定法 [99]，◆: ドップラー広がり法 [95]，（– –）: 陽電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [131]，（· – · –）: 陽電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [137]

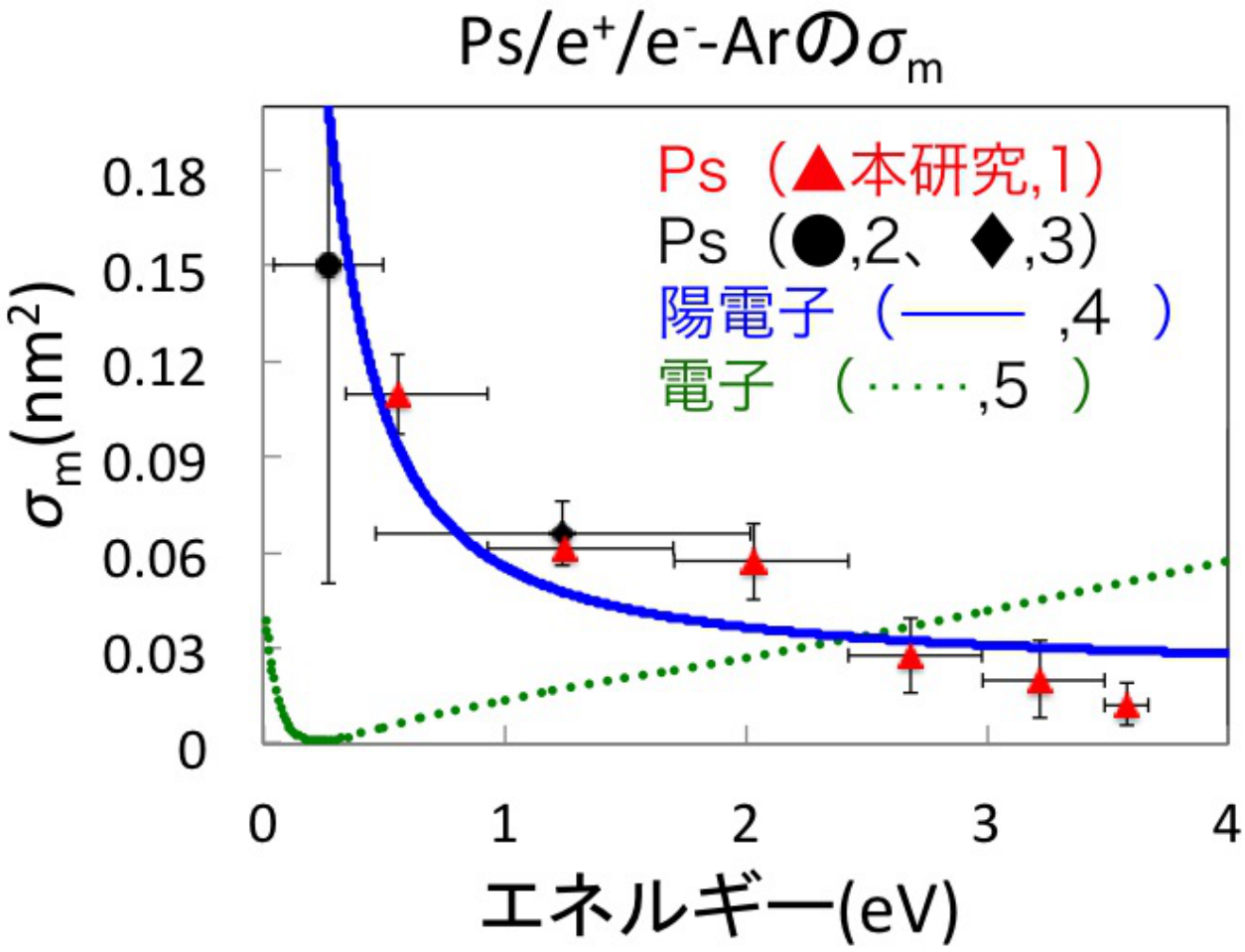


図 5.11　$Ps/e^+/e^-$-Ar 運動量移行断面積の粒子エネルギー依存性．縦軸：運動量移行断面積，横軸：運動エネルギー．1. 本研究，2. 陽電子消滅 γ 線角相関測定法 [99]，3. ドップラー広がり法 [95], 4. 陽電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [131]，5. 電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [115]

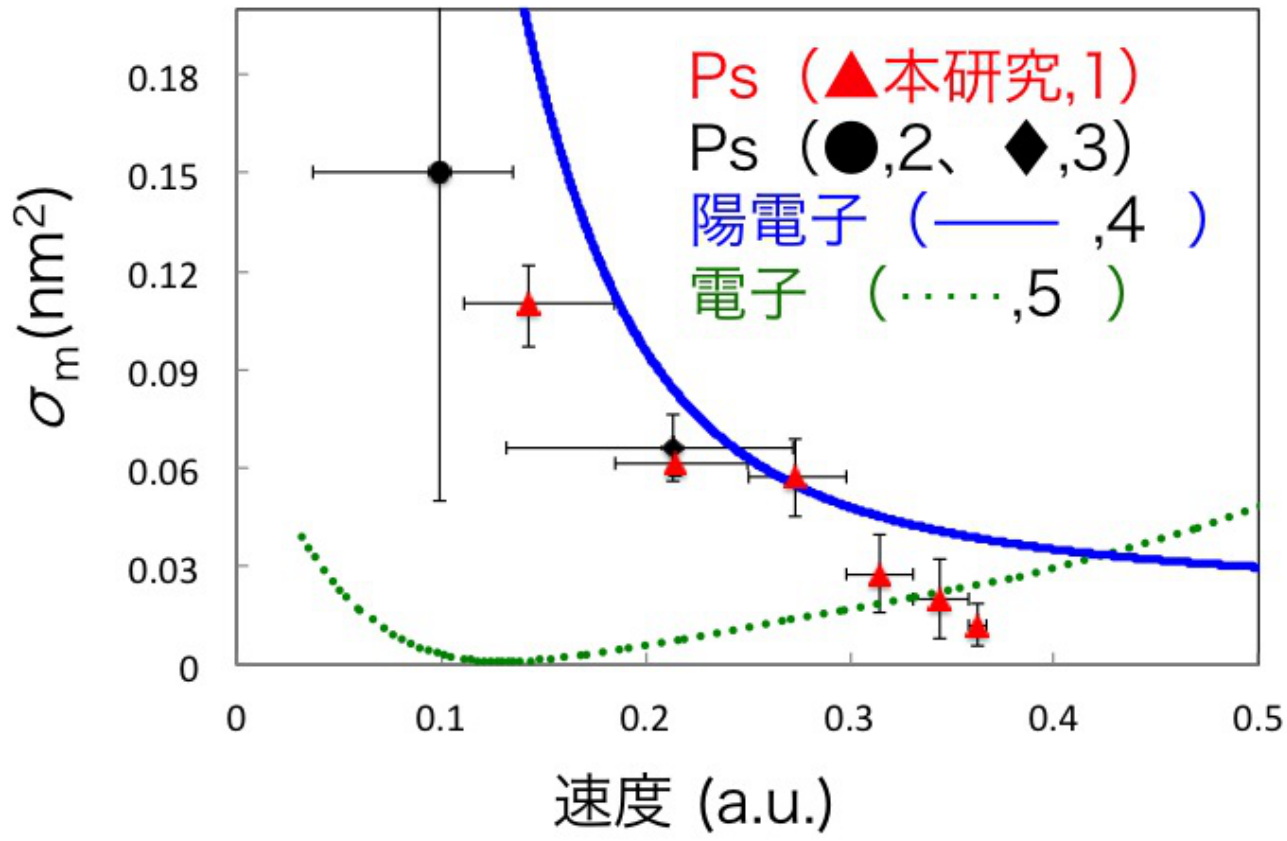


図 5.12　Ps/e^+/e^--Ar 運動量移行断面積の粒子速度依存性．縦軸：運動量移行断面積，横軸：粒子速度（a.u.）．1. 本研究，2. 陽電子消滅 γ 線角相関測定法 [99]，3. ドップラー広がり法 [95], 4. 陽電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [131]，5. 電子–Ar 散乱断面積理論計算値 [115]

5.6　電極付き耐圧セルの開発および電場計算

陽電子はガス中では非弾性散乱および弾性散乱を繰り返し，最終的に室温（0.039 eV）まで減速し熱化する．この減速過程において，原子分子の持つ価電子の運動エネルギーと近い数 eV–10 eV のエネルギー領域では，Ps 生成反応や共鳴散乱など特徴的な散乱現象が存在する．また，Ps は数 eV の運動エネルギーを持って生成する．生成後の Ps と原子分子散乱においてもラムザウワーミニマムの有無や共鳴ピークの有無など，量子力学的な散乱問題として興味深いエネルギー領域にある．Ar ガス中では Ps は 3.7 eV の運動エネルギーを持ち生成した．より高いエネルギーで Ps とガスの散乱断面積を測定するためには，高い運動エネルギーを持つ Ps が必要である．しかしながら Ps は中性粒子であるため，エネルギーのコントロールが難しい．そこで本研究では，電子引き抜き反応による Ps 生成メカニズムに着目した．陽電子を電場により加速する際に，陽電子が受け取るエネルギーは電場強度に依存する．陽電子が電場によるエネルギーを電極間の全ての場所で一定にするためには平行電場を達成する必要がある．しかしながら平行電場を達成するためには，数 mm おきに金属のメッシュを入れ，多段階に電位を設ける必要がある．陽電子がメッシュ電極を通過する際に，一部の陽電子はメッシュにおいて対消滅するため，ガス中における陽電子やポジトロニウムの割合が少なくなり，ガスと陽電子や Ps の散乱過程を研究するには不利である．本研究では線源から放出された陽電子を効率よくガス中に入射させるために，電極は円筒構造とした．中心円柱電極に ^{22}Na 陽電子線源を滴下し，電場により外側の電極へ陽電子を加速させる．中心電極と外側円筒電極に電位差をもうけた際に，線源付近は外側の電極に比べて電場が大きくなる．小さな電位差で中心部分に高電場を発生させることができる．

セルを設計する際に，陽電子をガス中にとどめることつまりセル壁面まで陽電子が到達しなくなる条件を課した．第 2 章にて，物質中での陽電子の飛程が 0.1 g/cm^2 であった．また，測定時間を考慮し，検出効率が 20 cps となる条件をかすこととした．デジタルオシロスコープ AMOC システムにおいて 0.4 MBq の線源を用いて実験する際に，その計数率が 20 cps を下回らない条件とし，線源電極は半径 1.5 mm，円筒形外側電極は厚み 4 mm とし，ガスの存在領域を 2.4 cm となるように設計した．円筒系外側電極とセルの間に絶縁体を挟む空間を設け，セルの内径は 6 cm とした．2.4 cm の半径では，Ar ガスを 2.4 MPa にすると陽電子をガス中で止めることができる．図 5.13 に内径 2.4 cm における Ar の圧力に対する Ar の厚み（g/cm^2）についてプロットした．実線は厚み 0.1 g/cm^2 であり，点線が Ar の圧力に対する Ar の厚みである．２線の交点が Ar ガス中で陽電子を止める最低の圧力となる（2.4 MPa）．

陽電子は正の電荷を持つ荷電粒子であり，電場によって加速される．電場印加下ガス中で加速された陽電子は，周囲のガスと散乱することでエネルギーを失う．一度衝突してから次の原子と衝突するまでに電場により受けたエネルギーと衝突で失うエネルギーが釣り合うと，陽電子の集団運動としての時間平均速度は一定となる [138–141]．一定となったときの平均速度をドリフト速度と呼ぶ．ドリフト速度は陽電子の電場強度と衝突頻度（数密度）に依存するため，数密度あたりの換算電場を単位とするタウンゼント [Td] の単位を使って議論される．

$$1\ \mathrm{Td} = 10^4\ \mathrm{V/cm/nm^{-3}} \tag{5.11}$$

理論計算により求められた Ar ガス中における陽電子ドリフト速度の電場依存性を図 5.14(a) に示す．縦軸が陽電子のドリフト速度で横軸は電場 [Td] である．理論計算によると，陽電子ドリフト速度の換算電場（Td）に対する変化が，0.5–1.0 Td において急激に小さくなる [142–144]．Ar ガス中における非弾性散乱しきい値は，Ps 生成しきい値の 9 eV である．0.5 Td まで換算電場を印加すると，Ps 生成しきい値を超えた運動エネルギーを持つ陽電子が現れる．Ps 生成しきい値を超えた陽電子は Ar と散乱する際に一定確率で Ps を生成する．電場によって与えられた陽電子の運動エネルギーは Ar と非弾性散乱することによりエネルギーを失うため，1 Td 以上で平均ドリフト速度はほとんど変化しなくなる．

図 5.14(b) に電場印加下 Ar ガス中における陽電子 1 つあたりの Ps 生成数を示した．電場 0 における Ps 生成割合は 0.32 であり，電場の増加と共に Ps 生成割合は増加し，およそ 0.5 Td で Ps の増加が始まる．1 Td 以上では一定値 0.6 であった [145]．これら理論 [143] と実験 [145] 双方の研究結果より，目標換算電場を 0.5 Td とした．

内径 2.4 cm のセルに印加する電圧を決定するために，Poisson-Superfish プログラム [146] を使って電場計算をした．その際 Ar ガスの誘電率は，圧力依存性を考慮し気体から固体（1.0–1.4）までの範囲で計算した．計算の際の入力パラメータは付録 B にのせた．2.4 cm の極板間に 10000 V の電圧を印加した場合の電場を図 5.15 に示す．図 5.15(a) は左側を中心電極，右側を外側電極としている．図上下部分は絶縁体構造，図内中心部はガス充填部である．図内の線は，等電位線である．円筒形電極に対して計算したため，中心電極で等電位線が密になっている様子がわかる．セルの中心平面における動径方向の電位を図 5.15(b) に示した．中心電極近傍では 25000 V，外側電極近傍では 2000 V の電場が生じる．7.5 MPa の Ar ガスにおいて，0.5 Td は約 10000 V である．2.4 cm の円筒形電極に 10000 V の電圧を印加すると，中心電極から 3 mm 以内の領域で 0.5 Td 以上の電場となる．

セルの模式図および線源構造を図 5.16 に示す．セルおよび電極の材質は SUS316 とし，絶縁体は MACOR（CORNING 社）セラミックを用い，ガス充填最大圧力を 10 MPa，温度は 100 ℃ までの測定を可能とする条件で設計した．セルの製造は（耐圧硝子工業株式会社）に依頼した．また，放電の可能性や電極が飛び出した際の安全のために，セル全体を特注のアクリル容器で覆った．

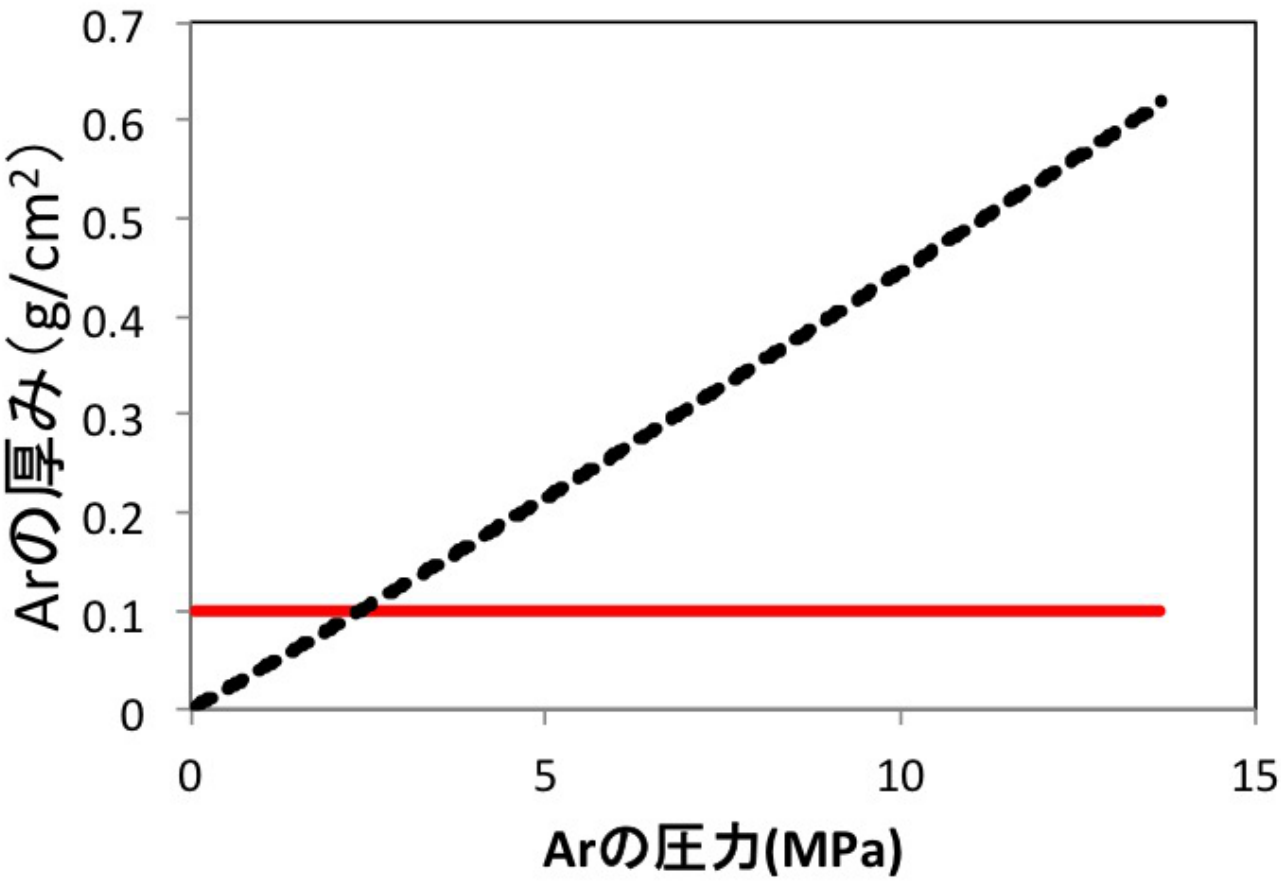


図 5.13　内径 2.4 cm における Ar の厚み (g/cm^2) に対する Ar の圧力（MPa）の変化.

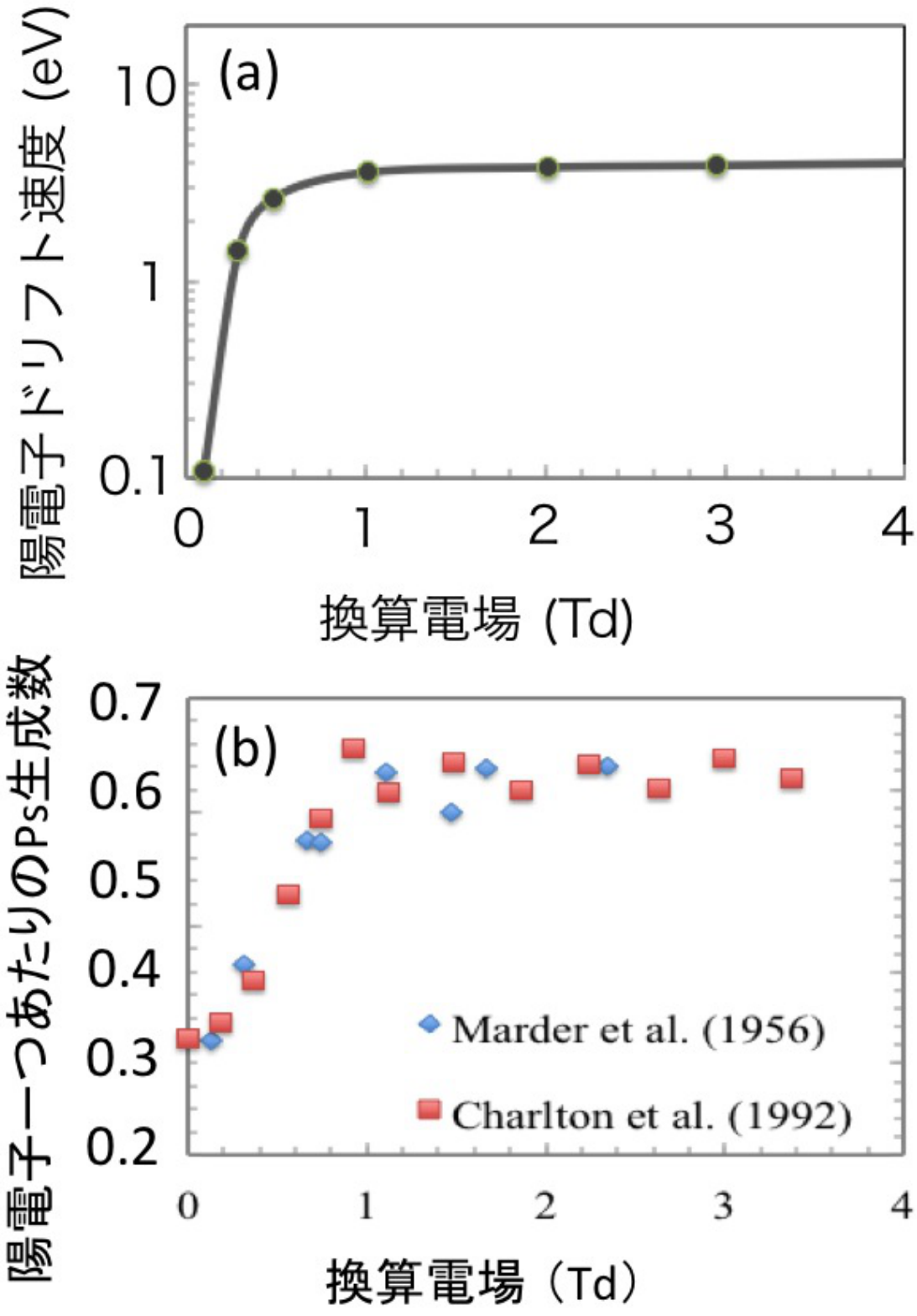


図 5.14　Ar ガス中における陽電子ドリフト速度の電場依存性 (a) [143] と Ps 生成率の電場依存性 (b) [145, 147]

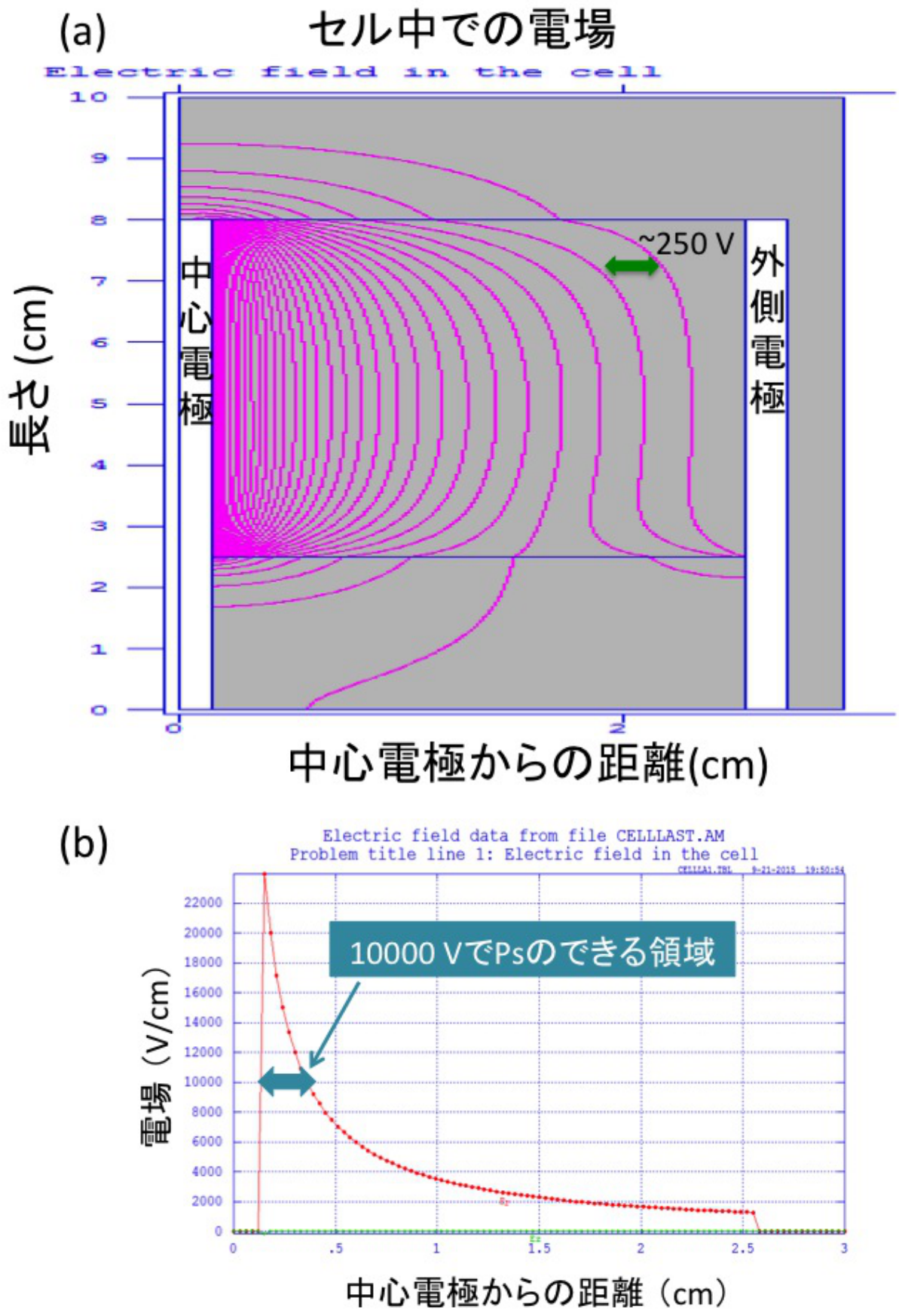


図 5.15　(a) セル中における電場．縦軸：電極の長さ（cm），横軸:中心電極からの距離．図左側は中心電極，図右側は外側電極．図上下部分は絶縁体構造，図内中心部はガス充填部．(b) セル中心平面におけるセル動径方向の電場勾配．縦軸は電場 (V/cm)，横軸は中心電極からの距離（cm）

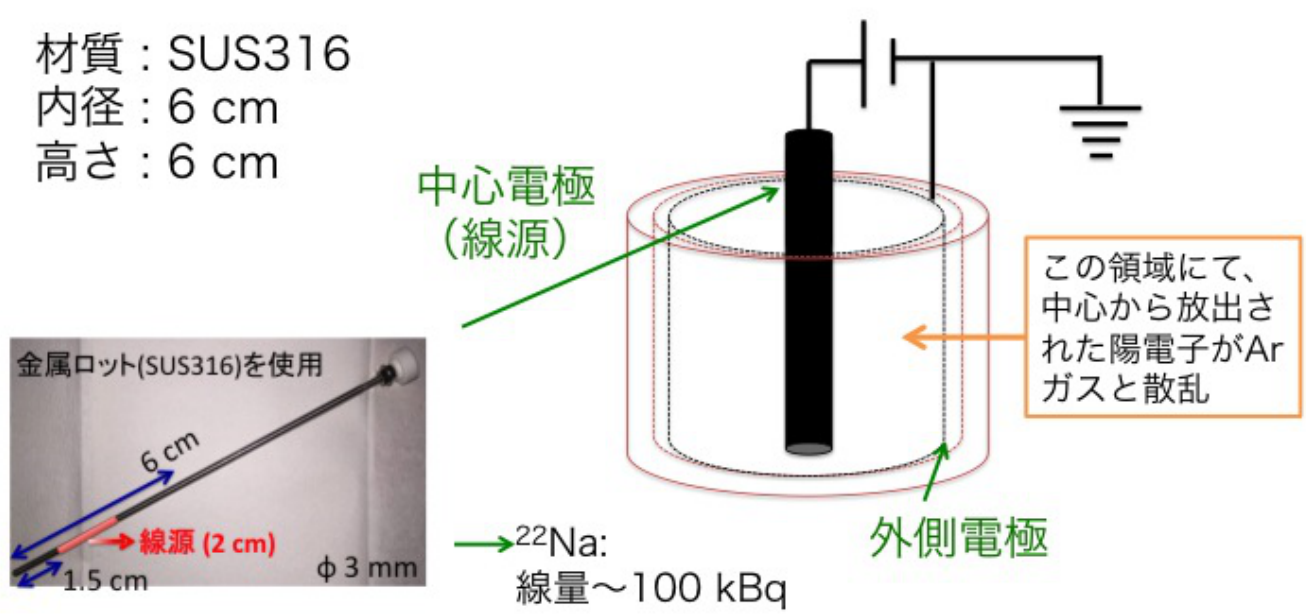


図 5.16　電極付き耐圧セルの模式図および線源構造

5.7　電場印加条件による陽電子寿命測定の実験方法

陽電子線源の作製は直径 3 mm，長さ 17 cm の SUS316 の金属ロッドに ^{22}Na を滴下することで行った．金属ロッドを固定し，^{22}NaCl 溶液を 1 μl ずつ三回滴下した．１時間以上ドラフト内で乾燥させた後に 60° ずつ計 5 回回転させ計 18 回滴下した．線源の放射能は 100 kBq であった．作製後の電極をセルに設置し，Ar ガス（純度 >99.9999 %）をセル内に充填する．電源（HARb-10R30-LF : 松定プレシジョン）から −10000–+10000 V の電圧を極板間に印加し，第 2 章に示した装置を用いて陽電子寿命測定法を行った．電場の向きは，陽電子を加速させる向きおよび，陽電子を減速させる向きそれぞれで実験を行った．

5.8　結果と考察

図 5.17 に Ar ガス 7.5 MPa 中における電場印加による寿命スペクトルの変化を示した．縦軸は計数率で横軸は寿命である．0 V での実験結果では，寿命スペクトル内にショルダー構造が見えているが，6000 V，10000 V と電圧をあげるにつれ，ショルダーが短くなった．陽電子寿命スペクトルの傾きからは，陽電子寿命の時間変化が求められる．導出方法は第 2 章と同様である．図 5.18 に Ar ガス 7.5 MPa の Z_{eff} の時間変化をまとめた．0 V の結果では，1 ns 付近で Z_{eff} が 15 以下まで下がり，その後およそ 6 ns で一定値 (Z_{eff}=23) となった．6000 V の結果では，1 ns 付近で Z_{eff} が 18 まで小さくなった後，3 ns まで上昇し，その後一定値（Z_{eff}=23）となった．

電場を変化させた際の，陽電子寿命スペクトルから熱化後の Z_{eff} を求め，図 5.19 に示した．図内には，電極間に正負それぞれ 0–10000 V の逆の電場の向きを印加して測定した結果を示している．● はプラス（陽電子減速方向）に電場を印加した結果，■ はマイナス（陽電子加速方向）に電場を印加した結果である．Z_{eff} は，マイナスおよびプラス両方向の電場に対して，差は見られなかった．線源からの陽電子の初期運動エネルギーは 0–

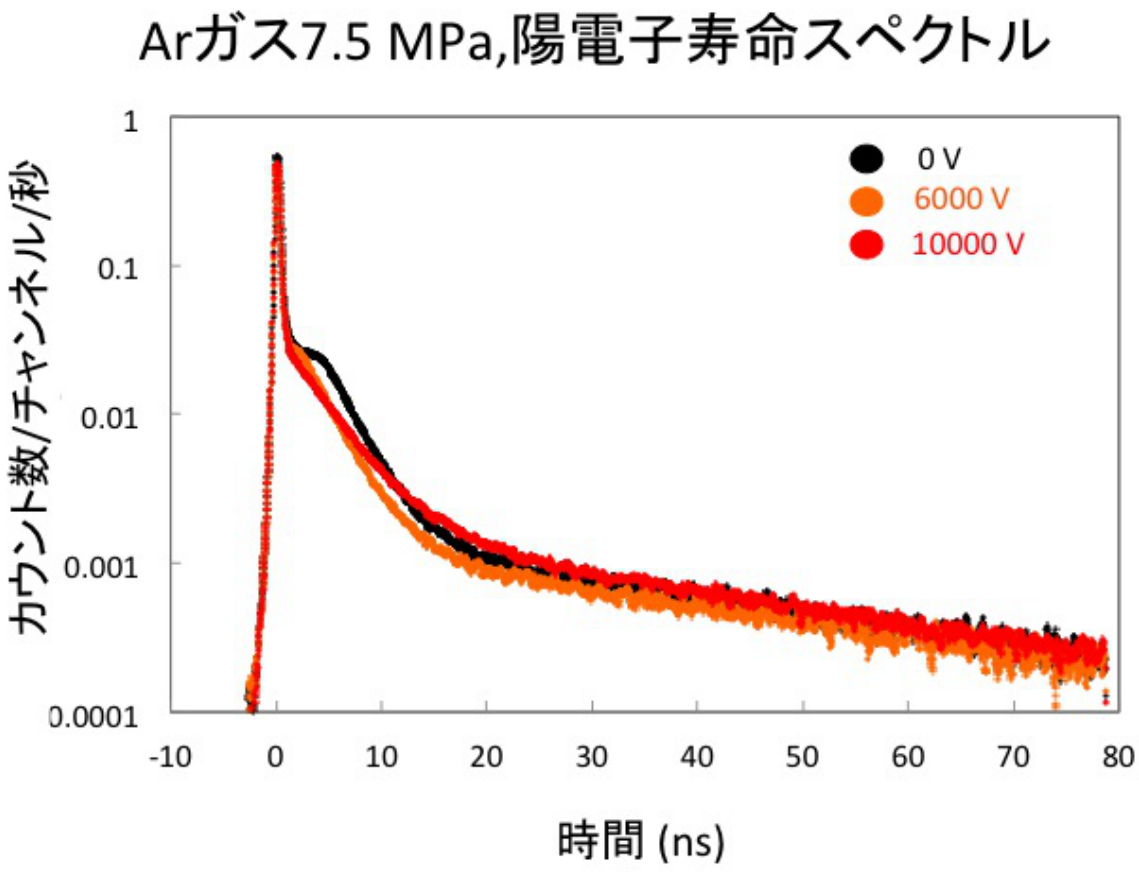


図 5.17　Ar ガス 7.5 MPa 中における寿命スペクトルの極板間電位依存性．縦軸は 1 秒間あたり 1ch あたりのカウント数で横軸は時間（ns）である．0 V に比べ，6000 V，10000 V と電圧をあげるにつれ陽電子消滅速度が減少し，*o*-Ps の強度が増加した．

数百 keV までの広いエネルギー分布を持って放出される．この際，陽電子線源から放出された陽電子は，金属ロッドの外側の 2π 方向を向いて放出されるため，陽電子が線源の外側方向に進行すると考えられる．しかしながら Ar ガス中で陽電子が減速する過程において，幾度となく散乱を繰り返す．この過程において陽電子が放出された初期の方向性を失ったと考えられる．実際に，数 eV の運動エネルギーを持つ陽電子と Ar の散乱においては，前方散乱のみならず，後方散乱の寄与も大きい [148]．陽電子が数 eV の運動エネルギーまで減速過程では，非弾性散乱および弾性散乱を 1 万回以上繰り返している．そのため，数 eV の運動エネルギーを持つ陽電子は，既に初期の方向を失い Ar ガス中で拡散していると考えられる．そのため，電場の向きによらず電場の強度のみに依存して陽電子が加速されたと考えられる．一方，Z_{eff} の変化については 0–6000 V までは一定の値で，その後緩やかに減少した．これは，陽電子の運動エネルギーが電場により増加したと解釈できる．図 5.20 は陽電子ビームを用いて，陽電子の運動エネルギーに対する Ar ガス中における陽電子の消滅速度を示している [92]．Ar ガス中における陽電子の Z_{eff} は，陽電子の運動エネルギーが大きくなるにつれ，小さくなることが知られている．室温（0.039 eV）では，Z_{eff}=26.77 であるが，1 eV 以上では Z_{eff} はおよそ 15 まで減少する．Z_{eff} の電場に対する変化から，0–6000 V までの電位では陽電子は十分に加速されず，6000 V 以上で陽電子が加速されることがわかった．また極板間に 10000 V 印加した場合では，Z_{eff} が 15 になった．10000 V の電位では，陽電子の平均ドリフト速度が 1 eV 以上になったと考えられる．

次に，電場に対する Ps の生成率の変化について考察した．図 5.21 に電場強度に対する，Ps 生成率の変化を示した．Ps 生成率についても，Z_{eff} の変化と同様に，電場の向きによって差はみられなかった．共に 6000 V から生成率の増加がみられた．Ar ガス中における Ps 生成率は，9 eV である．本研究で制作したセルでは，円筒形に電場を発生させたため，中心の領域で高い電場となり外側の領域で低い電場が生じていた．極板間に 6000 V を印加すると，中心領域で電場により 9 eV 以上の運動エネルギーまで加速された陽電子が生成し，Ps の生成率が増加したと考えられる．極板間に電場を 10000 V 印加すると，Ps の生成率がさらに増加し，１つあたりの陽電子に対する Ps 生成率は 0.51 となった．これは，電位の増加に伴いセル内に発生する電場が高くなり陽電子が 9 eV 以上まで加速される領域が広くなったためと考えられる．極板間に 10000 V では，電場が存在しない場合に比べ 1.5 倍の Ps を得ることができた．

ガス中に電場を印加し，熱化陽電子のエネルギーをコントロールすることに成功した．

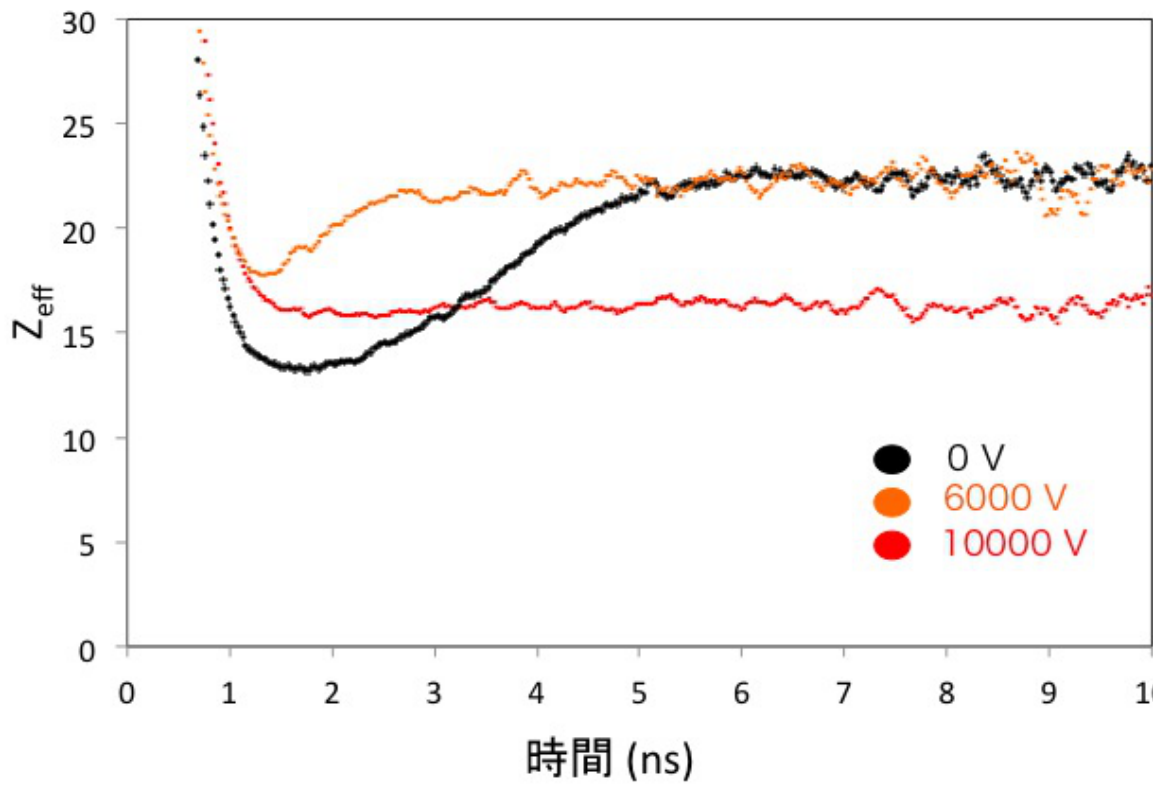


図 5.18　陽電子が加速する向きとなるように，電極間に 0,6000,10000 V を印加した，Ar ガス 7.5 MPa 中における Z_{eff} の時間変化．0 V の結果では，1 ns 付近で Z_{eff} が 15 以下まで下がり，その後およそ 6 ns で一定値（Z_{eff}=23）となった．6000 V の結果では，1 ns 付近で Z_{eff} が 18 まで小さくなった後，3 ns まで上昇し，その後一定値（Z_{eff}=23）となった．

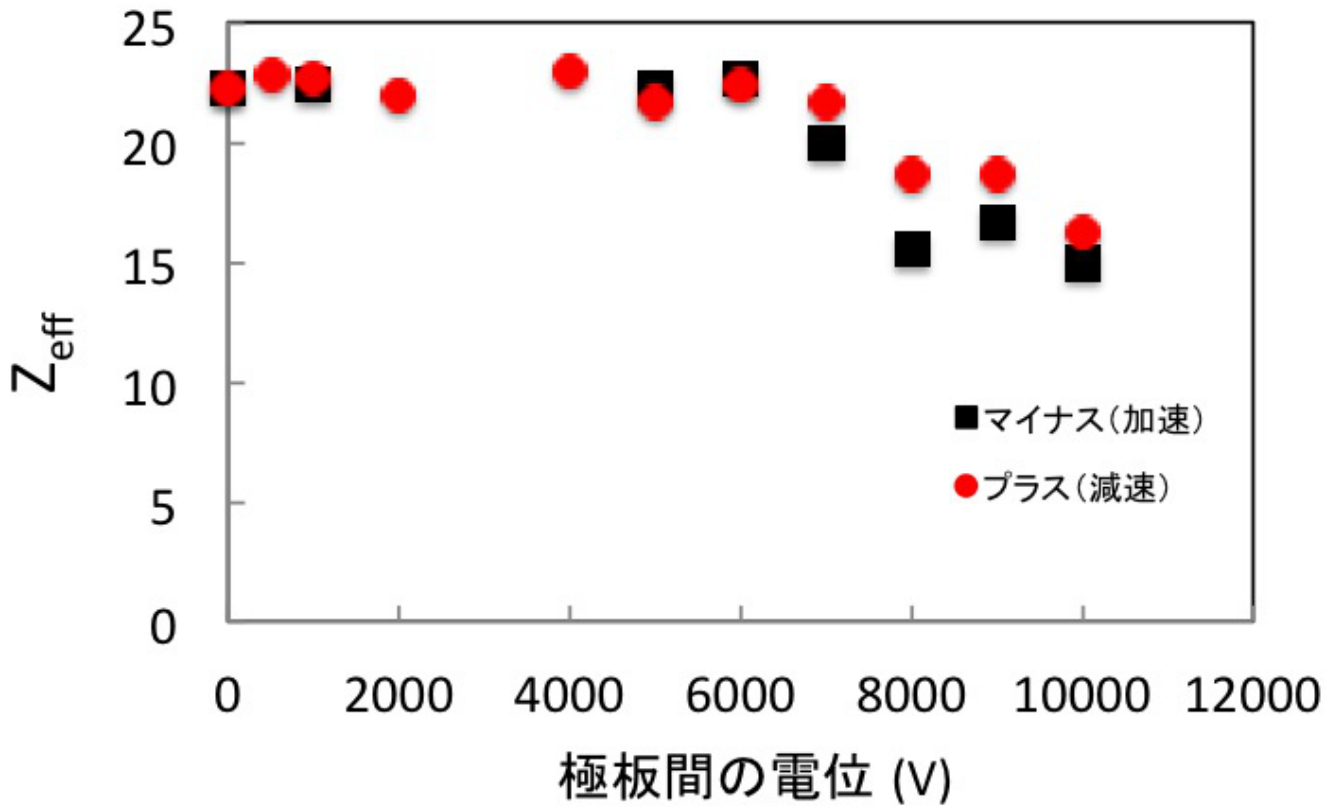


図 5.19　極板間に両方向の電位 (−10000 V から +10000 V) を印加した際における，熱化後の陽電子消滅速度（Z_{eff}）．●:プラス（陽電子減速方向）に電場を印加した．■：マイナス（陽電子加速方向）に電場を印加した．

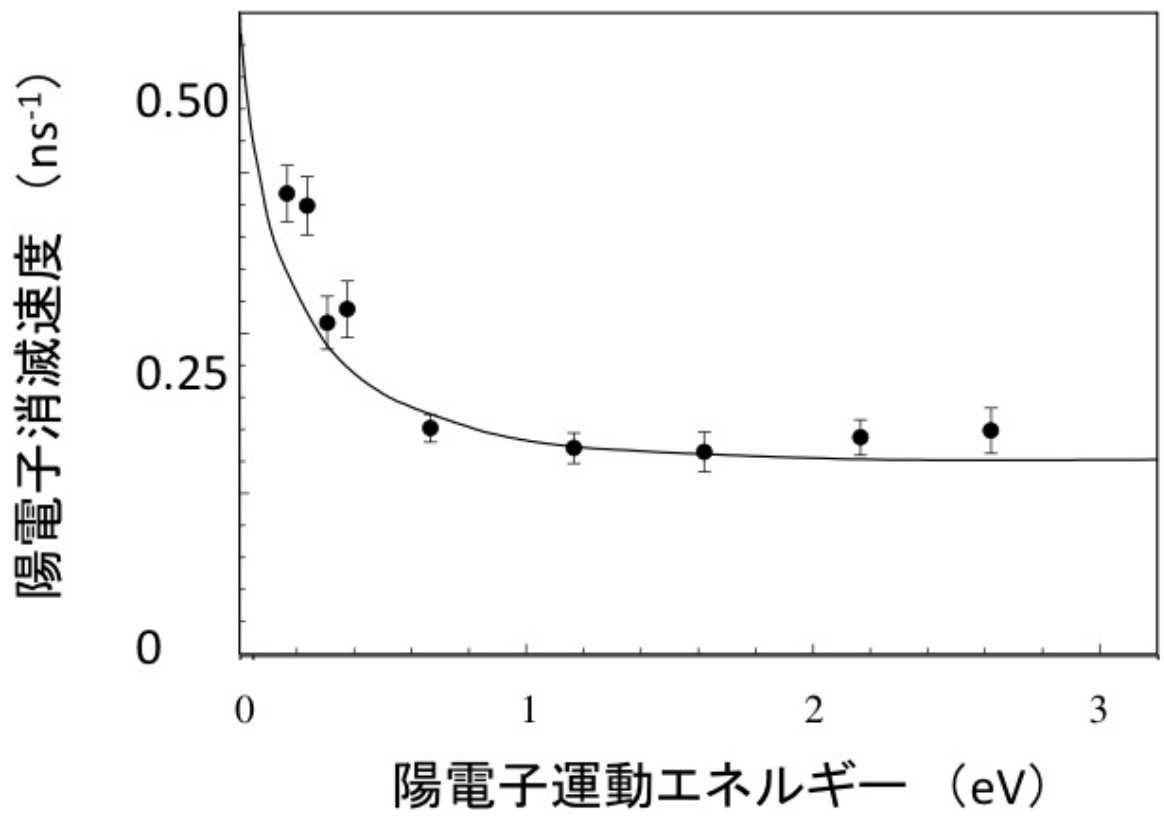


図 5.20　Ar ガス中における陽電子消滅速度のエネルギー依存性.（Reprinted from Experimental studies of the interaction of low energy positrons with atoms and molecules, 221, J. P. Marler and L. D. Barnes and S. J. Gilbert and J. P. Sullivan and J. A. Young and C. M. Surko, Annihilation below Ps formation, Pages No. 88, Copyright (2004), with permission from Elsevier.）

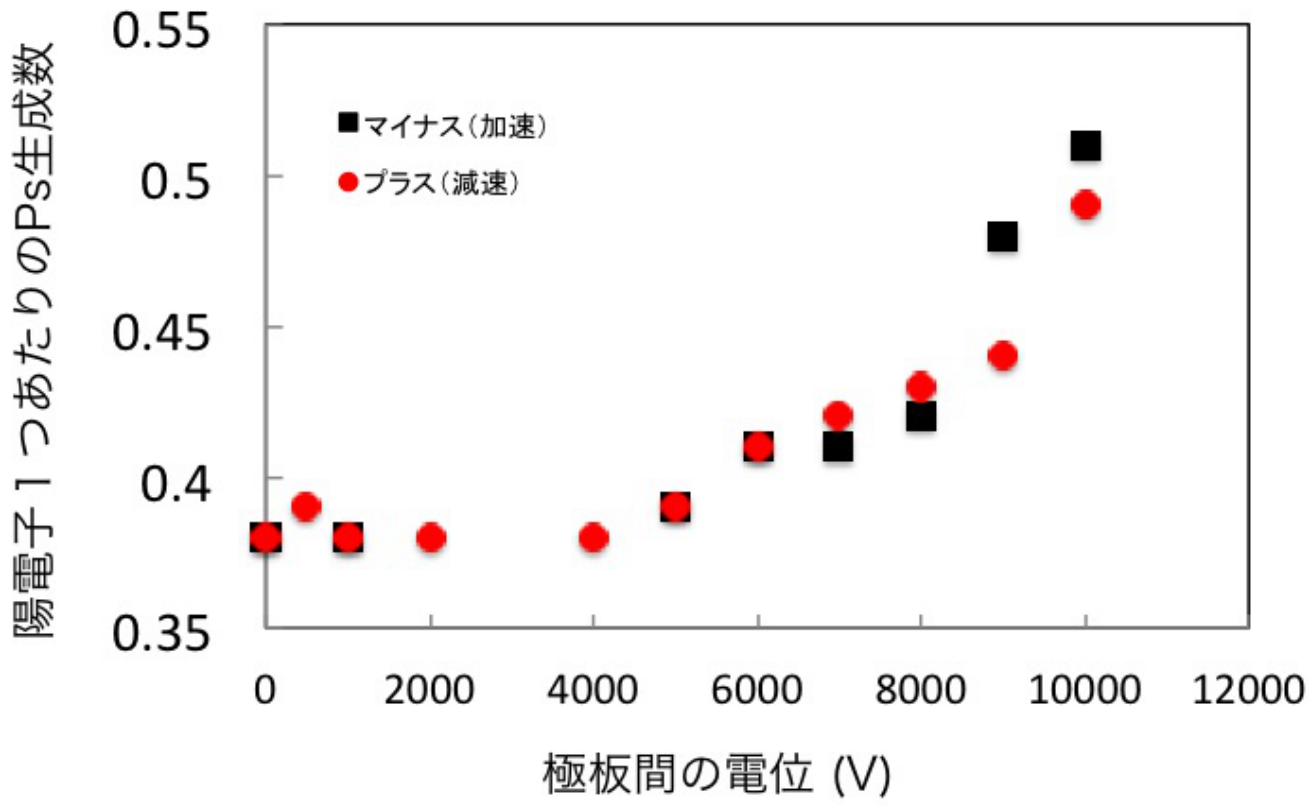


図 5.21　極板間に両方向の電位（−10000 V から +10000 V）を印加した際における，Ps 生成率の変化.

第 6 章

総括

電子の反粒子である陽電子は，電子と比較して電荷が異なる以外は他の物理的性質が等しい．しかしながら，化学反応に重要な低エネルギー領域においては陽電子の原子 · 分子相互作用は電子と全く異なる．陽電子が原子分子と散乱する際には 2 つの特徴的な過程が存在する．原子分子の持つ電子と消滅して γ 線を放出する対消滅過程と，原子分子の持つ電子を引き抜き束縛することでポジトロニウム (Ps) を生成する Ps 生成過程である．陽電子や Ps は物質中における消滅速度やドップラー広がりの変化から物性測定に利用されているが，陽電子が消滅速度やドップラー広がりは陽電子や Ps の運動エネルギーに影響を受けるため，物質中における陽電子や Ps の減速過程を正確に測定することが重要である．

陽電子や Ps は，原子分子との衝突過程を通じて減速する．数 eV の運動エネルギーを持つ陽電子や Ps と原子分子の散乱は電子の散乱描像と異なる．Ps と原子分子が散乱する際には直接的なクーロン相互作用が存在しない．電荷相互作用が電子交換相互作用に比べて小さいため，Ps–原子分子の散乱を電子-原子分子散乱と比較することで，散乱時における電子交換の影響の解明が期待される．また，Ps ビームを用いた研究では 10 eV 程度のエネルギーを持つ Ps と原子分子の全散乱断面積が，電子と原子分子の全散乱断面積と近いことが明らかとなり、10 eV 以下の低エネルギー領域における Ps と原子分子の散乱過程に興味が持たれてきた．また減速により得られた低エネルギー Ps は，量子電磁気学（QED）精密検証や，Ps による Bose-Einstein 凝縮の達成後の対消滅 γ 線を利用した 511 keV のコヒーレントレーザーへの応用，Ps と反陽子の衝突による再配列過程による反水素合成などの基礎分野から，Ps ビームを使った絶縁体材料表面解析など様々な分野への応用研究が期待されつつある．

本研究では，貴ガス中で陽電子の減速過程および Ps の生成とその減速過程に着目した．貴ガス中における陽電子減速過程を正確に理解することで，Ps の生成時間や生成時の運動エネルギーがわかる．また，短い時間で自己消滅をし，2 光子を放出する *p*-Ps の性質を利用した．*p*-Ps の消滅 γ 線の時間に対するエネルギー変化から Ps のエネルギー変化を観測することで，Ps–原子分子の衝突断面積を求めることを目的とした．

本研究で得られた知見を以下にまとめた．

第 2 章では，高密度 Ar ガス中において陽電子寿命測定を行った．Ar ガス密度が 2 nm^{-3} を超えると，陽電子消滅速度は Ar の数密度に対して線形に増加しなくなった．これは密度が高くなり多体効果の影響が生じ，消滅時に陽電子と相互作用をする Ar の電子数が少なくなるためと考えられる．さらに貴ガス中における陽電子の減速過程および Ps の生成とその減速過程を観測するために，カプトン箔に封じられた陽電子線源に Al, Ni, Cu, Ta 箔を被せて陽電子を減速させることにより，Ar ガス中における陽電子の最大飛程を求めた．ガス中に放出された陽電子の飛程は線源に被せた金属の種類に依存せず，厚み（g cm^{-2}）のみによって決定されることが分かった．計 0.1 g cm^{-2} の厚みがあれば，Ar ガス中で全ての陽電子を吸収できることがわかった．陽電子が Ar ガス中で完全に吸収される Ar ガスの数密度の下限値および多体効果が現れない Ar ガスの数密度の上限値を見積もった．

第 3 章では，貴ガス中での陽電子や Ps のエネルギー変化を時間の関数として測定するために，陽電子および *p*-Ps が消滅時に 2 つの γ 線を放出する性質に着目した．陽電子線源の ^{22}Na が陽電子とほぼ同時に放出する γ 線，計 3 つを同時測定する，陽電子消滅時刻運動量同時（AMOC）測定装置を構築した．各種モジュール類の調整および実験条件，トリプルコインコインシデンスの方法について記載している．また，*p*-Ps のシグナルを求めるために，バックグラウンド成分（Ge 半導体検出器におけるコンプトン散乱によるバックグラウンド成分，Ni 成分の除去，PAL のスペクトルのバックグラウンド成分，間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンド）の見積もりについて解説した．さらに 2 次元 MCA–AMOC システムからデジタルオシロスコープ AMOC システムに移行した．それと同時に，消滅 γ 線を検出するシンチレータをプラスティックシンチレータから BaF_2 に変更し，線源とシンチレータの距離を離すことで，間違った STOP シグナルを検出することによるゲートの発生頻度が低下させ，間違った寿命情報で開いたゲートによるバックグラウンドの発生を除けた．全体の検出効率は 5 倍となった．

第 4 章では，Ar ガス 7.5 MPa 中で AMOC 測定した陽電子および Ps 消滅 γ 線のドップラー広がりの時間発展を *S*-parameter および *W*-parameter で解析した．*S*-parameter は消滅 γ 線ドップラー広がりの狭い成分の割合で定義され，*W*-parameter は消滅 γ 線ドップラー広がりの広い成分の割合で定義される．*S*-parameter は $t = 0$ では 0.32 であったが，その後 1 ns の間に 0.358 まで上昇し一定値となった．*W*-parameter は $t = 0$ では 0.147 であったが，その後 1 ns の間に 0.090 まで減少し一定値となった．一方で，陽電子減速モデルと陽電子–Ar の運動量移行断面積から Ar7.5 MPa における Ar の非弾性散乱しきい値（Ps 生成しきい値を除く）の 11.6 eV 以下のエネルギーにおける陽電子減速を計算すると，1 ns では 2.5 eV まで減速することがわかった．Ar ガスの非弾性散乱しきい値直下（11.6 eV–2.5 eV）のエネルギーにおける陽電子の減速過程を，*S*-parameter と *W*-parameter によって観測することに成功した．

第 5 章では，Ar および Ne ガス中で AMOC 測定を行い，*p*-Ps 消滅 γ 線ドップラー広がりの時間発展から

Ps のエネルギー変化を観測し，Ps の減速過程を議論した．2 次元 MCA を用いた AMOC 測定で得られた結果では，Ar ガス 5.0 MPa 中において Ps は 0–0.2 ns の間に 3.7 eV の平均運動エネルギーを持っていた．その後 1 ns の間に 2.0 eV まで減速した．Ar ガス 7.5 MPa 中では Ps は 0–0.2 ns の間に 3.5 eV の平均運動エネルギーを持っており，その後 1 ns の間に 1.0 eV まで減速した．Ne ガス 5.0 MPa 中において測定した結果では，Ps は 0–0.2 ns の間に 4.3 eV の平均運動エネルギーを持っていた．その後 1 ns の間に 1.9 eV まで減速した．Ne ガス 7.5 MPa 中では，Ps は 0–0.2 ns の間に 3.5 eV の平均運動エネルギーを持っていた．その後 1 ns の間に 0.3 eV まで減速した．Ar，Ne それぞれで得られた実験結果に対して，Ps 減速モデルを用いてエネルギーに依存しない形で運動量移行断面積を求めた．Ps–Ar の運動量移行断面積は，1.0–3.7 eV の範囲で 0.019 ± 0.010 nm^2 であった．Ps-Ne の運動量移行断面積は 0.015 ± 0.08 nm^2 であり，Ps–Ar の運動量移行断面積よりも小さな値であった．

次にデジタルオシロスコープ AMOC システムにより得られた，Ar ガス 7.5 MPa 中におけるドップラー広がりの時間変化から Ps 減速過程を議論した．0.01 ns ごとにドップラー広がりを解析し，0.6–3.7 eV のエネルギー範囲において，運動量移行断面積をエネルギーに依存した形で求めた．デジタルオシロスコープで得られた運動量移行断面積の結果では，陽電子寿命測定に起因する時間方向の装置分解能（FWHM で 300 ps）を除ききれていない．特に早い時間（運動量移行断面積では，3.7 eV 付近）で装置分解能の影響が大きく，運動量移行断面積を過小評価している可能性がある．時間分解能をさらに考慮する必要がある．

今回求めた 3.7–0.6 eV における Ps-Ar の運動量移行断面積と，0.6 eV 以下のエネルギーでは長嶋らにより求められた運動量移行断面積の結果を用いて，Ps の熱化時間を見積もった．7.5 MPa の Ar ガス中にいては Ps はおよそ 3 ns で熱化する．第 2 章より Ar ガス 7.5 MPa における陽電子の熱化時間は，およそ 5 ns であった．Ar ガス中においては，Ps は陽電子の半分程度の時間で熱化することがわかった．

Ps–Ar の運動量移行断面積のエネルギー依存性について，Ps の運動エネルギーが増加するにつれ減少した．0.6 eV における運動量移行断面積は，0.3 eV で測定された長嶋らの結果と近い値であった．1.3 eV における運動量移行断面積は M. Skalsey らの結果と一致した．また，2.7 eV における運動量移行断面積は 2 次元 MCA により求めた運動量移行断面積と一致し，よい再現性を得た．理論との比較においては，1 eV までは，P. K. Biswas らと J. E. Blackwood らの結果の中間であった．1 eV 以上においては，J. E. Blackwood らの結果とよい一致を示した．先行研究では 1.0 a.u. 以上の速度において，Ps–原子分子の全断面積が電子–原子分子の全断面積に近い値となっていたが，0.3 a.u.（2.5 eV）以下では Ps–Ar ガスの運動量移行断面積は電子–Ar ガスの運動量移行断面積よりも大きな値であった．低エネルギーにおいて，Ps–Ar の運動量移行断面積は電子–Ar の運動量移行断面積と異なることがわかった．

さらに，ガス中に電場を印加し数 eV のエネルギーを持った陽電子と原子分子の散乱について研究した．電極の構造は，線源から放出された陽電子を効率よくガス中に入射させることを目的とし，円筒構造とした．0.4 MBq の ^{22}Na を用いて，デジタルオシロスコープ AMOC システムで AMOC 測定を行う際に，既存のセルと同等（4 cps 以上）の計数率を達成するために，セルの内径は 6 cm（半径 3 cm）とした．線源電極は半

径 1.5 mm，円筒形外側電極は厚み 4 mm とし，ガスの存在領域を 2.4 cm となるように設計した．2.4 cm の半径では，Ar ガスを 2.4 MPa にすると陽電子をガス中で止めることができる．セル内部各点における電場は，Possiton Superfish プログラムにより計算した．6000 V では 1 mm 以内の領域で，10000 V では 3 mm 以内の領域で 0.5 Td 以上の電場となった．

−10000 から +10000 の電圧を極板間に印加し，Ar ガス 7.5 MPa 中で陽電子寿命測定を行った．陽電子消滅速度の電極間の電位に対する減少から，極板間の電位の増加に対して陽電子が加速する様子が観測された．10000 V の電位では陽電子の平均ドリフト速度が 1 eV 以上になったと考えられる．Ps 生成率は 6000 V から増加した．これは陽電子が電場により加速され，Ps 生成しきい値以上の運動エネルギーを持つ陽電子が増加したためである．極板間に 10000 V の電圧を印加すると Ps の生成率は、0.51 となり，電場が存在しない場合に比べ 1.5 倍の Ps を得ることができた．

謝辞

本研究の機会を与えてくださるとともに，終始熱心にご指導，ご鞭撻を頂いた木野康志准教授に厚く御礼申し上げます．また，お忙しい中にもかかわらず，今回の論文を取りまとめるのにあたって有益なご助言を頂いた，関根勉教授，福村知昭教授に厚く御礼申し上げます．本研究を進めるにあたり，岡壽崇助教から丁寧なご指導や日常の議論を通じて様々な知識やアドバイスを頂きました．深く感謝申し上げます．AMOC 装置立ち上げの際に，日本原子力研究開発機構の平出哲也博士から数多くの助言を頂きました．また，電極付き耐圧セル開発に際して，産業技術総合研究所の大島永康博士，Brian E. O’Rourke 博士からご協力を頂きました．この場を借りて感謝の意を表します．

先輩として研究面だけでなく，生活面においても様々なご助言やご意見をくださった，二瓶英和博士に深く感謝致します．また，研究生活に彩りを与えてくださった，小荒井一真氏，山下琢磨氏，小野寺花梨氏，道股知也氏，西山純平氏，村野井友氏，竹内槙吾氏，真鍋賢介氏をはじめとする学生時代にかかわった木野研のメンバーに感謝致します．最後に，これまで私を育て，支えてくださった両親，妹，両祖父母ならびに友人たちに深く感謝致します．

本研究の一部は，東北大学国際高等研究教育機構より研究費の助成を受けて行いました．感謝申し上げます．

付録 A

AMOC 測定で得られた実験データ

Ar ガスと Ne ガス中において，２次元 MCA-AMOC システムで観測された，各時刻における Ps の運動エネルギー $\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}(t_1, t_2)$，$p$-Ps のカウント数，他の成分のカウント数および，他の成分の広がり（FWHM（keV））を示した.

表 A.1　Ar ガス 7.5 MPa における結果

測定時間 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)	p-Ps のカウント数	他の成分のカウント数	他の成分の広がり（FWHM（keV））
−0.146 ~ 0.245	3.46	8001	19376	3.29
0.246 ~ 0.637	2.34	4083	12142	2.93
0.638 ~ 1.03	1.03	336	6406	2.48

表 A.2　Ar ガス 5.0 MPa における結果

測定時間 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)	p-Ps のカウント数	他の成分のカウント数	他の成分の広がり（FWHM（keV））
−0.146 ~ 0.245	3.69	8577	20331	3.31
0.246 ~ 0.637	3.11	5172	10659	3.04
0.638 ~ 1.03	2.04	937	4269	2.66

表 A.3　Ne ガス 7.5 MPa における結果

測定時間 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)	p-Ps のカウント数	他の成分のカウント数	他の成分の広がり（FWHM（keV））
−0.146 ~ 0.245	3.45	13236	24763	3.43
0.246 ~ 0.637	1.70	4999	13373	3.23
0.638 ~ 1.03	0.31	475	4092	3.35

表 A.4　Ne ガス 5.0 MPa における結果

測定時間 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)	p-Ps のカウント数	他の成分のカウント数	他の成分の広がり（FWHM（keV））
−0.146 ~ 0.245	4.23	11650	25179	3.53
0.246 ~ 0.637	3.13	5801	13006	3.42
0.638 ~ 1.03	1.93	301	2562	3.29

Ar ガス 7.5 MPa 中においてデジタルオシロスコープ AMOC システムで観測された，各時刻における Ps の運動エネルギー $\overline{E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}}(t_1, t_2)$，$p$-Ps のカウント数，他の成分のカウント数および，他の成分の広がり（FWHM（keV））．10 ch（100 ps）ごとにデータを解析した結果を示した．

表 A.5　Ar ガス 7.5 MPa における結果

測定時間 $t_1 \sim t_2$ (ns)	$E_{\mathrm{Ps}}^{\mathrm{obs}}$ (eV)	p-Ps のカウント数	他の成分のカウント数	他の成分の広がり（FWHM（keV））
−0.43 ~ −0.34	2.9	401	963	3.24
−0.33 ~ −0.24	3.7	2611	4113	3.45
−0.23 ~ −0.14	3.6	5896	13457	3.23
−0.13 ~ −0.04	3.7	15787	23984	3.23
−0.03 ~ 0.06	3.7	23175	32448	3.32
0.07 ~ 0.16	3.2	23767	33461	3.38
0.17 ~ 0.26	2.7	17688	34068	3.17
0.27 ~ 0.36	2.0	11005	28364	3.01
0.37 ~ 0.46	2.1	7084	22464	2.91
0.47 ~ 0.56	1.4	4211	19049	2.84
0.57 ~ 0.66	1.0	3139	15310	2.82
0.67 ~ 0.76	0.9	1415	15378	2.55
0.77 ~ 0.86	< 0.1	354	14560	2.44

付録 B

電場計算に用いた入力パラメータ

```
;Setup
&reg
kprob=0,
xjfact=0.0,
;mode=-1,
icylin=1,
nbslf=1,
nbsrt=0,
kmax=500,
lmax=500,
&

;Define World（空間の設定）
&po x=0.0, y= 0.0 &
&po x=0.0, y= 10.0 &
&po x=3.0, y= 10.0 &
&po x=3.0, y= 0.0 &
&po x=0.0, y= 0.0 &

;Define World(Ar ガスの存在する空間の設定)
&reg mat=7, mtid=7&
&po x=0.15, y=2.5 &
&po x=0.15, y=8.0 &
```

```
&po x=2.55, y=8.0 &
&po x=2.55, y=2.5 &
&po x=0.15, y=2.5 &
&mt mtid=7, epsilon=1.0 &

;Define Inner electrode（電極部分の設定）
&reg mat=0, voltage=100.0E+2, ibound=-1 &
&po x=0.0, y=0.0 &
&po x=0.0, y=8.0 &
&po x=0.15, y=8.0 &
&po x=0.15, y=0.0 &
&po x=0.0, y=0.0 &

;Define outer electrode 2（外側電極の設定）
&reg mat=0, voltage=0.0, ibound=-1 &
&po x=2.55, y=0.0 &
&po x=2.55, y=8.0 &
&po x=2.75, y=8.0 &
&po x=2.75, y=0.0 &
&po x=2.55, y=0.0 &

; Macor（絶縁体部分の設定）
&reg mat=3, mtid=3 &
&po x=0.0, y=8.0 &
&po x=0.0, y=10.0 &
&po x=3.0, y=10.0 &
&po x=3.0, y=0.0 &
&po x=2.75, y=0.0 &
&po x=2.75, y=8.0 &
&po x=0.0, y=8.0 &
&mt mtid=3, epsilon=6.0 &

; Macor（絶縁体部分の設定）
```

```
&reg mat=4, mtid=3 &
&po x=0.15, y=0.0 &
&po x=0.15, y=2.5 &
&po x=2.55, y=2.5 &
&po x=2.55, y=0.0 &
&po x=0.15, y=0.0 &
&mt mtid=3, epsilon=6.0 &
```

参考文献

[1] P. A. M. Dirac. Exchange phenomena in the Thomas atom. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, Vol. 26, pp. 376–385, 1930.

[2] P. A. M. Dirac. On the Annihilation of Electrons and Protons. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, Vol. 26, pp. 361–375, 1930.

[3] C. D. Anderson. The positive electron. *Phys. Rev.*, Vol. 43, pp. 491–494, Mar 1933.

[4] R. N. West, J. Mayers, and P. A. Walters. A high-efficiency two-dimensional angular correlation spectrometer for positron studies. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, Vol. 14, No. 4, p. 478, 1981.

[5] E. do Nascimento, O. Helene, C. Takiya, and V.R. Vanin. Doppler broadening of positron annihilation radiation: fitting the coincidence spectrum. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 538, No. 1-3, pp. 723 – 730, 2005.

[6] Y. Nagai, Y. Nagashima, J. Kim, Y. Itoh, and T. Hyodo. Measurement of positron spin polarization by using the doppler broadening method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 171, No. 1-2, pp. 199 – 203, 2000. Low Energy Positron and Positronium Physics.

[7] K. Iwata, G. F. Gribakin, R. G. Greaves, and C. M. Surko. Positron annihilation with inner-shell electrons in noble gas atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 79, pp. 39–42, Jul 1997.

[8] K. Iwata, R. G. Greaves, and C. M. Surko. γ-ray spectra from positron annihilation on atoms and molecules. *Phys. Rev. A*, Vol. 55, pp. 3586–3604, May 1997.

[9] A. T. Stewart. Angular correlation of photons from positron annihilation in solids. *Phys. Rev.*, Vol. 99, pp. 594–595, Jul 1955.

[10] J. P. Sullivan, A. Jones, P. Caradonna, C. Makochekanwa, and S. J. Buckman. A positron trap and beam apparatus for atomic and molecular scattering experiments. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 79, No. 11, 2008.

[11] N. Oshima, R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Kinomura, T. Narumi, A. Uedono, and M. Fujinami. Brightness enhancement method for a high-intensity positron beam produced by an electron accelerator. *Journal of*

Applied Physics, Vol. 103, No. 9, 2008.

[12] S.J. Gilbert, J. Sullivan, R.G. Greaves, and C.M. Surko. Low-energy positron scattering from atoms and molecules using positron accumulation techniques. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 171, No. 1-2, pp. 81 – 95, 2000. Low Energy Positron and Positronium Physics.

[13] C. M. Surko, M. Leventhal, and A. Passner. Positron plasma in the laboratory. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 62, pp. 901–904, Feb 1989.

[14] J. Sullivan, J. Roberts, R. Weed, M. Went, D. S. Newman, and S. Buckman. A trap-based positron beamline for the study of materials. *Measurement Science and Technology*, Vol. 21, p. 7, 2010.

[15] A. C. L. Jones, C. Makochekanwa, P. Caradonna, D. S. Slaughter, J. R. Machacek, R. P. McEachran, J. P. Sullivan, S. J. Buckman, A. D. Stauffer, I. Bray, and D. V. Fursa. Positron scattering from neon and argon. *Phys. Rev. A*, Vol. 83, p. 032701, Mar 2011.

[16] M. Amoretti, C. Amsler, G. Bonomi, A. Bouchta, P.D. Bowe, C. Carraro, C. L. Cesar, M. Charlton, M. Doser, V. Filippini, A. Fontana, M. C. Fujiwara, R. Funakoshi, P. Genova, J. S. Hangst, R. S. Hayano, L. V. Jørgensen, A. Kellerbauer, V. Lagomarsino, R. Landua, D. Lindelof, E. Lodi Rizzini, M. Macrí, N. Madsen, G. Manuzio, P. Montagna, H. Pruys, C. Regenfus, A. Rotondi, G. Testera, A. Variola, L. Venturelli, D. P. van der Werf, and Y. Yamazaki. Dynamics of antiproton cooling in a positron plasma during antihydrogen formation. *Physics Letters B*, Vol. 590, No. 3-4, pp. 133 – 142, 2004.

[17] Y. Nagashima, K. Michishio, T. Tachibana, and H. Terabe. Towards the production of an energy-tunable positronium beam using ps − photodetachment technique. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 262, No. 1, p. 012041, 2011.

[18] T. Tachibana, T. Hirayama, and Y. Nagashima. Positron-annihilation-induced ion desorption from tio_2(110). *Phys. Rev. B*, Vol. 89, p. 201409, May 2014.

[19] N. Oshima, R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Kinomura, T. Narumi, A. Uedono, and M. Fujinami. Rapid three-dimensional imaging of defect distributions using a high-intensity positron microbeam. *Applied Physics Letters*, Vol. 94, No. 19, 2009.

[20] R. I. Grynszpan and P. G. Coleman. Positron re-emission from electro-deposited niw. *Measurement Science and Technology*, Vol. 12, No. 2, p. 163, 2001.

[21] J. P. Merrison, M. Charlton, B. I. Deutch, and L. V. Jørgensen. Studies of positron moderation in surface charged rare gas solids. *Hyperfine Interactions*, Vol. 76, No. 1, pp. 305–308, 1993.

[22] A. P. Mills and E. M. Gullikson. Solid neon moderator for producing slow positrons. *Applied Physics Letters*, Vol. 49, No. 17, 1986.

[23] D. A. L. Paul. The velocity-dependent annihilation rate of slow positrons in argon. *Proceedings of the*

Physical Society, Vol. 84, No. 4, p. 563, 1964.

[24] M. Szłuińska and G. Laricchia. Investigation into the energy dependence of the annihilation cross-sections for ne and xe below the positronium formation threshold. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 221, pp. 100 – 106, 2004. Proceedings of the {XII} International Workshop on Positron and Positronium Physics.

[25] P. G. Coleman. Rotational excitation and momentum transfer in slow positron-molecule collisions. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 14, No. 14, p. 2509, 1981.

[26] G. L. Wright, M. Charlton, G. Clark, T. C. Griffith, and G. R. Heyland. Positron lifetime parameters in h 2 , co 2 and ch 4. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 16, No. 21, p. 4065, 1983.

[27] I. Pepe, D. A. L. Paul, J. Steyaert, F. Gimeno-Nogues, J. Deutsch, and R. Prieels. Positron annihilation in liquid helium and liquid argon under an electric field. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 28, No. 16, p. 3643, 1995.

[28] P. G. Coleman, N. Cheesman, and E. R. Lowry. Coupling between positron-atom scattering channels above the first inelastic threshold. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 173201, May 2009.

[29] A. C. L. Jones, P. Caradonna, C. Makochekanwa, D. S. Slaughter, R. P. McEachran, J. R. Machacek, J. P. Sullivan, and S. J. Buckman. Observation of threshold effects in positron scattering from the noble gases. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 105, p. 073201, Aug 2010.

[30] G. F. Gribakin and J. Ludlow. Enhancement of positron-atom annihilation near the positronium formation threshold. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 88, p. 163202, Apr 2002.

[31] R. P. McEachran, A. G. Ryman, and A. D. Stauffer. Positron scattering from neon. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 11, No. 3, p. 551, 1978.

[32] A. Ghoshal and Y. K. Ho. Elastic scattering of positrons from hydrogen atoms with exponential cosine-screened coulomb potentials. *Physica Scripta*, Vol. 83, No. 6, p. 065301, 2011.

[33] S. N. Nahar and J. M. Wadehra. Relativistic approach for $e^{\pm}$ scattering from argon. *Phys. Rev. A*, Vol. 43, pp. 1275–1289, Feb 1991.

[34] J. Franz and F. A. Gianturco. Annihilation rates of low-energy positron scattering from simple diatomic molecules. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 247, No. 1, pp. 20 – 24, 2006.

[35] S. Hara and P. A. Fraser. Scattering and annihilation cross sections of positrons with argon. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 8, No. 2, p. 219, 1975.

[36] D. L. Moores. Calculations of integral cross-sections for electron and positron impact of rare gas atoms. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 179, No. 3, pp. 316 – 324, 2001.

[37] H. Nakanishi and D. M. Schrader. Simple but accurate calculations on the elastic scattering of electrons and positrons from neon and argon. *Phys. Rev. A*, Vol. 34, pp. 1823–1840, Sep 1986.

[38] D. G. Green, J. A. Ludlow, and G. F. Gribakin. Positron scattering and annihilation on noble-gas atoms. *Phys. Rev. A*, Vol. 90, p. 032712, Sep 2014.

[39] G. Laricchia, S. Armitage, D. E. Leslie, M. Szłuińska, and P. Van Reeth. Positron and positronium interactions with atoms and molecules. *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 68, No. 1-2, pp. 21 – 31, 2003. Proceedings of the 2nd Conference on Elementary Processess in Atomic Systems, {CEPAS} 2002. Gdansk, Poland, 2-6 September 2002.

[40] D. J. Murtagh, D. A. Cooke, and G. Laricchia. Excited-state positronium formation from helium, argon, and xenon. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 133202, Apr 2009.

[41] J. Moxom, G. Laricchia, and M. Charlton. Ionization of he, ar and h 2 by position impact at intermediate energies. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 28, No. 7, p. 1331, 1995.

[42] G. Laricchia, P. Van Reeth, M. Szłuińska, and J. Moxom. Total positron-impact ionization and positronium formation from the noble gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 35, No. 11, p. 2525, 2002.

[43] K. F. Canter, P. G. Coleman, T. C. Griffith, and G. R. Heyland. The measurement of total cross sections for positrons of energies 2-400 ev in he, ne, ar, and kr. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 6, No. 8, p. L201, 1973.

[44] O. Sueoka and A. Hamada. Total cross-section measurements for 0.3-10 ev positron scattering on n2, co, and co2 molecules. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 62, No. 8, pp. 2669–2674, 1993.

[45] F. Salvat. Optical-model potential for electron and positron elastic scattering by atoms. *Phys. Rev. A*, Vol. 68, p. 012708, Jul 2003.

[46] G. P. Karwasz, M. Barozzi, R. S. Brusa, and A. Zecca. Total cross sections for positron scattering on argon and krypton at intermediate and high energies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 192, No. 1-2, pp. 157 – 161, 2002.

[47] K. Nagumo, Y. Nitta, M. Hoshino, H. Tanaka, and Y. Nagashima. Magnetic-field-free measurements of the total cross sections for positron scattering from neon. *The European Physical Journal D*, Vol. 66, No. 3, p. 81, 2012.

[48] S. J. Tao, J. H. Green, and G. J. Celitans. Thermalization of positrons in argon. *Proceedings of the Physical Society*, Vol. 81, No. 6, p. 1091, 1963.

[49] S. J. Tao. Annihilation of positrons in argon at high densities. *Phys. Rev. A*, Vol. 1, pp. 1257–1260, Apr 1970.

[50] P. E. Osmon. Slow positron processes in gases. *Physics Letters*, Vol. 16, No. 3, pp. 271 – 272, 1965.

[51] W. K. Warburton and M. A. Shulman. A model allowing pre thermalization trapping of positrons. *Physics Letters A*, Vol. 60, No. 5, pp. 448 – 450, 1977.

[52] P. G. Coleman, T. C. Griffith, G. R. Heyland, and T. L. Killeen. Positronium formation in the noble gases. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 8, No. 10, p. L185, 1975.

[53] G. L. Wright, M. Charlton, T. C. Griffith, and G. R. Heyland. The annihilation of positrons and positronium formation in gaseous kr and xe. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 18, No. 21, p. 4327, 1985.

[54] R. P. McEachran and A. D. Stauffer. Positronium formation in the noble gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 46, No. 7, p. 075203, 2013.

[55] G. Laricchia, M. Charlton, G. Clark, and T. C. Griffith. Excited state positronium formation in low density gases. *Physics Letters A*, Vol. 109, No. 3, pp. 97 – 100, 1985.

[56] G. Laricchia, J. Moxom, and M. Charlton. Near threshold effects in positron-o_2 scattering. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 70, pp. 3229–3230, May 1993.

[57] S. L. Varghese, E. S. Ensberg, V. W. Hughes, and I. Lindgren. Evidence for formation of the first excited state of positronium. *Physics Letters A*, Vol. 49, No. 6, pp. 415 – 417, 1974.

[58] T. Hirade. Age-momentum correlation measurements of positron annihilation in water: Possibility of quantum beats on ortho-positronium reactions. *Chemical Physics Letters*, Vol. 480, No. 1-3, pp. 132 – 135, 2009.

[59] N. Suzuki, T. Hirade, . Saito, and T. Hyodo. Positronium formation reaction of trapped electrons and free positrons: delayed formation studied by {AMOC}. *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 68, No. 3-4, pp. 647 – 649, 2003. Proceedings of the 7th International Conference on Positron and Positronium Chemistry.

[60] H. Stoll, M. Koch, U. Lauff, K. Maier, J. Major, H. Schneider, A. Seeger, and A. Siegle. Annihilation of incompletely thermalized positronium studied by age-momentum correlation. *Applied Surface Science*, Vol. 85, pp. 17 – 21, 1995. Proceedings of the Sixth International Workshop on Slow-Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces.

[61] I. Pepe, D. A. L. Paul, J. Deutsch, and R. Prieels. Positronium formation in liquid nitrogen as a function of electric field. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 26, No. 13, p. L373, 1993.

[62] S. V. Stepanov, G. Duplâtre, V. M. Byakov, D. S. Zvezhinskiy, and V. S. Subrahmanyam. Formation of quasi-free and bubble positronium states in water and aqueous solutions. *ArXiv e-prints*, November 2013.

[63] P.G. Coleman, T.C. Griffith, G.R. Heyland, and T.L. Killeen. A simple positron lifetime system suitable for low density gases. *Applied physics*, Vol. 3, No. 4, pp. 0340–3793, 1974.

[64] S. V. Stepanov, C.-L. Wang, Y. Kobayashi, V. M. Byakov, and K. Hirata. What do we learn from the electric field effect on ps formation in liquids? *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 58, No. 5-6, pp. 403 – 409,

2000.

[65] K. L. Rose and S. DeBenedetti. Positron annihilation in solid argon. *Phys. Rev.*, Vol. 138, pp. A927–A933, May 1965.

[66] R. S. Albrecht and G. Jones. Influence of self-nucleating clusters on the annihilation of positrons in low temperature argon gas. *Physics Letters A*, Vol. 79, No. 5-6, pp. 417 – 420, 1980.

[67] H. Saito and T. Hyodo. Direct measurement of the parapositronium lifetime in α-sio$_2$. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 90, p. 193401, May 2003.

[68] A. Siegle, H. Stoll, P. Castellaz, J. Major, H. Schneider, and A. Seeger. Two-dimensional analysis of positron age-momentum correlation (amoc) data. *Applied Surface Science*, Vol. 116, pp. 140 – 144, 1997.

[69] S. V. Stepanov, D. S. Zvezhinskiy, and V. M. Byakov. Beyond the point ps approximation. *Materials Science Forum*, Vol. 733, pp. 7–14, 2013.

[70] K. Wada, F. Saito, and T. Hyodo. Orthopositronium annihilation rates in gaseous halogenated methanes. *Phys. Rev. A*, Vol. 81, p. 062710, Jun 2010.

[71] M. Kakimoto and T. Hyodo. Evidence for normal formation of positronium in gaseous xe. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 21, No. 17, p. 2977, 1988.

[72] K. Jerie, A. Baranowski, S. Koziol, J. Gliński, and A. Burakowski. Structure of water + acetonitrile solutions from acoustic and positron annihilation measurements. *Chemical Physics*, Vol. 309, No. 2-3, pp. 277 – 282, 2005.

[73] A. P. Mills. Observation of the positronium negative ion. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 46, pp. 717–720, Mar 1981.

[74] St. Mohorovičić. Möglichkeit neuer elemente und ihre bedeutung für die astrophysik. *Astronomische Nachrichten*, Vol. 253, No. 4, pp. 93–108, 1934.

[75] M. Kakimoto, T. Hyodo, and T. B. Chang. Conversion of ortho-positronium in low-density oxygen gas. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 23, No. 3, p. 589, 1990.

[76] O. Halpern. Magnetic quenching of the positronium decay. *Phys. Rev.*, Vol. 94, pp. 904–907, May 1954.

[77] A. Bisi, A. Fiorentini, E. Gatti, and L. Zappa. Magnetic quenching of positronium in solids and positron helicity. *Phys. Rev.*, Vol. 128, pp. 2195–2199, Dec 1962.

[78] G. Dlubek, M. Stolp, Ch. Nagel, H. M. Fretwell, M. A. Alam, and H.-J. Radusch. Effect of crystallization and of water uptake on the free-volume hole size in polyamides 6 and 66. *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 10, No. 46, p. 10443, 1998.

[79] A. Ishida, T. Namba, S. Asai, T. Kobayashi, H. Saito, M. Yoshida, K. Tanaka, and A. Yamamoto. New precision measurement of hyperfine splitting of positronium. *Physics Letters B*, Vol. 734, pp. 338 – 344, 2014.

[80] K. Ito, Y. Kobayashi, and A. Nanasawa. High sensitivity of positron annihilation to thermal oxidation of

polyethylene. *Applied Physics Letters*, Vol. 82, No. 4, pp. 654–656, 2003.

[81] Y. Shibahara, H. S. Sodaye, Y. Akiyama, S. Nishijima, Y. Honda, G. Isoyama, and S. Tagawa. Effect of humidity and temperature on polymer electrolyte membrane (nafion 117) studied by positron annihilation spectroscopy. *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No. 18, pp. 5934 – 5937, 2010. Selected Papers Presented at 4th International Conference on Polymer Batteries and Fuel Cells.

[82] K. Sato, H. Murakami, K. Ito, K. Hirata, and Y. Kobayashi. Probing the elemental environment around the free volume in polymers with positron annihilation age − momentum correlation spectroscopy. *Macromolecules*, Vol. 42, No. 13, pp. 4853–4857, 2009.

[83] Chi-Lan Li, Shu-Hsien Huang, Wei-Song Hung, Se-Tsung Kao, Da-Ming Wang, Y. C. Jean, K.-R. Lee, and J.-Y. Lai. Study on the influence of the free volume of hybrid membrane on pervaporation performance by positron annihilation spectroscopy. *Journal of Membrane Science*, Vol. 313, No. 1-2, pp. 68 – 74, 2008.

[84] M. Misheva, N. Djourelov, and E. T. Nedkov. Gamma irradiation effect upon positron annihilation in ultra high molecular weight poly(ethylene oxide). *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 62, No. 5-6, pp. 379 – 385, 2001.

[85] K. Sato, D. Shanai, Y. Hotani, T. Ougizawa, K. Ito, K. Hirata, and Y. Kobayashi. Positronium formed by recombination of positron-electron pairs in polymers. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 96, p. 228302, Jun 2006.

[86] O. Morandi, P.-A. Hervieux, and G. Manfredi. Bose-einstein condensation of positronium in silica pores. *Phys. Rev. A*, Vol. 89, p. 033609, Mar 2014.

[87] A. S. Kadyrov, C. M. Rawlins, A. T. Stelbovics, I. Bray, and M. Charlton. Antihydrogen formation via antiproton scattering with excited positronium. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 114, p. 183201, May 2015.

[88] G. Laricchia, S. Armitage, D. E. Leslie, M. Szłuińska, and P. Van Reeth. Positron and positronium interactions with atoms and molecules. *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 68, pp. 21–31, September 2003.

[89] K. Michishio, T. Tachibana, H. Terabe, A. Igarashi, K. Wada, T. Kuga, A. Yagishita, T. Hyodo, and Y. Nagashima. Photodetachment of positronium negative ions. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 106, p. 153401, Apr 2011.

[90] K. Michishio, T. Tachibana, R. H. Suzuki, K. Wada, A. Yagishita, T. Hyodo, and Y. Nagashima. An energy-tunable positronium beam produced using the photodetachment of the positronium negative ion. *Applied Physics Letters*, Vol. 100, No. 25, 2012.

[91] S. J. Brawley, S. E. Fayer, M. Shipman, and G. Laricchia. Positronium production and scattering below its breakup threshold. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 115, p. 223201, Nov 2015.

[92] J. P. Marler, L. D. Barnes, S. J. Gilbert, J. P. Sullivan, J. A. Young, and C. M. Surko. Experimental studies of the interaction of low energy positrons with atoms and molecules. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 221, pp. 84 – 92, 2004.

Proceedings of the {XII} International Workshop on Positron and Positronium Physics.

[93] S. Armitage, D. E. Leslie, A. J. Garner, and G. Laricchia. Fragmentation of positronium in collision with he atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 89, p. 173402, Oct 2002.

[94] C. Dauwe, G. Consolati, T. Van Hoecke, and D. Segers. The analysis of non-exponential decay in relation to positronium thermalization. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 371, No. 3, pp. 497 – 503, 1996.

[95] M. Skalsey, J. J. Engbrecht, C. M. Nakamura, R. S. Vallery, and D. W. Gidley. Doppler-broadening measurements of positronium thermalization in gases. *Phys. Rev. A*, Vol. 67, p. 022504, Feb 2003.

[96] G. Laricchia, S. A. Davies, M. Charlton, and T. C. Griffith. The production of a timed tunable beam of positronium atoms. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, Vol. 21, No. 9, p. 886, 1988.

[97] N. Zafar, G. Laricchia, M. Charlton, and A. Garner. Positronium-argon scattering. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 76, pp. 1595–1598, Mar 1996.

[98] M. Shipman, S. Brawley, L. Sarkadi, and G. Laricchia. Collimated positronium production from gases. *The European Physical Journal D*, Vol. 68, No. 4, 2014.

[99] Y. Nagashima, M. Kakimoto, T. Hyodo, K. Fujiwara, A. Ichimura, T. Chang, J. Deng, T. Akahane, T. Chiba, K. Suzuki, B. T. A. McKee, and A. T. Stewart. Thermalization of free positronium atoms by collisions with silica-powder grains, aerogel grains, and gas molecules. *Phys. Rev. A*, Vol. 52, pp. 258–265, Jul 1995.

[100] P. G. Coleman, S. Rayner, F. M. Jacobsen, M. Charlton, and R. N. West. Angular correlation studies of positron annihilation in the noble gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 27, No. 5, p. 981, 1994.

[101] F. Saito, Y. Nagashima, and T. Hyodo. Momentum-transfer cross sections for slow positronium-gas collisions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 36, No. 20, p. 4191, 2003.

[102] K. Shibuya, Y. Kawamura, and H. Saito. Time-resolved determination of ortho-positronium kinetic energy utilizing p-wave scattering during positronium-xenon collisions. *Phys. Rev. A*, Vol. 88, p. 042517, Oct 2013.

[103] J. J. Engbrecht, M. J. Erickson, C. P. Johnson, A. J. Kolan, A. E. Legard, S. P. Lund, M. J. Nyflot, and J. D. Paulsen. Energy-dependent ps-he momentum-transfer cross section at low energies. *Phys. Rev. A*, Vol. 77, p. 012711, Jan 2008.

[104] J. Engbrecht. Studies of low energy positronium-gas scattering using age-momentum correlation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 221, pp. 119 – 123, 2004. Proceedings of the {XII} International Workshop on Positron and Positronium Physics.

[105] J. E. Blackwood, C. P. Campbell, M. T. McAlinden, and H. R. J. Walters. Positronium scattering by helium. *Phys. Rev. A*, Vol. 60, pp. 4454–4460, Dec 1999.

[106] J. Mitroy and I. A. Ivanov. Positronium scattering from closed-shell atoms and ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 65, p. 012509, Dec 2001.

[107] C. Starrett and H. R. J. Walters. Excited state positronium collisions with the noble gases. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 266, No. 14, pp. 3221 – 3225, 2008.

[108] N. K. Sarkar, P. Chaudhury, and A. S. Ghosh. Ps-he scattering using the three-state positronium close-coupling approximation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 32, No. 7, p. 1657, 1999.

[109] A. S. Ghosh, A. Basu, T. Mukherjee, and P. K. Sinha. Ps-he scattering below the first target excitation threshold. *Phys. Rev. A*, Vol. 63, p. 042706, Mar 2001.

[110] S. Chiesa, M. Mella, and G. Morosi. Orthopositronium scattering off h and he. *Phys. Rev. A*, Vol. 66, p. 042502, Oct 2002.

[111] I. I. Fabrikant and G. F. Gribakin. Similarity between positronium-atom and electron-atom scattering. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 112, p. 243201, Jun 2014.

[112] J. Y. Zhang and J. Mitroy. Stochastic variational method for elastic scattering. *Phys. Rev. A*, Vol. 78, p. 012703, Jul 2008.

[113] S. J. Brawley, S. Armitage, J. Beale, D. E. Leslie, A. I. Williams, and G. Laricchia. Electron-like scattering of positronium. *Science*, Vol. 330, No. 6005, p. 789, 2010.

[114] P. K. Biswas and S. K. Adhikari. Scattering of positronium by h, he, ne, and ar. *Chemical Physics Letters*, Vol. 317, No. 1-2, pp. 129 – 134, 2000.

[115] J. E. Blackwood, M. T. McAlinden, and H. R. J. Walters. Positronium scattering by ne, ar, kr and xe in the frozen target approximation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 35, No. 12, p. 2661, 2002.

[116] J. P. Marler, C. M. Surko, R. P. McEachran, and A. D. Stauffer. Differential cross sections for positron-xenon elastic scattering. *Phys. Rev. A*, Vol. 73, No. 6, JUN 2006.

[117] T. S. Stein, W. E. Kauppila, C. K. Kwan, S. P. Parikh, and S. Zhou. Measurements of positronium formation cross sections for positron-ar and-k scattering. *Hyperfine Interactions*, Vol. 73, No. 1, pp. 53–63, 1992.

[118] M. T. McAlinden and H. R. J. Walters. Positron scattering by the noble gases. *Hyperfine Interactions*, Vol. 73, No. 1, pp. 65–83, 1992.

[119] W. R. Falk, P. H. R. Orth, and G. Jones. Effect of electric field on positron lifetimes in argon and helium. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 14, pp. 447–449, Mar 1965.

[120] C. M. Surko, G. F. Gribakin, and S. J. Buckman. Low-energy positron interactions with atoms and molecules. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 38, No. 6, p. R57, 2005.

[121] P. H. R. Orth and G. Jones. Annihilation of positrons in argon i. experimental. *Phys. Rev.*, Vol. 183, pp. 7–15, Jul 1969.

[122] P. Kirkegaard, M. Eldrup, O. E. Mogensen, and N. J. Pedersen. Program system for analysing positron lifetime spectra and angular correlation curves. *Computer Physics Communications*, Vol. 23, No. 3, pp. 307 – 335, 1981.

[123] CODATA value for the classical electron radius at NIST.

[124] S. J. Tao, J. Bell, and J. H. Green. Fine structure in the delayed coincidence lifetime curves for positrons in argon. *Proceedings of the Physical Society*, Vol. 83, No. 3, p. 453, 1964.

[125] D. B. Miller, P. H. R. Orth, and G. Jones. Temperature dependence of the annihilation rate of positrons in argon gas. *Physics Letters A*, Vol. 27, No. 10, pp. 649 – 650, 1968.

[126] K. Rytsölä M. Tuomisaari and P. Hautojärvi. Localized state of positron in argon. *Physics Letters A*, Vol. 112, No. 6-7, pp. 279 – 282, 1985.

[127] T. C. Griffith and G. R. Heyland. Experimental aspects of the study of the interaction of low-energy positrons with gases. *Physics Reports*, Vol. 39, No. 3, pp. 169 – 277, 1978.

[128] T. Oka, Y. Sano, Y. Kino, and T. Sekine. Optimisation of the thickness of the moderator for positron annihilation process study in ar gas*. *Eur. Phys. J. D*, Vol. 68, No. 6, p. 156, 2014.

[129] H. Stoll, M. Koch, K. Maier, and J. Major. Positron age-momentum correlation studies of defects and positronium by an mev positron beam. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol. 56-57, Part 1, pp. 582 – 585, 1991.

[130] T. Hyodo, N. Suzuki, H. Saito, and Y. Nagai. Age-momentum correlation study of positronium, fine particle surface and monovacancy formation energy. *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 58, No. 5-6, pp. 767 – 769, 2000.

[131] R. P. McEachran, A. G. Ryman, and A. D. Stauffer. Positron scattering from argon. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 12, No. 6, p. 1031, 1979.

[132] W. C. Sauder. Thermalization by elastic collisions: Positronium in a rare gas moderator. *J. Res. Nat. Bur. Stand., 72A: 91-3(Jan.-Feb. 1968).*, Jan 1968.

[133] Y. Sano, Y. Kino, T. Oka, and T. Sekine. Energy loss of positrons below the excitation threshold in ar gas. *JJAP Conference Proceedings*, Vol. 011004, p. 2, 2014.

[134] Y. Sano, Y. Kino, T. Oka, and T. Sekine. Kinetic energy of ps formed by ore mechanism in ar gas. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 618, No. 1, p. 012010, 2015.

[135] Shinohara. N Nagashima. Y, Saito. F and Hyodo. T. New directions in antimatter chemistry and physics. *New Directions in Antimatter Chemistry and Physics ed C M Surko and F A Gianturco (Dordrecht: Kluwer)*, Vol. Kluwer, Dordrecht, 2001, p. 291, 2001.

[136] Y. Sano, Y. Kino, T. Oka, and T. Sekine. Ps slowing down process below the ps break-up energy in ar gas. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 635, No. 5, p. 052088, 2015.

[137] Milloy H. B., Crompton R. W., Rees J. A., and Robertson A. G. The momentum transfer cross section for electrons in argon in the energy range 0-4 ev. *Australian Journal of Physics*, Vol. 30, No. 5, pp. 61–72, 1977.

[138] M. Charlton. Positron transport in gases. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 162, No. 1, p. 012003, 2009.

[139] Z. Lj. Petrović, A. Banković, S. Dujko, S. Marjanović, M. Šuvakov, G. Malović, J. P. Marler, S. J. Buckman, R. D. White, and R. E. Robson. On new developments in the physics of positron swarms. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 199, No. 1, p. 012016, 2010.

[140] P. S. Grover, S. Kumar, and K. V. Sinha. Computer calculation of positron drift velocities in he, ne and ar. *Pramana*, Vol. 23, No. 2, pp. 235–243, 1984.

[141] A. Banković, S. Dujko, R. D. White, J. P. Marler, S. J. Buckman, S. Marjanović, G. Malović, G. García, and Z. Lj .Petrović. Positron transport in water vapour. *New Journal of Physics*, Vol. 14, No. 3, p. 035003, 2012.

[142] A. H. Ruttenberg, R. Tawel, and K. F. Canter. Experimental investigation of a {DC} electric field on positron self-trapping in helium gas. *Solid State Communications*, Vol. 53, No. 1, pp. 63 – 66, 1985.

[143] M. Šuvakov, Z. Lj. Petrović, J. P. Marler, S. J. Buckman, R. E. Robson, and G. Malović. Monte carlo simulation of non-conservative positron transport in pure argon. *New Journal of Physics*, Vol. 10, No. 5, p. 053034, 2008.

[144] A. Bartels. Density dependence of the electron drift velocity in argon. *Physics Letters A*, Vol. 44, No. 6, pp. 403 – 404, 1973.

[145] M. Charlton, R. A. Cullen, J. Raza, and M. S. T. Watts. Positronium formation in the heavier noble gases in the presence of a static electric field. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 25, No. 20, p. 4351, 1992.

[146] Los Alamos Accelerator Code Group. Poisson/superfish reference manual. *LA-UR-87-126*, Vol. 41, pp. 2437–2444, Mar 1987.

[147] S. Marder, V. W. Hughes, C. S. Wu, and W. Bennett. Effect of an electric field on positronium formation in gases: Experimental. *Phys. Rev.*, Vol. 103, pp. 1258–1265, Sep 1956.

[148] A. Jain. Low-energy positron-argon collisions by using parameter-free positron correlation polarization potentials. *Phys. Rev. A*, Vol. 41, pp. 2437–2444, Mar 1990.