

放射性同位元素を利用した
短パルス化低速陽電子ビームの開発研究

大島 永康

博士 (理学)

総合研究大学院大学
数物科学研究所
加速器科学専攻

平成 9 年度

(1 9 9 7)

目 次

1	はじめに	7
1.1	陽電子消滅と低速陽電子の歴史的背景	7
1.2	著者によるこれまでの低速陽電子研究への取り組み	8
1.3	本研究の目的	9
1.4	本論文の構成について	9
2	陽電子消滅と低速陽電子の概要	11
2.1	陽電子消滅の基礎	11
2.1.1	寿命測定法	13
2.1.2	2光子角相関法	15
2.1.3	ドップラー測定法	16
2.2	低速陽電子	16
2.2.1	陽電子線源	16
2.2.2	陽電子の単色化	17
2.2.3	陽電子ビームの輸送	18
3	パルス化低速陽電子ビームの開発	26
3.1	低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定の例	26
3.2	新しいパルス化方法の理論的考察	27
3.2.1	パルス化の原理	27
3.2.2	陽電子バンチの広がりに関する考察	28
3.2.3	パルス化条件のマッピング	30
3.2.4	位相空間を用いたパルス化の考察	31
3.3	低速陽電子ビームラインと測定系	38
3.4	パルシングバイアスの形成	47
3.4.1	パルシングバイアス発生装置と伝送回路	47
3.4.2	回路シミュレーターによる伝送回路の評価	48
3.4.3	パルシングバイアスの形成方法	49
3.5	低速陽電子のエネルギー分布	50
4	パルス化装置の特性	66
4.1	パルス化低速陽電子ビームの効率とスペクトル	66

4.2	装置の時間分解能	66
4.2.1	シンチレーション検出器系の時間分解能 Γ_{detector} の見積もり	67
4.2.2	陽電子バンチの時間分解能 Γ_{bunch} の見積もり	67
4.2.3	時間分解能の理論値と実験値との比較	68
4.3	寿命測定時におけるサテライトピークの問題	69
5	パルス化低速陽電子ビームの応用	77
5.1	ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)中の陽電子寿命測定	77
5.1.1	従来の陽電子寿命測定法によるPTFE材料の解析	77
5.1.2	パルス化低速陽電子による寿命スペクトルの解析方法	78
5.1.3	パルス化低速陽電子による寿命スペクトルの解析結果	79
5.1.4	パルス化低速陽電子ビームによるドップラー測定法の結果	79
5.2	鉄(50 nm)を蒸着したPTFEへの応用	80
5.2.1	パルス化低速陽電子ビームによる寿命測定	80
5.2.2	低速陽電子ストッピングプロファイルを用いた考察	81
5.2.3	パルス化低速陽電子ビームによるドップラー測定の結果	82
5.3	陽電子と α -Psの拡散に関する考察	82
5.3.1	陽電子の熱化とPsの形成機構	82
5.3.2	α -Psの拡散	84
5.3.3	陽電子の拡散	85
6	本研究のまとめと今後の課題	99

図 目 次

2.1	陽電子寿命測定法の概念図	21
2.2	白色陽電子により得られた PTFE 中の陽電子寿命スペクトル	22
2.3	2光子対消滅時に発生する消滅 γ 線の運動量の関係図	23
2.4	S-parameter,V-parameter の定義	24
2.5	モデレーターの陽電子に対する仕事関数	25
3.1	パルス化の概念図	32
3.2	高効率パルス化の概念図	33
3.3	$V(t)$ 曲線	34
3.4	$V_{dec}(t)$ 曲線	35
3.5	パルス化に利用するバイアス $V(t)$ ($-277 \text{ ns} \leq t \leq -197 \text{ ns}$)	36
3.6	陽電子バンチの時間幅 $\sigma_{\Delta T}$ とエネルギー誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ の関係	37
3.7	パルス化マップ(1)	39
3.8	パルス化マップ(2)	40
3.9	パルス化マップ(3)	41
3.10	パルス化マップ(4)	42
3.11	位相空間における $V(t)$ でパルス化された陽電子の軌跡(1)	43
3.12	位相空間における サイン波でパルス化された陽電子の軌跡	44
3.13	位相空間における $V(t)$ でパルス化された陽電子の軌跡(2)	45
3.14	位相空間における $V(t)$ でパルス化された陽電子の軌跡(3)	46
3.15	ビームライン全体図	52
3.16	実験装置の写真	53
3.17	モデレーター波形形成のための回路図(1)	54
3.18	モデレーター波形形成のための回路図(2)	55
3.19	モデレーター部詳細図	56
3.20	回路シミュレーターによる伝送回路の評価(1)	57
3.21	回路シミュレーターによる伝送回路の評価(2)	58
3.22	回路シミュレーターによる伝送回路の評価(3)	59
3.23	観測場所による波形の違い(1)	60
3.24	観測場所による波形の違い(2)	61
3.25	パルス化を行うために形成された波形	62
3.26	モデレーターからの低速陽電子のエネルギー分布測定法	63

3.27	低速陽電子エネルギー積分分布	64
3.28	低速陽電子のエネルギー分布	65
4.1	パルス化された低速陽電子のターゲット部におけるタイムプロファイル(MCPによる観測)	71
4.2	パルス化低速陽電子ビームを用いて測定された陽電子寿命スペクトル(AIとPTFE)	72
4.3	湾曲ソレノイドの時間分解能への影響	73
4.4	サンプルホルダー	74
4.5	サンプルホルダーによる陽電子寿命スペクトルの変化	75
4.6	サテライトピーク	76
5.1	パルス化低速陽電子ビームを用いて得られた PTFE 中の陽電子寿命スペクトル	87
5.2	低速陽電子入射エネルギーに対する PTFE 中の陽電子の寿命と強度の変化	88
5.3	低速陽電子入射エネルギーに対する PTFE 中の S-parameter と V-parameter の変化	89
5.4	Fe(50 nm)/PTFE 試料概念図	90
5.5	入射エネルギー 2.2 keV と 10.2 keV のときの Fe(50 nm)/PTFE 中の陽電子寿命スペクトル	91
5.6	低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の寿命と強度の変化(2成分解析結果)	92
5.7	低速陽電子入射エネルギーに対する解析により引き出された寿命の値	93
5.8	低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の寿命と強度の変化(3成分解析結果)	94
5.9	低速陽電子の Fe(50 nm)/PTFE 中のストッピングプロファイル	95
5.10	低速陽電子の Fe(50 nm)/PTFE 中の各層にとまる割合	96
5.11	低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の S-parameter と V-parameter の変化	97
5.12	α -Ps の拡散を考慮した、4 ns の寿命強度の低速陽電子入射エネルギーに対する変化(計算結果)	98

表 目 次

2.1	β^+ 崩壊をする代表的な放射性同位元素	17
2.2	陽電子エネルギー E と磁場中 B の陽電子ラーモア半径 R の関係	18
3.1	低速陽電子が持つエネルギー分布(半値幅)のモデレーター依存性(実験値)	50
3.2	文献[8]に見る W と Ni と Pt の陽電子に対する仕事関数	51
3.3	文献[8]に見るモデレーターの効率	51
5.1	白色陽電子を用いて測定された PTFE 中陽電子寿命スペクトルの解析結果	78
5.2	低速陽電子($E=10.2$ keV)を用いて測定された PTFE 中陽電子寿命スペクトルの解析結果	78
5.3	白色陽電子を用いて測定された Fe, PTFE, 高密度ポリエチレンの S-parameter 値	82

要旨

本博士論文は、放射性同位元素²²Naを用いて、陽電子寿命測定の可能なパルス化低速陽電子ビーム発生装置を開発し、開発した装置を高分子材料の表面近傍の特性解析のために応用した結果について述べる。

本研究では、²²Naから発生する白色陽電子(0~500 keV)をタンクステンモデレーター(減速材)に通すことによって、低速陽電子を発生させている。低速陽電子のパルス化は、モデレーターに時間と共に変わるバイアス(t^{-2} の関数)を印加して行なった。 t^{-2} の関数の電圧を印加することが、パルス化にとって理想的であることは、理論的に知られていたが、 t^{-2} の関数を印加することが技術的に困難であったため、この手法によるパルス化は成されていなかった。低速陽電子のパルス化がRFパンチング技術を用いて行われた例はあるが、本研究で開発したパルス化技術は、RFを利用する方式とは異なる独自なものである。

開発した装置の低速陽電子のパルス化効率は95%以上にまで達し、これまでに用いられたRFパンチング方式のパルス化効率(30~60%)を上回り、陽電子寿命測定に使用されたパルス化装置の中では最高の効率を得た。さらに、本装置は~80 nsのパルス化間隔を達成しており、高分子の長寿命成分の測定を高効率で行うことができる。装置の時間分解能は現時点で1.8 nsであるが、陽電子寿命の長い成分を持つポリテトラフルオロエチレン(PTFE、通称テフロン)等の高分子材料の物性研究には使用可能な分解能である。

パルス化低速陽電子ビーム装置は、決められたタイミングで可変エネルギーの陽電子を試料に照射するため、これを用いれば、非破壊的に任意の深さにある部分の陽電子寿命を測定することができる。陽電子寿命を測定する陽電子寿命測定法とは、物質中の陽電子寿命の値から材料の特性評価を行う研究手段である。

開発した装置が高分子材料の物性研究に有用であることを実証するため、PTFE材料と鉄50 nmを蒸着したPTFE(Fe(50 nm)/PTFE)の2種類の材料について、陽電子寿命測定法により表面近傍の特性解析を行なった。

PTFE試料の表面近傍の解析に、パルス化低速陽電子を適用したのは本研究が最初である。PTFE中の陽電子寿命の長寿命成分の寿命~4 ns並びに強度30%は入射エネルギー(1.2~10.2 keV)によらず一定であるという測定結果が得られた。

Fe(50 nm)/PTFE試料の測定では、陽電子の入射エネルギーに対する寿命と強度の変化を観測し、鉄とPTFEの境界面の検出に成功した。低速陽電子を用いた陽電子寿命測定法は、消滅 γ 線のドップラー測定法による結果に比べ、より明確に境界面の情報を検出できることを実証した。また、パルス化低速陽電子ビームは、ポジトロニウムや陽電子の物質中の拡散距離を研究する有用なプローブになることを示した。

1

はじめに

本博士論文は、研究課題である「放射性同位元素を利用した短パルス化低速陽電子ビームの開発研究」についてまとめたものである。本章では、はじめに陽電子と低速陽電子の研究方法と研究の流れについて説明し、陽電子消滅の研究分野の現状を述べる(1.1節)。次に、本論文の研究課題に取り組む以前に著者が行ってきた研究について簡単に触れ(1.2節)、本研究の目的と方針について述べる(1.3節)。最後に本論文の構成についてまとめる(1.4節)。

1.1 陽電子消滅と低速陽電子の歴史的背景

陽電子(positron, e^+)は電子の反粒子で、質量、スピン(1/2)は電子と同じであるが、電荷および磁気モーメントは、電子と逆符号である。また電子と同様、物質を構成する素粒子の一つであり、レプトン数-1を持つ[1][2]。

1929年にP. A. M. Diracは陽電子の存在を予言し、この3年後にC. D. Andersonは宇宙線の霧箱写真に写っている陽電子を発見した。場の量子論[3]によると、すべての素粒子は粒子と反粒子の二つの状態をもち、これらの状態は荷電共役変換によって相互に入れ替わる。陽電子は、最初に発見された反粒子である。なお、光子や π^0 粒子はそれ自身が反粒子である。陽電子は放射性同位元素(^{22}Na , ^{55}Co , ^{64}Cu 等)の β^+ 崩壊や、高エネルギー光子を物質に照射して起こる陽電子・電子対生成[4]から得られる。

陽電子が関与する特徴的な現象として、電子との対消滅がある。陽電子を物質の中に打ち込み、その中の電子と対消滅を起こさせ、その際に発生する γ 線を手がかりとして、その物質の物理的あるいは化学的性質を探ろうとする研究手段と分野は陽電子消滅[1]と呼ばれる。陽電子消滅にはよく知られた研究手段として、1) 陽電子寿命測定法、2) 2次元角相関法、3) ドップラー測定法がある。それぞれの研究手段の特徴を以下に簡単に記す。1)の陽電子寿命測定法では、試料中に陽電子を打ち込み、試料中での陽電子寿命スペクトルを測定する。陽電子寿命スペクトルは、陽電子が消滅した物質中の相状態、化学的性質、分子運動、欠陥濃度等の微細構造の影響を受けるため、陽電子寿命スペクトルの解析からこれらの情報を引き出すことが可能である。陽電子寿命測定法の大きな特徴は、高分子等の中で形成されるポジトロニウム(Ps、電子と陽電子の結合状態)の寿命を計ることによって高分子材料中のナノメータ(nm)程度の大きさを持つ自由体積を簡単に測定できることである。

高分子材料中で形成した Ps は、高分子中の欠陥(自由体積)中に捕獲されて消滅するが、この時の寿命は捕らわれた自由体積の大きさと相関がある。Ps は、それゆえにナノメータプローブとも呼ばれている。2) の 2 次元角相関法では、2 光子消滅 γ 線の放出角度分を測定し、3) のドップラー測定法では、2 光子消滅 γ 線のエネルギースペクトル(ドップラーシフト)を測定する。消滅後の γ 線のエネルギーと放出角度は、運動量とエネルギーの保存則から、電子と陽電子が消滅するときに持つ運動量とエネルギーから決定されるために、2 次元角相関法、ドップラー測定法いずれからも陽電子と消滅した電子の運動量に関する情報を得ることができる。ドップラー測定法は 2 次元角相関法に比べ分解能が劣るが、実験は簡便である。上記の研究手段による研究例は文献 [5] ~ [7] にみることができる。

β^+ 崩壊や対生成により得られる白色陽電子(連続エネルギースペクトルを持つ陽電子)をモデレーター(減速材)を用いて熱化し、単色化(エネルギーが数 eV 程度)したものを作成する。 β^+ 崩壊により生成される陽電子は連続エネルギースペクトル(0~MeV)を持つために、表面近傍や深さ方向の物性研究に利用することができない。しかし、低速陽電子は、電磁場を用いて容易に低速陽電子ビームとして任意のエネルギーで物質に照射できるため、表面や界面、深さ方向に沿った物性の解析に利用でき、半導体表面の欠陥等の研究に利用することができる [6][8]。

低速陽電子は、1950 年代から発生の研究が始まり、1970 年代にはモデレーターの効率(白色陽電子強度に対する得られる単色陽電子強度の割合)は 10^{-4} 以上に到達した。低速陽電子ビームを用いた物性研究は、ドップラー測定法による解析手段によってなされていたが、1980 年代には低速陽電子の試料への入射時刻を知るための研究がいくつかなされ、パルス化低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定法の研究が本格的になってきた。低速陽電子ビーム関係の国際会議 (International Workshop on Slow-Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces, SLOPOS) の 1995 年(第 6 回)[9] と 1997 年(第 7 回)[10] の Proceedings を比較すると、低速陽電子による陽電子寿命測定法に関する論文が 1 編から 10 編に増加している。このことからも、パルス化低速陽電子ビームによる寿命測定は、陽電子消滅研究分野の中で最も興味を持たれている研究手段となってきたことが伺える。

1.2 著者によるこれまでの低速陽電子研究への取り組み

著者は、本研究課題に取り組む以前(大学院修士課程と博士課程の初期)から低速陽電子ビームに関する以下の研究に携わってきた。

1. 低速陽電子ビームを用いた金属多層膜 Ni/Hf の研究 [11]
2. 理研 AVF サイクロトロンを用いた低速陽電子の発生研究 [12]
3. 低速陽電子の蓄積実験 [13]

1) や 3) の研究を行っている過程で、パルス化低速陽電子ビームの必要性を感じることがあった。1) では、金属多層膜 Ni/Hf のアモルファス化の研究を行ったが、用いた低速陽電子ビームがパルスビームではなかったために、使用できる分析法はドップラー測定法に限られ、陽電子寿命測定法による試料の解析は不可能であった。3) では、陽電子プラズマ

形成の目的で、陽電子蓄積の研究を行ったが、この発展研究として陽電子プラズマをバンチすることを考察していた。プラズマをバンチすることによって、より高密度の陽電子プラズマが形成でき、反水素合成を行う際の技術として発展させることが可能である。このような考えが本研究課題を始めた動機の一つとなっている。

1.3 本研究の目的

本研究の目的は、以下の 2 項目である。

1. パルス化低速陽電子ビーム発生装置の開発研究。低速陽電子を発生するモデレーターに t^{-2} 関数の電圧を与えて、低速陽電子のパルス化を行う。
2. 開発した装置を用いた陽電子寿命測定法による高分子表面近傍の物性解析。

陽電子消滅（特に陽電子寿命測定法）が高分子の物性研究に非常に有用であることが明らかになってきているが、陽電子消滅による高分子材料の研究は、金属や半導体の研究に比べ歴史は浅く（～20年），対象とする高分子も限られてきた。

高分子材料は多くの分野で使われており、その種類も多く、また、新高分子材料の開発が著しく進展しているため、新しい解析手法が囁きされている。特に、高分子表面、高分子薄膜、高分子中の分子の拡散等の問題を研究するには、低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定法を用いた解析が最も有効な手段であると考えられる。しかし、低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定法による高分子材料の研究は、3 例 [15]～[17] だけであり、ドップラー測定法による解析は 1 例のみである [18]。

高分子を解析するのに必要なパルス化低速陽電子ビーム発生装置は、以下のビーム特性を備えて、諸条件に適した要素を持っていることが望ましい。本研究では以下の条件を満たす装置を開発する。

1. 時間分解能：陽電子の寿命が～2 ns である高分子材料には、1 ns 以内の時間分解能、また、～4 ns の寿命を持つ高分子の場合は 2 ns 以内の時間分解能。
2. パルス間隔：2 ns の高分子を測定するときは 40 ns、4 ns の高分子に対しては 80 ns 程度のパルス化間隔。
3. パルス化効率：放射性同位元素からの低速陽電子を用いるため、高いパルス化効率（～90%以上）。
4. 装置に対する条件：実験室レベルで使用可能なコンパクトで安価な装置。

1.4 本論文の構成について

本論文は以下の章で構成されている。章番号、題目、書かれている内容を順に記す。

- 2章. 「陽電子消滅と低速陽電子の概要」

前半では、陽電子消滅の基礎と代表的な研究手段、陽電子寿命測定法、2光子角相関法、ドップラー測定法について述べる。後半では、低速陽電子の発生と輸送方法について述べる。

- 3章. 「パルス化低速陽電子ビームの開発」

本研究で採用した新しいパルス化の原理と、開発した装置について述べる。

- 4章. 「パルス化装置の特性」

開発した装置によりパルス化低速陽電子ビームを発生した結果を示す。

- 5章. 「パルス化低速陽電子ビームの応用」

パルス化低速陽電子ビームをポリテトラフルオロエチレン (polytetrafluoroethylene, PTFE) 試料と鉄 50 nm を PTFE に蒸着した試料 (Fe(50 nm)/PTFE) の評価に適用した例を示す。

- 6章. 「本研究のまとめと今後の課題」

研究内容全体をまとめ、本装置の改善すべき点について述べる。

- 参考文献

- 付録：学術雑誌に掲載された論文や研究発表会での報告書等のリスト

- 謝辞

2

陽電子消滅と低速陽電子の概要

2.1 陽電子消滅の基礎

電子が静止していて陽電子が $E = \kappa mc^2$ のエネルギーを持つ場合の、2 光子消滅の断面積 σ_2 は、P. A. M. Dirac によって次のように求められた。

$$\sigma_2 = \frac{\pi r_0^2}{\kappa + 1} \left(\frac{\kappa^2 + 4\kappa + 1}{\kappa^2 - 1} \ln(\kappa + \sqrt{\kappa^2 - 1}) - \frac{\kappa + 3}{\sqrt{\kappa^2 - 1}} \right) \quad (2.1)$$

$$\kappa = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \quad (2.2)$$

ここで m は電子質量、 r_0 は古典電子半径、 v は陽電子の速度である。陽電子のエネルギーが小さいときは、 $\kappa \simeq 1 + v^2/2c^2$ であるから

$$\sigma_2 = \pi r_0^2 c/v \quad (2.3)$$

となる。したがって、陽電子の位置での電子密度を ρ とすると 2 光子消滅速度 λ_2 は v に依存せず、次式で表すことができる。

$$\lambda_2 = \sigma_2 \rho v = \pi r_0^2 c \rho \quad (2.4)$$

一方、3 光子消滅断面積 σ_3 から求められる 3 光子消滅速度 λ_3 は、Ore と Powell によって次式のように求められた。

$$\lambda_3 = \sigma_3 \rho v = \frac{4}{3} (\pi^2 - 9) \alpha r_0^2 c \rho \simeq \frac{\lambda_2}{370} \quad (2.5)$$

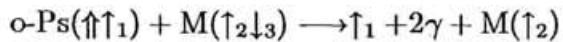
ただし、 α は微細構造定数である。これらは、電子のスピンについて平均した値であり、物質中で電子と陽電子が結合した状態(ポジトロニウム, Positronium, Ps)を作らないで消滅するときに対応する。(Ps を形成しない消滅は、自由消滅と呼ばれる。) 式 2.5 から 2 光子消滅が 3 光子消滅に比べ支配的であることがわかる。

陽電子は、消滅時に電子との結合状態である Ps [19] を経て消滅していく場合がある。電子と陽電子のスピンが反平行な場合をバラポジトロニウム (p-Ps)，平行な場合をオルソポジトロニウム (o-Ps) という。p-Ps と o-Ps が何個の光子に消滅するかを，電磁相互作用の荷電共役変換に対する不变性から導くことができる。光子の荷電バリティー（固有状態の荷電共役変換に対する固有値）は -1 であることが知られているので，消滅後の n 個の光子の系の荷電バリティーは $(-1)^n$ である。一方，Ps の固有バリティーであるが，Ps の荷電共役変換は電子と陽電子の交換を意味し，これは Ps の重心の周りの空間反転と同等である。従って，Ps の空間反転に対する相対論的波動関数の符号の変化を調べればよいことになる。軌道角運動量が l ，全スピンが S の状態であれば因子 $(-1)^l$ ， $(-1)^{S+1}$ がかかる。また，電子・陽電子の固有バリティーから -1・1 という因子が加わる。従って Ps の固有バリティーは $(-1)^{l+S}$ である。 $l+S$ が偶数の時には偶数個の光子へ，奇数のときは奇数個の光子への消滅が起きる。発生する光子の数が 1 個増すごとに消滅率は 2 枠以上減少するために，真空中で基底状態 ($l = 0$) の p-Ps ($S = 0$) と o-Ps ($S = 1$) は，それ respective 2 光子と 3 光子消滅が支配的になる。なお，真空中での p-Ps の平均寿命は 125 ps，o-Ps は 142 ns である。

物質中の Ps は，原子，分子と種々の相互作用を通して，その寿命や消滅のしかたが変わる。特に，寿命の長い o-Ps がそのような相互作用の影響を敏感に受ける。相互作用の結果，Ps の寿命が短くなることをクエンチングと呼んでいる。クエンチングを起こす反応には下記のものがある [1]。

1. pick-off 消滅

Ps がそれ自身で固有の消滅をする前に，その周りにある物質中の電子が陽電子にぶつかって消滅する過程。Ps を構成する陽電子のスピンに対して，外の電子のスピンはランダムなので，陽電子の自由消滅と同じく，2 光子と 3 光子の放出の比が 371:1 になる。o-Ps は pick-off によって平均寿命が著しく短くなり，凝集状態では数 ns 程度になる。pick-off 消滅を模式的に表すと次のようになる。



ここで， \uparrow は陽電子スピン（上向き）， \uparrow_1 は電子スピン（上向き），M は物質中の原子・分子を表す。

2. 化学反応

Ps は次のような反応をする。

- 置換・引き抜き反応 （例） $Ps + Cl_2 \longrightarrow PsCl + Cl$
- 付加反応 （例） $Ps + NO_2 \longrightarrow PsNO_2$
- 酸化反応 （例） $Ps + Fe^{3+} \longrightarrow e^+ + Fe^{2+}$

反応生成物の PsCl や PsNO_2 では陽電子の周りには電子雲の密度が高く、0.3 ns ぐらいいの短い時間で消滅する。酸化反応でできた e^+ は、自由消滅する確率が高い。

3. スピン交換反応

Ps が不対電子を持つ分子と電子のスピン交換をする反応で、 o-Ps は p-Ps になり、2 光子消滅する。



4. 磁気クエンチング

p-Ps と o-Ps ($m=0$) は、両方とも磁場中ではもはや固有状態ではなくなり、両方の状態が混ざり合う。従って、 p-Ps は寿命が長くなり、 o-Ps ($m=0$) は寿命が短くなる。強磁場の極限では、両方とも p-Ps の 2 倍の寿命になる。

2.1.1 寿命測定法

1. 陽電子寿命測定システム

陽電子寿命測定装置と、測定により得られたスペクトルの例（PTFE 試料）を、それぞれ図 2.1 と図 2.2 に示す。通常陽電子源には ^{22}Na 放射性同位元素が用いられる。 ^{22}Na は陽電子と 1.275 MeV の γ 線をほとんど同時に放出するために、1.275 MeV γ 線検出時刻（スタートシグナル）と陽電子消滅 γ 線検出時刻（ストップシグナル）の時間差を用いて、陽電子寿命を測定することができる。

γ 線の検出にはシンチレーション検出器（シンチレーター・光電子増倍管・光電子増倍管を働かすために使用する高圧電源からなる）を用いる。シンチレーターに使用されるものは、プラスチック有機シンチレーターか BaF_2 の結晶である。両シンチレーション検出器から出力される高速パルスは、Constant Fraction Differential Discriminator (CFDD)・遅延回路 (DELAY)・Time to Amplitude Converter (TAC) で構成される NIM 規格の電子回路へ導かれる。CFDD は、やってくるパルスからノイズ成分を除去し、選び出したパルスのタイミングを決定する。CFDD を経て出力された両方の信号は TAC に送られる。TAC は、スタートシグナルとストップシグナルの到着時刻の時間差に比例した電圧のパルスを出力する。TAC からの出力は Micro Channel Analyzer (MCA) に送られる。MCA は、少なくとも 512 チャンネルからなり、それぞれのチャンネルはあらかじめ小さな電圧のステップで設定されている。MCA は TAC からのパルスの振幅を測定し、その振幅に対応したチャンネルに一つカウントを追加する。測定は、MCA チャンネルのヒストグラム形成のため、あらかじめ設定された時間（1 時間程度）の間行われる。このようなシステムで得られる時間分解能は、半値幅で 200~400 ps である。

^{22}Na 陽電子線源は、 $^{22}\text{NaCl}$ 水溶液の液滴を数 μm の薄いカブトンフィルムに落とし、乾燥させ用意する。強度は一般に $\sim 4 \times 10^5 \text{ Bq}$ 程度である。ランダムバックグラウ

ンドは線源強度の2乗に比例するため、バックグラウンドのスペクトルに対する比は線源強度に比例する。

2. 陽電子寿命スペクトルの解析方法

陽電子寿命スペクトルの解析プログラムには PATFIT [20] がある。この計算モデルは、陽電子寿命スペクトルが指数関数で記述される i 種類の寿命成分 (τ_i) とバックグラウンド (B) の重ね合わせで次式のように表現されることを仮定している。

$$F(t) = \sum_i A_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) + B \quad (t \geq 0) \quad (2.6)$$

また、実際の測定により得られるスペクトルは、式 2.6 に測定系の時間分解能を表す時間分解能関数 $R(t')$ を組み込んだものになり、以下のように表される。

$$S(t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t') \times R(t') dt' \quad (2.7)$$

スペクトルの解析は式 2.7 の最小 2 乗フィッティングにより行う。時間分解能関数 $R(t')$ は、次式のようにガウス分布の和で与えられると仮定する。

$$R(t') = \sum_j w_j G_j(t', t, \delta t_j) = \sum_j \left(\frac{w_j}{\sqrt{2\pi}\sigma_j} \exp\left(-\frac{(t - \delta t_j - t')^2}{2\sigma_j^2}\right) \right) \quad (2.8)$$

ここで、 w_j はガウス分布の強度、 σ_j は標準偏差、 δt_j はそれぞれのガウス分布の相対的なずれを表す。ただし、規格化のために

$$\sum_j w_j = 1 \quad (2.9)$$

である。なお、時間分解能関数 $R(t')$ の半値幅 (Full Width at Half Maximum, FWHM) の値は測定系の時間分解能 (Γ_{system}) と呼ばれ、

$$\Gamma_{system}^2 = \sum_j w_j (2\sqrt{2\ln 2}\sigma_j)^2 \quad (2.10)$$

である。式 $R(t')$ が 1 成分のガウス分布で記述される際には、

$$\Gamma_{system} = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma_1 \simeq 2.35\sigma_1 \quad (2.11)$$

となる。 ^{22}Na からの白色陽電子を用いる従来の測定方法の時間分解能 Γ_{system} は、250 ps 程度である。

3. 寿命と高分子空孔サイズとの関係

陽電子寿命測定法は、高分子中の自由体積の大きさを簡単に見積もることができる研究手段である。高分子中で pick-off 消滅する o-Ps の寿命は、o-Ps が捕らわれ消滅した空孔（自由体積）の大きさと相関があり、以下のようないくつかのモデルを用いて理論的に説明される。空孔にトラップされた o-Ps は無限大障壁を持つ半径 R_0 の井戸型ポテン

シャル中に捕らわれていると考え、このポテンシャル中には、電子層がポテンシャルの壁から ΔR の長さだけしみ出していると仮定する。o-Ps の電子層中の存在確率と o-Ps の pick-off 消滅断面積から、寿命と自由体積(半径 $R = R_0 - \Delta R$ の球)の関係は次式[21][22]によって表すことができる。

$$\frac{1}{\tau} = 2 \left[1 - \frac{R}{R + \Delta R} + \frac{1}{2\pi} \sin \frac{2\pi R}{R + \Delta R} \right] \text{ ns}^{-1} \quad (2.12)$$

電子層 ΔR は、過去の研究から 0.166 nm[23]と推測されている。

2.1.2 2光子角相関法

2光子消滅した際に放出される γ 線の間の角度は、エネルギーと運動量の保存則で決まるため、2光子角相関測定により、消滅した電子の運動量の情報を得ることができる。(普通、陽電子は消滅時に十分熱化しているため、陽電子の運動量は電子の運動量に比べ無視できるほど小さい。) 全運動量 p を持つ電子と陽電子の対が消滅し、運動量 p_1 と p_2 を持つ2本の γ 線 γ_1 と γ_2 になったとする(図 2.3 参照)。 p を p_1 に平行な成分 p_{\parallel} と垂直な成分 p_{\perp} に分けて、運動量とエネルギー保存則を考えると次式が成立する。

$$cp_1 + cp_2 = 2mc^2 + \frac{1}{2} \frac{p^2}{2m} \quad (2.13)$$

$$p_1 - p_2 \cos \theta = p_{\parallel} \quad (2.14)$$

$$p_2 \sin \theta = p_{\perp} \quad (2.15)$$

ただし、 c は光速度、 m は電子の静止質量で、 θ は p_1 と p_2 の間の 180 度からのずれ角をあらわす。式 2.13 と式 2.14 から、 p_1 を消去すると、

$$p_2(1 + \cos \theta) = \frac{2mc^2 + \frac{p^2}{4mc}}{c} - p_{\parallel} \quad (2.16)$$

が得られる。ここで $2mc^2 \gg \frac{p^2}{4mc}$, $mc \gg p_{\parallel}$ という関係を考慮すると、式 2.15 と式 2.16 から、

$$\sin \theta = \frac{p_{\perp}}{p_2} = \frac{p_{\perp}(1 + \cos \theta)}{2mc} \ll 1 \quad (2.17)$$

という関係がわかり、さらに近似式 $\cos \theta \simeq 1$, $\sin \theta \simeq \theta$ を用いて

$$p_{\perp} = p_2 \theta = mc\theta \quad (2.18)$$

と変換できる。式 2.18 は、 θ の測定から p_{\perp} がわかるることを意味する。これが角相関法の原理である。

実験では大強度の陽電子線源 ($\sim 10^8$ Bq) を必要とし、放出角を決定するために設置した鉛スリットを通過したものだけが 2つの検出器により検出される。測定計の角度分解能(θ)は 1 mrad 程度である。

2.1.3 ドップラー測定法

電子陽電子対の消滅時の重心系の動きは、消滅 γ 線のドップラー効果をひきおこすため、消滅 γ 線のエネルギーのドップラーシフトを測定することにより電子の運動量分布の情報を得ることができる。図2.3の消滅 γ 線 γ_1 のエネルギー E_1 は、次式で p_{\parallel} と関連づけられる。

$$E_1 = cp_1 = mc^2 + \frac{p_{\parallel}c}{2} \quad (2.19)$$

これは、ドップラー効果により γ_1 のエネルギー E_1 が mc^2 から $p_{\parallel}c/2$ だけずれた値になることを表している。

消滅 γ 線の測定には、Ge検出器を利用する。Ge検出器のエネルギー分解能は~511 keV の γ 線に対して半値幅で1.7 keV程度であるので、電子と陽電子対の運動量の分解能は角相関法の5.9 mradに相当する。ドップラー広がりが広いときには消滅電子の運動量分布が広いことを意味し、狭いときには電子運動量分布も狭いことを意味する。このドップラー広がりの変化を評価するためにS-parameterが用いられる(図2.4)。S-parameterとは511 keVピークのドップラー広がりの中央部分(図2.4中の(B))をピーク全体のカウント(図2.4の(A))で割ったものであり、ドップラー幅が狭いほど大きな値をとる。また、 γ 線のエネルギースペクトルからは、o-Psの3光子消滅の強度も見積もることができる。3光子消滅の場合は、511 keV以下の広いエネルギー領域に消滅 γ 線が観測されるため、図2.4に示されているV-parameterを用いて3光子消滅の強度を評価することができる。

2.2 低速陽電子

放射性同位元素や電子対生成から得られた連続エネルギースペクトルを持つ陽電子を、モデレーターにより熱化し、モデレーターから真空中へ飛び出てきた数eV程度のエネルギーを持つ陽電子を、低速陽電子という。低速陽電子を電磁場を用いて単色ビームとして利用することができ、任意のエネルギーに加速して試料に打ち込み、物性研究等に使うことが可能である[8]。

2.2.1 陽電子線源

低速陽電子ビームの陽電子源には、 ^{22}Na 放射性同位元素がよく使用される。 ^{22}Na は半減期が適度に長く(2.6年)、 β^+ 崩壊の分岐比も大きい(89%)ので、実験室で使う陽電子源として最良であるといえる[24]。また、 ^{58}Co や ^{64}Cu は研究用原子炉を用いて手軽に高密度の線源として生成できる。代表的な陽電子線源を表2.1にまとめる。

低速陽電子ビームの発生時の陽電子線源として、加速器(電子加速器・イオン加速器)を用いる方法がある。電子線形加速器を用いる場合は、次のような方法で陽電子を発生できる[14][25][26]。エネルギー30~数100 MeVの電子ビームをタンタルコンバーターに照射し、制動放射線を発生させる。制動放射線はコンバーター中の原子核と電磁相互作用をして電子・陽電子対生成を引き起こすため、入射電子ビームエネルギーまで広がった白色の陽電子が発生する。これらの陽電子をモデレーターを用いて単色化し、電磁場により低速

表 2.1: β^+ 崩壊をする代表的な放射性同位元素

	半減期	β^+ 崩壊の割合	e ⁺ の最大エネルギー(MeV)
²² Na	2.6 年	0.89	0.54
⁶⁸ Ge- ⁶⁸ Ga	288 日	0.88	1.897
⁶⁴ Cu	12.7 時間	0.169	0.657
⁵⁸ Co	70.8 日	0.15	0.475
⁵⁵ Co	17.5 時間	0.60	1.50

陽電子ビームとして引き出す。発生する低速陽電子ビーム強度は、過去に行われた実験等から、電子ビームエネルギー 1 kW 程度に対し $10^8(e^+/s)$ 程度である [27]。陽電子線源に放射性同位元素を使った低速陽電子ビームでは、強度的に $10^6(e^+/s)$ が限界であるが、電子線リニアックを用いた場合には $10^{10}(e^+/s)$ の高強度ビームを発生することも可能になる。

イオンビームを用いた低速陽電子の発生研究は、理化学研究所 [12][28] や住友重機械 [29] のグループで行われた。この方法は、陽子や重陽子のビーム (~ 10 MeV 以上) をターゲットに照射することにより、核反応で β^+ 崩壊する短寿命放射性同位元素を生成させるものである。上記のグループの実験から、イオンビーム $1\mu A$ に対して、低速陽電子ビームは $10^4 \sim 10^5(e^+/s)$ を発生できることが、理論と実験とから裏付けられた。

2.2.2 陽電子の単色化

β^+ 崩壊により飛び出てくる陽電子のエネルギーは、中性微子という質量が 0 か 0 にきわめて近い粒子が同時に放出されるため連続スペクトルである。このような連続エネルギー分布を持つ陽電子をモデレーターの中で熱エネルギー程度まで冷却することにより、エネルギーの単色化を行う。

陽電子が放射性物質から放出され固体に入り込むと、熱エネルギー程度になるまで急速に運動エネルギーを失う (~ 10 ps)。この陽電子の熱化時間は、固体物質内における陽電子の平均寿命に比べて十分短いため、熱化した陽電子は、消滅するまでにモデレーター中を拡散することができる。モデレーターには陽電子の仕事関数が負であるものを使用するために、表面に拡散した陽電子は自発的に真空中へ再放出し、低速陽電子となる [6] ~ [8]。

金属表面の陽電子の仕事関数 ϕ_+ が、負の場合があるのは、以下のような理由による。モデレーター中の電子は真空中にもしみ出しているために、外側が負、内側が正の電気二重層が形成される。このため、陽電子の静電ボテンシャルはモデレーター内部の方が真空側よりも $e\Delta\phi$ だけ高くなる(図2.5)。しかし、陽電子は金属内部の自由電子を引きつけるためエネルギーは E_c だけ低くなる。また、モデレーター中で原子核は規則正しく並び結晶構造を形成しているが、これらは陽電子に対し斥力であるため、 E_{band} だけエネルギーレベルは高くなる。これらの効果がすべて合わさった結果、金属中の陽電子のエネルギーが正であったり負であったりする。陽電子のモデレーターに関するデータは文献 [8] にまとめられている。

2.2.3 陽電子ビームの輸送

モデレーターを通して得られた低速陽電子は、陽電子線源からの放射線が十分遮断できる領域にまで輸送される。輸送方法は、簡易で輸送効率が高いビームライン軸に沿った磁場（ソレノイド磁場）を用いるのが一般的である。低速陽電子は、ソレノイド磁場中では、ビームラインに垂直な方向（磁場に垂直な方向）へはローレンツ力により発散しない。陽電子の磁場中のサイクロotron半径を表2.2に要約する。

陽電子（荷電粒子）のラーモア運動は円電流が流れていることと等価であるため、磁気モーメント μ を持つと考えることができる。回転粒子の磁気モーメント μ を次式で定義する。

$$\mu \equiv \frac{1}{2} \frac{mv_{\perp}^2}{B} \quad (2.20)$$

ここで m は粒子の質量、 v_{\perp} は磁場に垂直な速度、 B は磁束密度である。荷電粒子が強磁場または弱磁場の領域へ動いていくと、ラーモア半径は変化するが、 μ は普遍に保たれる[30][31]。磁場が下流に行くにつれ強くなるような陽電子ビームラインでは、磁場に垂直方向の速度成分 v_{\perp} が増していく。低速陽電子ビームのパルス化は、陽電子のターゲットまでの飛行時間を調節することにより達成するため、磁束密度 B はビームライン全体にわたつて一様であることが望ましい。

表 2.2: 陽電子エネルギーと磁場中の陽電子ラーモア半径の関係(相対論的補正済み)。表中の陽電子のエネルギー E と速度 v は、磁場 B に垂直な方向の成分を示す。また、 f は回転周波数を示す。なお、 $B=0.46$ Gは地磁気に相当する。

	$B(\text{Gauss})$	0.46	10	50	100	200	1000
	$f(10^8 \text{Hz})$	0.0129	0.280	1.40	2.80	5.59	28.0
$E(\text{eV})$	$v(10^8 \text{cm/s})$	$R(\text{cm})$					
0.025	0.0937	1.2	0.053	0.011	0.0053	0.0027	0.00053
1	0.593	7.3	0.34	0.067	0.034	0.017	0.0034
10	1.87	23	1.1	0.21	0.11	0.053	0.011
50	4.19	52	2.4	0.48	0.24	0.12	0.024
100	5.93	73	3.4	0.67	0.34	0.17	0.034
500	13.2	160	7.5	1.5	0.75	0.38	0.075
1000	18.7	230	11	2.1	1.1	0.53	0.11
5000	41.6	520	24	4.8	2.4	1.2	0.24
10000	58.5	730	34	6.7	3.4	1.7	0.34

モデレーターを熱化しないで通り抜けた高エネルギー陽電子は、湾曲したソレノイドコイルや $E\times B$ フィルター[32]を使い低速陽電子と軌道を分離し除去することができる。これは、以下で説明するように、湾曲したソレノイドや $E\times B$ フィルター中では、陽電子（荷電粒子）の軌道が磁場と垂直な方向へずれるが、このずれの大きさが速度に依存することを利用している。

磁場 \mathbf{B} (太字はベクトルを表す) 中で荷電粒子に力 \mathbf{F} が加わった場合、荷電粒子の旋回中心は $\mathbf{F} \times \mathbf{B}$ (外積) の方向に速度 \mathbf{v}_F でドリフトすることが、運動方程式から導かれる。このドリフト速度 v_F は、磁束密度 B 、荷電粒子の電荷 q 、力 \mathbf{F} を用いて次式で与えられる。

$$\mathbf{v}_F = \frac{1}{q} \frac{\mathbf{F} \times \mathbf{B}}{B^2} \quad (2.21)$$

したがって、 $E \times B$ フィルター中では、陽電子(荷電粒子)は 電場と磁場の外積の方向 ($E \times B$) にドリフトすることになる。電場 E が磁場 B に垂直であるときには、そのドリフト速度 v_E cm/s は次式で与えられる。

$$v_E = 10^8 \frac{E}{B} \quad (2.22)$$

ここで、 E と B の単位はそれぞれ V/cm と G である。一般に、低速陽電子の輸送磁場の強度は、100 G 程度であるから、 $E=100$ V/cm の電場を形成すれば、 10^8 cm/s で磁場と垂直方向にドリフトさせることができる。式 2.22 は、荷電粒子の質量や電荷によらない関係式である。

湾曲したソレノイド中では、荷電粒子は飛行中に遠心力 \mathbf{F}_{cf} を磁場 \mathbf{B} と垂直の方向へ受けるため、磁場に垂直な方向に速度 \mathbf{v}_R でドリフトすることになる。遠心力 \mathbf{F}_{cf} は、荷電粒子の磁場方向に沿った速度 v_{\parallel} と曲率半径 R_c (位置ベクトル) を用いて

$$\mathbf{F}_{cf} = mv_{\parallel}^2 \frac{\mathbf{R}_c}{R_c^2} \quad (2.23)$$

とかけるから、

$$\mathbf{v}_R = \frac{mv_{\parallel}^2}{qB^2} \frac{\mathbf{R}_c \times \mathbf{B}}{R_c^2} \quad (2.24)$$

となる。また、湾曲ソレノイドコイル中で $|\mathbf{B}|$ は一定ではなく曲率半径に反比例しているために、磁場強度の変化 (grad \mathbf{B}) が旋回中心のドリフトを生じさせる効果も存在する。grad \mathbf{B} が生じる荷電粒子のドリフト速度 $\mathbf{v}_{\nabla B}$ は、

$$\mathbf{v}_{\nabla B} = \pm \frac{1}{2} v_{\perp} r_L \frac{\mathbf{B} \times \nabla \mathbf{B}}{B^2} \quad (2.25)$$

のように与えられる。ここで、 v_{\perp} は磁場に垂直な方向の速度を意味する。湾曲したソレノイド中では、

$$\frac{\nabla |\mathbf{B}|}{|\mathbf{B}|} = - \frac{\mathbf{R}_c}{R_c^2} \quad (2.26)$$

であるから、

$$\mathbf{v}_{\nabla B} = \frac{mv_{\perp}^2}{2q} \frac{\mathbf{R}_c \times \mathbf{B}}{R_c^2 B^2} \quad (2.27)$$

とかける。式2.24と式2.27から、ソレノイドコイル中の旋回中心のドリフト速度 \mathbf{v}_s は、次式のようにまとめることができる。

$$\mathbf{v}_s = \mathbf{v}_R + \mathbf{v}_{\nabla B} = \frac{m}{q} \frac{\mathbf{R}_c \times \mathbf{B}}{R_c^2 B^2} \left(v_{\parallel}^2 + \frac{1}{2} v_{\perp}^2 \right) \quad (2.28)$$

本研究では、 $E \times B$ フィルターは用いずに、曲率半径 50 cm の 30 度湾曲したソレノイドコイルを用いて高エネルギー陽電子を除去した。

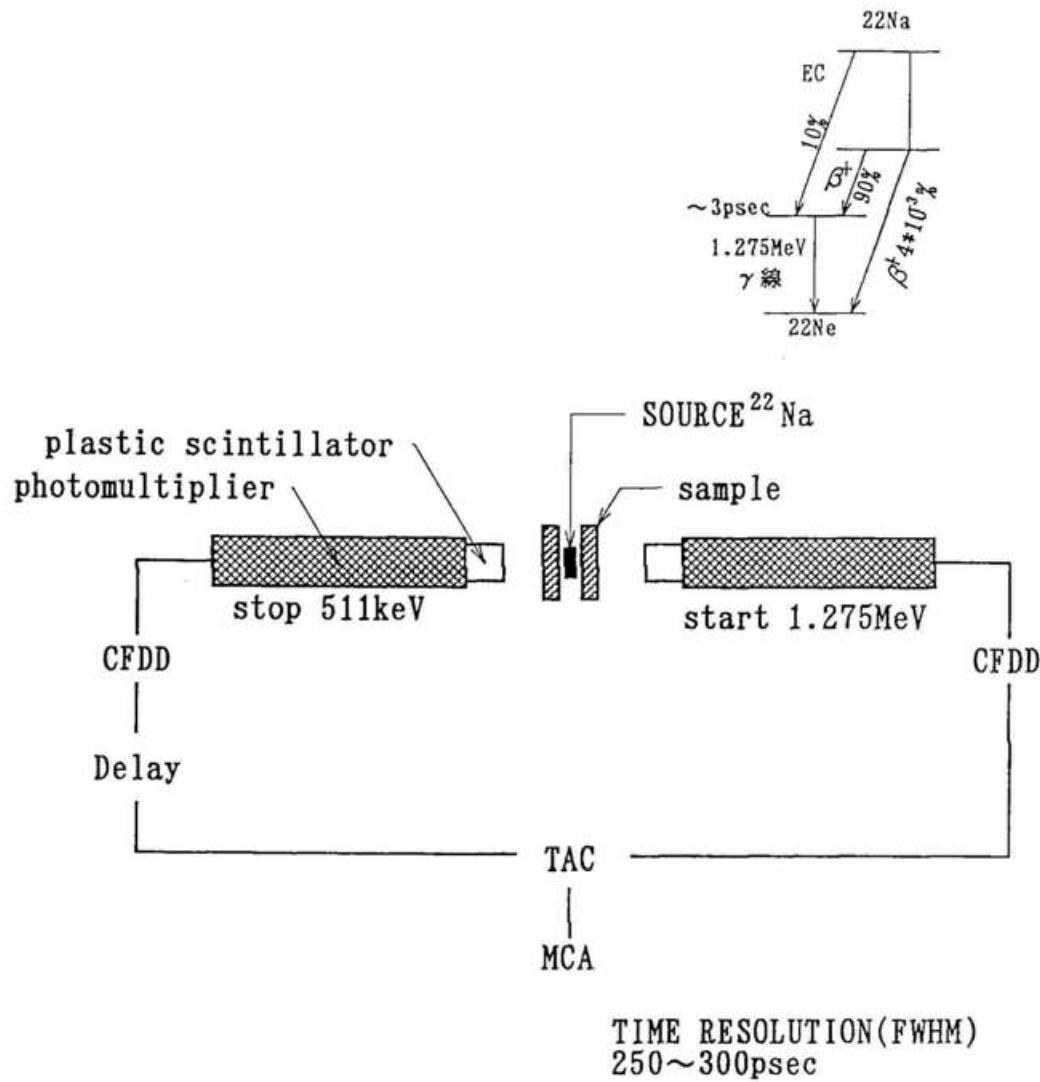


図 2.1: 陽電子寿命測定法の概念図。 ^{22}Na の β^+ 崩壊の際に放出される 1.275 MeV γ 線の検出時刻と陽電子の消滅 γ 線の検出時刻の時間差を陽電子の寿命として定義する。この装置の時間分解能は~250 ps である。

Positron Lifetime Spectrum with fast positrons

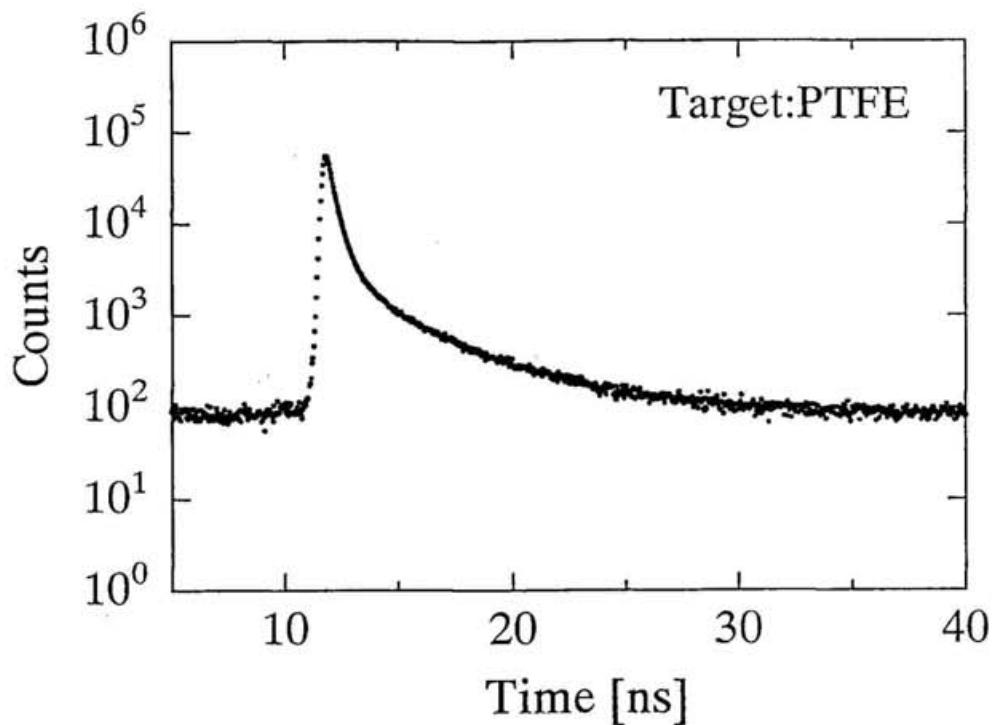


図 2.2: 白色陽電子により得られた PTFE 中の陽電子寿命スペクトル。図 2.1 に示す陽電子寿命測定装置を用いて測定された。このスペクトルの PATFIT による解析結果は、5.1.1 節で述べる。

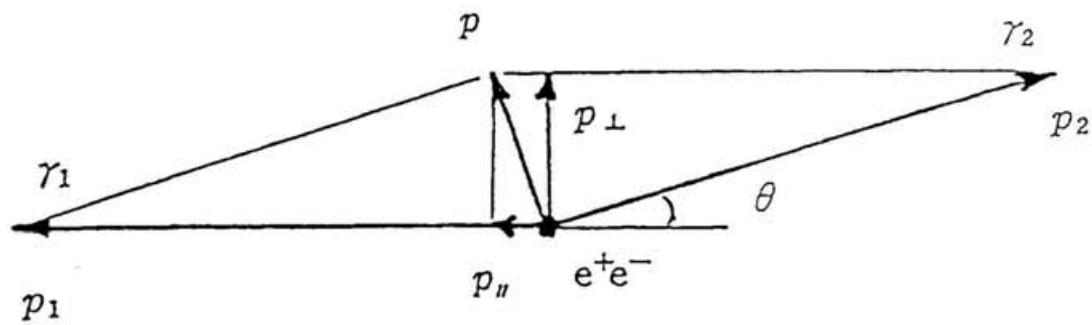
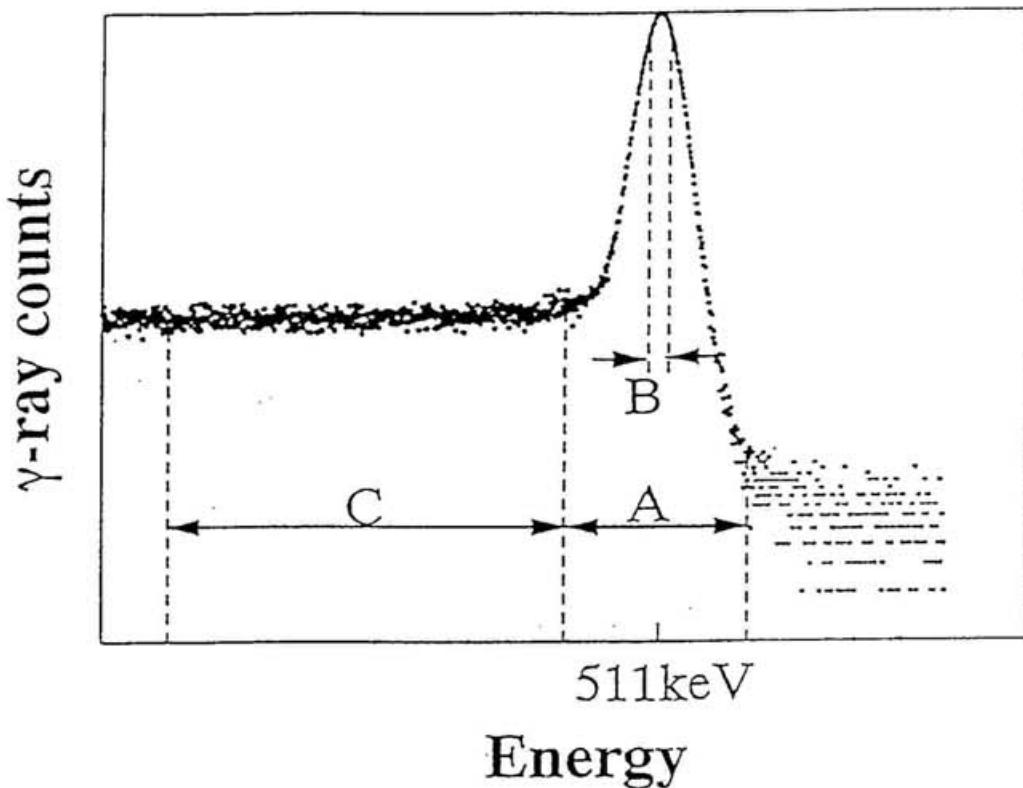


図 2.3: 2光子対消滅時に発生する消滅 γ 線の運動量の関係図。消滅 γ 線 γ_1 と γ_2 は、エネルギーと運動量の保存則に従うため、これらの消滅 γ 線のエネルギーや放出角度を測定することにより、陽電子と電子の運動量に関する情報を得ることができる。



$$S\text{-parameter} = B / A$$

$$V\text{-parameter} = C / A$$

図 2.4: S-parameter, V-parameter の定義。S-parameter と V-parameter は、消滅ガンマ線のエネルギースペクトルを評価するときに用いられる。S-parameter とは 511 keV ピークのドップラー広がりの中部分 (B) (図中) をピーク全体のカウント (A) で割ったものであり、ドップラー幅が狭いほど大きな値をとる。V-parameter は、(C) を (A) で割ったものであり、o-Ps の 3 光子消滅の強度の変化を知ることができる。

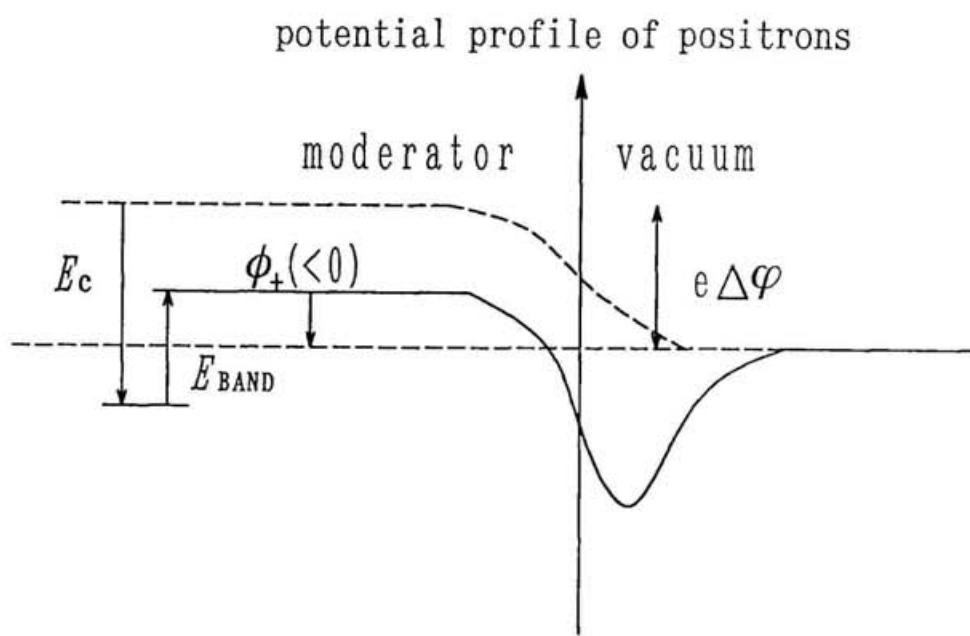


図 2.5: モデレーターの陽電子に対する仕事関数。仕事関数 ϕ_+ は、電気二重層が生じる効果 $e\Delta\varphi$ と、陽電子が自由電子を引きつける効果 E_c と、原子核の結晶構造が関係する効果 E_{band} により決まる。

3

パルス化低速陽電子ビームの開発

3.1 低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定の例

放射性同位元素²²Na等の β^+ 崩壊を経て放出される陽電子は、最大エネルギーが~ MeV 程度の連続エネルギー分布を持つ。したがって、²²Na からの白色の陽電子を利用した陽電子寿命測定法は、陽電子の試料への入射エネルギーを制御することは不可能であるため、その適用はバルクのみの研究に限られ、材料の表面近傍や深さに依存した物性評価のプローブとして利用できない。

2.2節で述べたように、低速陽電子ビームを用いれば、陽電子の試料への入射エネルギーを数 eV~30 keV 程度の範囲で制御することが可能である。しかし、一般に低速陽電子ビームを試料に照射した際に、個々の陽電子が試料に飛び込んだ時刻を知ることができない。したがって、陽電子寿命測定の際に必要なスタートシグナルを得ることはできず、陽電子寿命測定法を行なうことはできない。

表面近傍や界面等を陽電子寿命測定法により解析するために、低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定を行うための技術開発が、これまでいくつかの研究グループでなされてきた。以下では、低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定法に関する研究を紹介する。

K.G.Lynn ら [33] は、アニーリングされたアルミニウム (Al) 単結晶 (110) 表面の鏡像ポテンシャルにとらわれた陽電子の寿命 [34] を測定するために、低速陽電子ビームを Al 試料に数 keV で打ち込み、そのとき散乱によって真空中に飛び出てくる二次電子を Channel Electron Multiplier Array (CEMA) を用いて検出し、この検出時刻を陽電子寿命測定の際にスタートシグナルとして利用した。この方式により、彼らは陽電子寿命測定を時間分解能 ~600 ps 程度で測定することに成功した。しかしながら、二次電子検出のため測定試料を特別な形状にしなければならないうえ、試料に電圧を印可しなければならない等の制約がある。同じ手法による陽電子寿命測定法が、高分子薄膜の物性研究に利用されている [15][17]。

低速陽電子の試料入射時刻の情報を得るために、パルス化された低速陽電子ビームを用いる方法がある。あらかじめ決められた時間間隔でパルス化低速陽電子を試料に打ち込めば、陽電子の試料入射時刻を決定できる [35]。陽電子寿命測定を行う目的で低速陽電子のパルス化を初めて試みたのは、Crane ら [36] であり、ビームラインのポテンシャルを短時間に放物線状にすることでパルス化を行った。このパルス化低速陽電子ビームを用いて、時

間分解能 500 ps 程度で Al 中の陽電子寿命を測定することに成功したが、パルス化効率の悪さ(電源スイッチの関係でパルス化間隔が非常に長い)から、この装置はその後使用されていない。

ミュンヘンのグループは、放射性同位元素²²Na を利用して発生した直流低速陽電子ビームを RF バンチング技術を用いてパルス化することに成功した。現在、開発した装置を用いて低速陽電子ビームを 100 ps 程度の時間幅に圧縮し、陽電子寿命を時間分解能 250 ps 程度で測定することができる [37]~[41]。このパルス化低速陽電子ビームを用いた物性研究は文献 [42]~[47] にみることができる。日本の電子技術総合研究所(電総研)のグループでも、電子線線形加速器を用いて発生した低速陽電子ビームを RF 技術によりパルス化 [48]~[50] し、パルス化低速陽電子ビームを用いて、陽電子寿命測定法や陽電子消滅誘起オージェ電子分光による研究を行っている [51]~[53]。RF のようなサイン波形によるパルス化は、パルス化に有効な位相が限られるためにパルス化効率が制限される。ミュンヘンでは~60%, 電総研では~30% 程度のパルス化効率である(ミュンヘングループの効率が高いのはノコギリ波による加速も併用しているため)。ミュンヘンと電総研では、パルス化周期を~25 ns に設定している。

住友重機械工業株式会社(住友重機)は、RF バンチングより高いパルス化効率を目指して任意波形発生器とフェライトコアを用いたパルス化装置の開発を進めている(インダクションバンチング)[54]。本研究では、 t^{-2} の関数の電圧をモデレーターに与えており、住友重機のパルス化装置とは、陽電子の加速場所が異なる。

オークリッジのグループは、電子線形加速器を利用し発生した低速陽電子ビームをモデレーターで再減速し、このとき同時にモデレーターにサイン波を与えることによりパルス化を行う研究をしている [55]。他には、計画中のものを含めて文献 [56]~[58] がある。

3.2 新しいパルス化方法の理論的考察

3.2.1 パルス化の原理

本研究では、²²Na から放出される陽電子をモデレーター(タンゲステン薄膜等)で熱化し、真空中へ再放出することにより、低速陽電子を得ている。低速陽電子のパルス化は、モデレーターに時間とともに増加する(t^{-2} の関数)バイアスを与えて行なう。この場合、モデレーターから遅れて発射した陽電子は、先に発射した陽電子よりも速い発射速度を持つことになる。したがって、後から発射された陽電子は、ビームラインを飛行中に先に発射された速度の遅い陽電子に迫り、試料部に同時刻に到着し、陽電子バンチを形成する(図 3.1)。

モデレーターに時間依存バイアスを与えるため、任意波形発生器とポストアンプを使用する。RF バンチング(サイン波形による加速)の場合はパルス化に有効な位相が限られているが、任意波形発生装置から生じた t^{-2} の関数の波形による加速では、パルス化に有効な波形領域を大きくとることができ、高効率パルス化を達成できる。(図 3.2)。

モデレーターに与える t^{-2} の関数であるパルシングバイアス $V(t)$ は、ニュートン力学を用いて次式のように求められる。

$$V(t) = \frac{mL^2}{2et^2} \quad (t < 0) \tag{3.1}$$

ここで L はモデレーターから試料部までの長さ, m は陽電子の質量, e は陽電子の電荷を表す。式3.1の関数で加速された低速陽電子は、試料部に $t=0$ に到着する。 $L=170\text{ cm}$, 200 cm の場合の $V(t)$ を図3.3に示す。

ポストアンプの出力電圧には制限があるために、モデレーターに与えるバルシングバイアスは、 $V(t)$ 関数の限られた一部分を選び出す必要がある。ただし、パルス化システムを陽電子寿命測定に利用する場合、陽電子の平均寿命より十分長い時間で一回のパルス化を行う必要がある。 $\sim 2\text{ ns}$ の寿命を示す試料には $\sim 40\text{ ns}$, $\sim 4\text{ ns}$ の寿命を示す試料には $\sim 80\text{ ns}$ の時間をかけて $V(t)$ を出力するのが望ましい。

本研究のねらいの一つである高効率のパルス化は、 $V(t)$ をできるだけ長い時間利用し、パルス化繰り返しのために電圧の減少する時間帯 $V_{dec}(t)$ (陽電子を圧縮できないバイアス区間) を可能な限り短くすることで達成する。この時間とともに減少するバイアス $V_{dec}(t)$ により加速された陽電子は、陽電子バンチを形成せず遅れて試料に飛び込むため、陽電子寿命測定を行う際にノイズを作り出す原因となる。 $V_{dec}(t)$ を出力する時間を短くしてパルス化効率を高くすると、ノイズの原因となる陽電子の強度が減るために、陽電子寿命測定で高い SN 比が得られる。

陽電子寿命スペクトルの形状に影響を与えないように、 $V_{dec}(t)$ により加速された陽電子が生じるノイズは、時間に対し平坦に（偏りなく）なることが望まれる。そのためには、 $V_{dec}(t)$ により発射された陽電子がターゲットに打ち込まれるタイムプロファイルを時間に対し平坦にすればよい（図3.4）。このようなバイアス $V_{dec}(t)$ は以下のように表現できる。

$$V_{dec}(t) = \frac{mL^2}{2eT_0^2} \quad (t_{max} \leq t \leq t_{min2}) \quad (3.2)$$

ただし、

$$T_0 = -t_{max} + T_1 \left(\frac{t - t_{max}}{T_2} \right) \quad (3.3)$$

$$T_1 = t_{max} - t_{min}, \quad T_2 = t_{min2} - t_{max} \quad (3.4)$$

であり、 t_{max} , t_{min} , t_{min2} の定義は図3.4に示されている。

3.2.2 陽電子バンチの広がりに関する考察

低速陽電子を正確に式3.1の関数のエネルギー $E(t)$ ($= eV(t)$) で発射することにより、 $t = 0$ に陽電子を試料へ入射することは、原理的には可能である。しかし、実際の低速陽電子は、モデレーターからの放出過程とバルシングバイアス形成の不完全さから生じるエネルギーの誤差分布を持つために、正確に式3.1の関数のエネルギーで低速陽電子を発射することは困難である。

パルス化のために、時刻 t にエネルギー $E(t)$ でモデレーターを発射すべき陽電子が、 $E(t)$ から ΔE だけエネルギーのずれ（誤差）を持つ場合、この陽電子がターゲットに到着する時刻の $t = 0$ からのずれ ΔT は、次式で求められる。（ ΔE は、 t に依存せず正にも負にもなる

と考える。)

$$\Delta T(t) = \frac{L}{\sqrt{\frac{2(E(t)+\Delta E)}{m}}} - \frac{L}{\sqrt{\frac{2E(t)}{m}}} \quad (3.5)$$

$$= -L\sqrt{\frac{m}{2E(t)}} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\Delta E}{E(t)}}} \right) \quad (3.6)$$

パルス化が、 $|\Delta E/E(t)| \ll 1$ の条件で行われる場合は、式 3.6 は以下のように近似できる。

$$\Delta T(t) = \frac{\partial}{\partial E(t)} \left(\frac{L}{\sqrt{\frac{2E(t)}{m}}} \right) \Delta E \quad (3.7)$$

$$= -Lm^{\frac{1}{2}}(2E(t))^{-\frac{3}{2}} \Delta E \quad (3.8)$$

また、式 3.8 に式 3.1 を代入して次のようにも表現できる。

$$\Delta T(t) = -\frac{t^3 \Delta E}{m L^2} \quad (3.9)$$

パルス化の加速エネルギー $E(t)$ の時間 t に対する変位 ($\partial E(t)/\partial t$) が、

$$\frac{\partial E(t)}{\partial t} = -\frac{m L^2}{t^3} \quad (3.10)$$

であることを利用して、式 3.7 は、次のように表せる。

$$\Delta T(t) = \frac{\Delta E}{\partial E(t)/\partial t} \quad (3.11)$$

式 3.11 は、時刻 t にパルス化された陽電子のターゲットへの到着時刻の $t = 0$ からのずれ $\Delta T(t)$ が、 $\Delta E/E(t) \ll 1$ の近似で、ビームライン長 L に依存せず、 ΔE に比例して $\partial E(t)/\partial t$ に反比例することを示している。

$\Delta T(t)$ を小さくする方法は、 ΔE を小さくすること、 $\partial E(t)/\partial t$ を大きくすることである。パルス化を行なう際は、 $\partial E(t)/\partial t$ を大きくするために、 $V(t)$ 曲線の高電圧側 (t がより 0 に近い領域) を利用するのが良い。

次に、エネルギー $E(t)$ からの誤差 ΔE が半値幅 $\Gamma_{\Delta E}$ のガウス分布に従う誤差分布を持つと仮定する。この場合、陽電子バンチのターゲット到着時刻の $t = 0$ からのずれ $\Delta T(t)$ も連続分布になる。したがって、バンチの時間的な広がりは、陽電子のターゲット到着時刻 ΔT の分布を標準偏差 $\sigma_{\Delta T}$ を用いて表現する。ビームラインの長さ L を 200 cm、パルス化を行う時間領域を $-277 \text{ ns} \leq t \leq -197 \text{ ns}$ (図 3.5 参照) と設定したとき (後述するが、これは PTFE 材料を測定した際の条件である。) の $\Gamma_{\Delta E}$ に対する $\sigma_{\Delta T}$ の計算結果を図 3.6 に示す。

図 3.6 は次のようなことを意味する。パルス化された陽電子のエネルギーが、 $E(t)$ を中心に半値幅 $\Gamma_{\Delta E}=2 \text{ eV}$ の誤差分布を持つときに、陽電子バンチの時間幅 $\sigma_{\Delta T}$ (標準偏差) は、 $\sim 0.5 \text{ ns}$ である。また、 $\Gamma_{\Delta E}=3 \text{ eV}$ のときは、 $\sigma_{\Delta T}=\sim 0.8 \text{ ns}$ となる。式 3.8 や 3.11 から予期されるように、 $\sigma_{\Delta T}$ はほぼ $\Gamma_{\Delta E}$ に比例している。

図3.6に示した $\sigma_{\Delta T}$ は、以下のように計算した。時間 t にモデレーターからエネルギー $E(t) = eV(t)$ で発射される陽電子が持つエネルギーの誤差分布 $G(\Delta E)$ は、発射時刻 t に依存せずにガウス分布に従うと仮定したので、次のように表現できる。

$$G(\Delta E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{\Delta E}} \exp\left(-\frac{\Delta E^2}{2\sigma_{\Delta E}^2}\right) \quad (3.12)$$

ここで、 $\sigma_{\Delta E}$ はエネルギーの誤差の標準偏差であり、半値幅 $\Gamma_{\Delta E}$ と次の関係にある。

$$\sigma_{\Delta E} = \frac{\Gamma_{\Delta E}}{2\sqrt{2\ln 2}} \simeq \frac{\Gamma_{\Delta E}}{2.35} \quad (3.13)$$

時刻 t に発射された陽電子のターゲット到着時刻の標準偏差 $\sigma_{\Delta T}(t)$ は次式で表すことができる。

$$\sigma_{\Delta T}(t)^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \Delta T(t)^2 G(\Delta E) d\Delta E \quad (3.14)$$

パルス化が -277 ns から -197 ns の間行われることを考慮して、陽電子バンチの広がりを表す $\sigma_{\Delta T}$ は次式であたえられる。

$$\sigma_{\Delta T}^2 = \frac{\int_{-277\text{ns}}^{-197\text{ns}} \sigma_{\Delta T}(t)^2 dt}{\int_{-277\text{ns}}^{-197\text{ns}} dt} \quad (3.15)$$

3.2.3 パルス化条件のマッピング

$\sigma_{\Delta T} = 100, 200, 300, 500, 700$ ps の陽電子バンチを発生する条件を図3.7～3.10から知ることができる。これらの図は、1.パルシングを行う時間(パルシング周期)と2.パルス化時の陽電子エネルギーの誤差分布の半値幅 $\Gamma_{\Delta E}$ と3.パルシングする際の最小エネルギーの3つの関係を、上記のそれぞれの $\sigma_{\Delta T}$ に対して示す。

陽電子パルス化装置の建設条件を大まかに知るのに、この図を役立たせることができる。一例を挙げて図3.7の利用法を説明する。最大振幅 125 V のパルシング波形を用いて、 $\sigma_{\Delta T}=300$ ps の陽電子バンチを形成する条件を図3.7中の $\sigma_{\Delta T}=300$ ps と記された線から読み取ることができる。線は3種類あるが、丸印が打たれている線は、 $\Gamma_{\Delta E}$ と、1回のパルス化にかける時間の関係を示す。実線は、ビームライン L が 200 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を、また、破線は、ビームライン L が 150 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を示す。 $\Gamma_{\Delta E}=1$ eV のときには、パルス化は 90 ns 近くの時間をかけて行うことができ、パルス化時の最小エネルギーは $L=200$ cm のケースで 135 V, $L=150$ cm のケースで 100 V 程度であることが分かる。

パルシングバイアスの振幅が、150 V, 175 V, 200 V の場合のパルス化条件は、それぞれ図3.8, 3.9, 3.10に示されている。

3.2.4 位相空間を用いたパルス化の考察

モデレーターバイアス $V(t)$ によるパルス化とサイン波形によるパルス化を位相空間を用いて考察する。図 3.11 は、モデレーターに $V(t)$ ($-277 \text{ ns} \leq t \leq -197 \text{ ns}$) を与えた場合に低速陽電子がバンチされる様子を示す。ビームラインの長さは 200 cm とした。横軸はパルス化された最初の粒子 ($V(-277 \text{ ns})$ でパルス化された粒子) からの各粒子のビーム軸に沿った位置の変位、縦軸は運動量の変位を最初の粒子の運動量で割った量を表す。モデレーターにバイアス $V(t)$ を与えた直後の状態 ($t = -197 \text{ ns}$) から、ターゲット部でパルスが空間的に最小になる $t=0$ までの状態を $197/4 \text{ ns}$ ステップで示す(図 3.11)。なお、実際はパルス化は繰り返し行われるが、図 3.11 は、1 回のパルス化について注目したものである。図 3.11 から、バンチ幅 ΔZ は初期 ($t = -197 \text{ ns}$) に $\sim 58 \text{ cm}$ の広がりを持つが、時間の経過とともに圧縮されていく様子を視覚的に確認できる。この計算では、陽電子はエネルギーの不確定さを持たないと仮定したため、 $t=0$ (ターゲット部) で ΔZ は 0 となっている。

図 3.12 では、サイン波形によるパルス化の状態を示す。計算では、サイン波形

$$200 + 65 \times \sin(\theta) V \quad (-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2) \quad (3.16)$$

をモデレーターに $t = -277 \text{ ns}$ から -197 ns の間に与えたと想定した。陽電子バンチは時間とともに空間的に圧縮されているのが確認できるが、サイン波形はパルス化のための理想波形ではないために、 $V(t)$ でパルス化された場合(図 3.11)のように、 ΔZ が 0 になることはない。

$V(t)$ eV からエネルギーが $\pm 1 \text{ eV}$ だけずれた陽電子の位相空間中の状態を図 3.13 に示す。この場合、以前の議論から明らかに $t=0$ で陽電子バンチは幅を持つ。図 3.14 は、図 3.13 中の $t=0$ のケースを拡大したものである。図から、 $\pm 1 \text{ eV}$ のエネルギーのずれ(誤差)が、ターゲットでのバンチ幅($\sim 1 \text{ cm}$)を生じさせることがわかる。

任意波形発生器
YOKOGAWA AG5100
ポストアンプ
THAMWAY T142-5059A 220MHz 100W

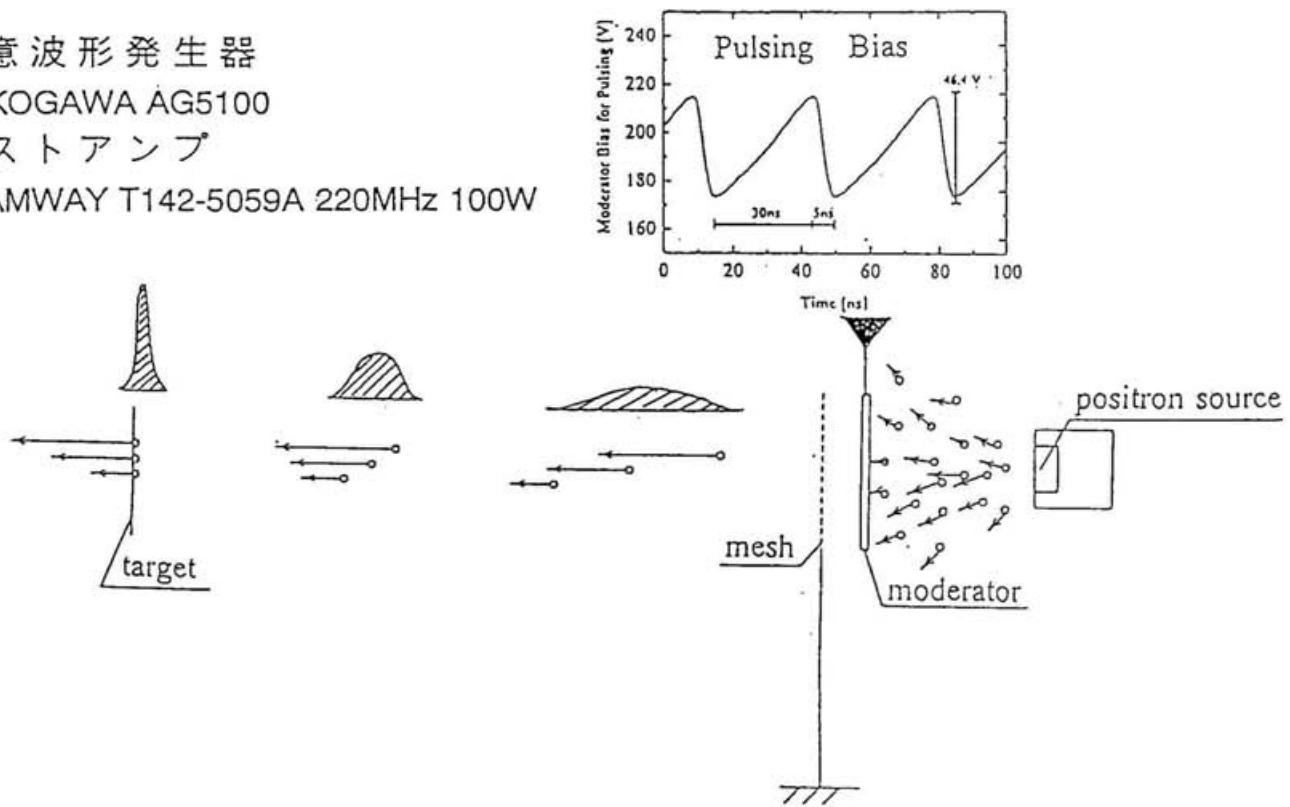


図 3.1: パルス化の概念図。放射性同位元素から放出された白色陽電子をモデレーターを用いて熱化し、低速陽電子を得る。このとき、モデレーターに時間とともに高くなる電圧(t^{-2} の関数)を与えるれば、遅れてモデレーターを発射した陽電子ほど速い速度を持つ。従つて、ビームラインを飛行中に先に発射された速度の遅い陽電子に追いつき、ターゲット部に同時刻に到着し、パンチを形成することになる。モデレーターに与えるバイアスは、任意波形発生器とポストアンプを用いて形成する。

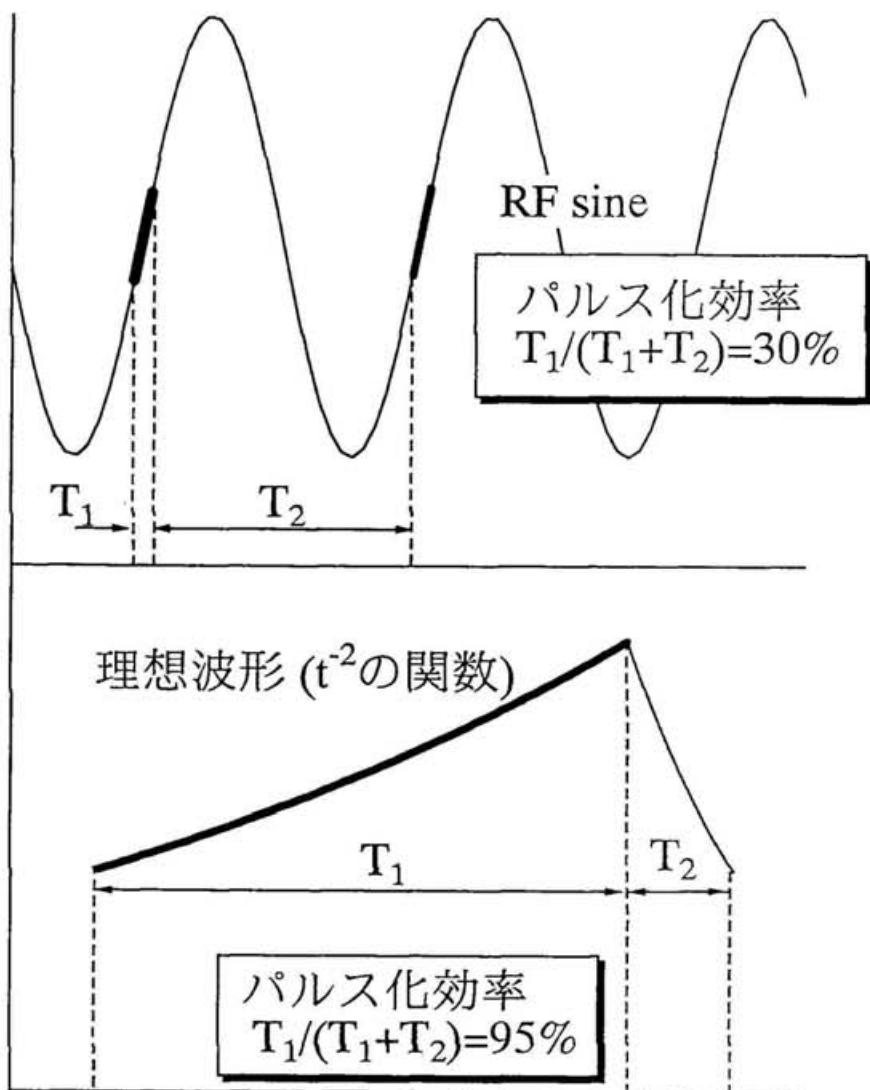


図 3.2: 高効率パルス化の概念図。図のようにパルス化の周期($T_1 + T_2$)を長くして、パルス化に有効な時間区間の比率($\frac{T_1}{T_1+T_2}$)を高くすることにより、陽電子寿命の長い成分を高効率で計測することが可能になる。

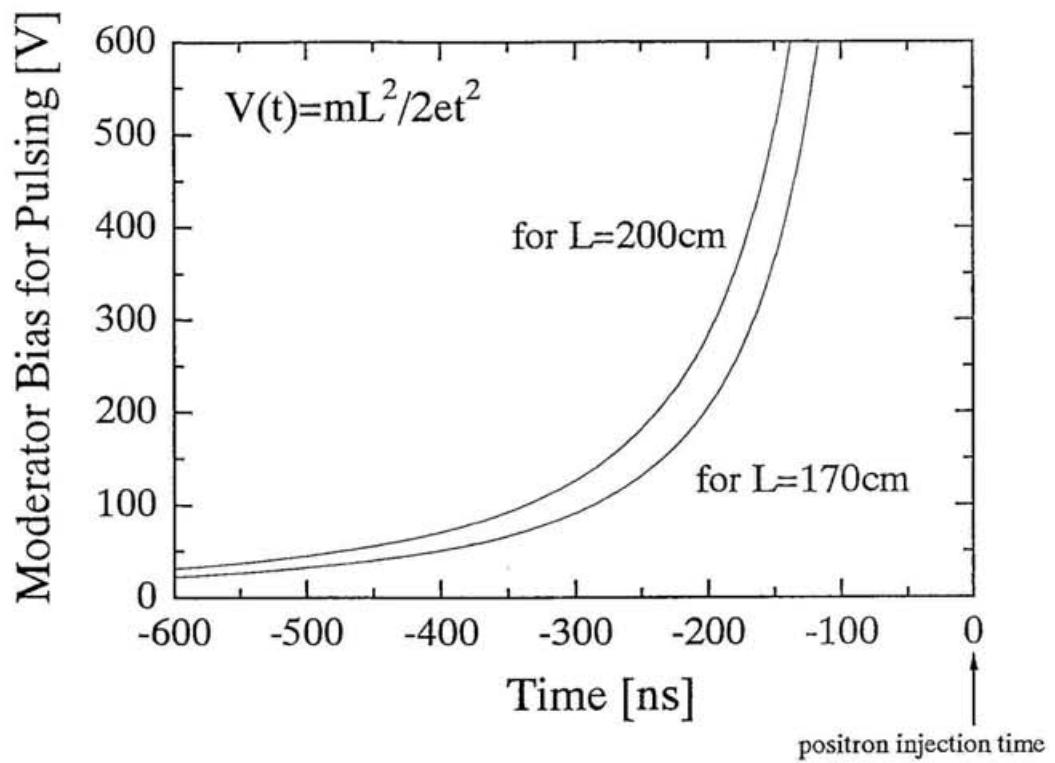


図 3.3: $V(t)$ 曲線。パルス化のためのモデレーターバイアス $V(t)$ 。図は、ビームライン長 L が 170 cm と 200 cm の場合を示す。モデレーターで $V(t)$ で加速された陽電子は、ターゲットに $t = 0$ に到着する。

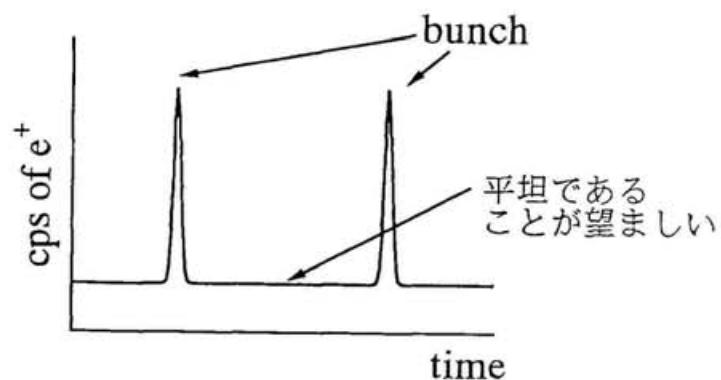
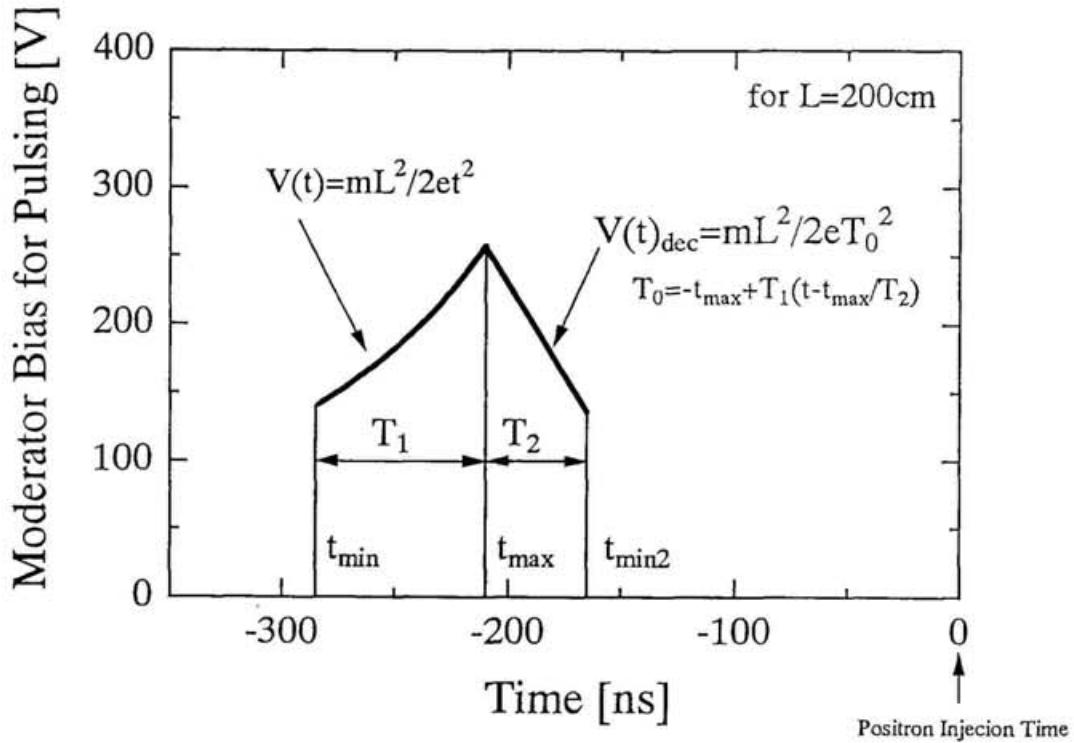


図 3.4: $V_{dec}(t)$ 曲線。 $V_{dec}(t)$ のバイアスで発射された陽電子のターゲット到着時刻の分布は、時間に対し平坦なものである。

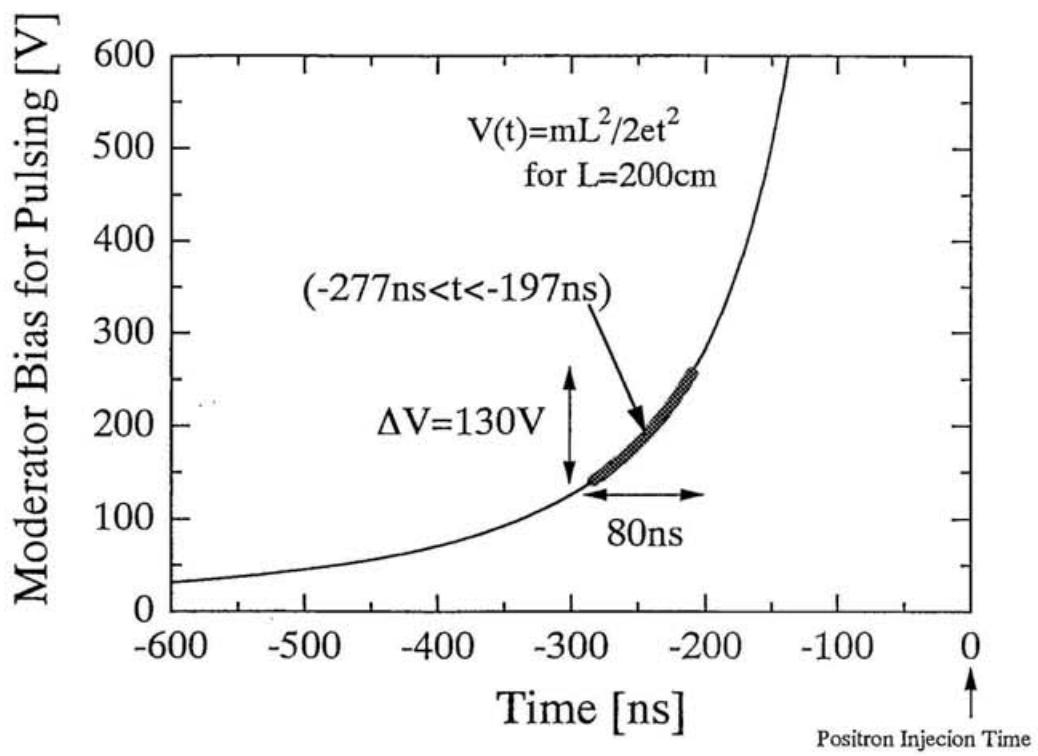
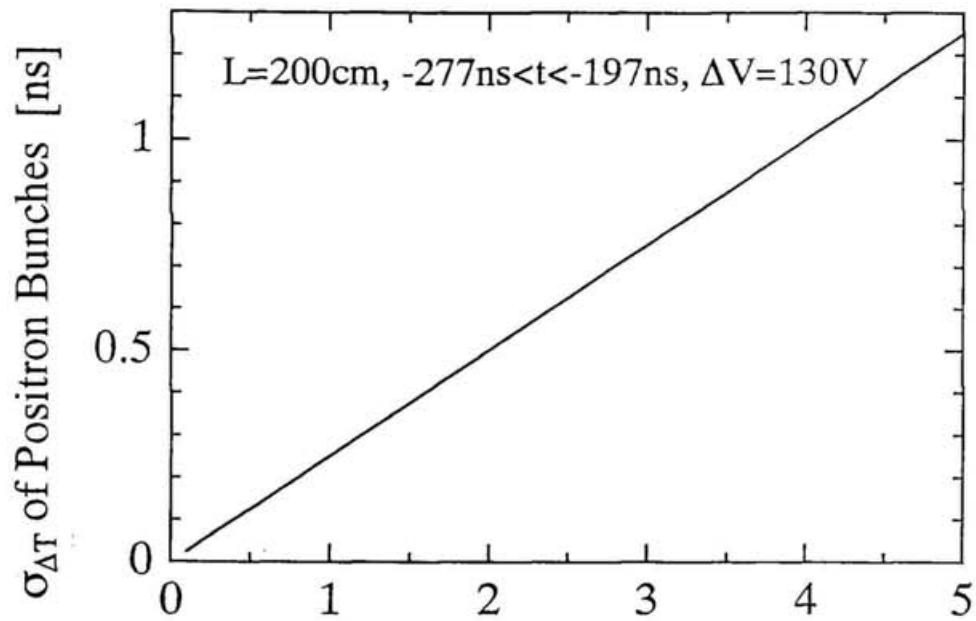


図 3.5: パルス化に利用するバイアス $V(t)$ ($-277 \text{ ns} \leq t \leq -197 \text{ ns}$)。80 ns をかけて、130 V の振幅を出力する。



$\Gamma_{\Delta E}$ of Slow Positrons [eV]
(FWHM of Gaussian Distribution)

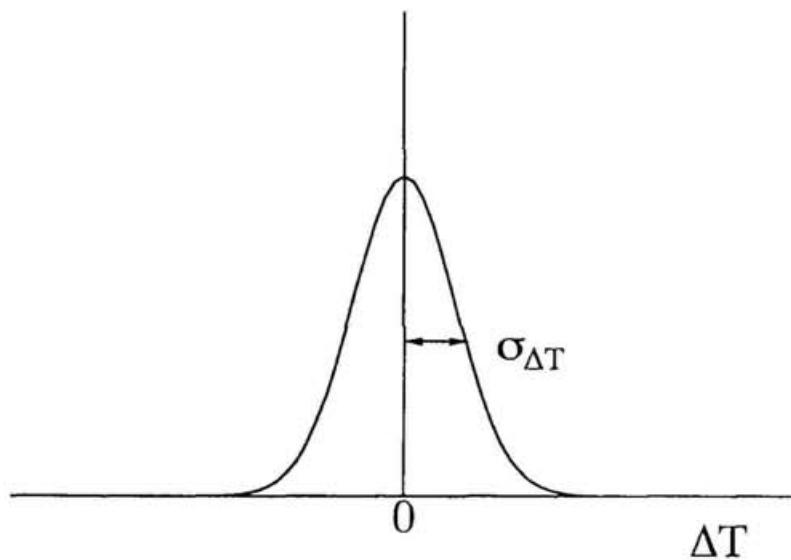


図 3.6: 陽電子バンチの時間幅 $\sigma_{\Delta t}$ とエネルギー誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ の関係。陽電子が図 3.5 のバイアス $V(t)$ ($-277\text{ ns} \leq t \leq -197\text{ ns}$) でパルス化された場合。

3.3 低速陽電子ビームラインと測定系

建設した低速陽電子ビームラインの全体図を図3.15に、装置の写真を図3.16に示す。放射性同位元素²²Na (1.3×10^9 Bq, デュポン製) の β^+ 崩壊から生成された陽電子は、約1 mm離れた場所に設置されているモデレーター（タンゲステン単結晶1または $2\mu\text{m}$ 箔[59]）に飛び込み、~psの時間で熱化後、拡散し、表面から低速陽電子として真空中に再放出する。低速陽電子として再放出される効率は、アニーリングされたタンゲステンモデレーターで 10^{-4} 程度である。

あらかじめモデレーターにプラスの電圧を与えておくことにより、陽電子はモデレーターとモデレーター直後 (~1 mm) に設置されたメッシュ電極 (0V) の間の電場で加速される。パルス化の時には時間に依存したバイアス $V(t)$ をモデレーターに与えることになる。こうして引き出された陽電子はソレノイドコイルや空芯コイルの磁場 (70~120 G) を用いて、約2 m離れたターゲットチャンバーにまで輸送される。途中、非熱化陽電子がターゲットチャンバーへ導かれないように、曲率半径 50 cm の 30 度湾曲したソレノイドコイルを設置した。また、低速陽電子ビームの軌道修正のため、偏向コイルを 2 力所に設置した。ビームラインは 250 l/min のターボ分子ポンプとロータリーポンプの一対を用いて $10^{-6} \sim 10^{-7}$ Torr の真空間に保たれた。陽電子ビームの入射エネルギーを静電場にて調整できるよう、サンプルホルダーの直前には絶縁フランジを挿入した。

寿命測定のためのエレクトロニクスも併せて図3.15に示した。低速陽電子ビームのビーム径や消滅 γ 線を測定するために、以下の三つの検出器を用意した。

1. Micro Channel Plate (MCP)

MCP は荷電粒子に対して検出感度は高く、例えば ~2 keV の陽電子に対し 50 % 程度であるが、消滅 γ 線に対しては感度が低く、~50 keV の硬 X 線に対し 1 % 程度なので、陽電子のターゲットに到達したタイミングシグナルを得ることができる [60]。MCP(HAMAMATSU, F4655-12) のタイミングシグナルの上昇時間は、500 ps 以下である。また、蛍光面のオプションをとりつけた MCP (HAMAMATSU, F2221) を用いれば、陽電子ビーム断面を視覚的にとらえることができる。

2. シンチレーション検出器

陽電子寿命スペクトルを計測するのに使用する。シンチレーターには上面 $\phi 20$ mm、底面 $\phi 30$ mm、高さ 80 mm のプラスチックシンチレーター(応用光研、Pilot-U(密度 1.032 g/cm³, 屈折率 1.58, 融点 75 度, 減衰時間 1.36 ns, 最大発光波長 391 nm)) を使用した。光電子増倍管 (HAMAMATSU, H1949) には磁気シールド (HAMAMATSU, PC, PB) が必要である。ビーム強度 $\sim 4 \times 10^4$ e⁺/s の時にこのシンチレーターの先端をターゲットから 10 mm 以内に設置することで、陽電子寿命スペクトルを 500 cps で取得することができる。検出器の時間分解能は ~200 ps 程度である。

3. Ge 検出器

消滅 γ 線のエネルギー分布を測定するのに使用する。使用した Ge 検出器 (ORTEC GEM-15180-P) のエネルギー分解能は、1.7 keV 程度である。このエネルギー分解能

System Requirements
for $\sigma_{\Delta T}=100, 200, 300, 500, 700$ ps Bunching

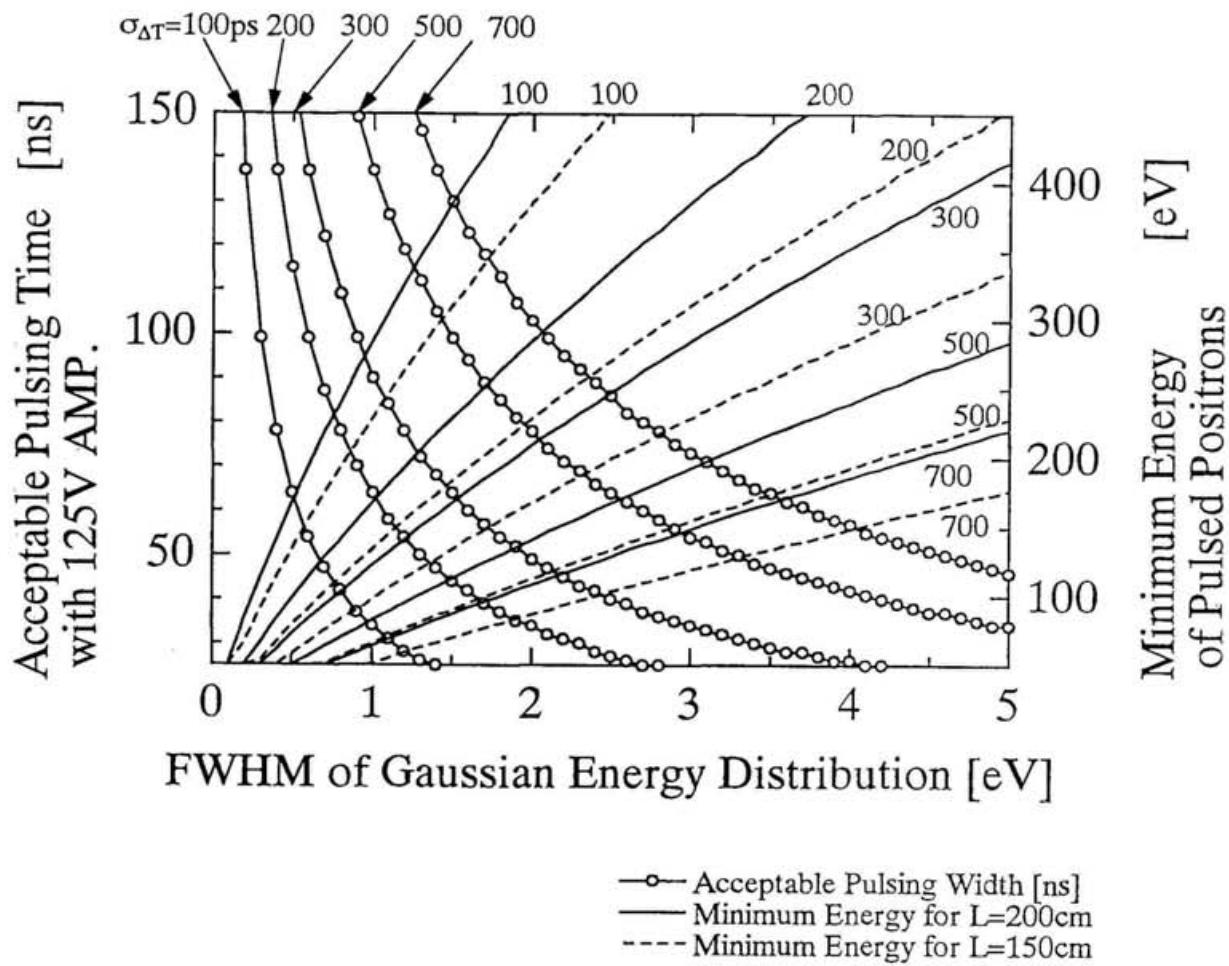


図 3.7: パルス化マップ(1)。パルシングバイアスの出力振幅が 125 V の場合。丸印が打たれている線は、パルス化を行う際のエネルギーの誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ (ガウス分布の半値幅)と、1回のパルス化にかける時間の関係を、 $\sigma_{\Delta t}=100, 200, 500, 700$ ps に対して示す。実線は、ビームライン L が 200 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を、また、破線は、ビームライン L が 150 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を各 $\sigma_{\Delta T}$ に対して示す。

System Requirements
for $\sigma_{\Delta T}=100, 200, 300, 500, 700$ ps Bunching

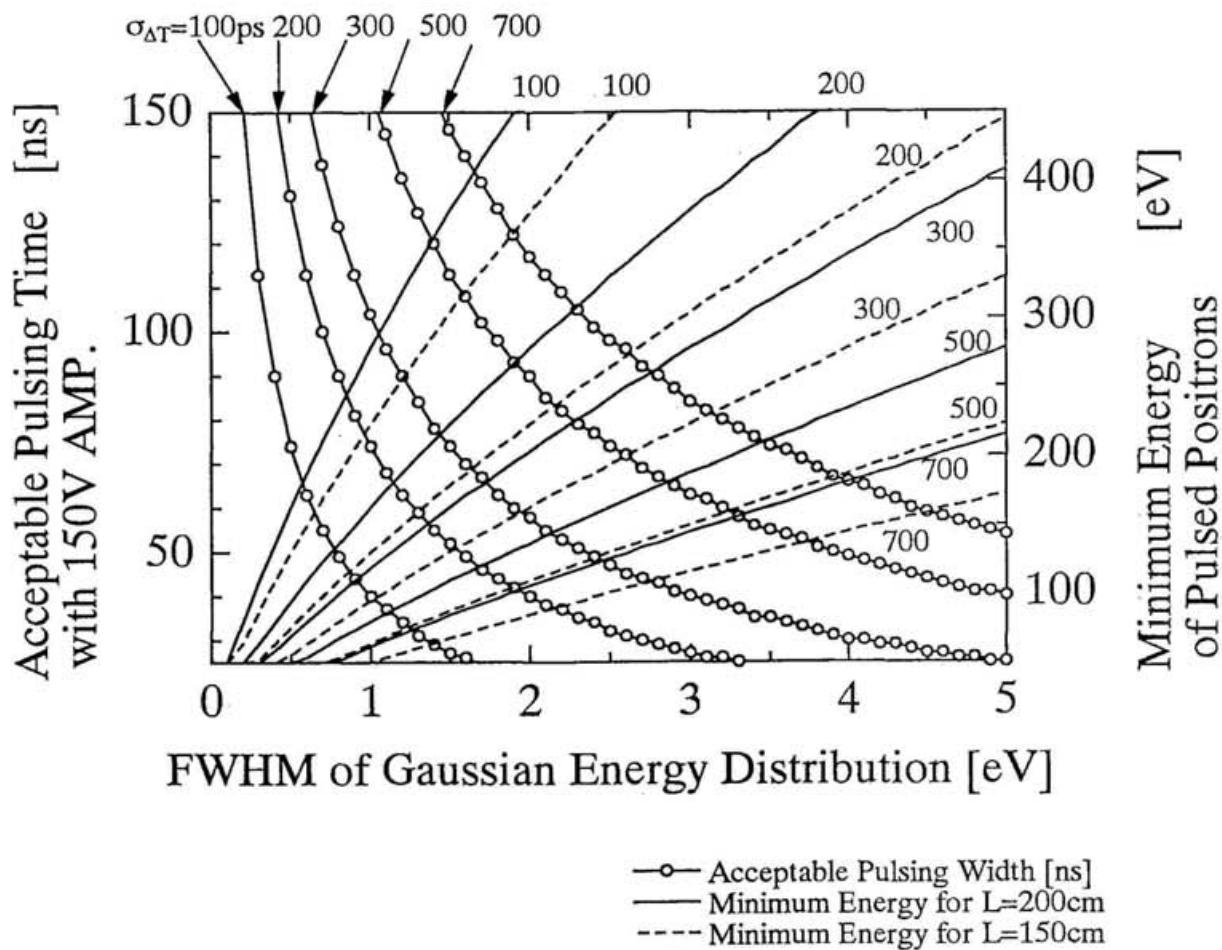


図 3.8: パルス化マップ(2)。パルシングバイアスの出力振幅が 150 V の場合。丸印が打たれている線は、パルス化を行う際のエネルギーの誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ (ガウス分布の半値幅)と、1回のパルス化にかける時間の関係を、 $\sigma_{\Delta t}=100, 200, 500, 700$ ps に対して示す。実線は、ビームライン L が 200 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を、また、破線は、ビームライン L が 150 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を各 $\sigma_{\Delta t}$ に対して示す。

System Requirements for $\sigma_{\Delta T}=100, 200, 300, 500, 700$ ps Bunching

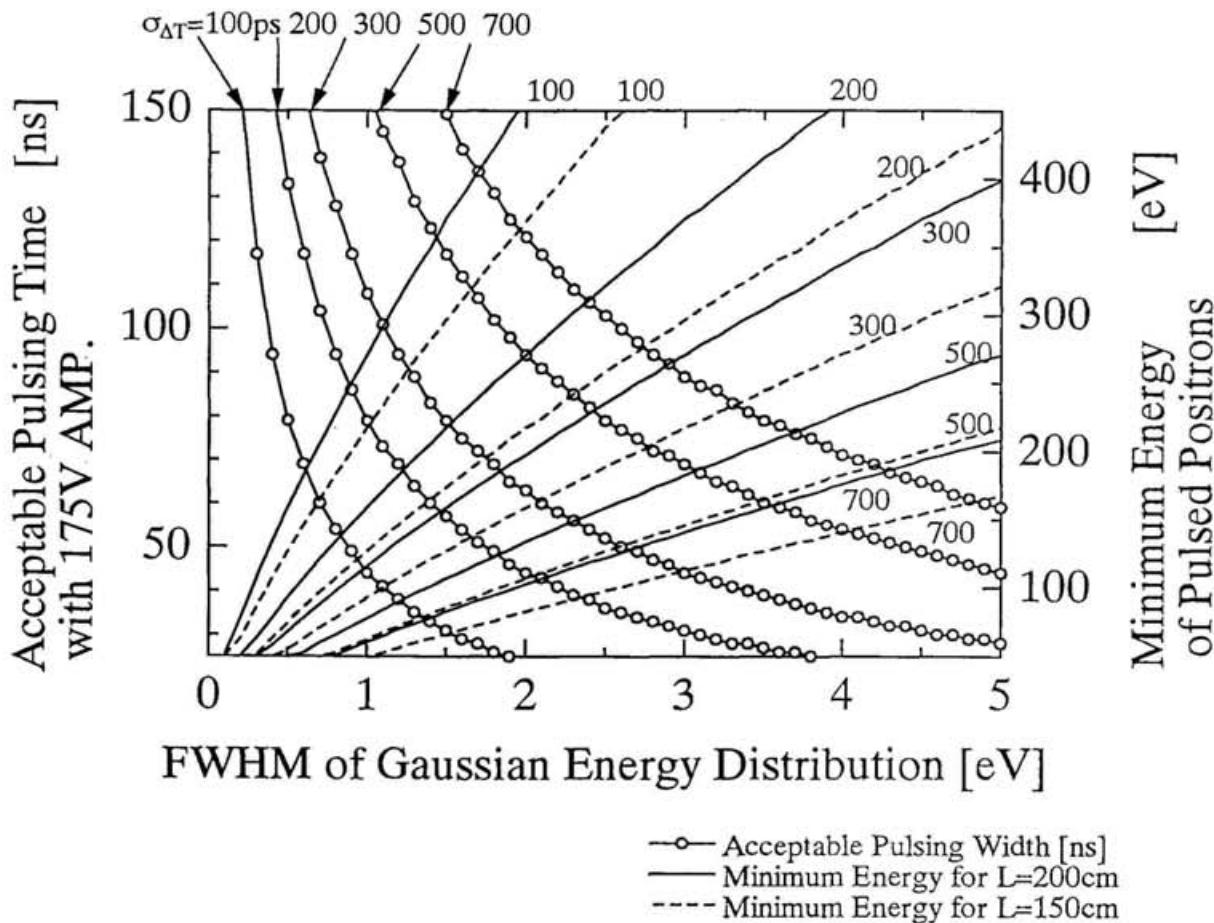


図 3.9: パルス化マップ(3)。パルシングバイアスの出力振幅が 175 V の場合。丸印が打たれている線は、パルス化を行う際のエネルギーの誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ (ガウス分布の半値幅)と、1回のパルス化にかける時間の関係を、 $\sigma_{\Delta t}=100, 200, 500, 700$ ps に対して示す。実線は、ビームライン L が 200 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を、また、破線は、ビームライン L が 150 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を各 $\sigma_{\Delta T}$ に対して示す。

**System Requirements
for $\sigma_{\Delta T}=100, 200, 300, 500, 700$ ps Bunching**

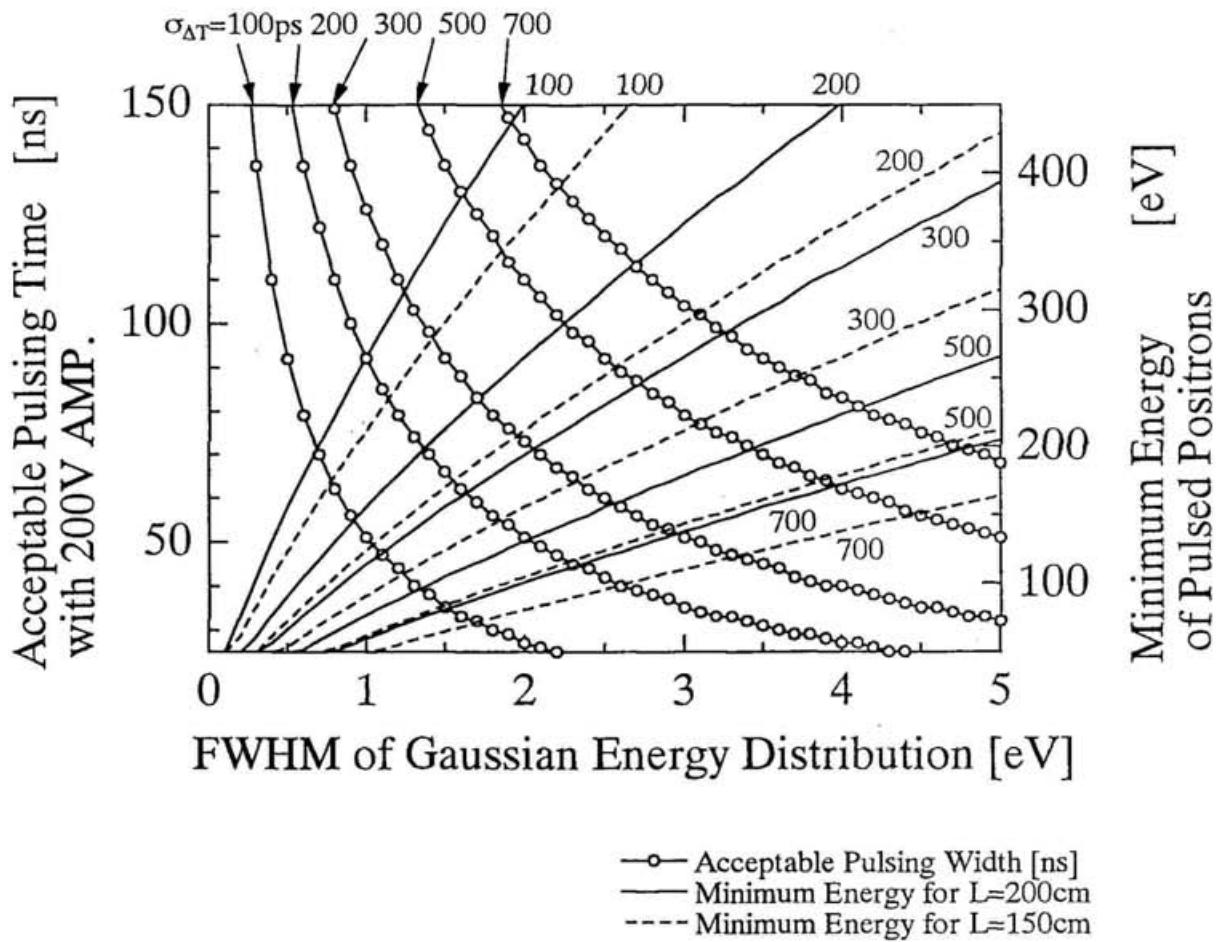


図 3.10: パルス化マップ(4)。パルシングバイアスの出力振幅が 200 V の場合。丸印が打たれている線は、パルス化を行う際のエネルギーの誤差 $\Gamma_{\Delta E}$ (ガウス分布の半値幅)と、1回のパルス化にかける時間の関係を、 $\sigma_{\Delta t}=100, 200, 500, 700$ ps に対して示す。実線は、ビームライン L が 200 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を、また、破線は、ビームライン L が 150 cm のときのパルス化最小エネルギーと $\Gamma_{\Delta E}$ の関係を各 $\sigma_{\Delta t}$ に対して示す。

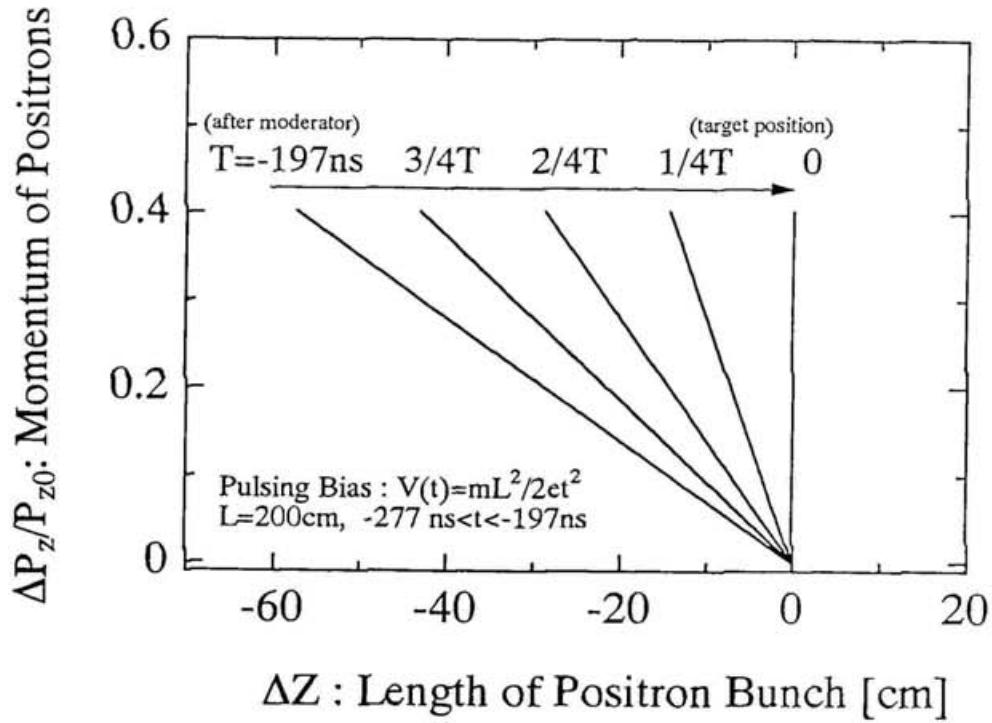


図 3.11: 位相空間における $V(t)$ でバルス化された陽電子の軌跡(1)。モデレーターに $V(t)$ ($-277\text{ ns} \leq t \leq -197\text{ ns}$) を与えた場合に低速陽電子がバンチされる様子を、バルス化された直後の状態 ($t = -197\text{ ns}$) から、ターゲット部でバルスが空間的に最小になる $t=0$ までの状態を $197/4\text{ ns}$ ステップで示す。ビームラインの長さ L は 200 cm とした。横軸はバルス化された最初の粒子 ($V(-277\text{ ns})$ でバルス化された粒子) からの各粒子のビーム軸に沿った位置の変位、縦軸は運動量の変位を最初の粒子の運動量で割った量を表す。モデレーターを離れた直後の陽電子(バンチ)は、 $\sim 58\text{ cm}$ 程度の長さであるが、時間が経つに連れて圧縮されていくのが分かる。

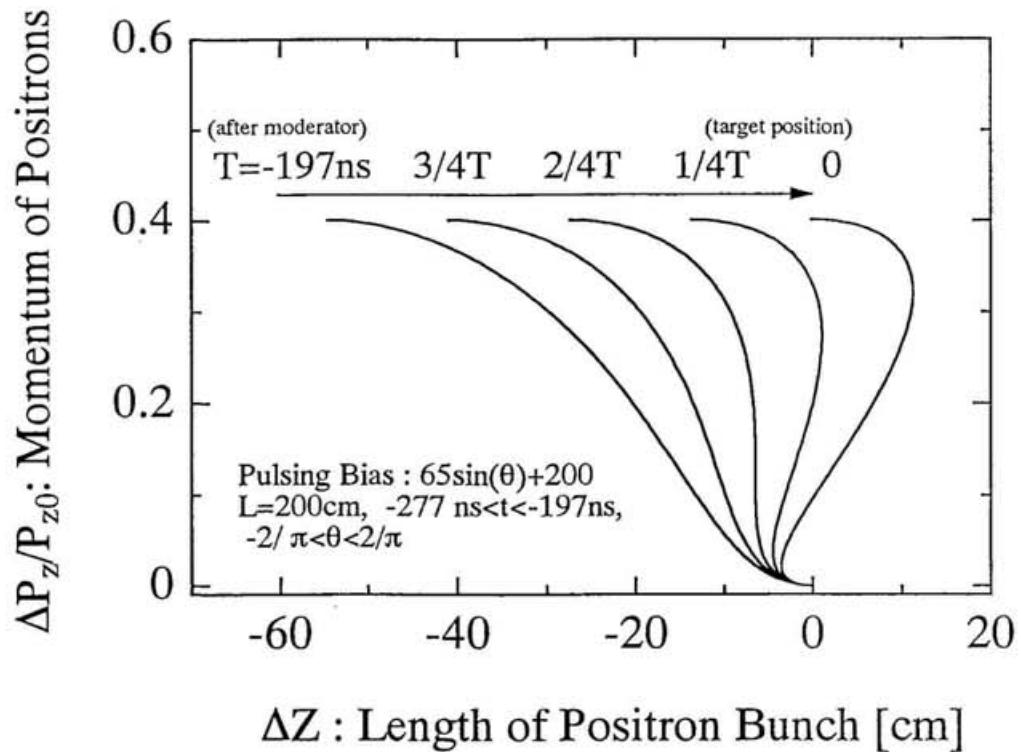


図 3.12: 位相空間におけるサイン波でパルス化された陽電子の軌跡。サイン波形 $200 + 65 \times \sin(\theta)$ V ($-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2$) をモデレーターに $t = -277$ ns から -197 ns の間に与えたと想定した。サイン波形は、原理的に高効率で狭いバンチを形成できないことが分かる。

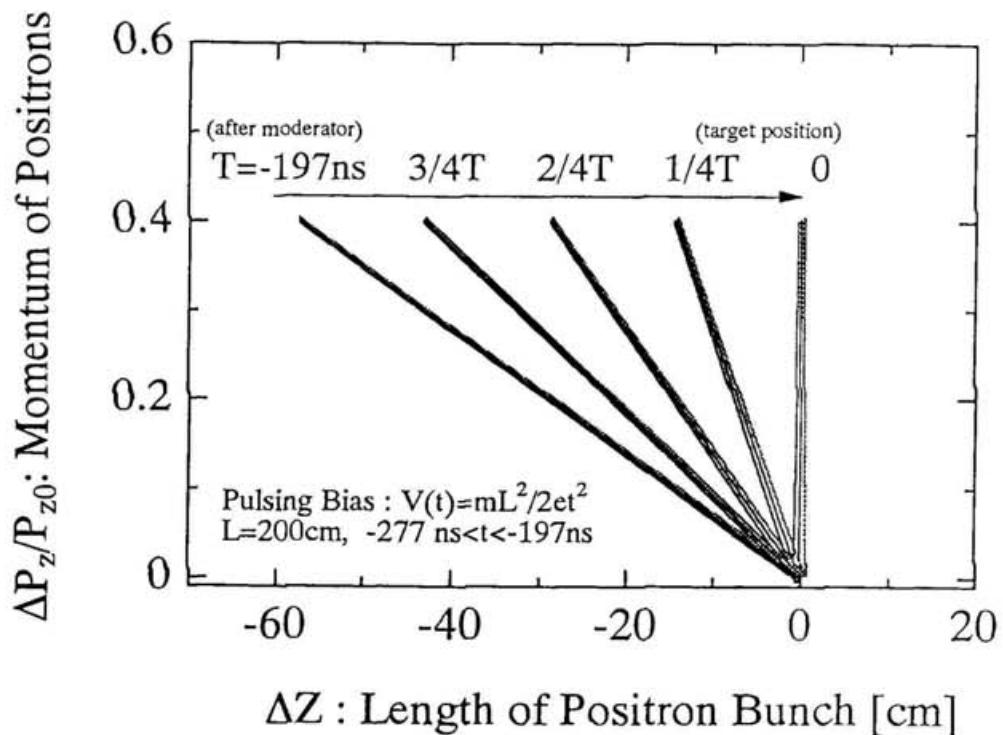


図 3.13: 位相空間における $V(t)$ でパルス化された陽電子の軌跡(2)。図 3.11 の位相空間図に、理想エネルギーから $\pm 1\text{ eV}$ のずれを持つ陽電子の状態も追加して示した。

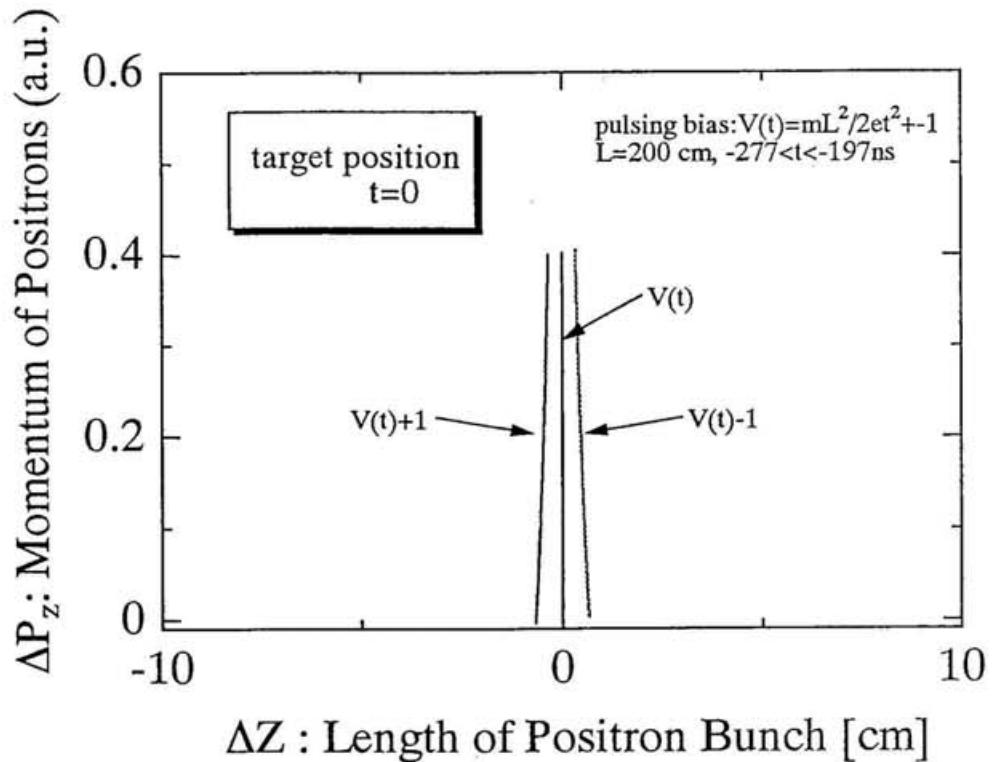


図 3.14: 位相空間における $V(t)$ でパルス化された陽電子の軌跡(3)。パルス化の理想的なエネルギーからのずれ $\pm 1 \text{ eV}$ が、ターゲット部での陽電子の広がり $\sim 1 \text{ cm}$ を生じることが分かる。

は、放射性同位元素 ^{137}Cs (半減期 30 年) からの 611 keV γ 線を測定した際の線スペクトルの半値幅から決定された。実験中は陽電子ビームの消滅ターゲットから~50 mm 程度離れた場所に設置し、~600 cps で検出を行った。

検出器系には、以下の製品を使用した。CFDD(ORTEC 583), 光電子増倍管用高圧電源 (ORTEC 556), TAC (ORTEC 457), DELAY (ORTEC 425A), MCA (ORTEC 921), MCP 用二重高圧電源 (ORTEC 660), Ge 検出器用 MCA (ORTEC 92X), 高速プリアンプ (ORTEC 9306)。

3.4 パルシングバイアスの形成

3.4.1 パルシングバイアス発生装置と伝送回路

モデレーター電極にパルシングバイアス $V(t)$ を与えるため、任意波形発生器に YOKOGAWA 製の AG5100 を使用し、任意波形発生器からの波形を增幅するポストアンプには THAMWAY 製の T142-5059A (100 W) を使用した。AG5100 (1 GHz) からの波形シグナルは最大振幅 $\pm 1 \text{ V}$ であり、1 ns ステップでの出力電圧設定が可能である。ポストアンプは、出力インピーダンスが 50Ω であるため、波形を歪み無く伝送するためには、 50Ω 特性インピーダンスケーブル (BNC, SMA) と 50Ω 終端抵抗を用いる必要がある。終端抵抗が 50Ω の場合、ポストアンプ T142-5059A (100 W) で得られる最大電圧の振幅は ~200 V である。終端抵抗を使用する際は消費電力 (ポストアンプ電力 100 W) を考慮しなければならない。実験のために用意した大電力用終端抵抗は DL1000(第一電波工業製)であり、定格電力は 200 W(AVG), 1 kW (peak) である。形成した波形を観測するオシロスコープの入力インピーダンスが 50Ω ならば終端抵抗は必要ではない。ただし、観測するシグナルがオシロスコープの入力許容電圧より高い場合は、減衰器を用いてシグナルを許容電圧以下にする。特性インピーダンス 50Ω を持つ同軸固定減衰器には、サンユーワークス株式会社製の SFA-200NPJ30(200 W) を使用した。

ポストアンプ T142-5059A (100 W) は AC アンプであるため、出力される交流電圧はアース (0 V) をはさんで土両極側にまたがる。従って、モデレーターに与えるパルス化バイアス $V(t)$ 実現のためには、ポストアンプからの出力電圧に対しオフセット電圧を加える必要がある。ポストアンプの出力にオフセット電圧を与えるため、図 3.17 と 3.18 に示されている 2 種類の回路を製作した。図 3.17 のケースでは任意波形発生器、ポストアンプともグランドレベル (0 V) で使用し、ポストアンプからの同軸ケーブルのホットラインをコンデンサーにより DC 的にモデレーター部と絶縁する。図 3.18 のケースでは、任意波形発生器、ポストアンプともにオフセット電圧を加えて使用する。これらの回路により得られる波形の違いはないが、図 3.17 のケースの方がグランドレベルで任意波形発生器を使用できるため、取り扱いやすい条件である。

パルシングを行うモデレーターは、真空容器中に存在するため、 50Ω インピーダンス整合がとられた同軸タイプのフィードスルー (例えば KYOCERA 製の BNC-JJ や SMA-JJ) を通して、パルシング・バイアスを真空容器の中に伝送した。コンデンサーには、村田製作所製のポリプロピレンフィルムコンデンサー ($0.1 \mu\text{F}$, 耐電圧 1 kV) を、耐電圧・高周

波特性の良さ・高容量という観点から選択して使用した。

モデレーター部の拡大図を図3.19に示す。モデレーターは、グランドのメッシュ電極と1 mm の間隔を隔て設置されている。モデレーター部はコンデンサー構造をしているため、電気容量を求める式

$$\epsilon \frac{S}{d} \quad (3.17)$$

から ~4 pF の電気容量をもつと推測される。なお、 ϵ は真空中の誘電率、 S はモデレーター部分の面積で 20^2 mm^2 、 d はモデレーターとメッシュ電極の距離を表し 1 mm である。したがって、使用した回路系の CR 時定数は約 $2 \times 10^2 \text{ ps}$ であり、モデレーターのバイアスの時定数の上限は ~ $2 \times 10^2 \text{ ps}$ 程度と考えられる。モデレーターと同軸ケーブルをネジで接続するために、同軸ケーブルには先端のシールド線を 10 mm 程度はがした後、圧着端子を取り付けた。

3.4.2 回路シミュレーターによる伝送回路の評価

回路シミュレーター B²SPICE 2.1(Beige bag Software 社製) を用いて、図3.17の回路の特性評価を行った。ポストアンプから、立ち上がり ~100 ps、振幅 0.5 V の矩形波を出力した場合の、図3.17中の A,B,C の点における電圧の時間変化のシミュレーション結果を、図3.20に示す。なお、シミュレーションでは、モデレーター部分が 4 pF のコンデンサーと等価であり、配線の接続部での浮遊容量、インダクタンス、抵抗はないものとした。また、図3.17中の A 点から B 点、B 点から C 点、それぞれの波形の伝達時間を 1 ns に設定した。

図3.20のグラフは、横軸は時間 (1 ns/div)、縦軸は電圧 (0.1 V/div) を表している。A 点で 100 ps で立ち上がった波形は、1 ns 後に B 点で ~500 ps で立ち上がっている (時定数 ~200 ps 程度) のが確認できる。さらに 1 ns 後には、C 点で B 点と同じ速さで矩形波が立ち上がっているのが分かる。4 pF のコンデンサーがついているために、A 点で鋭い立ち上がり (100 ps) を見せた波形は、B,C 点では立ち上がり時間が ~500 ps に鈍ることが結論される。

A 点でのシミュレーション波形には、矩形波の立ち上がりを確認した 2 ns 後に、V 字形の反射波を見る事ができる。このシミュレーションでは、A から B への波形の到達時間を 1 ns と設定していることから、V 字形の反射波は、4 pF のコンデンサーの影響であることが分かる。早い周波数成分は、4 pF のコンデンサーを通り抜けるが、その先が短絡されているために反射波となって戻ってくるためである。確かに、4 pF のコンデンサーを 1 pF に置き換えた場合には、高周波に対しての抵抗が大きくなるために、反射波の振幅も小さくなるのが分かる (図3.21)。

実際に扱う波形は、最短立ち上がり時間 1~2 ns であるため、ポストアンプからの立ち上がり時間を 1 ns としたシミュレーションも行った (図3.22)。ただし、モデレーター部を 4 pF のコンデンサーで置き換えた。図3.22から、B,C 点での矩形波の立ち上がり時間は、A 点の立ち上がり時間と変わらないことが確認できる。モデレーター部が、4 pF のキャパシタンスを持っていても、実用的なレベル (1 ns よりも遅い立ち上がりの波形) では問題にならないことが分かる。

3.4.3 パルシングバイアスの形成方法

ポストアンプに任意波形発生器からのパルス化波形を入力した場合、得られる出力波形は、 $V(t)$ の形状を正確に増幅したものとは異なる。原因としては、得たいパルス化波形 $V(t)$ が、広い周波数成分のサイン波の重ね合わせで形成されているために、ポストアンプ増幅率の周波数依存性が影響することが考えられる。したがって、ポストアンプを通して得られる波形が $V(t)$ に近い形状となるように、任意波形発生器を補正し、パルシングバイアスを形成することにした。以下にその手順を示す。

1. 任意波形発生器（AG5100）から理想波形の数 100 分の 1 の電圧の波形を出力し、これをポストアンプで増幅する。
2. デジタルオシロスコープを用いてモデレーター部で実現されている波形シグナルを観測しデータを取り込む。このとき、ランダムノイズ成分等の効果を小さくするため、オシロスコープはアベレージ（average）機能を使用する。
3. オシロスコープで取得した波形データを理想波形と比較し、ある時間でモデレーターバイアスが理想波形の電圧よりも低いならば AG5100 の出力をより大きく、高いならば AG5100 の出力をより小さくするように AG5100 の出力を 1 ns ステップで補正する。
4. 補正した AG5100 のシグナルをポストアンプを通して増幅し、再びモデレーターに印加する。
5. 上記 2 から 4 を繰り返すことにより、モデレーターバイアスを理想波形に近づけていく。

ここで、モデレーター波形の観測には、SONY 製のオシロスコープ（TDS380P, 400 MHz サンプリング、入力許容電圧： ± 300 V、入力インピーダンス $1 M\Omega$ ）と 10:1 パッシブプローブ（最大許容電圧 420 V）を用いた。この手法を用いて、モデレーターバイアスは標準偏差 ~ 1.0 V 以内の誤差で形成される。ところで、オシロスコープは、一般に、 $\sim 1\%$ 程度の誤差を持つものであることを認識しなければならない。このことは、理想曲線から 1 % 以内の誤差でのパルシングバイアスの実現が困難であることを意味する。

80 ns で立ち上がり 2 ns で下降する波形を、上記の方法により図 3.17 の回路の B 地点（モデレーター部、真空容器内）に形成した（図 3.23）。同時に A 地点（モデレーター前）で観測された波形を図 3.24 に示す。このように、波形は観測場所によって異なっていることが分かる。この主な原因是、モデレーター部の配線のインピーダンスが整合されていないこと、モデレーター部が静電容量を持っていることである。特に A 点では、回路のシミュレーションからも示されたように、立ち上がり（立ち下がり）の早い波形に対しては、モデレーター部から反射波が戻ってくる。

パルス化を行うためには、理想的な $V(t)$ バイアスをモデレーターに与える必要があり、そのためには、パッシブプローブを真空中にあるモデレーター部に接続しなければならない。しかし、真空中でプローブを使用すると、プローブからの脱ガスのために現在のシス

テムでは真空度が 10^{-4} Torr までにしか到達しないため、図 3.17 や図 3.18 の回路の C 点で波形を形成することにした。

モデレーター後(図 3.18 の C 地点)にプローブを当て、そこで形成されたパルシングバイアスの一例を図 3.25 に示した。破線が形成された波形であり、実線が計算により求められた理想波形である。このバイアス波形は 80 ns で上昇し、2 ns で下降をするように形成された。この波形は、理想波形から標準偏差で 0.8 V のずれで形成された。

3.5 低速陽電子のエネルギー分布

陽電子は主に以下の 2 つの理由により、パルス化された際にパルス化の理想的な発射エネルギー $E(t)$ を中心にエネルギーの誤差分布を持つ。

1. パルシングバイアス $V(t)$ をモデレータに正確に印加することはできない。前節 3.4.3 で述べたように、形成したパルシングバイアスは、理想波形から標準偏差にして 0.8 V 程度のずれを持つ。
2. モデレーターから低速陽電子として真空中に再放出するときに、仕事関数の絶対値程度の幅を持つエネルギー分布(誤差分布)を持つ。

したがって、3.2.2 節で述べたように、陽電子バンチは、ターゲット部で時間幅を持つ。

1. の効果は、低速陽電子に、標準偏差で 0.8 eV 程度、半値幅で ~1.9 eV のエネルギーの誤差分布を陽電子に与える。2. の効果が生じさせる陽電子のエネルギーの誤差分布は、モデレーターから放出した際に陽電子がもつエネルギー分布(誤差分布と同意味)を測定して知ることができる。このエネルギーの誤差分布について調べるために、W, Ni, Pt の 3 種類のモデレーターから生じた陽電子のエネルギー分布を測定した。測定結果を以下の表 3.1 に要約する。

表 3.1: 低速陽電子が持つエネルギー分布の半値幅のモデレーター依存性(実験値)

材質	厚さ	$\Gamma_{\Delta E}$ (FWHM)	効率
W 多結晶	6 μm	2.2 eV	2.9×10^{-4}
Ni 多結晶	3.6 μm	0.58 eV	2.0×10^{-5}
Pt 多結晶	3 μm	1.2 eV	1.6×10^{-4}

測定は、リターディング・グリッドを用いて行なった。これは、ビームライン中にメッシュ電極を設置し、与えたバイアスに対する低速陽電子のメッシュ電極透過率を測定するものである(図 3.26 参照)。従って、メッシュに垂直な方向のエネルギー分布を計測することになる。測定の間はモデレーターバイアスを一定にする。この手法によるエネルギー分解能は、メッシュに与えた電位がメッシュ(ワイヤー)間の空間では多少小さくなっている、0.5% 程度の誤差を持つ。なお、ある境界条件の下で形成される静電ポテンシャル分布は、緩和法等を用いて計算することができる [61]。実験はモデレーターのバイアスを 30 V

に設定して行った。また、比較のために、文献[8]中に示されている W と Ni と Pt の陽電子の仕事関数を表3.2に示す。

表3.1と表3.2の比較から、仕事関数の絶対値の大きいモデレーターほど、生成する低速陽電子のエネルギー分布の半値幅も大きいことが分かる。

表 3.2: 文献[8]に見る W と Ni と Pt の陽電子に対する仕事関数

材質	陽電子仕事関数 (eV)	参考文献
W 単結晶	-3.0	[62][63]
Ni 単結晶	-1.3	[64]
Pt 単結晶	-1.9	[65]

建設したビームラインでは、低速陽電子ビーム強度を重要視したため、モデレーターには W 単結晶 ($2 \mu\text{m}$) を利用した。本装置で測定した低速陽電子のエネルギー分布 (積分分布) を図3.27に示す。積分分布を微分して得られる分布(図3.28)は、低速陽電子のエネルギーに対する密度分布を表す。図3.28の分布から、低速陽電子のエネルギー分布はガウス分布関数によるフィッティングの結果、半値幅で 2.1 eV ということが分かった。この実験は、モデレーターのバイアスをパルス化の条件に近い 200 V に設定し行われた。なお、文献[8]に見られるモデレーターの効率の結果(高効率が達成されたもの)を表3.3に示す。

表 3.3: 文献[8]に見る W と Ni と Pt のモデレーター効率

材質	効率	参考文献
W 単結晶	2.0×10^{-3}	[66]
固体 Ne	7.0×10^{-3}	[67]
Ni 単結晶	7.0×10^{-4}	[68]

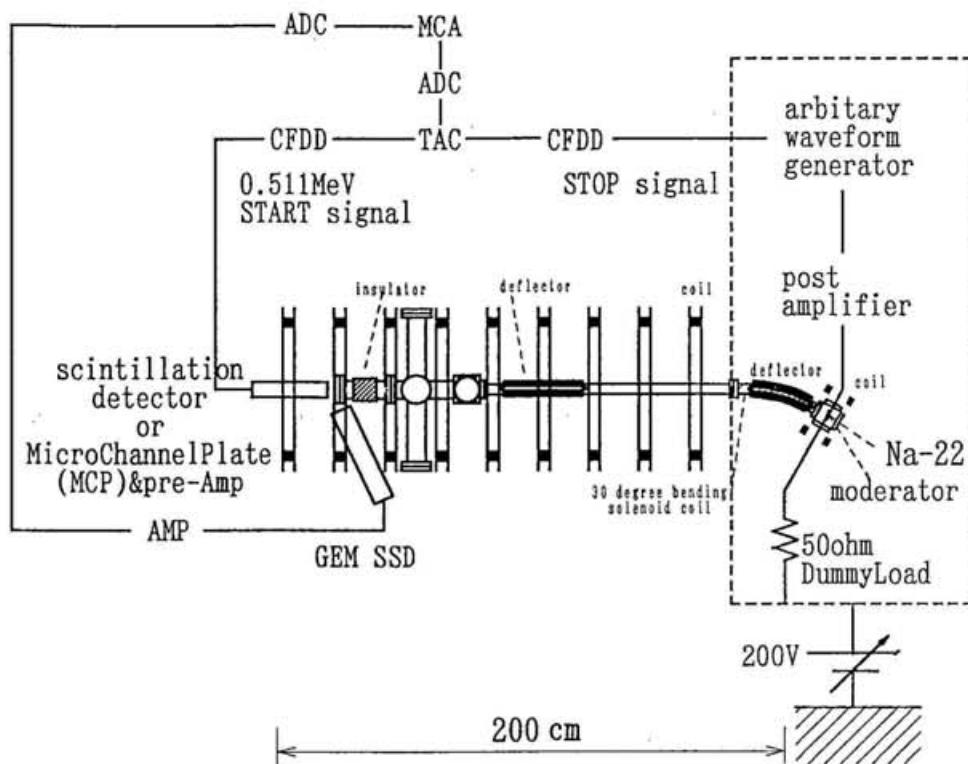


図 3.15: ビームライン全体図。低速陽電子ビームラインと寿命測定を測るためにエレクトロニクスのセットアップ。ビーム上流側を右側に示す。モデレーターで減速しない高エネルギー陽電子を削除するために、湾曲ソレノイドコイルを設置した。全長 2 m 程度のコンパクトな装置である。



図3.16: 実験装置の写真。上図は、ビームラインを上流側から撮影したものであり、放射線を遮蔽するために、鉛ブロックが積まれている。下図は、装置の前面をやや下流側から撮影したものである。

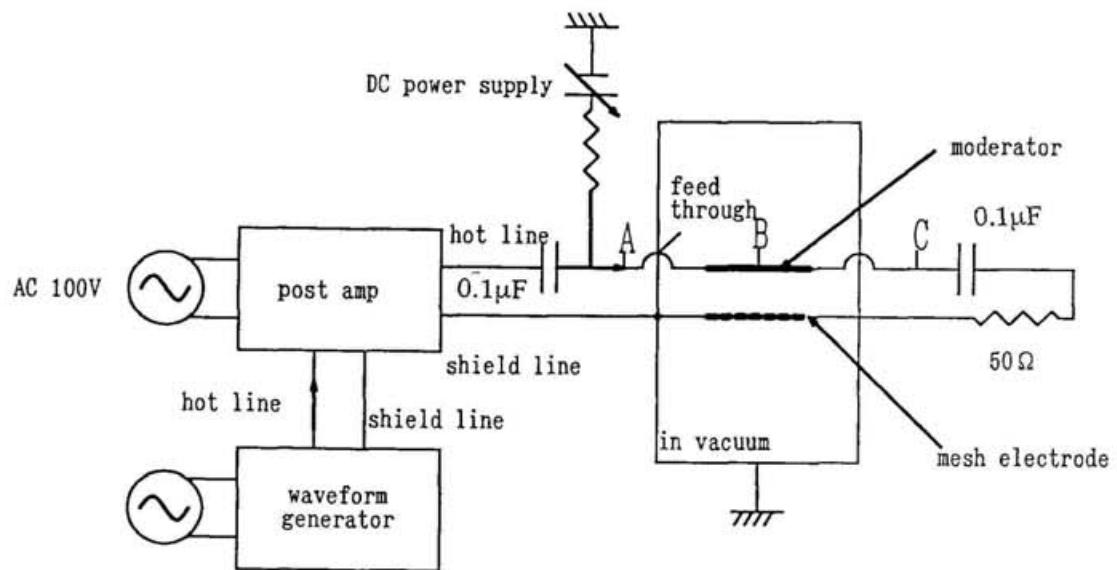


図 3.17: モデレーター波形形成のための回路図(1)。ポストアンプからの出力波形にオフセットバイアスを与えるために、ホットライン上にコンデンサーを入れ、ポストアンプとモデレーターをDC的に絶縁した。この場合、任意波形発生器とポストアンプはグランドレベル(0 V)で使用できる。

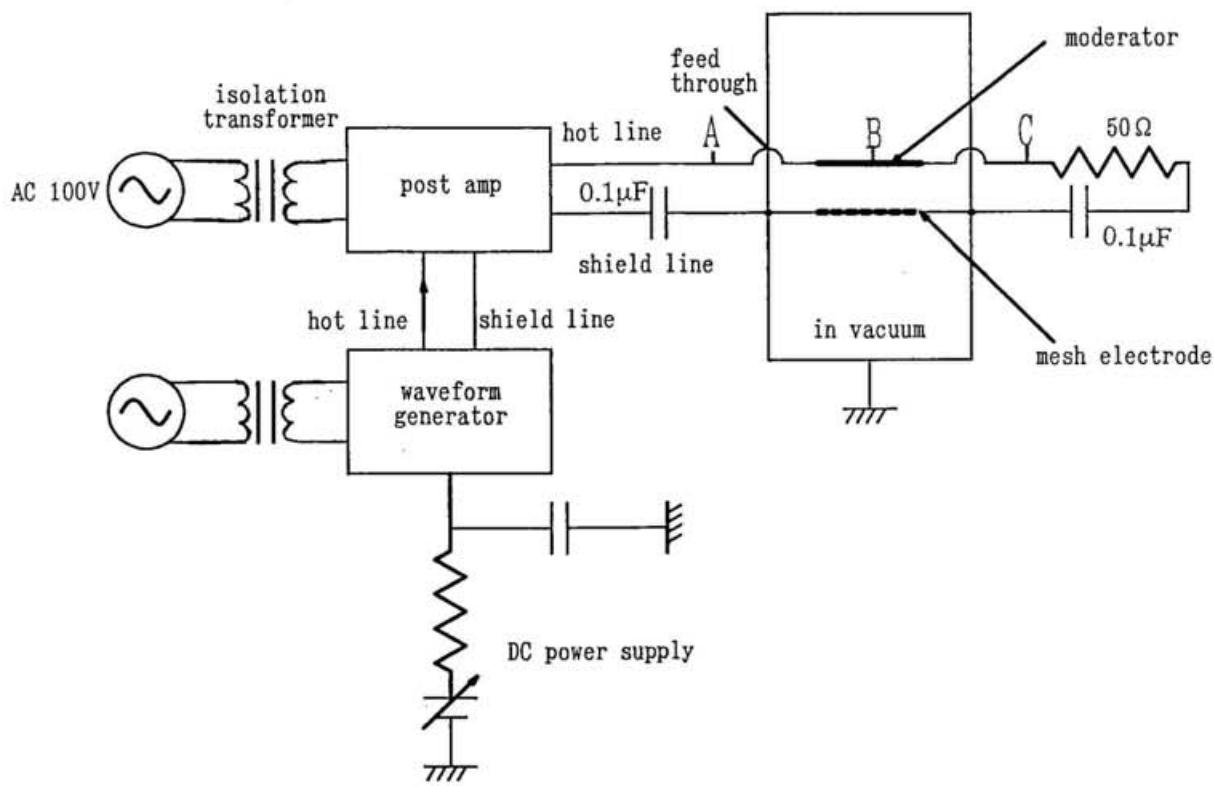


図 3.18: モデレーター波形形成のための回路図(2)。ポストアンプからの出力波形にオフセットバイアスを与えるために、任意波形発生器とポストアンプをグランドレベル(0 V)から浮かして使うように工夫されている。

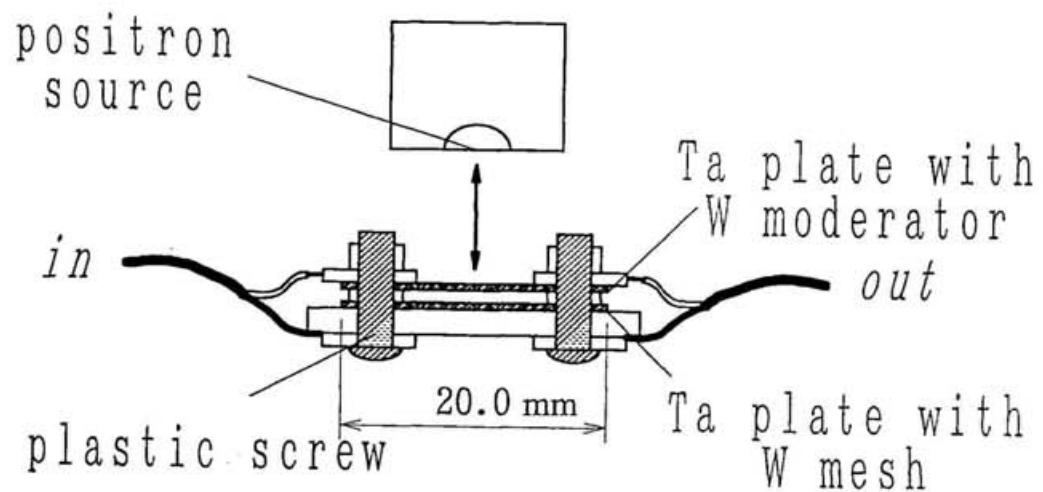


図 3.19: モデレーター部の詳細図。陽電子線源は、直線導入端子によりモデレーターの 1 mm 手前まで近づけられる。モデレーターは、グランドのメッシュ電極と 1 mm の間隔を隔て設置されている。

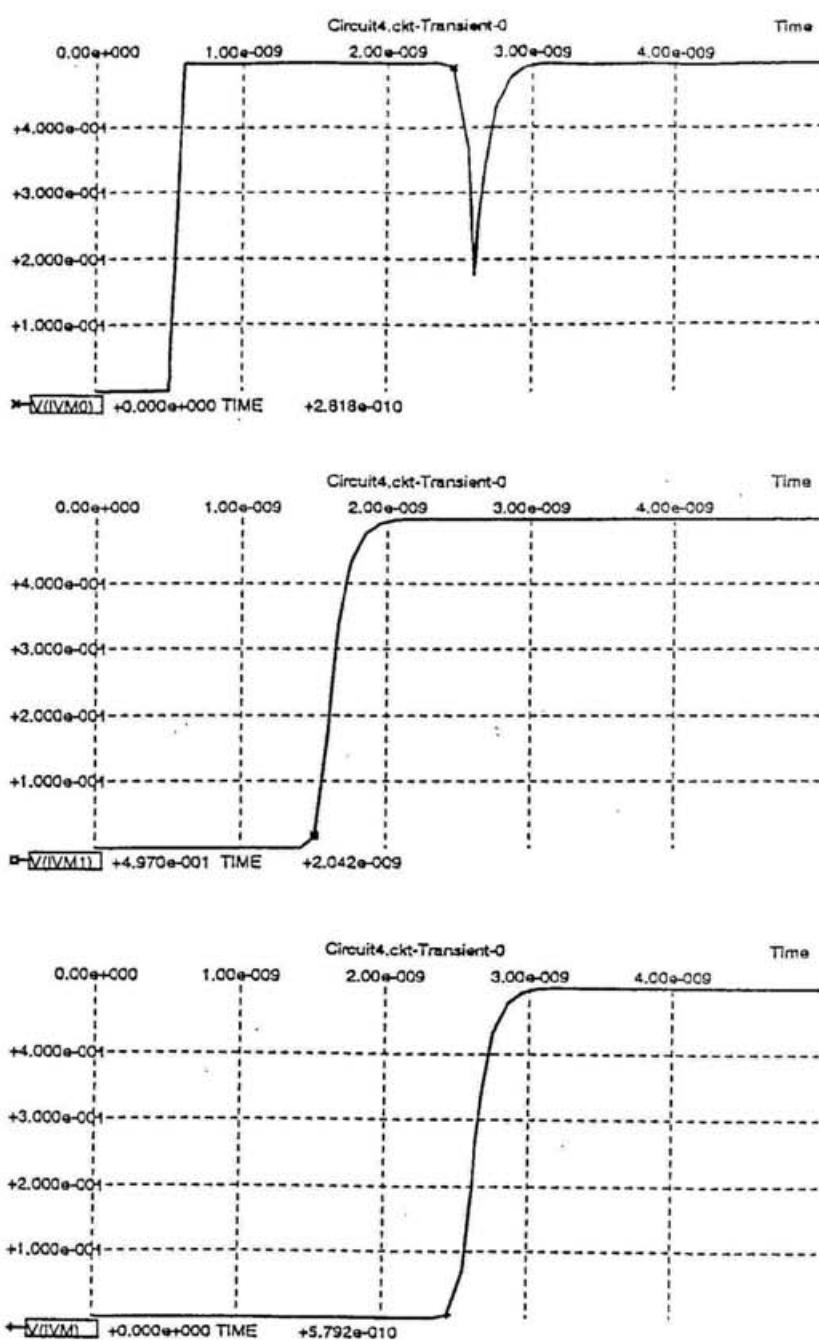


図 3.20: 回路シミュレーターによる伝送回路の評価(1)。ポストアンプから、立ち上がり ~ 100 ps、振幅 0.5 V の矩形波を出力した場合の、図 3.17 中の A,B,C の点における電圧の時間変化の B²SPICE 2.1 によるシミュレーション結果を、上から順に示す。シミュレーションでは、モデルレーター部分が 4 pF のコンデンサーと等価であり、配線の接続部での浮遊容量、インダクタンス、抵抗はないものとした。また、A から B, B から C, それぞれの波形の伝達時間を 1 ns に設定した。グラフの横軸は時間(1 ns/div), 縦軸は電圧(0.1 V/div)を表している。A 点で鋭い立ち上がり(100 ps)を見せた波形は、B,C 点では立ち上がり時間が ~ 500 ps(時定数 ~ 200 ps程度)に鈍ることが結論される。A 点でのシミュレーション波形には、矩形波の立ち上がった 2 ns 後に、4 pF のコンデンサー部からの V 字形の反射波を見ることができる。

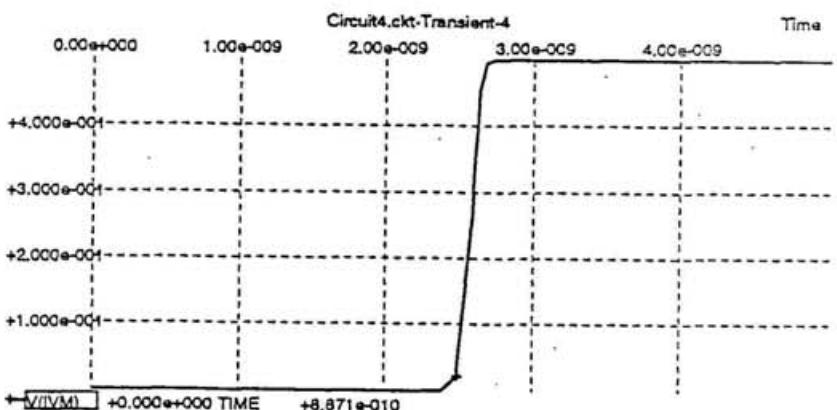
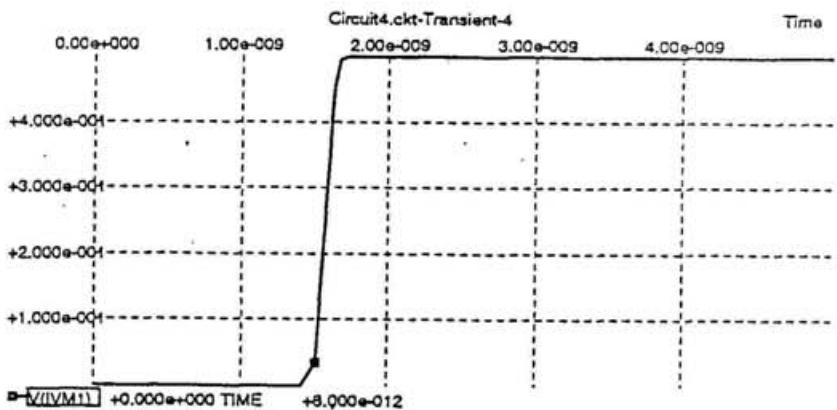
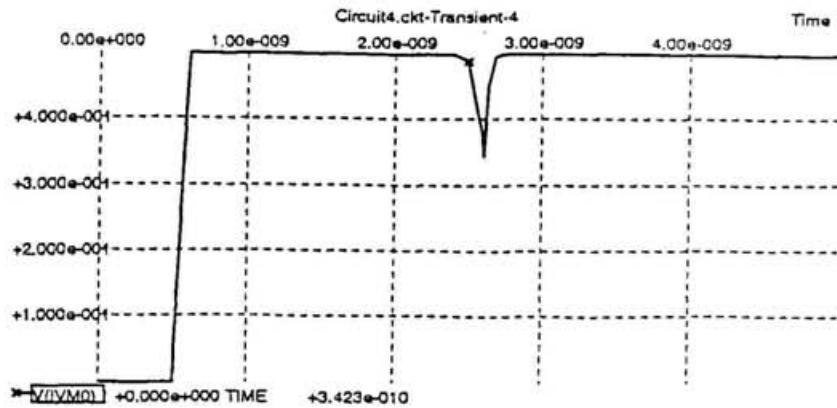


図 3.21: 回路シミュレーターによる伝送回路の評価(2)。図3.20の4 pFのコンデンサーを1 pFに置き換えた場合には、高周波に対しての抵抗が大きくなるために、V字型反射波の振幅も小さくなるのが分かる。

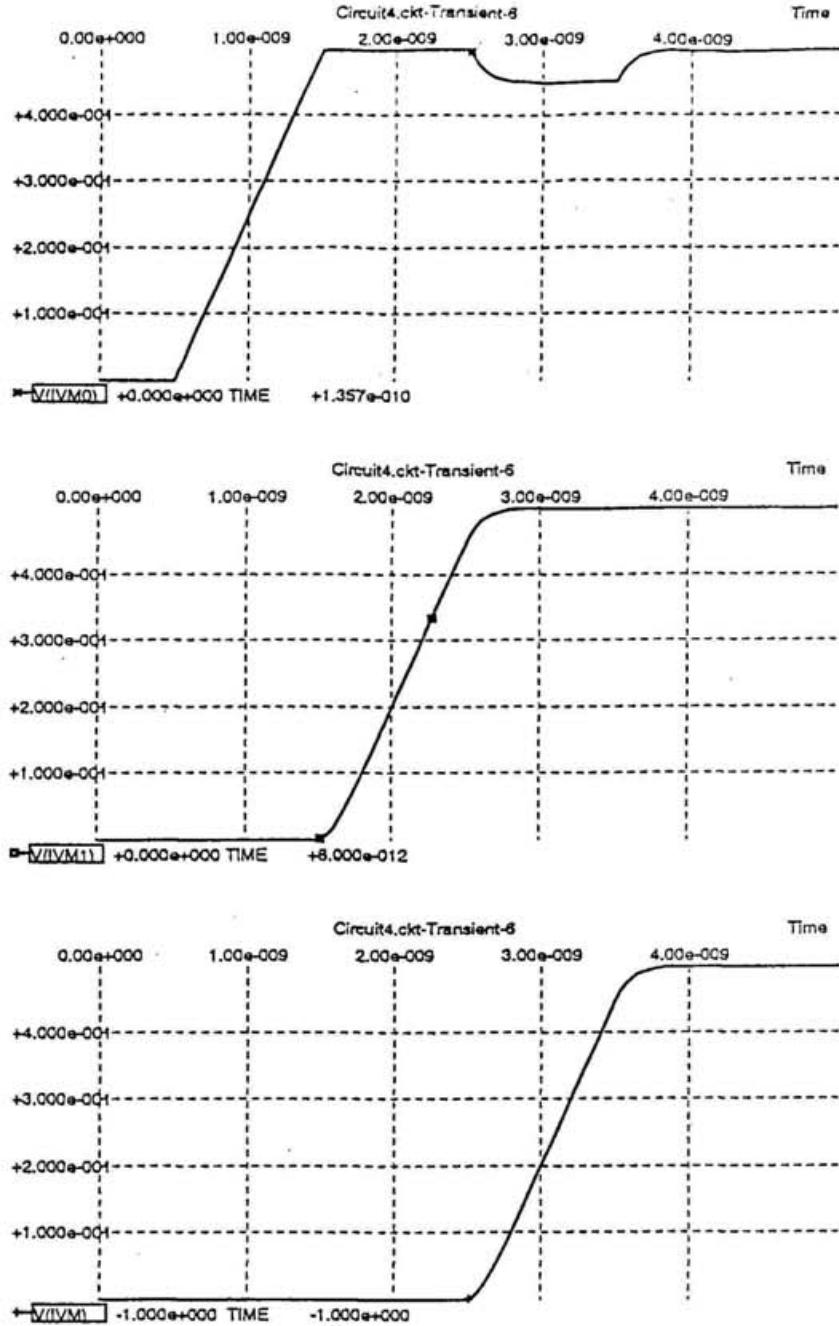


図 3.22: 回路シミュレーターによる伝送回路の評価(3)。ポストアンプからの矩形波の立ち上がりを 1 ns に設定した場合のシミュレーション結果。B, C 点での矩形波の立ち上がり時間は、A 点の立ち上がり時間と変わらないことが確認できる。モデレーター部が、4 pF のキャパシタンスを持っていても、実用的なレベル(1 ns よりも遅い立ち上がりの波形)では問題にならないことが分かる。

(moderator position)

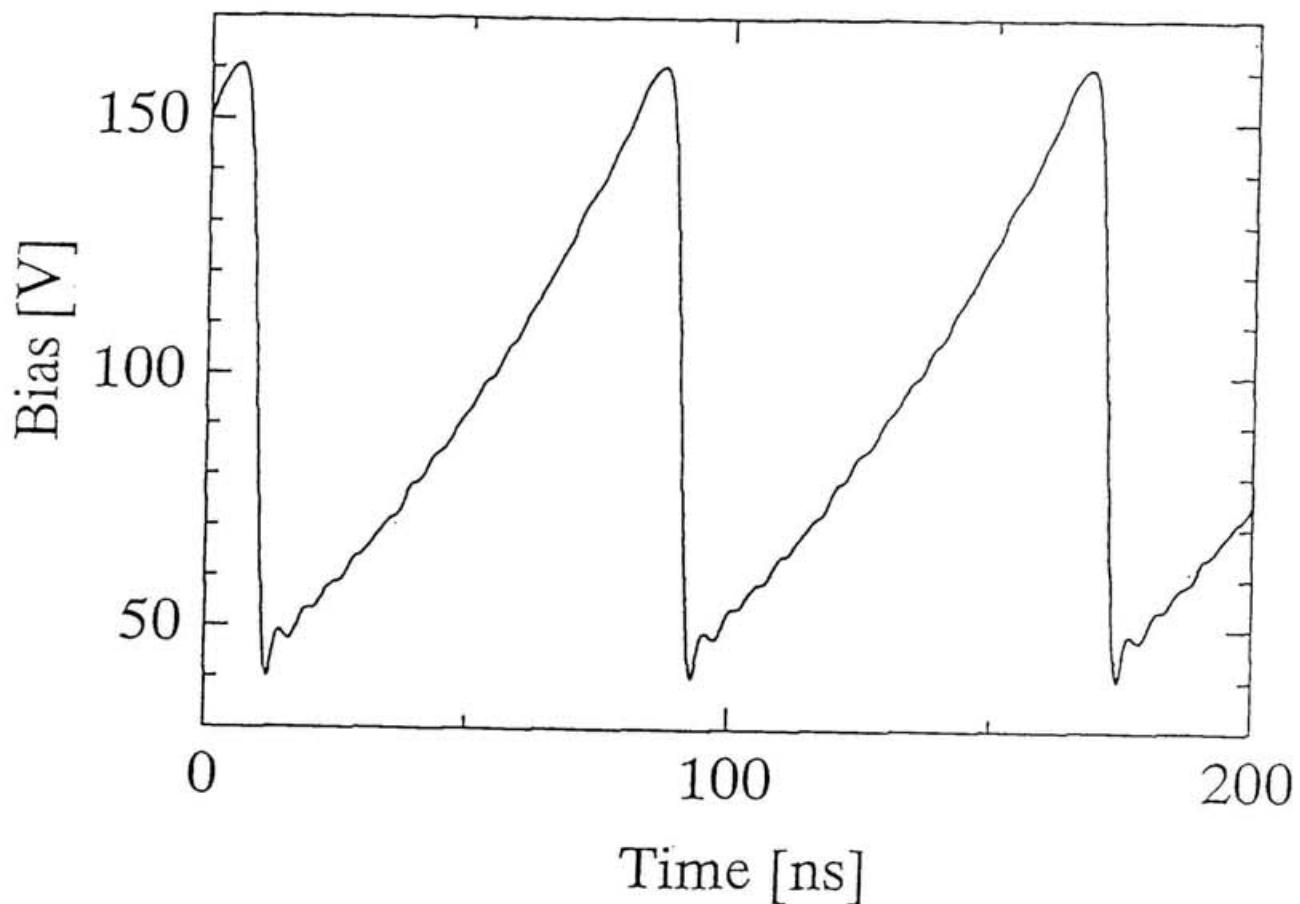


図 3.23: 観測場所による波形の違い(1)。図3.17のB地点（モデレーター部、真空容器内）に形成した波形。同時に A 点（モデレーター前）で観測された波形を図3.24に示す。波形は観測場所によって異なっていることが分かる。

(before moderator)

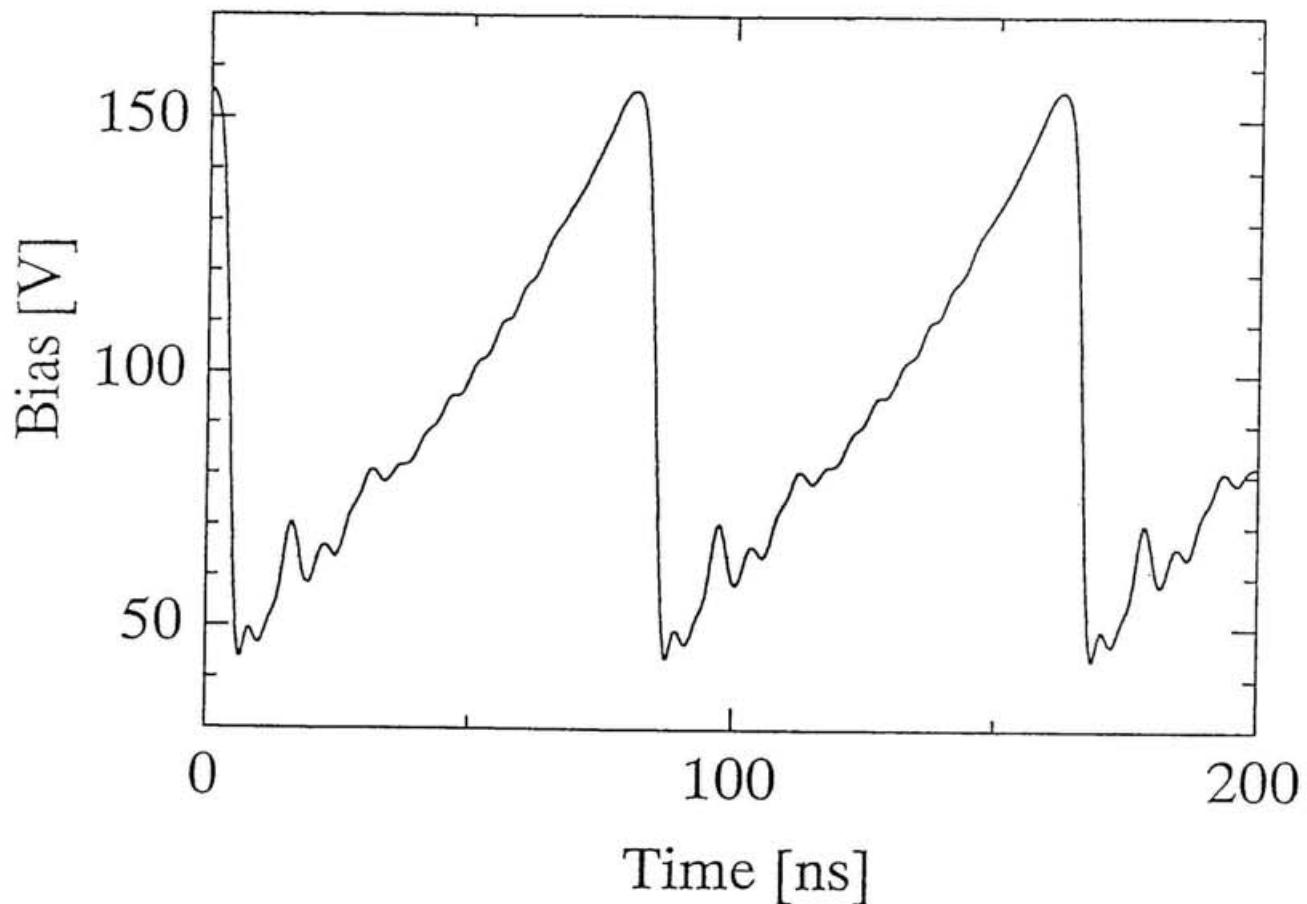


図 3.24: 観測場所による波形の違い(2)。図3.17の A 点に形成した波形。同時に B 地点（モダレーター一部）で観測された波形を図3.23に示す。波形は観測場所によって異なっていることが分かる。

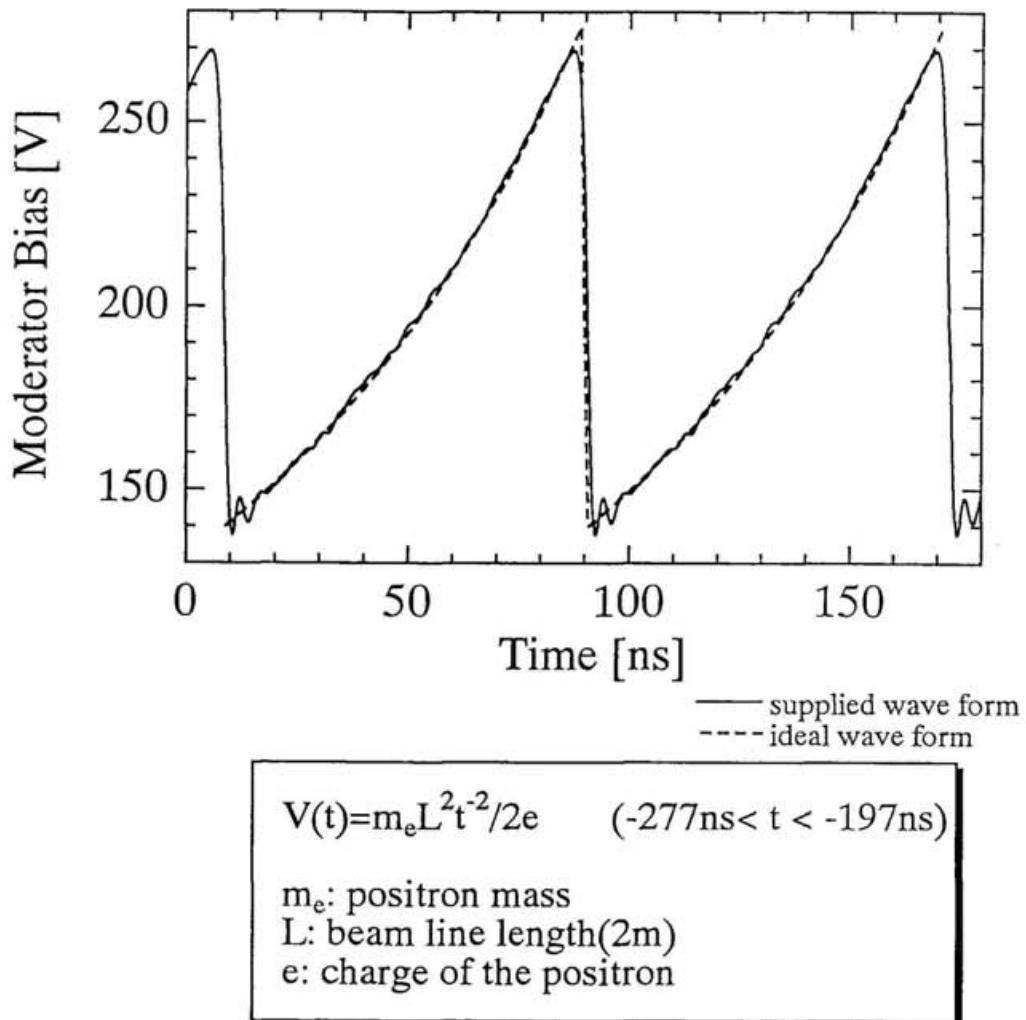


図 3.25: パルス化を行うために形成された波形。理想波形からのずれは、標準偏差で 0.8 V 程度である。

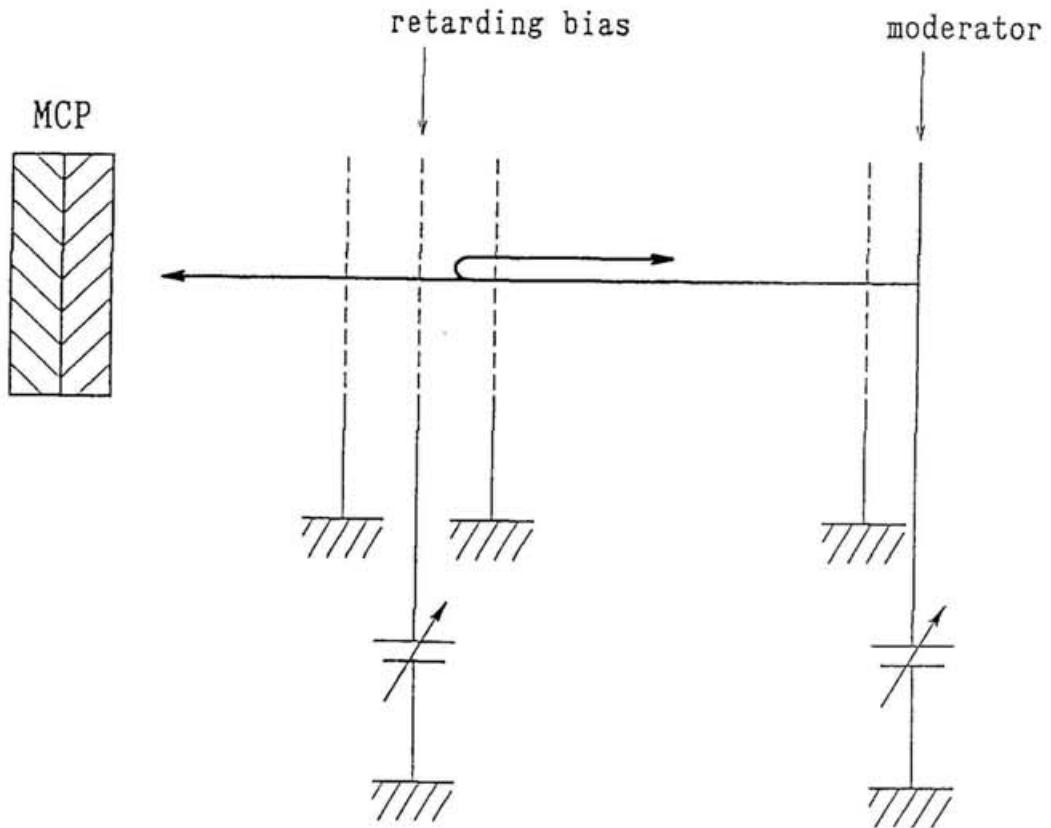


図 3.26: モデレーターからの低速陽電子のエネルギー分布測定法。リターディンググリッドを用いて、低速陽電子ビームのグリッド透過率を測定する。

Slow Positron Energy Distribution

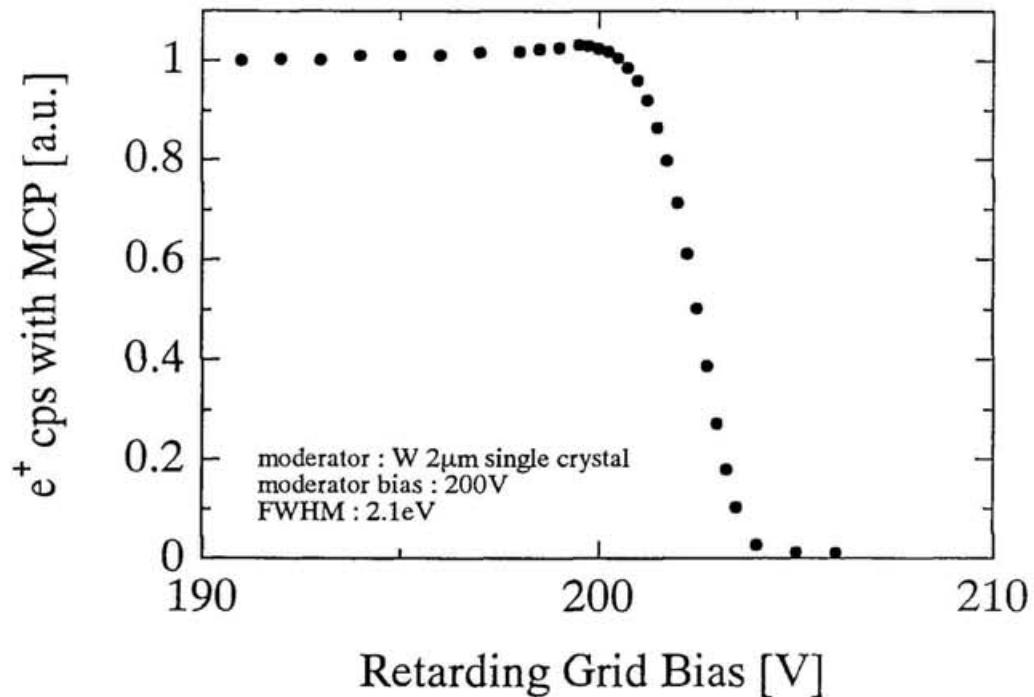


図 3.27: リターディンググリッドを用いて測定された、低速陽電子エネルギーの積分分布。陽電子の検出には、MCP を用いた。

Slow Positron Energy Distribution

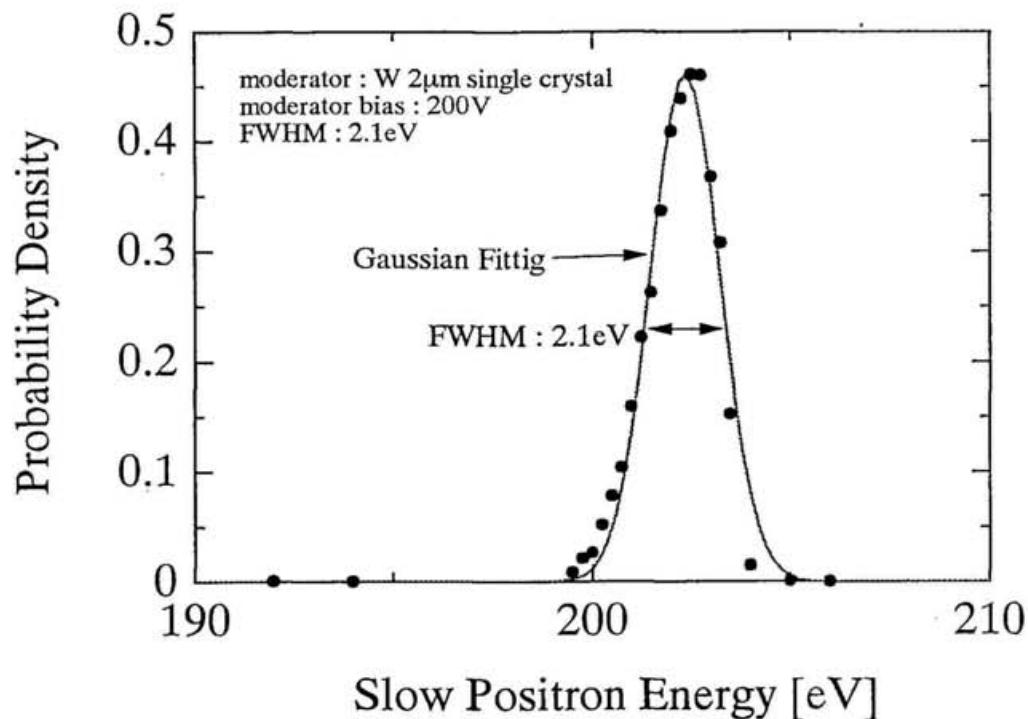


図 3.28: 低速陽電子のエネルギー分布。3.27の低速陽電子エネルギー積分分布を微分したもの。モデレーターから放出された低速陽電子のエネルギー分布は、2.1 eV の半値幅を持つことが分かる。

4

パルス化装置の特性

4.1 パルス化低速陽電子ビームの効率とスペクトル

パルス化された低速陽電子のターゲット部に到着するタイムプロファイルを図4.1に示す。パルス化は図3.25のバルシングバイアスを用いて行われ、陽電子の検出には、Micro Channel Plate (MCP, HAMAMATSU, F4655-12) を用いた。図4.1は、ピークとバックグラウンドの比が~700:1であることを示している。ピークのネットカウントからパルス化効率は 97 % 以上であることが確認された。

パルス化低速陽電子ビームを、10.2 keV で Al と PTFE に打ち込み、得られた消滅 γ 線スペクトルを図4.2に示す。消滅 γ 線の検出にはプラスチック・シンチレーション検出器 (Pilot-U) を用いた。Al 中の陽電子寿命は数 100 ps 以下であるが、PTFE 中では約 4 ns 程度の成分が存在するためにスペクトルの形に顕著な違いをみることができる。シンチレーション検出器を用いた測定では、ピークとバックグラウンドの比が~370:1となり、MCP による測定~700:1 (図4.1) と異なった。主な理由は、シンチレーション検出器を用いた測定では、バックグラウンド放射線が全カウント数の 2%程度の割合で計測されたからである。

4.2 装置の時間分解能

図4.2のPTFE材料中における陽電子寿命スペクトルを、PATFIT プログラムにより解析した。解析結果から、本装置の時間分解能 Γ_{system} は 1.8 ns と決定された。なお、解析を行う際に時間分解能関数をガウス分布 1 成分と仮定した (時間分解能関数と時間分解能の定義に関しては本論文の 2.1.1 節を参照)。

理論的に推測される時間分解能と実験で得られた時間分解能 (1.8 ns) の比較を行う。開発した装置の時間分解能 Γ_{system} は、陽電子バンチの時間分解能 Γ_{bunch} とシンチレーション検出器の時間分解能 $\Gamma_{detector}$ により、式4.1で与えられる。

$$\Gamma_{system} \simeq \sqrt{\Gamma_{bunch}^2 + \Gamma_{detector}^2} \quad (4.1)$$

$\Gamma_{bunch}, \Gamma_{detector}$ それぞれの値を次のようにして見積もった。

4.2.1 シンチレーション検出器系の時間分解能 $\Gamma_{detector}$ の見積もり

^{22}Na からの直接の陽電子を利用する陽電子寿命測定（シンチレーション検出器2個を使う）では時間分解能が $\sim 250\text{ ps}$ 程度を実現できる。従って、シンチレーション検出器1個の系の時間分解能 $\Gamma_{detector}$ は

$$\Gamma_{detector} \simeq \sqrt{\frac{250^2}{2}} \simeq 180\text{ ps} \quad (4.2)$$

の程度である。

4.2.2 陽電子バンチの時間分解能 Γ_{bunch} の見積もり

Γ_{bunch} は以下の2つの原因から形成されている。

1. パルス化後の陽電子がエネルギーの誤差分布を持つことが原因となって生じる陽電子バンチの時間分解能 $\Gamma_{\Delta T}$ 。
2. ベンディングソレノイドが原因となって現れる陽電子バンチの時間分解能 $\Gamma_{solenoid}$ 。

ここで

$$\Gamma_{bunch} \simeq \sqrt{\Gamma_{\Delta T}^2 + \Gamma_{solenoid}^2} \quad (4.3)$$

が成り立つと考える。 $\Gamma_{\Delta T}$ と $\Gamma_{solenoid}$ をそれぞれ以下のように見積もった。

1. $\Gamma_{\Delta T}$

$\Gamma_{\Delta T}$ は3.2節で述べた陽電子バンチの到達時間幅(標準偏差 $\sigma_{\Delta T}$)を半値幅で表現したものである。陽電子バンチのターゲット到着プロファイルは、陽電子のエネルギーの誤差分布がガウス分布であるならば、式3.11からほぼガウス分布に近い分布になることが分かる。本論文では、陽電子の持つエネルギーの誤差分布は、ガウス分布に従うと仮定しているので、陽電子バンチのターゲット到着プロファイルは、ガウス分布に従うと仮定する。したがって、 $\Gamma_{\Delta T}$ を $\sigma_{\Delta T}$ の $2\sqrt{2\ln 2}$ (~ 2.35)倍として話を進める。

実験と同じ条件 $V(t)(-279 \sim -199\text{ ns})$ でパルス化された場合の $\sigma_{\Delta T}$ とエネルギーの誤差分布の半値幅 $\Gamma_{\Delta E}$ の関係は図3.6に示した。モデレーターから放出された時点で持つ陽電子のエネルギー分布は、実験結果から半値幅で $\sim 2.1\text{ eV}$ と確認され、形成したバイアスは標準偏差 $\sim 1.9\text{ V}$ で形成されている。従って、パルス化された陽電子が持つエネルギーの誤差分布の半値幅 $\Gamma_{\Delta E}$ は

$$\Gamma_{\Delta E} \simeq \sqrt{2.1^2 + (2.35 \times 0.8)^2} = 2.8\text{ eV} \quad (4.4)$$

の程度と考えられる。図3.6から $\Gamma_{\Delta E}$ が 2.8 eV のときには、 $\sigma_{\Delta T}$ は $\sim 0.7\text{ ns}$ であるから、 $\Gamma_{\Delta T}$ は $\sigma_{\Delta T} \times \sim 2.35 \simeq 1.65\text{ ns}$ 程度である。

2. $\Gamma_{solenoid}$

$\Gamma_{solenoid}$ は、湾曲ソレノイド中でアウトコースを飛行するか、インコースを飛行するかでモデレーターからターゲットまでの距離が異なるためにターゲット到達時刻に差があらわれる効果であり、以下のようにして見積もった。

ビームの断面を半径 r の円と考え、ビームの曲げられる方向に対し水平な軸を x 軸、垂直な軸を y 軸と座標を定義する（図4.3参照）。ビーム断面の中心 (y 軸, $x=0$) から x だけ離れた場所を飛行する陽電子は、 y 軸上 ($x=0$) を飛行する陽電子に比べて飛行距離は $\Delta L(x)$ だけ長くなる。ここで $\Delta L(x)$ は、湾曲ソレノイドの曲げ角度 θ を用いて次のように与えられる。

$$\Delta L(x) = x\theta \quad (4.5)$$

$\Delta L(x)$ という経路差は、モデレーターから速度 v で発射された陽電子がターゲットに到達するまでの飛行時間の変位 $\Delta T(x)$ を生じさせる。ここで、

$$\Delta T(x) = \frac{\Delta L(x)}{v} = \frac{x\theta}{v} \quad (4.6)$$

である。陽電子が円形 (半径 r) のビーム断面に対して一様に存在していると仮定すると、 x から $x + dx$ の間に陽電子が存在する割合 $P(x)dx$ は

$$P(x)dx = \frac{2|y(x)|dx}{\pi r^2} \quad (4.7)$$

$$y(x) = \sqrt{r^2 - x^2} \quad (4.8)$$

となる。時間のずれ $\Delta T(x)$ の分散 δT^2 は次式で計算できる。

$$\delta T^2 = 2 \int_0^r \Delta T(x)^2 P(x)dx = \frac{2\theta^2}{\pi r^2 v^2} \int_0^r \sqrt{r^2 - x^2} x^2 dx = \left(\frac{r\theta}{\sqrt{2}v} \right)^2 \quad (4.9)$$

使用したソレノイドは $\theta=\pi/6$ であり、ビーム径は、 $r=3\sim4$ mm 程度である。陽電子バンチの速度はパルス化のために幅を持っているが、速度 8.4×10^8 cm/s (~ 200 eV) を代表させて考えると、 δT は ~ 154 ps と推測される。 $\Gamma_{solenoid}$ は、半値幅であるから 2.35 倍して ~ 360 ps と考えられる。したがって、 Γ_{bunch} は

$$\Gamma_{bunch} = \sqrt{\Gamma_{\Delta T}^2 + \Gamma_{solenoid}^2} \simeq \sqrt{1.65^2 + 0.36^2} \simeq 1.69 \text{ ns} \quad (4.10)$$

程度である。

4.2.3 時間分解能の理論値と実験値との比較

式4.1に $\Gamma_{detector} \simeq 0.18$ ns, $\Gamma_{bunch} \simeq 1.69$ ns を代入すると、最終的に得られるシステムの時間分解能 Γ_{system} は $\simeq 1.7$ ns となる。実験で得られた時間分解能は 1.8 ns であるから、理論的に見積もられた値 (~ 1.7 ns) に近い値である。時間分解能の理論値と実験値の比較がほぼ一致したことから、以下のことが結論できる。

1. 回路図(図3.18)のC点で観測した波形は、ほぼ正しくモデレーター部に与えられている。
2. 実験を行った条件では、時間分解能の支配的な要因は $\Gamma_{\Delta T}$ である。パルス化された陽電子がエネルギーの誤差 $\Gamma_{\Delta E} \sim 2.8$ eVを持つていることが、時間分解能を広くしている。この $\Gamma_{\Delta E} \sim 2.8$ eVは、パルシングバイアスが理想的に形成されていないために生じるエネルギーの誤差分布 ~ 1.9 eVとモデレーターから放出した際に低速陽電子が持つエネルギーの誤差 ~ 2.1 eVからなる。

4.3 寿命測定時におけるサテライトピークの問題

低速陽電子を試料に加速して入射(0.2~20 keV)するために、試料の手前に静電場を形成した(図4.4のE-fieldと書かれているところ)。陽電子は試料に打ち込まれると、そのうち何割かの陽電子は後方に散乱された後に、再び静電場により試料方向に加速され、再入射する(図4.4)。後方散乱した陽電子は、陽電子バンチがターゲットに入射した時刻よりも遅れて試料に入射するため、陽電子寿命スペクトルの中に遅延した小ピーク(サテライトピーク)が現れる。一例として、図4.4の(a)のようなセットアップで、パルス化ビームを1.2 keVでPTFE試料に入射した場合に得られた寿命スペクトルを図4.5に示す。

サテライトピークは、陽電子寿命スペクトルを歪め、正確なスペクトル解析を妨げる。陽電子後方散乱の影響を少なくするために、図4.4の(b)のように加速部を改良した。静電場の形成場所を試料に近づけることにより、反射した陽電子を1 ns以下の短時間内に試料に再入射させる。この方法は、陽電子寿命スペクトルの短寿命成分のカウント数が多い領域にサテライトピークを移すため、長寿命成分の解析が可能となる(図4.5参照)。

図4.4(a)のターゲットホルダーで測定されたPTFEの寿命スペクトル(陽電子エネルギーが0.6 keVと1.2 keVのもの)を図4.6に示す。プロンプトピークとサテライトピークの時間差から、散乱陽電子の平均エネルギー(磁場軸方向に沿った成分)が計算でき、1.2 keV入射時には120 eV程度、0.6 keV入射時には90 eV程度で後方散乱していることが分かる。なお、陽電子の後方散乱は、以下の二つの現象により生じている。

1. ターゲット表面での弾性散乱による反射。
2. ターゲット中の多重散乱の結果、真空中への再放出。

陽電子の後方散乱の研究報告例は、文献[69]に見ることができる。そこでは、AlとAuターゲットに35 keVの陽電子を60度傾いた方向から入射させ、真空側に反射する陽電子の散乱角とエネルギーの依存性を測定した。実験結果は、陽電子が最も高い確率で散乱した角度が入射角と等しく(鏡面反射)、エネルギーの損失が少ないことを示している。したがって、彼らの実験結果は、陽電子の散乱は弾性的な現象が支配的といえる。

図4.6から見積もった陽電子の反射エネルギーが、入射エネルギーの~1/10であることを考えると、PTFE材料で起きた散乱現象は、文献[69]で示された現象とは異なっていると思われる。それは、高分子材料(PTFE)の表面が金属の表面とはことなり、多くの起伏を持っていることが1つの原因と考えられる。また、陽電子の入射エネルギーが大きくなる

ほど、サテライトピークの強度が小さくなる傾向があり、これは打ち込まれた陽電子の多くが、表面付近で多重散乱をした後に真空中に再放出することを示唆する。今回の測定結果は、弾性散乱より多重散乱による後方散乱の効果が支配的だということを示している。

The injection time profile of pulsed positrons at a target

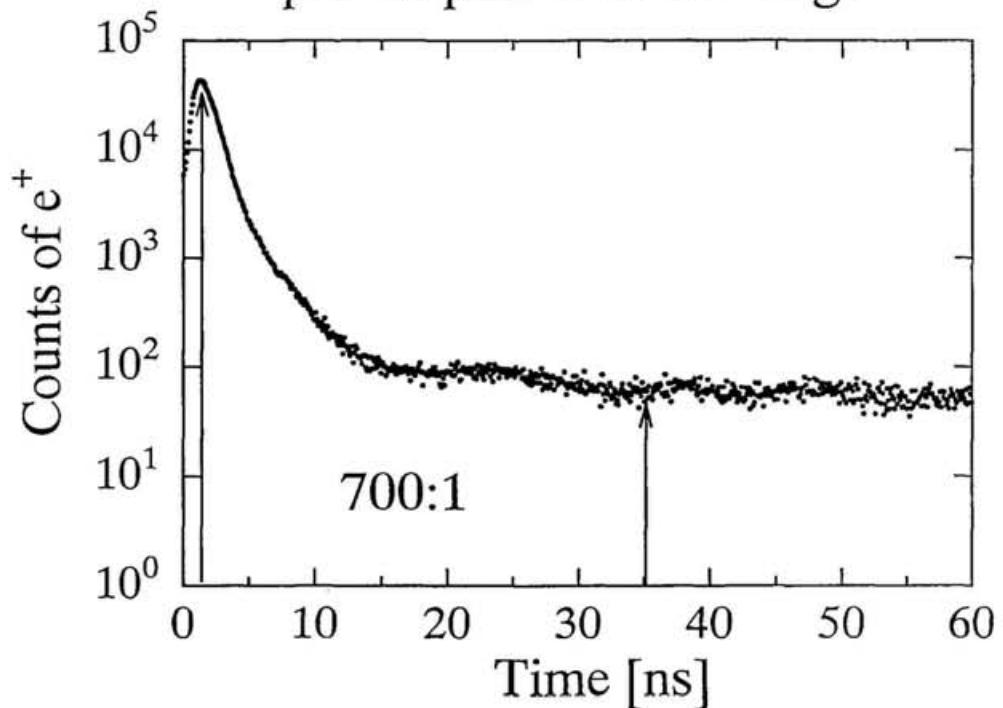


図 4.1: パルス化された低速陽電子のターゲット部におけるタイムプロファイル(MCPによる観測)。ピークとバックグラウンドの比は、700:1で、~97%の陽電子がパルス化されていることが分かる。

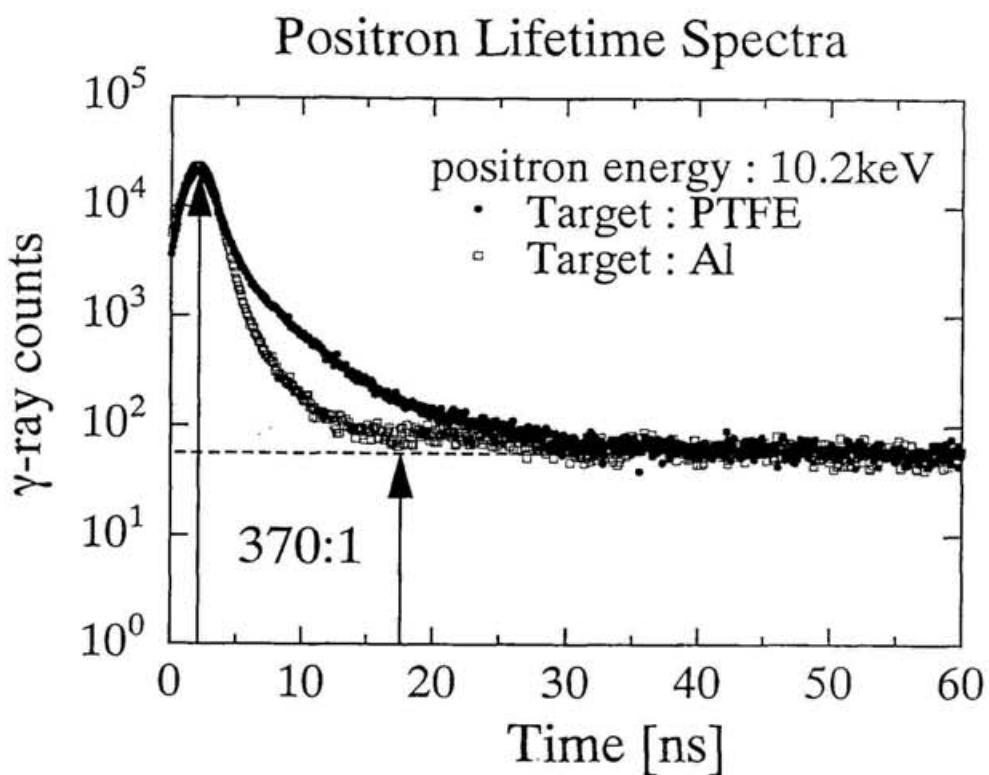


図 4.2: パルス化低速陽電子ビームを用いて測定された陽電子寿命スペクトル (Al と PTFE)。消滅 γ 線をシンチレーション検出器により検出し取得したスペクトルである。PTFE のスペクトルは、Al のものと比較して、長い寿命成分を持つことが分かる。PTFE 試料中の陽電子寿命スペクトルを PATFIT プログラムによって解析した結果、時間分解能が 1.8 ns であることが分かった。

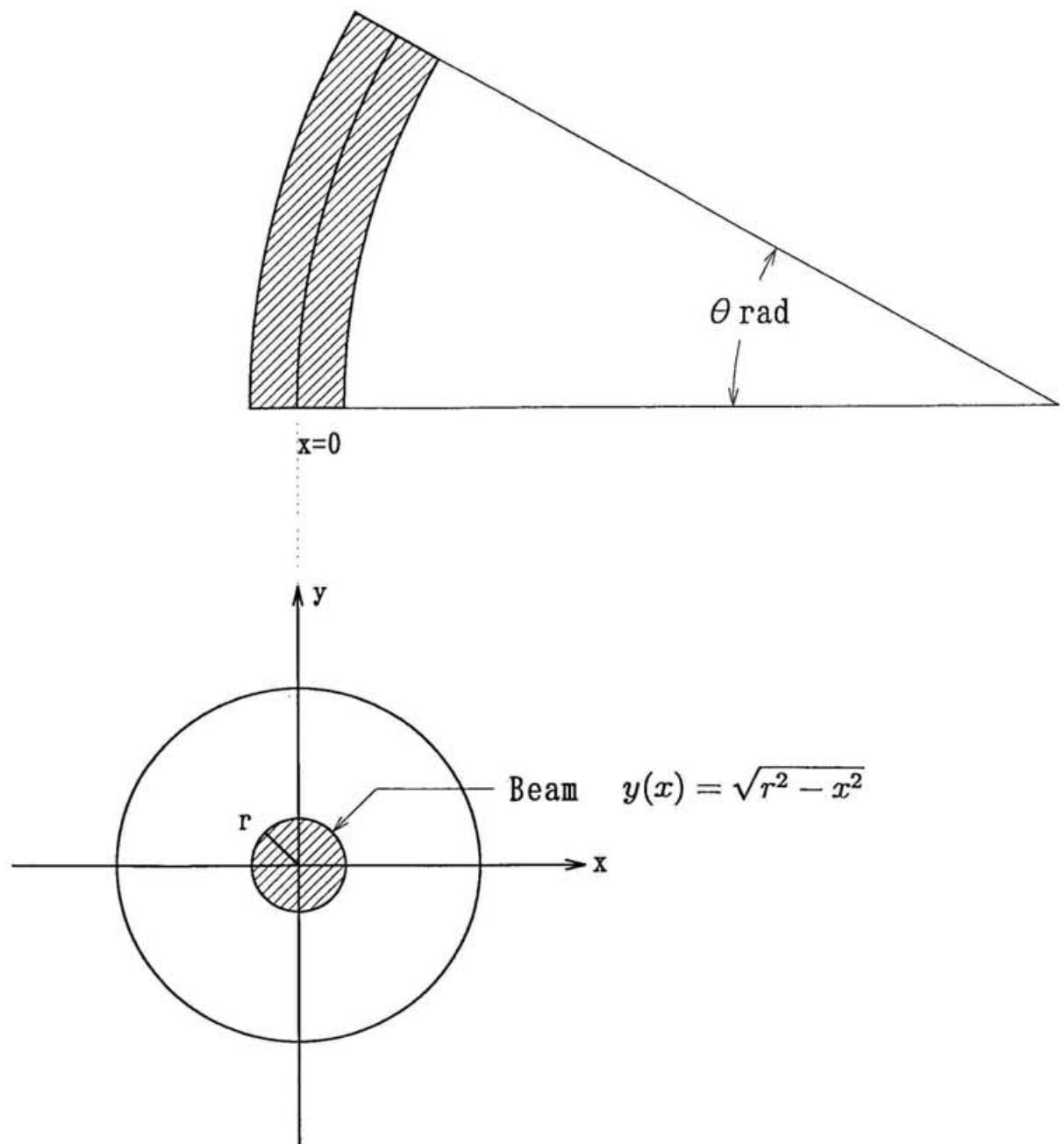


図 4.3: 湾曲ソレノイドの時間分解能への影響。湾曲ソレノイド中でアウトコースを飛行するか、インコースを飛行するかでモデレーターからターゲットまでの距離が異なるために、低速陽電子の飛行時間に差があらわれ、時間分解能 $\Gamma_{solenoid}$ を生じる。

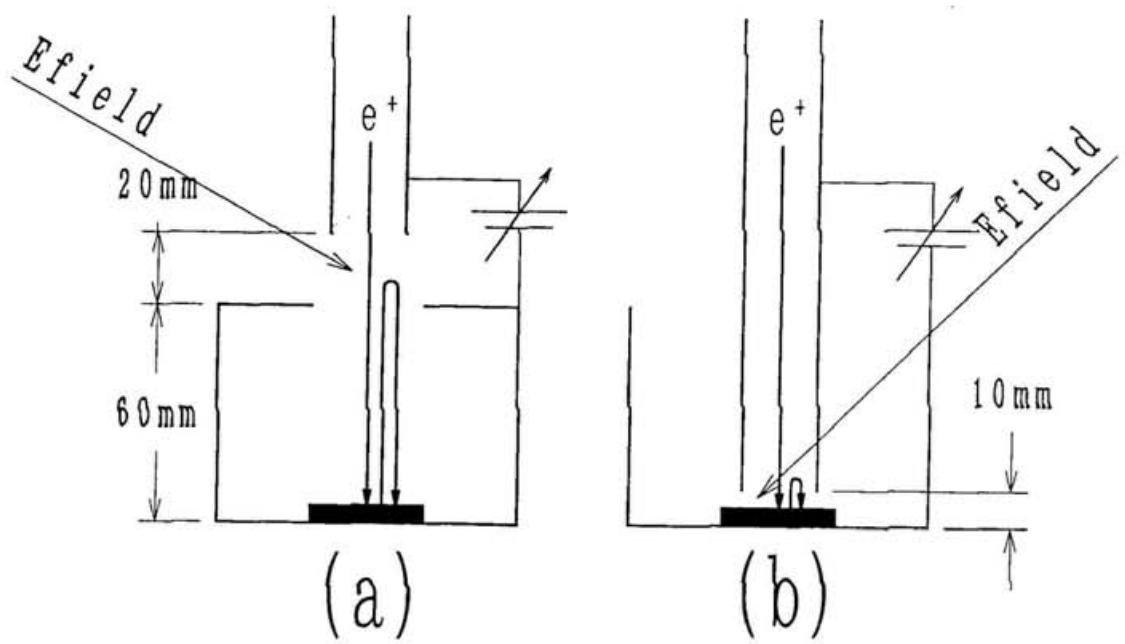


図 4.4: サンプルホルダー。陽電子を任意のエネルギーに加速して試料に入射するために、
ケース (a) では、試料の~60 mm 前方に静電場を形成し、ケース (b) では、試料直前~10 mm
以内に静電場を形成する。

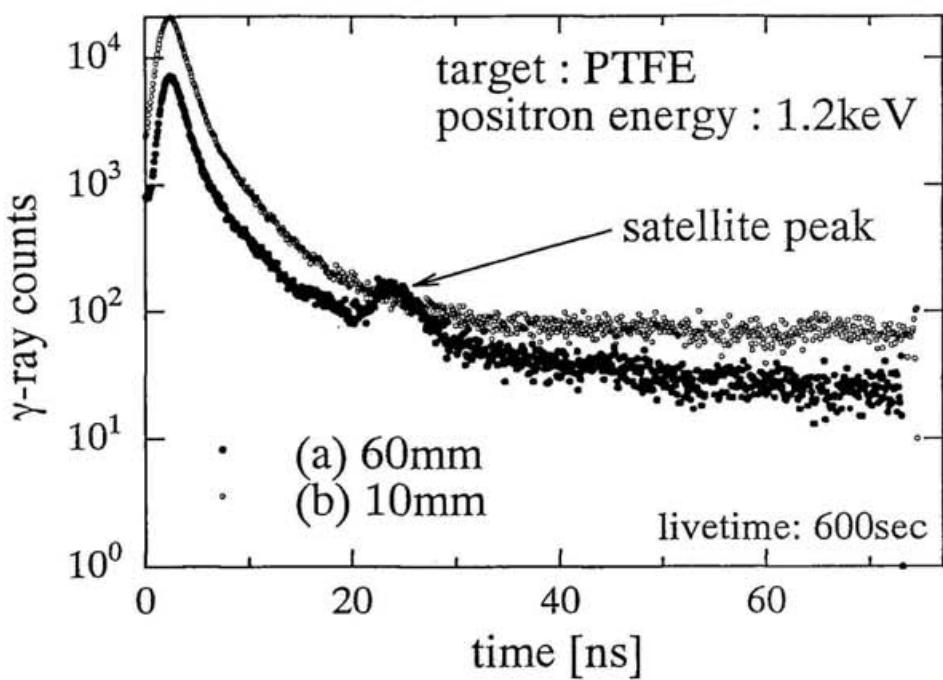


図 4.5: サンプルホルダーによる寿命スペクトルの変化。図4.4の(a)のようなセットアップで、パルス化ビームを 1.2 keV で PTFE 試料に入射した場合に得られた寿命スペクトルは、サテライトピークが確認できる。図4.4の(b)のように加速部を改良した場合、反射した陽電子を 1 ns 以下の短時間内に試料に再入射させることができ、陽電子寿命スペクトルの長寿命成分の解析が可能となる。

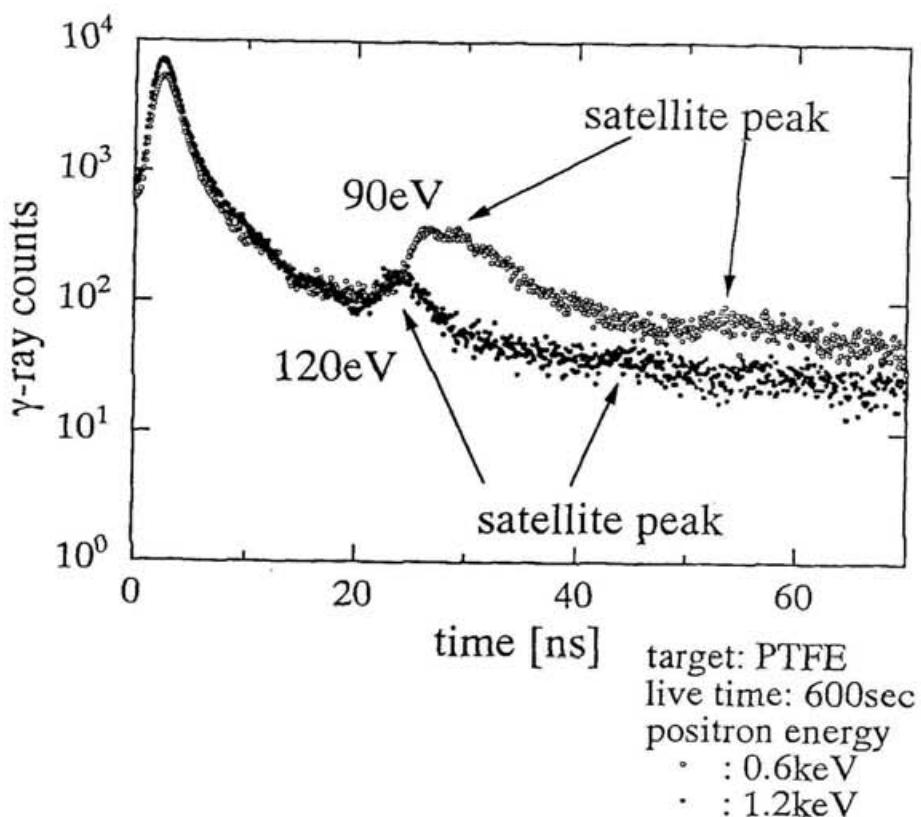


図 4.6: サテライトピーク。図 4.4(a) のターゲットホルダーで測定された PTFE の寿命スペクトル ($E=0.6$ keV と 1.2 keV) を示す。プロンプトピークとサテライトピークの時間差から、散乱陽電子の平均エネルギー（磁場軸方向に沿った成分）が計算でき、 1.2 keV 入射時には 120 eV 程度、 0.6 keV 入射時には 90 eV 程度で後方散乱していることが分かる。

5

パルス化低速陽電子ビームの応用

ポリテトラフルオロエチレン (polytetrafluoroethylene, PTFE) 1 mm 厚試料と、鉄 50 nm を蒸着した PTFE 試料の表面付近の解析に、本研究で開発したパルス化低速陽電子ビームを使用した。現在、装置の時間分解能は、1.8 ns(FWHM) を持つており、~2 ns より短い寿命を解析するのは困難なため、PTFE 中の~4 ns の寿命のみを評価する。

本章ではパルス化低速陽電子を用いて得られる陽電子寿命測定法と、消滅 γ 線のドップラー測定法の結果について議論し、寿命測定法から得られる情報がドップラー測定法から得られるものよりも有用であることを示す。また、寿命測定法の測定結果から、パルス化低速陽電子ビームが陽電子や Ps の拡散距離を求めるプローブとなりえることを実証する。

5.1 ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 中の陽電子寿命測定

5.1.1 従来の陽電子寿命測定法による PTFE 材料の解析

PTFE は、炭素鎖にフッ素がついた高分子であり、化学構造式は $-(CF_2CF_2)_n-$ と表し、一般にテフロンと呼ばれている。PTFE を形成している結合は、主鎖を構成する炭素-炭素結合と、炭素-フッ素結合の 2 種類である。この材料は、化学薬品に対して耐薬品性がきわめて強く、電気的性質も優れ、高温(融点 ~370 度)にも安定であるため、応用範囲が広くプラスチック工業において特別な位置を占めている [70] ~ [72]。

用意した 1mm 厚の PTFE 試料(ニチメン製)の結晶化度は、X 線回折パターンから約 70% と求められた。 ^{22}Na から放出される白色陽電子を用いる陽電子の寿命測定で測定された PTFE 中の陽電子寿命スペクトルを図 2.2 に示す。高分子中の陽電子寿命スペクトルは、3 成分の寿命成分に解析されるのが一般的であるが [73][74]、PTFE 中の陽電子寿命スペクトルは、4 成分 [75] ~ [77] の寿命成分が引き出される。今回得られた PTFE 中の陽電子寿命スペクトルの PATFIT による解析も、3 成分解析よりも 4 成分解析の方がより χ^2 の小さい値を与え、実験スペクトルに近いフィッティング結果を得ることができた。したがって、測定した試料の物性評価は 4 成分解析結果を用いて行う。

4 成分の解析結果を表 5.1 に示す。表 5.1 に示した 0.09 と 0.29 ns の 2 つの短い寿命成分

表 5.1: 白色陽電子を用いて測定された PTFE 中陽電子寿命スペクトルの解析結果。()内は誤差を示す。0.09 と 0.29 ns の 2 つの短い寿命成分は、それぞれ p-Ps 消滅と陽電子の自由消滅と解釈される。残りの 2 成分 0.84 と 3.97 ns はそれぞれ o-Ps の PTFE 結晶中と非晶質中での消滅に帰因する。

成分	1	2	3	4
寿命 (ns)	0.09(0.01)	0.29(0.01)	0.84(0.02)	3.97(0.03)
強度 (%)	12.8(0.9)	53.9(0.6)	17.7(0.7)	15.6(0.1)

表 5.2: 低速陽電子 ($E=10.2 \text{ keV}$) を用いて測定された PTFE 中陽電子寿命スペクトルの解析結果。()内は誤差を示す。PATFIT による陽電子寿命スペクトルの解析の際、22.3 ns の寿命値を定数としてあつかった。この 22.3 ns の寿命は、パンチ内に圧縮されない陽電子が作る擬似的な寿命である。最も短い寿命成分 0.88 ns は、時間分解能 1.8 ns のために表 5.1 中の短い寿命の 3 成分が合体したものだと解釈できる。長寿命成分 4.00(0.04) ns は、一般的手法で得られた最も長い成分の寿命 3.97(0.03) ns と一致した。

成分	1	2	3
寿命 (ns)	0.88(0.01)	4.00(0.04)	22.3(FIX)
強度 (%)	67.8(0.4)	29.9(0.3)	2.3(0.2)

は、それぞれ p-Ps 消滅と陽電子の自由消滅と解釈される (2.1節参照)。また、残りの 2 成分 0.84 と 3.97 ns はそれぞれ o-Ps の PTFE 結晶中と非晶質中での pick-off 消滅に帰因する [76][77]。

5.1.2 パルス化低速陽電子による寿命スペクトルの解析方法

入射エネルギー $E=10.2 \text{ keV}$ のパルス化低速陽電子ビームを用いて測定された PTFE 中の陽電子寿命スペクトルを図 5.1 に示す。このスペクトルは 3 成分で解析され、0.88, 4.00, 22.3 ns の寿命が得られた (表 5.2)。PATFIT による陽電子寿命解析の際、22.3 ns の寿命値を定数としてあつかった。この 22.3 ns の寿命は、Al の陽電子寿命スペクトルの 解析結果から引き出された値であり、パンチ内に圧縮されない陽電子が作る擬似的な寿命である。このことは、~ 20 ns の寿命成分の強度が、Al と PTFE 両方から入射エネルギーに関係なく、2~3% の強度で引き出され、圧縮されない陽電子の強度とほぼ一致したことからも説明できる。最も短い寿命成分 0.88 ns は、時間分解能 1.8 ns のために表 5.1 中の短い寿命の 3 成分が合体したものであると解釈できる。長寿命成分 4.00(0.04) ns は、一般的手法で得られた最も長い成分の寿命 3.97(0.03) ns と一致した。

5.1.3 パルス化低速陽電子による寿命スペクトルの解析結果

パルス化低速陽電子の入射エネルギーに対する長寿命成分 (~ 4 ns) の寿命とその強度の変化を図5.2に示す。 $E=0.2$ keV で測定された寿命スペクトルは、PATFITによるフィッティング結果が悪かったため、 $E=0.2$ keVの解析結果を図5.2から除いた。フィッティング結果が悪いのは、陽電子の後方散乱やPsの表面からの脱離が大きな割合で生じて、これらの陽電子やPsが真空容器中の壁とぶつかり消滅した γ 線による陽電子寿命スペクトルは、単純な指数関数の和ではないからである。

図5.2は、測定されたエネルギー範囲で、PTFEの寿命と強度が一定であることを示しており、エネルギー依存性がないと結論できる。 ~ 4 nsの寿命成分の強度は 30% 程度であり、一般的手法により得られた強度 15.6 % よりも大きい。これは、主に陽電子源の違いによると考えられる。白色陽電子を使用する方法では、 ^{22}Na をカプトンとマイラーのフィルムに包み込んで使用するため、これらのフィルム内で消滅する陽電子と ^{22}Na 線源の中で消滅する陽電子が何割か存在する。したがって、PTFE試料中に入射する陽電子の量が減少し、PTFE中の寿命成分(4 ns)の割合も減少する。

低速陽電子入射エネルギー E keV から、陽電子の物質中への平均入射距離 $z(E)$ nm は次式により見積もることができる [8]。

$$z(E) = \frac{40}{\rho} E^{1.6} \quad (5.1)$$

ここで ρ はサンプルの密度 (g/cm^3) である。PTFEサンプルに対して計算された平均入射距離を図5.2の上軸に示す。計算では、PTFEの密度を $2.18 \text{ g}/\text{cm}^3$ とした [72]。

陽電子の寿命の大きさは、o-Psの消滅した自由体積 (free-volume) の大きさに関する情報を与える(2.1.1節参照)。寿命 τ と球状と仮定した自由体積半径 R nm の関係は次式で表される [21][22]。

$$\frac{1}{\tau} = 2 \left[1 - \frac{R}{R + \Delta R} + \frac{1}{2\pi} \sin \frac{2\pi R}{R + \Delta R} \right] \text{ ns}^{-1} \quad (5.2)$$

ここで、 ΔR はパラメーターで 0.166 nm である [23]。この式から 4 ns の寿命に対しては、 R は 0.43 nm と見積もられる。すなわち、o-Ps は半径 0.43 nm の球状近似の自由体積中に捕獲され消滅していると解釈できる。

5.1.4 パルス化低速陽電子ビームによるドップラー測定法の結果

ドップラー測定法の結果を図5.3に示す。左側の縦軸はS-parameterの値を 右側は V-parameter の値を示す (S-parameter と V-parameter の定義は、図2.4を参照)。図5.3は陽電子の入射エネルギーが低いとき (1.2 keV 以下) に S-parameter と V-parameter の値が高くなることを示している。消滅時の陽電子と電子の重心運動量が小さければ、消滅 γ 線のドップラー広がりは小さくなるために S-parameter の値は大きくなる。p-Psは消滅時に熱エネルギー程度のエネルギーであるから、重心系の運動量が小さく、S-parameter を大きくする。したがって、低エネルギー入射で S-parameter 値が高くなったことは、p-Ps が多く形成されたと考えられる。また、V-parameter が高い値を示すときには、表面近くで生成

した o-Ps が真空中に離脱して、3 光子消滅を高い割合で起こしていると解釈できる。このことは、 $E=0.2$ keV で寿命スペクトルの解析ができなかった理由を裏付けるものである。

5.2 鉄(50 nm)を蒸着した PTFEへの応用

2 番目の応用例として、PTFEに鉄 50 nm を蒸着した試料 (Fe(50 nm)/PTFE) にパルス化低速陽電子ビームを適用した結果を報告する。

Fe の真空蒸着は、 9.0×10^{-10} Torr の真空中で行なわれた。蒸着膜の厚さは、水晶振動子計と走査電子顕微鏡を用いて確かめられており、誤差は 10% 程度である [78]。試料の概念図を図 5.4 に示す。

5.2.1 パルス化低速陽電子ビームによる寿命測定

Fe/PTFE 試料にパルス化低速陽電子 (1.2 keV~10.2 keV) を照射して陽電子寿命スペクトルを測定した。入射エネルギー $E=2.2$ keV と 10.2 keV の時に得られたスペクトルを図 5.5 に示す。 $E=2.2$ keV と 10.2 keV では、陽電子が PTFE 中に入射する割合が異なるために、スペクトルに大きな違いを見ることができる。

測定した陽電子寿命スペクトルを、PATFIT プログラムを用いて 2 成分と 3 成分に解析した。2 成分解析により引き出された長寿命成分の寿命と強度の結果を入射エネルギーに対して図 5.6 に示す。5.1.2 節でも述べたように、バンチ内に圧縮されない陽電子が存在するために、2 成分解析で引き出された長寿命成分の寿命と強度には、ノイズの影響が含まれている。後述するが、2 keV 以下の低エネルギーで打ち込まれた低速陽電子は、Fe 50 nm 層を通り抜けて PTFE 中に入ることはない。したがって、 $E=1.2$ keV で得られた寿命 ~ 8 ns は、バンチを形成しない陽電子が作る擬似的な寿命成分であることが分かる。PTFE 単体の測定時には、バンチを形成しない陽電子が、擬似的な ~ 20 ns の寿命成分を作り出したことを 5.1.2 節で述べたが、Fe/PTFE 試料の解析では、 ~ 8 ns の擬似的な寿命成分があらわれた。この違いは、パルシングバイアスを発生させる回路系を Fe(50 nm)/PTFE を測定する際に回路を図 3.18 から図 3.17 に再構成したためである。一般に、パルス化波形を新たに形成し直すと、擬似的な寿命成分の寿命値は変化する。パルシング波形の変化に対する擬似的な寿命値が示す不安定性は、本装置改良の検討項目となっている。

図 5.6 は、 $E=\sim 2$ keV 以上で入射エネルギーの増加とともに長寿命成分の強度が増加し、寿命値が減少することを示す。この変化は次のように説明できる。 ~ 2 keV 以上では、陽電子は Fe 50 nm 層を透過し出すために、入射エネルギーの増加に伴い、PTFE 中で消滅する陽電子の割合は増えていく。したがって、 $E=2$ keV 以降、入射エネルギーの増加に伴って寿命値は PTFE 中の 4 ns の寿命値に近づき、その成分の強度も増加していく。

バンチを形成しない陽電子が生じる擬似的な寿命値は、入射エネルギーによりほとんど変化しないことが、Al 試料の解析から分かっているので、3 成分解析では、 $E=1.2$ keV で確認された擬似的な寿命の値 ~ 8 ns を固定して解析を行った。解析では、 $E=2.4$ keV 以上で ~ 4 ns の PTFE 固有の寿命成分が引き出され、入射エネルギーが 2.4 keV より小さいときには、4 ns の寿命は現れなかった。図 5.7 に、陽電子入射エネルギーに対する引き出された寿命の関係を示す。

入射エネルギーに対する 4 ns 付近の寿命とその強度を図5.8に示す。寿命の大きな変動はないが、4 ns の寿命成分の強度が入射エネルギーの増加とともに増している。入射エネルギーが高くなるにつれ、打ち込まれた陽電子は表面の鉄層を透過し、4 ns の寿命成分をもつPTFE中でとまる割合が増したためである。

5.2.2 低速陽電子ストッピングプロファイルを用いた考察

あるエネルギーの低速陽電子が、Fe(50 nm)/PTFE試料に打ち込まれた場合の鉄中あるいはPTFE中に止まる割合を、低速陽電子のストッピングプロファイルを用いた計算から見積ることができる。エネルギー E keV で打ち込まれた低速陽電子の密度 ρ g/cm³ の物質中におけるストッピング・プロファイル $P(z, E)$ は以下の式で与えられる[8]。

$$P(z, E) = -\frac{d}{dz} \exp \left[-\left(\frac{z}{z_0}\right)^m \right] \quad (5.3)$$

$$z_m = z_0 \Gamma \left(1 + \frac{1}{m} \right) = A \frac{E^n}{\rho} \quad (5.4)$$

ここで z は深さで nm の単位で表され、パラメーターは多くの物質に対して $n \simeq 1.6$, $m \simeq 2.0$, $A \simeq 40$ のように与えられる。従ってエネルギー E keV で打ち込まれた陽電子が鉄層 50 nm に止まる確率 $S_{Fe}(E)$ は、

$$S_{Fe}(E) = \int_0^{50nm} P(z, E) dz = 1 - \exp \left[-\left(\frac{50}{z_0}\right)^m \right] \quad (5.5)$$

であるから、鉄を透過し PTFE 中に止まる確率 $S_{PTFE}(E)$ は次式のようになる。

$$S_{PTFE}(E) = 1 - S_{Fe}(E) = \exp \left[-\left(\frac{50}{z_0}\right)^m \right] \quad (5.6)$$

計算では、PTFEの密度を 2.18 g/cm³[72], 鉄の密度を 7.86g/cm³[79]とした。

図5.9では、Fe(50 nm)/PTFE に陽電子を打ち込んだ場合のストッピングプロファイルを、いくつかの入射エネルギーについて示した。また、鉄あるいはPTFE中に陽電子がとまる割合を入射エネルギーに対して図5.10に示す。図5.8中の点線は、PTFE中に陽電子がとまるパーセンテージに 0.2 をかけたものであるが、4 ns の寿命強度の変化に近い曲線を示している。これは、PTFE 中での Ps の拡散距離が短いことを示唆している。Ps の拡散を取り入れた図5.8の解析と議論は、5.3節で行なう。

$E=2\sim4$ keV では、実験値は計算値より高い側へずれている。これは鉄と PTFE の境界付近に非晶部が多く存在していることを示唆しており、以下のように説明できる。 ~ 4 ns の寿命を示す o-Ps は、非晶質中の自由体積中で pick-off 消滅したものである。したがって、境界面付近の PTFE 中に非晶部が多く存在して自由体積の含有率が高いならば、o-Ps の強度が増加する可能性がある。

5.2.3 パルス化低速陽電子ビームによるドップラー測定の結果

ドップラー測定法の結果を、図5.11に示す。S-parameterはエネルギーが高くなるにつれ低い値となっており、ドップラー広がりが大きくなっていくことを示している。本来、鉄中でp-Psは形成されないので、S-parameterはPTFEに比べ小さい。白色陽電子を用いて測定したいいくつかの物質のS-parameterの値を表5.3にまとめる。

図5.11の結果は、今回測定した試料のPTFE中のS-parameterが鉄中よりも低い値であることを示す。この理由は、次のようにして説明できる。蒸着により作られたFe試料の単色陽電子による寿命測定は、~280 psの寿命を示しており、これは鉄中に、~5原子サイズの空孔型欠陥が数多く存在していることを意味している[78]。金属中の原子空孔では、陽電子は運動量の大きい内殻電子との消滅確率が減少するために、S-parameterは高い値を示すこととなる。

V-parameterは測定されたエネルギー領域においてほぼ一定であったことから、o-Psの真空中への再放出ではなく、陽電子は物質中で消滅していることが分かる。

表5.3: 白色陽電子を用いて測定された鉄、PTFE、高密度ポリエチレンのS-parameter値。
()内は誤差を示す。

試料	S-parameter
Fe (99.99%, 500°C 1h annealed, ニラコ製, 0.5 mm厚)	0.451(0.002)
Fe (99.99%, not annealed, ニラコ製, 0.5 mm厚)	0.479(0.002)
PTFE (ニチメン製, 1 mm厚)	0.508(0.002)
PTFE (ニラコ製, 0.13 mm厚)	0.510(0.002)
PTFE (ニラコ製, 0.012 mm厚)	0.511(0.002)
PTFE (tape)	0.519(0.002)
HDPE (高密度ポリエチレン)	0.581(0.002)

5.3 陽電子とo-Psの拡散に関する考察

本節では、本研究で得られた測定結果(図5.8)を用いてPsと陽電子の拡散について考察を行ない、パルス化低速陽電子ビームが陽電子やPsの拡散の研究に使用可能なプローブであることを明らかにする。特に、低速陽電子ビームのドップラー測定法による解析では、Psや陽電子の拡散運動を区別することは困難であるが、パルス化低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定法の解析では、Psと陽電子の挙動を明確に区別することが可能であることを示す。

5.3.1 陽電子の熱化とPsの形成機構

Psの拡散を考察するためには、Psの形成機構や消滅過程について理解しておく必要がある。したがって、Psの拡散を議論する前に、陽電子が物質に入射してから、消滅するまで

の物質中の陽電子の挙動についてまとめる。

^{22}Na などの放射性同位元素から放出された数百 keV の平均エネルギーを持つ陽電子は、物質に打ち込まれると、分子のイオン化や励起によってそのエネルギーを失い減速する。この過程による LET (linear energy transfer; 放射線の進路の単位長さあたりのエネルギー損失) は電子の LET と大差が無いと考えられる[4]。ガス中であれば、陽電子が分子内の価電子のエネルギー程度 (≤ 10 eV) まで減速されるのに $\sim 100/P$ ps (P は気圧 atm) の時間がかかり、固体中では熱化するまでに数 ps かかる[1]。固体中で熱化する間の陽電子の消滅速度は、減速速度に比べて非常に小さいので、熱化の過程で消滅する確率は無視できるほど小さい。

熱エネルギーにまで減速した陽電子は、Ps を形成する場合と、Ps を形成せずに物質中を拡散する場合がある。Ps の形成の機構は Ore モデルとスパー反応モデルの 2 つのモデルで説明されている[1][5]。以下にそれぞれのモデルの概要をまとめる。

1. Ore モデル

陽電子のエネルギーが 10 eV 程度になると、陽電子が分子から電子を引き抜いてこれと結合し、Ps を形成する過程が重要になってくる。



分子 M のイオン化エネルギーを I eV とすると、Ps の真空中での結合エネルギーは 6.8 eV であるから、この反応は $I - 6.8$ eV だけ吸熱反応である。従って、Ps が形成されるためには、陽電子は最低これだけの運動エネルギーが必要である。陽電子のエネルギーが大きい場合には、分子 M をイオン化・励起する過程も競合してくるので、Ps 形成の重要性は相対的に小さくなる。したがって、Ps 形成の最も起こりやすいエネルギー範囲が

$$I - 6.8 < E < I \text{ eV} \quad (5.8)$$

のように設定される。このエネルギー範囲は、この考察を最初に行なった A.Ore の名をとって Ore 幅と呼ばれている。

2. スパー反応モデル

陽電子が固体物質中で Ps を形成する機構は、スパー反応モデルによって説明されている。陽電子は物質中に入射すると、イオン化や励起の密度の高い領域(スパー)をつくりながら減速していく、最後の 100~200 eV を失って最終スパーをつくり、その近くで停止する。陽電子を含む最終スパーを特に陽電子スパーという。この中にはイオン化でたたき出された電子(過剰電子)があるので、陽電子はこれと結合して Ps を作ると考えるのがスパー反応モデルである。

距離 r_0 離れている正負の荷電対が結合する確率 P は、理論的に

$$P = 1 - \exp\left(-\frac{r_c}{r_0}\right) \quad (5.9)$$

で与えられる[1]。 $r_c = e^2/\epsilon kT$ は Onsager の限界長と呼ばれ、正負荷電対のクーロンボテンシャル $e^2/\epsilon r$ が熱エネルギー kT に等しくなる距離に相当する。なお、 ϵ は誘電率を、 k はボルツマン定数を表す。PTFE (多くの高分子中) では $\epsilon \approx 2$ [79], $r_c \approx 30$ nm である。これより接近した荷電対は結合する確率が大きい。~100 eV の陽電子が熱化するまでの飛程距離を式 5.1 を用いて求めると ~10 nm となる。したがって、陽電子スパーの大きさは 10 nm 程度と考えられ、 $r_c \approx 30$ nm よりも短いので、陽電子と陽電子スパー内の過剰電子が結合し Ps を形成する確率は高い。

Ps 形成の機構は、気相中では、高密度の気体中でない限りスパーの形成が無いために、Ore モデルが支配的であるが、液相や固相中では、これまでの研究から、スパー反応モデルが支配的であると考えられている[1]。なお、金属中では Ps の形成はないと考えられている。金属中では、伝導電子の密度が大きく、電場の遮蔽効果があるために、電子と陽電子の引力が作用しないからである。

固相中で Ps が形成される場合には、電子と陽電子がスパーの広がりの程度 (~10 nm) の距離を拡散して結合することになる。熱化した陽電子と電子は 10⁵ m/s の速度を持つために、10 nm を拡散するのにかかる時間は 10⁻¹⁴s 程度と、陽電子の寿命に比べ非常に短い。p-Ps を形成した陽電子は、~125 ps の寿命で消滅し、o-Ps を形成した陽電子は数 ns で pick-off 消滅 (2.1 節参照) をする。

過剰電子と結合せずにスパーから拡散により離れた陽電子は、Ore エネルギーのしきい値以下のエネルギーであるので、Ps を形成する可能性は少なく、物質中を拡散中に自由消滅する。自由消滅の平均寿命は、一般に ~300 ps である。

5.3.2 o-Ps の拡散

5.2.2 節では、低速陽電子のエネルギー変化に対する Fe(50 nm)/PTFE 試料中の 4 ns の寿命強度の変化 (実験値) が計算値と大まかに一致することを述べた (図 5.8)。このことは、PTFE 中で生成した o-Ps が、PTFE 中の固有の寿命 (4 ns) で消滅していることを意味する。従って、次のことがいえる。PTFE 中に生成した o-Ps は、その寿命の間に Fe 層との境界面へ拡散により達し、Fe 層との相互作用により 4 ns よりも短い寿命でピックオフ消滅することはない。図 5.8 のような実験データは、Ps の拡散についての情報を与える可能性があることを、以下の考察から明らかにする。

拡散により鉄との境界層へ達した o-Ps が、4 ns の寿命を示さずに消滅するモデルを考え、陽電子入射エネルギー E に対する ~4 ns の寿命強度の変化 $I_{4ns}(E)\%$ を計算する。まず、Ps の拡散方程式は、次式で与えられる。

$$\frac{\partial N(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = D_{Ps} \nabla^2 N(\mathbf{r}, t) - \lambda_{eff} N(\mathbf{r}, t) \quad (5.10)$$

ここで、 D_{Ps} は拡散係数、 $N(\mathbf{r}, t)$ は、位置 \mathbf{r} 、時刻 t における o-Ps の密度である。 λ_{eff} は、o-Ps の実効的な消滅速度であり、寿命により消滅する速度 λ_l と空孔にトラップする速度 λ_t の和である。逆数 $\lambda_{eff}^{-1} = \tau_{eff}$ は拡散する平均時間を意味する。

一次元方向 (z 方向) の拡散による粒子の流量は、式 5.10 を用いて求められており、 $t=0$ に分布 $P_{o-Ps}(z, E)$ で形成された o-Ps が拡散により鉄と PTFE の境界層に達する総量 $\eta(E)$ は、

以下のように計算できる[8]。

$$\eta(E) = \int_{50nm}^{\infty} P_{o-Ps}(z, E) \cdot \exp\left(-\frac{(z - 50nm)}{L_{Ps}}\right) dz \quad (5.11)$$

L_{Ps} は、o-Psの平均拡散距離を表し、 D_{Ps} と τ_{eff} を用いて、次式のようにあらわされる。

$$L_{Ps} = \sqrt{D_{Ps} \cdot \tau_{eff}} \quad (5.12)$$

スパー反応モデルをもとに考えると、低速陽電子を E keVで打ち込んだときに、試料中で生成される o-Ps の分布曲線 $P_{o-Ps}(z, E)$ は、陽電子のストッピングプロファイル $P(z, E)$ に定数 C (陽電子が o-Ps を形成する確率) をかけたものになると予測される。したがって、次の関係式が成り立つ。

$$P_{o-Ps}(z, E) = C \cdot P(z, E) \quad (5.13)$$

境界面に達した Ps が 4 ns の寿命を持たずに消滅すると仮定すると、o-Ps の強度 $I_{4ns}(E)\%$ は

$$I_{4ns}(E) = (C \cdot S_{PTFE}(E) - \eta(E)) \times 100 \quad (5.14)$$

となる。

C を 0.2 に固定し、 $L_{Ps}=1, 100, 1000$ nm の場合の陽電子入射エネルギー E に対する $I_{4ns}(E)$ の変化を図 5.12 に示す。平均拡散距離 L_{Ps} が長いほど、計算値と実験値の曲線の差異が大きくなることが分かる。平均拡散距離 L_{Ps} の長さを無視した計算結果が、一番良い最小二乗によるフィッティングの結果を与えた。このことは、境界面へ達した o-Ps が 4 ns の寿命を示さないという仮定のもとで、PTFE 中の Ps の拡散距離が短いことを示している。

ポリカーボネート高分子中の Ps の拡散係数は論文[80]に見ることができ、 $10^{-6}\text{cm}^2/\text{s}$ の程度である。測定に用いた PTFE 試料の拡散係数 D_{Ps} を $10^{-6}\text{cm}^2/\text{s}$ と仮定し、また、 τ_{eff} は、o-Ps の非晶質中で pick-off 消滅する寿命 4 ns とは異なるが、仮に $\tau_{eff}=4$ ns という非常に長い時間を仮定しても、平均拡散距離 L_{Ps} は 1 nm 程度であり、確かに Ps の拡散距離の短いことが推測される。

5.3.3 陽電子の拡散

はじめに鉄層中の陽電子の拡散を考える。5.2.3節で述べたように、今回測定した Fe (50 nm)/PTFE 試料の鉄層が非常に高い S-parameter の値を示したことから、空孔型欠陥を多く含んでいることが分かる。空孔型欠陥は、プラス電荷の原子核が存在しない結果マイナスに帶電しており、拡散中の陽電子を引きつけて捕獲するため、陽電子の平均拡散距離を短くする。

蒸着した鉄層中の空孔型欠陥の存在が、陽電子の拡散距離を短くしていることが、低速陽電子ビームによるドップラー測定法の実験から求められており、蒸着した鉄層中の陽電子の平均拡散距離は~5 nm 以下と推測されている[78]。平均拡散距離~5 nm は、鉄層の厚さ 50 nm にくらべて短いので、ストッピングプロファイルに従う深さ分布で消滅する。

ストッピングプロファイルの計算(図5.10参照)から、エネルギー $E=2$ keV 以下で鉄層に入射した陽電子は、ほとんど鉄中で停止することが予測され、これらの陽電子は PTFE 中で消滅することではなく、鉄層中で消滅すると考えられる。

次に、PTFE 中における陽電子の拡散を考える。PTFE(高分子) 中では、入射した陽電子がある割合で Ps を形成するために、陽電子と Ps の拡散が起こる。拡散現象の解析の手法には、ドップラー測定法による方法と、陽電子寿命法による方法があるが、前者は Ps と陽電子の区別をすることは難しいが、後者は陽電子の寿命から、p-Ps と o-Ps と陽電子の拡散の情報を明確に分離することができる。

前節の o-Ps の拡散の議論を、陽電子の拡散現象に適用することにより、陽電子の拡散距離の評価を行なうことができる。現在のシステムは時間分解能が 1.8 ns であり、熱拡散する陽電子の寿命 ~ 300 ps の情報を引き出すことはできないが、本装置の時間分解能が改善され 300 ps の寿命を識別できるようになれば、陽電子の平均拡散距離に関する情報を引き出すことが可能になる。

Ps を形成しない陽電子の高分子中(ポリスチレン)の拡散係数 D_{e^+} は、270 K のときに ~ 0.48 cm²/s であり、平均寿命は 300 ps であるから、平均拡散距離 L_{e^+} は ~ 120 nm と報告されている [81]。PTFE 中での陽電子の平均拡散距離が仮に ~ 120 nm 程度とすれば、PTFE 中に入射した陽電子は式5.3で記述されるストッピングプロファイルの分布で熱化した後、さらに 120 nm 程度の距離を拡散により移動して消滅する。

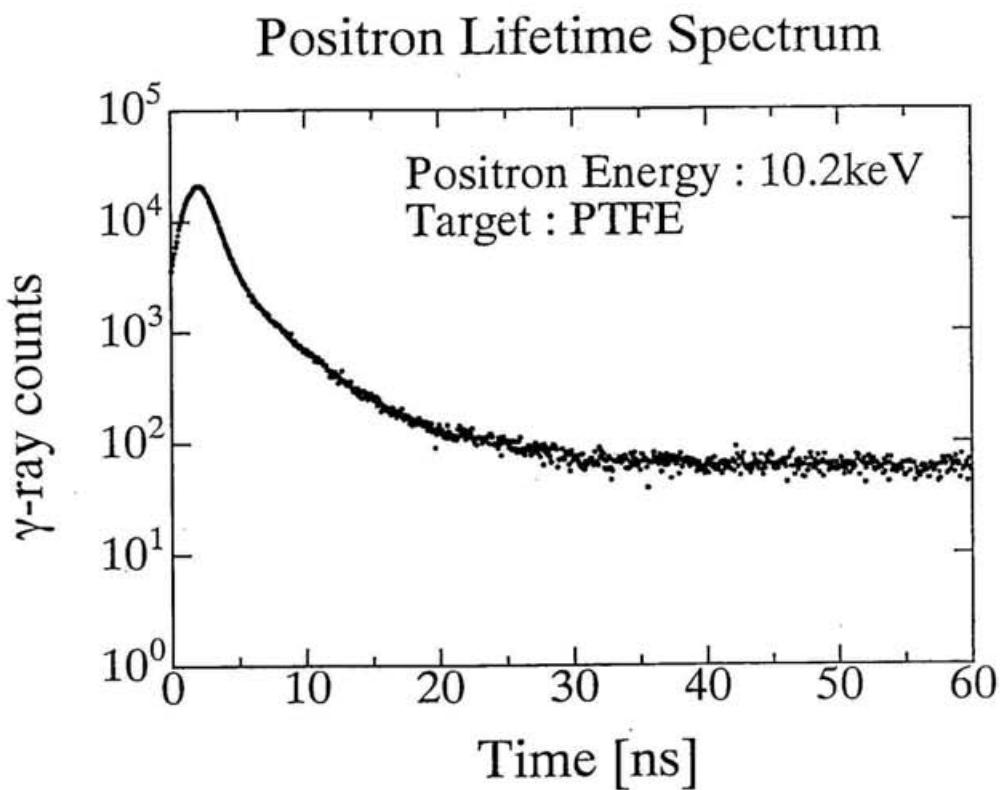


図 5.1: パルス化低速陽電子ビームを用いて測定した PTFE 中の陽電子寿命スペクトル。入射エネルギーは 10.2 keV である。

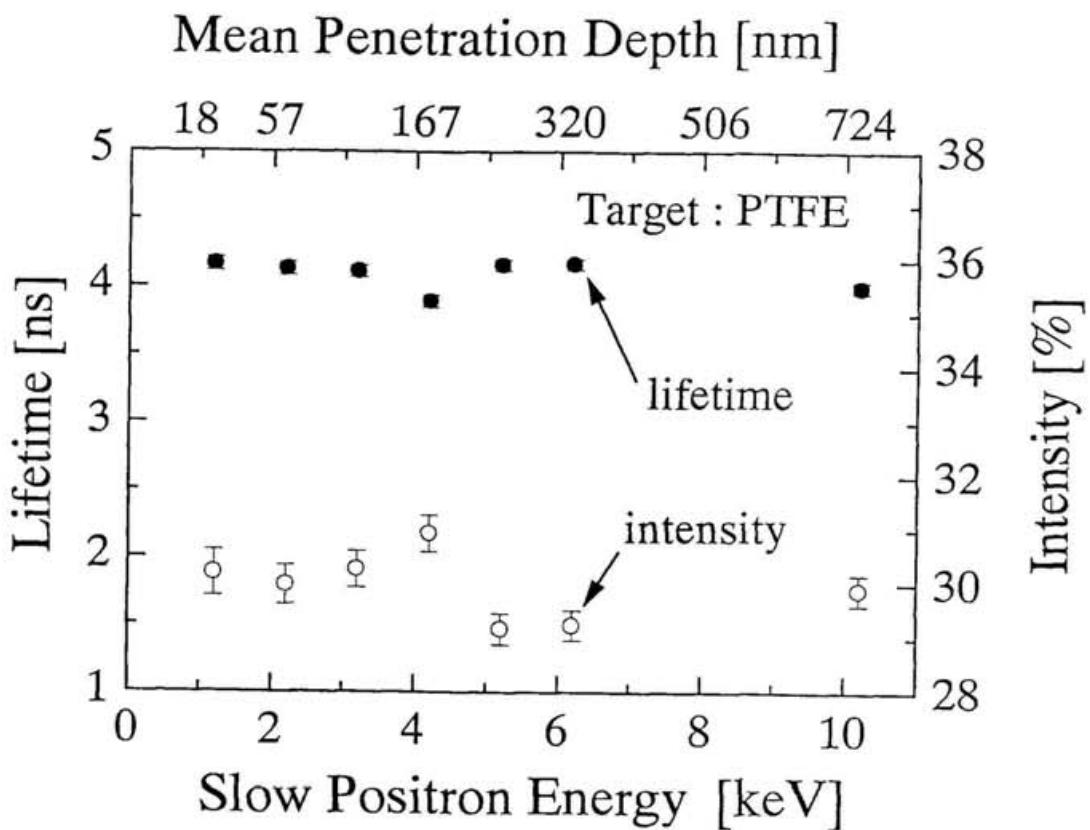


図 5.2: 低速陽電子入射エネルギーに対する PTFE 中の陽電子の寿命と強度の変化。測定されたエネルギー範囲で、PTFE の寿命と強度は一定であり、陽電子の入射エネルギー依存性がないことを示す。

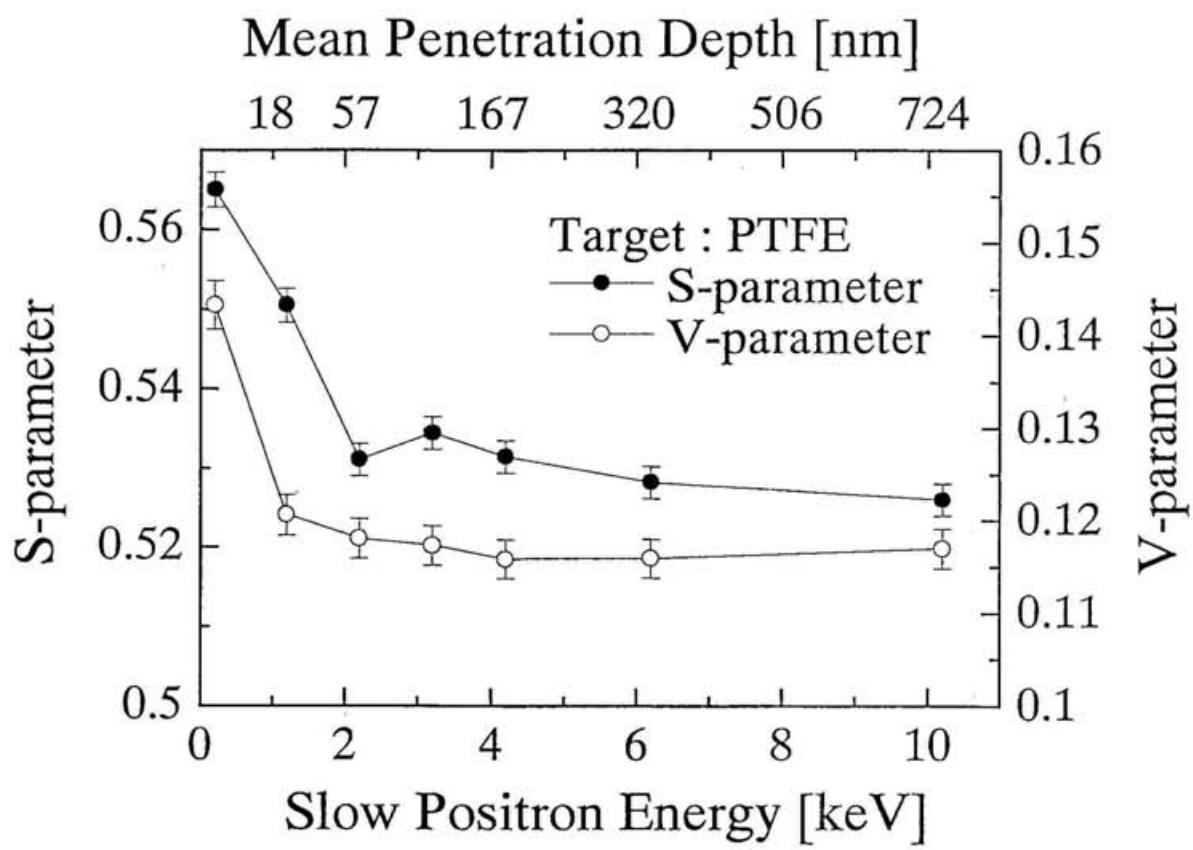


図 5.3: 低速陽電子入射エネルギーに対する PTFE 中の S-parameter と V-parameter の変化。低エネルギー入射で S-parameter 値が高くなったことは、p-Ps が多く形成されたと考えられる。また、低エネルギー入射で V-parameter が高い値を示すことは、表面近くで生成した o-Ps が真空中に離脱して、3 光子消滅を高い割合で起こしていると解釈できる。

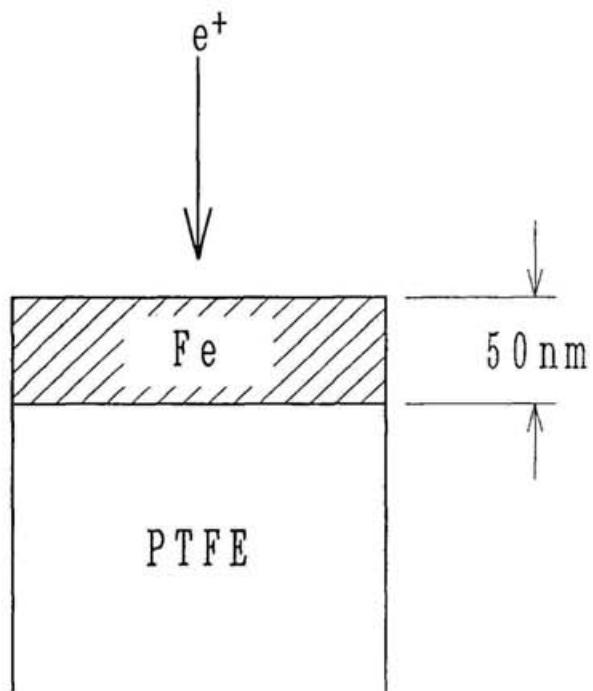


図 5.4: Fe(50 nm)/PTFE 試料概念図。Feの真空蒸着は、 9.0×10^{-10} Torr の真空中で行なわれた。蒸着膜の厚さは、水晶振動子計と走査電子顕微鏡を用いて確かめられており、誤差は 10%程度である。

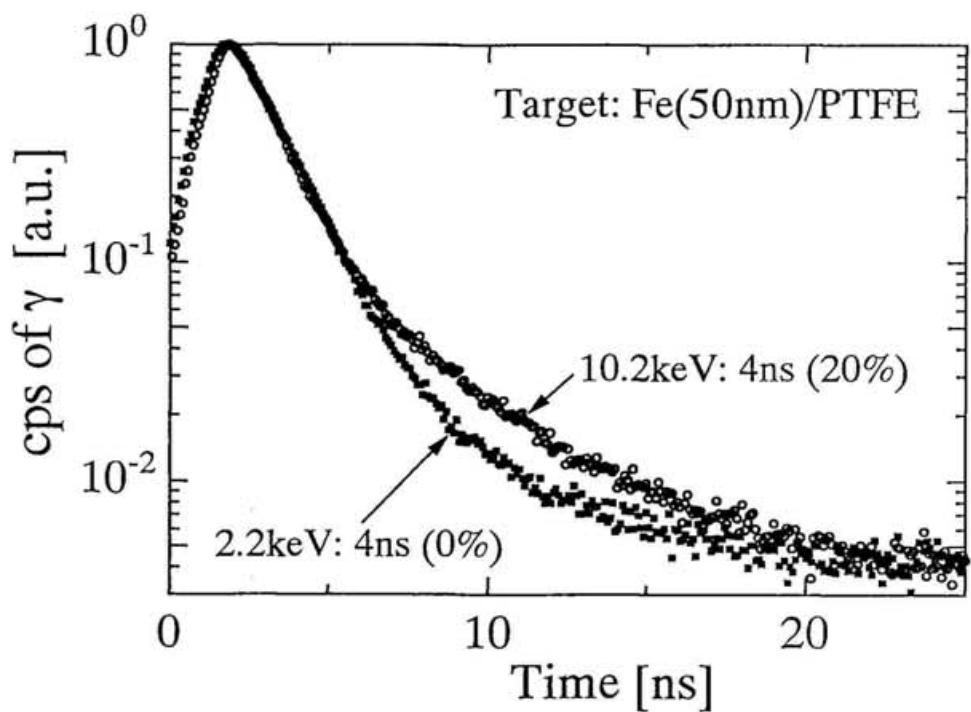


図 5.5: 入射エネルギー 2.2 keV と 10.2 keV のときの Fe(50 nm)/PTFE 中の陽電子寿命スペクトル。低エネルギー入射 ($E=2.2$ keV) では、陽電子は 鉄 50 nm 層を透過しないために、陽電子寿命スペクトルに長寿命成分は現れない。高エネルギー入射 ($E=10.2$ keV) では、ほとんどの陽電子が鉄層を透過し PTFE 中で止まるために、 $E=10.2$ keV で測定されたスペクトルは長寿命成分 (~ 4 ns) を持つ。

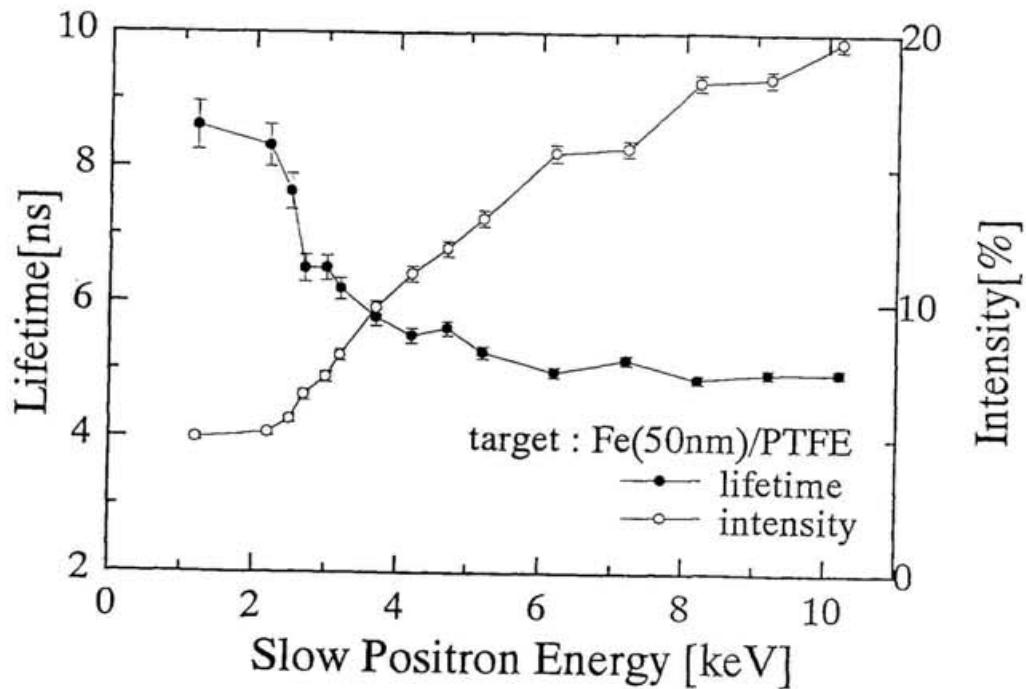


図 5.6: 低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の寿命と強度の変化(2成分解析結果)。2成分解析を行い、長寿命成分をプロットした。この測定で、パンチを形成しない陽電子が作り出す擬似的な寿命が ~ 8 ns であることが分かった。 ~ 2 keV 以上では、陽電子は Fe 50 nm 層を透過し出すために、入射エネルギーの増加に伴い、PTFE 中で消滅する陽電子の割合は増えていく。したがって、 $E = \sim 2$ keV 以降、入射エネルギーの増加に伴って寿命値は PTFE の 4 ns の値に近づき、その強度も増加していく。

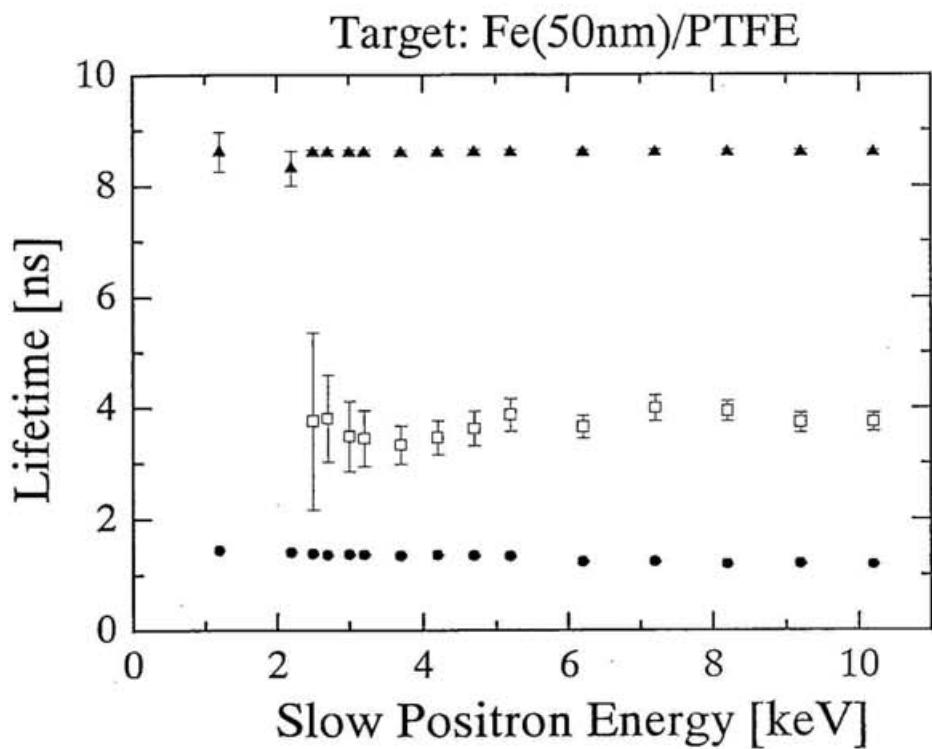


図 5.7: 低速陽電子入射エネルギーに対する解析により引き出された寿命の値。解析時に、 ~ 8 ns の寿命は固定された。 $E=2.4$ keV以上で ~ 4 ns の PTFE 固有の寿命成分が現れた。

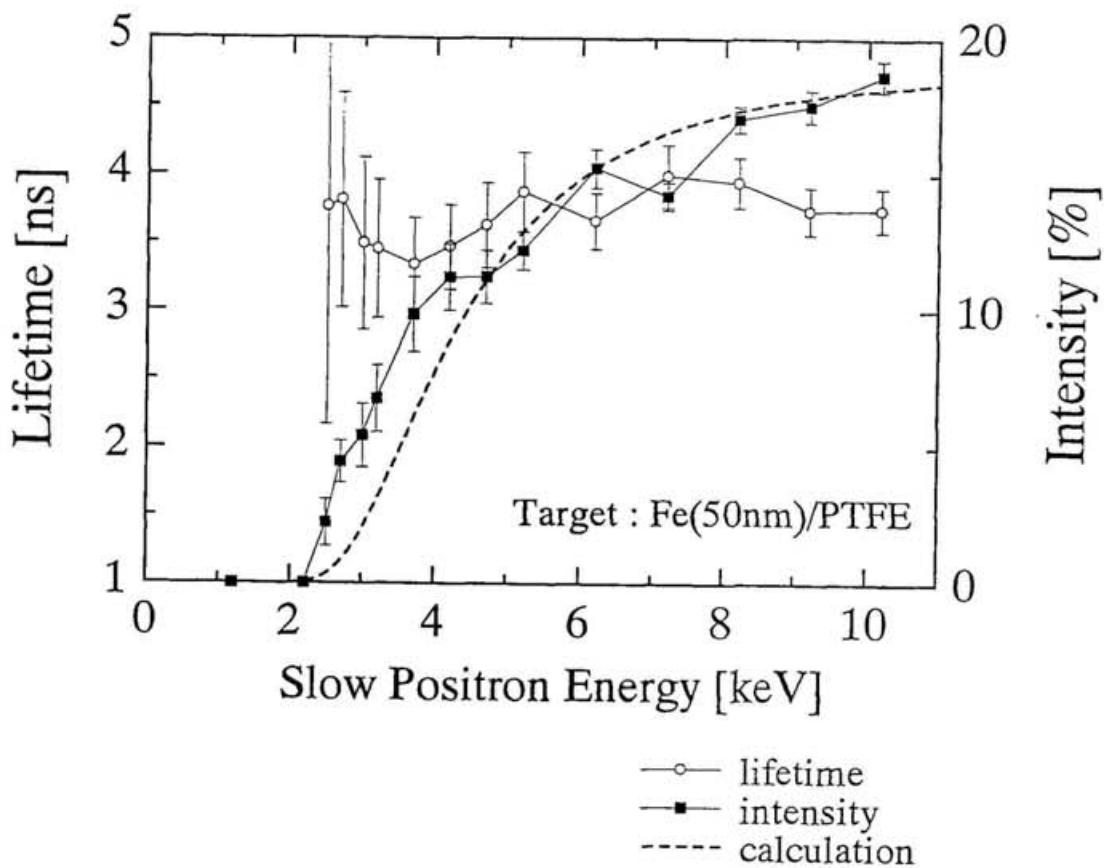


図 5.8: 低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の寿命と強度の変化(3成分解析結果)。3成分解析を行い、4 ns の寿命成分をプロットした。強度が入射エネルギーの増加とともに増すのは、入射エネルギーが高くなるにつれ、打ち込まれた陽電子は表面の鉄層を透過し、PTFE 中で止まる割合が増えるためである。

Positron Implantation Profile

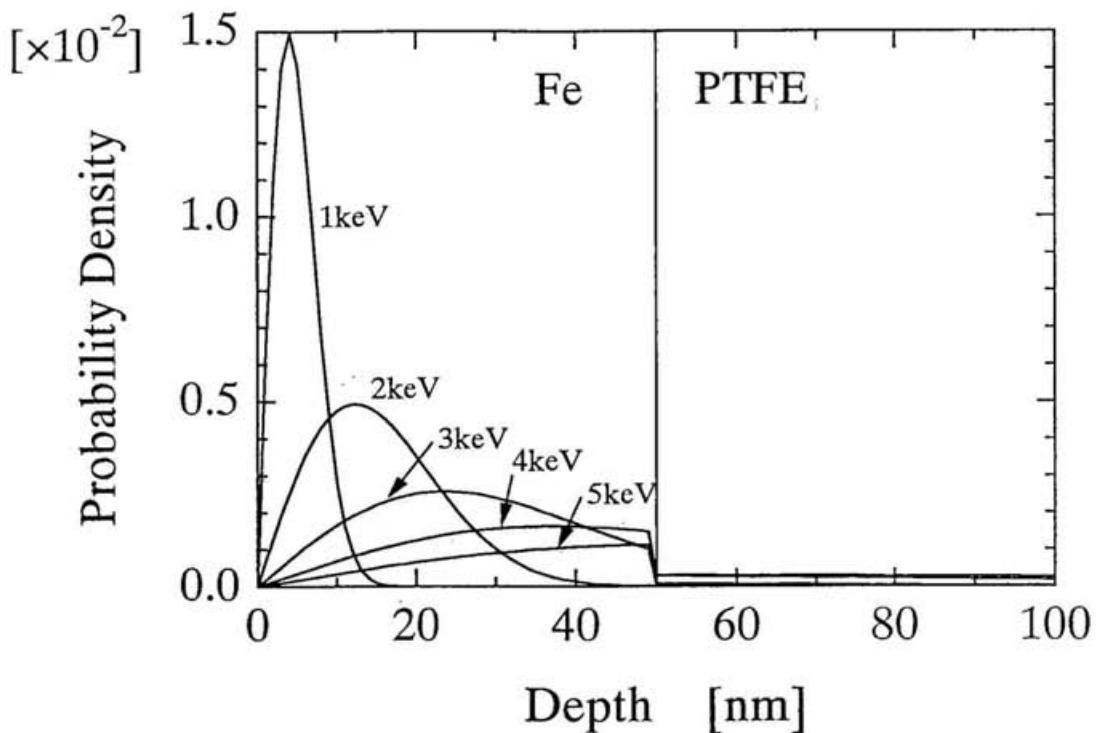


図 5.9: 低速陽電子の Fe(50 nm)/PTFE 中のストッピングプロファイル。Fe と PTFE のストッピングパワーの違いにより、ストッピングプロファイルは Fe と PTFE の界面で不連続になる。

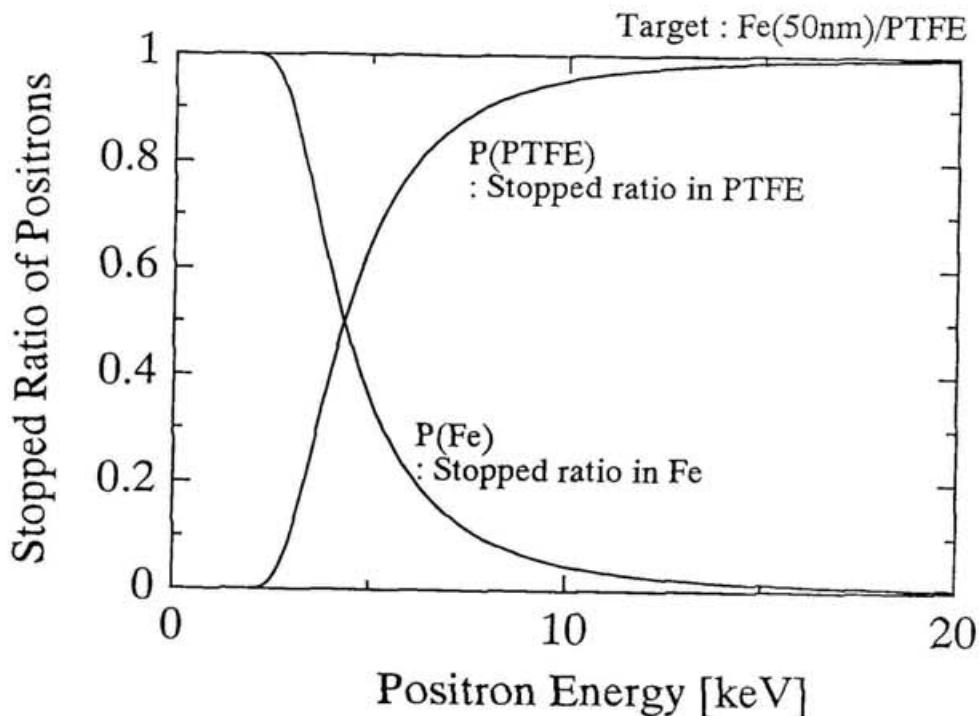


図 5.10: 低速陽電子の Fe(50 nm)/PTFE 中の各層にとまる割合。低速陽電子のストッピングプロファイルの式を積分して求めた。入射エネルギーが高くなるにつれて、PTFE 中に止まる陽電子の割合が増えるのが分かる。

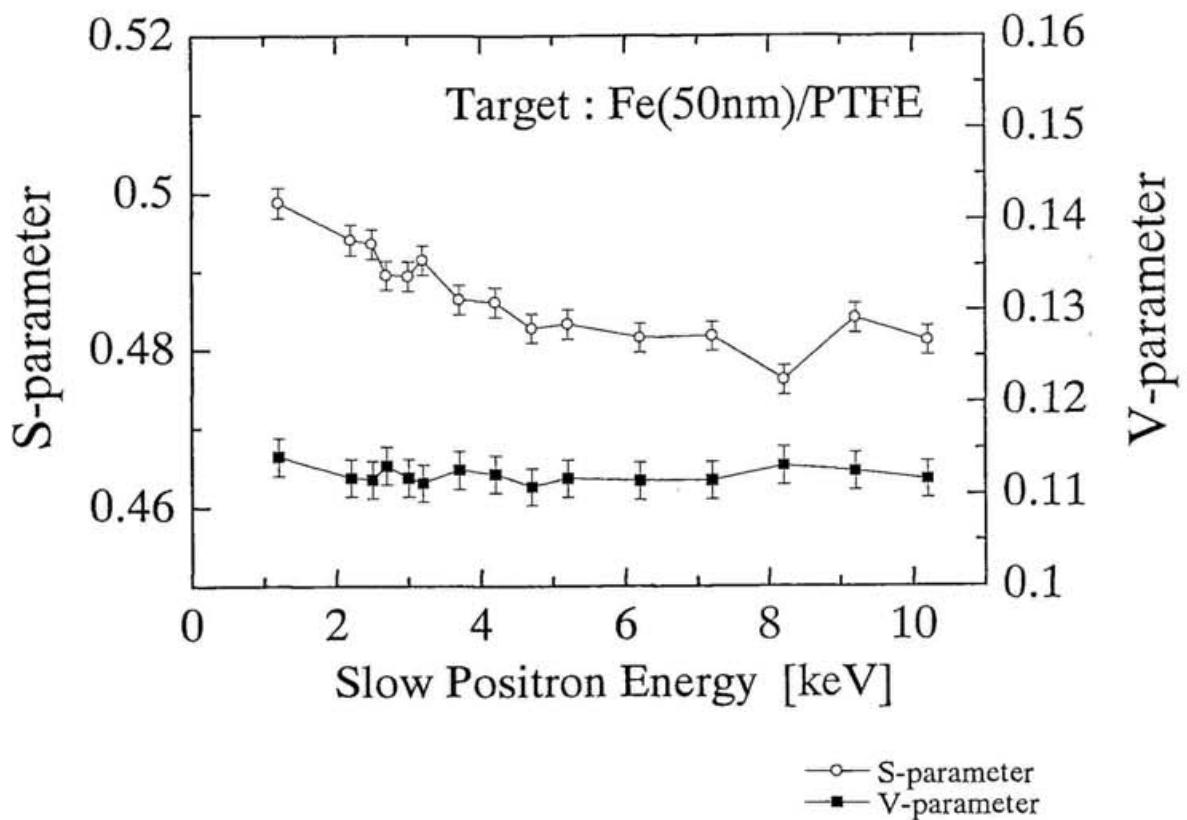


図 5.11: 低速陽電子入射エネルギーに対する Fe(50 nm)/PTFE 中の S-parameter と V-parameter の変化。今回測定した試料では、PTFE 中の S-parameter は鉄中よりも低い値であることがわかる。金属中の原子空孔では、陽電子は運動量の大きい内殻電子との消滅確率が減少するために、S-parameter は高い値を示す。V-parameter は測定されたエネルギー領域においてほぼ一定であったことから、 α -Ps の真空中への再放出はなく、陽電子は物質中で消滅していることが分かる。

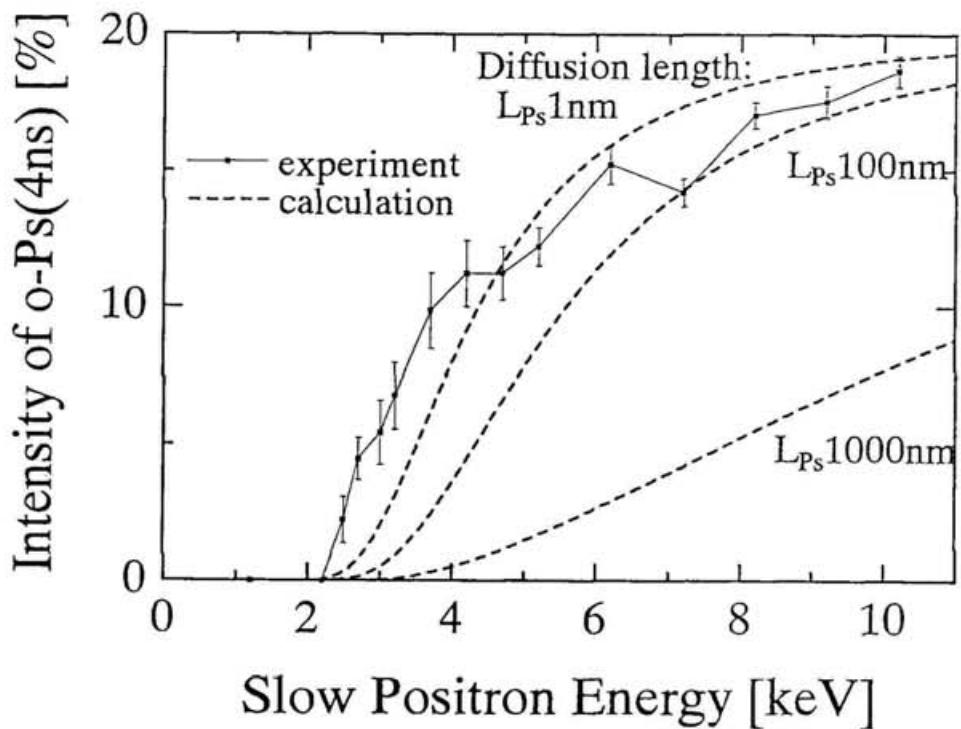


図 5.12: o-Ps の拡散を考慮した、4 ns の寿命強度の低速陽電子入射エネルギーに対する変化(計算結果)。計算では、拡散により鉄層へ達した o-Ps は、4 ns の寿命を示さないと仮定した。平均拡散距離 L_{Ps} が長いほど、計算値と実験値の曲線の差異が大きくなり、PTFE 中の Ps の拡散距離が短いことを示している。

6

本研究のまとめと今後の課題

本研究で得た研究成果を以下にまとめる。

1. モデレーターに直接電圧を与える方法により、低速陽電子のパルス化を行う方法を考案し、その理論的な検証を行った。
2. 理論的な検証に基づき、低速陽電子ビームラインと低速陽電子パルス化装置の設計と建設を行った。
3. 低速陽電子のパルス化は ~80 ns の周期で行われ、パルス化効率は ~97% に達した。
4. 開発した装置の時間分解能は ~1.8 ns であり、理論的に見積もられた時間分解能 ~1.7 ns とほぼ一致した。このことから、観測したパルス化波形が、ほぼ同じ形状でモデレーターに印加されていたと結論できる。
5. 装置の時間分解能を広げている原因が、主にパルス化された陽電子がエネルギー誤差 $\Gamma_{\Delta E} \approx 2.8$ eV を持つことによる。この $\Gamma_{\Delta E} \approx 2.8$ eV は、パルシングバイアスが理想的に形成されていないために生じるエネルギー誤差 ~1.9 eV とモデレーターから放出した際に低速陽電子が持つエネルギー誤差 ~2.1 eV からなる。
6. 開発した装置を PTFE と鉄 50 nm を蒸着した PTFE の 2 つの試料に適用し、陽電子寿命測定を行えることを実証した。
7. 低速陽電子による PTFE 中の陽電子寿命測定からは、長寿命 (4 ns) の寿命成分が引き出され、この値は白色陽電子による一般的な手法により得られた寿命の値と一致した。PTFE の陽電子長寿命成分の陽電子入射エネルギー依存性はみられなかった。
8. Fe(50 nm)/PTFE の測定では、Fe と PTFE の境界面を検知することに成功し、パルス化低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定法が薄膜等の研究に有用であることを実証した。
9. パルス化低速陽電子ビームが、陽電子や Ps の拡散を研究するプローブになり得ることを示した。

以上のように、本研究を通して多くの研究成果を得ることができたが、本装置にはまだ改善していくべき点がある。以下では、本装置の改善すべき点とその改善方法について述べる。

本装置の改善すべき点は以下の2つである。

1. パンチの中に圧縮されない～3%の陽電子がノイズを発生させている。
2. 時間分解能が1.8 nsであり、測定できる対象が限定される。

1の対策として効果的な方法は、圧縮されない～3%の陽電子を削除するチョッパーを利用する事である。チョッパーには、本論文の2.2.3節で述べたE×Bフィルターが利用できるが、パルス化されない陽電子だけを削除するために、電場をパルス状に形成する必要がある。通常、低速陽電子のビーム径の大きさは5 mm程度であるので、削除すべき陽電子を5 mm軌道から磁場垂直方向へそらせばよい。このようにして中心軌道からそれた陽電子は、コリメーターを用いて容易に削除することができる。

2の対策は、装置の時間分解能を高めることである。本論文中の4.2節で述べたように、時間分解能を広げている主要因は、パルス化された陽電子がエネルギーの誤差を持つことによる時間分解能 $\Gamma_{\Delta E}$ である。また本論文の3.2.2節では、パルス化された陽電子のターゲット到着の誤差 ΔT が、パルス化時のエネルギーの誤差 ΔE に比例し、パルス化する際のエネルギーの時間変位 $\partial E / \partial t$ に反比例することを近似式(式3.11)で示した。時間分解能 $\Gamma_{\Delta E}$ の改善は、 ΔT を小さくすることである。そのためには、エネルギーの誤差の広がりを小さくするために、伝送回路のインピーダンス不整合を改善し、小さいエネルギー広がりを与えるモデレーターを準備する。また、 $V(t)$ の時間に対する変位を大きくするために、パルシングには、出力電圧のより高いポストアンプを使用する。

参考文献

- [1] 伊藤泰男, 鍛治東海, 田畠米穂, 吉原賢二,「素粒子の化学」, 学会出版センター (1985)
- [2] 武田 晓, 基礎物理学選書 25 「素粒子」, 裳華房 (1992)
- [3] F.Mandl and G.Shaw, "Quantum Field Theory", Wiley (1995)
- [4] G.F.Knoll, (木村逸朗, 阪井英次訳),「放射線計測ハンドブック」, 日刊工業社 (1982)
- [5] O.E.Mogensen, Chemical Physics 58 "positron-annihilation in chemistry", Springer-Verlag (1995)
- [6] 「陽電子計測の科学」, 日本アイソトープ協会 (1993)
- [7] まてりあ, 第35巻 第2号 特集「陽電子消滅法による材料評価の最近の進展」 (1996)
- [8] P.J.Schultz and K.G.Lynn, Rev. Mod. Phys. 60 (1998) 701-779
- [9] Eds. by M.Doyama, T.Akahane and M.Fujinami, "SLOPOS-6, Proceedings of the Sixth International Workshop on Slow-Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces", Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 1-356
- [10] Eds. by W.B.Waeber, M.Shi and A.A.Manuel, "SLOPOS-7, Proceedings of the Seventh International Workshop on Slow-Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces", Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 1-351
- [11] N.Oshima, T.Nakajyo, I.Kanazawa, T.Iwashita, Y.Ito, We-Hyo Soe, R.Yamamoto, Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 329-333
- [12] Y.Itoh, K.H.Lee, T.Nakajyo, A.Goto, N.Nakanishi, M.Kase, I.Kanazawa, Y.Yamamoto, N.Oshima, Y.Ito, Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 165-171
- [13] Y.Ito, N.Oshima, T.Suzuki, T.Kurihara, T.Shidara, K.Nakahara, I.Kanazawa, T.Nakajyo, M.Tashiro and T.Asakuno, "Storage of Slow Positron Beam", 第2回P.F 低速陽電子源研究会報告 (1995) 76-89
- [14] T.Kurihara, A.Shirakawa, A.Enomoto, T.Shidara, H.Kobayashi and K.Nakahara, Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 178-181

- [15] L.Xie, G.B.DeMaggio, W.E.Frieze, J.DeVries, D.W.Gidley, H.A.Histov and A.F.Yee, Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 4947-4950
- [16] Y.C.Jean, H.Cao, G.H.Dai, R.Suzuki, T.Ohdaira, Y.Kobayashi, K.Hirata, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 251-255
- [17] G.B.DeMaggio, W.E.Frieze, D.W.Gidley, Ming Zhu, H.A.Hristov and A.F.Yee, Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 1524-1527
- [18] Y.Kobayashi, I.Kojima, S.Hishita, T.Suzuki, E.Asari and M.Kitajima, Phys. Rev. B52 (1995) 823-828
- [19] A.Rich, Rev. Mod. Phys., 53 (1981) 127-165
- [20] P.Kirkegaard, N.J.Pedersen and M.Eldrup, PATFIT-88, Riso-M-2740
- [21] S.J.Tao, J. Chem. Phys. 56 (1972) 5499-5510
- [22] M.Eldrup, D.Lightbody and J.N.Sherwood, Chem. Phys. 63 (1981) 51-58
- [23] D.M.Schrader and Y.C.Jean eds.: Positron and Positronium Chemistry, Elsevier, studies in physical and theoretical chemistry 57, (1988)
- [24] 村上悠紀雄、團野皓文他、小林昌敏 編著、「放射線データブック」, 地人書館 (1982)
- [25] A.P.Mills,Jr., E.D.Shaw, R.J.Chichester and D.M.Zuckerman, Rev. Sci. Instrum. 60 (1989) 825-830
- [26] Y.Ito, M.Hirose, S.Takamura, O.Sueoka, I.Kanazawa, K.Mashiko, A.Ichiyama, Y.Murata, S.Okada, M.Hasegawa and T.Hyodo, Nucl. Inst. Methods. A305 (1991) 269-274
- [27] M.Charlton and G.Laricchia, Hyp. Int. 76 (1993) 97-113
- [28] Y.Itoh, Z.L.Peng, K.H.Lee, M.Ishii, A.Goto, N.Nakanishi, M.Kase, and Y.Ito, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 68-72
- [29] M.Hirose, M.Washio and K.Takahashi, Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 111-117
- [30] F.F.Chen, (内田岱二郎訳),「プラズマ物理入門」, 丸善株式会社 (1995)
- [31] K.F.Canter and A.P.Mills, Jr., Can. J. Phys. 60 (1982) 551-557
- [32] S.M.Hutchins, P.G.Coleman, R.J.Stone and R.N.West, J. Phys. E: Sci. Instrum. 19 (1986) 282-283
- [33] K.G.Lynn, W.E.Frieze, and Peter J.Schultz, Phys. Rev. Lett. 52, (1984) 1137-1140

- [34] R.M.Niemenen and M.J.Puska, Phys. Rev. Lett. 50, (1983) 281-284
- [35] A.P.Mills,Jr., Appl. Phys. 22 (1980) 273-276
- [36] W.S.Crane and A.P.Mills,Jr., Rev. Sci. Instrum. 56 (1985) 1723-1726
- [37] D.Schödlbauer G.Kögel, P.Sperr, and W.Triftshäuser, Phys. Stat. Sol. (a) 102 (1987) 549-554
- [38] D.Schödlbauer P.Sperr, G.Kögel, and W.Triftshäuser, Nucl. Instrum. Methods B 34 (1988) 258-268
- [39] P.Willutzki, P.Sperr, D.T.Britton, G.Kögel, R.Steindl and W.Triftshäuser, Mater. Sci. Forum 105-110 (1992) 2009-2016
- [40] P.Willutzki, J.Störmer, G.Kögel, P.Sperr, D.T.Britton, R.Steindl and W.Triftshäuser, Meas. Sci. Technol. 5, (1994) 548-554
- [41] P.Sperr, G.Kögel, P.Willutzki and W.Triftshäuser, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 78-81
- [42] G.Kögel, D.Schödlbauer, W.Triftshäuser and J.Winter, Phys. Rev. Lett. 60 (1988) 1550-1553
- [43] D.T.Britton, P.Willutzki, W.Triftshäuser, E.Hammerl, W.Hansch and I.Eisele, Appl. Phys. A58 (1994) 389-393
- [44] G.Kögel, Mater. Sci. Forum 175-178 (1995) 107-114
- [45] G.Kögel and SPM-Group, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 108-113
- [46] W.Bauer-Kugelmann, J.A.Duffy, J.Störmer, G.Kögel and W.Triftshäuser, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 231-235
- [47] J.A.Duffy, W.Bauer-Kugelmann, G.Kögel and W.Triftshäuser, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 241-246
- [48] R.Suzuki, Y.Kobayashi, T.Mikado, H.Ohgaki, M.Chiwaki, T.Yamazaki and T.Tomimasu, Jpn. J. Appl. Phys. 30 (1991) L532-L534
- [49] R.Suzuki, T.Mikado, M.Chiwaki, H.Ohgaki and T.Yamazaki, Appl. Surf. Sci. 85, (1995) 87-91
- [50] R.Suzuki, T.Ohdaira, T.Mikado, H.Ohgaki, M.Chiwaki, and T.Yamazaki, Appl. Surf. Sci. 116, (1997) 187-191
- [51] R.Suzuki, T.Mikado, H.Ohgaki, M.Chiwaki and T.Yamazaki, Mater. Sci. Forum 175-178 (1995) 217-220

- [52] T.Ohdaira, R.Suzuki, T.Mikado, H.Ohgaki, M.Chiwaki, T.Yamazaki, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 177-180
- [53] S.Ishibashi, M.Tokumoto, N.Kinoshita, N.Terada, H.Ihara, R.Suzuki, T.Ohdaira, T.Mikado, H.Anzai, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 300-303
- [54] M.Hirose, T.Nakajyo and M.Washio, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 63-67
- [55] J.Xu, R.Suzuki, L.D.Hulett Jr, and T.A.Lewis, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 34-38
- [56] J.P.Merrison, M.Charlton and G.Laricchia, Meas. Sci. Technol. 2 (1991) 175-177
- [57] A.Zecca, Mater. Sci. Forum 175-178 (1995) 125-132
- [58] R.H.Howell, T.E.Cowan, J.Hartley, P.Sterne and B.Brown, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 7-12
- [59] Moderator foils provided by J Chevalier, Åarhus University, Denmark
- [60] 浜松ホトニクス株式会社, MCP アッセンブリ技術資料,(1991)
- [61] 菅田栄治,「電子イオンビームハンドブック」, 日刊工業新聞社 (1973)
- [62] D.M.Chen, K.G.Lynn, R.Pareja, and B.Nielsen, Phy. Rev. B31, (1985) 4123-4130
- [63] P.J.Schultz, K.G.Lynn, W.E.Frieze, and A.Vehanen, Phys. Rev. B27, (1983) 6626-6634
- [64] E.M.Gullikson, A.P.Mills,Jr., W.S.Crane, and B.L.Brown, Phys. Rev. B32, (1985) 5484-5486
- [65] A.P.Mills Jr., in POS81, (1981) 432
- [66] A.Vehanen, K.G.Lynn, P.J.Schultz, and M.Eldrup, Appl. Phys. A 32, (1983) 163-167
- [67] A.P.Mills,Jr., and E.M.Gullikson, Appl. Phys. Lett. 49 (1986) 1121-1123
- [68] E.Gramsch, J.Throwe, and K.G.Lynn, Appl. Phys. Lett. 51 (1987) 1862-1864
- [69] G.R.Massoumi, N.Hozhabri, K.O.Jensen, W.N.Lennard, M.S.Lorenzo, P.J.Schultz, and A.B.Walker, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 3873-3876
- [70] 黒川孝臣他,「プラスチック材料講座 6 ふっ素樹脂」, 日刊工業新聞社 (1969)
- [71] 小山利一, 鈴木武英,「プラスチック材料講座 10 ふっ素樹脂」, 日刊工業新聞社 (1963)
- [72] 三田 達 監訳,「高分子大辞典」,丸善株式会社 (1994)
- [73] T.Suzuki, Y.Oki, M.Numajiri, T.Miura, K.Kondo, N.Oshima and Y.Ito, Polymer 37 (1996) 5521-5524

- [74] T.Suzuki, Y.Oki, M.Numajiri, T.Miura, K.Kondo, N.Oshima, T.Hayashi, H.Nakamura, and Y.Ito, J. Radioana. Nucl. Chem. Art. 210 (1996) 555-562
- [75] Y.Ito, H.F.M.Mohamed, T.Seguchi and A.Oshima, (1996) 775-779
- [76] P.Kindl, M.Puff and H.Sormann, Phys. Stat. Sol. (a) 58 (1980) 489-494
- [77] P.Kindl, M.Puff and H.Sormann, Phys. Stat. Sol. (a) 66 (1981) 627
- [78] 東京学芸大学 金沢育三助教授との private communication(1997)
- [79] 国立天文台編,「理科年表」,丸善株式会社 (1994)
- [80] Y.Kobayashi, Trends in Macromol. Res., 1 (1994) 33-48
- [81] R.S.Brusa, M.D.Naia, D.Margoni and A.Zecca, Mat. Sci. Forum, 175-178 (1995) 655-658

付録：発表論文リスト

学術雑誌

著者による発表

1. N.Oshima, E.Hamada, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, in press.
"Application of Pulsed Slow-Positron Beam to Polymer"
2. N.Oshima, E.Hamada, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Materials Science Forum 255-257 (1997) 629-631,
"Performance Report of a Newly Developed Slow Positron Pulsing Apparatus"
3. N.Oshima, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Applied Surface Science 116 (1997) 82-86,
"Design of a High-Efficiency Short-Pulsed Positron Beam System"
4. N.Oshima, I.Kanazawa, T.Iwashita, Y.Ito, We-Hyo Soe, R.Yamamoto,
Applied Surface Science 85 (1995) 329-333,
"Multilayered Ni/Hf and solid-state amorphization studied using the slow positron beam technique"

共同研究者による発表

1. T.Suzuki, N.Oshima, E.Hamada, T.Ogawa, M.Murakami and Y.Ito,
Materials Science Forum 255-257 (1997) 351-353,
"Relaxation Behavior of Polymers at Low Temperature Studied by Positron Annihilation"
2. E.Hamada, N.Oshima, T.Suzuki, K.Sato, I.Kanazawa, M.Nakata and S.Takeuchi,
Materials Science Forum 255-257 (1997) 451-453,
"Positron annihilation studies of icosahedral AlCuRu and AlCuFe alloys"
3. T.Suzuki, Y.Oki, M.Numaziri, T.Miura, K.Kondo, N.Oshima T.Hayashi, H.Nakamura and Y.Ito,
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 210 (1996) 555-562,
"Free Volume of Cyanate Resins Studied by positron annihilation"

4. T.Suzuki, Y.Oki, M.Numaziri, T.Miura, K.Kondo, N.Oshima and Y.Ito,
Polymer 37 (1996) 5521-5524,
"Radiation effect on polypropylene studied by the relaxational behaviour at low temperature using positron annihilation"
5. K.H.Lee, Y.Itoh, I.Kanazawa, N.Oshima, T.Nakajyo and Y.Ito,
phys. stat. sol. (a) 157 (1996) 93-98,
"Practical Usage of a W Moderator for Slow Positron Beam Production"
6. Y.Itoh, K.H.Lee, T.Nakajyo, A.Goto, N.Nakanishi, M.Kase, I.Kanazawa, Y.Yamamoto,
N.Oshima, Y.Ito,
Applied Surface Science 85 (1995) 165-171,
"Slow positron production using the RIKEN AVF cyclotron"

研究会報告

著者による発表

1. N.Oshima, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Proceedings of the 11th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, (1997)114-120
"Development of a Pulsing System for Slow Positron Beam"
2. 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
理研シンポジウム「加速器を用いた陽電子利用技術の展開」 (1996)39-42
「R I ベース陽電子線の短パルス化」
3. N.Oshima, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Proceedings of the 10th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, (1996)97-103
"Design of an Efficiency Pulsing System for a Slow-Positron Beam"
4. 大島永康, 鈴木健訓, 伊藤泰男,
第2回P F低速陽電子源研究会報告 (1995)41-46
「高効率パルス化ビームの試作案」
5. 大島永康, 中條晃伸, 金沢育三, 伊藤芳子, 李根浩, 後藤彰, 中西紀喜, 加瀬昌之,
伊藤泰男,
理研シンポジウム「陽電子技術の高度化と新しい利用」 (1994)85-89
「イオンターゲットジオメトリーの選択」

共同研究者による発表

1. Y.Ito, N.Oshima, T.Suzuki, T.Kurihara, T.Shidara, K.Nakahara, I.Kanazawa, T.Nakajyo,
M.Tashiro and T.Asakuno,

第2回P F低速陽電子源研究会報告(1995)76-89

"Storage of Slow Positron Beam"

2. 中條晃伸, 大島永康, 金沢育三, 伊藤芳子, 李根浩, 後藤彰, 中西紀喜, 加瀬昌之, 伊藤泰男,
理研シンポジウム「陽電子技術の高度化と新しい利用」(1994)90-95
「理研AVFサイクロトロンを用いた低速陽電子ビームの開発」
3. 金沢育三, 山本悦章, 大島永康,
P F低速陽電子源研究会報告(1993)53-59
「低速陽電子ビームによる薄膜・人工格子への応用」

学会発表要旨

著者による発表

1. 大島永康, 濱田栄作, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
PF低速陽電子実験施設研究会要旨集(高エネルギー加速器研究機構), 1997/12/24
「放射性同位元素を用いた短パルス化低速陽電子ビーム装置の開発」第34回理工学
における同位元素研究発表会要旨集 P.83, 2p-2-10 (国立教育会館), 1997/6/30-7/2
「低速陽電子の短パルス化(2)」
2. 大島永康, 濱田栄作, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
第34回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.83, 2p-2-10 (国立教育会館),
1997/6/30-7/2
「低速陽電子の短パルス化(2)」
3. N.Oshima, E.Hamada, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Program, 11th International Conference on Positron Annihilation P.85, Poster 1-C-
19, (the University of Missouri-Kansas City, USA), 1997/5/25-30
"Development of a New Pulsing Apparatus for Slow Positrons -Application to Life-
time Measurements-
4. 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
研究会「第11回放射線検出器とその応用」要旨論文集 P.36-37, (高エネルギー物理学研究所)・1997/2/5-7
"Development of a Pulsing System for Slow e+"
5. 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤芳子, 伊藤泰男,
第33回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.64, 2a-2-8 (国立教育会館),
1116'7'1 「低速陽電子の短パルス化(2)」
6. N.Oshima, T.Suzuki, I.Kanazawa and Y.Ito,
Abstracts, 7th International Workshop on Slowpositron beam Techniques for Solids

and Surfaces, (Switzerland), 1996/6/2-7
"Design of a High-Efficiency Short-Pulsed Positron Beam System"

7. 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
研究会「第10回放射線検出器とその応用」要旨論文集 P.24-25, (高エネルギー物理学研究所), 1996/1/23-25
「放射性同位元素を利用した低速陽電子ビームの開発」
8. 大島永康, 鈴木健訓, 沖雄一, 沼尻正晴, 三浦太一, 近藤健次郎, 伊藤泰男,
第39回放射化学討論会要旨集 P.51-62, 1B10 (新潟大学), 1995/10/2-4
「陽電子消滅によるポリスチレンの低温における温度特性の研究」
9. 大島永康, 伊藤泰男, 金沢育三, 中條晃伸, 鈴木健訓, 中原和夫, 栗原俊一,
第32回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.59, 10-A-4-4, (国立教育会館),
1995/7/10-12
「高強度短パルス陽電子ビームの開発」
10. 大島永康, 伊藤芳子, 李根浩, 後藤彰, 中西紀喜, 加瀬昌之, 中條晃伸, 金沢育三,
第31回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.138, 13a-3-2, (国立教育会館),
1994/7/11-13
「理研AVFサイクロトロンによる低速陽電子ビームの発生」
11. N.Oshima, I.Kanazawa, T.Iwashita, Y.Ito, We-Hyo Soe, R.Yamamoto,
ABSTRACTS, 6th International Workshop on Slow-Positron Beam Techniques for
Solids and Surfaces, P.29, 4-4P, (Makuhari), 1994/5/18-22
"Multilayered Ni/Hf and solid-state amorphization studied using the slow positron
beam technique"
12. 大島永康, 山本悦章, 金沢育三, 岩下彪, 山口明, 山本良一, 高村三郎, 伊藤泰男,
第30回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.89, 13p-3-2, (国立教育会館),
1993/7/12-14
「低速陽電子ビームを用いた金属多層膜Cu/Hfの研究」

共同研究者による発表

1. 濱田栄作, 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
研究会「放射線検出器とその応用」要旨論文集 P.47-48, (高エネルギー加速器研究機構), 1998/1/21-23
「放射性同位元素を用いた短パルス化低速陽電子ビームの開発」
2. 鈴木健訓, 大島永康, 濱田栄作, 金沢育三, 伊藤泰男,
PF低速陽電子実験施設研究会要旨集 (高エネルギー加速器研究機構), 1997/12/24
「陽電子消滅法による高分子材料の自由体積と緩和に関する研究」

3. 濱田栄作, 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
PF低速陽電子実験施設研究会要旨集(高エネルギー加速器研究機構)、1997/12/24
「放射性同位元素を用いた短パルス化低速陽電子ビームの高分子材料への応用」
4. 鈴木健訓, 濱田栄作, 大島永康, 伊藤泰男,
第40回放射線化学討論会講演要旨集 P.65-66, 2018 (日本原子力研究所・東海),
1997/10/14-16
「陽電子消滅による高分子材料の低温における挙動」
5. 濱田栄作, 大島永康, 鈴木健訓, 伊藤泰男,
第40回放射線化学討論会講演要旨集 P.75-76, 2023 (日本原子力研究所・東海),
1997/10/14-16
「陽電子消滅による低温におけるポリスチレンの特性の研究」
6. N.Oshima, T.Suzuki, E.Hamada, I.Kanazawa and Y.Ito,
Abstracts of the Joint Symposium-Asia-Pacific Symposium on RadioChemistry '97
and The 41st Symposium on RadioChemistry, P.170, P318,(Kumamoto University),
1997/10/5-9
"Application of Pulsed Slow-Positron Beam to Polymer"
7. 濱田栄作, 大島永康, 鈴木健訓, 金沢育三, 伊藤泰男,
第34回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.84, 2p-2-11 (国立教育会館),
1997/6/30-7/2
「放射性同位元素を用いた低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定」
8. E.Hamada, N.Oshima, T.Suzuki, K.Sato, I.Kanazawa, M.Nakata and S.Takeuchi,
Program, 11th International Conference on Positron Annihilation P.82, Poster 1-C-
12, (the University of Missouri-Kansas City, USA), 1997/5/25-30
"Positron annihilation studies of icosahedral AlCuRu and AlCuFe alloys"
9. N.Oshima, T.Suzuki, E.Hamada, T.Ogawa, M.Murakami and Y.Ito,
Program, 11th International Conference on Positron Annihilation P.55, Poster 1-A-
37, (the University of Missouri-Kansas City, USA), 1997/5/25-30
"Relaxational Behavior of Polymers at Low Temperature Studied by Positron Annihilation"
10. 鈴木健訓, 沖雄一, 沼尻正晴, 三浦太一, 近藤健次郎, 大島永康, 伊藤泰男, 林利明,
中村宏,
第40回放射化学討論会講演予稿集 P.232-233, 3B02 (理化学研究所), 1996/10/22-
24
「陽電子消滅法による高分子材料の空孔分布」
11. 鈴木健訓, 沖雄一, 沼尻正晴, 三浦太一, 近藤健次郎, 大島永康, 伊藤泰男,
第39回放射化学討論会要旨集 P.59-60, 1B09 (新潟大学), 1995/10/2-4,
「陽電子消滅によるエポキシ樹脂中の硬化課程について (2)」

12. 伊藤芳子, 柿崎孝弘, 田中研也, 後藤彰, 中西紀善, 加瀬昌之, 大島永康, 鈴木健訓,
金沢育三, 中條晃伸, 伊藤泰男,
第32回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.67, 10-P-4-4, (国立教育会館),
1995/7/10-12
「理研AVFサイクロトロンによる低速陽電子ビームの発生」
13. 朝久野崇, 中條晃伸, 大島永康, 金沢育三, 岩下彪, 徐義考, 山本良一, 伊藤泰
男,
第32回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.69, 10-P-4-6, (国立教育会館),
1995/7/10-12
「低速陽電子ビームを用いた金属多層膜 Hf/Ni の測定と解析」
14. 鈴木健訓, 大島永康, 沖雄一, 沼尻正晴, 三浦太一, 近藤健次郎,
第32回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.75, 10-P-4-12, (国立教育会
館), 1995/7/10-12
「陽電子消滅による高分子材料の低温緩和特性 (2)」

謝辞

指導教官であります高エネルギー加速器研究機構の鈴木健訓先生は、本研究の進展には欠かせない多くの有益なご助言をして下さいました。また、私が研究者として自立できるよう忍耐強くご指導して下さいました。心から感謝いたします。

高エネルギー加速器研究機構共通研究施設長の近藤健次郎先生、並びに放射線科学センター長の柴田徳思先生には、研究が前進するようご指導いただき、また、いつも温かく励まして下さいました。心から感謝いたします。

高エネルギー研究機構放射線科学センターの諸先生方には、公私共に大変お世話になりました。特に、三浦先生、沖先生、沼尻先生には、実験と結果について多くの議論をしていただきました。また、宮島先生、佐々木先生、穂積先生、俵先生、飯島先生には、電子回路のことに関し多くの助言をいただき、平山先生、伴先生、波戸先生、高原先生、別所先生には計算機とソフトウェアに関してご指導していただきました。神田先生、中村先生、平先生には、研究を進めるなかで多くの助言をしていただきました。事務の豊島さんと室町さんには、事務手続き等のお世話をしていただきました。東京ニュークリアサービス(株)の方々には、実験室から装置の運び出し等ご協力いただきました。放射線科学センターの皆様に心から感謝いたします。

高エネルギー研究機構加速器研究施設の小林先生、本間先生、中原先生、設楽先生、白川先生、並びに物質構造科学研究所放射光研究施設の栗原先生には、多くの有益なご助言をしていただきました。心から感謝いたします。

高エネルギー研究機構の工作センターの方々には、実験装置の設計と製作にご助力いただきました。心から感謝いたします。

東京大学の伊藤泰男先生は、研究が良い方向へ行くよう多くの議論とご指導をして下さいました。また、研究遂行のため、数多くの実験機器を貸して下さいました。心から感謝いたします。

東京学芸大学の金沢育三先生は、有意義な議論を通していつも励まして下さいました。また、本研究で使用したFe(50nm)/PTFE試料を作成して下さいました。心から感謝いたします。

理化学研究所の伊東芳子先生は、モダレーターの研究の際にご協力いただきました。心から感謝いたします。

東京大学、原子力研究総合センターの皆様には、研究が円滑に行えるよう様々な配慮をしていただきました。心から感謝いたします。

総合研究大学院大学の後輩である濱田栄作君には、多くの助言と支援をしていただきました。心から感謝いたします。