

## 入門講座

陽電子寿命測定法  
Positron lifetime measurement technique

東京大学大学院 総合文化研究科

斎藤 晴雄

**Abstract:** The basic principles of the positron lifetime measurement technique are described. The topics are as follows: (1) timing measurements of creation and annihilation of positrons, (2)  $\gamma$ -ray detector, (3) signal processing for the  $\gamma$ -ray timing, (4) positron lifetime spectrum, (5) data analysis, and (6) fundamental annihilation process.

**Keywords:** positron, positron lifetime, measurement method,  $\gamma$  ray,  $\gamma$ -ray detector, scintillation detector, life-time spectrum

## 1. はじめに

物質中の陽電子寿命スペクトルを測定し解析することで、物質についての情報や陽電子およびポジトロニウムの振舞いについての情報を得る手法が陽電子寿命測定法である。陽電子寿命スペクトルは、陽電子が物質に入射した時刻（スタート時刻）と、その陽電子が電子と対消滅した時刻（ストップ時刻）との時間差の測定を多数回（通常  $10^6$ – $10^7$  イベント）繰り返し、横軸を時間、縦軸を頻度（回数）とした頻度分布である。本稿では陽電子寿命スペクトルの測定原理とその方法について述べる。

## 2. 陽電子消滅時刻と陽電子入射時刻の測定

陽電子の消滅時刻は、陽電子消滅  $\gamma$  線の検出により知ることができる。陽電子消滅  $\gamma$  線は、 $2\gamma$  消滅の場合は 511 keV,  $3\gamma$  消滅の場合は 0–511 keV のエネルギーを持ち、透過力が大きいので、試料や真空チェンバーの外部に置いた検出器まで容易に到達する。 $\gamma$  線は光速で進むので、試料から検出器の距離の分だけ、実際の消滅時刻とは時間ずれが生じる。しかし我々が測定するのは陽電子寿命スペクトルなので、一定量の時間ずれは寿命スペクトル全体を平行移動させるだけであり結果に影響しない。一定時間のずれはケーブル長や検出器および回路の処理時間でも生じるが同様に結果に影響しない。

陽電子入射時刻の測定法はいくつかあるが、 $^{22}\text{Na}$  の核  $\gamma$  線を利用する方法が最も簡便である。 $^{22}\text{Na}$  の原子核は陽子 11 個と中性子 11 個からなる。これは、安定な  $^{23}\text{Na}$

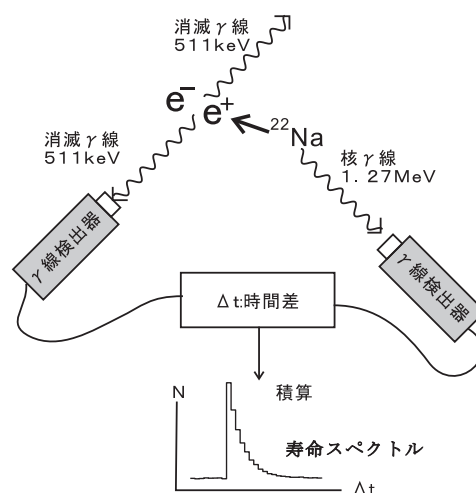
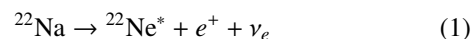


図1 陽電子寿命測定原理

(陽子 11 個, 中性子 12 個) と比較すると陽子過剰なので  $\beta^+$  崩壊を起こし, 以下の反応で陽電子を放出する。半減期は 2.6 年である。



ここで,  $\nu_e$  は電子ニュートリノである。 $^{22}\text{Ne}^*$  の励起状態の  $^{22}\text{Ne}^*$  は, 3.7 ps の半減期で基底状態に遷移する際に, 1.2746 MeV の  $\gamma$  線を放出する。この  $\gamma$  線は, 陽電子の放出とは時間差があるわけだが, その 3.7 ps という値は寿命測定的时间分解能よりも小さいので通常無視でき, この  $\gamma$  線の検出時刻を陽電子入射時刻としてよい。この方法は, 陽電子消滅  $\gamma$  線の検出器と同じものを用意すればよいのがメリットである。本稿では, この方式を使った陽電子寿命測定装置について解説する。概念図を図1に示す。

陽電子の入射時刻を, 陽電子を薄板状の検出器に透過させて知る方法 ( $\beta^+$  法) もしばしば利用される。時間分

表1 陽電子寿命測定に用いられるシンチレーター

種類	速度 (減衰時間)	発光量 (NaI(Tl) 比)	密度 g cm <sup>-3</sup>	備考
BaF <sub>2</sub>	0.8 ns	4%	4.88	タイミング信号に利用する発光波長は 220 nm (紫外線).
BC-422	1.6 ns	25%	1	旧名 NE-111A.
BC-418	1.6 ns	25%	1	立ち上がり時間が長く、時間分解能が悪い. 旧名 Pilot-U.
LaBr <sub>3</sub> (Ce)	40 ns	160%	5.29	半値幅 200 ps の時間分解能と 4%@511 keV のエネルギー分解能.

(BC はプラスチックシンチレーター)

解能は劣るが検出効率が大きいことがメリットである。薄板状の検出器として薄いプラスチックシンチレーター (<sup>22</sup>Na の場合は 0.1 mm 厚, <sup>68</sup>Ge では 0.2 mm 厚程度), アバランシェフォトダイオード, アクリル板 (チェレンコフ光を発生) などが使われる。他には陽電子ビームを RF でバンチングし入射する陽電子の時間を決める方法があり, つくば市の産業技術総合研究所陽電子ビーム施設で実用化されている。

### 3. シンチレーション検出器

γ線の検出にはシンチレーターと光電子増倍管を組み合わせたシンチレーション検出器を用いる。陽電子寿命測定に用いる検出器には, (1) 511 keV 付近で高い検出効率を持ち, (2) 時間分解能が半値幅 100 ps 程度と短いことの2点が求められる。γ線検出器の種類には他に半導体検出器や比例計数管もあるが, どちらも時間分解能が悪いため, 陽電子寿命測定に用いることができるのはシンチレーション検出器のみである。原理図を図2に示す。

シンチレーターは, 入射したγ線を紫外・可視光に変換する物質である。γ線は光電効果またはコンプトン散乱により, ある一つの電子に大きな運動エネルギーを与える。その電子は周囲の原子から別の電子を叩き出し, この過程が繰り返され, 多数の二次電子が生じる。この二次電子が多数の原子を励起させ, その励起が脱励起する

際に光が放出される。この光を物質の外まで取り出せる物質がシンチレーターである。用途に応じて多種のシンチレーターが用いられているが, 陽電子寿命測定に必要な時間分解能 (半値幅 100 ps 台) が可能なものはごく限られる。

シンチレーターは, 減衰時間, 密度 (検出効率), 発光量, 波長, 価格, 取り扱い易さ (潮解性) 等々の性質を見比べながら, 実験に最適なものを選択することになる。これまで陽電子寿命測定に使用されてきたシンチレーターについて表1に示す。

陽電子寿命測定に最も多く使われるのが BaF<sub>2</sub> シンチレーターである。密度が 4.88 g cm<sup>-3</sup> と大きく, 高い検出効率が得られる。発光の減衰時間は 0.8 ns と非常に高速である。発光量は NaI(Tl) シンチレーターの 4% である。この発光波長は 220 nm であり, 真空紫外域に近いので, 通常ガラスでは透過せず, 熔融石英 (quartz-glass) の窓を持つ光電子増倍管を使用する。また, この波長の光を透過する接着剤はないので, シリコンオイルをできるだけ薄くしてシンチレーターと光電子増倍管の窓を光学的に接続する。発光に低速成分も混じるので, 高い計数率の測定には適さない。

測定器の検出効率は, 立体角とγ線の阻止能で決まる。立体角を大きくするには, 大きなシンチレーターを用意して, できるだけ線源に近づけるのがよい。しかし, シン

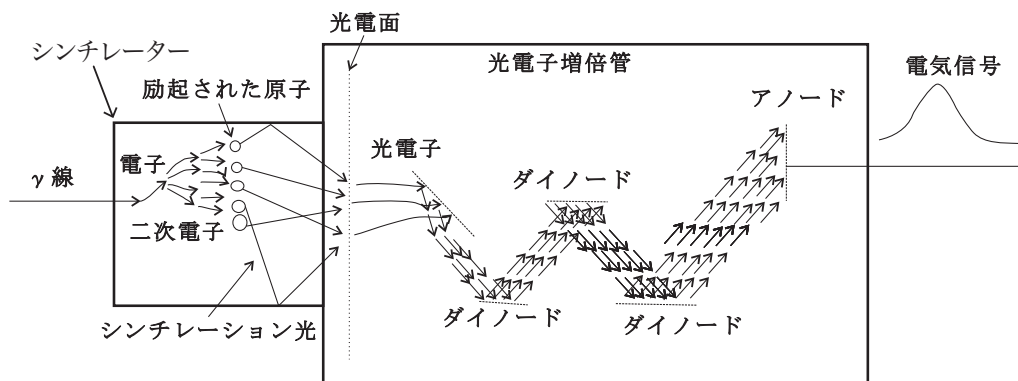


図2 シンチレーション検出器の概略図.

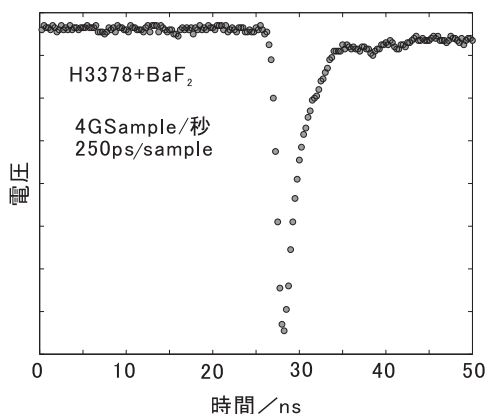


図3 BaF<sub>2</sub> シンチレーション検出器からの出力波形.

チレーターが大きくなると内部の光路差により時間分解能が悪化してしまう。BaF<sub>2</sub> の場合は  $\phi 30 \times 20$  mm 程度の結晶のサイズが標準的で、プラスチックシンチレーター (表1中のBC) ならば、低密度のため、この数倍の体積が必要である。

阻止能はシンチレーターの密度が高いほど大きい。コンプトン散乱の確率は電子数に比例し、密度におよそ比例する。一方、光電効果の確率は原子番号の5乗に比例する。どちらも原子番号の高い物質の方が有利である。20 mm 厚の BaF<sub>2</sub> の  $\gamma$  線の吸収率は、511 keV に対して60%、1.27 MeV に対して40%である。 $\gamma$  線が吸収されても発光量の少ないコンプトン散乱によるイベントもあるので、実際に使える効率はこれの数割減から半分程度である。

次に光検出器を用いてシンチレーション光を電気信号に変換する。前述のように大きな ( $\sim \text{cm}^3$ ) シンチレーターが必要なため、大面積かつ高速の光検出器が必要である。もう一つ大事なことは量子効率が十分高いことである。量子効率とは、1光子が入ったときの検出の確率のことで、シンチレーターからの光子の何%を利用できるかを表す。一般の光検出器は、デジタルカメラの CCD や CMOS など、ほとんどが半導体検出器であるが、上記

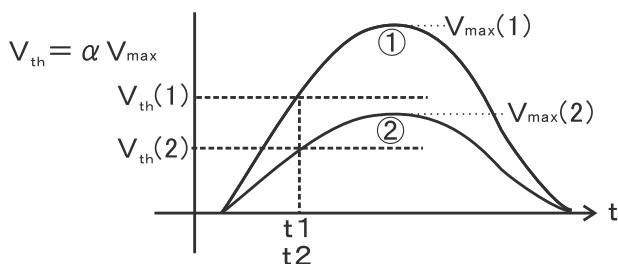


図4 コンスタントフラクション法の概念図.

の要求を満たす半導体検出器が存在しないため、陽電子寿命測定では光電子増倍管を使用する。光電子増倍管は真空管の一種である。光電面に光が入射すると光電効果により光電子が生じる。この光電子を電圧をかけたダイノードで増幅し電気信号を出力する。浜松ホトニクス製の H3378 は、直径 50 mm、光電面の直径 40 mm で、量子効率率は 20% である。BaF<sub>2</sub> と組み合わせた場合の出力信号を図3に示す。データ点の間隔は 250 ps であり、波形の立ち上がり時間は 1 ns 程度であることがわかる。

#### 4. $\gamma$ 線タイミング検出とスペクトル化

シンチレーション検出器の出力波形は、イベント毎に波高が違う。これは以下の複数の理由による。

- ・そもそも  $\gamma$  線のエネルギーがイベント毎に異なる。特にオルトポジトロニウムの測定の場合に顕著である。
- ・上記が同じであっても光電効果がコンプトン効果によってシンチレーターに付与するエネルギーが異なる。
- ・上記が同じであっても光電子増倍管に入る光子数にゆらぎが生じる。これは発光点の位置によるゆらぎと、透過や反射の確率のゆらぎによる。ポアソン分布とは異なるが、ゆらぎは光子数の平方根に比例する。
- ・上記が同じであっても光電面における光子から電子への変換が確率過程なのでゆらぎが生じる。ダイオードにおける二次電子発生も同様である。

イベント毎に波高の違う波形から  $\gamma$  線の到達時間を得るために、コンスタントフラクション法が用いられる。図4に示すように、波形が波高値の一定倍の電圧 ( $V_{th} = \alpha V_{max}$ ) を通過した瞬間を  $\gamma$  線のタイミングとする方法である。これを電子回路で近似的に実現したのが Constant Fraction Discriminator (CFD) や Constant Fraction Differential Discriminator (CFDD) と呼ばれる回路である。その内部では元の波形と一定時間遅らせた波形を引き算して、ゼロクロスタイミングを求める手法が使われている。特に EG&G ORTEC 社の 583 CFDD は陽電子寿命測定に広く用いられた。CFDD は Time-to-Amplitude Converter (TAC) と Multi-Channel Analyzer (MCA) を組み合わせて使用する。図5(a)にその回路図を示す。TAC は2つのCFDDからの信号の時間差を電圧に変換し、MCA はTACからの電圧信号の頻度分布を作る。これらは80年代から90年代にかけて広く使われたが、光電子増倍管の個体差に応じて微妙な調整が必要であり、時間分解能も十分ではなかった。

2000年代になってデジタルオシロスコープの Analog-Digital Converter (ADC) の性能が向上し、波形の形をそのままとらえて、ソフトウェアで解析するデジタル式陽電子寿命測定法が確立された。CFDD, TAC, MCA が不要になること、時間分解能が大きく向上すること、波形選別によ

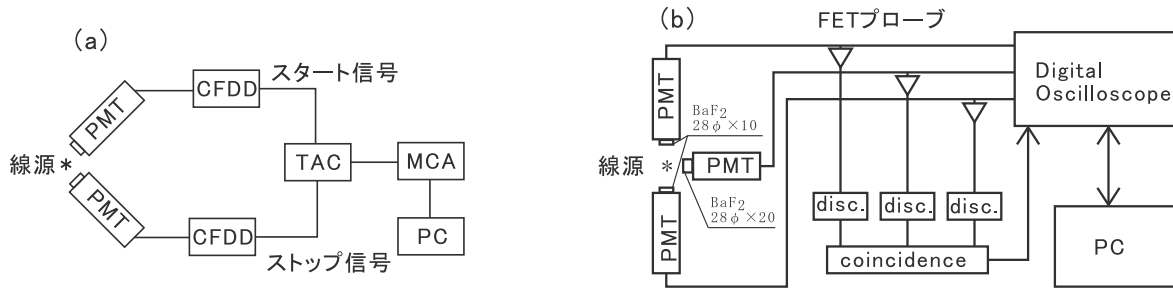


図5 (a) アナログ式陽電子寿命測定装置, (b) デジタル式陽電子寿命測定装置の概略図.

り SN 比が向上することなどのメリットがある. 図 5(b) にその回路図を示す. シンチレーション検出器は 2 本で良いが, 同図のように 3 本用いて向かい合う上下の検出器で 2 本の消滅  $\gamma$  線を同時に検出すると時間分解能が更に向上する. 波形は PC に転送され, ソフトウェアによってコンスタントフラクショントイミングの計算を行い, 時間差の頻度分布から陽電子寿命スペクトルを得る.

### 5. 陽電子寿命スペクトル

時刻  $t = 0$  において  $N_0$  個の陽電子が全て同じ状態にある場合を考える. 単位時間あたりの消滅率が  $\lambda$  であれば, 時刻  $t$  における粒子数の期待値  $N(t)$  が満たす式は,

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) \quad (2)$$

である. これを  $N(t=0) = N_0$  の初期条件で解けば,

$$N(t) = N_0 \exp(-\lambda t) \quad (3)$$

となる. 陽電子寿命スペクトル  $S(t)$  は,  $\gamma$  線を測定しているので,  $S(t) \propto -\lambda N(t)$  または  $S(t) \propto -dN(t)/dt$  である. ここではたまたま  $S(t) \propto N(t)$  になっているが, 後述するように一般には成り立たない.

陽電子の中には, すぐに消滅するものもあれば, 長く生存するものもある. 生存時間が  $t'$  と  $t' + dt'$  の間の陽電子の個数は,  $-dN/dt|_{t'=t'} dt'$  であるから, 生存時間の平均値  $\tau$  は,

$$\begin{aligned} \tau &= \frac{1}{N_0} \int_0^\infty -\frac{dN(t')}{dt'} t' dt' = \frac{1}{N_0} [-N(t)t]_{t=0}^{t=\infty} + \frac{1}{N_0} \int_0^\infty N(t') dt' \\ &= \frac{1}{N_0} \left[ -\frac{1}{\lambda} N_0 \exp(-\lambda t) \right]_{t=0}^{t=\infty} = \frac{1}{\lambda} \quad (4) \end{aligned}$$

となる. ここで  $\tau$  を平均寿命と呼ぶ. 平均寿命だけ経過すると陽電子の数は  $1/e = 1/2.718$  になる. 平均寿命  $\tau$  と半減期  $T_{1/2}$  の関係は,

$$(\log_e 2)\tau = 0.693\tau = T_{1/2} \quad (5)$$

であり, 当然平均寿命の方が長い.

陽電子寿命測定においては, 一度 (1つのイベント) に 1つの陽電子を試料に入射させ, 測定を何度も繰り返し, 積算して寿命スペクトルを得ている. 最初に多数 (例えば 100 万個) の陽電子を入射させて一つ一つの消滅時間を調べることに, 1つの陽電子を入射させて消滅時間を計る測定を 100 万回繰り返すことでは, 結果は同じなので, 上記の式はそのまま使ってよい.

入射した陽電子は, 消滅するまでに, 様々な過程を経る. これを最も単純化して, 入射した陽電子は即座に  $I_i (i = 1, \dots, N)$  の確率で  $N$  通りの状態に落ち, それぞれの状態の消滅率が  $\lambda_i$ , 平均寿命が  $\tau_i (= 1/\lambda_i)$  であるとすれば, 時刻  $t$  における陽電子の個数  $N(t)$  は

$$N(t) = N_0 \sum_{i=1}^N I_i \exp(-\lambda_i t) \quad (6)$$

であり, 陽電子寿命スペクトル  $S(t)$  は,

$$S(t) \propto \sum_{i=1}^N I_i \lambda_i \exp(-\lambda_i t) = \sum_{i=1}^N \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (7)$$

となる.  $N(t)$  と  $S(t)$  の関係は,  $N(t)$  の時間微分が  $S(t)$  になるという関係であって, 比例関係は成り立たない.

図 6 に無欠陥銅の陽電子寿命スペクトルの実例を示す. 横軸が時間, 縦軸が頻度の対数表示であり, ピークから右側の直線部分が指数関数に従う減少を表している. 銅中の陽電子による 115 ps の成分以外に, 線源の  $^{22}\text{NaCl}$  中で消滅した陽電子による 310 ps の成分がみとめられる.

### 6. データ解析

陽電子寿命スペクトルのデータ解析においては通常式 (7) を仮定し, 時間分解能を考慮したフィッティング関数を作り, 最小自乗法でデータとフィッティングする.

時間分解能の形は, 経験的にガウシアンまたは複数のガウシアンの重ね合わせが使用される. 半値幅  $\tau_{\text{res}}$  のガ

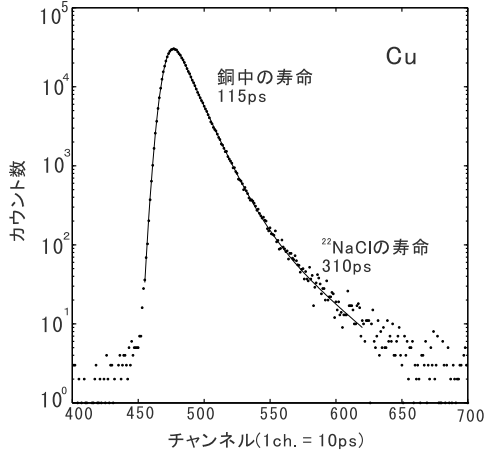


図6 アニールした銅中の陽電子寿命スペクトル.

ウシアンは,

$$R(t) = \exp\left(-\ln(2) \frac{4t^2}{\tau_{\text{res}}^2}\right) \quad (8)$$

である. ヘビサイドの階段関数  $\Theta(t)$  は,  $t < 0$  で 0,  $0 < t$  では 1 となる関数である. これを用いて, 陽電子寿命スペクトルを表すと, 時間分解能が無限に良い場合, つまり時間分解能の形がデルタ関数の場合は, 次式となる.

$$\begin{aligned} S(t) &= C\Theta(t) \sum_{i=1}^N \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \\ &= C \sum_{i=1}^N \frac{I_i}{\tau_i} \int dt' \delta(t' - t) \Theta(t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_i}\right) \end{aligned} \quad (9)$$

ここで,  $C$  は定数である. 実際は, このデルタ関数がガウシアン  $R$  に入れ替わる. すなわち,

$$S(t) = C \sum_{i=1}^N \frac{I_i}{\tau_i} \int dt' R(t' - t) \Theta(t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_i}\right) = C \sum_{i=1}^N \frac{I_i}{\tau_i} S_i \quad (10)$$

のような畳み込み積分となる. 積分の部分は,

$$\begin{aligned} S_i &= \int dt' R(t' - t) \Theta(t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_i}\right) \\ &= \int dt' \exp\left(-\ln(2) \frac{4(t' - t)^2}{\tau_{\text{res}}^2}\right) \Theta(t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_i}\right) \end{aligned} \quad (11)$$

となり, 少し変形すれば,

$$\begin{aligned} S_i &= \int dt' \Theta(t') \exp\left(-\frac{4 \ln(2)}{\tau_{\text{res}}^2} \left((t' - t)^2 + \frac{\tau_{\text{res}}^2}{4 \ln(2)} t'\right)\right) \\ &= \int dt' \Theta(t') \exp\left(-\frac{4 \ln(2)}{\tau_{\text{res}}^2} \left(t' + \frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)} - t\right)^2 - \left(\frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)} - t\right)^2\right) \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} &= \exp\left(-\left(\frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)} - t\right)^2 + t^2\right) \int dt' \Theta(t') \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{4 \ln(2)}{\tau_{\text{res}}^2} \left(t' + \frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)} - t\right)^2\right) \end{aligned} \quad (14)$$

$$= \exp\left(-\left(\frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)} - t\right)^2 + t^2\right) \int_{t - \frac{\tau_{\text{res}}^2}{8 \ln(2)}}^{\infty} dt' \exp\left(-\frac{4 \ln(2)}{\tau_{\text{res}}^2} (t')^2\right) \quad (15)$$

となり, 相補誤差関数  $\text{erfc}$

$$\text{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} \exp(-t^2) dt \quad (16)$$

に帰着する.

測定データはこれ以外にランダムコインシデンスに由来するバックグラウンドを含む. これは多くの場合は一定値とみなせるので, 時間の十分経過した真のイベントによるデータの無い部分で平均値をとってあらかじめ差し引いておく. 各点のカウント数は, バックグラウンドの差し引き前は, ポアソン分布をしている. カウント数が大きい (100 以上) 時は, ポアソン分布は正規分布で近似でき,  $n$  カウントのデータの標準偏差は  $\sqrt{n}$  となる.

最小自乗法では,  $t_i$  におけるデータ  $y_i$  ( $i = 1, \dots, N$ ), その不確かさの標準偏差  $\sigma_i$ ,  $t_i$  におけるフィッティング関数の値  $f(t_i, \vec{\tau}, \vec{I}, \tau_{\text{res}})$  に対して, フィッティングパラメーター  $\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_k, I_1, I_2, \dots, I_k, \tau_{\text{res}}$  を変化させて,

$$\chi^2(\tau_1, \dots, \tau_k, I_1, \dots, I_k, \tau_{\text{res}}) = \sum_{i=1}^N \frac{(y_i - f(t_i, \vec{\tau}, \vec{I}, \tau_{\text{res}}))^2}{\sigma_i^2} \quad (17)$$

を最小化するパラメーターの組を探す. この関数は  $\chi^2$  (カイ自乗, カイスクエア) と呼ばれる.  $\chi^2$  の最小値の期待値は  $N - n$  ( $n$  はフィッティングパラメーターの数) である.  $\chi^2 / (N - n)$  を reduced- $\chi^2$  と呼び, この最小値の期待値は 1 である. フィッティングの結果得られる reduced- $\chi^2$  (の最小値) はフィッティングが適切かどうかの目安になる. この reduced- $\chi^2$  自体ももちろん確率分布となり, その標準偏差は  $\sqrt{2/N}$  で与えられる. これは,  $N$  個の変数の  $\chi^2$  分布の平均値は  $N$ , 分散 ( $\sigma^2$ ) は  $2N$  であることによる. 例えばデータ点の数が 100 点であれば reduced- $\chi^2$  の標準偏差は 0.14 なので, 0.8 から 1.2 の間であれば異常とはいえない. もちろんこの値は単なる目安にすぎない. フィッティングの良し悪しは, 残差  $(y_i - f(t_i)) / \sigma_i$  のグラフを描くことで, 詳細な評価が可能となる.

フィッティングにおいては,  $\chi^2$  の最小値を与えるパラメーターを求めると同時に, 個々のパラメーターの不確かさを求める必要がある. そのうちの 1 つを  $\tau$  とすると,  $\tau$  はデータ  $y_i$  ( $i = 1, \dots, N$ ) で決まるので  $y_i$  の関数とみなすことができ, その不確かさ  $\Delta\tau$  は不確かさの伝播の式を

用いて、 $y_i$  の不確かさ  $\sigma_i$  から

$$(\Delta\tau)^2 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial\tau}{\partial y_i}\right)^2 \sigma_i^2 \quad (18)$$

として計算できる。少し前のプログラムではこれを計算するためにエラーマトリックス法を用いたが、現在は直接、式(18)を計算するのは容易である。フィッティングには任意性が伴うため、いたずらに多成分解析をすることなく、物理的意味を考慮して解析することが重要である。

### 7. ランダムコインシデンス

陽電子が線源から発生する時刻は予測できず、全くランダムな事象である。 $^{22}\text{Na}$  の線源強度は、通常  $3.7 \times 10^5$  Bq ( $10 \mu\text{Ci}$ ) 以下の線源が使われる。同時に2つの陽電子が試料中にあるのは望ましくないため、陽電子放出の平均の時間間隔は陽電子の寿命より十分長い必要がある。 $3.7 \times 10^5$  Bq の場合、平均時間間隔は  $3 \mu\text{s}$  であり、 $100 \text{ ps}$  から  $1 \text{ ns}$  の寿命と比較して十分大きい。それでも一定の確率で、同時に2つの陽電子が試料内に存在することは起こり、スタートの  $\gamma$  線とストップの  $\gamma$  線が、同じ陽電子由来ではないイベントが混じってくる。これをランダムコインシデンスと呼ぶ。典型的な例を用いて、ランダムコインシデンスの割合を見積もってみる。 $\phi 30 \times 20 \text{ mm}$  の  $\text{BaF}_2$  が試料から  $30 \text{ mm}$  の位置にあるとする。全立体角に対する割合は、 $\pi(15)^2/4\pi(30)^2 = 1/16$  であり、ストップ検出器 ( $511 \text{ keV}$ ) の計数率は、 $C_1 = 2 \times 3.7 \times 10^5 / 16 \times 0.6 = 27750 = 3 \times 10^4$  cps である。最初の2は  $2\gamma$  消滅の2である。スタート検出器 ( $1.27 \text{ MeV}$ ) の計数率は、 $C_2 = 3.7 \times 10^5 / 16 \times 0.4 = 9250 = 1 \times 10^4$  cps である。コインシデンスの計数率は、線源強度にスタート側の効率とストップ側の効率の積となり、 $3.7 \times 10^5 / 16 \times 0.4 / 16 \times 0.6 \times 2 = 693.7500 = 700$  cps が得られる。一方、寿命スペクトルのチャンネル(データ点)の間隔が  $10 \text{ ps}$  の場合、その  $10 \text{ ps}$  の間のランダムコインシデンスは、スタート検出器およびストップ検出器の検出効率が十分小さい場合、 $C_1 \times C_2 \times 10 \text{ ps}$  で与えられ、 $3 \times 10^8 \times 10^{-11} = 3 \times 10^{-3}$  cps となる。寿命スペクトルのピークに全カウントの  $1/10$  が存在すれば、およそ  $2 \times 10^4$  がピークとランダムコインシデンスの比率になる。このランダムコインシデンスは、平らなバックグラウンドとして寿命スペクトルに乗ってくるため、解析の際にあらかじめ差し引く必要がある。

ランダムコインシデンスは線源強度の自乗で増加するので、強い線源を使うと、データの SN 比が悪化する。また、光電子増倍管の出力パルスの重なりが起き、予期できないノイズが生じることがある。また、デジタルオシロスコープの機種によっては計数率の制限がある。

上記の議論では、ランダムコインシデンスによるバック

グラウンドが時間によらず一定である場合を考えた。これは(1)ストップの検出器の効率  $\epsilon$  が1より十分小さく、(2)ストップの検出器の計数率が十分小さい、という二つの前提の元では正しい。これらが満たされない場合や、満たされていても精密測定をする場合は考慮が必要である。陽電子寿命測定では、スタート信号一つに対し、ストップ信号一つを取って、それで1イベントの測定を終わりとする。従って、真のイベントが  $\epsilon$  の割合で取得される場合、ランダムコインシデンスは  $1-\epsilon$  倍に減少する。このため、真のイベントが観測される時間領域ではランダムコインシデンスは一定ではなくなり、1から  $1-\epsilon$  の比率で時間変化する。また、ストップの計数率が大きいと真のイベントのない時間領域でも傾きが生じる。これは時間の早いランダムコインシデンスが入ると、時間の遅いランダムコインシデンスが入りにくくなるからである。スタートから時刻  $t$  と  $t+dt$  の間にランダムコインシデンスが起こるためには、時刻  $0$  と  $t$  の間のイベントがあつてはいけない。ストップの計数率を  $C_1$  とすると、ランダムコインシデンスが  $0$  から  $t$  まで入らない確率は、 $0$  から  $t$  を  $n$  分割して、 $n \rightarrow \infty$  をとれば、

$$\lim_{n \rightarrow \infty} (1 - C_1 \frac{t}{n})^n = \exp(-C_1 t) \quad (19)$$

となる。従ってバックグラウンドは  $\exp(-C_1 t)$  の形になる。もし  $C_1 = 3 \times 10^4$  なら、傾きは  $30 \mu\text{s}$  ということである。傾きが小さく、ランダムコインシデンスの値自体も小さければ、統計不確かさに埋もれるので一定値とみなしてよいが、特殊な条件では考慮が必要となる。

### 8. 消滅過程

最後に陽電子の消滅過程から、物質中での平均寿命の関係について述べる。陽電子および電子はスピン  $1/2$  を持つ粒子である。合成スピンの値によって可能な消滅  $\gamma$  線の数が決まっており、合成スピンの値が  $0$  の場合は  $2\gamma$  消滅、合成スピンの値が  $1$  の場合は  $3\gamma$  消滅する。量子力学の本にあるスピノールの性質からわかる通り、合成スピンの値が  $0$  になる確率は  $1/4$  であり、合成スピンの値が  $1$  になる確率は  $3/4$  である。

電子1つと陽電子1つが衝突する際の  $2\gamma$  消滅断面積は、スピンの値が定まっていない場合で、かつ  $v \ll c$  であれば

$$\sigma_{2\gamma} = \frac{\pi r_0^2 c}{v} \quad (20)$$

となる。ここで、 $r_0$  は古典電子半径、 $c$  は光速、 $v$  は陽電子と電子の相対速度である。合成スピンの値が  $0$  になる確率は  $1/4$  なので、もし電子と陽電子の合成スピンの値が  $0$  と衝突前に確定していれば、 $2\gamma$  消滅断面積はこの4倍である。逆に合成スピンの値が  $1$  と決まっていれば  $2\gamma$  消滅断面積は  $0$

である。次に、 $3\gamma$  消滅断面積は、

$$\begin{aligned}\sigma_{3\gamma} &= \frac{4}{3}(\pi^2 - 9)\alpha \frac{r_0^2}{v} = \frac{4}{3\pi}(\pi^2 - 9)\alpha\sigma_{2\gamma} = \frac{\alpha}{2.710}\sigma_{2\gamma} \\ &= \frac{1}{371}\sigma_{2\gamma}\end{aligned}\quad (21)$$

とある。ここで、 $\alpha = 1/137.036$  は微細構造定数である。 $\gamma$  線の数が増えるごとに、摂動計算の次数が1つ上がり、乗数  $\alpha$  の個数が増える。もし合成スピンの1と決まっていれば、断面積は4/3倍である。

次に、固体中に陽電子が一つある場合を考える。この時は、陽電子は多くの電子との衝突を繰り返すと考えられ、電子4つに1つは合成スピン0となるので、ほとんどの場合  $2\gamma$  消滅することになる。 $2\gamma$  消滅と  $3\gamma$  消滅の比率は、上記の断面積の比であり、 $\sigma_{3\gamma}/\sigma_{2\gamma} = 1/371$  である。固体中の陽電子の消滅率  $\lambda$  は、

$$\lambda = n(\sigma_{2\gamma} + \sigma_{3\gamma})v \cong n\sigma_{2\gamma}v \quad (22)$$

で与えられる。ここで、 $n$  は衝突相手となる電子の数密度である。例としてアルミニウム中の陽電子の平均寿命を見積もってみる。アルミニウムの密度は  $2.70 \text{ g cm}^{-3}$ 、原子量は 26.98 より、原子の mol 密度は  $0.1 \times 10^6 \text{ mol m}^{-3}$ 、数密度は  $6 \times 10^{23} \times 0.1 \times 10^6 \text{ m}^{-3} = 0.6 \times 10^{29} \text{ m}^{-3}$  である。電子密度を原子密度の13倍とし、古典電子半径  $r_0 = 2.818 \times 10^{-15} \text{ m}$  を使うと、

$$\begin{aligned}\lambda &= n\sigma_{2\gamma}v = n\pi r_0^2 c \\ &= 13 \times 0.6 \times 10^{29} \times 3.1416 \times (2.818 \times 10^{-15})^2 \times 3 \times 10^8 \\ &= 5.8 \times 10^9 \text{ s}^{-1}\end{aligned}\quad (23)$$

となる。これから予想される平均寿命は 170 ps となり、実験値と近くなる。これは全く大雑把な計算であり、同じ計算をしても他の元素では一致はよくない。実際は陽電子と電子の波動関数および自由電子が陽電子に近づく効果を考慮しなければならない。

ポジトロニウムの消滅の場合は全く状況が異なる。それは、陽電子一つと電子一つの消滅であるからである。この場合、3/4の確率で合成スピンの1になるので、陽電子のうち3/4は  $3\gamma$  消滅する。上述のように、合成スピンの確定していない場合の断面積の比率は、 $\sigma_{2\gamma} : \sigma_{3\gamma} = 370:1$  なので、もし合成スピンのそれぞれ0と1に確定してい

れば、比率は  $4 \times 370 : 4/3 = 1110 : 1$  ということになる。ポジトロニウムの消滅率は、合成スピンのゼロのパラポジトロニウムの場合、電子密度として、陽電子の位置での電子の波動関数の期待値  $|\psi(0)|^2$  を使うことができ、

$$\lambda_{\text{para}} = n\sigma v = |\psi(0)|^2 4\sigma_{2\gamma}v \quad (24)$$

である。基底状態であれば、 $\lambda_{\text{para}} = 8 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  となり、平均寿命はその逆数で 125 ps である。オルトポジトロニウムの消滅率は、これの1110分の1なので、およそ  $7 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  となり、平均寿命は 139 ns となる。(これは量子電磁気学の最低次の計算であり、高次の計算および実験から、それぞれ  $7.04 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 、142 ns が得られている。)

### 参考文献

デジタルオシロスコープを用いた陽電子寿命測定装置については以下とその引用する文献。

H. Saito, Y. Nagashima, T. Kurihara, T. Hyodo: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A, **487** (2002) 612.

デジタル化以前の陽電子寿命測定装置の総括的まとめ。

F. Bečvář, J. Čížek, L. Lešták, I. Novotný, I. Procházka, F. Šebesta: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A, **443** (2000) 557.

陽電子の測定法一般。

*Positron Solid-State Physics*, W. Brandt and A. Dupasquier (Eds.), North-Holland, Amsterdam, 1983.

内容は古いですが、ポジトロニウムについてのレビュー。

S. DeBenedetti and H. C. Corben: Ann. Rev. of Nucl. Sci., **4** (1954) 191.

(2013年6月28日受付)

### 著者紹介



斎藤 晴雄: 東京大学理学部物理学科卒、博士(理学)。陽電子寿命測定をはじめとする  $\gamma$  線の高分解能検出法の開発、ポジトロニウムの原子分子物理学、消滅  $\gamma$  線の場の量子論などを研究。