

## 〔トピックス〕

## 陽電子消滅ガンマ線のドップラー効果

広島大理 吉 沢 康 和

Yasukazu YOSHIKAWA : Doppler Broadening Method of Positron Annihilation Radiation

The principle and the history of the Doppler broadening method is described. Recent topics of this method for studies of alkali halide crystals and inner electron shell structures are reviewed. In addition, characteristics of this method are summarized. [J. Cryst. Soc. Japan, 21, 342 (1979)].

## 1. はじめに

陽電子は、電子と同じ質量を持ち、正電荷を帯びている。陽電子の特徴は、電子と消滅して 511keV の 2 本のガンマ線となることである。511keV のエネルギーが静止した電子の質量に相当する。この消滅ガンマ線のドップラー効果を使って物質中の電子構造を研究する新しい方法がある。

物質中にエネルギーの高い陽電子が入ると次第にエネルギーを失って静止に近い速度まで減速され、物質中の電子と消滅する。1MeV に近い陽電子を物質中に入射しても、その 99% はほとんど静止に近いところまで減速してから消滅する。走りながら電子と消滅するものは、わずか 1% ほどである。陽電子が走りながら消滅すれば、そのエネルギーとドップラー効果のため消滅ガンマ線は幅広いエネルギースペクトルを示すはずである。しかしながら、99% がほとんど静止してから消滅するため、511keV の線スペクトルが観測されるのである。

電子と陽電子が静止した状態で消滅するとき、反対方向に 2 本のガンマ線が放射されるのは運動量の保存法則を満たすためである。この 511keV 消滅ガンマ線も電子運動のため、わずかながらドップラー効果による広がりを示す。この広がりから電子の運動量分布を知ることができる。

次にこの消滅ガンマ線のドップラー効果研究の歴史について簡単に述べよう。1940 年代後半、戦争が終わると間もなく DuMond らは彎曲型の結晶回折装置を作り、ガンマ線の精密測定をはじめた。それまで X 線回折に用いられて来た結晶回折法を数 100keV から 1MeV 余りの領域のガンマ線測定に拡大したのである。この分解能の優れた装置を用いて 511keV の消滅ガンマ線を測定し、他のガンマ線とくらべて消滅ガンマ線のエネルギー幅が広いことを発見した<sup>1)</sup>。この論文が発表されたのは 1949 年で、これは物質中の電子の運動によるドップラー効果であると説明された。このドップラー効果を利用すれば、物質中の電子の速度いかにえれば電子の運動量を知ることができる。

消滅ガンマ線は、たがいに反対方向 180° の角度に放射されるから、もし電子または陽電子が速度を持っているとその速度の方向と直角に放射された消滅ガンマ線は、運動量の保存法則から、わずかながら 180° からずれるはずである。このわずかのずれは、ドップラ

ー効果と同じような現象であるが、線源を中心に2つのガンマ線検出器をはなして置き同時計数すれば、測定できる(第1図(a))。このことに着眼してはじめて消滅ガンマ線の角相関の測定を行なったのが Benedetti ら<sup>2)</sup>である。その最初の論文が1950年に発表された。これとは独立に Mayer-Leibnitz<sup>3)</sup>が1951年にこの方法を提案している。これが陽電子消滅の角相関法のはじめである。

角相関法は、1950年代の終わりとから目覚ましい発展をしめし、特に金属のフェルミ

面の研究などに Stewart や藤原邦男らのすぐれた業績がある。しかし、ドップラー効果によるエネルギー幅の測定は、DuMond の発見以後もずっと行なわれなかった。しかし、1960年代の中頃にゲルマニウムによるガンマ線検出器すなわち Ge(Li) 検出器が出現し、彎曲型結晶回折装置にくらべて手軽な装置で 511keV の消滅ガンマ線のドップラー効果による広がり容易に観測されるようになった<sup>4,5)</sup>。この幅が、角相関の実験と矛盾しないことを指摘したのは Brimhall and Page<sup>4)</sup>(1966)である。1965年ごろから1970年ごろにかけて年々 Ge(Li) 検出器の製作技術が進歩し、エネルギー分解能がよくなっていった。

Hotz ら<sup>6)</sup>(1968)がはじめて消滅ガンマ線の広がりを解析し、van den Berg and Ramaswamy<sup>7)</sup>が多くの金属のドップラー幅を測定した(1968)。MacKenzie<sup>8,9)</sup>はドップラー幅が格子欠陥の影響を受けることを指摘した(1969)。そのころ、われわれも消滅ガンマ線の幅が物質により異なることに気づき、1969年ごろから色々の物質中での消滅ガンマ線の幅の測定をはじめた<sup>10)</sup>。Alfano ら<sup>11)</sup>は、多くの金属のドップラー幅の測定を行ない、フェルミエネルギーとの関係を示した。これらの実験により、ドップラー効果による広がり、角相関と同等のものであることが明らかになったと言えるだろう。しかし、1970年代になって非常に分解能のよい Ge(Li) 検出器ができるようになったが、角相関と比較して分解能の点では及ばなかった。その後もドップラー幅の研究は進歩し、現在では角相関、寿命測定とならんでひとつの研究方法としての位置を確立しつつある。

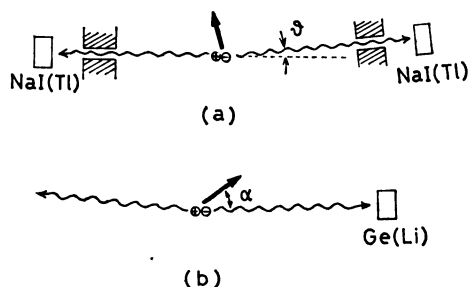
この報告では、ドップラー効果の原理と実験方法についてのべ、最近の特徴ある2,3の研究をわれわれの研究を中心に紹介することにしたい。ここでは、この方法を DOBPA 法(Dopplar Broadening Method of Positron Annihilation)と略記することにする。

## 2. 原 理

陽電子は物質中でほとんど静止状態まで減速され、電子と消滅する。物質中の電子は、あるエネルギーを持って運動している。いいかえれば、ある速度で動いている。それゆえ、電子と陽電子の系は重心速度を持っているので、消滅ガンマ線はドップラー効果を受ける。いま、この重心速度を  $v$  とし、 $v$  と角  $\alpha$  の方向に消滅ガンマ線が放射されたとき(第1図(b)参照)、ガンマ線のドップラー効果は、 $v = |v|$  として

$$E_r = E_0 \left( 1 + \frac{v}{c} \cos \alpha \right) \quad (1)$$

で表わされる。もう少し厳密には、相対論により



第1図 陽電子消滅実験の原理。(a) 角相関、(b) ドップラー効果。太い矢印は電子・陽電子系の速度、波は消滅ガンマ線を表す

$$E_r = E_0 \left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right)^{1/2} \left(1 - \frac{v}{c} \cos \alpha\right)^{-1} \quad (2)$$

$$\approx E_0 \left(1 + \frac{v}{c} \cos \alpha + \frac{v^2}{c^2} \left(\cos^2 \alpha - \frac{1}{2}\right)\right)$$

与えられる。ここに  $E_0$  は  $v=0$  のときの消滅ガンマ線エネルギーで、電子の静止質量  $E_0 = 511.0034 \pm 0.0014 \text{ keV}$

とみなすことができる\*。

消滅前の陽電子の速度がほとんどゼロとすれば、 $v$  は電子の速度の  $1/2$  で、 $v/c$  は小さく、(2)の第3項は第2項に比して小さい。 $\alpha$  は任意の角度が取れるので、 $v$  が一定ならば、第2項は  $\pm v/c$  の間に分布する。一般に  $v$  は一定でなくある範囲に分布しているから、 $E$  は  $E_0$  のまわりに分布する。いま電子のエネルギーが  $4 \text{ eV}$  であれば、 $v/c \approx 0.004$  となり、 $E$  の幅は約  $2 \text{ keV}$  である。このように消滅ガンマ線の幅は、ドップラー効果により電子のエネルギーの約  $500$  倍に拡大されるのが特徴である。

最近のゲルマニウム半導体検出器の半値幅（ピークの半分の高さのところの幅）は、 $511 \text{ keV}$  において  $1.0 \sim 1.5 \text{ keV}$  であるから、数  $\text{eV}$  の電子エネルギーに相当する幅は、消滅ガンマ線の幅で  $1 \sim 3 \text{ keV}$  になるので十分測定可能である。測定される消滅ガンマ線の幅は真の幅と検出器の幅が加わり  $2 \sim 4 \text{ keV}$  程度のものであるから、消滅ガンマ線の真のエネルギー分布を求めようとすれば、測定したスペクトルを電子計算機で解析する必要がある。

ドップラー効果による広がりの方の真の分布を解析して求めたとし、これを  $W(E_r)$  とすれば、電子と陽電子系の運動量分布は

$$N(p) \propto E_r \frac{dW(E_r)}{dE_r}$$

与えられる。すなわち、真の分布の1階微分にガンマ線のエネルギーをかけたものが、電子と陽電子系の運動量分布である。

このようにして求めた電子の運動量分布は何を表わしているか考えてみよう。これは、量子力学的考察が必要である。量子力学では電子の空間における分布は、波動関数の2乗で与えられる。それと同じように、電子の運動量分布は、運動量空間における波動関数の2乗で与えられる。勿論、この場合は電子の波動関数のみでなく、物質中での陽電子の波動関数も関係してくる。いいかえれば、われわれは運動量空間における電子と陽電子の波動関数の積の2乗を観測していることになる。運動量空間の波動関数は、位置空間の波動関数のフーリエ変換で求められる。

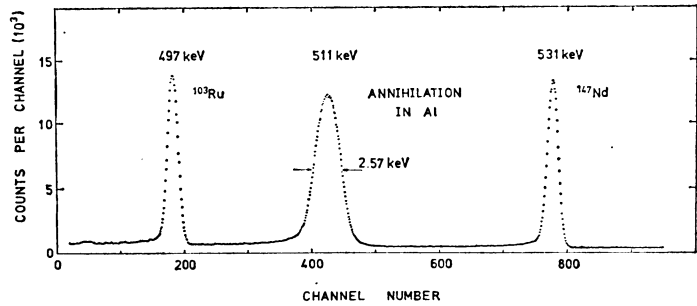
### 3. 実験方法

このDOBPA法の測定は、極めて簡単である。分解能のよいゲルマニウム検出器と多重波高分析器を用いて、消滅ガンマ線を測定すればよい。陽電子線源としては  $^{22}\text{Na}$  または  $^{68}\text{Ge}$  を用いる。一番簡単な方法は、陽電子を止めるに十分な厚さの試料 ( $3 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$  程度) 2枚の間に  $1 \sim 10 \mu\text{Ci}$  の線源をはさんで、検出器から  $10 \sim 20 \text{ cm}$  の距離に置き測定する。特に長時間の測定では、測定系の増幅率の変化などによるドリフトに注意する。

このようにして測定したスペクトルの例を第2図に示す。左側のピークは  $^{103}\text{Ru}$  のガンマ線、右側は  $^{147}\text{Nd}$  のガンマ線である。これと中央の消滅ガンマ線の幅を比較すれば、消滅ガ

\* 電子の結合エネルギーと陽電子のゼロ点エネルギーを考慮する必要があるが、ここでは省略する。

ンマ線の幅が広いことは一見して明らかである。しかし、測定器固有の分解能のために、このスペクトルは真の消滅ガンマ線スペクトルの形を示しているとは言えない。そのため、 $^{85}\text{Sr}$  か  $^{106}\text{Ru}$  のような原子核から放射される、単色スペクトルと考えられる 511keV 付近

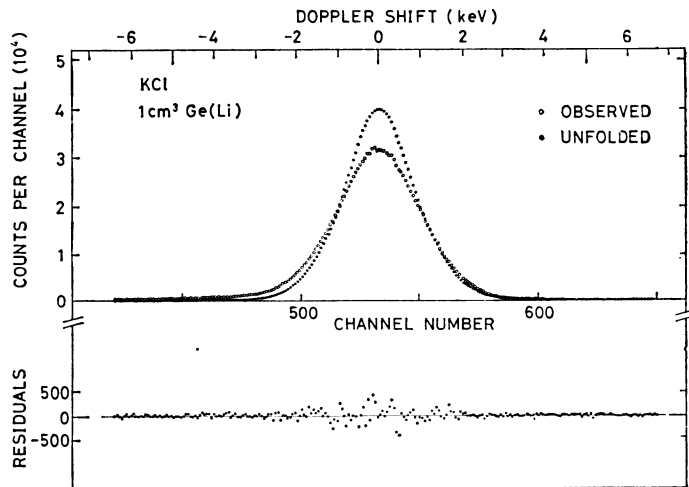


第2図 Ge(Li) 検出器で測定した陽電子消滅ガンマ線スペクトル。両側のピークは核ガンマ線

のガンマ線を測定する。この核ガンマ線のスペクトルは、完全な単色ガンマ線を測定したときの検出器固有の形と考えられる。これを検出器の応答関数という。いま、この応答関数を  $R(E_r, E)$ 、真の消滅ガンマ線分布を  $W(E_r)$  とすれば、測定されたエネルギー分布  $C(E)$  は、

$$C(E) = \int_0^\infty W(E_r) R(E_r, E) dE_r \quad (3)$$

で与えられる。 $R(E_r, E)$  と  $C(E)$  が測定されるから、 $W(E_r)$  を電子計算機で求める。うまく分布を求めるためには、このプログラムは大へん苦心のいるところである<sup>12)</sup>。このようにして求めた真の消滅ガンマ線の分布を第3図に示す。



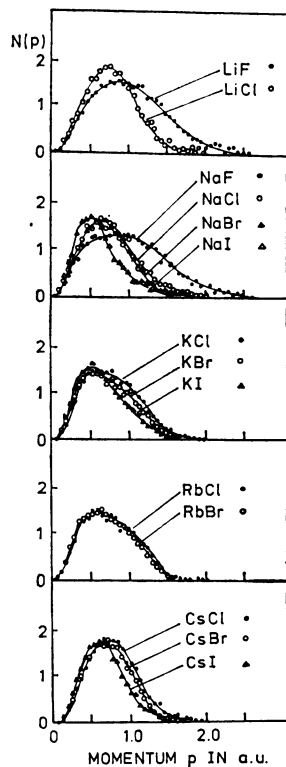
第3図 消滅ガンマ線の解析。白丸は測定したスペクトル、黒丸は電子計算機で解析した結果。この結果から再びガンマ線スペクトルを合成し、もとのスペクトルと差引したものが下の点である

#### 4. アルカリハライド

アルカリハライド中での陽電子消滅による角相関の実験は、Stewart and Pope<sup>13)</sup>によりはじめて行なわれた。その後もいくつかの角相関の実験がある<sup>14)</sup>。アルカリハライドは、一般にスペクトルの幅が広く、細い構造がないので、DOBPA 法の実験に適している。われわれは、14 種類のアルカリハライドの単結晶の DOBPA 法による測定を行なった<sup>15)</sup>。第4図に

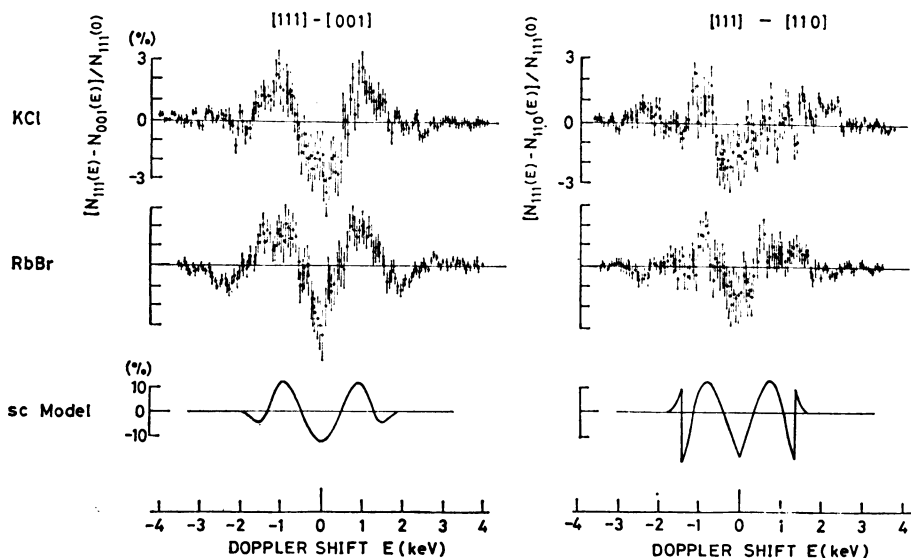
消滅ガンマ線の分布から求めた運動量分布を示す。角相関の実験と比較して統計がよくなったので、わずかの差を見ることができる。角相関ではアルカリイオンによる差はほとんど認められなかったが、第4図では明らかにその差を見ることができる。このことからアルカリハライドでは、陽電子は主にハロゲンイオンと消滅するが、アルカリイオンとも消滅することがわかるであろう。

次に、この14種の単結晶の結晶軸方向における異方性を測定した<sup>15)</sup>。DOBPA法ではこの測定は簡単である。(100)面で切断した2枚の結晶に陽電子線源をはさみ、Ge(Li)検出器に対して[100]方向で測定したときと、45°まわして[110]方向で測定したときを比較すればよい。また[111]方向も途中の角度も容易に測定できる。それらを比較するとKCl, RbCl, KBr, RbBrなどで異方性が大きく、LiF, LiCl, CsCl, CsBr, CsIなどはほとんど異方性は観測されなかった。大きな異方性を示すKCl, RbBrの[100], [110], [111]方向の消滅ガンマ線分布の異方性を第5図に示す。この図は、消滅ガンマ線の分布の面積を一定にし、2つの方向のものを差引きして得たものである。この差は、統計的変動より大きく、対称性も悪くはない。下の曲線はブリルアン・ゾーンから求めたもので、



第4図

14種のア  
リハライドに  
おける電子の  
運動量分布。  
陽電子消滅ガ  
ンマ線のドッ  
プラー効果か  
ら求めたもの  
である



第5図 KCl, RbBr の [100], [110], [111] 方向の異方性

定性的に上の実験値と傾向はほぼ一致している<sup>16)</sup>。リチウムハライドの異方性が小さいことは、Li イオンが特に小さいためと推測される。セシウムハライドの異方性が小さいのは、結晶構造が違いためであろう。厳密には先に述べたように波動関数の計算によらねばならないが、簡単なモデルで定性的説明ができるのは興味深い。

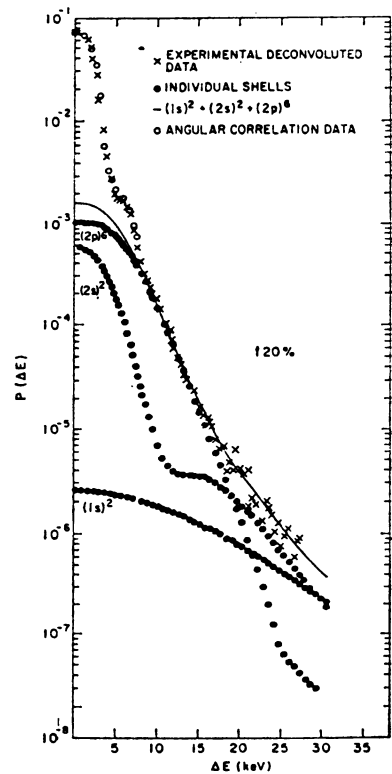
アルカリハライドについては、われわれの外に、最近 Kerr et al<sup>17)</sup> が 17 種について DOB PA 法の実験を行なったものがある。

## 5. 内部軌道電子

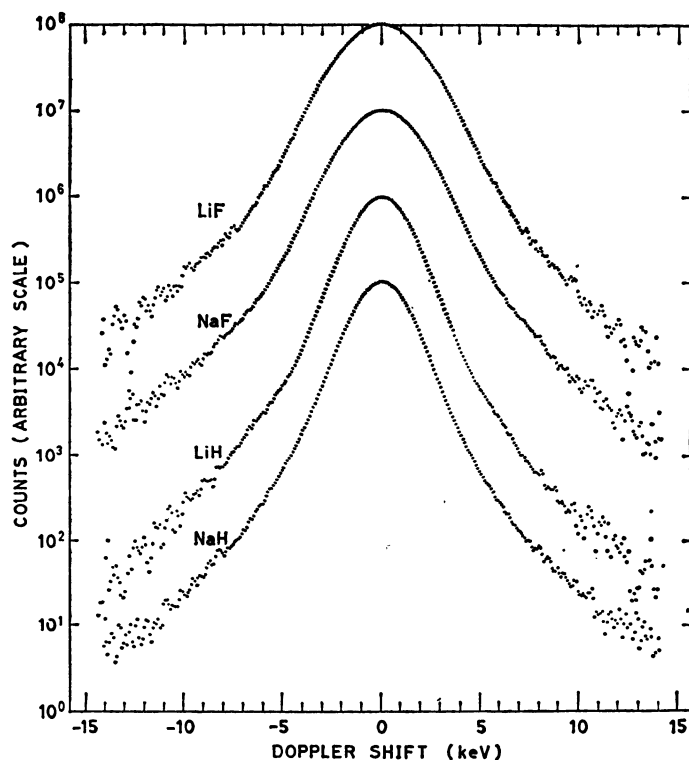
Lynn ら<sup>18,19)</sup> は、ゲルマニウム検出器を 2 つ使って同時計数を取り、ドップラー・スペクトルを測定した。この方法によれば、バックグラウンドを少なくすることができ、時間をかけて計数をためれば、エネルギーの高い計数率の少ないところまで測定できる。このようにして測定した消滅ガンマ線スペクトルを第 6 図に示す。このスペクトルからわかるように、ピークの  $10^{-5}$  程度の計数までスペクトルを観測することができる。これは角相関ではできなかったものであろう。しかし、 $10^{-4} \sim 10^{-5}$  のところは走りながらの消滅ガンマ線が高いエネルギーまで続いており、同時計数のゲートの開き方でこの形が変わる心配がある。しかし、第 6 図では 1 s 軌道まで現われており、特筆すべきことであろう。

同時計数法によらなくても、陽電子線源として  $^{68}\text{Ge}$  を用いて測定すれば、バックグラウンドを小さくし、計数の少ないところまで消滅ガンマ線の分布を測定することができる。 $^{22}\text{Na}$  では、1.27 MeV の強いガンマ線があるため、消滅ガンマ線のところに強いバックグラウンドができるが、 $^{68}\text{Ge}$  は  $^{68}\text{Ga}$  に崩壊し、1.078 MeV の弱いガンマ線を放射するにすぎない。それゆえ、消滅ガンマ線のところのバックグラウンドが少なく、同時計数ほどではなくても計数率の少ないところまで測定ができるのである。われわれが測定した LiH, NaH, LiF, NaF の粉末のスペクトルを第 7 図に示す<sup>20)</sup>。ピークの値とくらべ  $10^{-4}$  近くのところまでその形を見ることができる。この場合、走りながらの消滅ガンマ線は、バックグラウンドと共に差引されている。この LiH のスペクトルと Brandt ら<sup>21)</sup> の計算と比較すると第 8 図のようにすその方を除き、よく一致する。

一般に物質中の電子は原子の内部軌道にあるもの程、高いエネルギーの成分が含まれる。陽電子は原子の内部の方へは入りにくいので、消滅ガンマ線の強度は弱くなるが、内部軌道のもの程、スペクトルの幅は広がる。Lynn らの解析からもわかるように、強度の弱いすその方のスペクトルから内部軌道電子の運動量分布が観測される。角相関の実験ではこれ程計数をためることは困難であるから、内部軌



第 6 図 アルミニウムの消滅ガンマ線スペクトル。同時計数法を利用し、バックグラウンドを少くしたもの。各軌道の理論値と角相関の実験値も示してある。Lynn et al<sup>19)</sup>より



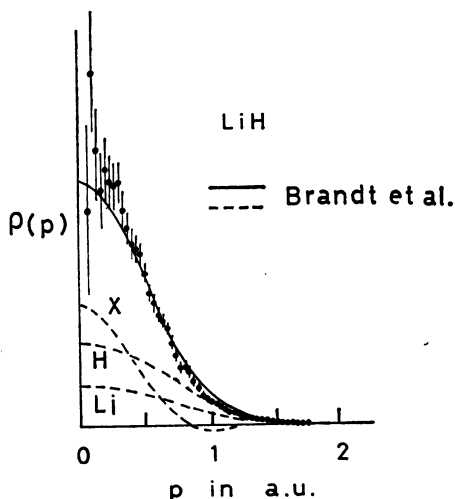
第7図 粉末の消滅ガンマ線スペクトル.  $^{68}\text{Ge}$  を陽電子線源に用いバックグラウンドを少くした

道電子の実験は DOBPA 法の実験の特徴とい  
うことができるだろう。

## 6. ドップラー効果の特徴

この DOBPA 法は、ようやく角相関の測定とくらべて別の特徴ある分野を開拓できるようになってきた。検出器の分解能は角相関の数  $\text{mr}$  に相当し、角相関とくらべ数倍から 10 倍悪い。そのため実験上の制約があることは止むをえないが、何といても陽電子線源は数  $\mu\text{Ci}$  ですむ上に測定装置が簡単で測定時間も少なくてすむところが魅力であろう。

DOBPA 法の特徴を利用した方法として、アルカリハライドのように結晶の異方性の測定と内部シェルの測定をあげたが、この外に次のようなものがある。先ず、格子欠陥に関する測定に利用される。例えば、ドップラー幅に着目して圧力や温度による変化をしらべたもの<sup>22)</sup>放射線損傷後の焼き戻しによるドップラー幅の変化をしらべた実験<sup>28)</sup>などが最近行なわれている。



第8図 LiH の運動量密度分布と理論値の比較。測定値は図7のスペクトルから求めたもので、理論値は Brandt et al<sup>21)</sup>より引用した

次に、結晶とは関係はないが、DOBPA 法の面白い適用例として 1 気圧の気体中の消滅ガンマ線の実験をあげることができる。1mCi 程度の  $^{22}\text{Na}$  を用いて希ガスや酸素のドップラー幅を測定し、酸素ではポジトロニウムの存在が見られるが、希ガスでは認められなかった<sup>24)</sup>。角相関では高压の気体を測定することはできるが、1 気圧あるいはそれ以下のものの測定は困難であろう。

この報告で述べたことをもとに DOBPA 法の特徴をまとめれば、次のとおりである。

1) 陽電子源は弱くてよい。

試料に放射線損傷を作らない。取扱が簡単で放射線しゃへの必要がない。

2) 試料の大きさ、方向などの制限が少ない。

結晶の異方性の測定、気体や溶液の測定に適している。試料の外部条件を変えやすい。

3) 計数を多くし統計を容易によくすることができる。

内部軌道電子などの測定に適している。

4) 同時計数と併用が可能である。

バックグラウンドを下げて測定が可能である。また、半減期成分別に分布の測定ができる。

以上のような長所を生かして、どのような分野が今後開拓できるであろうか。また、測定が容易であるところから、格子欠陥、化学結合などに関する応用が期待される。

## 文 献

- 1) J. W. DuMond, D. A. Lind and B. B. Watson : Phys. Rev. **75**, 1226 (1949).
- 2) S. DeBenedetti, C. E. Cowan, W. R. Konneker and H. Primakoff : Phys. Rev. **77**, 205 (1950).
- 3) H. Mayer-Leibnitz : Zeits. f. Naturfor. **6a**, 663 (1951).
- 4) J. E. Brimhall and L. A. Page : Nuovo Cimento **B43**, 119 (1966).
- 5) G. Murray : Phys. Lett. **24B**, 26 (1967).
- 6) H. P. Hotz, J. M. Mathiesen and J. P. Hurley : Phys. Rev. **170**, 351 (1968).
- 7) H. van den Berg and M. K. Ramaswamy : Nuovo Cimento **B57**, 521 (1968).
- 8) I. K. MacKenzie : Phys. Lett. **30A**, 115 (1969).
- 9) I. K. MacKenzie, J. A. Eady and R. R. Gingerich : Phys. Lett. **33A**, 279 (1970).
- 10) 井上 光, 森井恒男, 吉沢康和 : 日本物理学会講演 (北海道大学) 1971年10月1日。
- 11) F. Alfano, T. Reynolds and M. K. Ramaswamy : Nuovo Cimento **B10**, 334 (1972).
- 12) K. Shizuma : Nucl. Instr. Meth. **150**, 447 (1978).
- 13) A. T. Stewart and N. K. Pope : Phys. Rev. **120**, 2033 (1960).
- 14) B. Rosenfeld, W. Swiatkowski and J. Wesolowski : Acta Physica Polonica **29**, 429 (1966).
- 15) Y. Yoshizawa, K. Shizuma, T. Fujita and M. Nishi : J. Phys. Soc. Japan **44**, 204 (1978).
- 16) Y. Yoshizawa, K. Shizuma, T. Fujita and M. Nishi : Fifth Int. Conf. on Positron Annihilation, Lake Yamanaka 10B-IV-2 (1979).
- 17) D. P. Kerr, S. Dannefaer, G. W. Dean and B. G. Hogg : Can. J. Phys. **56**, 1453 (1978).
- 18) K. G. Lynn and A. N. Goland : Solid State Comm. **18**, 1549 (1976).
- 19) K. G. Lynn, J. R. MacDonald, R. A. Boie, L. C. Feldman, J. D. Gabbe, M. F. Robbins, E. Donderup and J. Golovchenko : Phys. Rev. Lett. **5**, 241 (1977).
- 20) K. Shizuma, Y. Yoshizawa, T. Fujita and M. Nishi : Fifth Int. Conf. on Positron Annihilation, Lake Yamanaka 10A-I-6 (1979).
- 21) W. Brandt, L. Eder and S. Lundqvist : Phys. Rev. **142**, 165 (1966).
- 22) I. K. MacKenzie, R. LeBlanc and B. T. A. McKee : Phys. Rev. Lett. **27**, 589 (1971).
- 23) K. Petersen, N. Thrane and R. M. J. Cotterill : Phil. Mag. **29**, 9 (1974).
- 24) K. Shizuma, M. Nishi, T. Fujita and Y. Yoshizawa : J. Phys. Soc. Japan **44**, 1757 (1978).