最近の研究から

スピン軌道相互作用によるポジトロニウムスピン転換反応 ~「Xe 問題」解決への道のりと新しい原子散乱研究への糸口~ Positronium spin-conversion reaction due to spin-orbit interaction

東京大学大学院総合文化研究科 澁谷 憲悟*, 斎藤 晴雄

Abstract: Positronium (Ps) spin-conversion reaction can occur during scatterings with high-Z atoms such as Xe due to the spin-orbit interaction. Ps annihilation through this reaction has been distinguished from pick-off annihilation in 2006, and has been recognized as the most probable answer for the Xe-problem, where the Ps formation fraction in gaseous Xe seems to be much lower than expected. To give the final answer for this problem, the authors have been investigating Ps interactions with atoms and molecules by using a significant feature of the reaction; Ps spin-conversion is forbidden in the *s*-wave scattering. This paper introduces the authors' recent works as well as the past, present, and future of the Xe-problem.

Keywords: positronium, spin-conversion, atomic collision, positron lifetime spectroscopy, Xe-problem, Zeeman-mixing, energy dependence, momentum transfer cross section, partial-wave expansions

1. 緒 言

ポジトロニウム (Ps) は陽電子と電子からなる水素様原 子である.陽電子が物質中に入射すると,気体・液体・固 体等の様々な環境下でPsが形成される.Psには,Psを構 成する陽電子と電子の合成スピンが1のスピン三重項Ps (*ortho*-positronium, *o*-Ps)と,合成スピンが0のスピン一 重項Ps (*para*-positronium, *p*-Ps)がある.前者は142 ns の固有寿命(周辺に他の電子が無い場合の寿命)で主に三 光子消滅し,消滅 γ 線は0–511 keVの連続スペクトルを 示す.一方,後者は125 psで主に二光子消滅し,511 keV の線スペクトルを示す.*o*-Psと*p*-Psの生成割合は,一般 的には 3:1 である.

気体中で陽電子寿命スペクトルを測定すると, o-Ps に 起因する 100 ns 前後の寿命を持つ成分(長寿命成分)が 現われることが多い. ところが, Xe の場合には,気体が He 等の場合に比べて長寿命成分の割合が非常に少なく, ほとんど Ps が形成されていないようにみえ,その原因が 長らく不明だったことから「Xe 問題」ないし「Xe パズ ル」と呼ばれてきた¹⁾. この「Xe 問題」を解く鍵として, 2006 年に, Ps の ortho-para スピン転換反応が発見され た²⁾. これにより,長寿命成分が少なくみえたのは,スピ ン転換反応で o-Ps が短寿命の p-Ps に遷移して速やかに消 減し,長寿命成分としては観測されなかったため,と定性

Kengo ShiBUYA* and Haruo SAITO (Institute of Physics, Graduate School of Arts and Sciences, The University of Tokyo), 〒153-8902 東京都目黒区駒場 3-8-1 TEL:03-5454-6540, FAX: 03-5454-6708, E-mail: shibuken@gakushikai.jp 的に理解された.しかし,定量的な議論はなお不十分で, たとえば,スピン転換反応を理論的に提案した Mitroy ら のシミュレーション結果³⁾と,実験的に検証した Saito ら の測定結果²⁾とでは,スピン転換反応が全消滅に占める 割合が数倍異なる.そのため,Xe中の Ps 形成率は今な お不明であり,「Xe 問題」が解決したとは言い難い.実験 と理論で差異を生じた原因の一つに,Ps-Xe 散乱に関す る衝突パラメータ(散乱長,有効ポテンシャル,運動量移 行断面積など)のデータ不備がある.実験値がないため, Mitroy らは Ps-H 散乱に関する独自の計算値⁴⁾で代用し たが,これらは余り適切な値ではなかった.このことか ら,筆者らは Ps-Xe 散乱の衝突パラメータの決定にも尽 力してきた.

本稿では、「Xe 問題」の最終的な解決を大目的の一つと しつつ、Ps-Xe 散乱のデータ解析でみえてきた原子衝突 研究の新しい糸口も紹介したい.以下では、スピン軌道 相互作用による ortho-para スピン転換反応を単にスピン 転換と記し、また o-Ps がスピン転換を経て p-Ps から消滅 する過程をスピン転換消滅と称する.なお、このスピン 転換には、不対電子を有する分子との電子交換反応を含 まない.

2. Ore モデルと「Xe 問題」

気体中の Ps 形成を,エネルギー的な観点で説明する大まかな描像として,Ore モデルが知られている⁵⁾.このモデルは,ある程度の運動エネルギーを持つ陽電子が原子と衝突する際に,その価電子を1つ奪い取り Ps を形成すると考える.

高エネルギー陽電子が気体へ入射すると,陽電子は周辺



図 1 Ore モデルに関与するエネルギー準位. 縦軸の左側の 2 本の矢印が示すエネルギー範囲 により F_{max} を,縦軸の右側の 2 本の矢印が示す 範囲により F_{min} を計算する.

の気体分子を励起・電離しつつ徐々にエネルギーを失う. その過程で分子から価電子を引き抜き Ps を形成する.ただし,形成された Ps の運動エネルギーが Ps の結合エネルギー ($E_{Ps} = 6.8 \text{ eV}$)よりも大きいと,その Ps が周辺の分子等と衝突した際に陽電子と電子に乖離してしまい,安定な粒子として存在できない.つまり,エネルギーが E_p の陽電子が分子に衝突するとき,この分子の第一イオン化エネルギーを E_i とすると,Ps の形成反応,

$$e^+ + M \longrightarrow Ps + M^+ \tag{1}$$

は $E_i - E_{Ps}$ だけ吸熱反応であるから,形成される Ps の運動 エネルギーは $E_p - (E_i - E_{Ps})$ となる. これが $E_p - (E_i - E_{Ps}) \ge$ E_{Ps} のとき,すなわち $E_p > E_i$ では,仮に Ps が形成されて も安定には存在できない.一方, $E_p < E_i - E_{Ps}$ のときに は,陽電子が電子を引き抜くためのエネルギーが不足し, Ps は形成されない.

Ps が形成され、かつ安定に存在するのは、陽電子のエ ネルギーがこの中間領域にあるとき、つまり、 $E_i > E_p > E_i - E_{Ps}$ のときのみである.この領域は Ore ギャップと呼 ばれる.ただし、ガス分子の最低励起エネルギーを E_{ex} と するとき、 $E_i > E_p > E_{ex}$ の場合には、Ps 形成と分子励起 が競合し、どちらが起きるかは不明である.

ここで、関連するエネルギー準位を整理すると図1の ようになる. 陽電子が非弾性散乱を繰り返して、関心の あるエネルギー領域 ($E_i > E_p > 0$)まで緩和したとき、残 されたエネルギーが一様分布であると仮定すると,図1 の縦軸より左側に示すように,全陽電子のうち Ps を形成 する陽電子の割合 F の最大値 F_{max} は,

$$F_{\text{max}} = [E_{\text{i}} - (E_{\text{i}} - E_{\text{Ps}})]/E_{\text{i}} = 6.8 \text{ eV}/E_{\text{i}}$$
 (2)

とかける.これは, $E_i > E_p > E_{ex}$ の競合領域で,100%の 確率で Ps が形成される場合である.逆に,競合領域で Ps 形成が皆無のとき F の最小値 F_{min} となり,これは図1の 縦軸より右側に示すように,

$$F_{\min} = [E_{ex} - (E_i - E_{Ps})]/E_{ex}$$
 (3)

とかける. もし Ore モデルが妥当ならば, F は概ね F_{min} と F_{max} の間に収まる.

ここで、気体として希ガスを考える。単原子分子は振動 や回転励起のモードを持たないので、Ore モデルに最も良 く当てはまると考えられる。希ガスの物性値($E_i や E_{ex}$) はよく知られている⁶⁾ので、式(2)、(3)で $F_{min} \ge F_{max} を$ 計算すると、原子番号の大きな希ガスほど Ps 形成率は高 いと予想される(表 1)。

寿命スペクトルから F を推定するには、長寿命成分の 総カウント数を 4/3 倍して Ps から消滅した陽電子の数を 求める. この方法で評価すると、原子番号の小さい方か ら 3 つ目までの希ガス (He, Ne, および Ar) では測定値 F が F_{min} と F_{max} の間に収まり、かつ単調に増加した. と ころが、次の Kr ガスの測定値 F は F_{min} よりも、あるい は Ar ガスの F よりも、小さな値となった. さらに、Xe ガスの F は、Kr ガスの F よりもさらに小さくなり、全陽 電子のわずか 3 % しか Ps を形成しないようにみえた^{1,7)}. Xe (と Kr) で Ps 形成率が、Ore モデルの予想値を大幅に 下回る理由は長らく不明であり、「Xe 問題」ないし「Xe パズル」と呼ばれてきた.

3. 「Xe 問題」の経過

「Xeパズル」を解くために,様々な実験が行われ,種々の仮説が立てられた.一連の実験結果から見出されたのは,

- 1. 長寿命成分のカウント数が少ないこと,
- 2. 未知の短寿命成分(fast component)が、寿命スペ クトルのプロンプト部分(時間原点付近)の急峻 なピーク構造(*p*-Ps に由来する)の付近に現れる⁸⁾ こと、
- Kr や Xe に, He のような軽いガスを少量混入すると、F の観測値が大きくなる(Ps 形成率が回復するようにみえる⁸⁾)こと、

であった。

	He	Ne	Ar	Kr	Xe
E _i / eV	24.587	21.565	15.760	14.000	12.130
$E_{\rm ex}$ / eV	21.218	16.671	11.624	10.033	8.437
F_{\min}	0.16	0.11	0.22	0.28	0.36
F _{max}	0.27	0.31	0.44	0.48	0.56
F	0.23	0.26	0.33	0.11	0.03

表 1 Ore モデルに関する希ガスのエネルギー準位と Ps 形成率. ただし, F はスピン転換が知られる前に評価された測定値.

以上のことなどから, Kr 中や Xe 中でも Ps は形成され ているが, o-Ps の消滅を促進する未知の機構が存在し, そ れは特に時間原点付近で (o-Ps が熱化する前に)強く発現 していること, つまり, Ps の運動エネルギーに大きく依 存する消滅経路の存在が示唆された.また,その状況証 拠として, Kr や Xe に質量の小さな He を混合すると,こ の消滅機構を逃れる o-Ps の割合が増大することがあげら れ,その物理的な理由は, Ps と衝突分子の質量比が小さく なると衝突毎に Ps が失うエネルギーが増えて熱化が早ま るためと考えられた.さらに, ACAR (angular correlation of annihilation radiation) 法でも,未知の機構は Ps の形成 時ではなく消滅時に作用することが推定された⁹.

しかし,この消滅機構の正体は不明のまま約20年が経 過した.その間,PsがKrやXeとの束縛状態を形成する との説¹⁾や,何らかの理由でピックオフ消滅率が時間(エ ネルギー)に強く依存するとの説¹⁰⁾も提唱されたが,明 確な根拠を欠いた。

これに対して, 2003 年に Mitroy らが, Kr や Xe の様な high-Z 原子と o-Ps が散乱する際に、スピン軌道相互作用 で短寿命の p-Ps にスピン転換する反応を提案した³⁾.ス ピン軌道相互作用は、原子番号Zの4乗-5乗程度に比例 する¹¹⁾ので、この消滅機構の発現において Kr や Xe が Ar 以下と異なる理由となる。また、角運動量の保存則によ り、このスピン転換はs波散乱(軌道角運動量L=0の散 乱)では禁制のため、低エネルギー領域ではスピン転換反 応の断面積はほぼ p 波散乱(L=1の散乱)の断面積に比 例すると考えられる. さらに,一般的に p 波散乱断面積 は超低エネルギー領域ではほぼエネルギーの2乗に比例 して増大する^{3,12)}.ゆえにスピン転換反応のエネルギー依 存性はエネルギーの2乗程度に比例すると予想され、こ の消滅機構が Ps の運動エネルギーに強く依存する理由に なる、以上より、この消滅機構なら観測事実を矛盾無く 説明できる可能性がある。

スピン転換反応が「Xe 問題」の答えであることを示すためには、

- 1. スピン転換反応が実際に起きていることを確かめ ること,
- 2. スピン転換反応に強いエネルギー依存性があることを確かめること,
- 3. 計算で寿命スペクトルを矛盾無く再現できること を確かめ,真のFを求めること(定量性),

が必要である.このうち,第1項については本稿第4節 で,第2項については第5節で,および第3項について は第6節で,それぞれ結果ないし経過を述べる.

4. スピン転換反応の発見と定量化

スピン転換反応の確認には、しばし時間を要した. そ れは、ピックオフによる二光子消滅とスピン転換による 二光子消滅の見分けが、容易ではなかったからである. Saito らは、磁場をかけて *o*-Ps の縮退を解きスピン転換反 応を確認した².

磁場の役割を理解するために、まず Ps に対する磁場効 果をみてみよう. 導出は文献¹³⁾を参照いただき、結果の みを示す. Ps の4つのスピン状態を、合成スピンの値 S と、そのz射影 M_s で、 $\chi = |S, M_s\rangle$ と表す. $\chi = |S, M_s\rangle$ を 電子と陽電子の個々のスピン関数でかき下すと、

$$|1, 1\rangle = \alpha_{e}\alpha_{p}$$

$$|1, 0\rangle = (\alpha_{e}\beta_{p} + \beta_{e}\alpha_{p})/\sqrt{2}$$

$$|1, -1\rangle = \beta_{e}\beta_{p}$$

$$|0, 0\rangle = (\alpha_{e}\beta_{p} - \beta_{e}\alpha_{p})/\sqrt{2}$$
(4)

の4つが固有状態である.ただし、αとβはアップとダウ ンのスピンをそれぞれ表し、添え字はそれぞれ電子 (e) と 陽電子 (p) を表す。式のうち、上3つが o-Ps であり、磁 場がなければ縮退している (三重項状態).下1つが p-Ps である (一重項状態).

磁場 B がかかると、 $|1,\pm1\rangle$ の2つでは、電子と陽電子 が互いに磁場の効果を打ち消し合い影響を受けない.一 方、 $|1,0\rangle$ と $|0,0\rangle$ は、エネルギーが変化し固有状態ではな くなる、磁場下での新しい固有状態は、

$$|1,1\rangle$$

$$|+\rangle = \left(1/\sqrt{1+y^{2}}\right)|1,0\rangle - \left(y/\sqrt{1+y^{2}}\right)|0,0\rangle$$

$$|1,-1\rangle$$

$$|-\rangle = \left(1/\sqrt{1+y^{2}}\right)|1,0\rangle + \left(y/\sqrt{1+y^{2}}\right)|0,0\rangle$$
(5)

の4つである.ここで, $y = x/(1/\sqrt{1+x^2}+1)$ および x = 4 $\mu_0 B/\Delta_{HFS}$ であり, Δ_{HFS} = 841 μ eV はポジトロニウ ム超微細構造である¹⁴⁾. つまり 2 つの新しい固有状態を |±> とかくと, これらは三重項状態の 1 つであった |1,0> と一重項状態であった |0,0> が, 磁場強度に応じて混合 (Zeeman-mixing) したものである.なお, $B \rightarrow 0$ では |+> \rightarrow |1,0> かつ |-> \rightarrow |0,0> である.

ここで、 $|+\rangle$ はスピン一重項成分を持ち二光子消滅が可 能なため、消滅率は $|1,0\rangle$ のそれよりも有意に大きい.た とえば、B = 0.83 T では、 $|+\rangle$ における $|0,0\rangle$ の混合率は 1%に過ぎないが、その固有寿命は9.3 ns となり、 $|1,\pm1\rangle$ の固有寿命(142 ns)の1/15である。わずかな混合率で も寿命が大きく変化するのは、 $|0,0\rangle$ の固有寿命が $|1,0\rangle$ の それよりも3桁短いからである。一方で、 $|-\rangle$ の固有寿命 は127 ps となり、 $|1,0\rangle$ の固有寿命(125 ps)よりもわず かに長いが、この影響は上記の変化に比べて軽微である。

磁場の有無と Ps のスピン固有状態の関係を図 2 に示 す¹⁵⁾.状態間を結ぶ矢印は起こり得るスピン転換を表す. この矢印が存在する系では、磁場を印加すると、 $|1,\pm1\rangle$ か ら寿命の短くなった $|+\rangle$ へのスピン転換により、観測され る $|1,\pm1\rangle$ (長寿命成分)の寿命が短くなる.なお、無磁場 でも $|1,\pm1\rangle$ から $|1,0\rangle$ へのスピン転換は起きるが、 $|1,\pm1\rangle$ と $|1,0\rangle$ の固有寿命は同じなので寿命値には影響しない. 以上のことから、無磁場での長寿命成分(*o*-Ps, つまり $|1,\pm1\rangle$ および $|1,0\rangle$)の寿命値と、磁場下での長寿命成分 ($|1,\pm1\rangle$)の寿命値を比べれば、スピン転換の反応速度定 数*k*が求められる.



図 2 磁場の有無による Ps 基底状態とその寿 命の違い.矢印は、スピン軌道相互作用により 起こり得るスピン転換反応を示す.

具体的には, |1,1⟩, |+⟩, |1,-1⟩, および |-⟩ の状態に ある Ps の個数に関するレート方程式を立てると式 (6) となる¹⁶. ただし λ_{po} はピックオフ消滅率, λ_3 は |1,±1⟩ の自己消滅率, および λ_{\pm} は |±⟩ の自己消滅率である. また, 各ギリシア文字は磁場強度に依存する定数で, $\xi = (1-y^2)^2 / (1+y^2)^2$, $\eta = (1-y^2)^2 / (1+y^2)$, および $\zeta = (1+y)^2 / (1+y^2)$ である. つまり, 行列の非対角要素 はスピン転換による収支を示し, 対角要素には, これに加 えて自己消滅とピックオフ消滅による支出が入る. この 系で観測し得る Ps の寿命は A の固有値と対応する. すな わち, 長寿命成分の寿命は, 最小の固有値 λ_{min} の逆数で ある.

Aには2つの未知定数, $k \ge \lambda_{po}$ が含まれる. したがっ て、 λ_{min} も $k \ge \lambda_{po}$ の関数である. 陽電子寿命スペクトル を1つ測定し、長寿命成分の寿命値がわかっても、それ だけでは $k \ge \lambda_{po}$ の2つは決定できない. すなわち、ス ピン転換消滅とピックオフ消滅が区別できない. しかし、 磁場を変化させ、もう1つ異なる条件下での寿命値がわ かれば、実験値と未知数の個数が等しくなり、 $k \ge \lambda_{po}$ の 推定が可能である.

図 3 は筆者らが測定した 3 本の寿命スペクトル(測定 温度 623 K)で、それぞれガスが無い場合、2.5 気圧の Xe を入れた場合、さらに 0.83 T の磁場を印加した場合であ る¹⁶.

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} N_{|1,1\rangle}(t) \\ N_{|+\rangle}(t) \\ N_{|-1\rangle}(t) \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} N_{|1,1\rangle}(t) \\ N_{|+\rangle}(t) \\ N_{|-\rangle}(t) \end{pmatrix}$$

$$A(k, \lambda_{po}, y) = \begin{pmatrix} -\lambda_3 - 2k - \lambda_{po} & k\eta & 0 & k\zeta \\ k\eta & -\lambda_+ - (\xi + 2)k - \lambda_{po} & k\zeta & k\xi \\ 0 & k\zeta & -\lambda_3 - 2k - \lambda_{po} & k\eta \\ k\zeta & k\xi & k\eta & -\lambda_- - (\xi + 2)k - \lambda_{po} \end{pmatrix}$$
(6)



図 3 (i) ガスが無い場合, (ii) 2.5 気圧の Xe ガ スを入れた場合, さらに (iii) (ii) に 0.83 T の磁場 をかけた場合の寿命スペクトルの違い. 測定温 度は全て 623 K.

ガスが無い場合の寿命は 128.7(3) ns であった. これは o-Ps の固有寿命(142 ns)よりも短いが,その差は Ps の 生成媒体に用いられたシリカエアロゲル(アモルファス SiO₂ 超微粒子の集合体,屈折率 1.03,密度 0.1 g cm⁻³)と のピックオフ消滅による.²²Na 線源から放出された陽電 子はシリカエアロゲルとの相互作用により,線源近傍にお いてエネルギーを失いつつ,その過程で高い確率で Ps を 形成する¹⁷⁾. Ps と Xe の相互作用は、シリカエアロゲル の大部分を占める空隙部分で起きる.また、Ps を形成し なかった低エネルギー陽電子($E_p < E_i - E_{Ps}$)は、シリカ エアロゲルの表面や内部で速やかに消滅するため、陽電 子に起因する肩状の構造が寿命スペクトルに現われない. このような特長から、シリカエアロゲルはガス中の Ps 実 験に有用である.なお、シリカエアロゲルによるピック オフ消滅率は、解析で差し引く.

Xe ガス 2.5 気圧の導入で,長寿命成分の寿命値は 85.8(3) ns に短縮された.これは, Ps と Xe の相互作用 によるスピン転換消滅とピックオフ消滅が加わったため である.ただし,前述のように,この情報だけでは両消滅 率の和しかわからない.

次に,磁場 0.83 T の印加で,寿命はさらに短縮され 70.4(5) ns となった. これは, |1,±1>から磁場で固有寿命 が短くなった |+> へのスピン転換により Ps の消滅率が増 大したためである.

磁場の有無による 2 つの寿命値を用いて式 (6)の解析 をすると、Xe に関する全消滅率 $_1Z_{eff} = 4.47 \pm 0.22$ のう ち、スピン転換消滅率が $_1Z_{eff}^{sc} = 3.11 \pm 0.14$ を占め、残り がピックオフ消滅率の $_1Z_{eff}^{po} = 1.36 \pm 0.17$ とわかった. つ まり、Xe との相互作用による Ps 消滅のうち、約7割(室 温では約半分) はスピン転換消滅であった.



図 4 Ps-Xe 散乱における二光子消滅率の内訳 とその温度依存性

1Zeff は規格化された消滅率で、元来はピックオフ消滅 率を表現するが、本稿ではスピン転換消滅率の表記にも 用いる.ガス中のピックオフ消滅率はガス密度 n に比例 するので、規格化消滅率 $_1Z_{eff} = \lambda / (4\pi r_e^2 cn)$ での表記が便 利である. 分母の $\pi r_a^2 cn$ は Dirac の消滅率, つまりスピン 偏極していない数密度 n の電子の海を陽電子が十分に小 さな速度(v << c)で飛行する場合のスピン平均した消滅 率であり、reは電子の古典半径 (2.817×10⁻¹⁵ m) である. これを4倍するのは、全電子のうち陽電子との合成スピ ンが0となる電子(全体の4分の1)のみがピックオフ消 滅率に寄与するためである. つまり、1Zeff は Ps が衝突し た原子1個当たりに,陽電子からみた対消滅相手の電子 が実質的に何個存在するかを表す(なお,陽電子単体の消 滅率はZ_{eff}とかく).たとえば、Heは1原子当たりに価電 子2個を有し、各価電子とPsを形成する陽電子との合成 スピンが0の確率は1/4なので、1Zeff = 2/4 = 0.5となり そうだが、実際には 0.125(2) である¹⁸⁾. これは Ps の電子 と He の価電子との交換相互作用が、ピックオフ消滅を妨 げる方向に働くためと理解される.

5. スピン転換反応のエネルギー依存性とその応用

スピン転換消滅とピックオフ消滅の区別が可能になっ たので、スピン転換反応のエネルギー依存性を調査した. 実験では、チェンバー全体の温度制御(300 K-623 K)で、 周囲と熱平衡状態に達した Ps の平均エネルギー(40 meV-80 meV)を変化させた.このような超低エネルギー領域 では、p 波散乱断面積はエネルギーの2 乗にほぼ比例し て増大するので、平均速度(衝突頻度)が温度の0.5 乗に 比例して増大することを加味すると、第一次近似として、 スピン転換消滅率は温度の約2.5 乗に比例して増大する と予想される.



図5 実線(ρ)は 623 K で熱平衡下にある Ps の速度分布 (Maxwell-Boltzmann 分布)で、破線 は p 波散乱断面積³⁾. また、点線は単位時間当 たりにスピン転換消滅する Ps の個数,つまり 各速度にある Ps の個数 ρ と、p 波散乱断面積と σ_p 、および速度 v を掛け合わせたもの、縦軸は 任意単位、

これに対して測定結果では、図4のように、スピン転 換消滅率は温度の 2.08(1) 乗に比例して増大し、ピックオ フ消滅率は温度の 1.03(1) 乗に比例して増大した¹⁶⁾。スピ ン転換消滅率の温度依存性は予想(2.5 乗)よりも小さい が、これは以下のように Ps の速度分布で説明できた。寿 命スペクトルの傾きが一定となった時間領域(図3では 160 ns 以降) では Ps は周囲と熱平衡状態にあり、その速 度が Maxwell-Boltzmann 分布に従う(図5の実線)とし て計算すると、スピン転換消滅数(ある速度にある Psの 個数と、その速度における p 波散乱断面積と、その速度 の3つを掛け合わせたもの)のグラフは Psの速度分布の グラフを右ヘシフトしたような分布 (図5の点線)になっ た. つまり, スピン転換消滅率の強いエネルギー依存性に より、Psの速度分布の右(高エネルギー)側の裾に含まれ る Ps の寄与がスピン転換消滅の全数の大半を占める.こ の片寄りで部分的にエネルギー依存性が打ち消され、結 果として温度の 2.08(1) 乗となることが確認された¹⁶⁾.こ のようにして、スピン転換反応の強いエネルギー依存性 が確認され、定量的にも理解された.

一方で、ピックオフ消滅率が温度の 1.03(1) 乗に比例す ること、つまり 600 K に加熱すると 300 K の 2 倍強とな ることは、他の気体で同 1.1 倍–1.3 倍との報告¹⁸⁾ に比べ て、予想外に大きな温度依存性である。この原因は、現時 点では特定できない。この解明も目指して、第6節で述 べる解析を進めている。

次に,筆者らはスピン転換消滅率のエネルギー依存性を

66 © Japanese Positron Science Society

利用して,逆に Xe 中で Ps の二光子消滅率を測定して Ps のエネルギーに換算することで,Ps のエネルギーの時間 発展を精度良く求める方法を考案した¹⁹⁾. エネルギーの 時間発展が明らかになれば,運動量移行断面積等の Ps-Xe 散乱の定量的な理解に不可欠な基礎データが得られ,「Xe 問題」の最終決着に向けて一歩前進となる.

二光子消滅率の測定系は、二光子消滅 γ線の一方をエ ネルギー分解能に優れた HP-Ge 検出器で測定し、他方を 時間分解能に優れた BaF₂ シンチレーション検出器で測定 するもので、²²Na の壊変に付随して発生する核 γ線と合 わせた三重同時計数測定により運動量情報と時間情報を 同時に取得する.この測定系は、AMOC (Age-Momentum Correlation)測定²⁰⁾ と類似するが、エネルギー分解能の 要求仕様は AMOC のそれよりも低い.そのため、HP-Ge 検出器を LaBr₃(Ce) シンチレーション検出器で置き換え ることも可能であった.その詳細は別の機会に紹介する. LaBr₃(Ce) 検出器で、運動量情報と時間情報の双方を取得 すれば二重同時計数で済み、より高い計数率が得られる.

ここでは、三重同時計数測定系のデータを示す. HP-Ge で測定された消滅 γ 線のエネルギーが 511 keV の光電 ピークの領域 (509 keV-515 keV) に含まれれば二光子消 滅を検出したものとし、光電ピークと 340 keV 付近に現 れるコンプトンエッジの間の領域 (410 keV-473 keV) に 含まれれば三光子消滅を検出したものとする. それぞれ にイベントを弁別して、二光子寿命スペクトル ($I_2(t)$) と 三光子寿命スペクトル ($I_3(t)$) を作成する.

ここで、二光子消滅と三光子消滅の検出率を $\epsilon_2 \ge \epsilon_3$, *o*-Ps の総数を *N*(*t*)、二光子消滅率と三光子消滅率を $\lambda_2(t)$ $\ge \lambda_3$ (= 7.04×10⁶ s⁻¹) とすると、両寿命スペクトルは、

$$I_{2}(t) = \epsilon_{2}\lambda_{2}(t)N(t)$$

$$I_{3}(t) = \epsilon_{3}\lambda_{3}N(t)$$

$$N(t) = N_{0}\exp\left\{-\int_{0}^{t} \left[\lambda_{2}(t) + \lambda_{3}\right]dt\right\}$$
(7)

とかける. ただし, N₀ は N(t) の初期値である. ここで N(t) を消去し, 式を整理すると,

$$\lambda_2(t) = (\epsilon_3/\epsilon_2) \lambda_3 \left[I_2(t)/I_3(t) \right] \tag{8}$$

を得る.つまり各時刻 t での二光子寿命スペクトルと三 光子スペクトルのカウント数比は,その時刻における二 光子消滅率の定数倍となる.この比例定数の決定方法は 後述する.

図6に、室温250 kPaのXeガス中での両寿命スペクト ルを示す.長寿命成分の寿命値は共通(101.4 ns)であっ た.二光子寿命スペクトルでは、消滅率が一定となるま でに100 ns 程度を要するが、これはXeの質量が大きい ため衝突毎のエネルギー損失が小さく、Psの熱化に時間 を要するからである.一方、三光子寿命スペクトルでは、 30 ns 程度で消滅率が一定となる.これは λ_3 が一定値で

陽電子科学 第7号(2016)



図 6 250 kPa の Xe ガス中で測定した, (a) 二 光子消滅寿命スペクトル, (b) 三光子寿命スペク トル. 各挿入グラフは, HP-Ge で測定したエネ ルギースペクトルに, 各寿命スペクトルの抽出 範囲を表示したもの,

あり,二光子寿命スペクトルに比べると,Psのエネルギー 変化の影響を受けにくいためである(式(7)).したがっ て,Psの熱化が問題となる測定では,三光子寿命スペク トルが有用な場合もあり得る.

図 7 に、二光子寿命スペクトルを三光子寿命スペクトルで割った結果 $[I_2(t)/I_3(t)]$ を示す.双曲線状の単調減 少関数が得られ、十分に時間が経過すると比は一定となる: $I_2(t)/I_3(t)|_{t\to\infty} = 1.73(3)$.また、寿命値より $\lambda_2(t)|_{t\to\infty} = 2.82(6) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ もわかる.この2つの収束値を式(8)へ 代入すると、 $\epsilon_3/\epsilon_2 = 0.231(6)$ が得られる.以上で二光子 消滅率の時間発展 $\lambda_2(t)$ が絶対値で求められた.ここで ϵ_2 と ϵ_3 の個々の絶対値は不要である.

熱平衡状態下の o-Ps の二光子消滅率(スピン転換消滅 率とピックオフ消滅率の和)と温度との関係は既知(図4) であるから,この関係を用いて図8の縦軸の二光子消滅 率を Ps の平均エネルギー(Ē)に換算できる.比較のた め, Chang らが Doppler 法で測定したシリカエアロゲル



図7 二光子消滅寿命スペクトルと三光子寿命 スペクトルの比 [*I*₂(*t*)/*I*₃(*t*)]. 十分に時間が経つ と両寿命スペクトルの傾きは,寿命値 101.4 ns で等しくなり,比は 1.73 に収束する.



図8 Xe ガス (250 kPa) およびシリカエアロゲ ル中における, Ps の二光子消滅率と平均エネル ギーの時間発展.フィッティング曲線は古典的 な弾性散乱を仮定した熱化モデル^{17,26)}を使用. 分解能の比較用に Doppler 法で測定されたシリ カエアロゲル中 (ガス無し)における Ps のエネ ルギーの時間発展²¹⁾を付記.

中(ガス無し)の Ps の熱化データ²¹⁾ も併記した.また, Engbrencht らも同様に Doppler 法で,He ガス中での Ps の 熱化をガス圧を変えながら測定しているが,熱化近傍で の \bar{E} の分解能は 70 meV 程度であった²²⁾.これに対して 本稿図 8 では同 2 meV 程度で,また測定点数も多い.こ のように本測定法は従来法と比べて,縦軸・横軸ともに分 解能が優れている.

従来法には, Doppler 法²¹⁻²⁴⁾ と ACAR 法^{17,25)} がある

が、いずれも二光子消滅にしか感度がなく, o-Ps を二光 子消滅させるための磁場を要する. データとなるのは, 元々 |1,0> の状態にあった o-Ps のうちで Zeeman-mixing により二光子消滅した分のみである. これに対して,本 測定法は磁場が不要で,また三光子消滅もデータとなる ことから,感度は Doppler 法の6倍以上と推定され,図8 では1 ns 間隔でプロットしても十分な統計精度を維持で きた. また,複雑な deconvolution も必要ない.

また,従来法のうち Doppler 法では,測定する消滅 γ 線 のエネルギー揺動 ΔE_{γ} (511 keV からのずれ)は,消滅直前 の Ps の運動量うち γ 線の放射方向に平行な成分 (HP-Ge 検出器に向かう成分)を p_{\parallel} として $\Delta E_{\gamma} = cp_{\parallel}/2$ となる. 一方, ACAR 法では,測定する消滅 γ 線対の角度揺動 $\Delta \theta$ (相対角度の π からのズレ)は, p_{\parallel} に直交する運動量成分 を p_{\perp} ,電子の質量を m_e として $\Delta \theta = p_{\perp}/m_ec$ となる.し たがって,両従来法では Ps の運動量に比例する量,つま り Ps のエネルギーの 0.5 乗で変化する量を測定する.こ れに対して,本手法で測定する二光子消滅率は,温度依存 性の少ないピックオフ消滅の分を加えても,Ps のエネル ギーの 1.46 乗に比例して変化する.

ここで、

各測定手法で40 meV と 60 meV の Ps を見分け る能力を比較してみる.まず, ACAR 法では, 40 meV の Ps の運動量で生じる角度揺動は 0.6 mrad であり, 60 meV では同 0.8 mrad であることから, 40 meV と 60 meV の Ps で 0.2 mrad の差が生じる. この差を, ある一次元 ACAR 装置の角度分解能 0.5 mrad で割った値を Ps エネルギーを 見分ける能力の指標 Pとすると、P = 0.4 である. Doppler 法では, 40 meV の Ps の運動量で生じるエネルギー揺動は 140 eV であり、60 meV では同 200 eV であることから、両 者の差は 60 eV である. これを, ある高純度 Ge 半導体検 出器の 511 keV におけるエネルギー分解能 1.2 keV で割る と、P=0.05である。最後に、本手法では、2.5気圧のXe ガスと 0.1 g cm⁻³ のシリカエアロゲル中において, 40 meV の Ps の二光子消滅率は 2.9×10⁶ s⁻¹ であり, 60 meV で は同 7.8×10⁶ s⁻¹ であることから, 差は 4.9×10⁶ s⁻¹ であ る、ここで、ある陽電子寿命測定装置による長寿命成分 の寿命決定精度を 0.4 ns とすると, 100 ns の寿命に対して 消滅率で4.0×10⁴ s⁻¹の分解能に相当するので P = 120 と なる.以上のことから、本手法における Ps のエネルギー 分解能は ACAR 法よりも 2 桁程度向上することが期待さ れ、熱化近傍のわずかなエネルギー変化も精度良く測定 できた.

図 8 中のフィッティング曲線は,古典的な弾性散乱を 仮定した熱化モデルに基づく $\bar{E}(t) = E_{th} \coth^2(\alpha + \beta t)$ の 形の双曲線関数である^{17,26)}.ただし, E_{th} は熱浴のエネル ギー, α は Ps の初期エネルギーで決まる定数, β は熱化 の時定数である.フィッティング結果は,20 ns 以降の時 間帯 (\bar{E} では 40 meV-60 meV の範囲)で良好であった. βの内訳は、Xe との衝突に関する項($β_{Xe}$)と、シリカ エアロゲルとの衝突に関する項($β_{SAG}$)に分けて、

$$\beta = \beta_{Xe} + \beta_{SAG}$$

$$\beta_{Xe} = (\sigma_m n_{Xe} v_{th}) \cdot (2m_{Ps}/M_{Xe}) \qquad (9)$$

$$\beta_{SAG} = (v_{th}/\bar{l}) \cdot (2m_{Ps}/M_{SAG})$$

とかける. ここで、 σ_m は十分に熱化 (40 meV-60 meV) した Ps が Xe と散乱する際の運動量移行断面積、 n_{Xe} は Xe の数密度、 v_{th} は十分に熱化した Ps の平均速度、 m_{Ps} は Ps の質量、 M_{Xe} は Xe 原子の質量、 \bar{l} はシリカエアロゲルの 微粒子間の平均距離(本研究では 70 nm¹⁷⁾)および M_{SAG} は Ps と衝突する際のシリカエアロゲル表面原子団の実効 的な質量である.

フィッティングの結果によれば, Xe のガス圧が 100 kPa のときに $\beta^{-1}(n_{Xe}) = 121(6)$ ns であり, 250 kPa のときに $\beta^{-1}(n_{Xe}) = 89(2)$ ns であったことから, Ps が十分に熱化 した状態で $\sigma_m = 12(2) \times 10^{-16}$ cm² と求められた¹⁹⁾. こ れは, Xe の van der Waals 半径から算出される断面積 (14.7×10⁻¹⁶ cm²) に近い値である.

今後は He 等のガスを Xe と混合して β を測定すること で, He 等の運動量移行断面積も決定したい.

6. 原子散乱研究の新たな糸口(今後の展開)

Ps が原子・分子等のポテンシャルがおよぶ空間を通過 するとき、Ps の感じるポテンシャルが引力の場合には引 き込まれて波の位相が進み、逆に斥力では位相が遅れる. このように、位相シフトには散乱に関する情報が含まれ る.軌道角運動量が L の入射波に対する位相シフト δ_L は、ポテンシャルの形状を無視した最低近似(形状独立近 似)で、

$$\cot \delta_L(k) = k^{-(2L+1)} \left(-A_L^{-1} + r_L k^2 / 2 \right) \tag{10}$$

と表される⁴⁾. ここで, k d Ps の波数, A_L は散乱強度を表 すパラメータ, r_L はポテンシャルのおよぶ範囲を表すパラ メータである.特に,低エネルギーで散乱を支配する s 波 散乱での $A_0 \ge r_0 \varepsilon$, それぞれ散乱長 (scattering length) および有効到達距離 (effective range) と呼ぶ.式(10) に 示す以上の高次項は,ポテンシャルの形状 (r^{-n}) に応じ て適宜考慮される²⁷⁻³⁰.

Ps-Xe 散乱ではスピン転換反応も起きるが,第3節で述 べたように、この反応はs波散乱では禁制のため、s波散 乱とp波以上 ($L \ge 1$)の散乱を分けて考えられるモデル が適当である。そこで Ps の入射波を平面波(球面調和関 数の重ね合わせ)とし、それぞれの軌道角運動量を持つ部 分波毎に位相シフトを考える部分波展開の方法を選んだ。

この方法を適用すると、Psのスピン転換消滅率(Asc)

とピックオフの消滅率(A_{po})は、それぞれ、

$$\Lambda_{\rm sc}(k) = \frac{n_{\rm Xe} f_{\rm sc}}{2} \frac{\int \rho(k) \left\{ \sum_{L=1}^{\infty} \sigma_L(k) \right\} k dk}{\int \rho(k) dk}$$

$$\Lambda_{\rm po}(k) = \frac{n_{\rm Xe} f_{\rm po}}{2} \frac{\int \rho(k) \left\{ \sum_{L=0}^{\infty} \sigma_L(k) \right\} k dk}{\int \rho(k) dk}$$
(11)

とかける.ここで、 f_{sc} と f_{po} はそれぞれ散乱 1 回当たり のスピン転換消滅率およびピックオフ消滅率であり、 $\rho(k)$ は Ps の波数分布(熱平衡状態では Maxwell-Boltzmann 分 布)である. σ_L は角運動量 L の部分波の弾性散乱の断面 積であり、式 (10) の位相シフト δ_L とは、

$$\sigma_L(k) = 4\pi k^{-2} \left(2L + 1\right) \sin^2 \delta_L(k) \tag{12}$$

の関係にある. Λ_{sc} には *s* 波散乱の寄与がないので,部分 波の総和を *L* = 1 からとる. ここで,式 (11) により図 4 の Λ_{sc} と Λ_{po} をフィッティングするには, $\bar{E} < 100$ meV の 超低エネルギー領域で*d* 波散乱まで (*L* ≤ 2) を考慮する と,変数は A_0 , r_0 , A_1 , r_1 , A_2 , r_2 , f_{sc} および f_{po} の 8 つ が必要である. これらの値が定まれば,運動量移行断面 積のエネルギー依存性も,

$$\sigma_{\rm m}(k) = 4\pi k^{-2} \sum_{L=0}^{\infty} (L+1) \sin^2 \left[\delta_L(k) - \delta_{L+1}(k)\right]$$
(13)

と計算できる³¹⁾.以上で、陽電子寿命スペクトルや ACAR のデータを再現するのに必要な情報が出揃う.これらの データを再現できれば,真の Ps 形成率 F を求めて「Xe 問題」の最終的な回答が得られる.

一般的には,超低エネルギー領域での散乱はほとんど が s 波散乱であり, p 波散乱や d 波散乱のパラメータを 精度良く測定するのは容易でない.しかし,スピン転換 反応が s 波禁制であることから,スピン転換消滅率は主 に p 波散乱により,ピックオフ消滅率は主に s 波散乱に よると考えられる.いいかえれば,二光子消滅率の計測 は極めて p 波散乱に感度の高い測定方法であり,超低エ ネルギー領域で行われている種々の電子散乱実験^{31,32)}と 比較してもユニークである.また,Ps 自体は中性粒子の ため,電場や磁場による制御は困難であるが,筆者らの実 験方法ではチェンバーの温度を変えるだけで 100 meV 以 下での平均エネルギーを ±2 meV 程度の精度で変化させ て,s 波散乱と p 波散乱のデータを細かく測定できる.こ のような物理的な特長を活かして,原子・分子散乱の新し い研究を切り開くべく鋭意取り組んでいる.

7. まとめ

Xe 中でほとんど Ps が形成されていないようにみえる 「Xe 問題」の原因は、スピン軌道相互作用によるスピン転 換反応と考えられているが、定量的な議論が不足してお り真の Ps 形成率 F も不明である.スピン転換反応を理解 し活用する上で、この反応が s 波禁制であるという点が 非常にユニークであり、この物理的な特徴に対応し、新た な情報を引き出すためのデータ解析手法が求められてい る.筆者らは、部分波展開の方法を適用することで、ス ピン転換反応を含む系の全体を理解しつつ、超低エネル ギー領域における原子衝突研究に新たな突破口を開くべ く、精進している.その過程で「Xe 問題」の全貌も明ら かにし、これまでの様々なデータを矛盾無く包含する形 で真の形成率 F を求め、数十年来の議論を決着させたい.

辞

本稿第5節-第6節で紹介した内容のうち筆者らの遂行 する研究は、科学研究費補助金(齋藤15H03703および澁 谷16K17771)の支援を受けています。

謝

参考文献

- G. L. Wright, M. Charlton, T. C. Griffith, G. R. Heyland: J. Phys. B-At. Mol. Phys. 18 (1985) 4327.
- 2) H. Saito, T. Hyodo: Phys. Rev. Lett. 97 (2006) 253402.
- 3) J. Mitroy, S. A. Novikov: Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 183202.
- 4) I. V. Ivanov, J. Mitroy, K. Varga: Phys. Rev. A 65 (2002) 032703.
- 5) M. Charlton: Rep. Prog. Phys. 48 (1985) 737.
- 6) W. M. Haynes (Ed.): *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 96th Edition (Taylor & Francis, USA, 2015) Section 10.
- P. G. Coleman, T. C. Griffith, G. R. Heyland, T. L. Killeen: J. Phys. B-At. Mol. Phys. 8 (1975) L185.
- 8) T. C. Griffith, G. R. Heyland: Phys. Rep. 39 (1978) 169.
- M. Kakimoto, T. Hyodo: J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys. 21 (1988) 2977.
- M. Tuomisaari, K. Rytsölä, P. Hautojärvi: J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys. 21 (1988) 3917.
- 11) D. D. Sarma: Proc. Indian Acad. Sci. Chem. Sci. 90 (1981) 19.
- 12) T. Hyodo, T. Nakayama, H. Saito, F. Saito, K. Wada: Phys. Status Solidi C 6 (2009) 2497.
- 13) Y. Nagai, Y. Nagashima, T. Hyodo: Phys. Rev. B 60 (1999) 7677.
- 14) A. Ishida, T. Namba, S. Asai, T. Kobayashi, H. Saito, M. Yoshida, K. Tanaka, A. Yamamoto: Phys. Lett. B 734 (2014) 338.
- 15) H. Saito, T. Nakayama, T. Hyodo: J. Phys. Conf. Ser. 194 (2009) 012038.
- 16) K. Shibuya, T. Nakayama, H. Saito, T. Hyodo: Phys. Rev. A 88 (2013) 012511.
- Y. Nagashima, M. Kakimoto, T. Hyodo, K. Fujiwara, A. Ichimura, T. Chang, J. Deng, T. Akahane, T. Chiba, K. Suzuki, B. T. A. McKee, A. T. Stewart: Phys. Rev. A 52 (1995) 258.
- 18) R. S. Vallery, A. E. Leanhardt, M. Skalsey, D. W. Gidley: J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys. 33 (2000) 1047.
- 19) K. Shibuya, Y. Kawamura, H. Saito: Phys. Rev. A 88 (2013) 042517.
- 20) N. Shinohara, N. Suzuki, T. Chang, T. Hyodo: Phys. Rev. A 64

(2016年7月7日受付)

- (2001) 042702.
- 21) T. Chang, M. Xu, X. Zeng: Phys. Lett. A 126 (1987) 189.
- 22) J. J. Engbrecht, M. J. Erickson, C. P. Johnson, A. J. Kolan, A. E. Legard, S. P. Lund, M. J. Nyflot, J. D. Paulsen: Phys. Rev. A 77 (2008) 012711.
- 23) M. Skalsey, J. J. Engbrecht, R. K. Bithell, R. S. Vallery, D. W. Gidley: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 3727.
- 24) Y. Sano, Y. Kino, T. Oka, T. Sekine: J. Phys. Conf. Ser. 618 (2015) 012010.
- 25) Y. Nagashima, T. Hyodo, K. Fujiwara, A. Ichimura: J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys. **31** (1998) 329.
- 26) W. C. Sauder, R. D. Deslattes: J. Res. Natl. Bur. Stand. A.-Phys. Chem. 71A (1976) 347.
- 27) O. Hinckelmann, L. Spruch: Phys. Rev. A 3 (1971) 642.
- 28) P. S. Ganas: Phys. Rev. A 5 (1972) 1684.
- 29) J. Mitroy, M. W. J. Bromley: Phys. Rev. A 68 (2003) 035201.
- 30) A. R. Swann, J. A. Ludlow, G. F. Gribakin: Phys. Rev. A 92 (2015) 012505.
- 31) M. Kitajima, M. Kurokawa, T. Kishino, K. Toyoshima, T. Odagiri, H. Kato, K. Anzai, M. Hoshino, H. Tanaka, K. Ito: Eur. J. Phys. D 66 (2012) 130.
- 32) 北島 昌史: 原子衝突学会誌 11 (2014) 40.



著者紹介

澁谷憲悟:東京大学工学系研究科システム量子工学専攻修了.博士(工学).医学物理士.JSPS特別研究員(DC,3年間),放射線医学総合研究所ポスドク(1年間),JSPS特別研究員(PD,3年間)を経て,現職(助教).専門は,陽電子物理学,PET

用 γ 線検出器開発, およびシンチレータ材料開発. 2016 年 日本物理学会若手奨励賞受賞.



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γ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γ線の 場の量子論などを研究.