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滅し、長寿命成分としては観測されなかったため、と定性

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

Kengo Shibuya* and Haruo Sarro (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

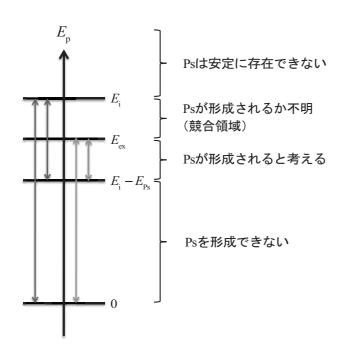


図 1 Ore モデルに関与するエネルギー準位. 縦軸の左側の2本の矢印が示すエネルギー範囲 により F_{max} を、縦軸の右側の 2 本の矢印が示す 範囲により F_{min} を計算する.

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 Ep 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, P_s の形成反応,

$$e^+ + M \longrightarrow Ps + M^+$$
 (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 - $(E_i$ - $E_{Ps})$ \geq 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、 $E_{\rm i} > E_{\rm p} >$ 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, $E_{\rm i} > E_{\rm p} > E_{\rm ex}$ 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,

$$F_{\min} = [E_{\text{ex}} - (E_{\text{i}} - E_{\text{Ps}})]/E_{\text{ex}}$$
 (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} と 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,
- 3. 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 _{ex} / eV	21.218	16.671	11.624	10.033	8.437
•	F_{min}	0.16	0.11	0.22	0.28	0.36
•	$F_{\sf max}$	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 Ps に対する磁場効みを示す。 Ps の 4 つのスピン状態を、合成スピンの値 Ps と、その Ps 射影 Ps が、 Ps と表す。 Ps を電子と陽電子の個々のスピン関数でかき下すと、

$$\begin{aligned} |1,1\rangle &= \alpha_e \alpha_p \\ |1,0\rangle &= (\alpha_e \beta_p + \beta_e \alpha_p) / \sqrt{2} \\ |1,-1\rangle &= \beta_e \beta_p \\ |0,0\rangle &= (\alpha_e \beta_p - \beta_e \alpha_p) / \sqrt{2} \end{aligned} \tag{4}$$

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、 $y = x/\left(1/\sqrt{1+x^2}+1\right)$ および $x = 4\mu_0 B/\Delta_{HFS}$ であり、 $\Delta_{HFS} = 841$ μeV 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 $|\pm\rangle$ とかくと、これらは三重項状態の 1 つであった $|1,0\rangle$ と一重項状態であった $|0,0\rangle$ が、磁場強度に応じて混合 (Zeeman-mixing) したものである. なお、 $B \longrightarrow 0$ では $|+\rangle \longrightarrow |1,0\rangle$ かつ $|-\rangle \longrightarrow |0,0\rangle$ 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.

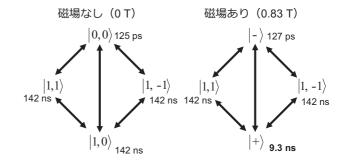


図 2 磁場の有無による Ps 基底状態とその寿命の違い、矢印は、スピン軌道相互作用により起こり得るスピン転換反応を示す。

具体的には, $|1,1\rangle$, $|+\rangle$, $|1,-1\rangle$,および $|-\rangle$ 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 $|1,\pm1\rangle$ の自己消滅率,および λ_\pm は $|\pm\rangle$ 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, $\xi=\left(1-y^2\right)^2/\left(1+y^2\right)^2$, $\eta=\left(1-y^2\right)^2/\left(1+y^2\right)$,および $\zeta=(1+y)^2/\left(1+y^2\right)$ 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と λ_{po} が含まれる。したがって、 λ_{min} もkと λ_{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と λ_{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と λ_{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 160

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} N_{|1,1\rangle}(t) \\ N_{|+\rangle}(t) \\ N_{|-\rangle}(t) \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} N_{|1,1\rangle}(t) \\ N_{|+\rangle}(t) \\ N_{|-\rangle}(t) \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} N_{|1,1\rangle}(t) \\ N_{|+\rangle}(t) \\ N_{|-\rangle}(t) \end{pmatrix}
A(k, \lambda_{po}, y) = \begin{pmatrix} -\lambda_3 - 2k - \lambda_{po} & k\eta & 0 & k\zeta \\ k\eta & -\lambda_+ - (\xi + 2)k - \lambda_{po} & k\zeta & k\xi \\ 0 & k\zeta & -\lambda_3 - 2k - \lambda_{po} & k\eta \\ k\zeta & k\xi & k\eta & -\lambda_- - (\xi + 2)k - \lambda_{po} \end{pmatrix}$$
(6)

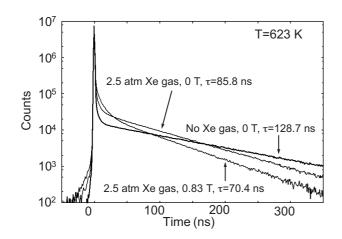


図 3 (i) ガスが無い場合, (ii) 2.5 気圧の Xe ガスを入れた場合, さらに (iii) (ii) に 0.83 T の磁場をかけた場合の寿命スペクトルの違い。 測定温度は全て 623 K,

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 SiO_2 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. 22 Na 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、 $|1,\pm 1\rangle$ から磁場で固有寿命 が短くなった $|+\rangle$ 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 $_1Z_{eff}=4.47\pm0.22$ のうち、 $_1Z_{eff}=4.47\pm0.14$ を占め、残りがピックオフ消滅率の $_1Z_{eff}^{po}=1.36\pm0.17$ 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。

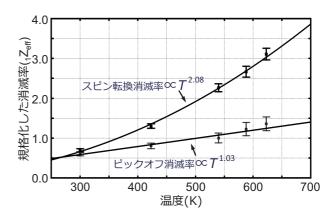


図 4 Ps-Xe 散乱における二光子消滅率の内訳とその温度依存性

1Zef 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 $_1Z_{\text{eff}} = \lambda/\left(4\pi r_e^2 cn\right)$ での表記が便 利である. 分母の $\pi r_e^2 cn$ 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、 r_e 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、₁Z_{eff} 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、 $_1Z_{eff} = 2/4 = 0.5$ 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.

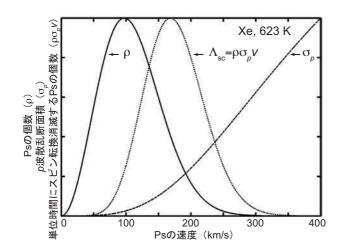


図 5 実線 (ρ) は 623 K で熱平衡下にある Ps の速度分布(Maxwell-Boltzmann 分布)で、破線は p 波散乱断面積 3)。また、点線は単位時間当たりにスピン転換消滅する Ps の個数、つまり各速度にある Ps の個数 ρ と、p 波散乱断面積と σ_p 、および速度 v を掛け合わせたもの、縦軸は任意単位

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 グラフを右へ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

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 BaF_2 シンチレーション検出器で測定するもので、 22 Na 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 $\mathrm{LaBr}_3(\mathrm{Ce})$ 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。 $\mathrm{LaBr}_3(\mathrm{Ce})$ 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 ϵ_2 と ϵ_3 , o-Ps の総数を N(t),二光子消滅率と三光子消滅率を $\lambda_2(t)$ と λ_3 (= 7.04×10^6 s⁻¹)とすると,両寿命スペクトルは,

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

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

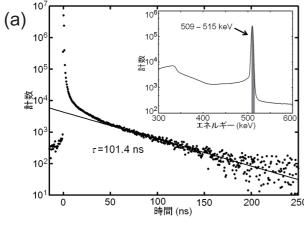
$$N(t) = N_{0} \exp\left\{-\int_{0}^{t} \left[\lambda_{2}(t) + \lambda_{3}\right] dt\right\}$$
(7)

とかける. ただし, N_0 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



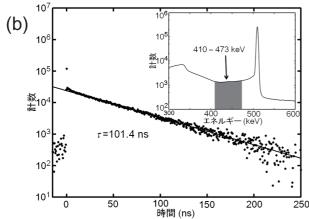


図 6 250 kPa の Xe ガス中で測定した, (a) 二 光子消滅寿命スペクトル, (b) 三光子寿命スペクトル. 各挿入グラフは, HP-Ge で測定したエネルギースペクトルに, 各寿命スペクトルの抽出範囲を表示したもの.

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 $\lambda_2(t)|_{t\to\infty}=2.82(6)\times10^6$ 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(\bar{E})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

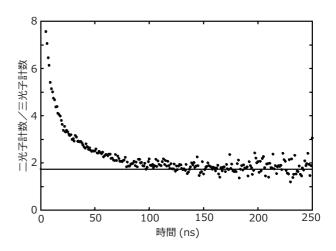


図 7 二光子消滅寿命スペクトルと三光子寿命 スペクトルの比 $[I_2(t)/I_3(t)]$. 十分に時間が経つ と両寿命スペクトルの傾きは、寿命値 101.4 ns で等しくなり、比は 1.73 に収束する.

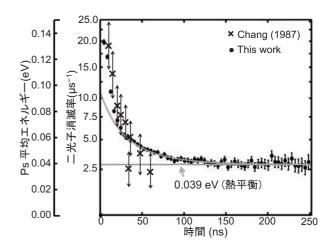


図8 Xe ガス (250 kPa) およびシリカエアロゲル中における、Ps の二光子消滅率と平均エネルギーの時間発展。フィッティング曲線は古典的な弾性散乱を仮定した熱化モデル^{17,26)} を使用、分解能の比較用に Doppler 法で測定されたシリカエアロゲル中 (ガス無し) における Ps のエネルギーの時間発展²¹⁾ を付記.

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 $|1,0\rangle$ 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 $\Delta \theta = p_{\perp}/m_{e}c$ 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 2.9×10^6 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 $4.0 \times 10^4 \, \text{s}^{-1}$ 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 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、

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

$$\beta_{Xe} = (\sigma_{m} n_{Xe} v_{th}) \cdot (2m_{Ps}/M_{Xe})$$

$$\beta_{SAG} = (v_{th}/\bar{l}) \cdot (2m_{Ps}/M_{SAG})$$
(9)

とかける. ここで、 $\sigma_{\rm m}$ は十分に熱化($40\,{\rm meV}$ – $60\,{\rm meV}$)した Ps が Xe と散乱する際の運動量移行断面積、 $n_{\rm Xe}$ は Xe の数密度、 $v_{\rm th}$ は十分に熱化した Ps の平均速度、 $m_{\rm Ps}$ は Ps の質量、 $M_{\rm Xe}$ 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 $70\,{\rm nm}^{17}$)および $M_{\rm SAG}$ 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 $(14.7\times 10^{-16}$ 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、

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

と表される⁴⁾. ここで, k は 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 と r_0 を, 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 2^{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 (Λ_{sc})

とピックオフの消滅率 (Λ_{no}) 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 P_{s} 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、

$$\sigma_L(k) = 4\pi k^{-2} (2L+1) \sin^2 \delta_L(k)$$
 (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($L \leq 2$)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。

謝辞

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。

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.
- T. Hyodo, T. Nakayama, H. Saito, F. Saito, K. Wada: Phys. Status Solidi C 6 (2009) 2497.
- 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.
- H. Saito, T. Nakayama, T. Hyodo: J. Phys. Conf. Ser. 194 (2009) 012038.
- K. Shibuya, T. Nakayama, H. Saito, T. Hyodo: Phys. Rev. A 88 (2013) 012511.
- 17) 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.
- R. S. Vallery, A. E. Leanhardt, M. Skalsey, D. W. Gidley: J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys. 33 (2000) 1047.
- 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

(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.
- 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.
- 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.

(2016年7月7日受付)

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.