

論文の内容の要旨

論文題目 ハロゲン化メタン気体中におけるオルソ・ポジトロニウムの消滅率
氏名 和田 健

陽電子と電子が水素原子様に束縛状態を形成したポジトロニウム (Ps) のうち、スピン 3 重項であるオルソポジトロニウム (*o*-Ps) の自己消滅率は $1/142 \text{ ns}^{-1}$ で、スピン 1 重項のパラポジトロニウム (*p*-Ps) の $1/125 \text{ ps}^{-1}$ と比べて 3 桁も小さい。そのため、気体中での気体原子・分子との相互作用による消滅率の変化は *o*-Ps でより顕著にあらわれる。

気体中で観測される *o*-Ps の消滅率 λ_{ob} は、真空における 3 光子自己消滅率 $\lambda_{3\gamma}$ と、気体原子・分子との衝突による消滅率 λ_{q} の和となる。その消滅率を、ディラックによる電子-陽電子対のスピン 1 重項からの 2 光子消滅率 $4\pi r_0^2 c$ および気体の数密度 n で規格化したパラメータ $1/Z_{\text{eff}} = \lambda_{\text{q}}/4\pi r_0^2 cn$ で整理すると便利である (r_0 は古典電子半径, c は光速)。このパラメータは、元々は、Ps と原子・分子の衝突の際に、Ps 中の陽電子が、それとスピン 1 重項となる電子と 2 光子消滅するピックオフ消滅過程に対して導入されたものであるが、本研究ではピックオフ消滅過程に限定せずにこれを用いる。

様々な気体原子・分子に対する *o*-Ps の消滅率の測定が過去 50 年以上にわたって行なわれてきた。これまでに測定された $1/Z_{\text{eff}}$ の値をグラフにまとめて図 1(a) に示す。

NO_2 と Br_2 と I_2 分子の値は桁違いに大きい。これは Ps が気体分子と共鳴状態になってから消滅する化学的消滅を起こすためであると考えられている。また、 O_2 と NO 分子は、衝突の際に Ps と分子の電子交換によるスピン転換消滅を起こす。それ以外の気体分子はピックオフ消滅が支配的である。Kr と Xe に対しては、Ps はスピン軌道相互作用によるスピン転換消滅も起こすことが最近明らかとなった。原子番号の大きい Xe に対して、その効果がより顕著である。

このように、様々な気体原子・分子の $1/Z_{\text{eff}}$ の測定が行なわれてきたが、常温での蒸気圧が低い気体分子に対しては、測定が困難であるために調べられていなかった。しかし、そのような気体分子は分子間相互作用が大きい。測定されたデータが図 1(a) のどこに位置するか興味深い。

Ps と気体原子・分子の相互作用の研究には、線源からの陽電子を気体中に放出して Ps を生成する方法が盛んに用いられてきたが、この方法では試料気体が低圧になるほど測定が困難になる。低圧気体中では、Ps の生成割合がへってしまい、十分な *o*-Ps の寿命成分が得られにくいからである。また、多くの気体で低圧になればなるほど Ps を形成しない自由陽電子の寿命が長くなり *o*-Ps の寿命成分との分離が難しく、*o*-Ps の消滅率の解析が困難となる。

一方、Ps と気体原子・分子との相互作用の研究に、シリカ超微粒子が 3 次元ネットワーク構造を構築したシリカエアロゲルを Ps 生成媒質及びマイクロチャンバーとして用いる方法が、1980 年代後半から行なわれたはじめた。これを用いれば、気体の数密度によらず十分な量の Ps を生成することができる。また、Ps にならない陽電子はシリカ微粒子中でいち早く消滅してしまい、シリカ微粒子間の十分大きな空隙中に出て長寿命である *o*-Ps 成分から分離できる。

ただし、Ps 生成にシリカエアロゲルを用いる手法では、微粒子表面との衝突による *o*-Ps の消滅は

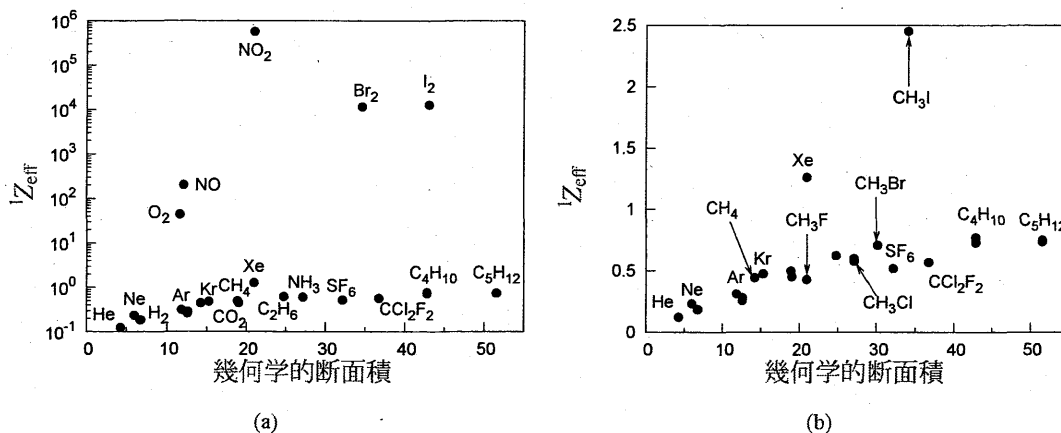


図1 (a) はこれまでに測定された様々な気体の $Z_{\text{eff}} = \lambda_q / 4\pi r_0^2 cn$ の値。粘性率から求めた幾何学的断面積 (πa_0^2 で規格化した。 a_0 : ボーア半径) に対してプロットした。様々な論文から引用したが、その多くは M. Charlton, *Rep. Prog. Phys.*, **48**, 737 (1985) にまとめられている。(b) は (a) の一部を縦軸をリニアに直して拡大したもの。矢印で示した CH₄, CH₃F, CH₃Cl, CH₃Br, CH₃I のデータは本研究によって測定された値。

バックグラウンドになる。それが気体の数密度に依存しなければ容易に差し引くことができるが、気体分子が微粒子表面へ吸着することでバックグラウンドの値が変化するとその見積りは難しくなる。

この問題については、表面状態は同じだがシリカ超微粒子間の空隙の平均差し渡しが異なるシリカエアロゲルを用いて補正する新たな方法により解決した。これにより、シリカエアロゲルの利点をいかし、これまで行なわれていなかった常温における飽和蒸気圧の小さな気体に対する *o*-Ps の消滅率を測定することが可能となった。

この新しい手法で得られた Z_{eff} の値は、CH₄ が 0.44(3), CH₃F が 0.46(3), CH₃Br が 0.70(4) であった。CH₃Cl については、2 種類のシリカエアロゲルを用いて従来の方法で測定したが、他の試料気体の結果を参考にして、 Z_{eff} の値を 0.58(4) と見積った。CH₃I については 1 種類のシリカエアロゲルでしか測定していないが、 Z_{eff} は 2.45(9) であった。それらの値を、本研究以前に得られた他の気体に対する値とともにプロットして図 1(b) に矢印で示す。

Z_{eff} の値と永久双極子モーメントの値には直接の関係は見られなかった。Ps と気体分子間にはたらく配向、誘起、分散力によるポテンシャルを計算すると、配向力はゼロで、誘起力は分散力より桁違いに小さい。永久双極子モーメントの値は、配向力と誘起力にのみ関係するので、分子間力と Z_{eff} の値の大きさに関連があったとしても、永久双極子モーメントの大きさは寄与しない。

CH₃I の Z_{eff} の値が図 1(b) の中で著しく大きいことの原因については、この実験結果のみからはまだはっきりしたことは言えない。電子交換によるスピン転換消滅は、標的分子中の電子の始状態と終状態のいずれかがスピン 1 重項でないときに起こるが、熱化した Ps と CH₃I 分子の間では起こらない。CH₃I の基底状態の電子はスピン 1 重項であり、最低励起エネルギーは 6eV より大きいからである。また、化学的消滅にしては、値が小さすぎる。このことから、最も可能性が高いのは、Xe 等にも見られているスピン軌道相互作用によるスピン転換消滅である。