

入門講座

放射性同位体を用いたスピン偏極陽電子ビーム
Radioisotope-based spin-polarized positron beam

日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター

河裾 厚男

Abstract: In this article, I report, the spin polarization of positrons emitted from radioisotopes, the development of spin-polarized positron beams, the fundamental aspects of spin-polarized positron annihilation method, and the investigation of current-induced spin polarization on metal surfaces through the spin-polarized positronium annihilation.

Keywords: spin, spin polarized positron, spintronics, magnetism, surface

1. 緒言

1956年, Yang と Li¹⁾ は, 弱い相互作用に関係する過去のすべての実験を再検討し, パリティ保存の証拠がないことから, その成否を検証するための実験を提案した. 1957年, Wu ら²⁾ は ^{60}Co の β^- 崩壊において, パリティが保存しないことを示した. パリティ非保存の場合, β 崩壊に伴い放出される電子(陽電子)は進行方向にスピン偏極している. Wu らの直後, Hanna と Preston³⁾ は, ^{64}Cu の β^+ 崩壊に伴う陽電子のスピン偏極性を示した. 陽電子のスピン偏極性が明らかになると, 陽電子と電子の準安定結合状態であるポジトロニウムの研究が進展し, 同時にスピン偏極陽電子を用いた強磁性バンド構造の研究が黎明期を迎えた. 1960年台後半になると, 陽電子が固体中の原子空孔や高分子中の自由体積を鋭敏に検出できることがわかり, 陽電子を用いた研究はその応用へ展開された. 一方, 強磁性バンド構造の研究手法として磁気コンプトン法が開発されたため, スピン偏極陽電子を用いた物性研究は一転して影を潜めた.

物性研究においてスピン偏極陽電子に再び注目が集まったのは, 1979年に米国ミシガン大グループ⁴⁾ がスピン偏極陽電子ビームを開発したときであった. 当時は, 超高真空技術の向上や走査トンネル顕微鏡の発明などがあり, 表面物性研究が急速に進展しつつある時期でもあった. 表面では, バルクとは異なる磁気現象が起こり得ると考えられ始めており, 強磁性体表面では磁気秩序が消失するという「Dead Layer」仮説⁵⁾ が提唱され, それを検証するために新しいプローブの開発が求められた. ミシガン大グループは, ^{58}Co 線源を用いてスピン偏極率22%の

陽電子ビームを得た. また, スピン偏極率の低い低エネルギー陽電子を除去することで, 最大70%程度までビームの偏極率を向上できると報告している. 1982年, 同グループはスピン偏極陽電子ビームをNi表面磁性の研究に適用し, この表面が磁氣的「Dead Layer」ではなく「Live Layer」であると報告している⁶⁾. こうして, スピン偏極陽電子ビームが表面磁性の研究に有用である可能性が示された. ところが, この論文を最後にスピン偏極陽電子ビームを用いた研究が継続的に行われることはなかった. 我が国では, 1997年-1999年に都立大⁷⁾ と理研⁸⁾ の研究グループが, それぞれ ^{27}Si と ^{18}F 線源を生成し, スピン偏極陽電子ビームの発生を試みている.

近年, 電子の電荷とスピンを活用することで, 省電力かつ高速動作可能なデバイスの創出を目指すスピントロニクスという学問分野が生まれた. ハードディスク容量の飛躍的向上をもたらした巨大磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果は, スピントロニクスの代表的成果として知られている. この分野では, 目下のところ磁気ヘッドや磁気メモリへの応用から, 大きな磁気抵抗効果を生じるハーフメタル物質や, 電場や光により強磁性状態を制御できる磁性半導体の開発が研究の主要な柱となっている. これらに加えて, 非磁性体最表面においてスピン蓄積・スピン流を生じるスピンホール効果・ラッシュバ効果, 通常の表面伝導とはまったく異なる原理で表面スピン流を生じるトポロジカル絶縁体, そして原子空孔が強磁性の起源となる d^0 (強磁性の起源となる d 電子を持たない) 磁性体など, 新しい物質や現象にも注目が集まっている. 新しい現象が発見されるたびに, 新しい評価技術の登場が望まれている.

陽電子には, 原子空孔や表面に対する高い感度, 薄膜・界面の原子空孔の深さプロファイリングができるという特徴に加えて, 電子スピンに対する感度も備わっている. スピントロニクス研究開発の現状に鑑みると, スピン偏極陽電子はその有望なプローブになる可能性を秘めている.

Atsuo KAWASUSO (Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency),
〒370-1292 群馬県高崎市綿貫町 1233
TEL:027-346-9331, FAX 027-346-9432,
E-mail: kawasuso.atsuo@jaea.go.jp

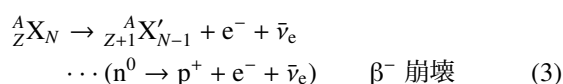
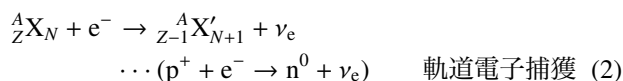
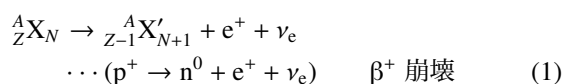
る。従来の陽電子計測技術において、陽電子スピン偏極性を活用することで、斬新な手法が生み出されるかもしれない。本稿では、スピン偏極陽電子ビーム、スピン偏極陽電子消滅の基礎と応用についての現況を総括し、将来に繋げたい。

2. 陽電子のスピン偏極性とスピン偏極陽電子ビーム

放射性同位体 (Radioisotope, RI) から放出される陽電子は、進行方向にスピン偏極している。したがって、RI を使えばおのずと陽電子のスピン偏極性を利用した実験ができる。 ^{22}Na のような市販 RI の他、イオン加速器や原子炉を用いて生成される様々な RI が利用可能である。また、電子加速器により得られる高エネルギー偏光ガンマ線を用いた対生成により、スピン偏極陽電子を発生させる方法もある。この方法は高エネルギー物理分野で用いられているが、将来的に陽電子消滅実験への応用も考えられる。本稿では、RI から生じる陽電子のスピン偏極性とそれを基にしたスピン偏極陽電子ビームについて述べる。

2.1 陽電子のスピン偏極性

β^+ (β^-) 崩壊によって陽電子 (電子) を放出する RI の大多数は、陽子 (中性子) 過剰核種である。 β^+ 崩壊核種では軌道電子捕獲も起こる。これらの崩壊は以下の式で表される。



ここで、X (X'), Z, A, N はそれぞれ元素記号、原子番号、質量数 ($A = Z + N$)、中性子数、 p^+ は陽子、 n^0 は中性子、 e^- と e^+ はそれぞれ電子と陽電子、 ν_e ($\bar{\nu}_e$) は電子 (反電子) ニュートリノである。なお、中性子は単独で平均寿命 887 秒で崩壊するが、陽子の寿命は 10^{33} 年以上とされる。 β^+ (β^-) 崩壊前後のエネルギー差 (Q 値) は以下で与えられる。

$$Q_{\beta^+} = [M(\text{X}) - M(\text{X}') - 2m]c^2 \quad (4)$$

$$Q_{\beta^-} = [M(\text{X}) - M(\text{X}') - m]c^2 \quad (5)$$

ここで、 M と m はそれぞれ原子および電子の静止質量、 c は光速である。 β^+ 崩壊の m が 2 倍になっているのは、崩壊後に軌道電子数が一つ減るためである。なお、ニュー

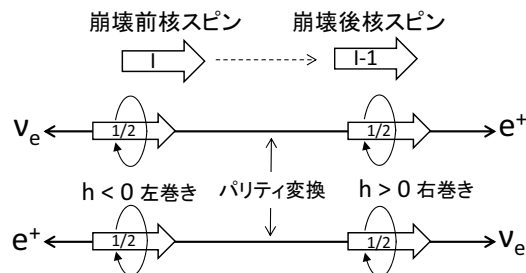


図1 β^+ 崩壊に伴う核スピンおよび陽電子と電子ニュートリノのスピンの向きと運動方向の関係。スピン角運動量の保存から崩壊後の核スピン、陽電子および電子ニュートリノのスピンの和は崩壊前核スピンの等しい。陽電子とニュートリノは運動量保存則のために反対方向に放出される。パリティが保存しているならば、陽電子と電子ニュートリノのヘリシティは右巻・左巻 (上下のパターンどちら) とも許されるが、電子ニュートリノのヘリシティが左巻しか許されないため、上側のパターンしか許されない。

トリノの質量はきわめて小さいとして無視している。エネルギー Q は、崩壊に伴う原子核の励起、原子、陽電子・電子、ニュートリノの運動エネルギーに分配される。したがって、陽電子・電子のエネルギーは、このエネルギー収支の結果許される最大エネルギー (E_{max}) 以下で連続分布を持つ。 β^+ 線のエネルギー分布は、定性的には一次摂動 (Fermi の黄金律) に基づく Fermi 理論で説明され、より厳密には V-A 理論によって与えられる。

β^+ 崩壊の重要な性質の一つに、パリティ保存の破れがある。この性質のため、陽電子・電子の運動方向とスピン偏極方向が一義的に定まる。陽電子・電子とニュートリノのスピンはともに $1/2$ であり、崩壊時の波動関数は原子核からみればほぼ平面波 (軌道角運動量 $l = 0$) となることから、 β^+ 崩壊前後の核のパリティ変化はなく、核スピン変化の絶対値は 0 または 1 である。前者を Fermi 型、後者を Gamow-Teller 型と言う。以下、核スピンの変化が -1 の Gamow-Teller 型の β^+ 崩壊を考える。スピン角運動量の保存により、陽電子と電子ニュートリノは核スピンと同軸にほぼ π 方向に放出され、両者のスピンは核スピンと同一方向となる。そうすると、図 1 に示すように、陽電子または電子ニュートリノの運動方向が核スピンの方向と同一となる二通りが考えられる。両者が等しい確率で起こる場合、パリティが保存しているという。なお、粒子のスピンと運動方向が同じ場合は右巻 (または $+$) ヘリシティ、反対の場合は左巻 (または $-$) ヘリシティと呼ばれる。一般に、ヘリシティの符号は観測方向により変わるため、どちらの符号も許される。しかし、ニュートリノに関しては一方の符号しか許されないとされる。すな

わち電子ニュートリノは左巻(-), 反電子ニュートリノは右巻(+)しかない. このため, 図1の二つの可能性のうち, 陽電子の運動方向が核スピンの向きと同じ上側のパターンしか許されない. 同様のことが β^- 崩壊についても成り立つ. Fermi型遷移の場合は, 核スピンの変化しないため, 陽電子・電子とニュートリノの運動量は同一方向を向く傾向にある. 以上の現象を弱い相互作用(β 崩壊を起こすウィークボソンを介した力)におけるパリティ非保存と呼び, 上述したYangとLiによる予測¹⁾とWuら²⁾およびHannaとPreston³⁾の実験で実証された. 以上が, 陽電子・電子の縦スピン偏極の原因である.

ヘリシティの期待値は, 平面波に対するディラック方程式の解として得られる. 電子ニュートリノ・反電子ニュートリノのヘリシティは ∓ 1 であり, 陽電子・電子のヘリシティは $\pm v/c$ である. ヘリシティの絶対値が1にならない理由は, より高速で運動する系からみるとヘリシティが逆(正負のヘリシティが混合しているという)になることに起因している. ヘリシティは, スピン偏極率($v/c = (n^\uparrow - n^\downarrow)/(n^\uparrow + n^\downarrow)$, $n^\uparrow(\downarrow)$: 上向き(下向き)スピンの数)そのものである.

通常, RIの核スピンの向きはランダムであるため, 陽電子は線源を中心に 4π 方向に放出され, 各陽電子が縦スピン偏極している. ある軸に対して開き角 2θ (立体角 $2\pi(1 - \cos\theta)$)の円錐内に放出される陽電子の縦スピン偏極率 P_+ は以下で与えられる.

$$P_+ = \frac{v}{c} \frac{1 + \cos\theta}{2} = \sqrt{1 - \frac{1}{[1 + E/(mc^2)]^2}} \frac{1 + \cos\theta}{2} \quad (6)$$

ここで, E は陽電子の運動エネルギーである. エネルギーが E_1 から E_2 ($\leq E_{\max}$)にある陽電子の平均スピン偏極率は以下で与えられる.

$$\langle P_+ \rangle = \frac{\langle v \rangle}{c} \frac{1 + \cos\theta}{2} = \int_{E_1}^{E_2} \sqrt{1 - \frac{1}{[1 + E/(mc^2)]^2}} N(E) dE \frac{1 + \cos\theta}{2} \quad (7)$$

ここで, $\langle v \rangle$ は陽電子の平均速度, $N(E)$ はエネルギー分布である. これより, より高い Q 値のRIで放出角と後方散乱成分を制限し, より高エネルギーの陽電子を選別すれば, スピン偏極率を高めることができる. また, 核スピンを一方向に揃えられれば, その方向への陽電子放出強度とスピン偏極率を同時に高めることができる.

代表的な陽電子放出RIである ^{22}Na を例にとってみよう. 図2は, ^{22}Na の崩壊図式である⁹⁾. ^{22}Na は半減期2.6年で β^+ 崩壊または軌道電子捕獲により崩壊する. それぞれの分岐比は90.6%と9.4%である. β^+ 崩壊前の ^{22}Na の基底状態の核スピンは3であり, 崩壊後はNe原子核の第一励起状態(核スピン2)または基底状態(核スピ

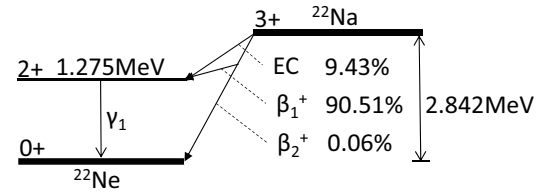
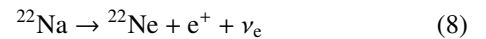


図2 ^{22}Na の崩壊図式. 核スピン3, パリティ+の ^{22}Na は軌道電子捕獲(EC)または β_1^+ 崩壊により核スピン2, パリティ+の ^{22}Ne の励起準位に遷移し, 1.275 MeVのガンマ線を放出する. 各遷移の分岐比をパーセントで表示している. ^{22}Na と ^{22}Ne の質量差は2.842 MeVである.

ン0)に遷移し得る. ただし, 後者の分岐比は0.06%程度と小さい. 軌道電子捕獲後は第一励起状態に遷移する. 第一励起状態から基底状態に緩和する過程で, エネルギー1.275 MeVのガンマ線が生じる. β^+ 崩壊の反応式と Q 値は以下である.



$$Q = [M(^{22}\text{Na}) - M(^{22}\text{Ne}) - m]c^2 = 1.82 \text{ MeV} \quad (9)$$

エネルギー Q は, β^+ 崩壊直後の ^{22}Ne の励起(1.275 MeV)や陽電子と電子ニュートリノの運動エネルギーに分配される. したがって陽電子は $E = 1.82 - 1.275 = 0.545 \text{ MeV}$ を最大値とするエネルギー分布を持つ. 表1は幾つかの陽電子線源の特性である¹⁾. 図3(a)と図3(b)の破線($N_0(E)$)は ^{22}Na と $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ から放出される陽電子のエネルギースペクトル, 点線($N_S(E)$)は線源内部での吸収を考慮したエネルギースペクトルおよび実線($N(E)$)は減速材を用いた低速陽電子のエネルギースペクトルである¹⁰⁾. ^{22}Na の場合, 平均エネルギー(0.2 MeV)に相当する陽電子のヘリシティは, $\langle v \rangle/c = 0.7$ である. すなわち, ある方向に放出される陽電子の平均スピン偏極率は70%である. 半球方向に放出された陽電子だけを選別すると($\theta = \pi/2$), 偏極率は35%となる.

2.2 スピン偏極陽電子ビーム

2.2.1 期待されるスピン偏極率

線源物質, 吸収材, 減速材によるエネルギー選別のため, 式(7)の $N(E)$ は β^+ 崩壊本来のものとは異なる. このため, 陽電子ビームのスピン偏極率を計算するためには, まず一連の物質によるエネルギー選別効果を考える必要がある. その次に, 各種の減偏極効果を考慮することで, 最終的な陽電子ビームのスピン偏極率を見積もることができる.

β^+ 崩壊本来のエネルギー分布を $N_0(E)$, 線源強度の厚さ方向の分布を $A(z)$, その積分強度を A_0 , 陽電子の線源

表 1 代表的な陽電子線源の半減期, 最大エネルギー ($E_{\max}$), 平均エネルギー ($\langle E \rangle$), 平均ヘリシティ ($\langle \nu \rangle / c$).

核種	半減期	$E_{\max} / \text{MeV}$	$\langle E \rangle / \text{MeV}$	$\langle \nu \rangle / c$
^{18}F	110 分	0.633	0.21	0.71
^{22}Na	2.6 年	0.545	0.20	0.70
^{26}Al	740 000 年	1.17		0.82
^{27}Si	4.2 秒	3.79	2.6	0.99
$^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$	49 年	1.47	0.45	0.85
^{64}Cu	12.7 時間	0.653	0.27	0.76
^{58}Co	70.8 日	0.475	0.19	0.68
$^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$	271 日	1.90	0.99	0.94

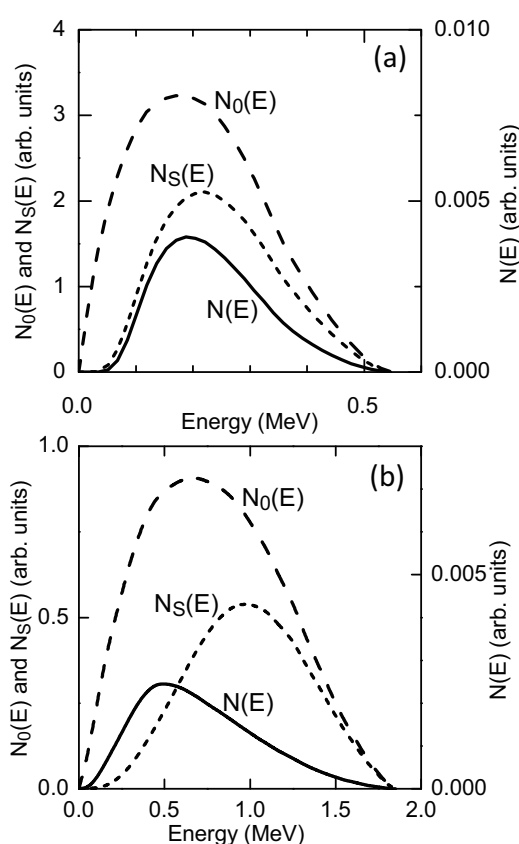


図 3 (a) ^{22}Na と (b) $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ から放出される陽電子のエネルギースペクトル ($N_0(E)$, 破線), 線源内部で自己吸収された後のエネルギースペクトル ($N_s(E)$, 点線), 厚さ $1\text{ }\mu\text{m}$ のタングステン減速材により低速陽電子に変換される陽電子のエネルギースペクトル ($N(E)$, 実線) ¹²⁾.

物質に対する透過率を $T_S(E, z)$ とすると, 厚さ d_S の線源から一方向に放出される陽電子のエネルギー分布 $N_S(E)$

は,

$$N_S(E) = \frac{1}{2} \int_0^{d_S} N_0(E) [A(z)/A_0] T_S(E, z) dz \quad (10)$$

となる. ここで, $N_0(E)$ の積分強度を 1 に規格化する. 厚さ d_A の吸収材を用いると, エネルギー分布 $N_A(E)$ は以下となる.

$$N_A(E) = N_S(E) T_A(E, d_A) \quad (11)$$

ここで, $T_A(E, d_A)$ は吸収材の陽電子に対する透過率である. 一般に, 透過率は以下のように与えられる ¹¹⁾.

$$T(E, z) = \exp[-(z/z_0)^m] \quad (12)$$

$$z_0 = aE^n / [\rho\Gamma(1 + 1/m)] \quad (13)$$

ここで, ρ は吸収材の密度, a は定数 ($= 4.0\text{ }\mu\text{g cm}^{-2}\text{ keV}^{-n}$), n と m は物質毎に固有の定数である. 減速材を用いてビームを形成する場合も, これに類似する吸収効果がある. 例えば, エネルギーが低く, 再放出面から深い位置で熱化した陽電子の再放出確率は低い. エネルギーの高い陽電子は, 熱化されることなく減速材を透過してしまう. したがって, 最終的なエネルギー分布は, 式 (11) に減速材効率 $\varepsilon_M(E, d_M)$ を乗じたものとなる.

$$N(E) = N_S(E) T_A(E, d_A) \varepsilon_M(E, d_M) \quad (14)$$

ここで d_M は減速材の厚さである. $\varepsilon_M(E, d_M)$ はさらに以下で与えられる ¹²⁾.

$$\begin{aligned} \varepsilon_M(E, d_M) &= P_{\text{em}} \int_0^{d_M} p(E, z) \sinh(z/L) \sinh(d_M/L) dz \\ &\quad \dots \text{透過型} \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_M(E, d_M) &= P_{\text{em}} \int_0^{d_M} p(E, z) \exp(-z/L) dz \\ &\quad \dots \text{反射型} \end{aligned} \quad (16)$$

ここで, P_{em} は陽電子再放出と内部反射の分岐比, $p(E, z)$ は陽電子の注入プロファイル ($= -dT(E, z)/dz$), L は陽電子拡散長である.

表 2 に低速陽電子ビームのスピン偏極率を求める際の計算の諸条件をまとめた. 吸収材は想定せず, 減速材は $1\text{ }\mu\text{m}$ 厚のタングステンとしている. これらと式 (7) よりスピン偏極率は 53 % ($^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$) と 42 % (^{22}Na) と見積もられた ¹⁰⁾.

減偏極効果については, 前方に放出された陽電子とは逆のスピン偏極を持つ後方散乱成分の混入, ビーム輸送磁場や偏向電場によるスピン回転, 線源物質や減速材中の散乱によるスピン反転について検討する必要がある.

表2 スピン偏極陽電子ビームの偏極率評価に際して想定した線源、減速材とそれらの条件 (d_s : 線源の厚み, d_M : 減速材厚み, ρ : 線源および減速材の物質密度, m, n : 式 (12) および式 (13) におけるパラメータ, P_{em} : 表面境界における陽電子の放出と内部反射の分岐比, L : 陽電子拡散長). 線源物質は, $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ については GaN, ^{22}Na については NaCl としている. 吸収材は想定していない. これらの条件の下で, 期待される低速陽電子ビームスピン偏極率は 53 % ($^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$) と 42 % (^{22}Na) になる.

線源物質					
	d_s / mm	$\rho / \text{g cm}^{-3}$	m	n	物理化学的形質
$^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$	0.5	6.15	2.0	1.6	固体 GaN
^{22}Na	0.1	2.18	2.0	1.6	固体 NaCl
減速材物質					
	$d_M / \mu\text{m}$	$\rho / \text{g cm}^{-3}$	m	n	P_{em} L / nm
W	1	19.3	1.7	1.67	0.33 135

減速材が非磁性体で, 陽電子スピンを回転される方向の外部磁場がない場合は, 熱拡散中の減偏極は非常に小さいと考えられる. 以下では, 特に重要な線源後方物質による後方散乱と減速材中での散乱について述べる.

後方散乱を厳密に取り扱おうとすると, 後方物質, 線源, 吸収材および減速材における陽電子のエネルギー・角度に応じた後方散乱確率, その後の各物質における透過効率, さらに物質間で繰り返される多重後方散乱を考慮する必要がある. しかし, これらの過程は非常に複雑であるので, それらの中で大部分を占める線源後方物質による後方散乱の減偏極効果を見積もる. ^{22}Na と $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 線源の物質による後方散乱確率 R_p は, 以下の実験式で与えられる¹³⁾.

$$R_p = 0.342 \log Z - 0.146 \quad (17)$$

ここで, 炭素 ($Z = 6$) を線源後方物質として, そこに到達するすべてのエネルギー・角度成分の陽電子が, 式 (17) の確率で後方散乱されると仮定すると, 10 % 程度の後方散乱成分が混入することになる. したがって, 減偏極率 ΔP も 10 % 程度となる.

陽電子と物質の相互作用には, 電磁相互作用に起因する Bhabha 散乱や制動放射, 誘電的相互作用による電子の集団 (プラズモン)・個別 (一電子) 励起, 熱力学的なフォノン散乱, 弾性過程であるクーロン散乱 (Mott 散乱) がある. 制動放射については, その阻止能が Bhabha 散乱のその $EZ/800$ 程度であるので, RI 陽電子の場合は重要ではない. 物質内に入った 1 MeV 程度のエネルギーの陽電子は, Bhabha 散乱によって原子をイオン化し¹⁴⁾, 大部分のエネルギーを失う. エネルギーが 10 keV 程度になると, プラズモン励起と電子励起により数 eV まで減速し^{15,16)}, 最終的にフォノン散乱によって熱化する¹⁷⁾. このうち, 電子の個別・集団励起およびフォノン散乱ではスピン反転は起こらない.

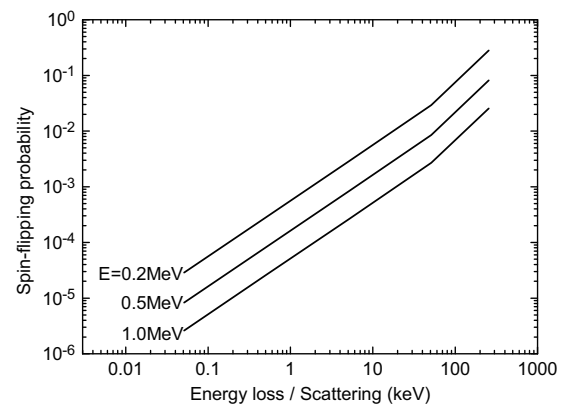


図4 エネルギー $E = 0.2 \text{ MeV}$, 0.5 MeV , 1.0 MeV の陽電子が一回の Bhabha 散乱を起こした時のスピン反転確率の損失エネルギー依存性.

量子電磁力学に基づく計算により, Bhabha 散乱により陽電子スピンの反転する確率は, 陽電子エネルギーの関数として与えられている¹⁸⁾. 図4は, 文献18の表Iの数値データを補間・外挿することで得られる 0.2 MeV, 0.5 MeV, 1.0 MeV の陽電子の1回の散乱に伴うスピン反転確率である. 図3から ^{22}Na と $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ の陽電子の平均エネルギーをそれぞれ 0.2 MeV と 0.5 MeV とする. 1回当たりの散乱におけるエネルギー移行は, タングステンの場合は 0.5 keV 程度である¹⁹⁾. 0.2 MeV の場合は 400 回, 0.5 MeV の場合は 1000 回の散乱が起こる (全エネルギーを失う) と仮定すると, 減偏極率 ΔP はそれぞれ 11 % と 8 % 程度と見積もられる.

クーロン散乱 (Mott 散乱) では, スピン軌道相互作用により散乱方向にスピンの回転する. 電子に対する減偏

極率 ΔP は以下で与えられる²⁰⁾.

$$\Delta P = 1 - \left(\frac{1 - \exp(-\gamma d)}{\gamma d} \right)^2 \quad (18)$$

ここで, d は散乱体の厚さ, γ とその他のパラメータは N を散乱体の原子数密度, k を波数として以下で与えられる.

$$\gamma = 4\sqrt{2}\pi N \left(\frac{e^2}{E + 2mc^2} \right) \times (\ln(2kb) - 0.577 + 2\xi S_1 + \xi^2 S_2)$$

$$b = \frac{\hbar}{me^2} Z^{-1/3} \quad (\text{Thomas-Fermi 半径})$$

$$\xi = \frac{e^2 Z}{\hbar c} \frac{E + mc^2}{E^{1/2}(E + mc^2)^{1/2}}$$

$$S_1 = -\frac{\pi}{2} \sum_{l=1}^{\infty} \frac{H_1^{(1)}[i(l+1/2)/(kb)]}{kb(l+1/2)} \times \tan^{-1}[-(l+1/2)k/k_0] \quad (H: \text{ハンケル関数})$$

$$S_2 = \sum_{l=1}^{\infty} \left\{ \tan^{-1}[-(l+1/2)k/k_0] \right\}^2 (l+1/2)^{-3}$$

$$k_0 = e^2 Z (E + mc^2) / (\hbar c)^2$$

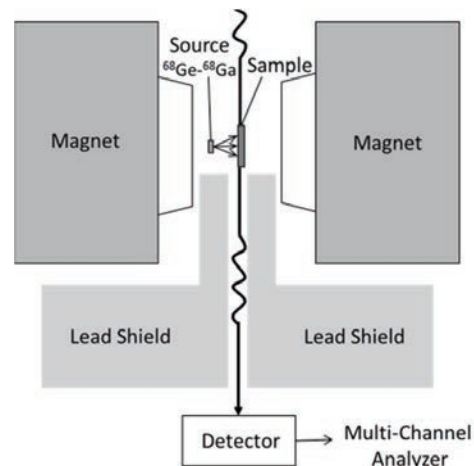


図5 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ から放出される縦スピン偏極陽電子をそのまま試料に打ち込み, 消滅ガンマ線の磁場依存性を計測する^{22,23)}. バルク磁性体などの実験に使用する.

一次ボルン近似に基づくクーロン散乱では電荷の違いがないので, 上式が陽電子に対しても当てはまると仮定すると, 0.2 MeV および 0.5 MeV の陽電子が厚さ $1\ \mu\text{m}$ のタングステンを通じた際の多重散乱に伴う減偏極率 ΔP

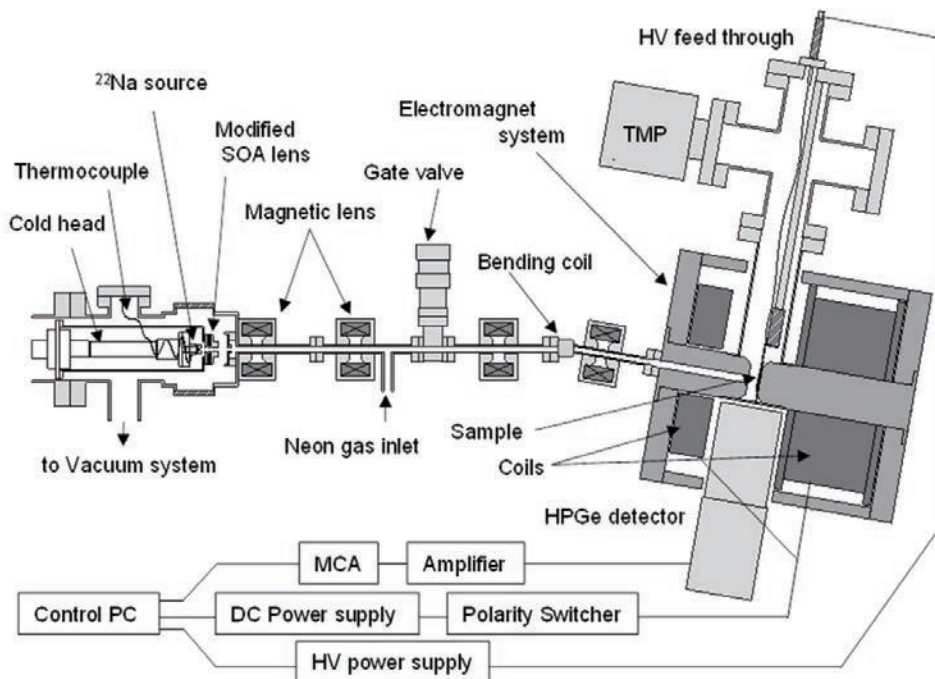


図6 $^{22}\text{NaCl}$ 線源の放出面に固体ネオン減速材を成膜して, 磁界レンズにより縦スピン偏極陽電子ビームを形成する装置²⁵⁾. 試料部では, 最大 1 T の磁場を試料に印加できる.

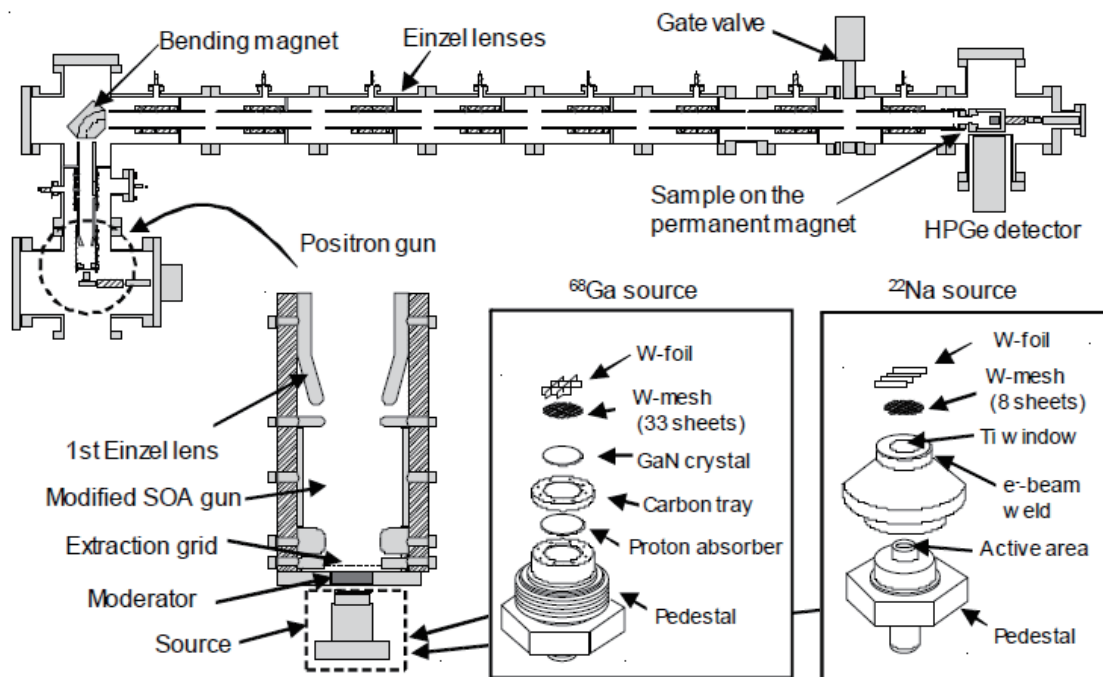


図7 $^{22}\text{NaCl}$ または $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ を線源として、静電場のみを用いてビームを形成する静電型陽電子ビーム装置^{10,24)}。ビーム輸送中に静電偏向器によりビーム軌道を 90° 曲げることで、試料部では横スピン偏極陽電子ビームとなる。

は6%および4%程度となる。

以上のように、線源と減速材に関するエネルギースペクトルの変化によるスピン偏極率、後方散乱と減速材内部での多重散乱による減偏極を考慮すると最終的なスピン偏極率は、32% (^{22}Na) と42% ($^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$) 程度と見積もられる。後述するように、筆者らが実際に得たスピン偏極率はこの見積もりと良く一致している。

2.2.2 陽電子ビーム装置の例

以上のように、RIを用いることで、特段の工夫を凝らすことなくスピン偏極陽電子ビームを形成することができる。ミシガン大グループ²¹⁾は、吸収材の使用などにより、前節で述べた見積もり以上にスピン偏極率を向上できるとしている。筆者らは吸収材は用いず、図5-図7に示すような市販 $^{22}\text{NaCl}$ 線源とイオン照射により製造した $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 線源を搭載した装置を目的に応じて使いわけている^{10,22-25)}。減速材を用いない図5のタイプでは、線源と試料を磁場中に置き消滅ガンマ線を計測する。これは、高エネルギー陽電子を試料に直接打込む方法であり、垂直磁化させたバルク磁性体などの研究に適している。薄膜・表面の面直磁化の研究には、図6の磁界レンズを用いた陽電子ビームを使う。これは、収束磁場とビーム進行方向が同一であるために陽電子のスピン回転が起これにくく、縦スピン偏極性が保持されることを利用している。試料への強磁場印加（最大1T）も可能である。薄膜・表

面の面内磁化やスピン配列の研究には、図7の静電レンズを用いた陽電子ビームを使う。静電偏向器によりビームを 90° 曲げることで、試料部において横スピン偏極陽電子ビームを得る仕組みである。

2.2.3 ポジトロニウムによるスピン偏極率測定

陽電子のスピン偏極率測定には、かつては強磁性体による陽電子透過やモット散乱が利用されていた²⁶⁾。ミシガン大グループの実験以降^{27,28)}、ポジトロニウムの磁気クエンチを利用する方法が使われている。以下では、まずポジトロニウムの磁気クエンチの要点をまとめた後に、ミシガン大の寿命測定の方法と永井ら²⁹⁾のドップラー広がり測定の方法を紹介する。つづいて筆者らの測定結果について述べる。

ポジトロニウムには、スピン一重項のパラ状態（合成スピン $S = 0$, 磁気量子数 $M_S = 0$: $|SM_S\rangle = |00\rangle$ ）と、三重項のオルト状態（ $S = 1$, $M_S = 0, \pm 1$: $|SM_S\rangle = |10\rangle, |11\rangle, |1-1\rangle$ ）がある。真空かつ非磁場中であれば、前者は125 psの消滅寿命で二光子に崩壊し、後者は142 nsの消滅寿命で三光子に崩壊する。陽電子または電子がスピン偏極していない場合は、パラとオルトの生成比は1:3である。磁場摂動により、 $|00\rangle$ と $|10\rangle$ が混合した状態が新たな固有値となる。これらを含めて全固有状態を $|00\rangle'$, $|10\rangle'$, $|11\rangle$, $|1-1\rangle$ と表記（磁場がない場合は $|00\rangle' \rightarrow |00\rangle$, $|10\rangle' \rightarrow |10\rangle$ に対応させる）すると、それぞれの生成率 F

は以下で与えられる²⁷⁾.

$$F_{|00\rangle'} = \frac{1}{8(1+y^2)} \left[(1-y)^2(1-P_+\cos\phi)(1+P_-) + (1+y)^2(1+P_+\cos\phi)(1-P_-) \right] \quad (19)$$

$$F_{|10\rangle'} = \frac{1}{8(1+y^2)} \left[(1+y)^2(1-P_+\cos\phi)(1+P_-) + (1-y)^2(1+P_+\cos\phi)(1-P_-) \right] \quad (20)$$

$$F_{|11\rangle} = \frac{1+P_+\cos\phi+P_-+P_+P_-\cos\phi}{4} \quad (21)$$

$$F_{|1-1\rangle} = \frac{1-P_+\cos\phi-P_-+P_+P_-\cos\phi}{4} \quad (22)$$

ここで、 P_+ (P_-) は陽電子 (電子) のスピン偏極率、 $y = x/(\sqrt{1+x^2}+1)$, $x = 4\mu_B B/\Delta E$ (μ_B : ボーア磁子, B : 磁場, ΔE : 超微細相互作用エネルギー (8.4×10^{-4} eV)), ϕ は磁場と陽電子スピン方向のなす角である. 真空かつ非磁場中の自己消滅速度を $\lambda_{|00\rangle} \equiv \lambda_p$ ($= 8 \text{ ns}^{-1}$), $\lambda_{|10\rangle} = \lambda_{|11\rangle} = \lambda_{|1-1\rangle} \equiv \lambda_o$ ($= 0.0704 \text{ ns}^{-1}$) とし, 物質中のボイド内に閉じ込められたポジトロニウムがボイド壁面の電子と衝突して起こるピックオフ (二光子) 消滅速度を $\lambda_{\text{pick-off}}$ とすると, $|00\rangle'$, $|10\rangle'$, $|11\rangle$, $|1-1\rangle$ の消滅速度 λ は以下で与えられる.

$$\lambda_{|00\rangle'} = \frac{\kappa\lambda_p}{1+y^2} + \frac{\kappa y^2\lambda_o}{1+y^2} + \lambda_{\text{pick-off}} \quad (23)$$

$$\lambda_{|10\rangle'} = \frac{\kappa y^2\lambda_p}{1+y^2} + \frac{\kappa\lambda_o}{1+y^2} + \lambda_{\text{pick-off}} \quad (24)$$

$$\lambda_{|11\rangle} = \lambda_{|1-1\rangle} = \kappa\lambda_o + \lambda_{\text{pick-off}} \quad (25)$$

ここで κ は接触密度 (物質中と真空中の Ps 波動関数の二乗の比 $= |\Psi_m(0)|^2/|\Psi_v(0)|^2$) である. 各式において, λ_p と λ_o が係る部分はそれぞれポジトロニウムの二光子と三光子消滅速度を, $\lambda_{\text{pick-off}}$ がピックオフによる二光子消滅速度を表す. 各状態からの寄与を合計した全二光子・三光子消滅強度は以下ようになる.

$$F_{\text{Ps}}^{2\gamma} = \frac{F_{|00\rangle'}}{\lambda_{|00\rangle'}} \left(\frac{\kappa\lambda_p}{1+y^2} + \lambda_{\text{pick-off}} \right) + \frac{F_{|10\rangle'}}{\lambda_{|10\rangle'}} \left(\frac{\kappa y^2\lambda_p}{1+y^2} + \lambda_{\text{pick-off}} \right) + (F_{|11\rangle} + F_{|1-1\rangle}) \frac{\lambda_{\text{pick-off}}}{\lambda_{|11\rangle} (= \lambda_{|1-1\rangle})} \quad (26)$$

$$F_{\text{Ps}}^{3\gamma} = \frac{F_{|00\rangle'}}{\lambda_{|00\rangle'}} \frac{\kappa\lambda_o y^2}{1+y^2} + \frac{F_{|10\rangle'}}{\lambda_{|10\rangle'}} \frac{\kappa\lambda_o}{1+y^2} + F_{|11\rangle} \frac{\kappa\lambda_o}{\lambda_{|11\rangle}} + F_{|1-1\rangle} \frac{\kappa\lambda_o}{\lambda_{|1-1\rangle}} \quad (27)$$

例えば式 (26) 右辺の第一項は $|00\rangle'$ 状態の寄与であり, さらにポジトロニウム自己消滅が括弧内第一項, ピックオフ消滅が括弧内第二項のように読んで必要な成分を取り出して使う.

ミシガン大グループによる方法では, 陽電子ビームを磁場中のマイクロチャンネルプレートに照射したときに形成されるポジトロニウムの三光子消滅寿命を計測し, 摂動を受けた成分の消滅速度 ($\lambda_{|10\rangle'}$) の陽電子スピン回転依存性を得ることで陽電子のスピン偏極率を決定する. このとき $P_- = 0$, $\kappa = 1$, $\lambda_{\text{pick-off}} = 0$ とすると, オルトポジトロニウムと磁場摂動を受けたオルトポジトロニウムの三光子消滅寿命スペクトルは, 式 (27) の右辺第 2 項-第 4 項から以下ようになる.

$$\begin{aligned} \frac{dN(t)}{dt} &= N \left[\left(F_{|11\rangle} \frac{\kappa\lambda_o}{\lambda_{|11\rangle}} + F_{|1-1\rangle} \frac{\kappa\lambda_o}{\lambda_{|1-1\rangle}} \right) \lambda_o \exp(-\lambda_o t) \right. \\ &\quad \left. + \frac{F_{|10\rangle'}}{\lambda_{|10\rangle'}} \frac{\kappa\lambda_o}{1+y^2} \lambda_{|10\rangle'} \exp(-\lambda_{|10\rangle'} t) \right] \\ &= \frac{N}{4} \left[2\lambda_o \exp(-\lambda_o t) \right. \\ &\quad \left. + \left(1 - \cos\phi \frac{2yP_+}{1+y^2} \right) \lambda_{|10\rangle'} \exp(-\lambda_{|10\rangle'} t) \right] \quad (28) \end{aligned}$$

ここで N は全消滅事象数, ϕ は陽電子のスピン偏極ベクトルと磁場ベクトルのなす角度である. 小括弧の磁場摂動を受けたオルトポジトロニウム消滅強度の ϕ 依存性を実験的に求め, それに式 (28) をフィットしてスピン偏極率が得られる.

永井ら²⁹⁾の方法では, 磁場中においた熔融石英において観測される S パラメータが, 磁場摂動を受けたポジトロニウムの二光子消滅強度の一次関数であることを利用する. すなわち磁場の関数として得られる S パラメータは,

$$\begin{aligned} S &= (S_{\text{Ps}} - S_{\text{SiO}_2})I(B) + S_{\text{SiO}_2} \\ &= (S_{\text{Ps}} - S_{\text{SiO}_2}) \left(\frac{F_{|00\rangle'}}{\lambda_{|00\rangle'}} \frac{\kappa\lambda_p}{1+y^2} + \frac{F_{|10\rangle'}}{\lambda_{|10\rangle'}} \frac{\kappa y^2\lambda_p}{1+y^2} \right) + S_{\text{SiO}_2} \quad (29) \end{aligned}$$

で与えられる. ここで, S_{Ps} は磁場摂動を受けたポジトロニウムの自己二光子消滅の S パラメータ, S_{SiO_2} はそれ以外の二光子消滅に付随する S パラメータ, $I(B)$ は式 (26) の $F_{\text{Ps}}^{2\gamma}$ のうちピックオフ消滅率 $\lambda_{\text{pick-off}}$ を除いたものである. κ や $\lambda_{\text{pick-off}}$ は既値のものを使用し, $P_- = 0$ とする. そこで, S パラメータの磁場依存性に対して, 式 (29) の $\alpha = S_{\text{Ps}} - S_{\text{SiO}_2}$, $\beta = S_{\text{SiO}_2}$ および P_+ をフィッティングパ

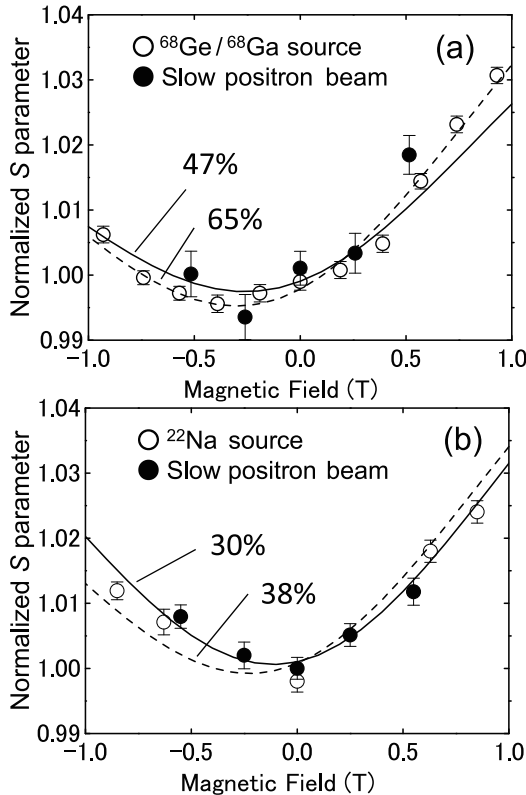


図 8 (a) $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ と (b) ^{22}Na 各線源から放出される直接陽電子線およびこれら線源を用いて形成した静電型陽電子ビームを熔融石英に打込んだ際の S パラメータの磁場依存性. 本文中の方法によりデータ解析することで, 陽電子のスピン偏極率が評価される^{10,25)}.

ラメータとして, スピン偏極率を決める.

図 8(a) と (b) は, それぞれ $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 線源および ^{22}Na 線源から放出される直接陽電子線およびこれらの線源から形成した静電型陽電子ビームを熔融石英に打ち込んだ際に計測された S パラメータの磁場依存性である. 前者の場合は, 線源と試料の距離は 7 mm である. 式 (29) によるフィッティングの結果, ^{22}Na および $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 線源からの直接陽電子線のスピン偏極率はおよそ 38 % と 65 %, これらを線源とした陽電子ビームについてはおよそ 30 % と 47 % と求められた. これらの値は, 第 2.2.1 目の見積もりと良く一致している.

3. スピン偏極陽電子消滅

3.1 強磁性体中における陽電子消滅³⁰⁾

磁場中で磁化した強磁性体にスピン偏極した陽電子を打ち込んで角相関やドップラー広がり測定を行うと, 電子の偏極状態に関する知見を得ることができる. この実

験は主に線源法によりバルク試料について行われているが, ビームを用いた実験も可能である. 本節ではこのスピン偏極陽電子消滅の基礎について述べ, 筆者らの測定事例を紹介する.

強磁性体の電子のエネルギーバンドは, 交換分裂した多数スピンバンドと少数スピンバンドから成り立っている. 強磁性体中の電子のスピンは磁場と反平行 (磁気モーメントは平行) に配列する. 本稿では, 多数・少数スピンバンドの電子スピンを下向き ($\downarrow$)・上向き ($\uparrow$) と定義することとする. なお, 強磁性体中の電子のスピンは磁場と反平行 (磁気モーメントは平行) に配列するが, 磁性分野では, しばしば多数スピン電子アップ (上向き)・少数スピン電子ダウン (下向き) といった逆の表現が用いられることがあるので, 混同されぬよう注意されたい. 多数・少数スピンバンドの電子-陽電子運動量密度は,

$$\rho_i^{\downarrow(\uparrow)}(\mathbf{p}) = \left| \int e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} \Psi_+(\mathbf{r}) \Psi_i^{\downarrow(\uparrow)}(\mathbf{r}) \sqrt{\gamma(n_-(\mathbf{r}))} d\mathbf{r} \right|^2 \quad (30)$$

で与えられる. ここで, $\Psi_+(\mathbf{r})$, $\Psi_i(\mathbf{r})$, $\gamma(n_-(\mathbf{r}))$ は, それぞれ陽電子波動関数, i 番目のバンド電子の波動関数, エンハンスメント因子である. これより, i 番目のバンド電子の二次元角相関スペクトルは式 (30) の一重積分, 一次元角相関スペクトルは二重積分となる.

$$N_i^{\downarrow(\uparrow)}(p_z) = \iint \rho_i^{\downarrow(\uparrow)}(\mathbf{p}) dp_x dp_y \quad (31)$$

以下では一次元角相関について述べるが, 二次元角相関についても同様である. またドップラー広がりスペクトルは, 式 (31) とエネルギー分解能関数の畳み込みである. 陽電子波動関数と i 番目のバンド電子の波動関数の重なり ($w_i^{\downarrow(\uparrow)}$) は,

$$w_i^{\downarrow(\uparrow)} = \int_{-\infty}^{+\infty} N_i^{\downarrow(\uparrow)}(p_z) dp_z \quad (32)$$

となる. 上向きスピン ($\uparrow$) と下向きスピン ($\downarrow$) の陽電子が, それぞれ i 番目のバンドに収容されている上向きスピン ($\uparrow$) と下向きスピン ($\downarrow$) の電子と衝突する場合を考える. 上向きスピンの陽電子が下向きスピンの電子と結合すると, 合成スピン $S = 0$ または $S = 1$ で磁気量子数 $M_S = 0$ の状態が半々の割合で形成され, それぞれ二光子または三光子に崩壊する. 上向きスピンの陽電子が上向きスピンの電子と結合すると, $S = 1$ で磁気量子数 $M_S = 1$ の状態しかできず, これは三光子に崩壊する. 下向きスピンの陽電子についても同様の扱いができる. したがって, 上向きスピンと下向きスピンの陽電子の二光子消滅速度と三光子消滅速度は表 3 のようになる. これより, 上向き (下向き) スピン陽電子の全消滅速度は,

$$\lambda^{\uparrow(\downarrow)} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{occ} \left[\lambda_S w_i^{\downarrow(\uparrow)} + \lambda_T (w_i^{\downarrow(\uparrow)} + 2w_i^{\uparrow(\downarrow)}) \right] \quad (33)$$

表3 上向きスピン ($\uparrow$) と下向きスピン ($\downarrow$) の陽電子の二光子および三光子消滅速度. $\lambda_S = 4\pi r_e^2 c$ (r_e : 古典電子半径, c : 光速), $\lambda_T = \lambda_S/1115$, $w_i^{\uparrow(\downarrow)}$: i 番目のバンドアップスピン (ダウン) スピン電子と陽電子の波動関数の重なり.

	二光子消滅		三光子消滅	
	$S = 0$	$S = 1, M_S = 0$	$S = 1, M_S = 1$	$S = 1, M_S = -1$
($\uparrow$) 陽電子	$\lambda_S w_i^\downarrow/2$	$\lambda_T w_i^\downarrow/2$	$\lambda_T w_i^\uparrow$	0
($\downarrow$) 陽電子	$\lambda_S w_i^\uparrow/2$	$\lambda_T w_i^\uparrow/2$	0	$\lambda_T w_i^\downarrow$

となる. 和は考えているすべてのバンドについて行う. これより, 陽電子消滅寿命にはスピンの向きに応じて二つの成分がある.

陽電子の偏極率を P_+ とすると, 正磁場 (+)・負磁場 (-) の一次元角相関スペクトルは, 以下のように与えられる.

$$N_{\pm}(p_z) = \frac{\lambda_S}{4} \sum_{i=1}^{occ} \left[\frac{(1 \pm P_+) N_i^\downarrow(p_z)}{\lambda^\uparrow} + \frac{(1 \mp P_+) N_i^\uparrow(p_z)}{\lambda^\downarrow} \right] \quad (34)$$

したがって, 正磁場と負磁場の差分スペクトルは以下のようにになる.

$$\begin{aligned} \Delta N &= N_+(p_z) - N_-(p_z) \\ &= \frac{\lambda_S P_+}{2} \sum_{i=1}^{occ} \left[\frac{N_i^\downarrow(p_z)}{\lambda^\uparrow} - \frac{N_i^\uparrow(p_z)}{\lambda^\downarrow} \right] \end{aligned} \quad (35)$$

$P_+ = 0$ の場合には式 (34) の磁場反転効果は現れない. しかし, 式 (33) から $P_+ = 0$ であっても区別される多数スピンバンドと少数スピンバンドのスペクトルが混在していることに変わりない. 式 (35) の [] 内は, 各バンドの少数スピンバンドと多数スピンバンドの単純な差分とはなっていない. この点は磁気コンプトン散乱と異なる. 実験スペクトルの差と和を使うと, 式 (36) 一行目のように少数スピンバンドと多数スピンバンドの差分を得ることができる. 右辺の $\sum N$ の係数は, 近似的に三光子消滅強度の磁場反転非対称度により表される.

$$\sum_{i=1}^{occ} [N_i^\downarrow(p_z) - N_i^\uparrow(p_z)] = \frac{\lambda^\uparrow + \lambda^\downarrow}{\lambda_S P_+} \left[\Delta N + P_+ \frac{\lambda^\uparrow - \lambda^\downarrow}{\lambda^\uparrow + \lambda^\downarrow} \sum N \right] \propto \Delta N + P^{3\gamma} \sum N \quad (36)$$

ここで, $\sum N = N_+(p_z) + N_-(p_z)$, $P^{3\gamma} = (N_+^{3\gamma} - N_-^{3\gamma}) / (N_+^{3\gamma} + N_-^{3\gamma})$ である. したがって, 上向き・下向きスピンの陽電子の消滅寿命, もしくは, 正・負磁場中の三光子消滅強度がわかれば, 少数スピンバンドと多数スピンバンドの差分スペクトルが得られる.

磁場中の二光子消滅寿命スペクトルと平均消滅速度は,

以下のようにになる.

$$\begin{aligned} L_{\pm}(t) &= \frac{\lambda_S}{4} \sum_{i=1}^{occ} w_i^\downarrow (1 \pm P_+) \exp(-\lambda^\uparrow t) \\ &+ \frac{\lambda_S}{4} \sum_{i=1}^{occ} w_i^\uparrow (1 \mp P_+) \exp(-\lambda^\downarrow t) \end{aligned} \quad (37)$$

$$\lambda_{\pm} = \frac{1 \pm P_+}{2} \lambda^\uparrow + \frac{1 \mp P_+}{2} \lambda^\downarrow \quad (38)$$

ここで $\lambda^{\uparrow(\downarrow)} \sim \sum \lambda_S w_i^{\uparrow(\downarrow)}/2$ としている. なお, 密度汎関数による上向き (下向き) スピンの陽電子の二光子消滅寿命は以下で与えられる.

$$\lambda^{\uparrow(\downarrow)} = \frac{1}{2} \times 4\pi r_e^2 c \int n_+(\mathbf{r}) n_-^{\downarrow(\uparrow)}(\mathbf{r}) \gamma[n_-^{\downarrow(\uparrow)}(\mathbf{r})] d\mathbf{r} \quad (39)$$

$P_+ = 0$ であれば磁場反転効果は出てこないが, 多数スピンバンドと少数スピンバンドの割合が異なる限り, 区別すべき二つの寿命成分が存在する.

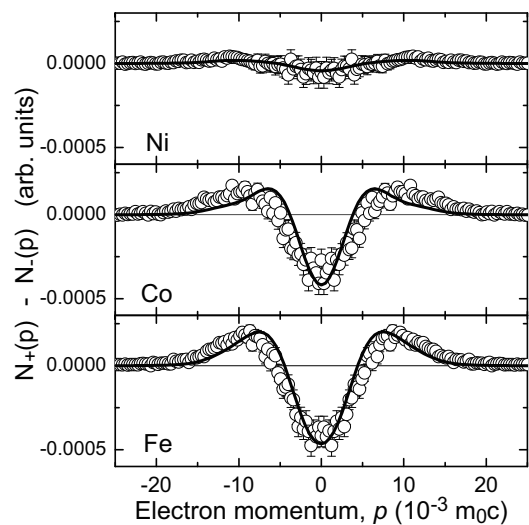


図9 図5の装置を用いて得られた Fe, Co, Ni の正負磁場 (± 1 T) 中のドップラー広がりスペクトルの差分曲線²²⁾.

このように、強磁性体に磁場を印加して電子と陽電子のスピンを平行または反平行にすることで、角相関スペクトルやドップラー広がりスペクトルに生ずる変化から、多数スピンバンドと少数スピンバンドの差異がわかり、これより電子スピンに関する知見が得られる。ここでは磁場中で試料を磁化させることを想定したが、電子スピンの特定の方向に秩序配列をしていれば磁場の有無に関わらず、同様の議論が可能である。

Hanna と Preston³⁾ は、Fe 多結晶の一次元角相関スペクトルの磁場反転効果を初めて報告した。その後、1960 年台初頭から 1970 年台後半頃まで、Fe, Ni, Co, Gd などの強磁性体について、角相関測定が行われた³⁰⁻⁴²⁾。また、バンド計算法が改良され、実験結果の解釈に役立てられるようになった⁴³⁾。1986 年には、ハーフメタル強磁性体の一種である NiMnSb について角相関測定によるバンド構造の研究が行われている⁴⁴⁾。図 9 は筆者ら²²⁾ が得た Fe, Co, Ni 多結晶の磁場反転に伴う差分ドップラー広がりスペクトルである。中心付近の強度が下がり、7 mrad–14 mrad 付近の強度が増加していることが示された。これは、磁性を担う 3d 電子の運動量分布の広がりにより説明することができる。また、反転非対称度（差分スペクトル絶対値の面積強度）が Ni→Co→Fe の順に大きくなっていることがわかる。この反転非対称度の相対比は各物質の磁化の相対比に近いことから、陽電子と磁性を担う電子の波動関数の重なりが、これらの物質間で同程度であることが示唆される。強磁性から常磁性に変化した場合

表 4 第一原理計算によって得られた Fe, Co, Ni 中の多数スピン電子と少数スピン電子と陽電子の消滅寿命⁴⁵⁾。

	Fe (BCC)	Co (HCP)	Ni (FCC)
多数スピン電子	95.1 ps	94.5 ps	101.1 ps
少数スピン電子	107.0 ps	98.2 ps	96.8 ps

には、磁場反転非対称性が消失すると考えられる。図 10 は、キュリー温度が低い 4f 金属に対して、筆者らが得た磁場反転非対称度の温度依存性である²³⁾。強磁性から常磁性に相転移すると磁場反転非対称度が消失することがわかる。図中の実線は非対称度が、磁化の温度依存性を記述する Weiss の式 ($M/M_0 = B_J[g_J\mu_B J(H + \lambda_{mf}M)/k_B T]$, M_0 : 絶対零度での磁化, B_J : ブリュアン関数, g_J : 全磁気モーメント, J : 全角運動量, λ_{mf} : 分子場係数) に比例するとして、実験結果に当てはめたものである。

強磁性体における多数スピン電子と少数スピン電子の消滅寿命の違いについては、最近第一原理計算がなされている⁴⁵⁾。表 4 に、Fe, Co, Ni 中の多数スピン電子と少数スピン電子との消滅寿命をまとめた。Fe と Co では、多数スピン電子に対する消滅寿命が少数スピン電子のそれに比べて短い。これは、多数スピン電子の数が少数スピン電子のそれよりも多いことに対応している。ところが、Ni の場合は関係が逆転している。これは、Ni では空間的に広がった sp 的な少数スピン電子と陽電子の波動関数の重なりが大きいことに起因している。今後、実験による検証が待たれるところである。

3.2 表面ポジトロニウム消滅

物質表面付近に打ち込まれた陽電子は、熱エネルギーまで減速された後、拡散して表面に到達する。物質の陽電子に対する仕事関数が負である場合、表面に到達した陽電子は、仕事関数の絶対値に等しいエネルギーで真空外に放出される。この再放出現象に加えて、陽電子が電子を捕捉してポジトロニウムを形成することがある。ポジトロニウムの仕事関数 Φ_{Ps} は、電子の仕事関数を Φ_- 、陽電子の仕事関数を Φ_+ 、ポジトロニウムの結合エネルギーを $E_B (= 6.8 \text{ eV})$ とすると、

$$\Phi_{Ps} = \Phi_+ + \Phi_- - E_B \quad (40)$$

で与えられる。多くの物質に対して Φ_- と Φ_+ は概ね +2 eV–+4 eV と –3 eV–+1 eV なので、ポジトロニウムの仕事関数は負 (–4 eV––2 eV) であることが多く、その場合、真空外への放出が自発的に起こる。ポジトロニウムは電子密度が高い金属内部では生成せず、電子密度が十分に低い表面で生成する。このように、表面で形成され

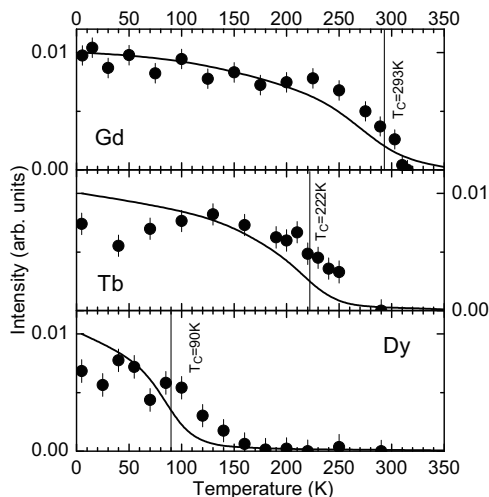


図 10 図 5 の装置を用いて得られた Gd, Tb, Dy の正負磁場 ($\pm 1 \text{ T}$) 中のドップラー広がりスペクトルの磁場反転非対称度（差分スペクトル絶対値の面積強度）の温度依存性。 T_C は強磁性相転移点、実線はそれらの T_C を考慮した Weiss の式によるフィッティングである²³⁾。

るポジトロニウムの挙動を解析することで、最表面スピン偏極電子の情報を引き出すことができる。

陽電子と電子の偏極率をそれぞれ P_+ 、 P_- 、これらのなす角を ϕ とすると、各状態の生成割合は式 (19)–式 (22) で磁場をゼロ ($y = 0$) としたものとなる：

$$F_{|00\rangle} = (1 - P_+ P_- \cos \phi) / 4 \quad (41)$$

$$F_{|10\rangle} = (1 - P_+ P_- \cos \phi) / 4 \quad (42)$$

$$F_{|11\rangle} = (1 + P_+ + P_- \cos \phi + P_+ P_- \cos \phi) / 4 \quad (43)$$

$$F_{|1-1\rangle} = (1 - P_+ - P_- \cos \phi + P_+ P_- \cos \phi) / 4 \quad (44)$$

実際に観測されるパラポジトロニウムの二光子消滅とオルトポジトロニウムの三光子消滅の強度は、

$$F_{\text{Ps}}^{2\gamma} = F_{|00\rangle} \quad (45)$$

$$F_{\text{Ps}}^{3\gamma} = \varepsilon(1)(F_{|11\rangle} + F_{|1-1\rangle}) + \varepsilon(0)F_{|10\rangle} \quad (46)$$

となる。 $\varepsilon(1)$ と $\varepsilon(0)$ は量子数に依存した検出効率である⁴⁶⁾。陽電子・電子のいずれかが偏極していない場合、パラ・オルトの生成比 ($F_{\text{Ps}}^{2\gamma} : F_{\text{Ps}}^{3\gamma}$) は 1 : 3 であるが、両者がスピン偏極していると 1 : 3 から一定の割合ずれる。さらに、それぞれの生成比は、陽電子と電子の相対的なスピン偏極方向を反転させる（例えば、 P_+ はそのまま $+P_- \rightarrow -P_-$ とする）と同値にはならない。これをスピン反転に対する非対称度 A とすると、

$$\begin{aligned} A^{3\gamma} &= \frac{F_{\text{Ps}}^{3\gamma}(+P_-) - F_{\text{Ps}}^{3\gamma}(-P_-)}{F_{\text{Ps}}^{3\gamma}(+P_-) + F_{\text{Ps}}^{3\gamma}(-P_-)} \\ &= \frac{2\varepsilon(1) - \varepsilon(0)}{2\varepsilon(1) + \varepsilon(0)} P_+ P_- \cos \phi \end{aligned} \quad (47)$$

$$A^{2\gamma} = \frac{F_{\text{Ps}}^{2\gamma}(+P_-) - F_{\text{Ps}}^{2\gamma}(-P_-)}{F_{\text{Ps}}^{2\gamma}(+P_-) + F_{\text{Ps}}^{2\gamma}(-P_-)} = P_+ P_- \cos \phi \quad (48)$$

となる。この結果、陽電子のスピン偏極率と検出効率が既知であれば、実験的に得た A を使って電子スピン偏極率を求めることができる。ところで、パラポジトロニウムは消滅寿命 125 ps で速やかに消滅する上に、消滅ガンマ線スペクトルが陽電子と電子の自由消滅のそれと重なってしまう。これに対して、オルトポジトロニウムの真空かつ非磁場中での自己消滅寿命は 142 ns と長いこと、消滅ガンマ線エネルギー Spektral が陽電子-電子の二光子消滅ピークから分離されていることから、実験ではオルトポジトロニウムを観測対象とする。三光子消滅寿命測定から得られるオルトポジトロニウムの強度 ($I_{142\text{ns}}$) は、式 (46) に等しい ($I_{142\text{ns}} = F_{\text{Ps}}^{3\gamma}$)。消滅ガンマ線のエネルギー Spektral では、オルトポジトロニウムの三光子消滅は二光

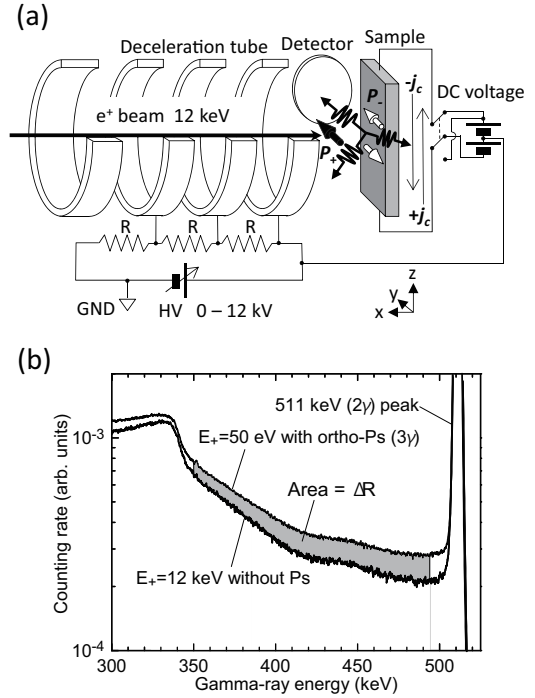


図 11 (a) 静電場輸送型のスピン偏極陽電子ビームを用いて行われた金属表面の電流誘起スピン蓄積効果検出実験の概略図^{47,48)}。陽電子スピンは一方向に固定して、通電方向を反転させることで電子スピンの方向を変える。(b) 12 keV と 50 eV の陽電子ビームを試料に打込んだ際に観測される消滅ガンマ線のエネルギー Spektral。両者は 511 keV ピークの面積強度で規格化されている。ポジトロニウム形成がない 12 keV の場合と比較して、50 eV の場合はポジトロニウム形成のために 511 keV ピークより低エネルギー領域の強度が増加している。影を付けた部分を ΔR と定義している。

子消滅ピーク (511 keV) よりも低エネルギー側の強度増加 (R と表記) として観測され、以下の式で定義される。

$$R = \frac{(1 - F_{\text{Ps}}^{3\gamma})R_0 + F_{\text{Ps}}^{3\gamma}R_1P_1/P_0}{1 - F_{\text{Ps}}^{3\gamma} + F_{\text{Ps}}^{3\gamma}P_1/P_0} \quad (49)$$

ここで、 R_0 と R_1 はポジトロニウム形成がそれぞれ 0 と 100 % のときの R 値、 P は 511 keV ピークの強度であり、その添え字は R 値のそれと同じ意味である。三光子消滅割合 $F_{\text{Ps}}^{3\gamma}$ が 100 % よりも十分小さければ、 R の R_0 からの増加量 ΔR は以下で与えられる。

$$\Delta R = R - R_0 \propto F_{\text{Ps}}^{3\gamma} \quad (50)$$

ミシガン大グループ⁶⁾は、オルトポジトロニウムの三光子消滅寿命測定を用いて、磁化した Ni 表面のスピン偏極率決定を初めて試みた。その結果、Ni 表面電子がスピ

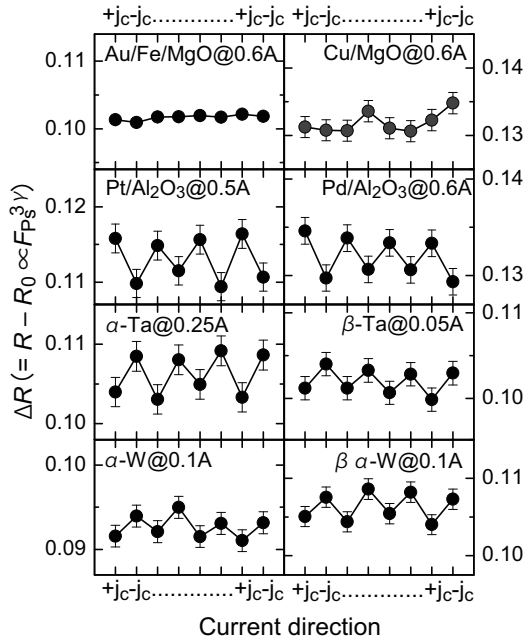


図12 Pt, Pd, Au, Cu, α -, β -Ta, α -, β -W 薄膜について得られた ΔR の電流反転効果⁴⁸⁾。それぞれ抵抗値が異なるため、印加電流が異なっている。

ン偏極しており、それがキュリー温度以上で消失することを示し、当時唱えられていた表面での磁気秩序の消失「Dead Layer」仮説を反証した。最近、筆者らは、上述した三光子消滅ガンマ線のエネルギー測定法を金属表面の電流誘起スピン蓄積効果^{*1}の研究に応用している^{47,48)}。図11(a)と(b)は、実験の概要とPt薄膜について得られた消滅ガンマ線のエネルギースペクトルをそれぞれ示している。陽電子のスピン偏極方向は一方向に固定して、通電方向を反転させることで電子スピンを反転させる。陽電子入射エネルギーが12 keV以上になると、表面ポジトロニウム形成が無視できる程度に低いことは確認済みである。この消滅ガンマ線エネルギースペクトルと比較して、50 eVの場合はポジトロニウム形成のために低エネルギー側(511 keV以下)の強度が増加していることがわかる。この差異(影付部分)が式(50)の ΔR に相当している。図12は、Pt, Pd, Au, Cu, α -, β -Ta, α -, β -W 薄膜について得られた ΔR の電流反転効果である。これより、AuとCu以外の物質では ΔR が明瞭な振動を示すことがわかる。さらに、PtとPd対TaとWでは、振動方向が逆であることがわかる。これらの結果は、Pt, Pd, Ta, Wでは電

*1 金属中の伝導電子と構成原子の間のスピン軌道相互作用により、特定の向きのスピンをもつ伝導電子が表面や界面に偏在する現象。強磁性体の異常ホール効果などに加えて、常磁性物質におけるスピンホール効果やラシュバ効果などが知られている。

流誘起スピン蓄積が起こっており、しかもPtとPd対TaとWではスピンの向きが逆であることを示唆している。式(47)を用いて求めた電子スピン反転に対する非対称度は、電流密度 10^5 A cm^{-2} あたり5%–15%になる。この非対称度はスピン拡散理論では説明できず、さらなる実験と新たな理論の構築に加えて、手法の高度化が求められる。

手法の高度化としては、特にフェルミ面におけるスピン偏極率決定法の開発が重要である。ポジトロニウムの最大運動エネルギーは $-\Phi_{ps} \geq 0$ である。この余剰エネルギーのため、ポジトロニウムが形成される際に、陽電子は $E_F + \Phi_{ps} \leq E \leq E_F$ のエネルギー準位にある電子を引き抜くことができる(E_F : フェルミ準位)。対応するポジトロニウムの運動エネルギーは、 $0 \leq E_{ps} = -\Phi_{ps} - E_F + E \leq -\Phi_{ps}$ の範囲で分布を持つ。このエネルギー分布の横軸は、電子エネルギー準位そのものである。陽電子がエネルギー準位 E にある電子とポジトロニウムを形成する確率を $f_{ps}(E)$ 、電子スピン偏極率のエネルギー分布を $P_{-}(E)$ とすると、上とまったく同様の議論から、エネルギーに依存したオルトポジトロニウム強度とそのスピン反転非対称度は以下のように与えられる。

$$F_{ps}^{3\gamma}(E) = f_{ps}(E) [\varepsilon(1)(F_{|11\rangle} + F_{|1-1\rangle}) + \varepsilon(0)F_{|10\rangle}] \quad (51)$$

$$A^{3\gamma}(E) = \frac{2\varepsilon(1) - \varepsilon(0)}{2\varepsilon(1) + \varepsilon(0)} P_{+} P_{-}(E) \cos \phi \quad (52)$$

$F_{ps}^{3\gamma}(E)$ は陽電子で重みづけされた電子状態密度というべき量である。また、上向きスピンおよび下向きスピン電子の状態密度を $D^{\uparrow}(E)$, $D^{\downarrow}(E)$ とすると、

$$P_{-}(E) = \frac{D^{\uparrow}(E) - D^{\downarrow}(E)}{D^{\uparrow}(E) + D^{\downarrow}(E)} \quad (53)$$

であるから、 $A^{3\gamma}(E)$ は陽電子で重みづけされたスピン偏極電子状態密度といえよう。以上のように、オルトポジトロニウムのエネルギー測定から、フェルミ面(と各エネルギー準位)のスピン偏極率を決定できる可能性がある。これを実現するために、筆者らは、スピン偏極ポジトロニウム飛行時間測定法を開発している。

4. まとめと今後の展望

本稿では、 β^{+} 崩壊に伴ってRIから放出される陽電子を使ったスピン偏極陽電子消滅法について、基礎的な側面と筆者らの研究開発について述べた。スピン偏極陽電子消滅法は、ここで紹介した強磁性中の陽電子消滅実験と表面におけるスピン偏極ポジトロニウム消滅実験だけでなく、原子空孔に存在する不対電子や磁性に寄与する電子の検出にも有用と考えられる。陽電子のスピン偏極性を使ったさらなる研究のためには、ビームの高強度化と

スピン偏極率のさらなる向上とともに、より斬新な計測手法の開発が求められる。これまでの RI 陽電子ビームに加えて、大型施設においても高スピン偏極陽電子ビームの開発を期待したい。

謝 辞

本稿で紹介した内容には、日本原子力研究開発機構の前川雅樹氏、深谷有喜氏、張宏俊氏、李輝氏、東北大学金属材料研究所の高梨弘毅教授、齊藤英治教授、関剛斎助教との共同研究の成果が含まれている。

参 考 文 献

- 1) T. D. Lee, C. N. Yang: Phys. Rev. **104** (1956) 254.
- 2) C. S. Wu, E. Ambler, R. W. Hayward, D. D. Hoppes, R. P. Hudson: Phys. Rev. **105** (1957) 1413.
- 3) S. S. Hanna, R. S. Preston: Phys. Rev. **106** (1957) 1363.
- 4) P. W. Zitzewitz, J. C. van House, A. Rich, D. W. Gidley: Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 1281.
- 5) L. M. Liebermann, D. R. Fredkin, H. B. Shore: Phys. Rev. Lett. **22** (1969) 539; L. M. Liebermann, J. Chilton, D. M. Edwards, J. Mathon: Phys. Rev. Lett. **22** (1970) 232.
- 6) D. W. Gidley, A. R. Koymen: Phys. Rev. Lett. **49** (1982) 1779.
- 7) T. Kumita, M. Chiba, R. Hamatsu, M. Hirose, T. Hirose, H. Iijima, M. Irako, N. Kawasaki, Y. Kurihara, T. Matsumoto, H. Nakabushi, T. Otori, Y. Takeuchi, M. Washio, J. Yang: Appl. Surf. Sci. **116** (1997) 1.
- 8) F. Saito, T. Hyodo, Y. Nagashima, T. Kurihara, N. Suzuki, Y. Itoh, A. Goto: *New Directions in Antimatter Chemistry and Physics*, Eds. C. M. Surko, F. A. Gianturco (Kluwer Academic Publishers, The Netherlands, 2001) p.35.
- 9) 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏:「放射線データブック」(知人書館, 1982).
- 10) M. Maekawa, Y. Fukaya, A. Yabuuchi, I. Mochizuki, A. Kawasuso: Nucl. Instrum. Methods B **308** (2013) 9.
- 11) S. Valkealahti, R. M. Nieminen: Appl. Phys. A **35** (1984) 51; Appl. Phys. A **32** (1983) 95.
- 12) A. Vehanen, J. Maikinen: Appl. Phys. A **36** (1985) 97.
- 13) I. K. MacKenzie, C. W. Shulte, T. Jackman, L. Campbell: Phys. Rev. A **7** (1973) 135.
- 14) F. Rohrich, B. C. Carlson: Phys. Rev. **93** (1954) 38.
- 15) K. A. Ritley, M. McKeon, K. G. Lynn: *Proceedings of 4th International Workshop on Slow-positron Beam Techniques for Solids & Surfaces* (American Institute of Physics, 1990) p.3.
- 16) K. O. Jensen, A. B. Walker: Surf. Sci. **292** (1993) 83.
- 17) K. O. Jensen, A. B. Walker: J. Phys.-Condes. Matter **2** (1990) 9757.
- 18) C. K. Iddings, G. L. Shaw, Y. S. Tsai: Phys. Rev. **135** (1964) B1388.
- 19) R. M. Sternheimer: Phys. Rev. B **103** (1956) 511.
- 20) M. E. Rose, H. A. Bethe: Phys. Rev. **55** (1938) 277.
- 21) J. van House, P. W. Zitzewitz: Phys. Rev. A **29** (1984) 96.
- 22) A. Kawasuso, M. Maekawa, Y. Fukaya, A. Yabuuchi, I. Mochizuki: Phys. Rev. B **83** 100406(R) (2011).
- 23) A. Kawasuso, M. Maekawa, Y. Fukaya, A. Yabuuchi, I. Mochizuki: Phys. Rev. B **85** (2012) 024417.
- 24) A. Kawasuso, M. Maekawa: Appl. Surf. Sci. **255** (2008) 108.
- 25) M. Maekawa, Y. Fukaya, H. Zhang, H. Li, A. Kawasuso: J. Phys.-Conf. Ser. **505** (2014) 012033.
- 26) L. A. Page: Rev. Mod. Phys. **31** (1959) 759.
- 27) A. Rich, H. R. Crane: Phys. Rev. Lett. **5** (1966) 271.
- 28) G. Gerber, D. Newman, A. Rich, E. Sweetman: Phys. Rev. D **15** (1977) 1189.
- 29) Y. Nagai, Y. Nagashima, J. Kim, Y. Itoh, T. Hyodo: Nucl. Instrum. Methods B **171** (2000) 199.
- 30) S. Berko: *Positron Annihilation*, Ed. A. T. Stewart, L. O. Roellig (Academic Press, New York, 1967) p.61.
- 31) P. E. Mijnarends, L. Hambro: Phys. Lett. **10** (1964) 272.
- 32) P. E. Mijnarends: Physica **63** (1973) 248.
- 33) S. Berko, J. Zuckerman: Phys. Rev. Lett. **13** (1964) 399.
- 34) T. W. Mihalisin, R. D. Parks: Phys. Rev. Lett. **18** (1967) 210.
- 35) T. W. Mihalisin, R. D. Parks, Solid State Commun. **7** (1969) 33.
- 36) N. Shiotani, T. Okada, H. Sekizawa, T. Mizoguchi, T. Karasawa: J. Phys. Soc. Jpn. **35** (1973) 456.
- 37) M. Söb, S. Szuszkiewicz, M. Szuszkiewicz: Phys. Status Solidi B-Basic Res. **123** (1984) 649.
- 38) T. Jarborg, A. A. Manuel, Y. Mathys, M. Peter, A. K. Singh, E. Walker: J. Magn. Magn. Mater. **54-57** (1986) 1023.
- 39) S. Szuszkiewicz, M. Söb, M. Szuszkiewicz: J. Magn. Magn. Mater. **62** (1986) 202.
- 40) P. Genoud, A. K. Singh, A. A. Manuel, T. Jarborg, E. Walker, M. Peter, M. Welle: J. Phys. F **18** (1988) 1933.
- 41) P. Genoud, A. A. Manuel, E. Walker, M. Peter: J. Phys.-Condes. Matter **3** (1991) 4201.
- 42) H. Kondo, T. Kubota, H. Nakashima, T. Kawano, S. Tanigawa: J. Phys.-Condes. Matter **4** (1992) 4595.
- 43) S. Wakoh: J. Phys. Soc. Jpn. **20** (1965) 1894.
- 44) K. E. H. M. Hanssen, P. E. Mijnarends: Phys. Rev. B **34** (1986) 5009.
- 45) J. Lin, K. Nishida, M. Saito: Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 125101.
- 46) R. M. Drisko: Phys. Rev. **102** (1956) 1542.
- 47) A. Kawasuso, Y. Fukaya, M. Maekawa, H. Zhang, T. Seki, T. Yoshino, E. Saitoh, K. Takanashi: J. Magn. Magn. Mater. **342** (2013) 139.
- 48) H. J. Zhang, S. Yamamoto, Y. Fukaya, M. Maekawa, H. Li, A. Kawasuso, T. Seki, E. Saitoh, K. Takanashi: Sci. Rep. **4** (2014) 04844.

(2014 年 11 月 17 日受付)

著 者 紹 介



河裾 厚男: 現職: 日本原子力研究開発機構 研究主幹, 最終学歴: 東北大学大学院理学研究科物理学専攻, 職歴: 平成 7 年日本原子力研究所(現在の原子力機構)入所, 専門分野: 物性物理学(実験), 趣味: 声楽, 各種スポーツ。