

弾性散乱微分断面積測定による
多価イオンと原子の
相互作用ポテンシャルの決定

17540373

平成 17 年度ー平成 19 年度科学研究補助金
基盤研究（C）研究成果報告書

平成 20 年 6 月

研究代表者： 伊藤 陽

城西大学 理学部 准教授

研究成果報告書 目次

0. はしがき	2
1. これまでの研究経過と本研究の目的	4
2. 実験装置の概略	10
3. 測定結果と考察	
3-1: 予備実験	17
3-2: 2価イオン衝突	18
3-3: 3価イオン衝突	35
4. 今後の課題	46
5. 発表した概要集原稿	49

はしがき

この報告書は、平成 17 年度～平成 19 年度の 3 年間にわたって行われた、科学研究補助金 基盤研究 (C)「弾性散乱微分断面積測定による多価イオンと原子の相互作用ポテンシャルの決定 (課題番号: 17540373)」の研究成果報告書である。

本研究の目的は、10eV 領域での多価イオンと原子・分子衝突の微分断面積測定を行う事から

(1) 未解明の衝突系の性質を調べるという原子衝突研究固有の課題を追究し、また、

(2) 相互作用ポテンシャルを決定し、量子化学など他分野へのデータ提供を目指して行われたものである。

この目的に沿って行われた研究に関して、到達点と今後の課題について述べる。

電気通信大学の大槻一雅さんからは本研究で測定した衝突系に関して、未発表の膨大な理論計算結果をご提供いただいた。この理論サポートがなければ、測定結果に対する考察は非常に困難になった事が予想される。冒頭にしるして、大槻さんのご努力に感謝する。

研究組織

研究代表者 伊藤 陽 城西大学 理学部 准教授

交付決定額

	直接経費	間接経費	合計
平成 17 年度	2,100,000	0	2,100,000
平成 18 年度	500,000	0	500,000
平成 19 年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,100,000	150,000	3,250,000

研究発表

伊藤陽：10eV領域での一電子移行過程の二重微分断面積測定： $C^{3+}, N^{3+}, O^{3+} + He$

日本物理学会2005年9月

伊藤陽，大槻一雅：古典軌道法に基づく電荷移行反応微分断面積の解析

日本物理学会2006年9月

伊藤陽： $E_{lab} = 20eV$ での $C^{2+}, N^{2+}, O^{2+}, F^{2+} - He$ 衝突の比較

日本物理学会2007年9月

1-1 これまでの研究経過

10 eV 程度の衝突エネルギー領域での多価イオンと原子の衝突の二重微分断面面積測定は、イオンビーム強度の低下、および、多価イオン生成そのものに困難が伴うため、その実現のためには種々の技術開発が必要とされた。本研究以前には、以下の補助を受けたこともその実現を促進した。ここにそれらを記し、改めて感謝したい。

科学研究費：奨励研究 (A) (昭和59年度) 低エネルギー領域でのイオン・原子衝突の二重微分断面面積測定 (研究代表者：伊藤 陽)

電子衝撃型イオン源の製作などから研究を開始した。

科学研究費：一般研究 (C) (昭和60～61年度) 低エネルギー領域でのイオン・原子衝突の二重微分断面面積測定 (研究代表者：伊藤 陽)

小型の電子衝撃型イオン源を用いたごく小規模な実験装置を建設し、特に10 eV 以下の低エネルギーイオンビーム生成とエネルギー分析の技術開発に着手した。

科学研究費：奨励研究 (A) (昭和63年度) 低エネルギー多価イオン衝突における電荷移行反応の二重微分断面面積測定 (研究代表者：伊藤 陽)

永久磁石を用いた電子ビーム型イオン源の試作を行い、電子ビーム発生等の基礎データを得た。

科学研究費：一般研究(C)（平成6～7年度）10eV領域での電荷移行反応の微分断面積測定（研究代表者：伊藤 陽）

電子ビームイオン源(EBIS)の開発を行い、それまでに用いていたイオン源では生成できなかった多価イオンが生成できるようになり、10 eV 以下までの減速にも成功した。電荷移行生成物の角度分布の測定を行い、電荷移行反応の機構解明に着手した。

科学研究費：重点領域研究・公募（平成6～7年度）多次元同時計測システムの開発（研究代表者：吉野 益弘 分担者：伊藤 陽）

極微弱な信号検出のため、汎用位置敏感型検出器および計測系のハード・ソフトウェアの開発を行った。ここで開発・製作された位置敏感型アノードは、本研究において重要な役割を果たしている。

科学研究費：重点領域研究・公募（平成6～7年度）希ガス多価イオンの光電離（研究代表者：伊藤 陽）

希ガス多価イオン源の開発・種々の測定器の開発を行い、この過程でイオンや電子の軌道シュミレーションに基づいての静電型レンズ等の詳細設計が可能となり、装置開発が効率的に行えるようになった。

科学研究費：基盤研究(B)（平成8～10年度）10eV領域での多価イオンの関与する電荷移行反応の微分断面積測定（研究代表者：伊藤 陽）

高感度の位置敏感型検出器を導入し、 $O^{2+} - He$ 系での一電子移行過程の二重微分断面積測定を行う事から、長年の懸案であった測定の first step を踏み出すことが出来た。

その後、計測方法の改良など細かな改良を進めながら、測定を継続しつつ測定能力の向上に努めてきた。本研究ではこれらの準備の後、従来の電荷移行反応測定に加えて、多価イオンの弾性散乱をも同時測定する事により、衝突現象をより詳細に理解しようとしているものである。

1-2. 研究目的・研究結果の概略

イオンと原子・分子衝突は、その反応断面積が大きく、非弾性衝突によって生じる反応生成物には高励起状態が含まれることがある等、非常に多彩な素過程である。それ故に、実験室プラズマの理解・モデリング、上層大気中の化学反応、惑星大気からの発光過程の理解等のためにも、その研究は継続的に行われてきている。

応用面からは、多価イオン衝突は、それ自体が非常に多くの内部エネルギーを持った粒子であることを特徴の一つとして、固体表面改質の手法のひとつとして注目されている。

ナノテクノロジーの代表とも言える量子ドットの作成には、イオンビームを用いる方法も検討されており、イオンと固体の相互作用のシミュレーション手法として分子動力学も多く用いられている。この時、計算結果を支配する最も重要な要素が、固体を構成する原子間ポテンシャル、および入射イオンと固体

間のポテンシャルである。原子衝突研究には、相互作用ポテンシャルの決定のためになされてきた歴史があり、これまで1価イオンを用いた相互作用研究はいくつかあるが、多価イオンを用いた研究はほとんどなく、等電子系列での系統的な測定は皆無である。最近では多価イオン生成が比較的容易になり、この新たなプローブを用いて種々の衝突系の相互作用を測定する事ができるようになりつつある。多価イオンをプローブとした測定を行なうことから、衝突過程を決定する相互作用ポテンシャルが系統的に決定できることが期待され、これらは更に複雑な量子化学計算への手がかりとなる事も期待された。

本研究では多数の衝突系について、より低エネルギー領域での測定を目標とした。10 eV 領域の低エネルギー衝突を研究対象とする理由は、

- (1) この領域でのビーム実験がほとんど行われていない、
 - (2) 散乱現象の相互作用ポテンシャルの形状依存性が衝突エネルギーの低下と共に顕著となり、その効果が明確に微分断面積に反映されること、
 - (3) 量子論的な干渉効果の観測が期待されること、
 - (4) 反応についての主な遷移機構はエネルギーの低下とともに純粋な動径結合になり、このモデルに基づいた理論結果との比較することにより実験結果の解析が詳細に行なえる、
- 等である。

また、実験技術的にも、このエネルギー領域での微分断面積測定は、低エネルギービームの強度に起因する技術的困難より、非常に挑戦的な試みともされている。微分断面積測定的重要性は、その解析から相互作用・反応機構に関する詳細情報が得られるためである。すなわち、弾性散乱はポテンシャル形状に

非常に敏感であり、また反応は衝突過程中に形成される準分子状態間のポテンシャル交叉点近傍で起こり、その非断衝突径数依存性をイオンの散乱角度に反映されるためである。

本研究では、多価イオンと原子の弾性散乱微分断面積を交叉ビーム法を用いて精密測定し、微分断面積に見られた虹散乱などの解析より斥力を含めた相互作用ポテンシャルの決定を行った。研究開始時には、斥力ポテンシャルを、衝突系に含まれる粒子の電子配置や波動関数を直接反映する量ととらえた。そして、その強さや形状の電子数への依存性を求め、クーロン力の支配する有限多体系についての系統的な理解を深めることを目標とし、実際に、実験結果を量子化学的計算結果を元に解析し、その妥当性を検討した。

研究開始時の相互作用に関する認識は以下のようなものであった。

(1) $H^+ - H^+$ 衝突は、 r^{-1} (r : 核間距離) に比例するクーロンポテンシャルによって完全に記述される。これに対して、電子が1個含まれる $H^+ + H$ 系では、近距離ではクーロン力よりも強い冪、例えば r^{-12} といった斥力が作用し、また中間距離では引力ポテンシャルが存在するようになる。遠距離力には r^{-4} や r^{-6} に比例するポテンシャルをあてはめることが多く、この依存性については、イオンと標的の誘起双極子との静電的な相互作用やファン・デル・ワールス力といった物理的な根拠が与えられる。しかし、斥力に関しては核間距離依存性に簡単な理論はない。

(2) 斥力ポテンシャルは衝突系に含まれる電子数・電子密度に強く依存することが予想され、衝突系に含まれる電子数の減少により核の遮蔽効果が漸減し、クーロン力が支配的になることから斥力は“柔らかく”なっていくことが予想され

る.

(3) 多価イオンを用いることにより、 H^+ から U^{92+} まで、ほぼ無数ともいえるプロ
ープが準備される事となる。これにより、ある標的について C^+ , C^{2+} , C^{3+} のような
等核系列での測定からは、反応の入射粒子の価数依存性を系統的に求めることが
できる。また、 C^+ , N^{2+} , O^{3+} といった等電子系列での測定からは、衝突系の全電子
数が一定であるため、相互作用ポテンシャルの中の電子相関項を一定にしたまま
反応の核電荷依存性を求めることができる。

(4) 多価イオン衝突の重要な非弾性過程としての電荷移行反応は、弾性散乱断
面積の減少として測定できる。その角度依存性や強度の解析から、ポテンシャル
交差点での遷移確率に関する情報も得られる。

これらの予想のうち、多価イオンの弾性散乱微分断面積が価数が上がるにつれ、
前方方向に集中する傾向がみられ、(2)については予想通りの結果が得られた。
しかし、多くの測定結果は電子個数の変化毎に実に多彩な変化を示すことがわか
り、弾性散乱・反応を統一的に理解するためには、今後の更に詳細な実験及び理
論的研究の必要性が認識されつつある。

以下順に、具体的に得られた実験結果・解析結果について述べる。

2. 実験装置について

2.1 交差ビーム法実験装置

本研究で用いた交差ビーム法実験装置を図1に示した。

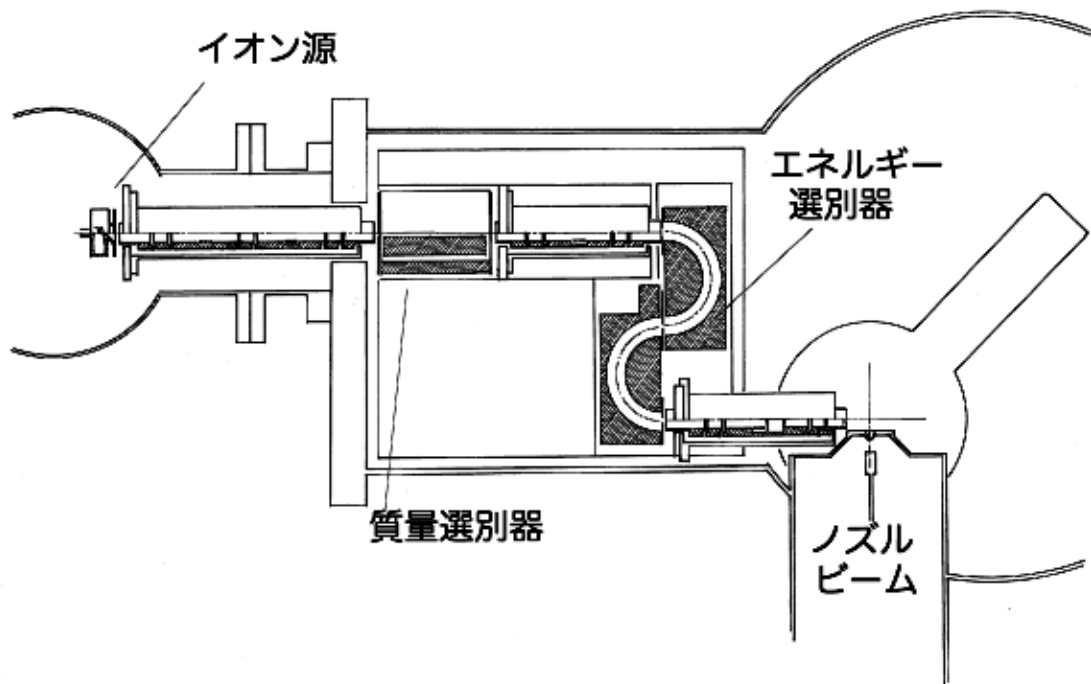


図1：交差ビーム法実験装置図

実験装置は、電子ビームイオン源・Wien-filter型質量選別器・2連半球型エネルギー選別器・超音速ノズルビーム・イオン検出器より構成されている。また、電子ビームイオン源（EBIS）を図2に示した。

このEBISにより、C, N, O, F, Neについては1～5価イオンが、またArについては1～8価イオンがこれまでの所得られている。運転は、イオンを連続的に引き出すモードで行っている。EBISで生成された多価イオンは2kVで引

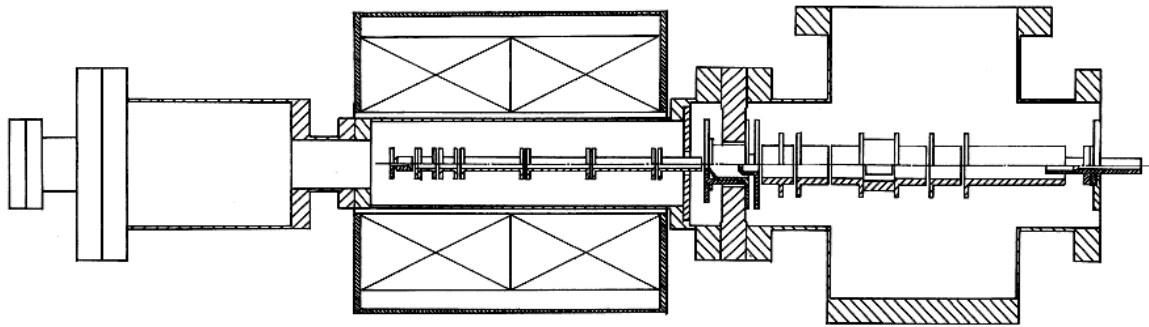


図 2 : 用いた電子ビームイオン源 (EBIS)

き出され、静電レンズを用いて Wien-filter 型質量選別器に入射する前に $250 * q$ eV (q : 価数) まで減速される。質量選別されたイオンはさらにエネルギー選別器に到達するまでに、その通過エネルギーまで減速されエネルギー選別される。エネルギー選別される前のイオンビームのエネルギー幅は、半値幅でおよそ $0.8 * q$ eV であった。

質量分析した直後のイオン強度は、 0^{2+} , 0^{3+} については 0.1 nA 程度であったが、エネルギー選別・コリメートし、更に 10 eV 領域まで減速すると、実験に用いることのできるビーム強度は 1 pA 程度まで減少してしまう。しかしこの強度は、同種の実験において多く使われている、加速器を用いた反跳イオン源によって生成されるビームの強度と同程度かそれ以上であり、EBIS により低エネルギー多価イオン衝突実験が小規模実験室でも可能となったことの意義は大きい。また、一般に EBIS によって得られたイオンビームは、その内部状態がほとんど基底状態にあることが知られており、この点も反跳イオン源を用いた実験よりも優れていると言えよう。

次にこのイオン源より得られたイオンの質量スペクトル例を示した。

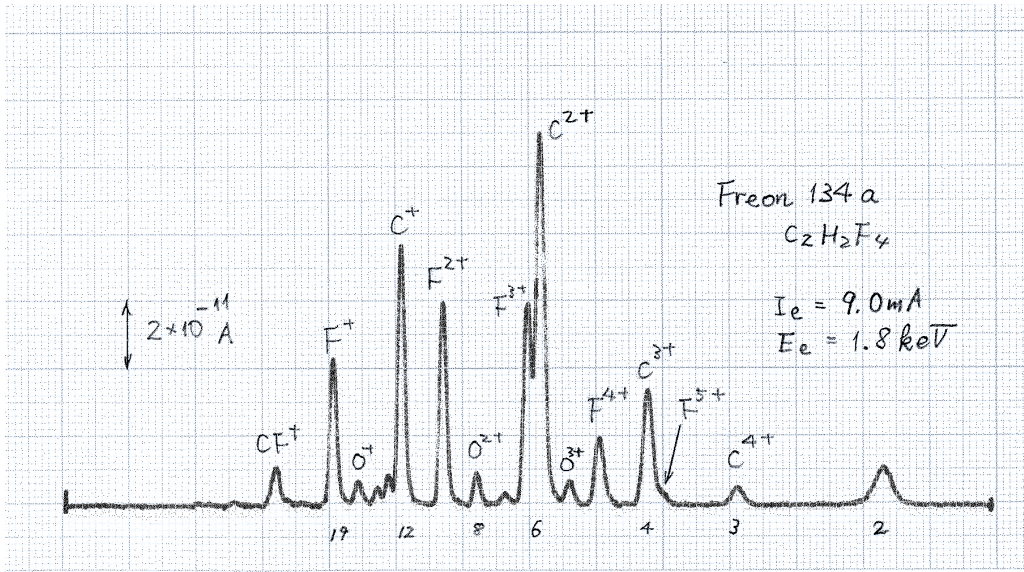


図3：イオンの質量スペクトル

また，散乱イオンの分析・検出には図4に示した，軌道半径 100mm の静電同心円筒型エネルギー分析器が用いられた．偏向角度は 90° であり，イオンの収束平面には1次元の位置敏感型検出器が置かれている．

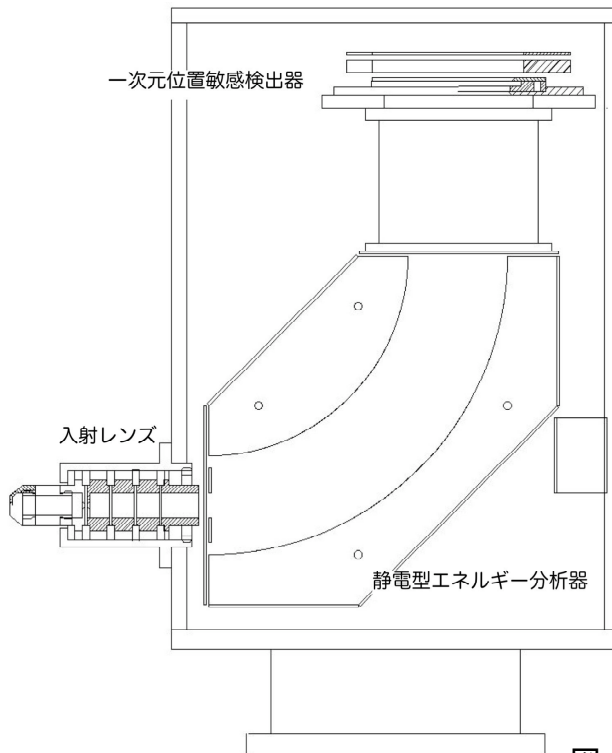


図4：イオンエネルギー分析器

2-2. 研究経過：実験技術

(1) 電子コレクターの冷却効率の向上

(株) トクヤマの製品である窒化アルミニウムセラミックス (商品名： Shapal (SH-15)) は、体積抵抗率が $1.1 \times 10^{12} \Omega \text{m}$ で、アルミナセラミックスと同等でありながら 20°C での熱伝導率が $184 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ と、銅の約 48%、SUS304 ($16.7 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$) の 10 倍以上と、非常に大きな熱伝導率を持つ素材である。従来は、電子コレクターの冷却のために水冷面との間に $100 \mu \text{m}$ のカプトン箔をはさみ、間接水冷を行ってきた。今回加工性の問題より厚さ 2.0mm の絶縁リングを用いて絶縁を行った。カプトンの熱伝導率は $0.16 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ しかなく、今回の絶縁リングは厚さは 20 倍になったが熱伝導率は 1000 倍以上高いため、冷却効果を 50 倍ほど向上させる事ができた。

電子コレクターの実際の温度は測定していないが、これに交換した後は、従来見られた長時間にわたる真空度の変化やイオンビーム強度の不安定性は見られなくなり、冷却能力の向上は安定な測定を行う上で大きな役割を果たした。

(2) 超音速ノズルビーム生成用のノズル形状の改良.

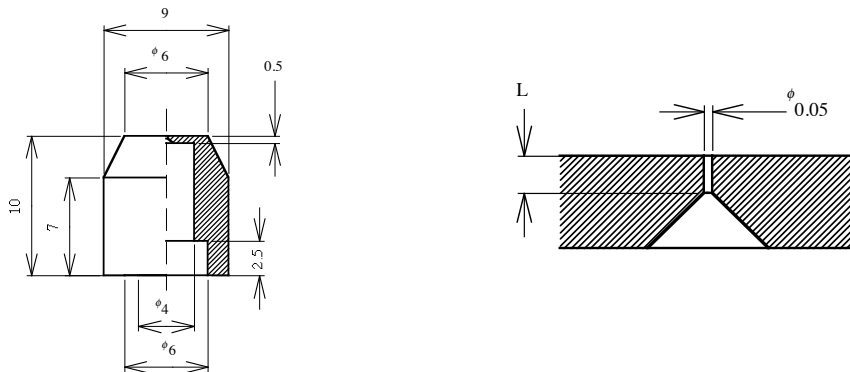


図5：標的ビーム生成用のノズル

従来用いてきたノズルは、直径 $50\mu\text{m}$ の穴が同じ程度の厚さの板に開けられているものであった。ノズルビーム強度を向上させるためには、穴径に比べて数倍の長さのノズルが有効である事が報告されている。そこで、長さが $200\mu\text{m}$ のノズルを製作し、設置した。ノズルに同じ圧力の試料ガスを導入し、ノズルビーム前面に置かれた差動排気部（図面には表示されていない）の圧力増加から判断する限り、ビーム強度は4～5倍ほどになったと判断できている。

(3) MCP の Z-stack 構造

イオン検出にこれまでは2枚の micro-channel-plate を Chevron 構造にしたものを用いてきた。今回は、微少な散乱信号を取りこぼさずに検出するために、同じ口径のものを3枚いわゆる Z-stack 構造にしたものに交換した。図6, 図7に検出器からの信号電圧分布を示した。

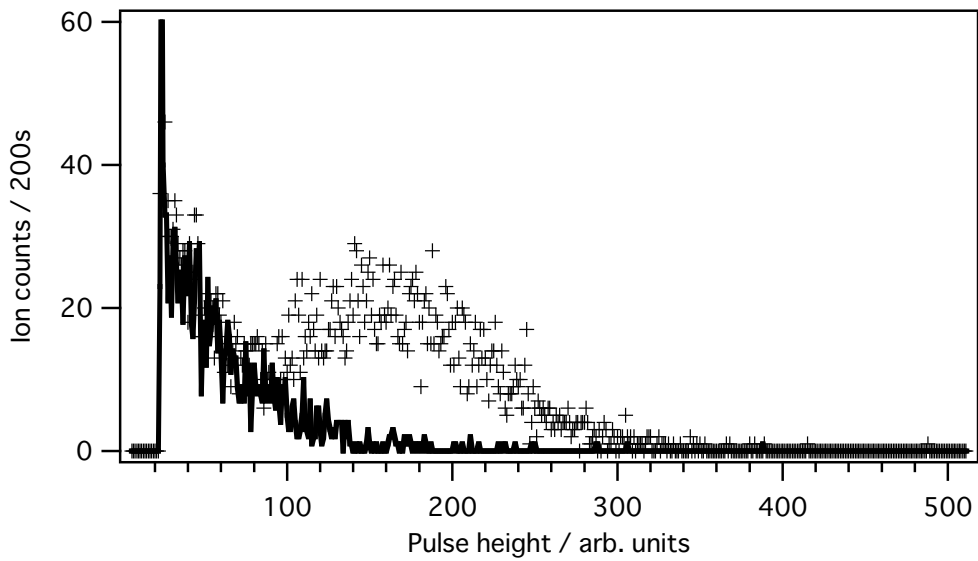


図6 : Chevron 構造の時 O^{3+} 衝撃 印加電圧 1.8kV

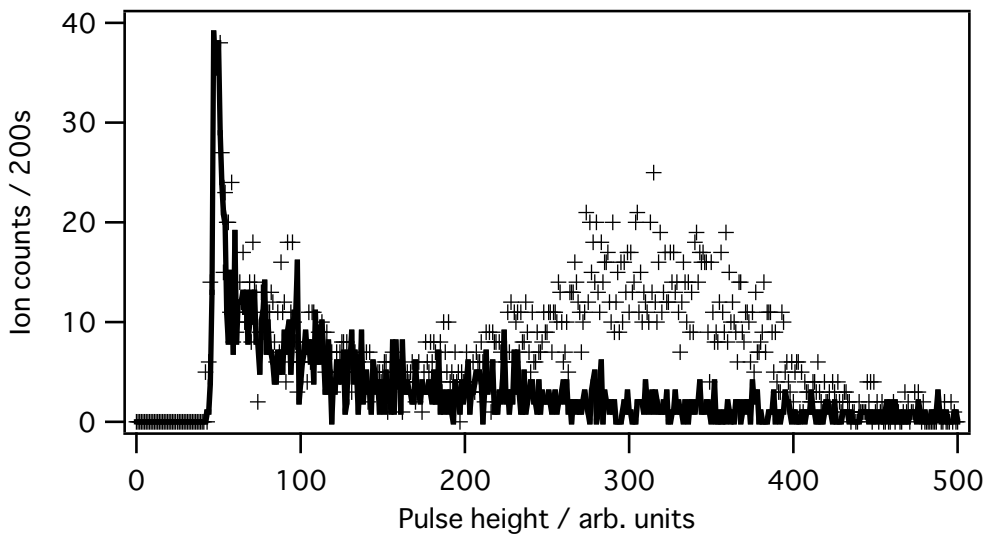


図7 : Z-stack 構造の時 F^{3+} 衝撃 印加電圧 1.9kV

実線で表したものが MCP 起因のノイズ，+印がイオン入射による信号である。図 6，図 7 はほぼ同等の印加電圧時のパルス波高分布である。MCP そのものが発生するノイズと入射粒子に起因する波高分布の違いは Z-stack の方が明らかに優れている事が分かる。すなわち Chevron 構造の検出器では，MCP 起因のノイズを排除するためには，パルス計数装置で，真の信号をも除外する位のかなり高い敷居値を設定しなくてはならない。それに対し Z-stack 構造では，信号を捨ててしまうような敷居値を設定しなくともノイズと弁別しての計測が可能となる。この事は，信号の係数率を向上させられる事を意味する。しかし，Z-stack ではパルス波高の高いノイズも発生している事も見て取れる。これは，初段の MCP の発生するノイズに起因するものと思われ，敷居値の設定の調整では除ききれないものであった。高係数率と高い S/N 比を得るためには，特に初段の MCP を選別し，低ノイズのものを用いる事が必要であろう。

3. 実験結果

3-1. 1価イオンを用いた予備実験結果

弾性散乱微分断面積は、衝突系の相互作用ポテンシャルを求めるために、その研究の歴史は非常に長い。本研究においても、これまでに測定が行われた系を再測定し、その再現性を確認する事から、この実験装置から求められる実験結果の信頼度を検証した。

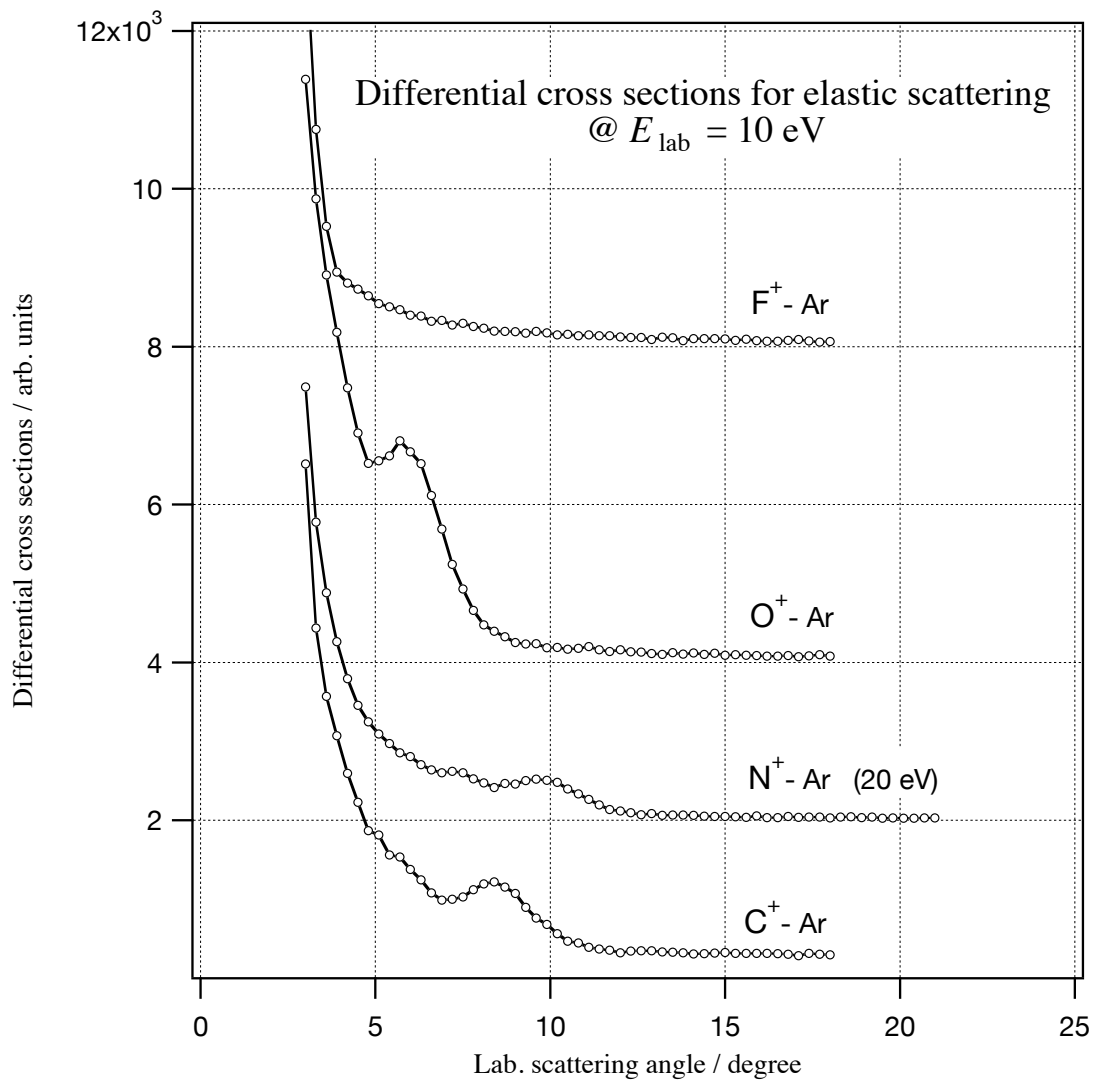


図8 予備的な弾性散乱微分断面積測定結果

ここに見られる構造は、それぞれ虹散乱であり Ding らによって 1970 年代に精力的に行われた研究結果 (J. Chem. Phys. **70** (1979) 864) と良く一致するものである事を確認した.

3-2-1. C^{2+} -He, F^{2+} -He について

C^+ のイオン化エネルギーは 24.383eV で He 原子のイオン化エネルギー 24.587eV よりも低く, C^{2+} He 衝突において電荷移行反応は吸熱反応となり低エネルギー衝突での反応断面積は非常に小さい.

図 9 に実験結果を示した. 縦軸は実験室系での散乱角度 ($3^\circ \sim 22.5^\circ$), 横軸は散乱イオンエネルギーである. 0.3° ステップで測定したイオンエネルギースペクトルを 2次元表示した. 入射イオンの質量は標的原子よりも大きいため, 重心系での前方散乱と後方散乱が同一の実験室系角度で測定されている事が明瞭に分かる.

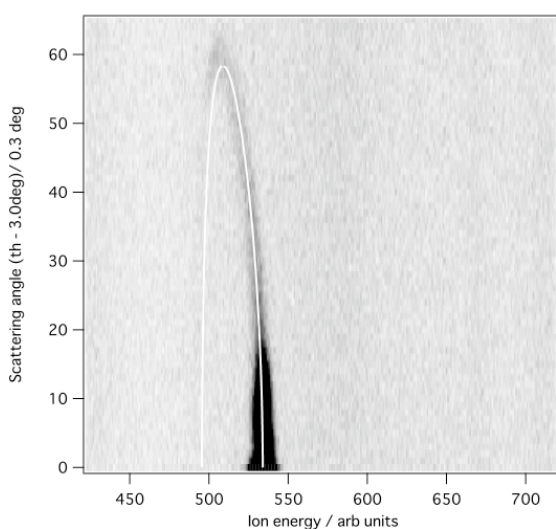


図 9 弾性散乱イオン信号の 2次元表示

白線で示したものは、実験室系での衝突エネルギーを 12.0eV とした時のイオンの運動エネルギー分布の計算値である。この計算では、標的ビームの運動エネルギーは $5kT/2$ で計算している。衝突エネルギーを変化させながら求めた運動エネルギー分布の計算結果を計測結果と比較する事から、衝突エネルギーを $\pm 0.5\text{eV}$ 程度まで正確に求める事ができた。

この実験結果からも分かるように、観測された信号は弾性散乱による信号のみで、電荷移行反応に対応する信号は見つかっていない。

弾性散乱によるイオン信号を積分し、通常の方法で重心系に変換した結果を次に示した。

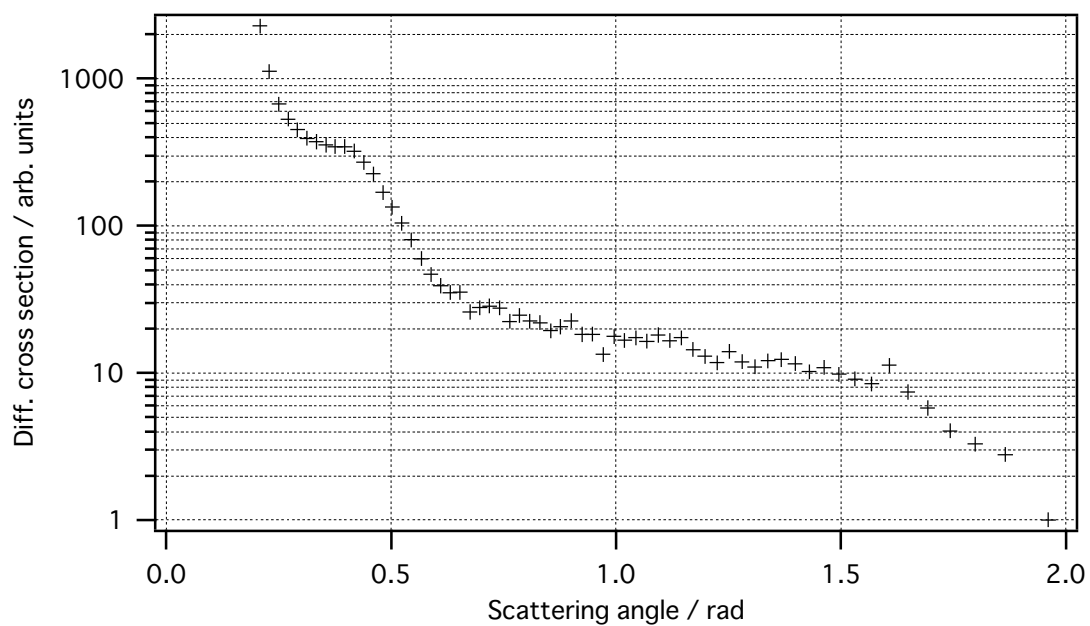


図10 弾性散乱の微分断面積

重心系散乱角度が大きくなるに連れて微分断面積は減少し、0.4rad 近傍で一度大きくなり、その後はまた単調に減少する傾向を示している。

この微分断面積に見られる構造を解析し、基底状態の相互作用ポテンシャルを以下の手順で求めた。

(1) 大槻一雅（電通大・個人的な情報提供）の計算した、ab initio ポテンシャルを次に示した。

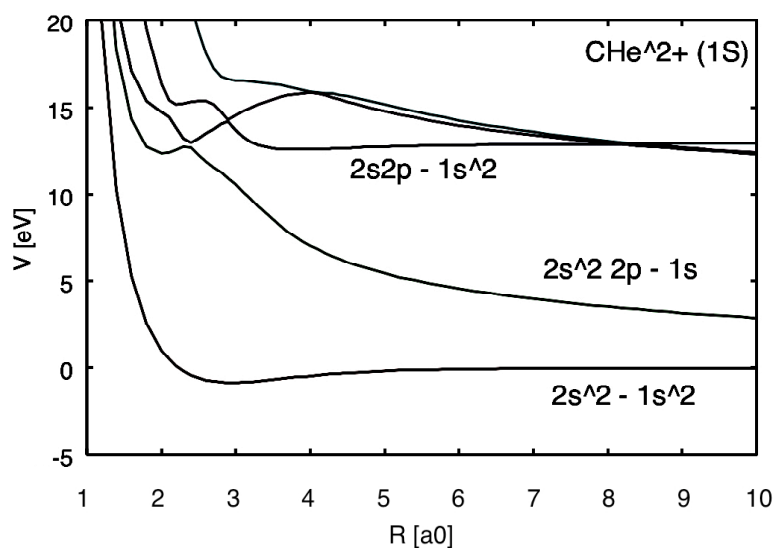


図11 CHe^{2+} の相互作用ポテンシャル

C^{2+} イオンは $(1s^2 2s^2 \ ^1S_0)$ 状態，He 原子は $(1s^2 \ ^1S_0)$ であり，この電子配置から構成される分子軌道の対称性は $^1\Sigma^+$ のみであり，この相互作用ポテンシャルで衝突系はすべて決定される事になる．今回の衝突エネルギーで弾性散乱に関わる相互作用ポテンシャルは基底状態のみであり，これを断面積計算に便利なようにMorse型の関数にフィットした．原子単位系でフィットした結果は

$$V(r) = 0.030480 (e^{2 \times 1.0434 (2.9 - r)} - 2e^{1.0434 (2.9 - r)})$$

となった．

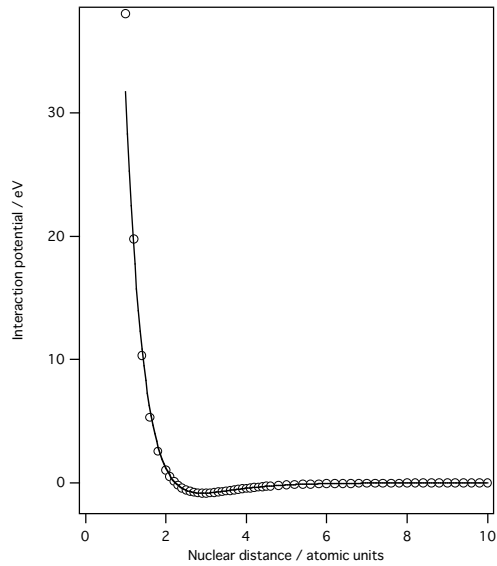


図12 理論値とそれをフィットした結果

このポテンシャルを用いて、微分断面積の計算を行った。相互作用ポテンシャルには顕著な引力項があり、予備的な古典軌道計算から虹散乱が起きるであろう事が予想された。衝突係数を b , 偏向角度を $\theta = \theta(b)$ とすると古典的な微分断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{b}{\sin\theta |d\theta/db|}$$

で表される。偏向角度を計算すると虹散乱の起きる条件 $d\theta/db=0$ となる点があり、そこで古典的な断面積は発散してしまう。これでは実験結果と計算値の詳細な比較を行う事はできないため、散乱による位相のずれを計算し、量子論を用いて微分断面積を求めた。

この衝突エネルギーでは、半古典論が使えるため、位相のズレ η_l の計算には JWKB公式を用い、散乱振幅 $f(\theta)$ の2乗として微分断面積を計算した。

$$\eta_l = \frac{\pi}{2} \left(l + \frac{1}{2} \right) - kr_0 + \int_{r_0}^{\infty} \left(\sqrt{k^2 - U(r) - \frac{(l + \frac{1}{2})^2}{r^2}} - k \right) dr$$

$$f(\theta) = \frac{1}{2ik} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(e^{2i\eta_l} - 1)P_l(\cos\theta)$$

ここでを換算質量とし，重心系での衝突エネルギーをE とすると，

$$k^2 = \frac{2\mu}{\hbar^2} E, \quad U(r) = \frac{2\mu}{\hbar^2} V(r)$$

となる． r_0 は最近接距離である．

数値積分には， r_0 近傍での発散に効果的な公式である二重指数関数公式を用いた．また，部分波は $l=2000$ 程度まで計算し，十分にズレが小さくなっている事を確認した．

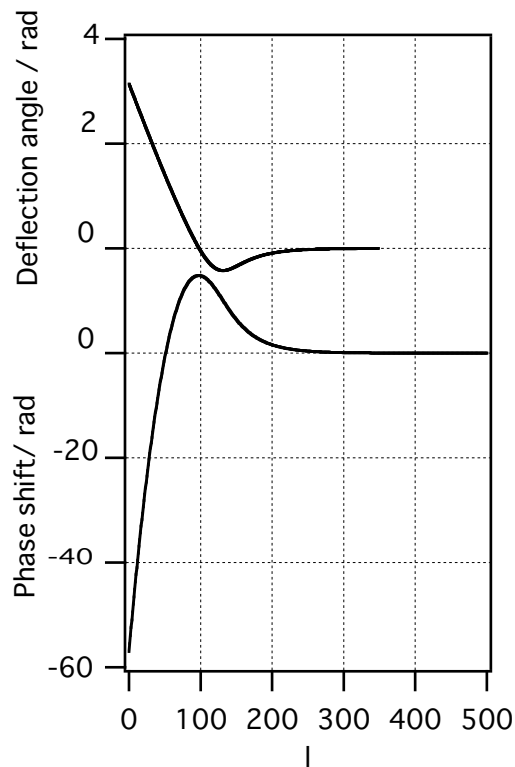


図13 部分波と偏向関数の関係

上の図では求めた位相のズレを部分波1の関数として表示した．また，この図には衝突係数 $b=1/k$ の関数として求めた偏向関数も表示した．散乱振幅に関する stationary phase 近似より求められる関係式 $2\frac{d\eta_1}{dl} = \theta$ が良く成り立っている事がわかる．次に，この計算で求められた微分断面積を示した．

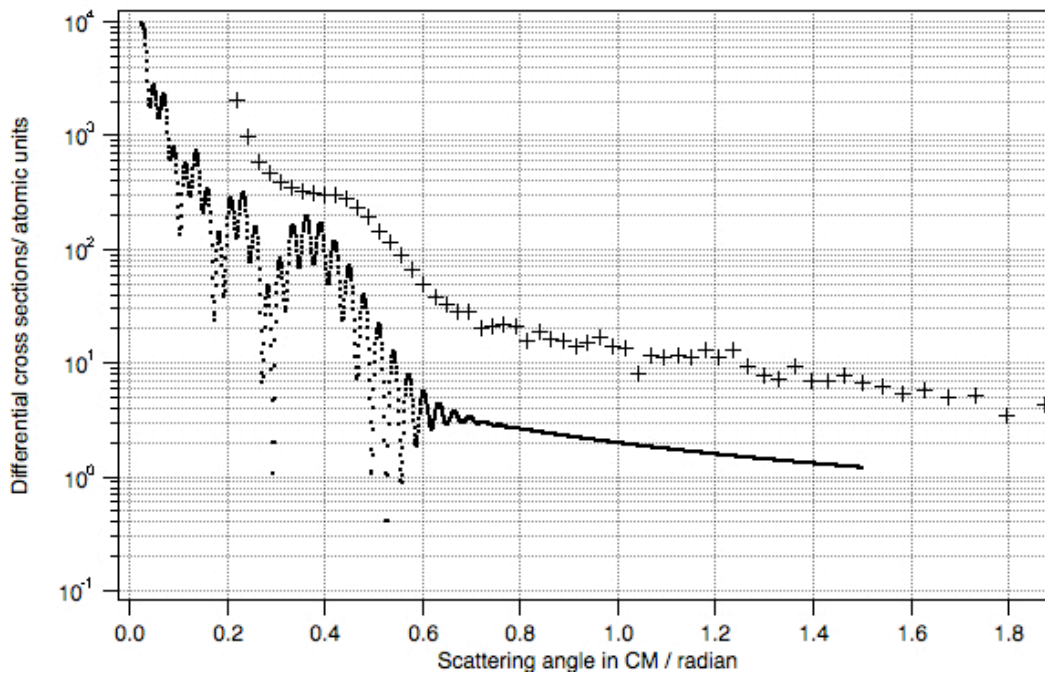


図 14 JWKB 法を用いての微分断面積の計算結果と実験値の比較

この計算結果は，散乱角度 0.5rad 以下の所に典型的な 1 次，2 次の虹散乱構造を示している．このことより実験結果に見られた散乱角度 0.4 rad 近傍の構造は虹散乱によるものである事が明らかになった．次の図は計算結果を適当に平滑化し実験結果と再度比較した．

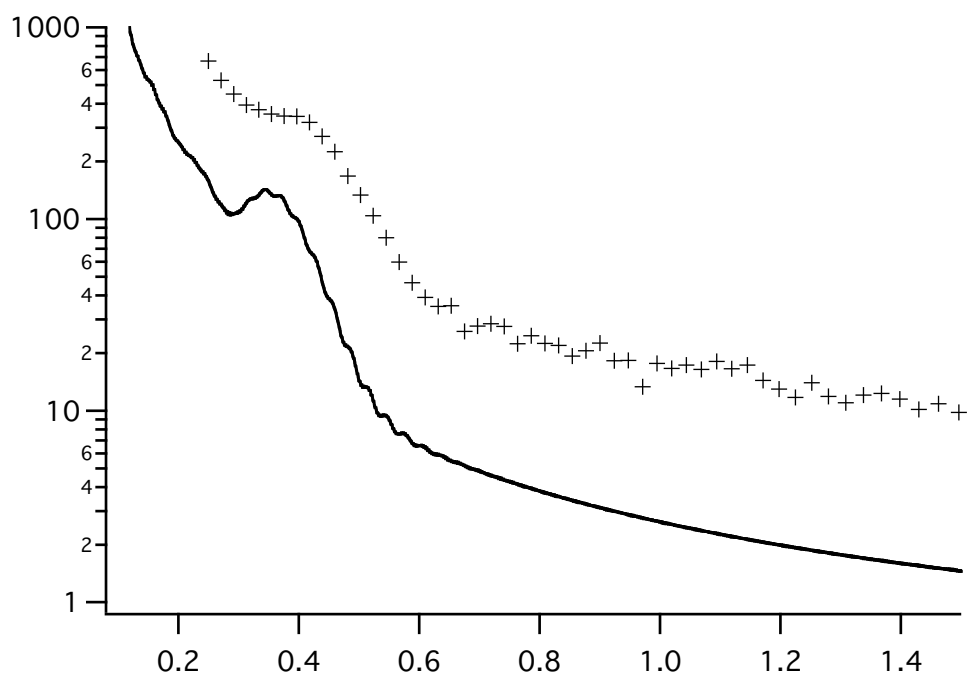


図 15 平均化した理論値と実験値の比較

実験結果との一致はかなり良好と判断でき、大槻によって求められた相互作用ポテンシャルは信頼度の高い結果である事が判明した。

F^{2+} He 衝突において、 F^+ のイオン化エネルギーは 34.971eV で He 原子のイオン化エネルギー 24.587eV よりも十分に高く、電荷移行反応は発熱反応となり低エネルギー衝突でもエネルギー的には反応が起きる事は可能である。しかし、実験室系のエネルギー 23 eV で実際に測定してみた所、弾性散乱の信号のみが観測され、電荷移行反応の断面積は非常に小さい事が判明した。

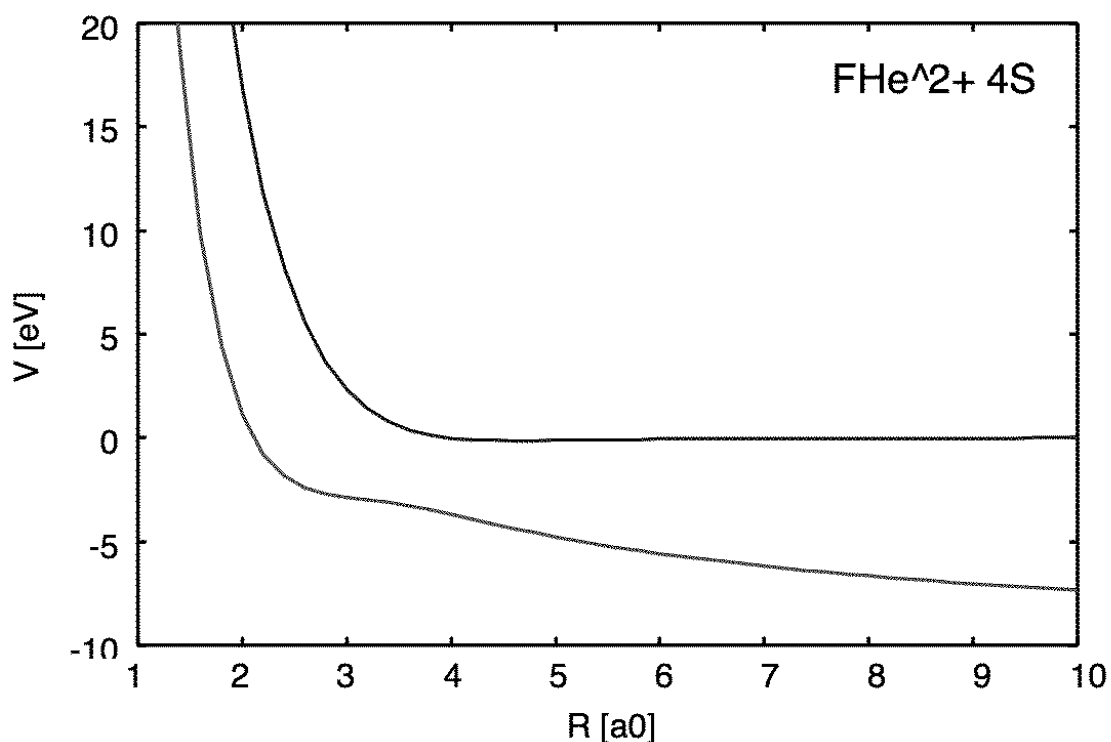
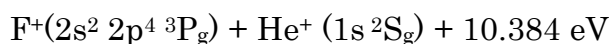


図 16 FHe²⁺ の相互作用ポテンシャル

この系についてのポテンシャル曲線を上のグラフに示した。

初期状態は $F^{2+}(2s^2 2p^3 \ ^3S_{3/2}^-) He(^1S_0)$ であり、基底状態の準分子状態は $^4\Sigma^-$ の対称性を持つもののみが形成される。図の上側に位置する曲線がそれに対応し、下順位は電荷移行反応



に対応し、その $^4\Sigma^-$ の対称性を持つポテンシャルである。

エネルギー的には遷移が可能であるが、ポテンシャル曲線は互いに強く反発する傾向を示し、その間のエネルギー差も 3 eV 程度と非常に大きい。このエネルギー差を越えての反応は、低エネルギー衝突ではほとんど起こらない事がこのポテンシャル曲線を見る事から理解できる。遷移が起きない事から、弾性

散乱は基底状態のポテンシャル曲線のみを考慮すれば十分である事も理解できた。ポテンシャル曲線にはほとんど引力項が見られないため、理論値を以下の形にフィットし、

$$V(r) = 1.1 e^{(-2.0r+3.5)}$$

古典的な偏向関数を計算する事から微分断面積を求めた。

計算結果を図 17 に示した。

+印が実験結果である。実験値は相対値であるため縦軸は適当に計算結果にあわせた。散乱角度 2 rad 近傍での実験値が低下しているのは、実験結果を重心系へ変換する時の取り扱いが不十分なためである。

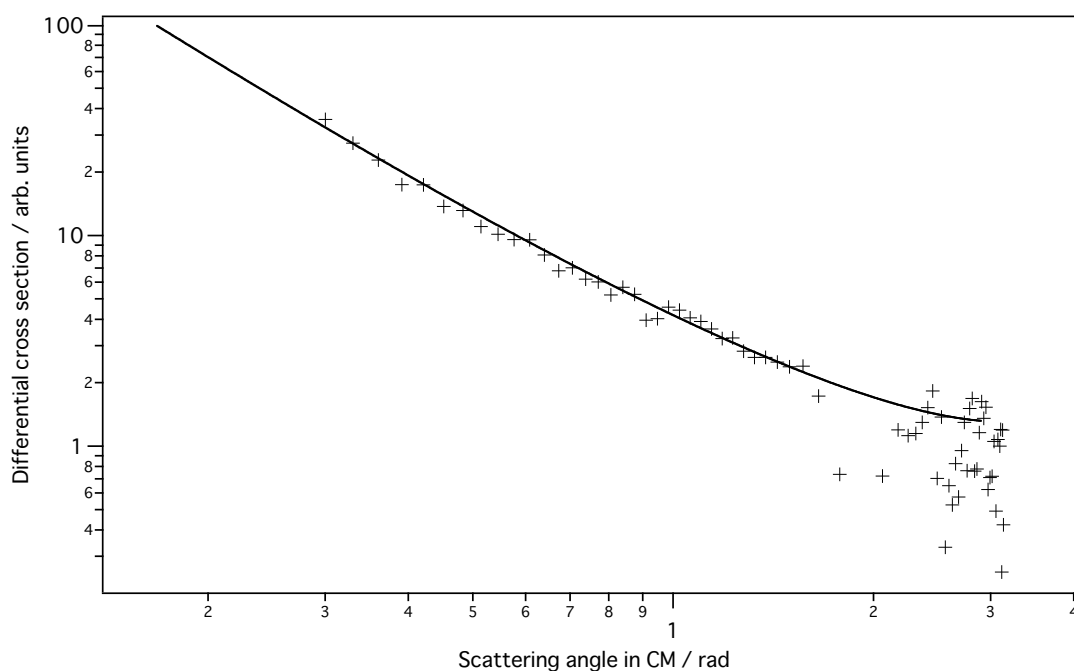


図 17 古典的取り扱いによる微分断面積と実験値の比較

実験結果と計算値の一致は非常に良く、この系の斥力ポテンシャルを求める事ができたとと言える。

3-2-2. N²⁺ He, O²⁺ He について

C²⁺ He, F²⁺ He は電荷移行反応がほとんど観測されず，弾性散乱断面積を理論的に求められた基底状態の1本のポテンシャル曲線を用いる事から再現でき，またこれにより基底状態の相互作用ポテンシャルを決定できたと言える。

次に示す系は，電荷移行反応が顕著に起き，それぞれの系に於ける弾性散乱微分断面も異なった傾向を示す事がわかり，理論的に求められたポテンシャル曲線から微分断面積を求める具体的な手段を検討している所である。

(1) N²⁺ He

$E_{\text{lab}}=20\text{eV}$ の衝突エネルギーの時，弾性散乱のほか次の反応が観測された。

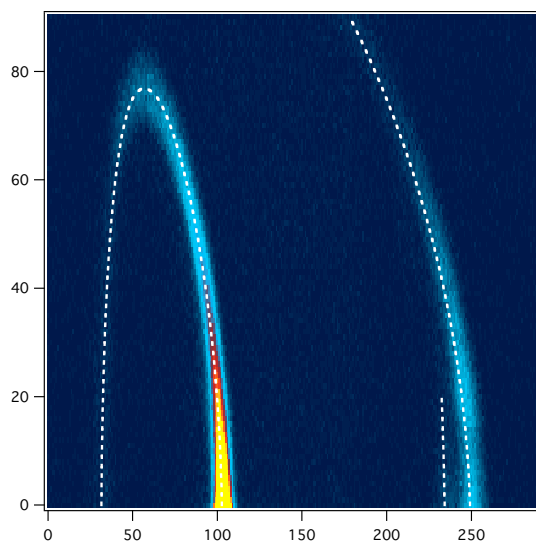
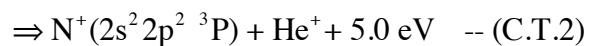
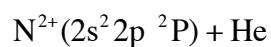


図 18 散乱イオン信号の2次元表示



以下は、それぞれについての微分断面積を表した。

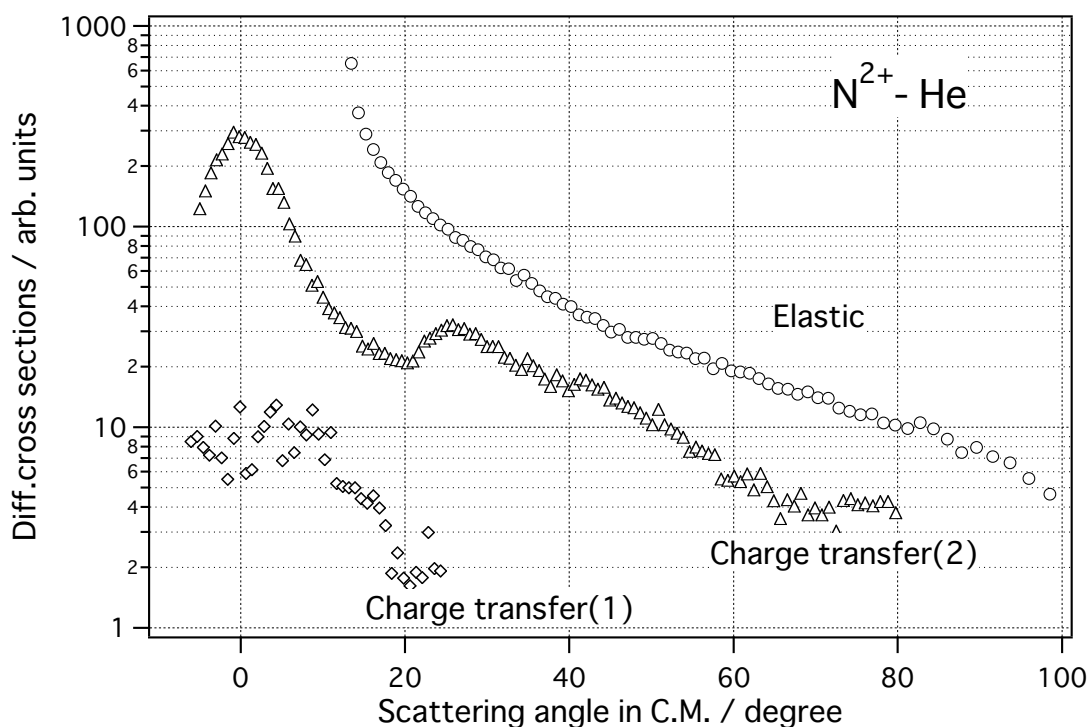


図 19 弾性散乱・電荷移行反応の微分断面積

この実験結果の特徴は、電荷移行反応微分断面積は 0° 付近が非常に大きく、緩やかな構造を示している。それに対し、弾性散乱微分断面積には顕著な構造は見られない。

電荷移行反応（2）について、大槻によって求められたポテンシャル曲線を用い、古典軌道計算から、その角度分布の定性的な理解を試みた。

以下は、大槻によって求められた $\text{NHe}^{2+} (^2\Pi)$ の相互作用ポテンシャルである。

このポテンシャルの形状の特徴は、電荷移行チャンネルに深い井戸が存在している事である。

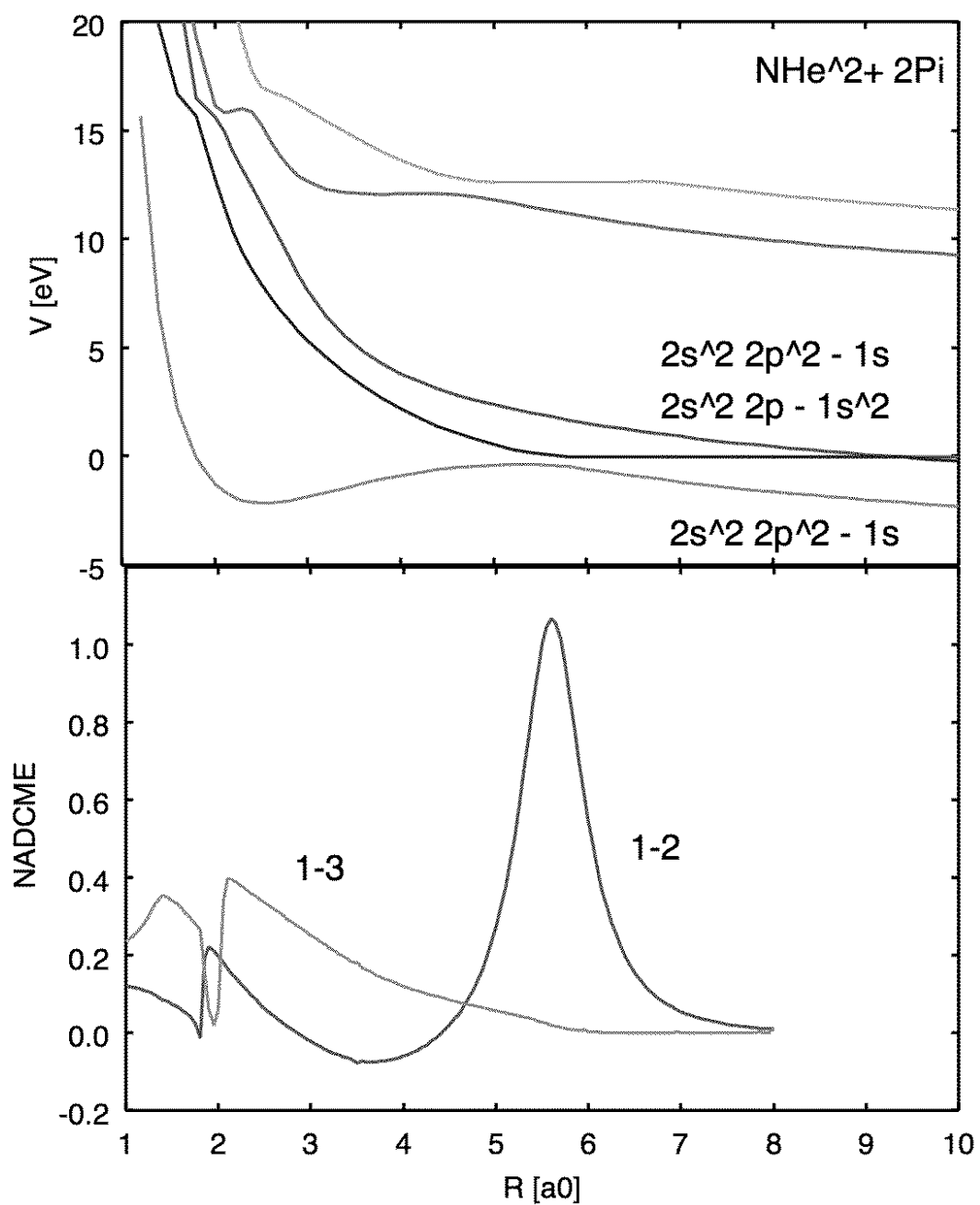


図 20 NHe^{2+} の相互作用ポテンシャル

反応 2 に関わるポテンシャルを以下のような形にフィットし、その曲面上での古典軌道を計算した。

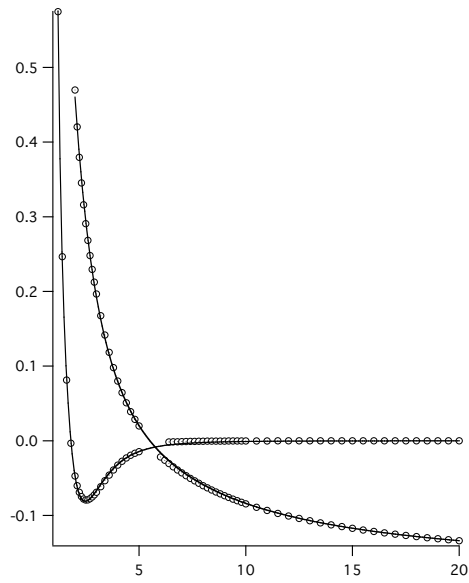


図 21 理論とフィットした結果

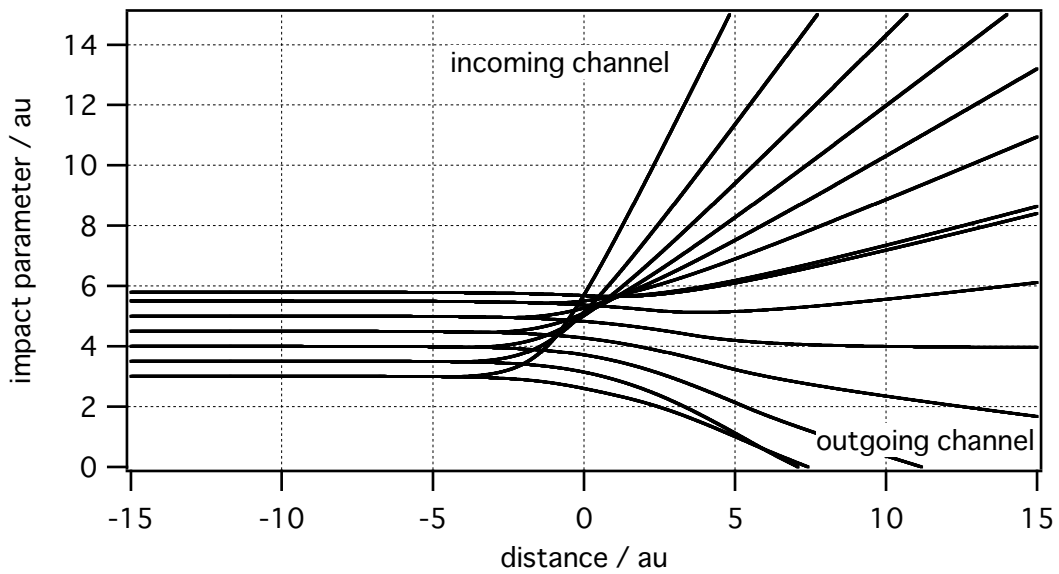


図 22 電荷移行反応に伴うイオンの古典軌道

電荷移行反応が交差点に近づいてきた時に起きる時と、離れていく時に起きる時をそれぞれ, incoming channel, outgoing channel と記述した. 同じ大きさの衝突径数でも, incoming channel で反応が起きた方が長い時間クーロン反

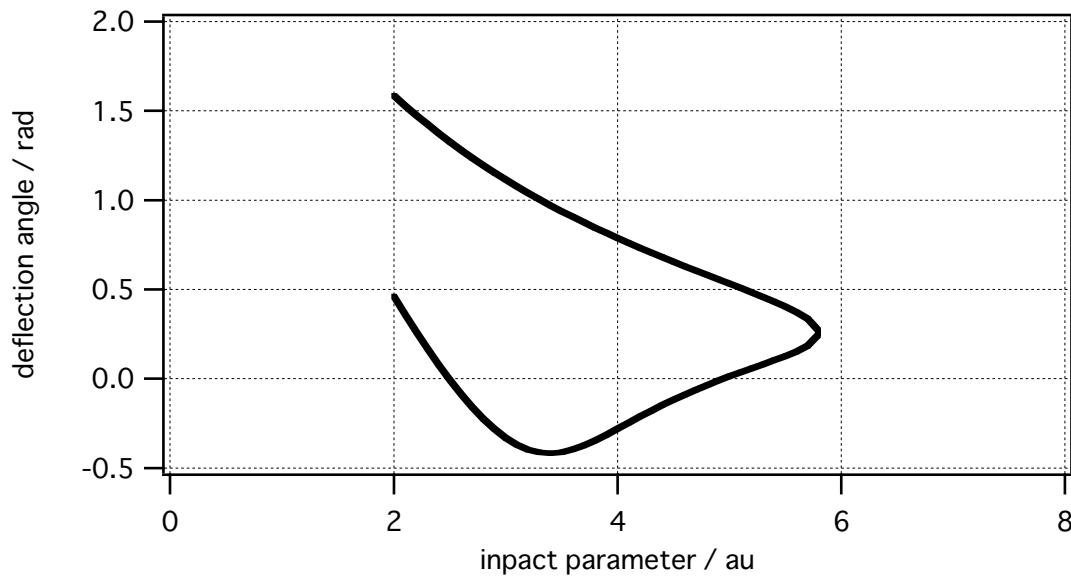


図 23 電荷移行反応に伴う偏向角度

発力を受けるために偏向角度は大きくなる。また，outgoing channel では深い井戸が存在するためにイオンは強くヘリウム標的に引き寄せられ，斥力の壁を感じるまで負の方向に軌道が偏向される。その結果，偏向角度は見かけ上 0° となる衝突径数が存在する事になる。

この偏向関数を用いる事により，電荷移行反応微分断面積に見られた構造は以下のように定性的に解釈できよう。

(1) 0° 近傍の大きなピークは古典的な断面積の式 $\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{b}{\sin\theta |d\theta/db|}$ に おいて，散乱角度 θ が 0 となると発散することに対応し，これはいわゆる glory 散乱という事ができる。

(2) 偏向関数は衝突径数が 5.8 原子単位近傍で 0.3 rad 程度で $d\theta/db$ の値が ∞ になる。その時，古典的な断面積は 0 となり，測定値の 20° 近傍に見られる

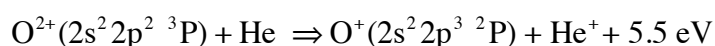
極小はこの効果によるものと判断できる。

(3) また、偏向関数は衝突径数が 3.5 原子単位近傍で 0.4 rad 程度で $d\theta/db$ の値が 0 になり、断面積は発散する。これは、弾性散乱に見られる虹散乱と同じメカニズムによる構造であり、反応に関わる虹散乱 (reaction rainbow) と呼ばれる事もある。測定値の 25° 近傍に見られる極大はこの反応に関わる虹散乱によるものと判断できる。

このように、電荷移行反応微分断面積は理論ポテンシャルに基づいた古典軌道計算で定性的に理解できたが、弾性散乱微分断面積について同様の考察を行うためには、ポテンシャルの交差点における遷移確率の詳細値が必要となり、これについては現在検討中である。もし、遷移確率が大きければ、電荷移行反応微分断面積と同様に虹散乱が見られるであろう事が予想される。しかし、測定値は顕著な構造を示していない事から、弾性散乱に関しては、電荷移行に関わるポテンシャルの寄与は小さいと思われる。しかし、次に述べる $O^{2+}He$ 系と比較した場合、既報の反応断面積の絶対値は同程度であり遷移確率には大きな違いはないことも予想される。この矛盾については今後の詳細な検討が必要である。ここでは触れなかったが、弾性散乱には $^2\Sigma^+$ の対称性をもつポテンシャルも関与するのは明らかであり、この寄与も考慮しての検討を今後行っていく予定である。

(2) $O^{2+}He$

$E_{lab}=20\text{eV}$ の衝突エネルギーの時、弾性散乱及び以下の反応が観測された。



それぞれの断面積の結果を次に示した.

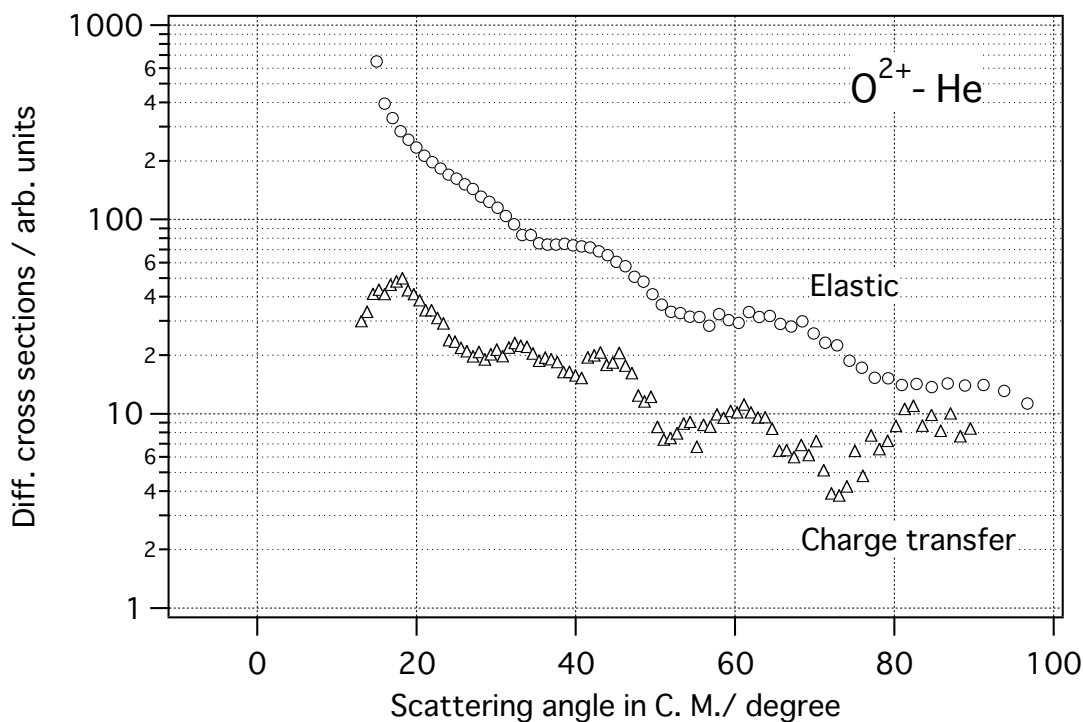


図 24 弾性散乱および電荷移行反応の微分断面積

これらの特徴は、弾性散乱微分断面積が明かな振動構造を示している事、および、電荷移行反応微分断面積は角度敷居値を持ち、 0° での信号は見られておらず、弾性散乱同様に振動構造を示している。

測定では、 0° 近傍の構造の信頼性を確かめるために、標的ビームを止め、別のガス導入系より測定時と同程度の圧力の背景ガスを導入し、その差を求めている。この検証結果より 0° 近傍で測定されたイオン信号はすべて背景気体によるものである事を確認している。

次に、この反応に関わる $^3\Pi$ の対称性を持つポテンシャルを示した。

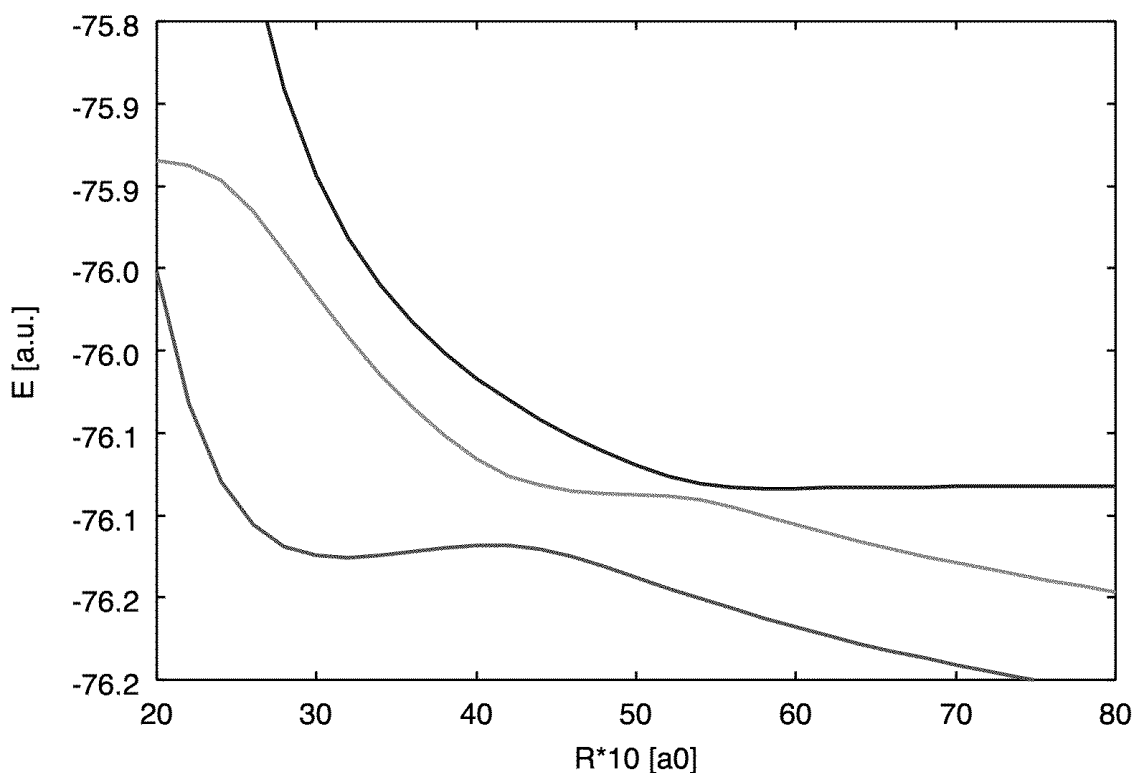


図 25 OHe^{2+} の相互作用ポテンシャル

観察された反応は核間距離 5.2 原子単位近傍の交差点が関与している事が分かる。また接近した所に存在する同じ対称性を持つポテンシャル曲線との反発により電荷移行のチャンネルはエネルギー的に押し上げられ全体として反発ポテンシャルとなっている。これが N^{2+}He と大きく違う点である。

電荷移行反応は結果的に 2 本の反発型ポテンシャルに支配され、よって散乱角度は 0° にはなる事はなく、角度敷居値を持つ事になる。また、観測された振動構造はポテンシャル曲線が接近しているために incoming channel と outgoing channel 間の干渉が顕著になる、いわゆる Stückelberg 振動によるものと解釈されよう。

また、弾性散乱については $^3\Sigma^-$ の対称性を持つポテンシャルも考慮しなくてはな

らないが、弾性散乱微分断面積に見られた構造は電荷移行反応と同様の干渉効果を反映しているものと思われる。

3-3 $C^{3+}, N^{3+}, O^{3+}, F^{3+} - He$ の結果

$C^{3+} - He$ 系での実験室系衝突エネルギーが34eVの時に得られた弾性散乱および電荷移行反応の微分断面積を以下に示した。横軸は散乱角度で 3° から 18° に対応している。

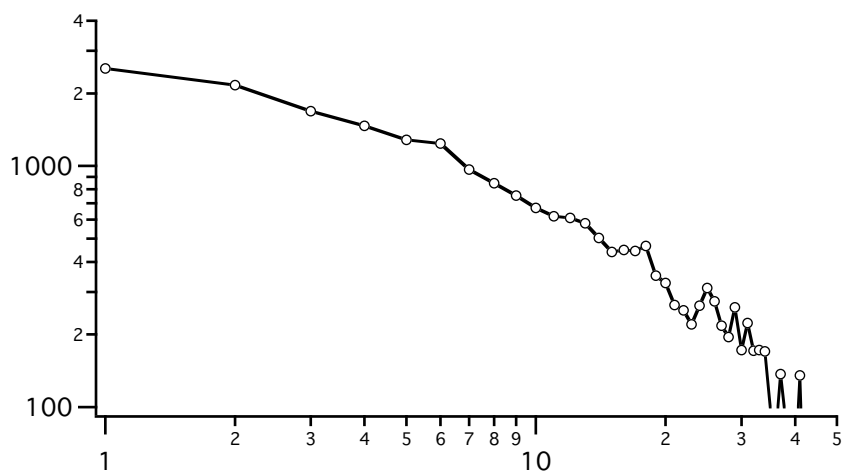


図 26 $C^{3+} - He$ 系での弾性散乱微分断面積

弾性散乱微分断面積には顕著な構造は見られないことから、深い井戸は存在しない事が予想される。

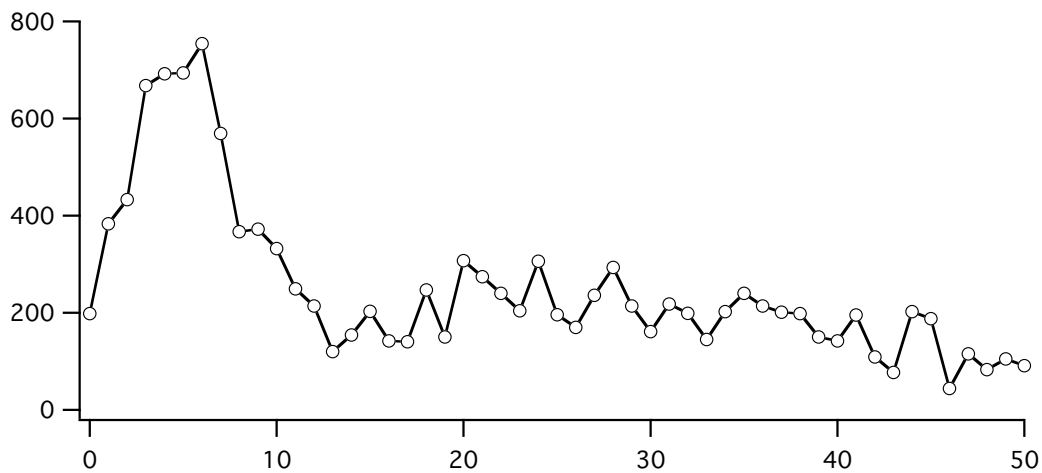
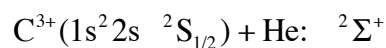
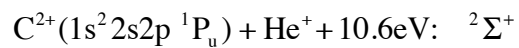


図 27 : C^{3+} - He 系での電荷移行反応についての微分断面積

衝突系の初期状態は



であり、電荷移行反応の終状態は同じ対称性を持つ



であると同定された。終状態は基底状態 $2s^2$ ではなく、励起状態 $2s2p$ へ移行している事が判明した。

微分断面積は実験室系散乱角度 6° 近傍に極大を持ち、その後減少しまた 10° 近傍で緩やかな極大を示している。このような角度分布の構造を理解するために、大槻によって求められた相互作用ポテンシャルを用いて偏向関数を求めた。

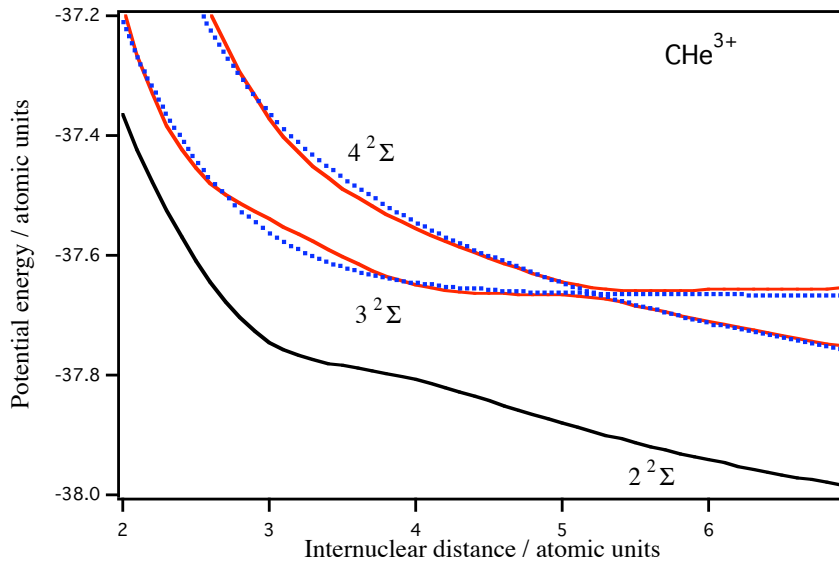


図 28 C^{3+} - He 系の相互作用ポテンシャル

関与するポテンシャルを点線でフィットし、計算した偏向関数を次に示した。

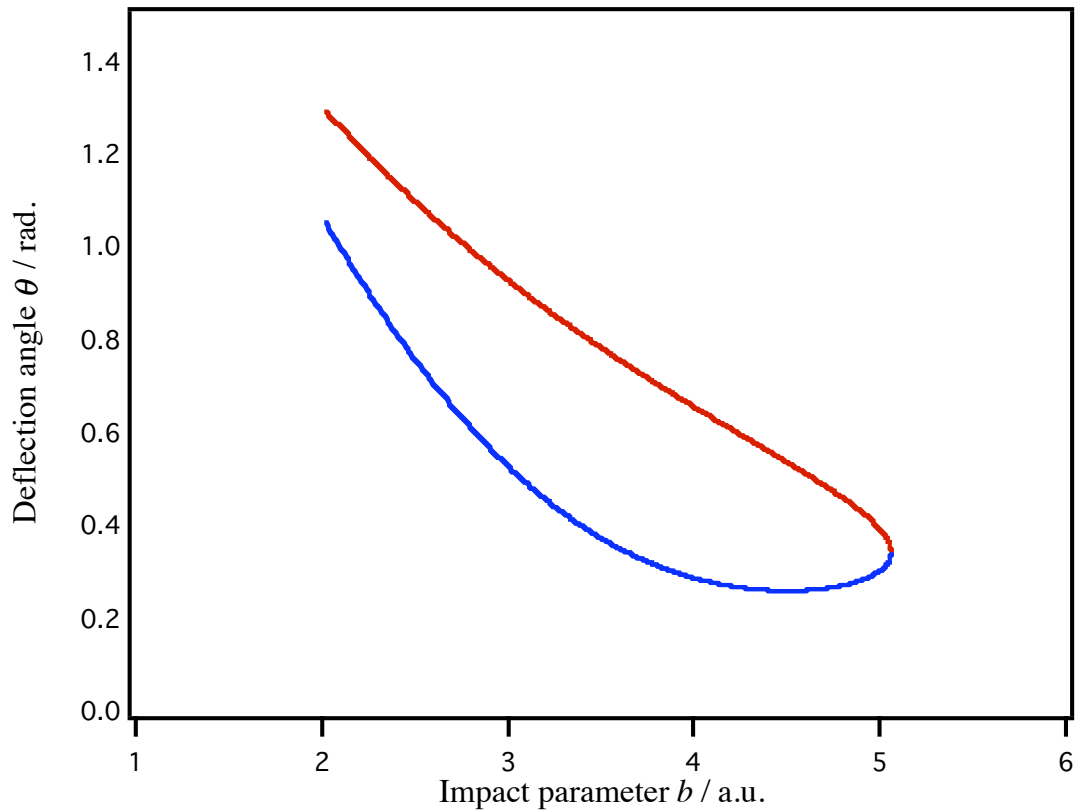


図 29 C^{3+} - He 系での偏向関数

反応に関わるポテンシャル曲線は引力項をほとんど持たないため、偏向角度はすべて正となっている。また衝突径数 4.5 原子単位程度の所で $d\theta/db$ が 0 となることから、反応虹散乱が起きる事が予想され、観測された最初の極大はこれによるものと同定された。

弾性散乱微分断面積に構造が見られない事も、これらのポテンシャル曲線より理解できよう。弾性散乱微分断面積に電荷移行反応の影響が顕著に見られない事から、遷移確率も小さい事が予想される。

次に $N^{3+} - He$ での実験室系衝突エネルギーが 34eV の時の結果を示した。

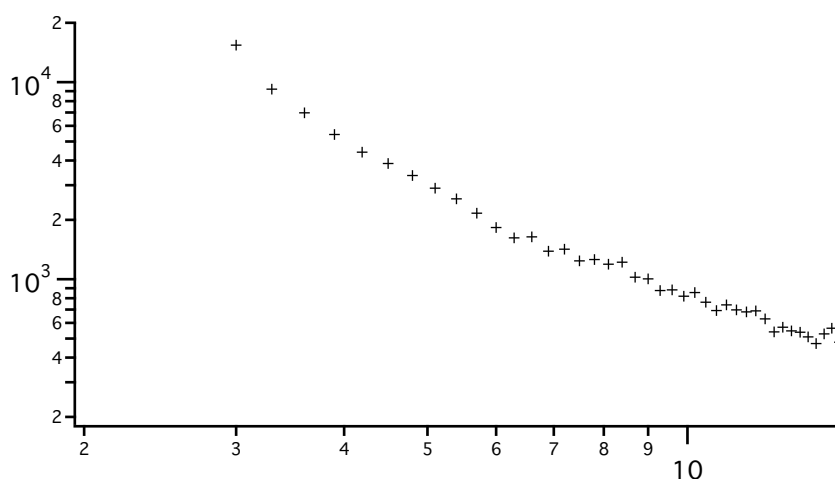
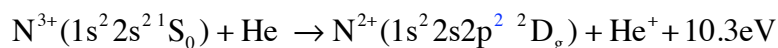


図 30 $N^{3+} - He$ 系での弾性散乱微分断面積

ここでも顕著な構造は見られていない。次に



と同定された電荷移行反応微分断面積を示した。

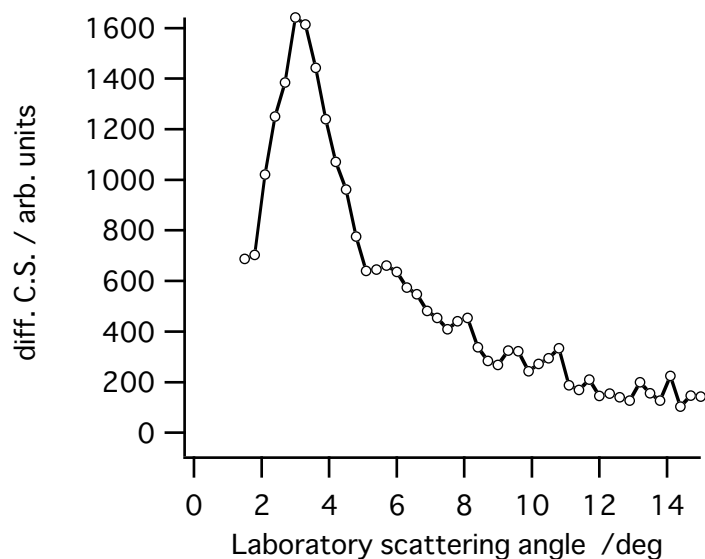


図 31 N^{3+} -He 系での電荷移行反応の微分断面積

この系での特徴は C^{3+} -He に比べて最初の極大が前方方向に出ている事、および終状態が $2s2p2$ と入射イオン自身の励起を伴った 2 電子過程の反応である事 (excitation transfer) である。

このような反応経路は他の衝突系でもすでに見られている事ではあるが、 N^{3+} -He 系ではこの経路のみが開けている事は非常に特徴的であり、極低エネルギー衝突の特徴のひとつという事ができよう。

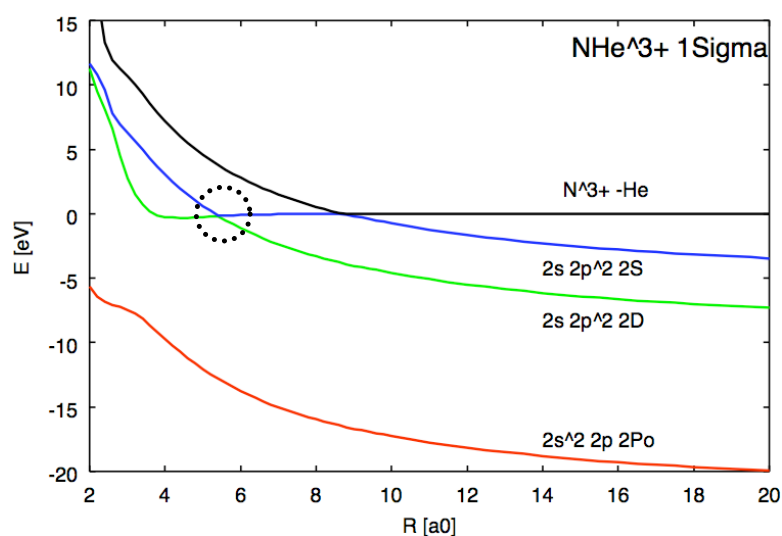


図 32 N^{3+} -He 系での相互作用ポテンシャル

大槻によるポテンシャルの理論結果を見ると、遷移に関与する交差点は点線の○で示した所である。この交差点通過後のポテンシャルは、 C^{3+} -He 系に比べ僅かではあるが明瞭な引力の存在を示しており、この項により電荷移行反応のピークが前方方向に現れてくるものと思われる。しかし、2本のポテンシャル間の反発は弱く、このポテンシャルで遷移の詳細までが記述できるかどうかについて現在解析中である。

次に O^{3+} -He の結果を示した。

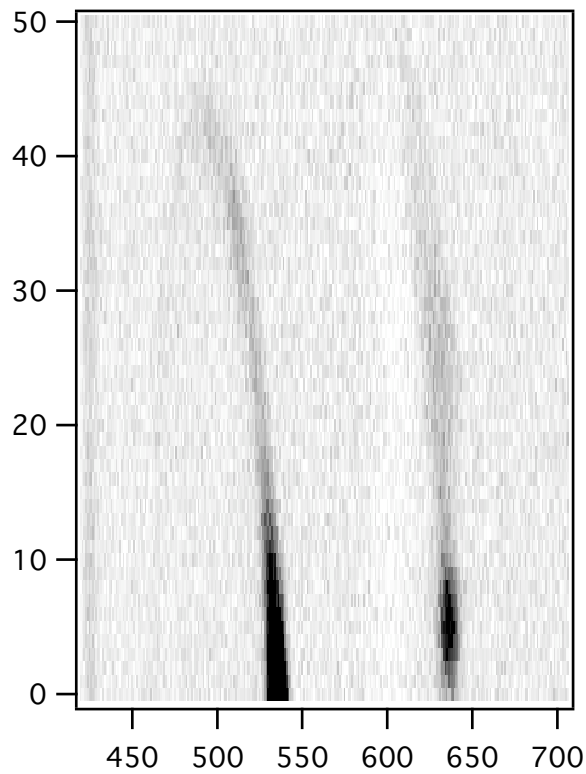
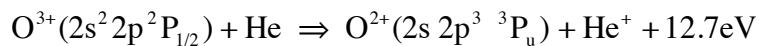
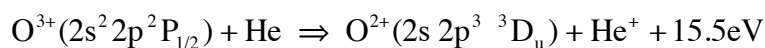


図 33 O^{3+} - He 系での散乱イオンスペクトル（2次元表示）

左側の弧が弾性散乱であり，右側の信号が電荷移行反応に対応している．電荷移行反応の信号は縦軸 20 チャンネルあたり（散乱角度 9° 近傍）から明らかに横に広がっている事が見て取れる．これは散乱角度が小さい時には



の反応が起き，散乱角度が大きくなった所で



の反応経路が開けていると同定している．

電荷移行反応と弾性散乱微分断面積を次に示した．

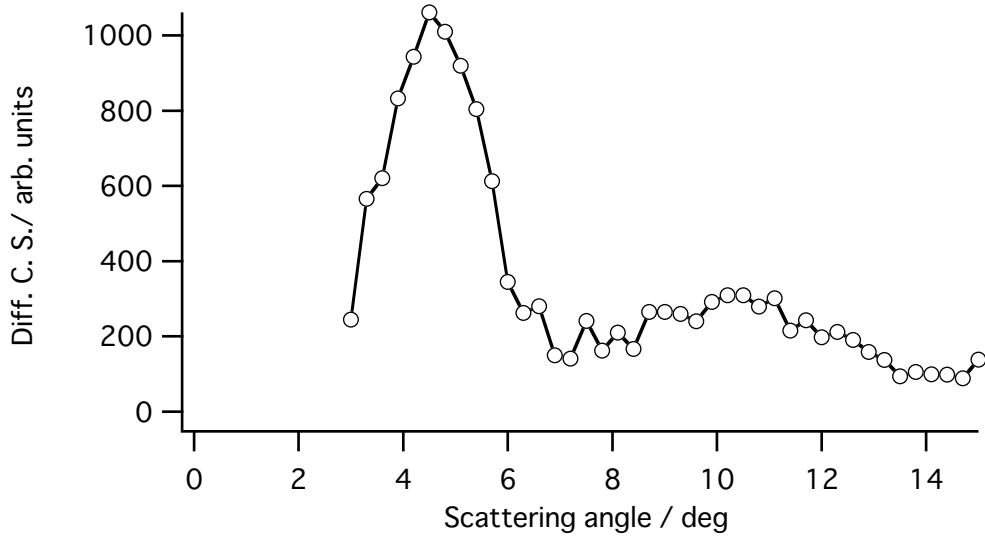


図 34 0^{3+} - He 系での電荷移行反応微分断面積

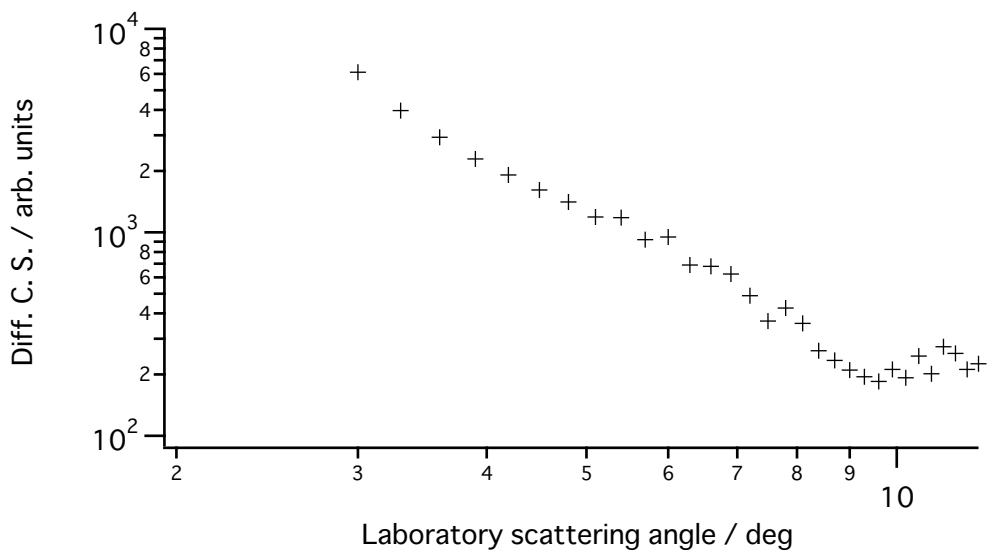


図 35 0^{3+} - He 系での弾性散乱微分断面積

電荷移行反応の微分断面積は 10° 近傍で二つの反応経路の強度の和になっている。また、弾性散乱微分断面積は 10° 近傍で極小となる傾向を示しており、これが2つ目の電荷移行反応経路が開いてくる事に関連するのかを現在検討している。

次に大槻によるポテンシャルの計算結果を示した。

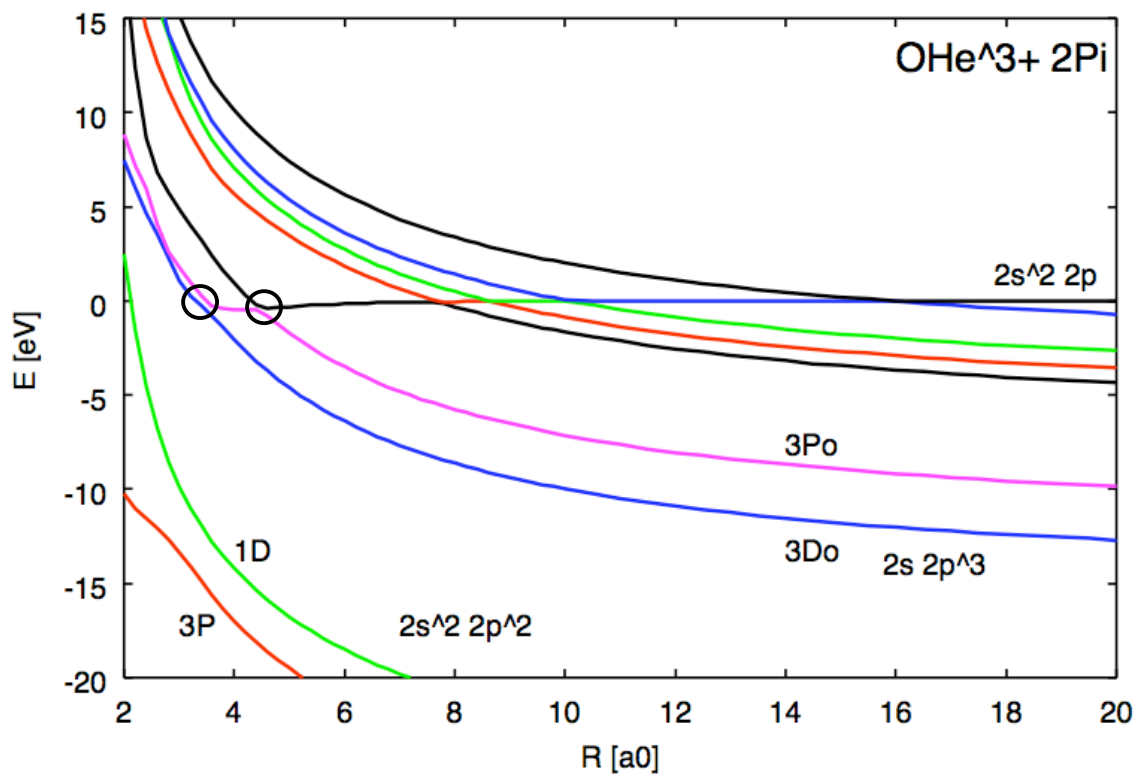


図 36 $O^{3+} - He$ 系の相互作用ポテンシャル

○で示した交差点が反応に関わる交差点であり、その近傍での引力項は $C^{3+} \cdot He$ 系と同程度である事から反応虹散乱の現れる角度が比較的大きい事も理解できる。

$F^{3+} \cdot He$ についての結果を以下に示した。

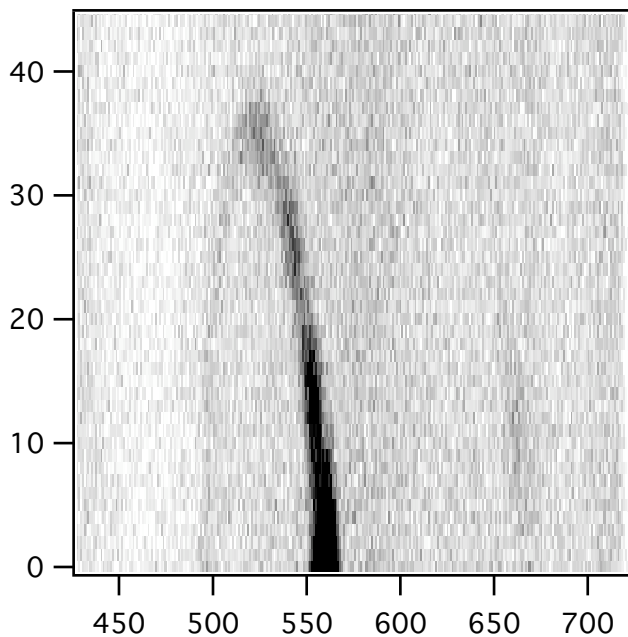
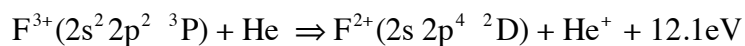


図 37 $F^{3+} - He$ 系での散乱イオンスペクトル（2次元表示）

電荷移行反応は横軸 650 チャンネルあたりにわずかに見えていて transfer excitation



と同定された。

弾性散乱微分断面積を次に示したが、電荷移行反応断面積が小さいにも関わらず、10 チャンネル（ 6.0° 近傍）と 20 チャンネル（ 9.0° 近傍）に構造が現われている。

この系についての理論的ポテンシャル計算はまだ行われていないため、これらについての理論的考察はまだなされていない。

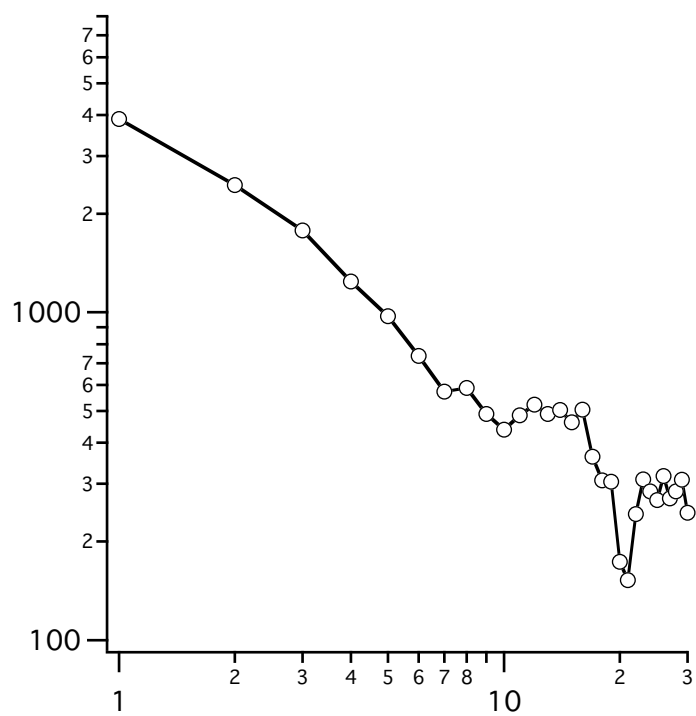


図 38 F^{3+} - He 系での弾性散乱微分断面積

4. 今後の課題

この報告書では主に He 標的の結果について述べたが、測定は Ne, Ar 標的についてもなされた。しかし、ポテンシャル曲線についての理論計算が進行中であるため、それらについての詳細な検討はまだなされていない。電子数の増加に伴い、理論計算の困難度が高くなることが予想されるため、精度を重視しつつ適切な近似方法を用いた計算の実行が予定されている。

実験結果は、これらの計算において考慮すべき重要な電子相関についての指針を提供する事もでき、理論家との共同研究を更に進める予定である。

測定に用いる事のできるイオン種も増えつつあり、ごく最近では以下に示した $N^{5+} - He$ 系でのスペクトル ($E_{lab} = 55 eV$) も得られた。

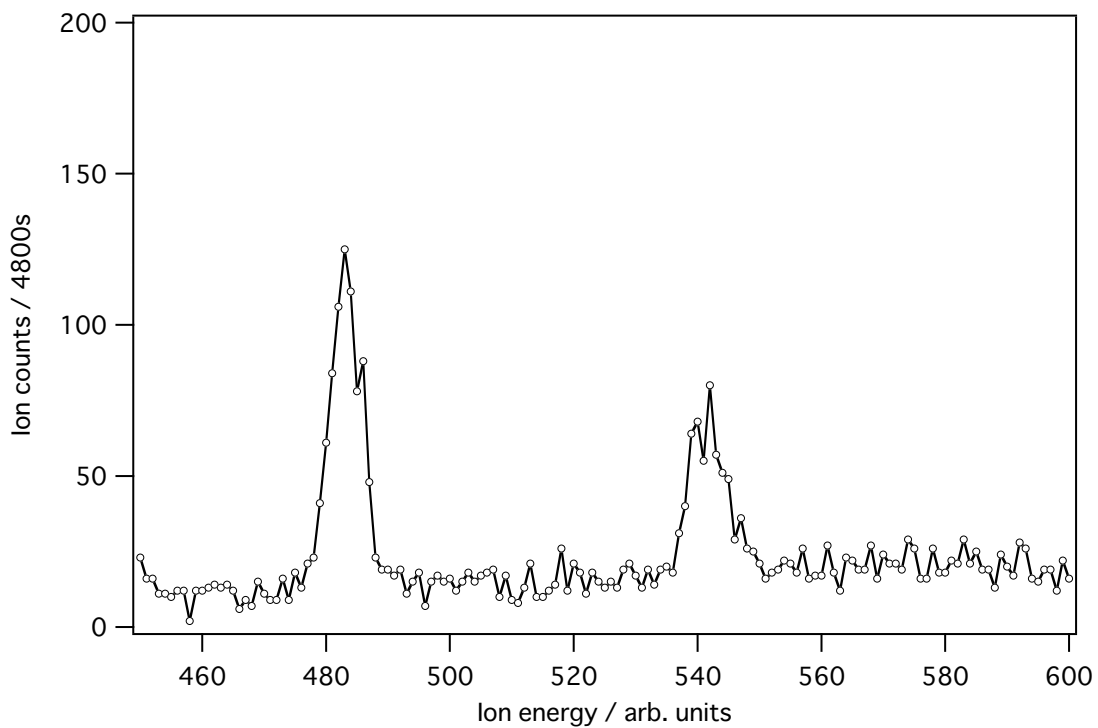


図 39 $N^{5+} - He$ 散乱角度 3° でのイオンスペクトル

左側のピークが弾性散乱，右側が電荷移行反応に対応し，既報のエネルギーの高い所での測定結果とよく似た傾向を示している事が分かりつつある．また， O^{5+} イオンを用いた測定も可能になり，今後も多数の衝突系を系統的に測定する事により，より多くの知見を収集する予定である．

また，大槻によるポテンシャル計算は複雑な系に対しても試みられており，以下にごく最近得られた計算結果を示した．

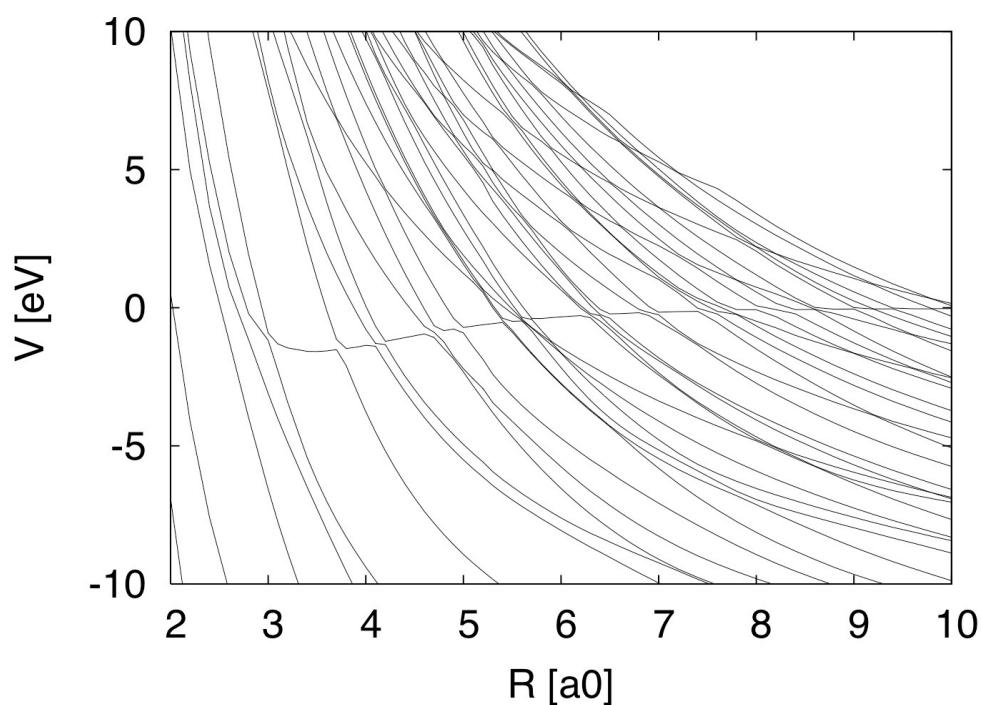


図 40 FHe^{4+} 系の相互作用ポテンシャル

これは FHe^{4+} 系の $^2\Sigma$ の対称性をもつ相互作用ポテンシャルで， $F^{4+} \cdot He$ 系での反応を解析するためになされた計算結果である．詳細な検討は継続中である

が、無数とも言えるポテンシャル交差点のうち、ごく限られたもののみが反応に寄与するであろう事が実験結果から予想されている。その選択性が何によるのかが解明できれば、反応に対する理解および相互作用ポテンシャル計算の方針などに寄与する事ができると思われる。

21pYA-9 10eV領域での一電子移行過程の二重微分断面面積測定
: $C^{3+}, N^{3+}, O^{3+} + He$

城西大・理 伊藤 陽

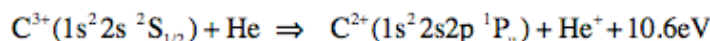
Measurements of state-selective differential cross sections for one-electron capture process in $C^{3+}, N^{3+}, O^{3+} - He$ systems around 10 eV.

Phys. Lab., Josai Univ., Yoh Itoh

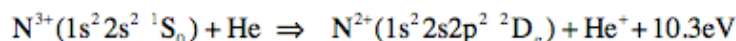
多価イオンの関与する電荷移行反応について、相互作用ポテンシャル曲面上での散乱経路に関する情報を得る為、始状態・終状態を決定し、その反応について散乱角度分布の測定を行なった。

実験方法は次のとおりである。Electron Beam Ion Source で生成した多価イオンビームを標的超音速ノズル分子線と交差させ、生成イオンの運動エネルギーを散乱角度の関数として測定することから、反応経路を特定した。EBIS で生成される多価イオンのほとんどは、基底状態にあることが知られており、今回の測定でも励起状態にあるイオンの関わる反応に同定されるものは見出されなかった。

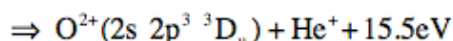
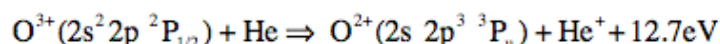
実験室系の衝突エネルギー 45 eV、散乱角度 $0^{\circ} \sim 20^{\circ}$ の範囲で観測された反応経路と特徴は、以下のとおりである。



励起状態への移行、角度しきい値は 1.5° 近傍。



transfer excitation が起き、角度しきい値は 1.0° 近傍。



transfer excitation が起き、角度しきい値は $1.5^{\circ}, 6.0^{\circ}$ 近傍。

(1) 低エネルギー衝突では、反応経路が非常に限られること、(2) すべての系で励起状態への移行が起きること、(3) 特に N^{3+}, O^{3+} では入射イオンの中での電子の再配置を伴う2電子過程: transfer excitation の反応のみが起きること、等が見出された。また、(4) すべての反応に明瞭な角度しきい値があるということは、反応に関わるポテンシャル曲線の斥力部分が重要な役割を果たしていることを示唆している。

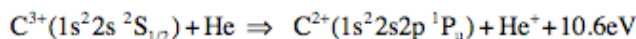
Ne 標的を用いた予備的な測定では、角度しきい値が小さくなることが判明している。これは標的の分極力の違いによるものと思われ、わずかな相互作用ポテンシャルの違いが二重微分断面面積には敏感に反映され得ることを示している。

25pWD-2 古典軌道計算に基づいた電荷移行反応微分断面積の解析
城西大理, 電通大工^A 伊藤 陽, 大槻一雅^A

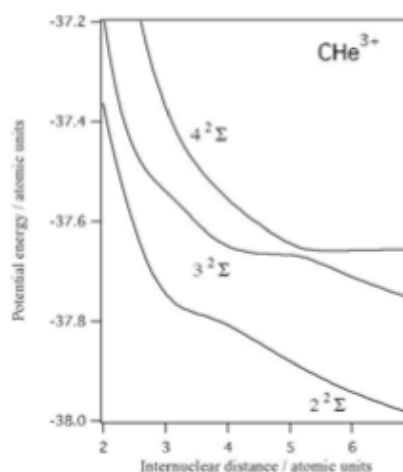
Differential cross sections for charge transfer process based on the classical trajectory calculations.

Josai Univ., Univ. of Electro-Communications^A: Y. Itoh, K. Ohtsuki^A

実験室系エネルギー 45eV で測定された次の反応*について

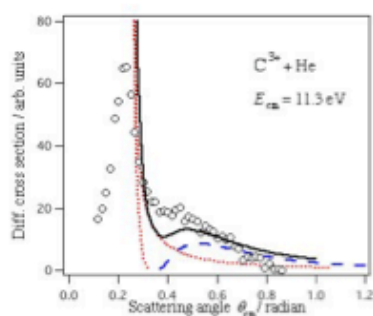


C I 計算に基づいたポテンシャル曲線を用い, 古典軌道計算によって微分断面積を求めた. ポテンシャル計算には Slater 型基底関数を用い, 取り入れた基底の数は C 原子については 6s 4p 2d, He 原子については 5s 4p 3d である. 結果を右図に示した.



得られた $3^2\Sigma$ と $4^2\Sigma$ を適当な関数で近似し, 4 次のルンゲ・クッタ法を用いて軌道計算を行い, 偏向角度関数より微分断面積を求めた. 遷移確率はランダウ・ゼナーの式を用いて評価した. 結果を下の図に示した.

電荷移行反応は入射軌道でのポテンシャル交差時に起きる反応と出射軌道での反応が考えられる. 図中, 破線で示した曲線が前者に対応し, 点線で表した断面積が後者に対応している. 実線は, それらの単純な和である. 散乱角度 0.2rad 近傍に見られる断面積の急激な増加は, 偏向角度関数が極小値を持つ事による所謂“反応虹散乱”によるものである. ○で示した実験値に見られる構造は, 反応の軌道の異なりに対応する事が示された.



*日本物理学会 2005 年秋季大会 21pYA-9

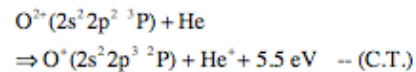
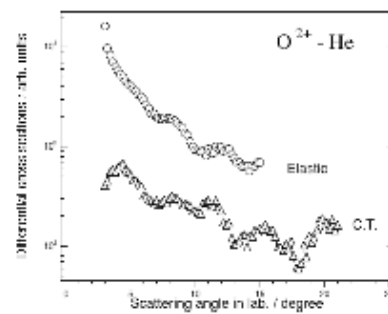
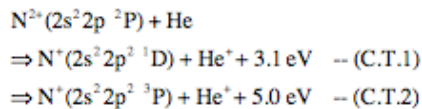
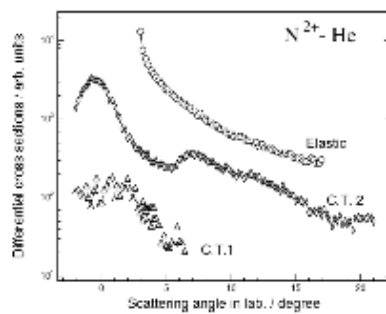
21pRF-2 $E_{lab}=20\text{eV}$ での $\text{C}^{2+}, \text{N}^{2+}, \text{O}^{2+}, \text{F}^{2+}$ - He衝突の比較

城西大理： 伊藤 陽

Differential cross-section measurements on $\text{C}^{2+}, \text{N}^{2+}, \text{O}^{2+}, \text{F}^{2+}$ - He at $E_{lab} = 20\text{eV}$.

Josai Univ. : Yoh Itoh

電子ビーム型イオン源で生成した 2 価イオンと標的ビームを交差させ、弾性散乱および電荷移行反応の微分断面積を測定した。 $\text{N}^{2+}, \text{O}^{2+}$ - He 系では一電子移行反応も観察された。結果を下図に示す。



N^{2+} - He 系での電荷移行反応微分断面積は 0° 付近が非常に大きく、緩やかな構造を示している。弾性散乱微分断面積には顕著な構造は見られない。それに対し O^{2+} - He 系では弾性・非弾性散乱共に明らかな振動構造を示す。また 0° 近傍での電荷移行反応微分断面積は非常に小さい。

これらは、反応に関わる相互作用ポテンシャルの相違を反映している。 N^{2+} - He の基底状態には 2eV ほどの井戸が存在するため、一定の衝突径数に対して散乱角が 0 となり、微分断面積は $d\sigma/d\Omega \approx 1/\sin\theta$ の関係から前方で大きな値を持つ (glory effect)。

O^{2+} - He 系には深い井戸がなく、反応に関わる 2 本のポテンシャルは共に反発型であり、結果的に前方散乱微分断面積は小さくなる。また、その構造は Stückelberg 振動と解釈する事ができよう。弾性散乱微分断面積にも同様の振動が見られる事から、これらのポテンシャルが衝突を支配している事が予測される。

**STATE-SELECTED DIFFERENTIAL CROSS SECTION MEASUREMENTS
FOR THE ONE-ELECTRON CAPTURE PROCESSES
IN THE F^{4+} - He, Ne, Ar SYSTEMS AT $E_{lab} = 45$ eV**

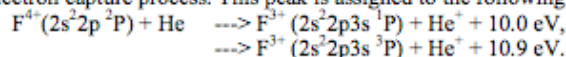
Yoh Itoh, Kazumasa Ohtsuki*

Physics Laboratory, Josai University, Sakado, Saitama 350-0295, Japan

*Dept. of Appl. Phys. and Chem., The Univ. of Electro-Commun., Chofu, Tokyo 182-8585, Japan

Using a crossed-beam apparatus[1], we are measuring systematically the relative state-selected differential cross sections for the charge-transfer processes at very low energy region. A small electron-beam ion-source is employed to produce multiply charged ions. The mass- and energy-selected primary ion-beam was crossed at a right angle with a supersonic nozzle-beam. The scattered ions were energy-analyzed by a one-dimensional position-sensitive detector. The energy spectra of the scattered ions at different angles were recorded by rotating the analyzer.

Typical energy spectrum of the scattered ions observed in F^{4+} - He collisions at $E_{lab} = 44$ eV is shown in figure 1. The peak (a) corresponds to the elastically scattered ions, and (b) is due to the one-electron capture process. This peak is assigned to the following reactions:



The relative differential cross section, $d\sigma/d\Omega$, for the reaction is shown in figure 2.

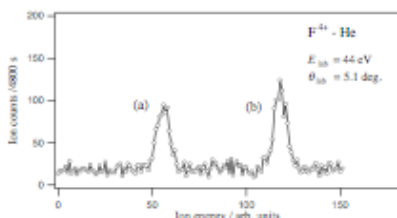


Figure 1: Energy spectrum of the scattered ions.

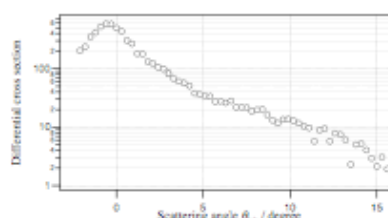
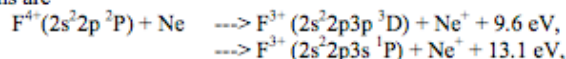
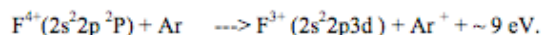


Figure 2: Relative differential cross sections.

The cross section shows a peak around 0° and decreases monotonically with the increase of the scattering angle, while the differential cross sections obtained in F^{4+} - Ne and Ar collisions at the same collision energy show clear angular thresholds. The reaction channels observed in these systems are



and



As the differential cross sections are very sensitive to the shape of the interaction potentials, it can be considered that the interaction potentials for the F^{4+} - He system is much different from those for the F^{4+} - Ne and Ar systems.

References

[1] Y. Itoh, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys **35**, 3217 (2002)