

しきい光電子源を用いた電子-H<sub>2</sub> 衝突実験の現状重村圭亮<sup>1</sup>, 北島昌史<sup>1</sup>, 小田切丈<sup>2</sup>, 加藤英俊<sup>2</sup>, 星野正光<sup>2</sup>, 田中大<sup>2</sup>, 伊藤健二<sup>3</sup><sup>1</sup>東工大理工, <sup>2</sup>上智大理工, <sup>3</sup>KEK-PFUltra-low-energy total cross section measurements of e<sup>-</sup>-H<sub>2</sub> collisionKeisuke SHIGEMURA<sup>1</sup>, Masashi KITAJIMA<sup>1</sup>, Takeshi ODAGIRI<sup>2</sup>, Hidetoshi KATO<sup>2</sup>, Masamitsu HOSHINO<sup>2</sup>, Hiroshi TANAKA<sup>2</sup>, Kenji ITO<sup>3</sup><sup>1</sup>Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>Department of Physics, Sophia University, <sup>3</sup>KEK-PF

## Abstract

電子-原子・分子衝突において、電子のエネルギーが極めて低くなると、電子の de Broglie 波長が標的原子・分子の大きさよりもはるかに長くなる。このような超低エネルギー領域における電子衝突は Cold Electron Collision と呼ばれ、特異的な物理現象の発現が期待される。本研究では放射光により生成する“しきい光電子”と“浸み出し電場”から構成される“しきい光電子源”を用いて 10 meV 以下の超低エネルギー領域までエネルギー範囲を拡張した He, Ne の電子衝突全断面積測定を行ったので紹介する。また、最も基本的な分子である H<sub>2</sub> の電子衝突全断面積測定についてその現状を紹介する。

## 1. 序論

電子-原子・分子衝突は支配的な構成要素間の相互作用がクーロン相互作用と既知であるために、量子力学に基づく理論の精密な検証の場として広く研究の対象であっただけでなく、特に近年では少数多体系の理論の検証の場としても重要である。また電子-原子・分子衝突の理解は広範な分野の基礎であり、例えば、人工プラズマや放射線科学における種々の現象の制御・解明に必要な不可欠な基礎知識や様々なデータを提供してきた [1]。

電子-原子・分子衝突において、電子の衝突エネルギーが低くなると、電子の de Broglie 波長が標的原子・分子のサイズより遥かに長くなるために、量子力学的効果がより顕著に現れることが期待される。例えば、10 meV のエネルギーの電子の de Broglie 波長は 122 Å にもなる。また、標的が分子であれば振動・回転といった運動の自由度も衝突過程に大きく寄与すると予想される。一般に電子の衝突においては、分子の振動・回転運動の時間スケールは衝突時間と比べてはるかに大きいために衝突現象と分離して扱うことが良い近似であるが、超低エネルギー領域では電子と標的の相互作用の時間も長くなるために、そのような近似を用いることはできなくなる。このような超低エネルギーでの電子衝突は Cold Electron Collision と呼ばれており、特異的な物理現象の発現が期待される [2]。

これまで、一般的な電子衝突実験はタングステン等の熱フィラメントを加熱することにより放出される熱電子を電子ビームの電子源として利用してきた。しかしながら、この手法で行われた気体を標的とした電子衝突実験において、実験可能な電子エネルギーの下限値は 100 meV 程度

であった。これは電子が生成される際、すなわち、熱電子放出の際に電子に与えられるエネルギー拡がり原因であり、このエネルギー拡がりのために電子ビームを静電レンズにより減速した際にビームが発散してしまい、その強度が極端に落ちてしまうからである。さらには気相を標的とする実験では電子ビームと標的が衝突するための衝突領域を確保する必要があり、長焦点のビームが必要となる。以上のことから、衝突エネルギーが 100 meV を下回るようなエネルギー領域では、いわゆる single collision 条件下での実験はこれまで困難であった。そこで我々のグループでは放射光を利用したしきい光電子源を開発し、電子-原子・分子衝突の中でも 100 meV を下回るような超低エネルギー領域での衝突実験を行っている [3,4]。本稿では、最近の我々の研究結果と現在挑戦中の水素分子を標的とした実験の現状を紹介する。

## 2. しきい光電子源を用いた Cold Electron Collision 実験

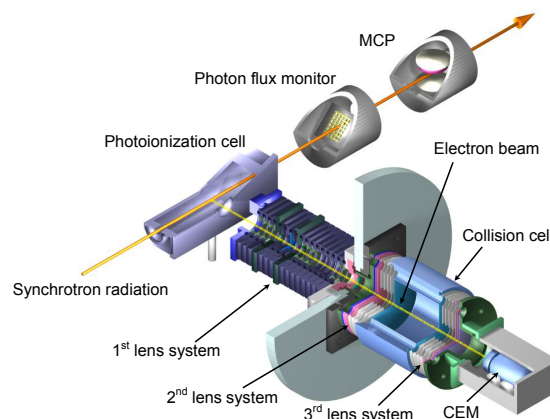
熱フィラメントを電子源に用いる手法に代わって原子の光イオン化に伴い生成する光電子を電子源とする手法が、これまですでに開発されている [5-9]。本稿で紹介する本実験では、過去に開発されたものとは異なり、我々のグループが開発した“しきい光電子源”を用いて超低エネルギー電子ビームを生成している。しきい光電子とはエネルギーがほぼ 0 である光電子のことであり、しきい光電子源は連続光源である放射光の利点を生かし、原子をイオン化ポテンシャルとほぼ等しいエネルギーに単色化した放射光によりイオン化することで、生成された“しきい光電子”を用いる手法である [3]。このしきい光電子を、しきい光電

子分光測定で用いる浸み出し電場法を応用した、非常に弱い電場で捕集し電子源とする手法にて実験を行っている。

ところで、放射光を用いて生成する光電子を電子源とする手法は、これまでも開発されている。Fieldらはデンマークにある電子蓄積リングASTRIDの専用のビームラインに、分光器と実験装置を常設し、1 meV以下のエネルギー幅に単色化した放射光を用いて4 meVのエネルギーの光電子を生成し、これを電子源として電子ビームを生成している[9]。Fieldらの実験では生成した光電子を光イオン化領域に印加した一様電場を用いて捕集するので、電子が生成する際に有する電子のエネルギー拡がりすなわち、イオン化に用いる放射光のエネルギー幅と光イオン化領域に印加された電位勾配に由来するエネルギー拡がり、電子ビームのエネルギー幅に寄与する。そのため電子ビームのエネルギー拡がりを抑えるためには、放射光のスポットサイズを極めて小さくする必要がある。放射光のスポットサイズを小さくすると、実験装置のビームラインへのアライメントに非常に高い精度が要求される。そのため彼らのグループのように専用のビームラインを持たないと難しい実験である。また、電子ビーム強度を大きくするために放射光の強度を強くすれば電子の生成する領域において空間電荷効果が大きくなり、これも電子ビームのエネルギー拡がりを大きくしてしまう原因にもなる。一方、我々の手法では浸み出し電場法により、光イオン化領域に非常に緩やかかつしきい光電子を全立体角にわたって捕集可能な電場を形成している。これにより放射光のスポットサイズを小さくすることなく、エネルギー高分解能かつ減速しても発散の小さい電子ビームの生成に成功している。

浸み出し電場を用いるしきい光電子捕集にはもう1つの利点がある。それは、エネルギーがほぼゼロのしきい光電子の捕集効率が高い一方で、少しでもエネルギーの高い光電子はほとんど捕集されないことである。これにより、浸み出し電場を用いた光電子の捕集はエネルギー選択性が非常に高く、高分解能の電子ビーム生成に必要な単色化された放射光のエネルギー幅を小さくする必要が無いのである。我々の実験条件下では、1 meVの電子捕集効率は10%程度であり、ほとんど0~1 meVの光電子のみが捕集されている。

実験装置の概略図をFig. 1に示す。実験装置は大きくわけて光イオン化セル、電子レンズ、衝突セル、電子検出器から成り、これらが真空チェンバー中の二重の磁気シールドの中に組み込まれている。この磁気シールドは超低エネルギー電子ビームが地球磁場を含む残留磁場の影響を避けるために用いられている。光イオン化セルにイオン化しきい値がよく知られたAr原子を充填し、ここに分光器から得られるArの第一イオン化ポテンシャルに単色化された放射光を導入し、しきい光電子を生成している。ビームラインはKEK-PFのBL-20Aを用いた。BL-20AはPFのビームラインで最も低エネルギー領域の真空紫外光が得られるビームラインであり、原子・分子の第一イオン化ポテンシャル付近の高輝度な放射光が得られる、本研究に最適



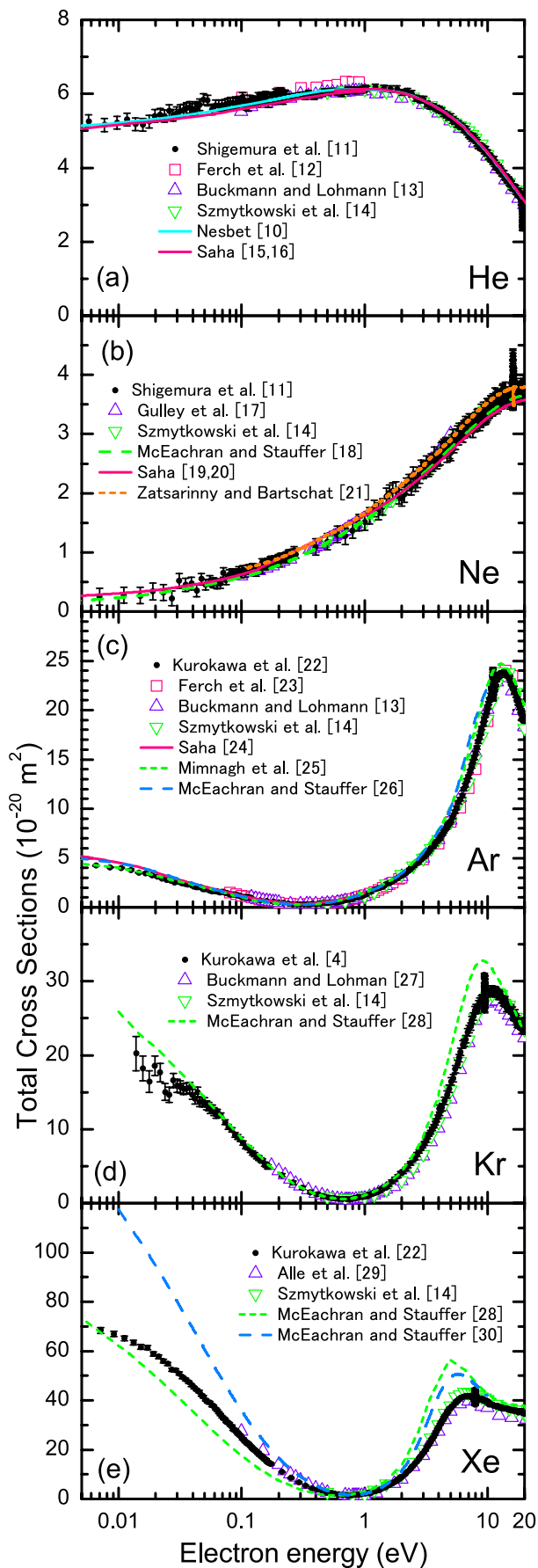
**Figure 1** Over view of the experimental set-up. The set-up consists of a threshold photoelectron source, an electron collision apparatus and a photon flux monitor. The threshold photoelectron source consists of photoionization cell and 1st lens system. The electron collision apparatus consists of 1st and 2nd lens system, a collision cell, 3rd lens system, and channel electron multiplier (CEM).

のビームラインである。得られたしきい光電子は電子レンズ系(1st lens system)で電子ビームに整形し、2nd lens systemにより目的のエネルギーに加減速し衝突セルへと導入する。衝突セルにて標的分子と衝突せずに透過した電子を3rd lens systemを通して電子検出器(CEM)で検出する。衝突セル内に標的分子がある場合とない場合とで電子ビーム強度を電子検出器にて測定し、Lambert-Beer則に基づいて電子衝突全断面積の絶対値を決定する。

### 3. 電子-希ガス衝突の全断面積測定

それでは我々が最近測定した、HeおよびNeの衝突全断面積の結果を紹介する。特にHeは原子・分子の中で生成が困難な水素原子を標的とした実験を除けば最も単純な原子標的である。He原子標的の場合には、Nesbetによって報告された電子衝突断面積の理論予測[10]があり、これまで信頼される断面積として数々の断面積の絶対値測定のためのリファレンスデータとして用いられて来た。しかし、当然ではあるが、100 meVを下回るような衝突エネルギー領域ではNesbetの理論による断面積はsingle collision条件下での実験により検証されたことはなかった。

我々はHeの全断面積を20 eVから約6 meVの超低エネルギーまで測定することに成功した[11]。Fig. 2に我々の測定したHeの全断面積と主な理論計算による予測および他グループの実験結果を示した。100 meV以上の領域では本研究による結果と過去の測定結果とは誤差の範囲内において良い一致を確認できた。超低エネルギー領域ではNesbetの理論計算[10]やより大規模な計算であるSahaの理論計算[15,16]と誤差の範囲内で良い一致を示した。この結果によりHeという最も簡単な原子標的においては数meVという超低エネルギーの領域においても、これまでの理論計算が衝突現象を精度良く予測できることが明らかになった。また、Fig. 2に示す様に、Neについても過去の



**Figure 2** Total cross sections for electron scattering from rare gas atoms.

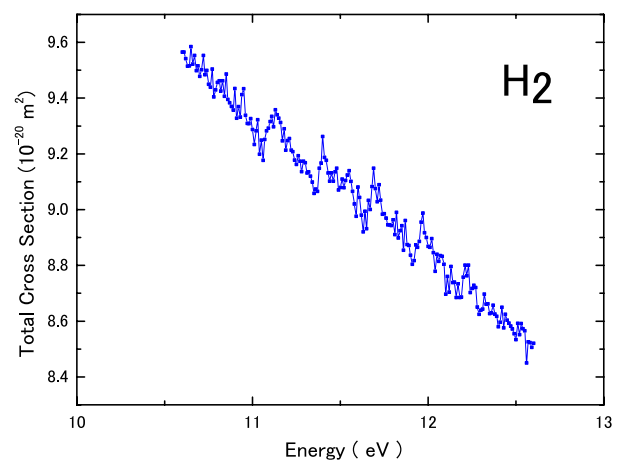
理論計算による予想と良い一致を示す結果を得た。なお本研究では高分解能で全断面積を測定出来たために Fig. 2 で示す様に、Feshbach 共鳴に由来した鋭い構造がそれぞれで観測されている。

ところで我々のグループでは Ar, Kr, Xe の希ガスの全断面積測定も行っている [4,22]。Ar, Kr, Xe の実験で得られた全断面積は過去の実験結果の存在するエネルギー領域では互いに一致する結果を得た。しかし、Kr および Xe については 100 meV を下回る超低エネルギーの領域では理論計算と実験結果が一致せず、特に Xe では大きな差異が見られた。この一連の測定で、原子番号の大きな希ガスにおいては、電子数が多いことによる計算の複雑性やスピン軌道相互作用の効果のために正確な理論計算が困難になっていることが明らかになった。Xe による電子衝突断面積計算で McEachran と Stauffer は非相対論的計算 [28] と相対論効果を含めた計算 [29] を行ったがどちらも実験結果を再現できていないことから、Xe の様な重原子との電子衝突過程の理論的取扱いの困難さが明らかになっている。

#### 4. 電子-H<sub>2</sub> 衝突実験の現状

現在、我々は最も簡単な分子である H<sub>2</sub> の超低エネルギー領域における全断面積測定に着手している。H<sub>2</sub> の回転定数は分子の中で最も大きく、また対称性保存の要請により回転の量子数の差が偶数の状態間でのみ遷移可能であることから観測される回転の励起エネルギーが大きい。このため、数 10 meV の電子エネルギー領域において、分子の回転運動と電子衝突過程が相互作用して特異的な現象が観測される可能性がある。また、水素の同位体から成る HD, D<sub>2</sub> においてもこれらの分子の回転運動と電子衝突過程の相互作用が期待される。

本測定手法では、光イオン化セルの電位と衝突セルの電位の差が衝突エネルギーを支配しているが、イオン化領域内の侵み出し電場や、電極への接触電位差があるために、正確なエネルギー較正が必要である。特に接触電位差に伴



**Figure 3** Very weak structure due to Feshbach resonance of e<sup>-</sup>-H<sub>2</sub> collision observed in the total cross sections for electron scattering from H<sub>2</sub> in energy region around 11~12 eV.

う電極表面の電位と給電点の間の電位差は、標的ガス種が異なると数百 meV 程度変化することも確認されている。特に水素分子標的の場合、衝突セルを構成する金属に水素が吸着・吸蔵することで表面電位を大きく変化させていることに起因する電位差が生じることが考えられる。本研究では数 meV の電子ビームを衝突させる実験であり、そのためビームタイムごと、さらには測定する標的ごとに精密なエネルギー較正が必要である。希ガス測定では全断面積上に鋭い Feshbach 共鳴に由来した構造が観測され、この共鳴エネルギーが精度よく知られている [31, 32, 33] ために、この特異な構造を解析することでエネルギー較正を行っていた。H<sub>2</sub> の測定では希ガスを標的とした際に観測されたような、エネルギーが精度良く知られた構造は存在しないが、11~12 eV の衝突エネルギー領域に Feshbach 共鳴の存在が知られている。そのため本研究では Kr と水素の混合気体を標的として測定を行うことで Kr の Feshbach 共鳴に由来する構造を用い、H<sub>2</sub> の Feshbach 共鳴に由来する非常に小さな構造を観測し、エネルギーを精密に決定した。エネルギーが較正された H<sub>2</sub> の Feshbach 共鳴に由来する構造を Fig. 3 に示した。H<sub>2</sub> において高い精度でエネルギー較正に用いることの出来る共鳴構造のエネルギーを決定することができたので、今後、超低エネルギーにおける水素およびその同位体の電子衝突断面積を測定し、回転励起のしきいエネルギー近傍での断面積の振る舞いを精密に解き明かしたい。

## 引用文献

- [1] Y. Hatano, Y. Katsumura, and A. Mozumder, eds., 'Charged Particle and Photon Interactions with Matter', (CRC Press, Boca Raton, 2011).
- [2] D. Field, S. L. Lunt, and J. P. Ziesel, *Acc. Chem. Res.* **34**, 291 (2001).
- [3] 黒川学, 北島昌史, 小田切丈, 加藤英俊, 星野正光, 田中大, 伊藤健二, *PF NEWS*, **28** (3), 25 (2010).
- [4] M. Kurokawa, M. Kitajima, K. Toyoshima, T. Odagiri, H. Kawahara, M. Hoshino, H. Tanaka, and K. Ito, *Phys. Rev. A* **82**, 062707 (2010).
- [5] A. C. Gallagher and G. York, *Rev. Sci. Instrum.* **45**, 662 (1974).
- [6] D. Klar, M.-W. Ruf, and H. Hotop, *Meas. Sci. Technol.* **5**, 1248 (1994).
- [7] A. Gopalan, J. Bömmels, S. Götte, A. Landwehr, K. Franz, M.-W. Ruf, H. Hotop, K. Bartschat, *Eur. Phys. J. D* **22**, 17 (2003).
- [8] D. Fieldm D., W. Knight, G. Mrotzek, J. Randell, S. L. Lunt, J. B. Ozenne, and J. P. Ziesel, *Meas. Sci. Technol.* **2**, 757 (1991).
- [9] S. V. Hoffmann, S. L. Lunt, N. C. Jones, D. Field, and J. P. Ziesel, *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 4157 (2002).
- [10] R. K. Nesbet, *Phys. Rev. A* **20**, 58 (1979).
- [11] K. Shigemura, M. Kitajima, M. Kurokawa, K. Toyoshima, T. Odagiri, A. Suga, H. Kato, M. Hoshino, H. Tanaka, and K. Ito, *Phys. Rev. A* **89**, 022709 (2014).
- [12] J. Ferch, W. Raith, and K. Schöder, *J. Phys. B* **13**, 1481 (1980).
- [13] S. J. Buckmann and B. Lohmann, *J. Phys. B* **19**, 2547 (1986).
- [14] C. Szymtkowski, K. Maciag, and G. Karwasz, *Phys. Scr.* **54**, 271 (1996).
- [15] H. P. Saha, *Phys. Rev. A* **40**, 2976 (1989).
- [16] H. P. Saha, *Phys. Rev. A* **48**, 1163 (1993).
- [17] R. J. Gulley, D. T. Alle, M. J. Brennan, M. J. Brunger, and S. J. Buckmann, *J. Phys. B* **27**, 2593 (1994).
- [18] R. P. McEachran and A. D. Stauffer, *Phys. Lett. A* **107**, 397 (1985).
- [19] H. P. Saha, *Phys. Rev. A* **39**, 5048 (1989).
- [20] H. P. Saha, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2003 (1990).
- [21] O. Zatsarinny and K. Bartschat, *Phys. Rev. A* **85**, 062710 (2012).
- [22] M. Kurokawa, M. Kitajima, K. Toyoshima, T. Kishino, T. Odagiri, M. Hoshino, H. Tanaka, and K. Ito, *Phys. Rev. A* **84**, 062717 (2011).
- [23] J. Ferch, B. Granitza, C. Masche, and E. Raith, *J. Phys. B* **18**, 967 (1985).
- [24] H. P. Saha, *Phys. Rev. A* **47**, 273 (1993).
- [25] D. J. R. Mimmagh, R. P. McEachran, and A. D. Stauffer, *J. Phys. B* **26**, 1727 (1993).
- [26] R. P. McEachran and A. D. Stauffer, *Aust. J. Phys.* **50**, 511 (1997).
- [27] S. J. Buckman and B. Lohmann, *J. Phys. B* **20**, 5807 (1987).
- [28] R. P. McEachran and A. D. Stauffer, *J. Phys. B* **17**, 2507 (1984).
- [29] D. T. Alle, M. J. Brennan, and S. J. Buckman, in *Abstracts of Contributed Papers, 18th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Aarhus, 1993*, edited by T. Andersen, B. Fastrup, F. Folkmann, and H. Knudsen (Aarhus, Denmark, 1993), p. 127.
- [30] R. P. McEachran, and A. D. Stauffer, *J. Phys. B* **20**, 3438 (1987).
- [31] J. Bömmels, K. Franz, T. H. Hoffmann, A. Gopalan, O. Zatarinny, G. Sauter, K. Bartschat, M.-W. Ruf, and H. Hotop, *Phys. Rev. A* **71**, 012704 (2005).
- [32] K. Franz, T. H. Hoffmann, J. Bömmels, A. Gopalan, G. Sauter, W. Meyer, M. Allan, M.-W. Ruf, and H. Hotop, *Phys. Rev. A* **78**, 012712 (2008).
- [33] T. H. Hoffmann, M.-W. Ruf, H. Hotop, O. Zatarinny, K. Bartschat, and M. Allan, *J. Phys. B* **43**, 085206 (2010).

(原稿受付日：2014年7月4日)

## 著者紹介

重村圭亮 Keisuke SHIGEMURA

東京工業大学大学院理工学研究科化学専攻

河内・北島研究室 博士課程2年

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

TEL & FAX 03-5734-2725

e-mail: shigemura.k.aa@m.titech.ac.jp

最近の研究: Cold Electron Collision 実験装置を用いた超低エネルギー電子・原子・分子衝突ダイナミクスの研究

北島昌史 Masashi KITAJIMA

東京工業大学理工学研究科化学専攻 准教授

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

TEL 03-5734-3812 FAX 03-5734-2725

e-mail: mkitajim@chem.titech.ac.jp

小田切丈 Takeshi ODAGIRI

上智大学理工学部物質生命理工学科 准教授

〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

TEL: 03-3238-4035 FAX: 03-3238-3341

e-mail: odagiri.t@sophia.ac.jp

加藤英俊 Hidetoshi KATO

産業技術総合研究所 計測フロンティア研究部門

陽電子プローブグループ 研究員

〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1 つくば中央第2

e-mail: katou-h@aist.go.jp

星野正光 Masamitsu HOSHINO

上智大学理工学部物質生命理工学科 准教授

〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

TEL: 03-3238-3472 FAX: 03-3238-3341

e-mail: masami-h@sophia.ac.jp

田中大 Hiroshi TANAKA

上智大学理工学部物質生命理工学科 名誉教授

e-mail: h\_tanaka@sophia.ac.jp

伊藤健二 Kenji ITO

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所名誉教授

SOLEIL 研究員