

修士論文 (1983年度)

アルカリ金属イオンと希ガス原子の低エネルギー
衝突による自動電離過程の研究

上智大学・理工 和田 かおる

目 次

論文要旨

第1部 アルカリ金属イオンと希ガス原子の低エネルギー衝突による自動電離スペクトルの測定と解析

第1章 低エネルギー重粒子衝突における諸過程

§1 序論

§2 重粒子衝突による自動電離過程における特徴的な現象

第2章 実験装置及び実験方法

§1 実験装置

§2 実験方法

第3章 実験結果

§1 放出電子スペクトルの同定

§2 放出電子スペクトルの衝突エネルギー及び観測角度依存性とその形状の変化

第4章 実験結果の解析

§1 Barker-Berry 効果の解析の現状

§2 解析の方針

§3 解析

§4 計算結果

第5章 まとめ

第2部 イオン-原子衝突実験装置の改造

第1章 装置の改造目的

第2章 実験装置

和田かおる

§ 1 改造後の装置の概要

§ 2 新しいエネルギー分析器について

§ 3 装置の位置決定方法

第3章 予備実験の結果

第4章 今後の課題

謝 辞

附 録 解析における近似の妥当性について

<A> 検証の方法

 計算結果

<C> 結 論

参 考 文 献

論 文 要 旨

我々の研究室では、5,6年前より重粒子（アルカリ金属イオンと希ガス）の低エネルギー衝突についての研究が行われ、いろいろな衝突系について測定・解析がなされてきた^{1~4)}。

本論文の第1部では、加速されたイオン（アルカリ金属の一価イオン）と原子（希ガス）の衝突過程で形成された自動電離状態が崩壊する際に放出される電子のエネルギースペクトルの測定について報告する。実験は、イオンの加速エネルギー 400 eV ~ 8 keV, 観測角度 25 deg ~ 150 deg, 放出電子のエネルギー 0 ~ 30 eV の範囲で行った。本論文では、特に、Rb⁺-Ar系ならびに Cs⁺-Kr系におけるスペクトルの衝突エネルギー及び観測角度依存性について解析した。スペクトルの位置や形状の衝突エネルギーや観測角に依存した変化の原因は、重粒子衝突特有の運動学的効果（Doppler effect）^{2,5)}と入射粒子と標的粒子間のクーロン相互作用によって放出電子分布が変化する現象（Barker-Berry-effect）⁶⁾の2つと考えられる。後者の Barker-Berry 効果は、電子衝突においては PCI 効果（Post Collision Interaction effect）と呼ばれ、詳しい解析が行われてきた。しかし、重粒子衝突では、同時におこる Doppler 効果が現象を複雑にするためにこれまでに詳しい解析が数列しかない^{7,8)}。本論文では Doppler 効果の取り扱いを改善し、2つの効果を同時にとり入れた分布関数を用いて計算を行い、実験のスペクトル全体を再現した。その結果、Barker-Berry 効果の式の中の未知数である自動電離状態（Rb 4p⁵ 5s² ²P_{3/2} 及び Cs 5p⁵ 6s² ²P_{3/2}）の寿命を求めることができた。（3500 (a.u.) 及び 3300 (a.u.)）

第2部では、励起断面積測定のために改造したイオン-原子衝突実験装置と新しく製作したエネルギー分析器について述べ、予備実験の結果を報告する。

なお、本研究の一部は、既に日本物理学会、国際学会及び以下に示す文献で発表されている。

* References *

- i) 和田かおる, 鈴木洋他日本物理学会春の分科会予稿集 3, (1982)65
- ii) K. Wada, A. Wada, H. Aizawa, K. Wakiya, H. Suzuki et al. Atomic Collision Research in Japan, Progress Report 8, (1982)292
- iii) 和田かおる, 鈴木洋他 日本物理学会第37回年会予稿集 3, (1982)31
- iv) K. Wada, K. Wakiya, and H. Suzuki, Atomic Collision Research in Japan, Progress Report 9, (1983)78
- v) K. Wada, A. Wada, K. Wakiya and H. Suzuki 13th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Abstracts of Papers, p. 392 (1983, Berlin)

第1部 アルカリ金属イオンと希ガス原子の低エネルギー衝突による自動電離スペクトルの測定と解析

第1章 低エネルギー重粒子衝突における諸過程

§1 序論

この論文で取り扱うイオン-原子衝突のような重粒子衝突の特徴は、電子衝突に比べて入射粒子の質量が大きいことである。つまり、ド・ブローイ波が短く、散乱問題としては、量子力学的な取り扱いよりも古典的な粒子の散乱として扱った方が適している。また、入射粒子も内部状態(電子状態、振動状態など)をもっているため、現象の解析が複雑になる。

一般に原子内の軌道電子の速度(v_e)に比べて、原子間の相対速度(v_i)が十分小さい($v_i \ll v_e$)のような衝突を低エネルギー衝突という。核子の質量は、電子の質量に比べると非常に大きい(約2000倍)ので、広い領域で $v_i \ll v_e$ の関係が成り立っている。このような条件の下では、原子の電子状態は、原子核間の距離 R が変化するにつれて、各 R に対応した定常状態に断熱的に移行していく。すなわち、原子内の電子と核の運動を独立なものとして取り扱うことが

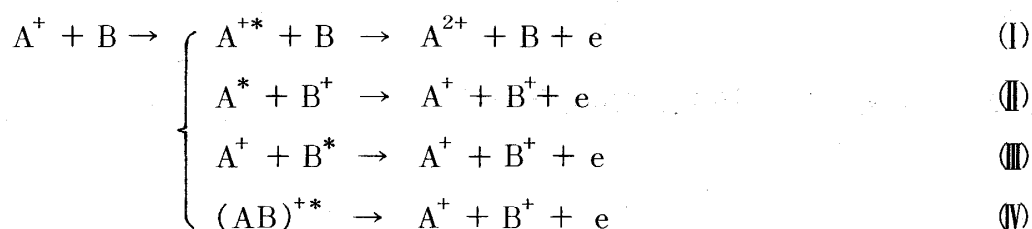
和田かおる

できる。(Born-Oppenheimer 近似)さらに、核間距離が小さくなると原子間で電子が激しく往き来し、二原子分子の電子状態のようになる。この状態を準分子状態と呼ぶ。このときの電子状態の記述には、孤立した原子の波動関数を用いるよりも、二原子分子の電子状態の波動関数を用いた方がよい。(原子間の相互作用の影響をとりいれた定常状態を考えた方法: Perturbed Stationary State method)

こうして準分子状態を形成している間に電子状態の動的結合(dynamic coupling)による励起が起こる。この後、再び核間距離が大きくなり、この励起状態が入射あるいは標的原子の励起状態へつながっていく。このような過程は、電子昇位モデル(electron promotion model)^{10,11,12)}によって説明される。このモデルでは、分子の融合原子極限及び分離原子極限における原子の波動関数が、対称性を保存しながら漸近的につながるように分子軌道が決められる。そして、この軌道に沿って励起が起こるとしたものである。この際、①衝突中の準分子内の各々の電子は他の電子の影響を受けない。②波動関数の節の保存。③入量子数、スピン、反転、鏡映対称性の保存(Barat-Lichten rule)という仮定がなされている。よって、電子数が多い場合には、①の一電子近似が成立しなくなり、このモデルでは励起過程を予想することは難しくなる。

さて、本研究で行った、イオンと原子の衝突過程では次のような反応が起こると考えられる。

A^+ : 入射イオン, B : 標的原子, $*$: 励起状態



衝突の中間過程で形成された励起状態は、連続状態と縮退した超励起状態で上に示したようにある時間の後に、自ら電子を放出して一価(あるいは二価)の電離状態へ崩壊する。これを自動電離過程と呼ぶ。

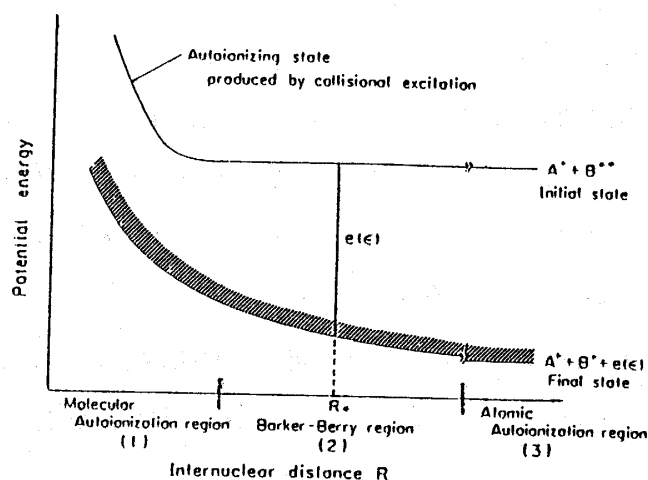
重粒子衝突では、自動電離過程で次のような特有の現象が起きる。まず、電子の放出体が運動しているために起こる Doppler 効果、準分子状態の間に電離が起こる分子自動電離(IV)、そして、放出体がもう一方の原子から十分遠去かる前に崩壊が起き、放出電子が原子間のクーロン相互作用をうける Barker-Berry 効果などである。いずれの現象も放出電子のエネルギー分布をシフトさせたり、変形させたりする。

本研究では、自動電離過程で放出された電子のエネルギースペクトルを測定することによって、イオンと原子の衝突過程や励起準位及びメカニズムを調べることを目的としている。以下に重粒子衝突の特徴的な諸過程について簡単に述べる。

§ 2 重粒子衝突による自動電離過程における特徴的な現象

自動電離過程における諸過程を励起が起こる核間距離 R_* によって次のように分類できる¹³⁾

(Fig. 1)



Schematic potential curves of interaction between the projectile ion A^+ and the target atom B. $\epsilon(e)$ is the kinetic energy of electrons in the electron emitter frame

Fig. 1 the classification of autoionization A. Yagishita¹³⁾

- (i) 分子自動電離：核間距離 R_* が小さいところで自動電離が起こるために、電子は、準分子状態から放出される。
- (ii) Barker-Berry 効果を伴った自動電離：衝突相手のイオンとの距離が十分に離れていないような R_* の中間領域で自動電離が起こる場合。
- (iii) 原子自動電離：衝突相手との相互作用のないような十分大きな R_* で自動電離が起こる場合。

ここで分類の基準となっている R_* は衝突粒子間の相対速度 v_i と自動電離準位の寿命 τ との積 $v_i \tau$ によって大まかに見つけることができる。

以上のような現象に加えて放出体が運動しているために起こる Doppler 効果の影響を受けて、実験で得られる放出電子スペクトルの形状は変形することが多い。その主な原因について

和田かおる

以下に記す。

[1] 分子自動電離 (molecular autoionization)

分子自動電離過程については、これまでに詳しい解析がなされている。^{14, 25, 27, 28)} 本論文では、その詳細については省略する。

[2] Barker-Berry 効果

Barker-Berry 効果は1966年にBarkerとBerryによって $\text{He}^+ - \text{He}$ 系の放出電子スペクトルにおいて初めて観測された。⁶⁾ 彼らは、次のような古典的な理論によって、観測された非対称な放出電子エネルギー分布を説明した。

衝突粒子間の距離が波動関数が重なり合うほど近くはないが、クーロン斥力場を形成するような距離の時に、自動電離状態が崩壊したと考える。放出電子のエネルギーは、その時刻の核間距離に対応したクーロン斥力ポテンシャルのエネルギーの分だけ減少する。よって放出電子のエネルギー分布は低エネルギー側にシフトし、尾を引いた非対称な形となる。以下にその分布関数を導出する(原子単位であらわす)。

自動電離状態の生き残り確率を $S_B(t)$ とする。自動電離状態への励起が起こった時刻を $t = 0$ とし、崩壊の始まった時刻を t_0 とする。また半減期(自動電離状態の平均寿命)を τ とする。

$$\frac{dS_B(t)}{dt} = -\frac{1}{\tau} S_B(t-t_0)$$
$$S_B(t) = S_B(t_0) \exp\left(-\frac{1}{\tau}(t-t_0)\right) \quad (1-1)$$

衝突粒子間の距離 R は核間相対速度が一定と近似(直線近似)すると

$$R = v_i t + \delta$$
$$\therefore t = \frac{1}{v_i} (R - \delta)$$
$$\varepsilon_0(R) = E^*(\infty) - E_{\text{I.P.}}$$
$$\varepsilon(R) = \varepsilon_0 - \frac{1}{R}$$
$$t = \frac{1}{v_i} \left(\frac{1}{\varepsilon_0 - \varepsilon} - \delta \right)$$

{	v_i : 核間相対速度
	δ : 励起が起きた時の核間距離
	$E^*(\infty)$: 励起状態のエネルギー
	$E_{\text{I.P.}}$: イオン化ポテンシャル
ε_0 : 核間距離が無限大のときの放出電子のエネルギー	
$\varepsilon(R)$: 核間距離が R の時の放出電子のエネルギー	

$$t_0 = \frac{1}{v_i} \left(\frac{1}{\epsilon_0} - \delta \right)$$

$$\therefore t - t_0 = \frac{1}{v_i} \left(\frac{1}{\epsilon_0 - \epsilon} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)$$

また $S_B(t_0) = 1$ とすると (1-1) より単位エネルギーあたりの崩壊確率は、

$$\frac{dS_B}{d\epsilon} = \frac{dS_B}{dt} \frac{dt}{d\epsilon} = -\frac{1}{v_i \tau} \frac{1}{(\epsilon_0 - \epsilon)^2} \exp \left(-\frac{1}{v_i \tau} \left(\frac{1}{\epsilon_0 - \epsilon} - \frac{1}{\epsilon_0} \right) \right) \quad (1-5)$$

(1-5) 式の分布関数の形は Fig. 2 のようになっている。ピークの低エネルギー側へのシフト量 ΔE 及びピークの半値幅 Γ_{BB} は (1-5) 式より

$$\Delta E = \frac{1}{2v_i \tau} \quad (1-6)$$

$$\Gamma_{BB} = \frac{1.07}{v_i \tau} \quad (1-7)$$

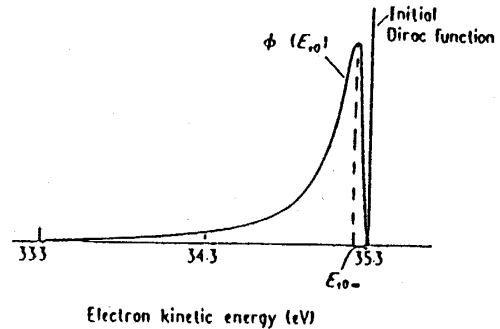


Fig. 2 the distribution function of Barker-Berry effect A. Cleizes et al.⁵⁾

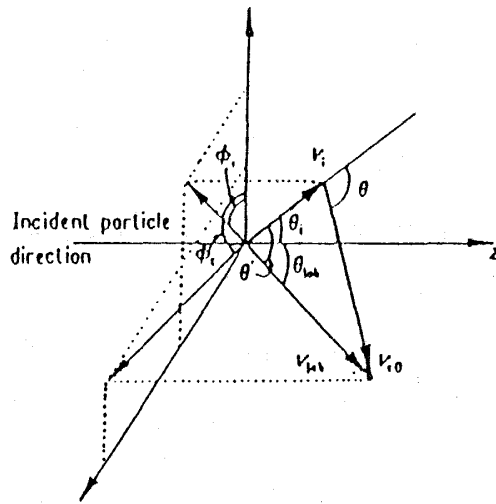
(1-6)(1-7) 式より Barker-Berry 効果をうけたピークの形状等の変化の特徴は、シフト量や半値幅が

- i) 観測角, 放出電子のエネルギーによらない
- ii) 衝突エネルギーが増加すると減少することである。

[3] Doppler 効果

重粒子衝突では、衝突粒子が(入射粒子, 標的粒子共に)衝突後、運動しながら電離する。このため、実験室系で観測すると放出電子のみかけのエネルギーは、観測角や衝突エネルギーによって変化する。よって放出電子スペクトルは、Doppler 効果のない場合のエネルギー値からシフトし (Doppler shift) ピークの幅が広がる、(Doppler broadening) この運動学的効果は数多く観測されている。^{2,14) etc} ここでは、Gleizes et al.⁵⁾ の詳しい解析を記す。

Fig. 3 にベクトルダイアグラムを示した。z 軸が粒子の入射方向である。 $\vec{v}_i, \vec{v}_{e0}, \vec{v}_{lab}$ で



Velocity vectors and angles involved in Doppler effect.

Fig. 3 A. Gleizes et al.⁵⁾

構成される三角形において

$$v_{e0}^2 = v_i^2 + v_{lab}^2 - 2v_i v_{lab} \cos \theta' \quad (1-8)$$

$$E_{e0} = \frac{m}{M} E_i + E_{lab} - 2 \left(\frac{m}{M} E_i E_{lab} \right)^{1/2} \cos \theta' \quad (1-9)$$

ここで $\cos \theta' = \cos \theta_{lab} \cos \theta_i + \sin \theta_{lab} \sin \theta_i \cos (\phi_e - \phi_i)$ (1-10)

- ただし
- M : 放出体の質量
 - v_i : 放出体の速度
 - E_i : 放出体のエネルギー
 - m : 電子の質量
 - v_{e0} : 放出体からみた放出電子の速度
 - E_{e0} : 放出体からみた放出電子のエネルギー
 - v_{lab} : 実験室系での放出電子の速度
 - E_{lab} : 実験室系での放出電子のエネルギー
 - θ_i : 放出体の散乱角
 - θ_{lab} : 放出電子の観測角
 - θ' : \vec{v}_{lab} と \vec{v}_i のなす角
 - ϕ_i : 放出体の方位角

ϕ_e : 実験室系での放出電子の方位角

低エネルギー衝突においては

$$\frac{v_{e0}}{v_i} \gg 1 \quad (1-11)$$

(1-11)式の下で(1-9)を E_{lab} について解くと

$$E_{lab} = E_{e0} + \frac{m}{M} E_i \cos 2\theta' + [A + B \cos(\phi_e - \phi_i)] \left(1 - \frac{m}{M} \frac{E_i}{E_{e0}} \sin^2 \theta'\right)^{1/2} \quad (1-12)$$

$$A = 2 \left(\frac{m}{M} E_i E_{e0}\right)^{1/2} \cos \theta_{lab} \cos \theta_i \quad (1-13)$$

$$B = 2 \left(\frac{m}{M} E_i E_{e0}\right)^{1/2} \sin \theta_{lab} \sin \theta_i \quad (1-14)$$

(1-13)(1-14)は、各々 Gordeev-Ogurstov¹⁴⁾の A 係数、 B 係数と呼ばれる。近似的に Doppler 効果のシフト量は A で拡がりは $2B$ である。定性的には、観測角が前方ではピークは高エネルギー側にシフトし、拡がり小さく 90° では、シフトはほとんどなくなるがピークの幅が最も広くなる。後方になると低エネルギー側にシフトし、幅は狭くなる。

(1-12)式の中には実験的には扱いにくい方位角 $(\phi_e - \phi_i)$ が含まれているので放出電子の方位角分布が等方的であると仮定して書きかえる。

$$\frac{dN}{d(\phi_e - \phi_i)} = \text{const.} = \frac{N_0}{2\pi} \quad (1-15)$$

N_0 : 電子の総数

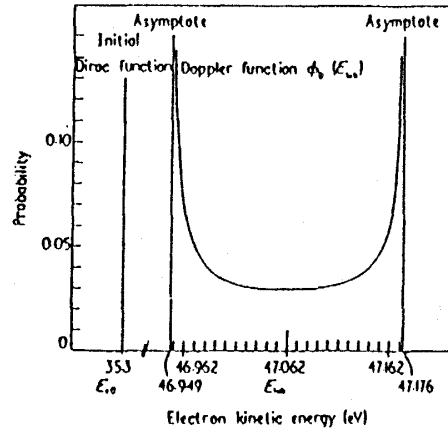
よって Doppler 効果を受けた実験室系での放出電子分布関数は、(1-12)(1-15)より

$$P_D(E_{lab}) = \frac{1}{N_0} \frac{dN}{dE_{lab}} = \frac{1}{2\pi} \left| \frac{d(\phi_i - \phi_e)}{dE_{lab}} \right| \quad (1-16)$$

$$\frac{d(\phi_i - \phi_e)}{dE_{lab}} = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{E_{e0}}{E_{lab}} - \frac{m}{M} \frac{E_i}{E_{lab}} \right)$$

$$\times \left\{ B^2 \frac{E_{lab}}{E_{e0}} - \left[E_{lab} - E_{e0} + \frac{m}{M} E_i - A \left(\frac{E_{lab}}{E_{e0}} \right)^{1/2} \right]^2 \right\}^{-1/2} \quad (1-17)$$

(1-17)式より δ 関数型の線スペクトルが Doppler 効果の影響を受けたときの放出電子スペクトルは Fig. 4 のような2つの山をもつ幅のある形になる。さらに A. Wada²⁾は、



Doppler function ϕ_0 calculated for the line $2p^2 \ ^1D$ issued from the projectile. $E_0 = 15 \text{ keV}$, $\theta_{lab} = 45^\circ$, $\beta = 0.4$. Areas of Dirac and Doppler functions are normalized to unity.

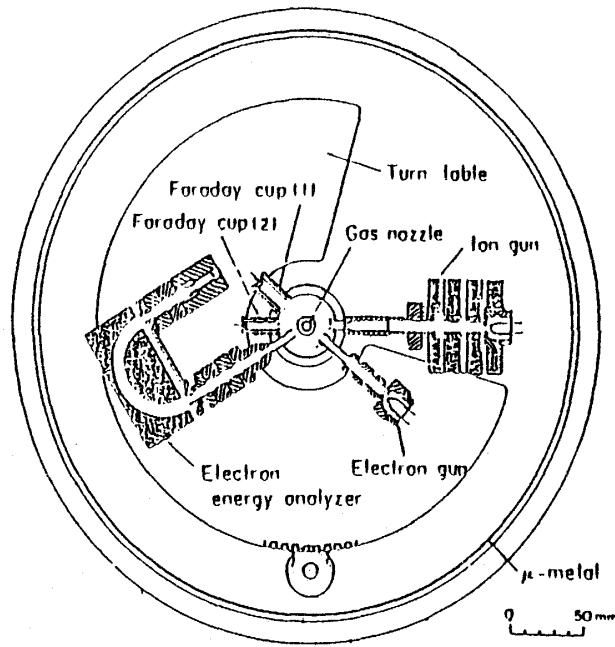
Fig. 4 A. Gleizes et al.⁵⁾

Gleizes *et al.*⁵⁾が考慮にいれていなかった放出電子の角分布（球対称で近似できない場合がある）や放出体の散乱角を含んだ新しい分布関数を使い、 $K^+ - \text{Ne}$ 系で観測されたピークの変化を解析した。こうして運動学的効果を詳しく取り扱うことができるようになった。

第2章 実験装置及び実験方法

§1 実験装置

実験に用いた装置本体は、ステンレス製の真空槽（直径 400φ，高さ 720 mm，容積 90 l）に納められている。Fig. 5, Fig. 6 に示すように、装置は、イオン銃，電子銃，同心半球型静電エネルギー分析器，ガスノズル，ファラデーカップなどで構成されている。イオン銃（あるいは電子銃）で加速された入射ビームは，ガスノズルから噴射された試料ガスのビームと交差し（ガスノズルの先端の鉛直上方 1.25 mm 付近）衝突が起こる。衝突過程で放出された電子はエネルギー分析器で分析され，チャンネルトロン（二次電子増倍管）で検出される。検出された信号は外部で増幅され，マルチチャンネルアナライザーで計数される。



Schematic diagram of the experimental apparatus for studying electron spectra by alkali ion + rare-gas atom collision

Fig. 5

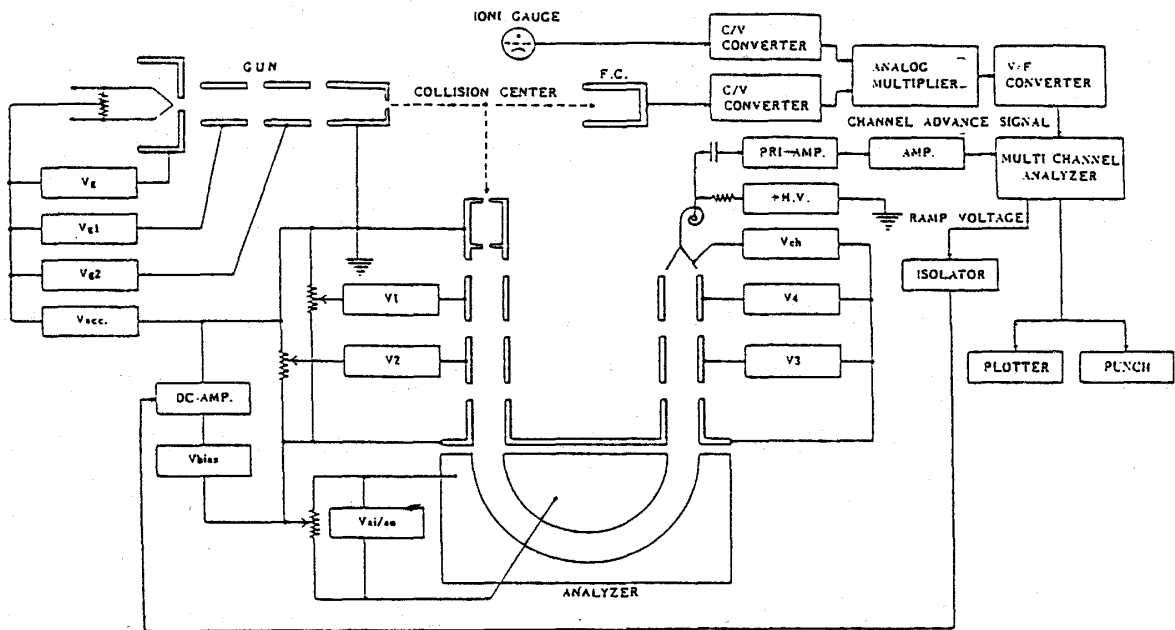


Fig. 6 Detailed block diagram of the electron impact spectrometer

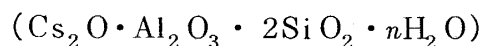
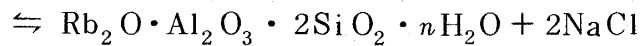
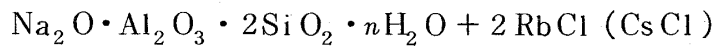
[1] イオン源

アルカリ金属イオン源には、安定で長時間使用可能な熱放出型¹⁵⁾のものをを使用した。このイオン源は、ゼオライト¹⁶⁾と呼ばれるアルミノ珪酸塩でその化学組成は、実験で使った Na-Zeolite の場合、 $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ となっており、一般に molecular sieves 4A と呼

和田かおる

ばれている。この物質中の Na の部分を次のような方法で Rb あるいは Cs (アルカリ金属) に置換し, Rb-Zeolite, Cs-Zeolite (アルカリ金属ゼオライト) を得た。

Na-Zeolite に塩化ルビジウム (RbCl) あるいは塩化セシウム (CsCl) を過剰に加え, さらに加熱 ($\sim 90^\circ\text{C}$) し,



上のような反応を右の方へ促進させ, イオン交換を行った。

このようにして得られた Rb-Zeolite, Cs-Zeolite を蒸留水でペースト状にして直径 0.2 ϕ の白金線で作られた直径 1 ϕ , 7~8 turn のコイル状のフィラメントに薄く塗布する。自然乾燥の後, 大気中で 1A 程度の電流を流し水分を蒸発させる。続いて 10^{-5} torr 程度の真空中で 2A 位まで徐々に電流を流し, 計 4~5 時間通電する。その後, フィラメントをイオン銃に取りつけて加速電圧 (数 kV) をかけて, $\sim 2\text{A}$ 程度の電流を数時間流す。こうした後, 安定で準安定状態のイオンを含まないイオン電流が得られる。一連の作業は, イオン源の活性化 (activation) と呼ぶ。質量分析の結果, 通電約 10 時間後にはイオン電流中の不純物は, 1% 以下 (ex Na^+ , K^+) である。¹⁷⁾ このイオン源の寿命はおよそ 100 時間で, 通常 6keV 程度の加速エネルギーで 0.5~1 μA (最大 3 μA) のイオン電流が得られる。

[2] イオン銃

衝突室に固定されたイオン銃は, 加速・収束用の静電レンズ系とイオン源となるフィラメント部分で構成されている。最大加速エネルギー 10keV に耐えるように各レンズは絶縁物マイカレクスによって絶縁されている。イオン銃から放出されたイオンビームは直径約 1 ϕ の出口スリットから約 35 mm 走った後ファラデーカップで捕集され, 電流計によって検出される。

[3] 電子銃

エネルギー軸の較正に用いた電子銃はイオン銃と同様, 衝突室に固定されているが, 必要に応じて簡単にとりはずすことができる。構成は, イオン銃とほぼ同じである。加速エネルギー 0~500 eV の範囲で使用し, 通常数 μA (最大 10 μA) 程度の電子電流が得られる。フィラメントには, 0.1 ϕ のヘヤピン型タングステンフィラメントを使用した。

[4] 静電型エネルギー分析器と検出系

エネルギー分析器は, 回転台に固定されており, イオンの入射軸方向に対して 25~150 deg

(電子銃取り付け時で 25 ~ 105 deg) の範囲で回転し、観測角を変えることができる。エネルギー分析の方法は次のようである。

衝突過程で放出された電子は静電レンズ系で減速、収束され、エネルギー分析器本体に入る。この静電エネルギー分析器は、同心半球型で、平均軌道半径 30 mm である。電子の通過エネルギー、すなわち内球と外球の電圧差 (2 ~ 3 eV) を一定にし、分析器に入射する前のレンズ系で減速電圧を走査することによって電子のエネルギー分析を行う (減速スキャン法)。このため、エネルギー分解能は、放出電子のエネルギーによらず一定である。

分析器を通過した電子は、射出側の静電レンズ系で再び加速され、チャンネルトロン (channel electron multiplier : Mullard type B419 BL101) によって検出される。検出された信号は増幅器で増幅され、マルチチャンネルアナライザー (canbella 8100) に蓄積される。得られたデータは、X-Y recorder 及び typewriter を通して紙テープへ出力され保存される。本実験の分析器のエネルギー分解能は 100 ~ 120 meV (in FWHM) であった。

[5] 排気系

Fig. 7 に示すように実験に使用された真空槽は、6 inch, 2 inch の直列の油拡散ポンプ (Fig. N₂ の trap 付き) 及び油回転ポンプによって排気され、到達真空度は、 $\sim 2 \times 10^{-7}$ torr である。実験は試料ガスを噴射し、通常、雰囲気は $\sim 3 \times 10^{-5}$ torr 程度で行われた。

[6] 磁場の遮蔽

装置内部の磁場をゼロにするためにヘルムホルツコイルに電流を流し、真空槽内部を μ -メタルによって二重におおった。装置内部の磁場は 5 mG 以下である。

§ 2 実験方法

[1] 放出電子スペクトルの測定

測定は、衝突エネルギー 0.4 ~ 8 keV, イオンの入射軸方向に対する観測角 25 ~ 100 deg の領域で行われた。Rb⁺-Ar 及び Cs⁺-Kr の衝突によ

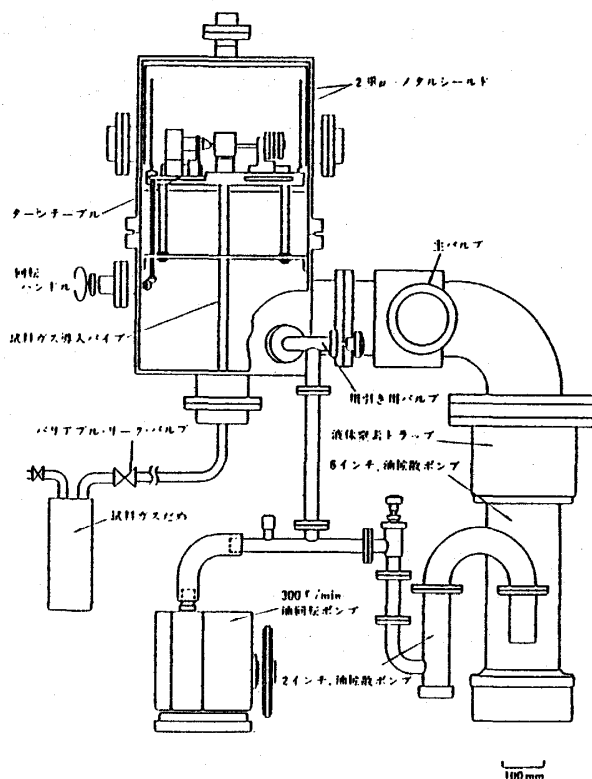


Fig. 7 装置の排気系

和田かおる

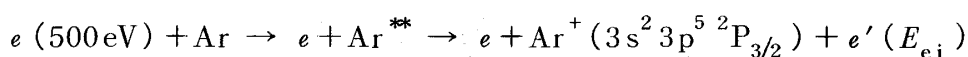
って形成された Rb, Cs の自動電離状態から放出される, 0 ~ 25 eV の運動エネルギーをもった電子のエネルギースペクトルを, 衝突エネルギーや観測角を変えながら測定した。

[2] 放出電子スペクトルのエネルギー軸の較正

本実験で得られるスペクトルの横軸は実験室系の放出電子のエネルギーに, 縦軸は強度に対応している。実際には, 横軸はエネルギー分析器の減速電圧である。よってスペクトルの相対的なエネルギー値は容易にわかるが, 絶対値を知るためには基準を定めて横軸の較正を行わなくてはならない。これまでに, 希ガス原子やアルカリ金属原子の自動電離準位のエネルギー値は精度良く調べられているので, 通常これらの値を基準にしてエネルギー軸を定める。

しかし, 重粒子衝突では前に述べたような運動学的効果 (Doppler effect) のために, 実験室系の放出電子のエネルギーは, 観測角や衝突エネルギーによって変化する。故に, 通常の方法ではエネルギー軸に絶対値をいれることが難しい。そこで本実験では, イオンと電子の両方を同時に標的原子に衝突させる "同時衝撃法" を用いた。電子衝突では, 入射電子に比べて標的原子の質量が大きいため, 衝突の際, 原子は動かず, 運動学的現象は起こらない。つまり電子衝突による標的原子のスペクトルは, 観測角や衝突エネルギーによらず, いつも同じエネルギー値にあらわれる。[※] そこでこの電子衝突によるスペクトルを基準とし, エネルギー軸を較正し, 同時に生じるイオンと標的原子の衝突によるスペクトルのエネルギー値を求めた。(※ Fano effect によるシフトをのぞいた場合)

i) Rb⁺-Ar 系

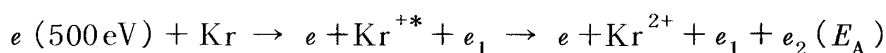


Energy value (eV)¹⁸⁾

Ar ^{**} (3s 3p ⁶ 4s) ¹ S	9.51
(3s 3p ⁶ 4p) ¹ P	10.86
(3s 3p ⁶ 5p) ¹ P	12.23

上のような自動電離過程から生じる放出電子のエネルギー値を基準に用いた。同時衝撃によるスペクトルを Fig. 8 に示す。

ii) Cs⁺-Kr 系



Energy value (eV)^{19,20)}

Kr M ₅ N ₁ N ₁ (¹ S ₀)	24.17
---	-------

上のような Auger 過程より放出された Auger 電子のエネルギー値を基準に用いた(そのエネルギー値は, Werme *et al.*¹⁹⁾ によって測定されたが, その後 Ohtani *et al.*²⁰⁾ によって Kr の Auger line のしきい値効果についての詳しいエネルギー値の測定が行われた。その値を参考にして Werme の値を補正した。)。スペクトルの一例を Fig. 9 に示す。

第3章 実験結果

本実験では, $\text{Rb}^+ - \text{Ar}$ 系及び $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ 系について放出電子エネルギー 0 ~ 25 eV の範囲で, イオンの加速エネルギーを 0.4 ~ 8 keV, 観測角度を 25 ~ 150 deg にわたって変えながら実験を行った。その代表的なスペクトルの例を Fig. 10, Fig. 11 に示す。図の横軸は, 前述の同時衝撃法によって較正された放出電子の実験室系のエネルギーをあらわしている。

これまでに Rb-Ar 系の放出電子スペクトルは報告されているが²¹⁾ (Fig. 12) $\text{Rb}^+ - \text{Ar}$, $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ の放出電子スペクトルはどちらも報告されていない。そこで, スペクトルの同定及びピークの形状の解析を行った。

§1 放出電子スペクトルの同定

Fig. 10 と Fig. 11 を比較すると 2 つのスペクトルの全体的な様子がよく似ていることに気づく。放出電子エネルギー 7 ~ 15 eV の領域に自動電離準位に対応していると考えられるピークがいくつも重なってあらわれている。それらは, 大きくわけて高エネルギー側のピーク群と 7 ~ 8 eV の鋭い 1 本のピークの 2 つの部分で構成されている。

さて, これらのスペクトルを同定するにあたって, この衝突系において起こりうる励起過程

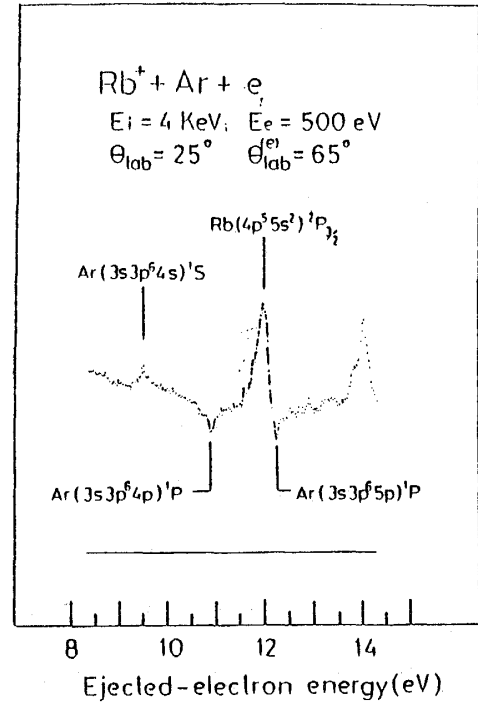


Fig. 8

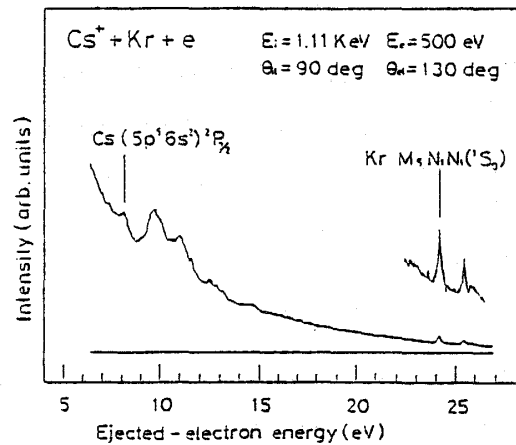


Fig. 9

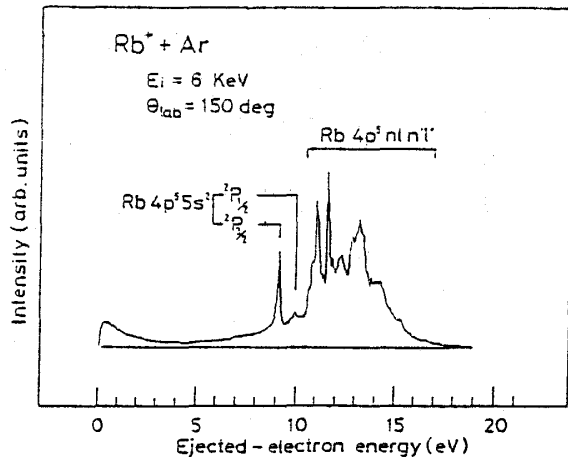


Fig. 10

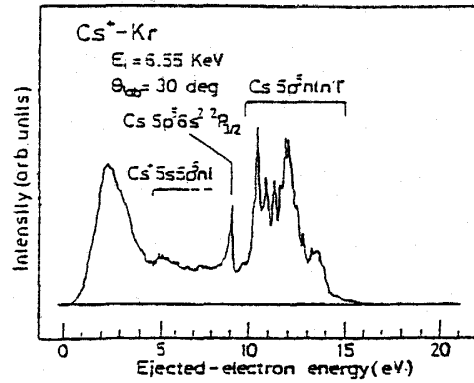


Fig. 11

をまず考えてみる。(第1章 § 1 の反応式参照)

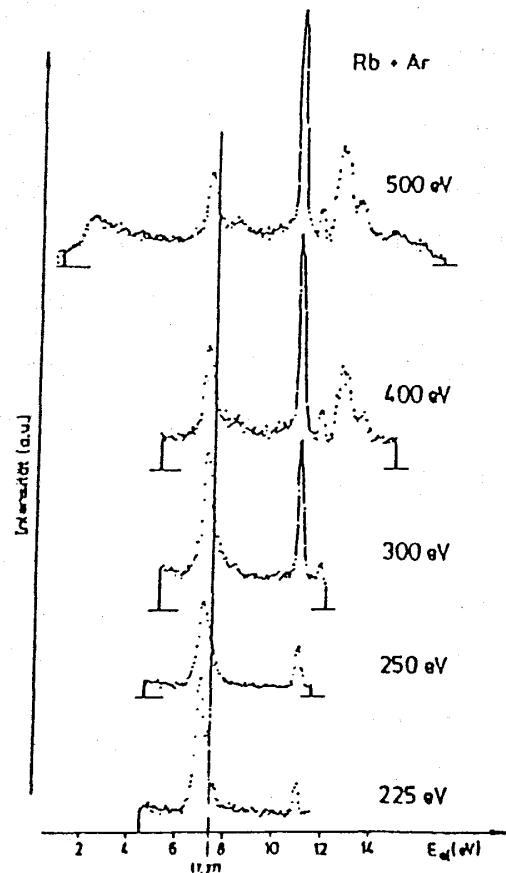
- (I) 入射イオンが自動電離状態に励起される。
- (II) 入射イオンが標的原子からの電荷移行によって中性になり、励起される。
- (III) 標的原子が励起される。

主に以上3つの場合が考えられる。Rb⁺-Ar と Cs⁺-Kr の両系の (I) ~ (III) の各場合についての放出電子のエネルギー領域を Fig. 13 に示した。但し、Rb⁺ イオン及び Cs⁺ イオンの自動電離状態のエネルギー値は、経験的見つもりによって求めた (誤差 ± 1 eV) このようなアルカリ金属イオンの自動電離準位のデータは非常に少ないのが現状である。²⁾ 次に、Fig. 13 を参考にして各スペクトルの同定を行った。

a) Rb⁺-Ar 系

Fig. 10 に示されるように、どのピークも 0 eV 付近から立ち上がる連続スペクトルの上ののっている。この連続スペクトルは原子の連続状態に起因するものが主だが、0 eV 付近の立ち上がりは2次電子によるノイズと考えられる。

さて、Fig. 10 は運動学的効果による分解能の



Electron spectra from Rb/Ar collisions. The peak at 7.2 eV is due to quasimolecular ionization. Indicated at 7.37 eV is the energy difference of Ar⁺ excitation energy and Rb ionization potential.

Fig. 12 R. Morgenstern et al.²¹⁾

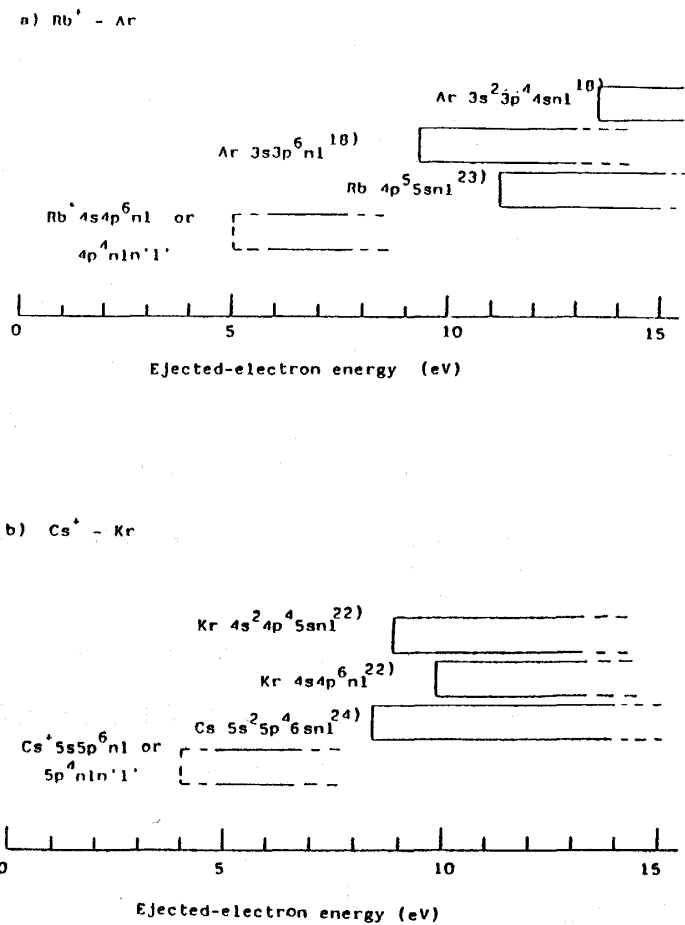


Fig. 13 Energy diagram of ejected-electrons

低下を避けるために、衝突エネルギー 6keV、観測角 150deg で測定したものである。さらに衝突エネルギー、観測角を変えて測定すると、後で述べるようにどのピークも大きくシフトし、幅が広がる現象が観測された。このように、運動学的効果が強くあらわれるということは、各ピークが標的原子の励起によるもの(前述の case III)ではなく、入射粒子の自動電離準位(case I or II)に対応していることを示している。Fig. 10 は観測角が後方であるために、運動学的効果によってスペクトル全体が低エネルギー側に約 2eV ほどシフトしている。このことと Fig. 13 を考慮して同定を行うと、まず、8eV 以下にはめだったピークが見当たらないため、case (I) の Rb^+ イオンの自動電離は起きていないと考えられる。11eV 付近のきわだったピークと 12eV 付近の小さなピークは、各々中性 Rb の 2 電子励起状態の最低準位である $Rb 4p^5 5s^2 2P_{3/2}$, $2P_{1/2}$ と同定できる。さらに高いエネルギー領域には、鋭いピークがいくつも重なるようにあらわれている。これらも中性 Rb の 2 電子励起状態(例えば、 $Rb 4p^5 nl n' l'$)と思われるが、準位が密集しているため詳しい同定は困難であった。

b) $Cs^+ - Kr$ 系

和田かおる

Fig. 11 は衝突エネルギー 6.55 keV, 観測角 30deg で観測されたスペクトルである。Rb⁺-Ar のスペクトル (Fig. 10) と比較すると, 全体の相対的な様子が非常に似ている。0eV 付近のたちあがり は Rb⁺-Ar 系と同様, 2次電子によるものである。また, この系でも衝突エネルギーや観測角を変えるとスペクトル全体がシフトすることから, 標的原子 (Kr) ではなく入射粒子 (Cs) の自動電離過程が起きていることがわかった。

観測角 30deg で得られたスペクトル Fig. 11 は, Doppler 効果のために各ピークが約 0.7 eV ほど高エネルギー側にあらわれている。そのシフト量をさし引いて同定を行うと, 約 8.4 eV にある単独のピークは Cs 5p⁵ 6s² ²P_{3/2} 状態 (中性 Cs の 2 電子励起状態, case II) に対応している。10eV 以上にあらわれている重なりあった多数のピークは, Cs 4p⁵ nl n' l' といった 2 電子励起状態と考えられるが, Rb⁺-Ar 系と同様, 状態が近接していて細かな同定はできなかった。

Rb⁺-Ar 系との相違点は, 4~8eV に広がるぎざぎざとしたスペクトルの部分である。これらは case III すなわち, Cs⁺ イオンの自動電離準位に相当すると思われる。しかし, 前述のように Cs⁺ イオンの自動電離準位 (例: 5p⁴ nl n' l') についての詳細なデータがないため, 具体的な同定はできなかった。

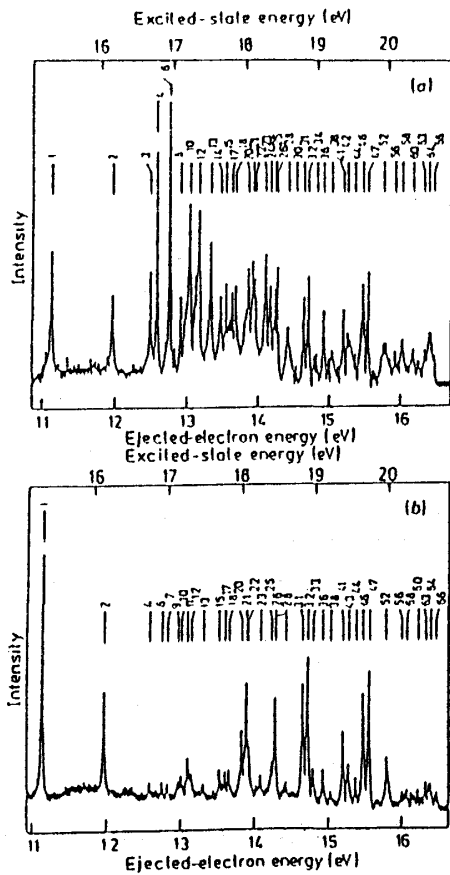
第 1 章で述べたように, 実験を行った系は電子数が多いため, Barat-Lichten 則を用いて励起過程を電子昇位モデルで推測することは難しい。参考として, Fig. 14 と Fig. 15 に V.

Pejčev *et al.* が測定した金属蒸気の電子衝突による放出電子スペクトルとその同定の結果を示した。^{23,24)} (table 1, 2)

§ 2 放出電子スペクトルの衝突エネルギー及び観測角度依存性とその形状の変化

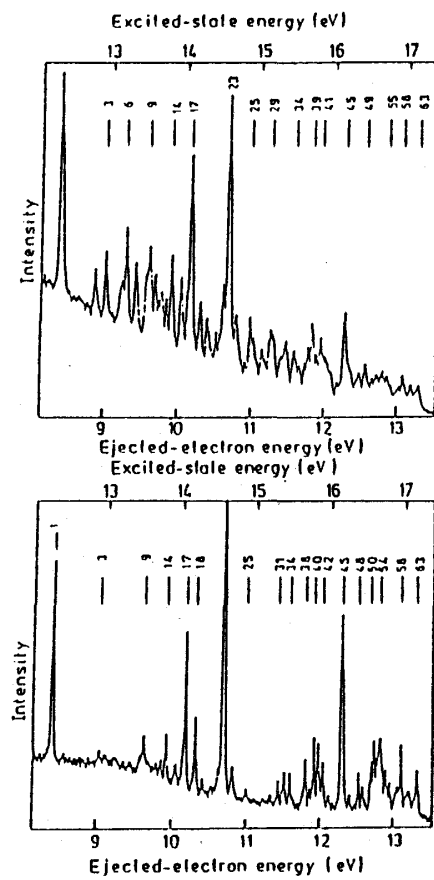
衝突エネルギーと観測角を変化させて得られた実験結果を Fig. 16 と Fig. 17 に示した。ここでは, 単独できれいに形があらわれているピーク Rb 4p⁵ 5s² ²P_{3/2} と Cs 5p⁵ 6s² ²P_{3/2} に注目する。

Rb⁺-Ar, Cs⁺-Kr, どちらの系においても観測角 90deg では, ピークの位置はほとんど動かず, 前方の観測角では, (Rb⁺-Ar : 25deg, Cs⁺-Kr : 30deg) 衝突エネルギーが高くなるにつれてピークが高エネルギー側に大きくシフトしている。また, 衝突エネルギーが低くなると, ピークの幅が広がる傾向がみられる。これらは, 第 1 章の § 2 で述べた Doppler shift と Doppler broadening と呼ばれるものである。しかし, さらに Fig. 16 と Fig. 17 で顕著な傾向は, 今, 着目しているピークが低エネルギー側に尾を引く非対称な形をしていることである。この非対称性は, 衝突エネルギーが低くなるほど強くあらわれている。以上のようなスペクトルの形状は, Barker-Berry 効果 (第 1 章 § 2) によって引き起こされたと考え



Photograph of the ejected-electron spectrum between 11 eV and 16.5 eV ejected-electron energy for rubidium, observed at 75° to a 27 eV incident electron beam and (b) a 400 eV incident electron beam.

Fig. 14 e-Rb V. Pejčev et al.²³⁾



Photograph of the ejected-electron spectrum of caesium between 8.3 and 13.4 eV ejected-electron energy, observed at 75° to (a) a 30 eV and (b) a 400 eV incident electron beam.

Fig. 15 e - Cs V. Pejčev et al.²⁴⁾

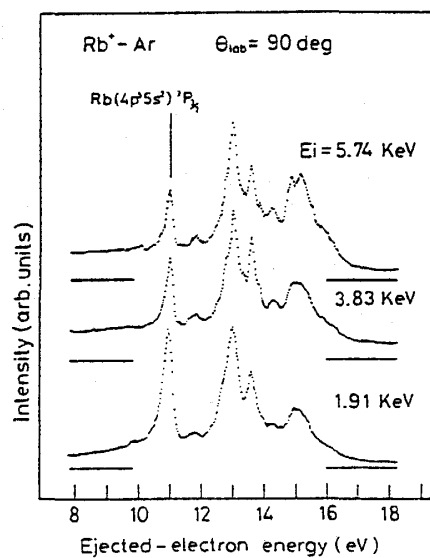
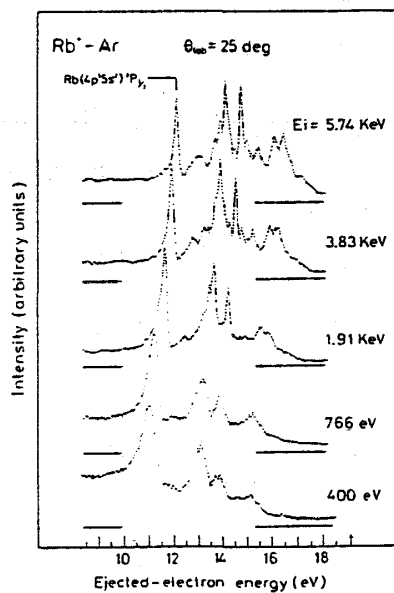


Fig. 16

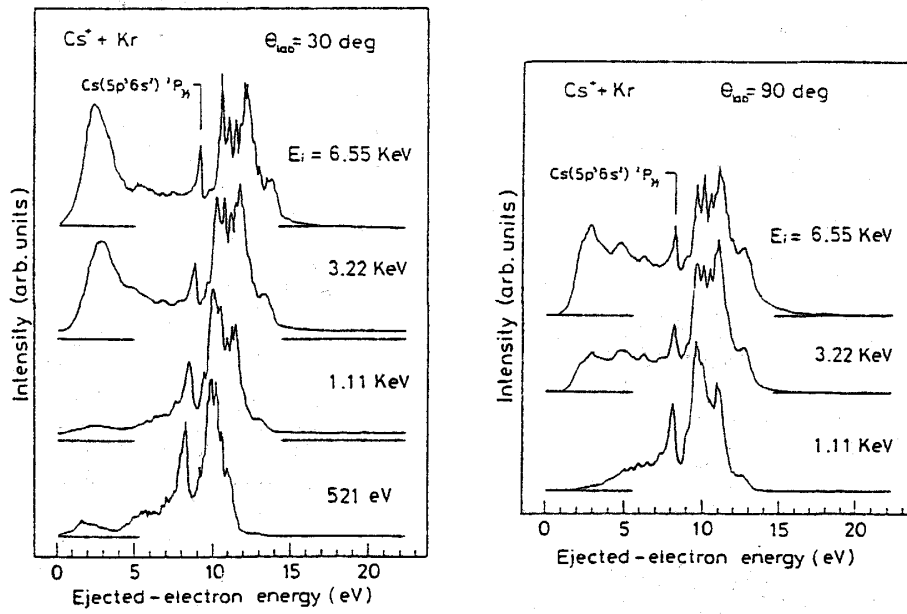


Fig. 17

えられる。

Fig. 18 と Fig. 19 は $Rb^+ - Ar$ 系について実験データから直接読みとったピークのシフト

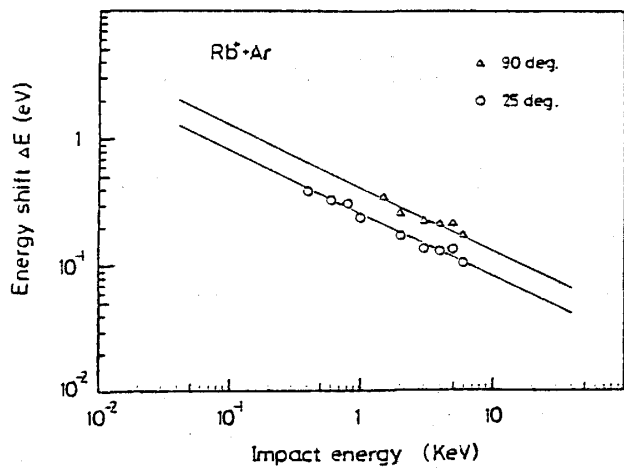


Fig. 18

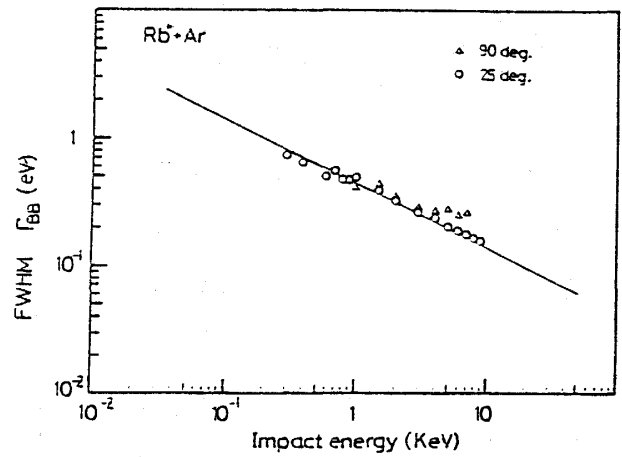


Fig. 19

量とその半値幅の衝突エネルギーに対する変化を示したものである。前述の(1-6), (1-7)式より

$$\Delta E = \frac{1}{2v_i \tau} \quad (\text{a. u.})$$

$$\Gamma_{BB} = \frac{1.07}{v_i \tau} \quad (\text{a. u.})$$

Table 1 e - Rb V. Pejčev et al. ²³⁾

Comparison of excited-state energies from this work, and the data of Beutler (1934), Connerade (1970) and Mansfield (1973).

Line number	Excited-state energy (eV)				Assignments†
	This work	(B)	(C)	(M)	
1†	15.312	15.312	15.312	15.312	4p ³ 5s ² ¹ P _{3/2}
2	16.160	16.157	16.153	16.157	4p ³ 5s ² ¹ P _{1/2}
3	16.690			16.686	
4	16.790		16.780	16.782	
10	17.225	17.205	17.211	17.211	(1 ₁) 6s[1]
12	17.355	17.346	17.345	17.345	(2 ₁) 6s[2] _{3/2}
19	18.015			18.022	
20	18.045	18.044	18.042	18.044	(3 ₁) 6s[2] _{3/2}
21	18.105	18.107	18.108	18.107	(4 ₁) 6s[1]
23	18.295	18.297	18.297	18.296	(4 ₁) 6s[1]
26	18.460	18.462	18.457	18.462	(5 ₁) 6s[2] _{3/2}
31	18.820	18.815	18.823	18.826	(6 ₀) 6s[0] _{1/2}
32	18.890	18.892	18.886	18.885	(7 ₁) 6s[1]
33	18.975	18.966	18.964	18.965	(7 ₁) 6s[1]
36	19.105	19.099	19.098	19.099	(8 ₀) 6s[0] _{1/2}
38	19.220	19.210	19.210	19.211	(9 ₁) 6s[2] _{3/2}
41	19.385	19.379	19.376	19.377	(10 ₁) 6s[1]
42	19.445			19.443	
43	19.470	19.462	19.461	19.462	(10 ₁) 6s[1]
44	19.560	19.558	19.556	19.556	(11 ₁) 6s[2] _{3/2}
46	19.655	19.654	19.655	19.655	(12 ₁) 6s[1]
47†	19.736	19.739	19.736	19.740	(12 ₁) 6s[1]
49	19.850	19.845	19.844		(7 ₁) 4d
50	19.895		19.900	19.901	(7 ₁) 4d
51	19.940		19.927	19.928	(4 ₁) 5d
52	19.960	19.960	19.961	19.962	(5 ₁) 7s[2] _{3/2}
53	19.995	19.986	19.985	19.985	(3 ₁) 8s[2] _{3/2}
54	20.025	20.016	20.017	20.017	(6 ₀) 7s[0] _{1/2}
55	20.050			20.043	
56	20.115		20.130	20.130	(9 ₁) 4d
57	20.165		20.170	20.169	(4 ₁) 8s[1]
58	20.215		20.221	20.209	(9 ₁) 4d
59	20.265	20.256	20.257	20.258	(10 ₁) 4d
60	20.375		20.375	20.376	(7 ₁) 7s[1]
61	20.440		20.440	20.440	(4 ₁) 9s[1] _{1/2, 3/2}
62	20.485		20.486	20.486	(12 ₁) 4d
63	20.535	20.524	20.526	20.530	(8 ₀) 7s[0] _{1/2}
64	20.585		20.575	20.574	(4 ₁) 10s[1]
65	20.610		20.594	20.595	(6 ₀) 8s[0] _{1/2}
66	20.675	20.684	20.669	20.671	(9 ₁) 7s[2] _{3/2}

† Calibration point.

‡ Assignments are taken from Connerade (1970). In the energy range we have studied, the autoionising states can only decay to the ground state of the ion, therefore the sum of ejected-electron energies and the first ionisation potential of rubidium gives the state energies directly comparable to ultraviolet absorption data.

(B) Beutler (1934).

(C) Connerade (1970).

(M) Mansfield (1973).

どちらも核間相対速度 v_i に反比例しているので横軸を衝突エネルギー、縦軸を ΔE あるいは Γ_{BB} にとると両対数グラフ上でどちらも傾きが $-\frac{1}{2}$ の直線になるはずである。Fig. 18 と Fig. 19 の中の直線は傾きが $-\frac{1}{2}$ である。実験値は、その直線上にほぼのっている。しかしこの直線から未知数である自動電離状態の寿命 τ を求めることはできない。その理由は、今扱っている $\text{Rb}^+ - \text{Ar}$, $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ という重粒子衝突では、放出電子が観測される際に、Barker-Berry 効果と同時に Doppler 効果の影響をうけるからである。つまり、正確な寿命 τ を求めるためには、ピークのシフトや半値幅から Doppler shift や broadening をさし引かなければならない。

以上のように、重粒子衝突における Barker-Berry 効果は、実験上は取り扱いが複雑になる。そこで次の第4章で詳しい解析を行った。

<補足>

Fig. 10 には、Rb $4p^5 5s^2 \ ^2P_{3/2}$ のスピンパートナーである $\ ^2P_{1/2}$ 状態に対応するピークもあらわれている。もし、統計重率に従うならば、 $\ ^2P_{3/2}$ と $\ ^2P_{1/2}$ の強度比は 2 : 1 となるはずだが、実験では、Fig. 16 にも示されているように $\ ^2P_{1/2}$ の強度が $\ ^2P_{3/2}$ に比べて非常に小さく観測された。同じような傾向は、 $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ 系でもあらわれている。このような現象は今まで我々の研究室で行ってきた軽いイオンと原子の衝突系では起こらなかった。重い衝突系の場合には、励起が起こる際に、スピン軌道結合も関与しているのではないかと考えられる。が、詳しい解析はまだ行っていない。

第4章 実験結果の解析

§1 Barker-Berry 効果の解析の現状

第1章で述べたように、Barker-Berry 効果は、1966年に Barker と Berry によって $\text{He}^+ - \text{He}$ 系で初めて観測され⁶⁾、古典的モデルで説明がなされた。以来、いくつかの衝突系で Barker-Berry 効果が観測されてきた。^{7,8, 25)} また、A. Niehaus *et al.*²⁶⁾ は、Barker - Berry 効果の半古典的な取り扱いを報告している。

一方、電子衝突では、Barker-Berry 効果と同様な現象が観測されており、Post Collision

Table 2 e Cs V. Pejčev et al.²⁴⁾

Comparison of excited-state energies from this work, and the data of Beutler and Guggenheimer (1934) and Connerade (1970).

Line number	Excited-state energy (eV)			Tentative assignments	
	This work	(B)	(C)		
1†	12.307	12.307		$5p^4(^1P_1)6s^1\ ^1P_{1,1}$	(B)
9	13.526	13.523		$5p^4(^1P_1)6s^1\ ^1P_{1,1}$	(B)
17	14.072	14.071	14.071	$(3,1)7s[2]_{3,1}$	(C)
18	14.208	14.203	14.204	$(6,1)7s[2]_{3,1}$	(C)
23	14.574	14.573	14.573	$(7,1)7s[1]$	(C)
24	14.705	14.701	14.702	$(9,1)7s[2]_{3,1}$	(C)
25	14.893		14.886	$(3,1)5d$	(C)
30	15.211	15.203	15.207	$(3,1)5d$	(C)
31	15.314	15.311	15.312	$(3,1)5d$	(C)
33	15.399	15.400	15.399	$(3,1)5d$	(C)
34	15.486	15.473	15.472	$(6,1)5d$	(C)
35	15.521		15.525	$(6,1)5d$	(C)
36	15.572		15.574	$(6,1)5d$	(C)
37	15.655	15.647	15.647	$(11,1)7s[2]_{3,1}$	(C)
38	15.689	15.682	15.683	$(12,1)7s[2]_{3,1}$	(C)
40	15.801	15.799	15.799	$(13,1)7s[0]_{1,1}$	(C)
41	15.853	15.846	15.853	$(14,1)7s[1]$	(C)
42	15.922		15.867	$(14,1)7s[1]$	(C)
43	15.996		15.922	$(9,1)5d$	(C)
45	15.177		15.996	$(9,1)5d$	(C)
46	16.270		15.159	$(15,1)7s[1]$	(C)
47	16.340		15.183	$(15,1)7s[1]$	(C)
48	16.389		16.268	$(3,1)6d$	(C)
49	16.458		16.274	$(3,1)6d$	(C)
50	16.563		16.344	$(6,1)6d$	(C)
51	16.610		16.351	$(6,1)6d$	(C)
52	16.657		16.391	$(6,1)6d$	(C)
53	16.674		16.454	$(6,1)6d$	(C)
54	16.696	16.454	16.453	$5p^36s^1(^1P_1)7d$	(B)
55	16.758	16.560	16.561	$(7,1)6d$	(C)
56	16.806	16.602	16.600	$(11,1)5d$	(C)
57	16.910	16.640	16.640	$(11,1)5d$	(C)
58†	16.968	16.660	16.660	$(11,1)5d$	(C)
60	17.030	16.668	16.668	$(11,1)5d$	(C)
61	17.080	16.690	16.695	$(6,1)7d$	(C)
62	17.148	16.758	16.759	$(12,1)5d$	(C)
63	17.186	16.815	16.815	$(12,1)5d$	(C)
		16.897	16.897	$(12,1)5d$	(C)
		16.968	16.968	$(13,1)5d$	(C)
		17.023	17.024	$(15,1)5d$	(C)
		17.084	17.081	$(6,1)10d$	(C)
			17.153	$(6,1)11d$	(C)
			17.160	$(14,1)5d$	(C)
			17.181	$(9,1)7d$	(C)
			17.186	$(14,1)5d$	(C)

† Calibration point.
(B) Beutler and Guggenheimer (1934).
(C) Connerade (1970).

Interaction 効果 (P.C.I. 効果) と名づけられ、多くの詳しい解析が行われている。

重粒子衝突では、Barker - Berry 効果と同時に起こる Doppler 効果が現象を複雑にするため、詳細な解析があまり報告されていない。解析例としては、G. Gerber *et al*²⁵⁾ が He - He 系において Doppler shift の無視できる観測角 90deg で測定を行い、ピークのシフトから寿命を求めている。また、A. Niehaus *et al*⁸⁾ が $\text{Ne}^{3+} - \text{H}_2$ 系で Doppler 効果によるピークのひろがりのない観測角 180deg を選んで実験し、スペクトル全体を Barker - Berry の古典理論で再現し、寿命を求めた (Fig. 20, Fig. 21)。近年では、A. Bordenave =

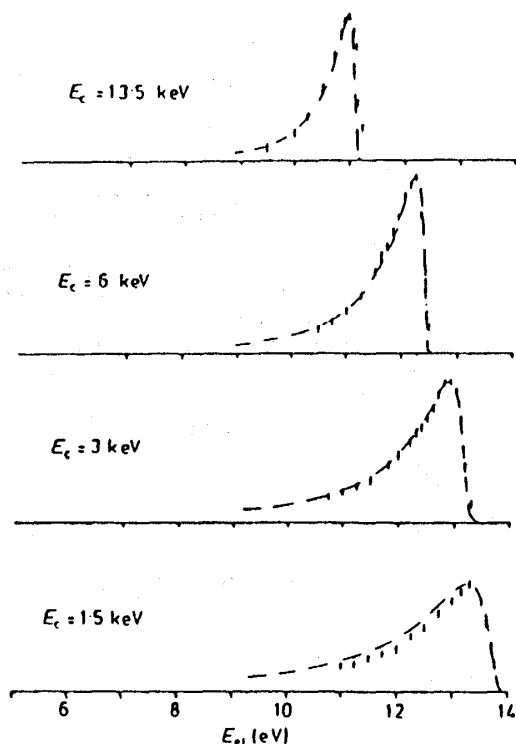


Fig. 20
R. Morgenstern *et al.*⁸⁾

Comparison of measured and calculated peak shapes for peak 30 which is due to autoionisation of the core-excited state $\text{Ne}^{2+} 2s2p^5(^3P)3p(^2D)$ formed in $\text{Ne}^{3+} + \text{H}_2$ collisions at different energies. Due to PCI the peakwidth increases with decreasing energy. The only fit parameter in the calculations was the lifetime τ of the state, which in this way could be determined to be $\tau = 650$ au.

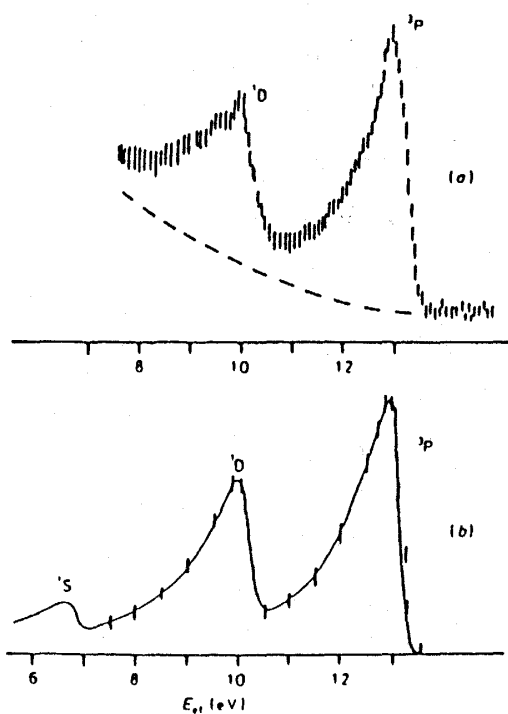


Fig. 21
R. Morgenstern *et al.*⁸⁾

Autoionisation of $\text{Ne}^{2+} 2s2p^5(^3P)3p(^2D)$ formed in $\text{Ne}^{3+} + \text{H}_2$ collisions at 3 keV into the different final states $\text{Ne}^{2+} 2p^4(^3P, ^1D, ^1S)$, (a) measured electron spectrum and (b) calculated spectrum, assuming a lifetime $\tau = 650$ au of the initial state and a statistical population of the final states.

Fig. 20 及び Fig. 21

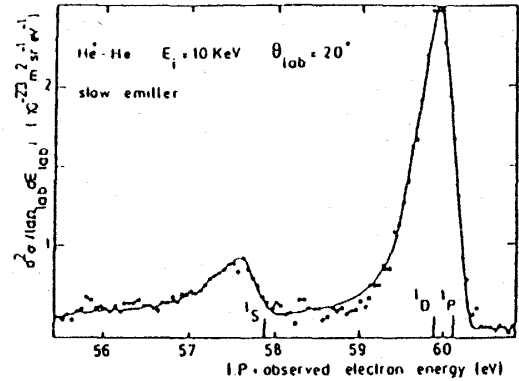
和田かおる

Montesquieu *et al*⁷⁾ も $\text{He}^+ - \text{He}$ 系で観測角 20° で測定し, Barker-Berry 効果の影響を受けたスペクトル全体を再現することを試みている (Fig. 22)。

以上のように, Doppler 効果による影響をいかに取り除くかが問題となっている。また, エネルギー分解能あるいは, 近接のピークによって着目しているピークの形が乱れてしまい, ピーク全体を再現すること, すなわち, ピークの半値幅とシフト量の両方から正確に寿命を求めることが難しい場合が多かった。

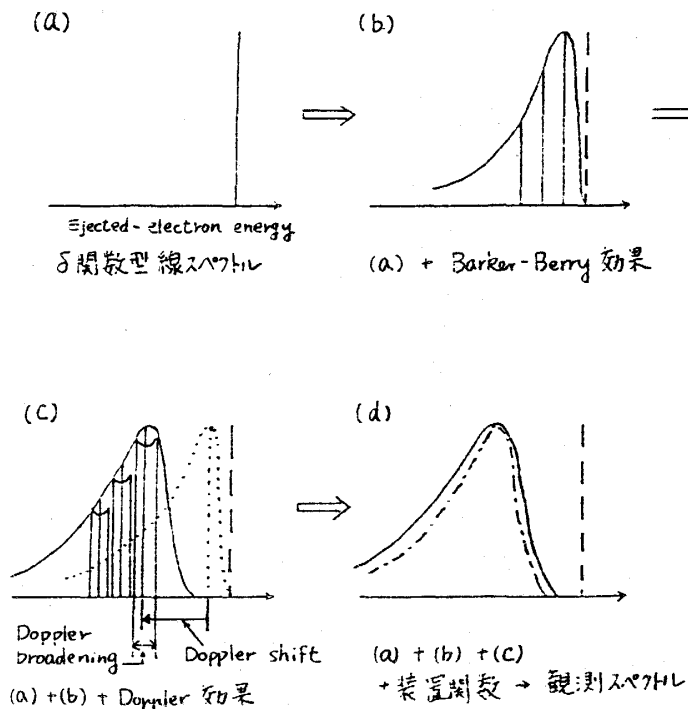
§ 2 解析の方針

本研究では, $\text{Rb}^+ - \text{Ar}$ と $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ の系で, 単独ではっきりとした Barker-Berry profile をしたスペクトルを得ることができた。また, A. Wada²⁾ の Doppler 効果の解析方法をもとにして, Doppler 効果をより厳密に取り扱うようにした。こうして, Barker-Berry 効果の古典的理論に Doppler 効果を取りこんだ分布関数を用いることによって, 任意の観測角及び衝突エネルギーでピーク全体を再現することを試みた。



Spectra of electrons ejected by autoionization of the slow particle in He^+ on He collisions at 10 keV and $\theta_{\text{lab}} = 20^\circ$. The energy scale is calibrated against the $2p^2^1D$ energy state: 59.90 eV as obtained in Ref. 22. Energy resolution: 0.67% of the transmitted electron energy; channel width = 0.055 eV. The continuous line is obtained by a fit of the experimental points (•) (see text).

Fig. 22 A. Bordenave-Montesquieu⁷⁾



その具体的な方針は以下のようなものである。図のように δ 関数型の線スペクトル (a) が Barker-Berry 効果によって (b) のように変形される。続いて, Doppler 効果をうけ, シフトしさらに幅が広がり (c) になる。実際に観測されるスペクトルは (c) に装置関数のかかった (d) である。このような順序で関数をたたみこんでいけばよい。

§ 3 解析

[1] Barker-Berry 効果の取り扱い

Fig. 23 は, 衝突系をひとつの分子と考えた時の molecular potential curve である。

(1) 入射粒子が標的に近づくと核間距離

R が小さくなり, 始状態のポテンシャルが立ち上がる。

(2) 核間距離 R_x で励起状態のポテンシャルカーブと交差し, この近傍で励起が起こる。

(3) その後, 粒子が離れていくと終状態のポテンシャルカーブと交差し, ここから電離が始まる。寿命が短い, あるいは粒子間の相対速度が小さい場合には, R が十分大きくなるうちに電離が起こり始める。つまり, 放出電子の中には, R が十分大きいところで電離した時の電子のエネルギー E_0 よりも小さいエネルギー $E_{e0} = E_0 - \Delta E$ で放出されるものもでてくるわけである。

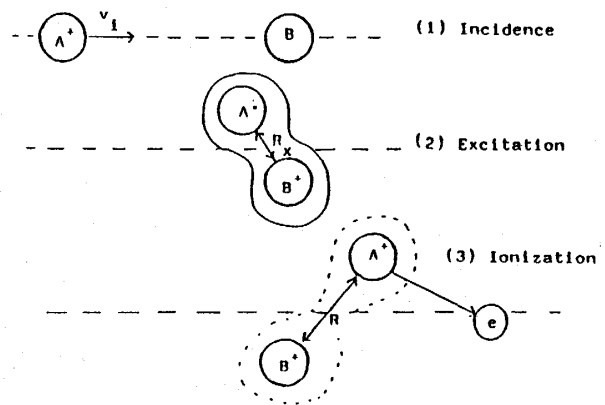
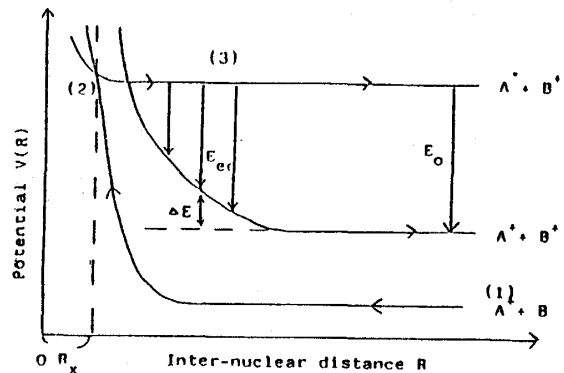


Fig. 23 the Barker-Berry effect

こうして, 放出電子のエネルギー分布は, Barker と Berry によって導かれた (1-5) 式より

$$P_{BB}(E_{e0}) = \frac{1}{v_i \tau (E_{e0} - E_0)^2} \exp\left(-\frac{1}{v_i \tau} \left(\frac{1}{E_0 - E_{e0}} - \frac{1}{E_0}\right)\right) \quad (4-1)$$

E_{e0} : 放出電子のエネルギー

E_0 : R が十分大きい時の放出電子エネルギー

v_i : 衝突粒子間の相対速度 τ : 自動電離状態の寿命

和田かおる

(4-1)式の中で本実験における未知数は寿命 τ のみである。

[2] Doppler 効果の取り扱い

任意の観測角において、Doppler 効果を厳密に見積もるためには、衝突後、自動電離状態に励起された粒子（本実験では Rb^* 及び Cs^* ）の散乱角を知る必要がある。しかし、本実験は同時計測法を用いていないので散乱粒子についての情報がない。また、散乱角は衝突エネルギーにも依存していると考えられるので、取り扱いが複雑になってしまう。そこで、次のような近似をすることによって未知数を減らし扱いやすくした。

(i) 近似

今、着目している励起状態は、前述の励起の起こると思われる核間距離 R_x における動径結合 (radial coupling) によって形成される。この時の遷移確率 P は

$$P = \int_{-\infty}^{\infty} \langle f | V | i \rangle \exp \left\{ -i \int_{-\infty}^t (E_i - E_f) dt' \right\} dt$$

$|i\rangle$: 始状態

$\langle f|$: 終状態

この確率が最大となるのは2つの stationary phase points が合体 (coalescence) する時である (Fig. 24)。本実験の衝突系では粒子の質量が大きく、相対速度が小さいので、この

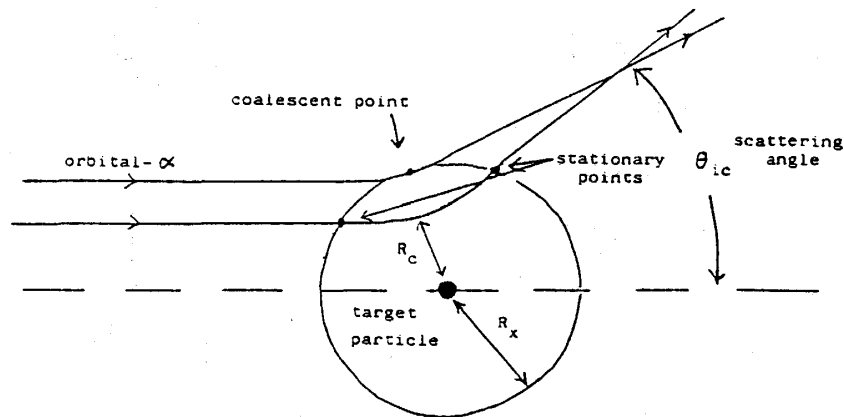


Fig. 24 Approximation

coalescent point で遷移確率はするどいピークとなると予想される。つまり、励起の起こる核間距離 R_x と最近接距離 (closest point) R_c が等しいとき、遷移確率 (励起断面積) が最大となり、かつその近傍での遷移が大部分を占めると考えられる。

そこで Fig. 24 に示されるように、

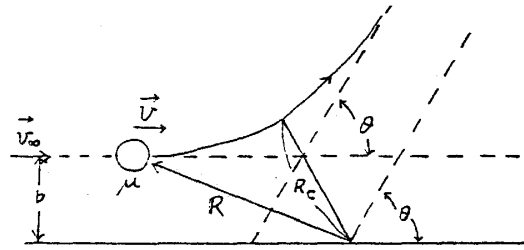
「軌道 α を通る時にだけ励起が起こる」

と近似した（一軌道近似と呼ぶことにする）。

一方、古典散乱のモデルを用いれば、最近接距離 R_C と問題となっている入射粒子の散乱角 θ_{ic} の間には、対応関係をつけられる。よって、励起の起こる核間距離 R_X 及び散乱ポテンシャルが与えられれば、入射粒子の散乱角 θ_{ic} が衝突エネルギーに対応して一義的に決まる（この近似の妥当性については附録で述べる）。

(ii) 球対称ポテンシャルによる古典散乱

重心系における全エネルギーを E とする。



$$\begin{aligned} E &= \frac{1}{2} \mu v^2 + V(R) \\ &= \frac{1}{2} \mu (v_\theta^2 + v_R^2) + V(R) \\ &= \frac{1}{2} \mu v_\infty^2 \quad (4-2) \end{aligned}$$

ここで $\mu = \frac{mM}{M+m}$: 換算質量

v_∞ : 遠方での入射速度

v_R : 動径方向の速度

v_θ : 回転方向の速度

$V(R)$: 核間距離 R におけるポテンシャル

b : 衝突径数

R_C : 最近接距離

$$v_R = \frac{dR}{dt} \quad (4-3)$$

$$\mu R v_\theta = \mu b v_\infty = \text{const.} \quad (4-4)$$

(4-3), (4-4) より

$$\begin{aligned} E &= \frac{1}{2} \mu \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 + \frac{1}{2} \mu v_\infty^2 \left(\frac{b}{R} \right)^2 + V(R) \\ \frac{dR}{dt} &= \pm v_\infty \sqrt{1 - \frac{b^2}{R^2} - \frac{V(R)}{E}} \quad (4-5) \end{aligned}$$

また(4-4)より

$$\frac{d\theta}{dt} = \frac{v_\theta}{R} = \frac{v_\infty b}{R^2} \quad (4-6)$$

和田かおる

これを θ について積分すると

$$\theta(b, E) = \pi - 2 \int_{R_C}^{\infty} \frac{b}{\sqrt{1 - \frac{b^2}{R^2} - \frac{V(R)}{E}}} \frac{dR}{R^2} \quad (4-7)$$

ここで最近接距離 R_C と衝突径数 b の関係は

$$1 - \frac{b^2}{R_C^2} - \frac{V(R_C)}{E} = 0 \quad (4-8)$$

であり、 R_C を決めれば b が決まる。

故に、(4-7)式より、最近接距離 $R_C (= R_X)$ 、散乱ポテンシャル $V(R)$ 及び入射エネルギー E が与えられれば散乱角 θ は一義的に求まる。

(iii) 散乱ポテンシャル

核間距離 R に依存した相互作用ポテンシャルを Thomas-Fermi-Dirac の統計的手法による計算で求めた (Fig. 25, Fig. 26)。(計算には北里大小池文博博士のプログラム[※]を拝借

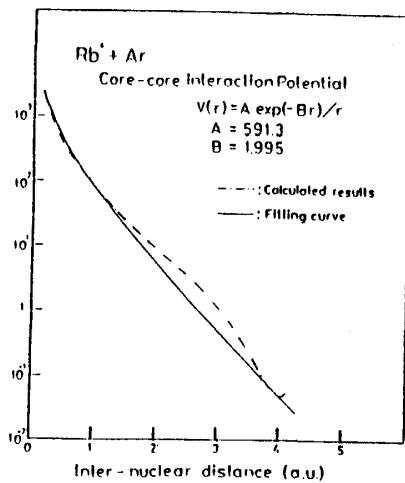


Fig. 25

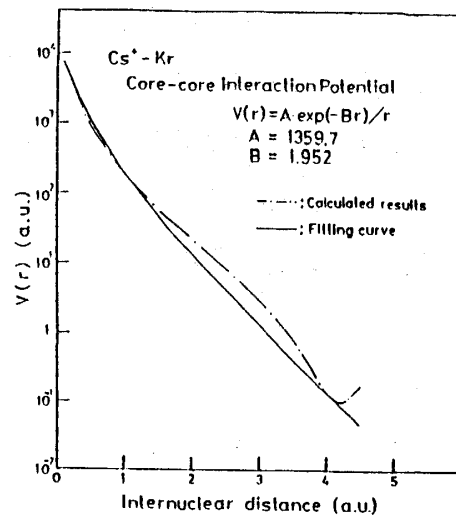


Fig. 26

した。) 厳密には、非弾性散乱なので衝突の前後で相互作用も変わるはずだが、基底状態と励起状態のポテンシャルの差はたかだか 15 eV 程度なので、励起後の相互作用ポテンシャルを基底状態のポテンシャルで近似した。さらに、実際の計算では、ポテンシャル計算の結果を Yukawa 型のポテンシャルで fitting して使用した。(※電荷密度の計算には東大大型計算機センタープログラムライブラリ Y4-BA02 (米井・富島)を使用した。)

(iv) Doppler 分布関数

以上のようにして、自動電離状態に励起された粒子の散乱角を計算によってかなり正確に求めることができる。実際の計算では前出の(1-17)式の分子は、 E_{lab} に対してゆるやかに変化する関数であることを考慮して次のように近似する。

$$\frac{E_{e0}}{E_{lab}} \simeq 1, \quad \frac{m_e}{M_i} \frac{E_{iL}}{E_{lab}} \simeq 0 \quad (\text{電子とイオンの速度比の二乗})$$

$$\therefore P_D(E_{lab}) = \left\{ B^2 \frac{E_{lab}}{E_{e0}} - [E_{lab} - E_{e0} + \epsilon_{iL} - A \left(\frac{E_{lab}}{E_{e0}} \right)^{1/2}]^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} \quad (4-9)$$

重心系であらわすと

$$\xi = \frac{M_i}{M_t}$$

$$\epsilon_i = \frac{m}{M_i} E_i$$

$$\epsilon_{iL} = \frac{m}{M_i} E_{iL} = \frac{1 + \xi^2 + 2\xi \cos \theta_{ic}}{(1 + \xi)^2} \epsilon_i$$

$$A = 2 (\epsilon_i E_{e0})^{1/2} \frac{\xi + \cos \theta_{ic}}{1 + \xi} \cos \theta_{lab}$$

$$B = 2 (\epsilon_i E_{e0})^{1/2} \frac{\sin \theta_{ic}}{1 + \xi} \sin \theta_{lab}$$

m : 電子の質量

M_t : 標的粒子の質量

M_i : 入射粒子の質量

θ_{ic} : 重心系における散乱角

θ_{lab} : 放出電子の観測角

さらに、(4-9)の関数は E_{lab} について発散点があるので、それを避けるために、方位角 $\phi = \phi_i - \phi_e$ についての分布は等方的であるとして(1-16)より

$$P_D(E_{lab}) = \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dE_{lab}} \Big|_{E_{e0}} = \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dE_{e0}} \quad (4-10)$$

$$\frac{dE_{e0}}{dE_{lab}} \simeq 1$$

和田かおる

として実際は ϕ についての積分に変換して計算した。

(i) ~ (iv) をまとめると Doppler 効果を正確に取り扱うために必要であった入射粒子の散乱角は、励起の起こる核間距離 R_x という未知数ひとつで (各衝突エネルギーに共通) 記述することができるようになった。

[3] 分布関数の導出

第4章 §2 で述べたように、観測される放出電子のエネルギー分布関数は、次のようなたたみこみを行って得られる。

$$P(E_{lab}) = \int_0^\infty P_{AP}(E_{lab}, E'_{lab}) \int_0^\infty P_D(E'_{lab}, E_{e0}) P_{BB}(E_{e0}, E_0) dE_{e0} dE'_{lab} \quad (4-11)$$

P_{AP} : 装置関数

P_D : Doppler 分布関数

P_{BB} : Barker-Berry 分布関数

計算に使用した装置関数はガウス型で半値幅 Γ_{AP} は実験のエネルギー分解能より 120 meV とした。

$$P_{AP}(E_{lab}, E'_{lab}) = C \exp \left[- \left(\frac{E'_{lab} - E_{lab}}{\alpha} \right)^2 \right] \quad (4-12)$$

$$\alpha = \frac{\Gamma_{AP}}{\sqrt{\ln 2}}, \quad \Gamma_{AP} = 120 [\text{meV}]$$

分布関数 $P(E_{lab})$ に含まれる未知数は、Barker-Berry 関数の中の 自動電離状態の寿命 τ と Doppler 関数に含まれる、散乱角の決定に必要な 励起の起こる核間距離 R_x の2つのみである。

§4 計算結果

計算は大型計算機 (HITAC M-280H) を使用して、§3 で述べた2つの未知数を入力し (4-11) 式を描かせ、最適な未知数の組を求める方法で行った。本研究で着目している $\text{Rb } 4p^5 5s^2 \text{ } ^2P_{3/2}$ ($\text{Rb}^+ - \text{Ar}$ 系) と $\text{Cs } 5p^5 6s^2 \text{ } ^2P_{3/2}$ ($\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ 系) のピークについて、衝突エネルギーと観測角の異なるスペクトル ($\text{Rb}^+ - \text{Ar}$: 8つ, $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$: 7つ) のピーク全体を同時に最も良く再現するように2つの未知数 R_x と τ を決定した。その最適なパラメータの組は

autoionizing state	lifetime τ (a.u.)	crossing radius R_x (a.u.)
Rb($4p^5 5s^2$) $^2P_{3/2}$	3500 ± 100	2.3 ± 0.1
Cs($5p^5 6s^2$) $^2P_{3/2}$	3300 ± 100	2.3 ± 0.1

$$1 \text{ [a. u.]} = 0.5292 \text{ [\AA]}$$

$$1 \text{ [a. u.]} = 2.149 \times 10^{-7} \text{ [sec]}$$

その時の重心系の散乱角の計算値は、

i) Rb⁺-Ar

E_i (eV)	θ_{ic} (deg)
400	78.8
766	42.9
1910	18.2
3830	9.35
5740	6.29

ii) Cs⁺-Kr

E_i (eV)	θ_{ic} (deg)
521	134.0
1110	60.0
3220	22.2
6550	11.3

Fig. 27 と Fig. 28 は、実験で得られたスペクトルと計算結果（実線）と比較したものである。実験結果が計算によって非常によく再現されたといえるだろう。

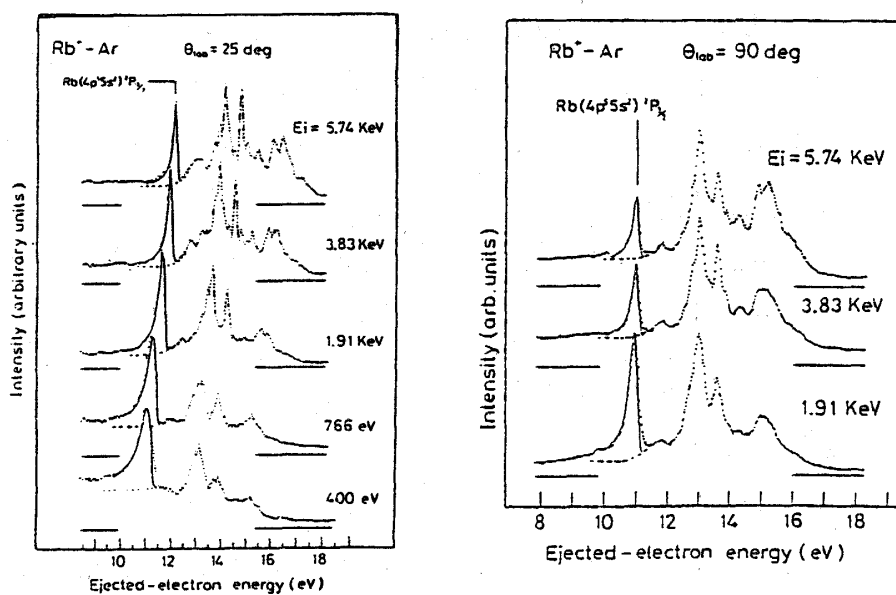


Fig. 27

第5章 まとめ

本研究の成果は、実験的に困難の多い同時計測法を用いなくても、また観測角度を限定（たとえば 0° , 90° , 180° ）しなくても、散乱粒子の散乱角をきちんと評価した Doppler 効果の式と、Barker-Berry 効果の式を用いることによって、実験で得られたスペクトルを再現し、自動電離状態の寿命を測定できたことである。本実験では、 $\text{Rb}^+ - \text{Ar}$ 及び $\text{Cs}^+ - \text{Kr}$ といった粒子の質量が大きく、相対速度の小さい衝突系を観測したために散乱角が1つに決定でき、Doppler 効果を容易に見つめることができた。軽い衝突系の場合でも、散乱角の分布（附録参照）を計算にとりこめば、

同様に寿命を求められるだろう。また、計算結果からわかるように、 $\text{Rb}(4p^5 5s^2 {}^2P_{3/2})$ 状態の寿命が 3500 (a. u.)、 $\text{Cs}(5p^5 6s^2 {}^2P_{3/2})$ 状態の寿命が 3300 (a. u.) と比較的長い寿命であった。このような長い寿命は自然幅 (3500 (a. u.) の場合約 8 meV) が狭く、通常の実験手法では測定が非常に難しい。この点でもこの解析方法は意味があるといえる。

計算で得られた寿命と他のデータを比較し、評価することを試みた。しかし、このような寿命の測定の報告はほとんどなかった。そこで V. Pejčev *et al.*^{23,24)} の $e - \text{Rb}$, $e - \text{Cs}$ の放出電子スペクトルの半値幅から各寿命の下限を見つめた。(Fig. 14, Fig. 15)

(i) $\text{Rb}(4p^5 5s^2) {}^2P_{3/2}$ 状態について

装置分解能 20 meV (実験スペクトルの半値幅も)
 \therefore 自然幅 $\Delta E \leq 20\text{ meV}$
 よって寿命 τ は $\tau > 1360.5$ (a. u.)

(ii) $\text{Cs}(5p^5 6s^2) {}^2P_{3/2}$ 状態について

装置分解能 25 meV
 自然幅 $\Delta E \leq 50\text{ meV}$ (Fig. 15 の line 1 から読みとった値より)
 よって寿命 τ は $\tau > 542$ (a. u.)

寿命の下限しかわからないので断定的な評価はできないが、少なくとも Rb については、 10^3 の order の寿命をもっていても reasonable といえる。

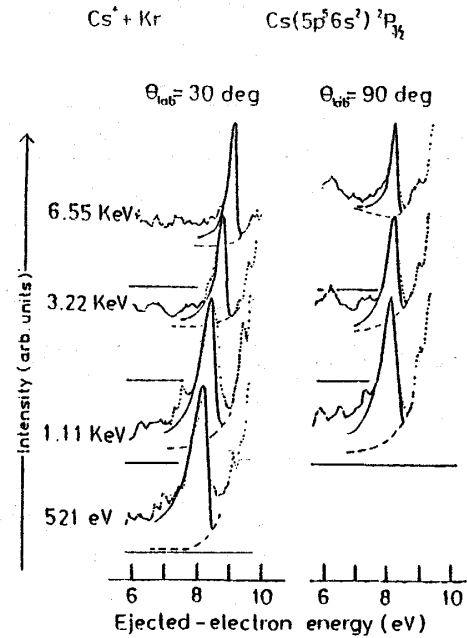


Fig. 28

第2部 イオン-原子衝突実験装置の改造

第1章 装置の改造目的

第1部で記したように、これまでにイオン-原子衝突実験装置を用いて低エネルギー衝突の諸過程について解析が行われてきたが、主に、ピークの形状の解析、分光学的解析が中心であった。より詳しく衝突反応過程を調べるためには、励起断面積のデータが不可欠である。そこで、断面積測定がしやすいように、現在の装置を改造することにした。また、エネルギー分析器は老朽化し、残留磁場が消えない、組み立てにくいなどの点があるので、新しいエネルギー分析器を製作した。具体的な目的は大きくわけて次の3つである。

- [1] 装置の位置決定精度の向上
- [2] 観測角度範囲の拡張
- [3] エネルギー分解能の向上

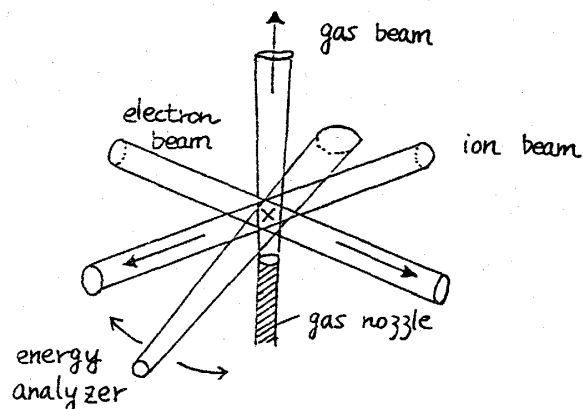
[1] 装置の位置決定精度の向上について

イオン-原子衝突実験装置は、ビーム交差法を用いている。また、イオンビームと電子ビームを同時に標的ガスビームに衝突させる同時衝撃法によってエネルギー軸を較正したり、断面積の絶対値測定したりする。よって、下図のように、回転台に対して垂直に噴きあげる標的ガスビームにイオン・電子各ビームが交差し、さらに、その交差している領域をエネルギー分析器が見込んでいなくてはならない。つまり、計4本のビームが空間上のほぼ1点で交差するように、それに加えてエネルギー分析器が回転してもその点からはずれないように、各装置の位置を精度良く決定する必要がある。また、衝突領域の大きさや形状が励起断面積の測定に大きく影響するので、各装置の位置設定には、精度と共に再現性がなくてはならない。

[2] 観測角度範囲の拡張について

重粒子衝突において放出電子エネルギーを観測する際には Doppler 効果(第1部第1章 §2- [3])によるピークのシフト、形状の変化が避けられない。観測角 0° あるいは 180° のときエネルギー分解能が最も良い。

そこで現在の装置でも 0° で観測できるよ



和田かおる

うにする。また、電子銃を使用しない時には、観測角度範囲が簡単に広がるようにする。

[3] エネルギー分解能の向上

今までの装置のエネルギー分解能は約100meVであった。改造後は count rate を減らさずに分解能を100meV以下にすることを目標とする。そのためには、ノイズ(2次電子)、磁場を減らすことが重要である。

以上の3点を留意して、装置の改造、製作を行った。

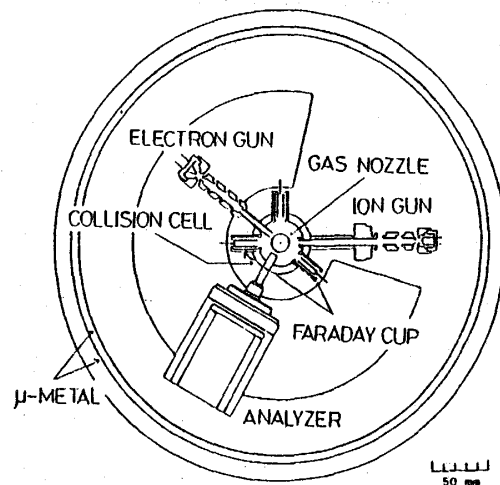
第2章 実験装置

§1 改造後の装置の概要

新しい装置の全体図を Fig. 29 に示す。装置は、イオン銃、電子銃、イオン・電子ビーム用ファラデーカップ、エネルギー分析器、ガスノズル、衝突室で構成されている。以前の装置図 (Fig. 5) と比較すると、電子銃と電子ビーム用ファラデーカップの取り付け位置が逆になっている。これは、電子銃を使用しない時にファラデーカップをはずすだけでエネルギー分析器の回転可能範囲を広げることができるようにするためである。イオンビームと電子ビームのなす角は 40° である。

また、Fig. 29 には示されていないが、真空槽の外のフランジ内に、イオンビーム捕集用のファラデーカップがもうひとつある。このファラデーカップを使用し、Fig. 29 のイオンビーム用ファラデーカップをとりはずし、エネルギー分析器を観測角 0° に設置し、測定することができる。その際、イオンビームは、放出電子と共にエネルギー分析器の中に入り、分析器中を直進して通り抜け、外のフランジ内のファラデーカップで捕集される。

分解能向上のために、新しく製作した、エネルギー分析器・ガスノズル・衝突室は、磁化されにくい材料、ステンレス(SUS 316)を使用した。ガウスマーターで測定したところ、各 부품の磁場は5mG以下だった。さらに、装置全体を μ -メタルで完全に二重に覆い、内部磁場を測定してヘルムホルツコイルに流す電流を調節し、内部磁場をゼロにした。



Schematic diagram of the improved experimental apparatus

Fig. 29

Fig. 30 は block diagram である。マルチチャンネルアナライザーに蓄積されたデータがマイクロコンピュータ (TALOS II) に転送され、データ処理し、フロッピーディスクで保存される点が以前と異なっている。

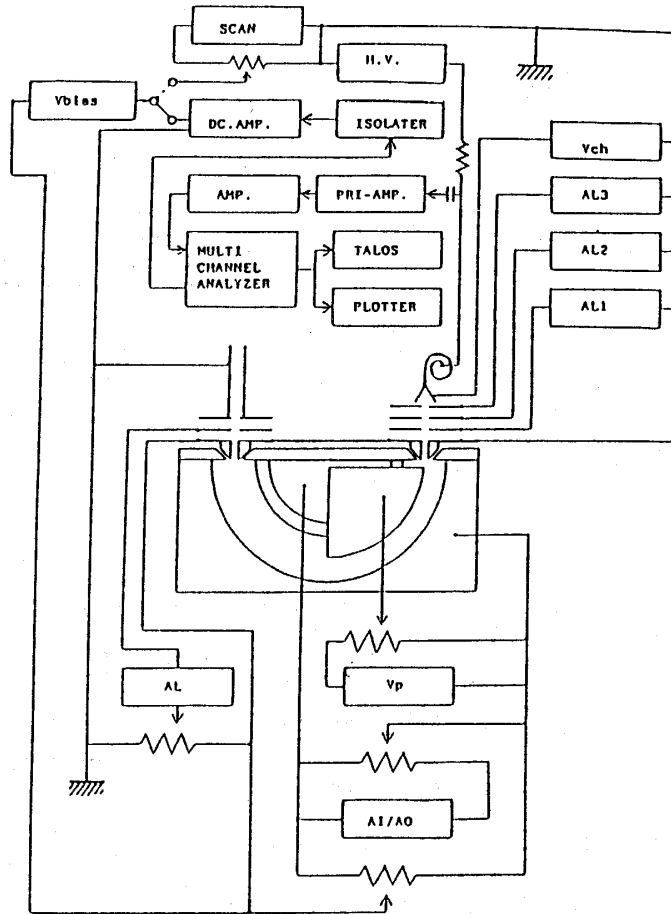


Fig. 30 Detailed block diagram

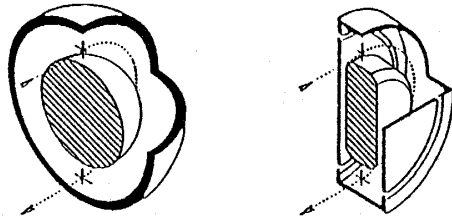
以上の点以外は、基本的には前の装置と同じである。

§ 2 新しいエネルギー分析器について

〔1〕 エネルギー分析器本体

新しく製作されたエネルギー分析器本体は、K. Jost⁹⁾ によって考案された、180°同軸円筒型の静電分析器である。模式図を Fig. 31-a, b) に示す。この分析器は、内側、外側、及び側方の電極で構成され、内側の電極にエッジをつけ、側方の付加的な電極 (auxiliary electrode) に決まった電位をかけることによって、同軸円筒型の電場をゆがめ、平均軌道付近の電場及び電位分布を同軸半球型の場合と一致させることができる。

内側、外側、側方の各電極の電位を各々 V_a , V_b , V_p とすると



Comparison of the geometry of a hemispherical spectrometer (left) and its equivalent new design (right). The dotted lines indicate an electron beam to be analysed. Entrance and exit apertures are omitted.

Fig. 31 a) K. Jost ²⁹⁾

$$p = \frac{V_p - V_b}{V_a - V_b}$$

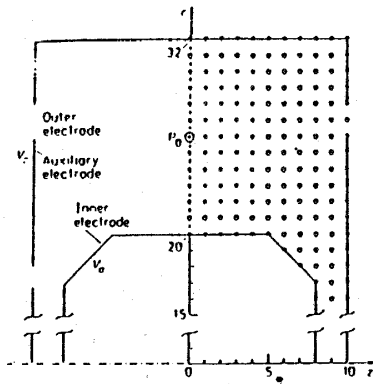
で決まるパラメータ p の値と、平均軌道付近の電場 $E \propto r^{-n}$ の n との関係は Fig. 31-c) のようになる。 $p \approx 0.4$ とすると (V_p の電位を V_a と V_b の電位差を 4 : 6 に内分するようにかける) $n \approx 2$ となり、平均軌道付近の電場は同軸半球型の電場と等しくなる。このため、この分析器は、擬似半球型分析器 (simulated hemispherical analyzer) あるいは、Jost 型分析器と呼ばれる。

今回製作した分析器は平均軌道 52 mm (Fig. 31-b) の寸法の 2 倍) で、電子は Fig. 32 のように半円の軌道を下から上へ通過する (縦置き型)。

Jost 型分析器の特長をまとめると、

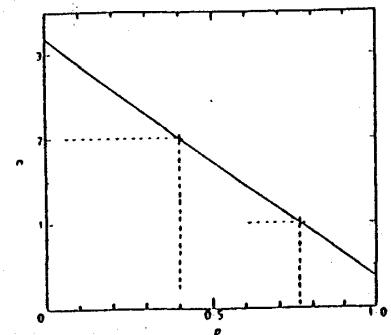
- i) 同軸半球型の利点 (入射ビームと分散面のなす方向に収束性があり、強度が強くとれる) をもちながら、大きさは 1/3 程度ですむ。
- ii) 各電極が単純な形状なので加工・組み立てが容易である。
- iii) 2 枚の側方電極の電位を $V_p + \Delta V$, $V_p - \Delta V$ と違えることによってビームを振ることができる。
- iv) V_p を変えることによって射出面上の像を移動できる。

などである。特に今度の改造では、i) の利点を生かして、分析器の平均軌道半径を以前の



Simulated spherical capacitor (ssc) to scale. The dots indicate the nodes of the resistor network; point P_0 corresponds to the position of the circular main beam trajectory. Radial zero is suppressed.

Fig. 31 b) K. Jost ²⁹⁾



Inverse power n of the electric field $E \propto r^{-n}$ against $p = (V_p - V_b)/(V_a - V_b)$. The special cases $n = 2$ and $n = 1$ are indicated by broken lines.

Fig. 31 c) K. Jost ²⁹⁾

1.7 倍にしたが、観測角度範囲は以前と同様である。理論的なエネルギー分解能は、

$$\text{FWHM} = \frac{\omega}{2R_0} E_0$$

(半球型の場合)

ω : スリット幅

R_0 : 軌道半径

E_0 : 通過エネルギー

* $\omega = 1 \text{ mm}$, $R_0 = 52 \text{ mm}$,

$E_0 = 2.5 \text{ eV}$ としたとき

$$\text{FWHM} = 24 \text{ meV}$$

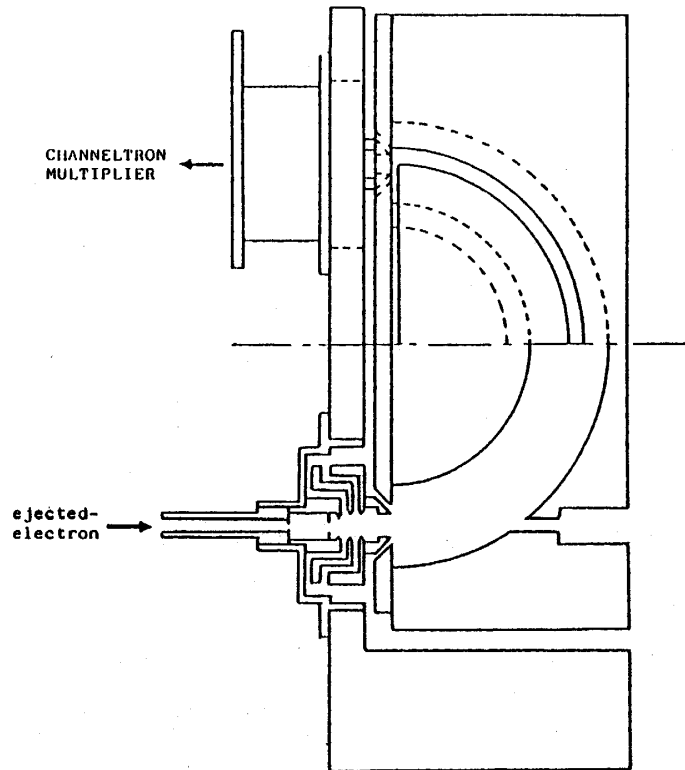


Fig. 32 Jost type energy analyzer
(simulated spherical energy analyzer)

分析器の出入口付近の電場の乱れ (fringing effect) を K. Jost²⁹⁾によって考案された“fringing field correction method”によって補正した。

分析器に必要な耐圧は 100 V 程度であるが、将来の拡張を考え、高エネルギー電子・原子衝突実験グループと共同で設計、製作し、共通仕様としたため、数 kV 程度の耐圧がある。

[2] レンズ系

Fig. 32 に示すように、入射レンズは三開口レンズ (three aperture lens) である。射出レンズも同様なレンズだが予備電極が 1 枚あり、計 4 枚で構成されている。レンズ設計には F. H. Read *et al.* の table³⁰⁾ を用いた。入射、射出レンズはどちらもアースされたケースで囲まれ、2 次電子 (stray electron) が入りにくくなっている。

[3] エネルギー分析器の組み立て方法

装置の位置決定精度を向上させるために、組み立て方及び設置の方法を改善した。Fig. 33 は、エネルギー分析器の立体図である (Fig. 31 も参照)。図に示したように、組み立てられたエネルギー分析器本体は、アースされた L 字型の台に固定され、入射及び射出レンズ系も各々、同じ L 字型の台に固定される。この L 字型の台を光学ベンチ型の三角のレールに固定する。この三角レールを一度回転台に精度よく (回転中心をむく) 取り付けておけば、エネルギー分析器本体及びレンズ系は、L 字型の台によって一体化されているので、分析器を取りはずして

和田かおる

も、再現性よく位置を決定することができる。

§ 3 装置の位置決定方法

装置の位置決定にあたって、まず回転台の中心、及び回転台に固定されている衝突室の中心を基準にする。イオン銃、電子銃、イオン及び電子用ファラデーカップは、衝突室にねじこまれるので機械工作の精度の範囲で回転中心を狙うはずである。さらに、ガスノズルも衝突室にねじこまれ、回転の中心からガスビームが垂直方向にむかってふきだされる。位置決定用に、実際に使用されるガスノズルよりも1.5mmほど高い、先が鉛筆のようにとがったノズルを製作した。装置をセッティングする際にはそのノズル

を衝突室にねじこむ。つまり、このノズルの先端が空間上の衝突点（衝突領域）となる。そして、イオン銃、電子銃、エネルギー分析器は、その衝突点（先端）をねらうように調整される。エネルギー分析器は、前述の三角レールの位置を調整すれば、本体、レンズ系は一体化されているので、すべて自ずと衝突点をねらうことになる。また、回転台を回して、エネルギー分析器の観測角を変え、どの角度でも同じように先端をねらうように調整することも必要である。

以上のような位置決定方法によって4つのビームを精度も再現性も良く空間上の一点で交差させることができる。

第3章 予備実験の結果

新しい装置（1983.12月末完成）は調整段階のため、予備実験の結果のみを報告する。

予備実験として電子-原子衝突の実験を行った。Krの $M_{4,5}NN$ Augerのスペクトル（Fig. 34）とXeの $N_{4,5}OO$ Augerのスペクトル（Fig. 35）が得られた。現段階では、

- i) 衝突エネルギー イオン銃 ~ 10keV 電子銃 ~ 2keV
- ii) 電流 電子電流 ~ 60 μ A（イオン電流 ~ 1 μ A）
- iii) 観測角度範囲 0°, 35° ~ 140°
（イオンビームの入射軸に対して）0°, 35° ~ 110°（電子銃使用時）

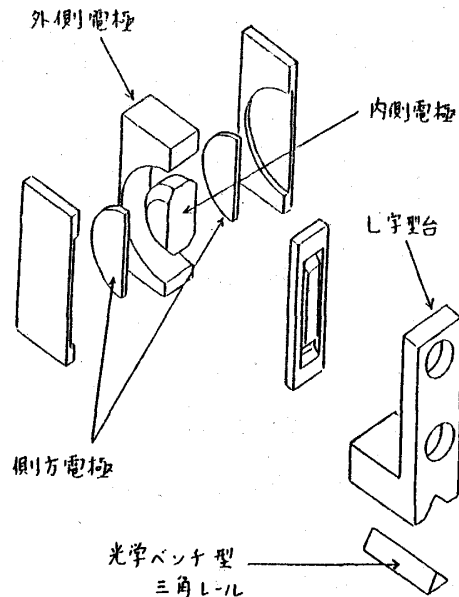


Fig. 33 エネルギー分析器の組み立て方法

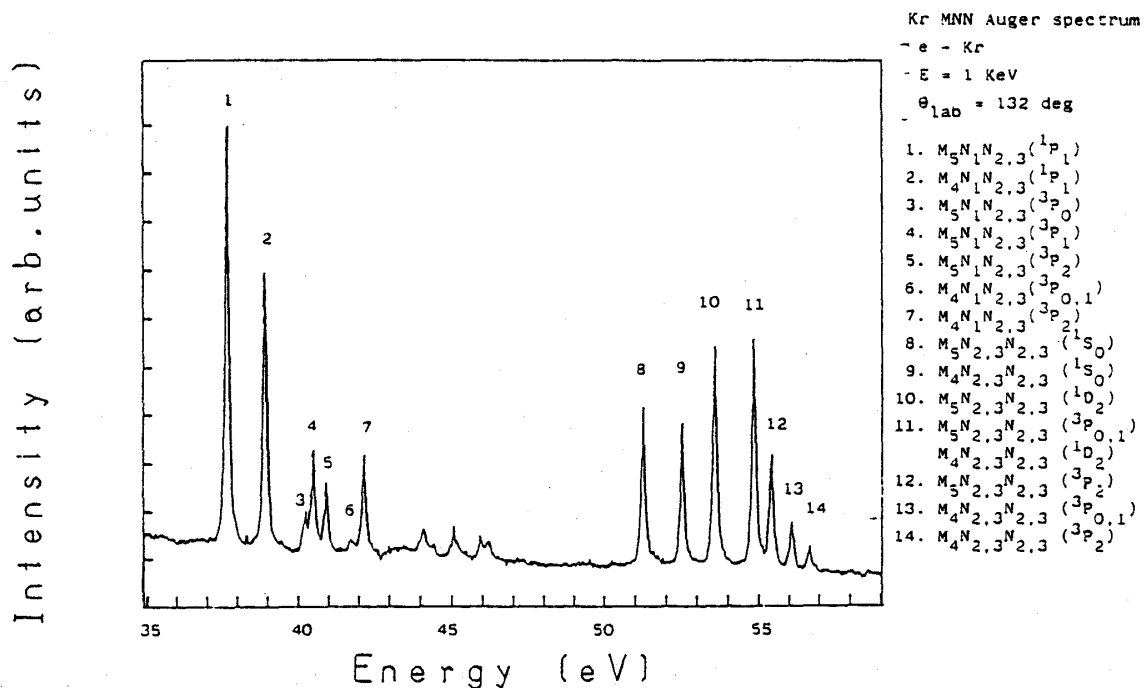


Fig. 34

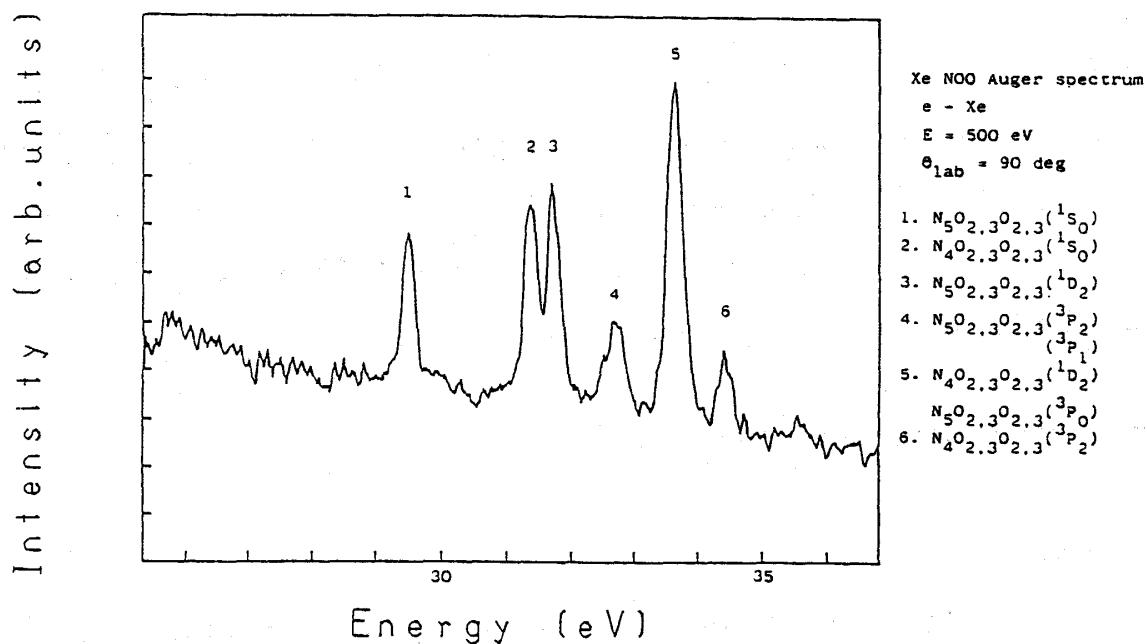


Fig. 35

iv) 分解能 $\sim 200 \text{ meV}$ (スリット幅 1mm, 通過エネルギー 2.5V)

その他の予備実験の詳細な結果は I. Miyashita³²⁾ によって報告されている。

第4章 今後の課題

装置の調整を進め、まず、分解能を向上させ、続いてイオン衝突の予備実験を行いたい。

イオン衝突による励起断面積の測定を行うためには、次のような装置特性を予備実験によって調べる必要がある。

i) 装置の観測角度依存性

- ・ Kr の Auger line の等方性を利用して調べる。

ii) エネルギー分析器の透過効率

- ・ 強度比の知られている Kr, Xe の Auger line を利用する。

iii) エネルギー軸の較正

- ・ 同時衝撃法のテスト

iv) ガス圧依存性

など。

イオン-原子衝突の励起断面積が放出電子分光法によって測定されれば、光によるデータ（発光断面積）と比較して、励起のメカニズムをより明らかにできると期待される。

謝 辞

本研究をまとめるにあたり、三年間にわたり御指導いただいた鈴木洋教授、脇谷一義博士、高柳俊暢博士に深く感謝いたします。また、解析及び計算について貴重な助言、御指導をいただいた北里大学小池文博博士に心から御礼申し上げます。そしてイオン-原子衝突実験を系統的に研究されてきた柳下明博士をはじめとする研究室の諸先輩、ならびに日頃お世話になった研究室の院生、4年生にも心から感謝いたします。

附 録 解析における近似の妥当性について

< A > 検証の方法

第1部の実験の解析にあたって Doppler 効果の計算の中で使われた近似（一軌道近似）の妥当性について検証を試みた（第1部第4章 § 3 - [2] 参照）

Fig. 24 に示すような軌道 α を通る時の励起が支配的であることを確かめるためには、励起微分断面積の散乱角度分布を計算すればよい。今までに、A. Wada²⁾ がイオン-原子衝突における動径結合による励起微分断面積の散乱角度分布を $K^+ - Ne$ 系で計算している。そこで、A. Wada の方法を使って $Rb^+ - Ar$ 系の $Rb^*(4p^5 5s^2)^2 P_{3/2}$ 状態について計算を行った。

以下にその方法の概要を記す。

(i) 動径結合による遷移確率を求めるためには、

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = -v \langle 1 | \frac{\partial}{\partial R} | 2 \rangle \exp \left\{ i \int_{-\infty}^t (\epsilon_1 - \epsilon_2) dt' \right\} C_2$$

$$\frac{\partial C_2}{\partial t} = v \langle 1 | \frac{\partial}{\partial R} | 2 \rangle \exp \left\{ i \int_{-\infty}^t (\epsilon_2 - \epsilon_1) dt' \right\} C_1$$

上のような結合方程式を解くわけだが、式の中の radial coupling matrix element $\langle 1 | \frac{\partial}{\partial R} | 2 \rangle$ を経験的なパラメータひとつによって表わす方法³¹⁾によって求める。そのパラメータ α は、状態1と2のポテンシャルカーブの crossing point が R_{cp} のとき

$$\alpha = \frac{A}{B} \quad \begin{array}{l} A : R_{cp} \text{ における透熱ポテンシャルカーブ間の差の傾き} \\ B : R_{cp} \text{ における断熱ポテンシャルカーブ間のエネルギー差} \end{array}$$

と表わされる。よって動径結合による遷移確率を求めるためには、状態相関図 (state correlation diagram) のポテンシャルカーブから

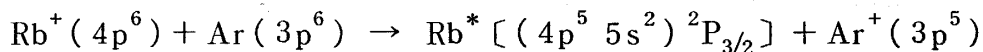
(I) R_{cp} : 状態1と2のポテンシャルカーブの avoided crossing point

$$(II) \quad A = \left. \frac{\partial(\epsilon_1 - \epsilon_2)}{\partial R} \right|_{R=R_{cp}}$$

$$(III) \quad B = \epsilon_1 - \epsilon_2 \Big|_{R=R_{cp}}$$

の3つの値が必要となる。

(ii) 状態相関図を描くために次のような計算を行った。この解析で着目している励起過程は



融合原子極限(核間距離がゼロとなった時)では、 Cs^+ の励起状態になる。融合原子極限(U.A.)と分離原子極限(S.A.)で対称性が保存するように状態が相関するので、今、計算が必要となるのは Cs^+ の4電子励起状態 $\text{Cs}^+(4d^6 5d^2 5f^2)$ と $\text{Cs}^+(4d^8 5d 5f)$ の2つの状態である。

この2つの励起状態のエネルギー準位を配置間相互作用法(Configuration Interaction method: CI法)によって計算し、状態相関図を作成する。

(iii) (ii)で得られたポテンシャルカーブから(I)~(III)の値を求め、(i)の方法で遷移確率を求める。しかし、この遷移確率は衝突径数 b の関数なので、散乱角分布を得るために、第1部第4章 §3で記した古典散乱のモデルを使って、散乱角 θ と衝突径数 b の関係を求める。球対称

和田かおる

ポテンシャルには, Fig. 25 の核間相互作用ポテンシャルを使用する。こうして遷移確率, すなわち励起微分断面積 P を散乱角 θ の関数として表わすことができる。(A. Wada のプログラムは以上のような構成になっている)

 計算結果

(i) 状態相関図の作成

状態相関図の作成に必要なエネルギー準位を計算する際には, H. Aizawa³⁾ が $K^+ - He$ 系で K^+ 及び K の自動電離準位を計算するのに使用した CI 計算のプログラムを使用した。この ATOMIC CI Program は, Prof. F. Sasaki (北大) が IBM の ALCHEMY の計算プログラムを広範囲の原子について使えるように改良したもので, 現在は北大でプログラムライブラリー化されている。しかし, 実際には, 計算の入力データの決め方に経験や工夫が必要である。今回の計算では H. Aizawa, A. Wada の計算結果を参考にして次のような入力データを使った。

Input configurations

reference energy level	upper level	lower level
$Cs^{3+} 4d^6 5d 5f ({}^1P_0)$	$Cs^+ 4d^6 5d^2 5f^2 ({}^1S_0)$	$Cs^+ 4d^8 5d 5f ({}^1P_0)$
$\left\{ \begin{array}{l} 5d 5f \\ 5d 6f \\ 6d 5f \\ 6s 6p \\ 5d 6p \\ 6p 6d \\ 6d 6f \end{array} \right.$	$\left\{ \begin{array}{l} 5d^2 5f^2 \\ 5d^2 6f^2 \\ 6d^2 5f^2 \\ 5d^2 6p^2 \\ 5d^4 \\ 5f^4 \end{array} \right.$	$\left\{ \begin{array}{l} 5d 5f \\ 5d 6f \\ 6d 5f \\ 6s 6p \\ 5d 6p \\ 6p 6d \\ 6d 6f \end{array} \right.$

field operator の展開基底はスレーター型波動関数で一般に

$$\psi_{nl}(r) = N_{nl}(\zeta) r^{n-1} \exp(-\zeta r)$$

である。double ζ 法を用いて, orbital exponent ζ を reference energy level が最低になるように最適化した。その結果を以下に示す。

ζ の値

	s		p		d		f	
1s	53.060	2p	33.194	3d	19.533	4f	3.0000	
1s	33.243	2p	23.805	3d	11.680	4f	0.2500	
2s	27.607	3p	12.193	4d	6.9314	5f	0.4000	
2s	25.958	3p	9.9013	4d	4.1910	5f	0.2000	
3s	13.897	4p	6.8600	5d	2.6000	6f	0.3000	
3s	11.143	4p	4.7194	5d	0.2000	6f	0.1500	
4s	6.7049	5p	3.4772	6d	0.6000			
4s	4.8861	5p	2.0009	6d	0.1500			
5s	3.9110	6p	1.7000					
5s	2.4138	6p	0.4500					
6s	2.1000							
6s	0.5500							

CI 計算の結果, 各準位のエネルギーは

	Total energy (a.u.)	difference (a.u.)
$\text{Cs}^{3+} (4d^6 5d^6 5f)$	-7519.95474888	0.49751374
$\text{Cs}^+ (4d^6 5d^2 5f^2)$	-7520.45226262	9.08068074
$\text{Cs}^+ (4d^6 5d^8 5f)$	-7529.53294336	

以上の結果から状態相関図を作成した (Fig. 36)。図は, 簡略化のために着目している励起状態と始状態以外は省略した。

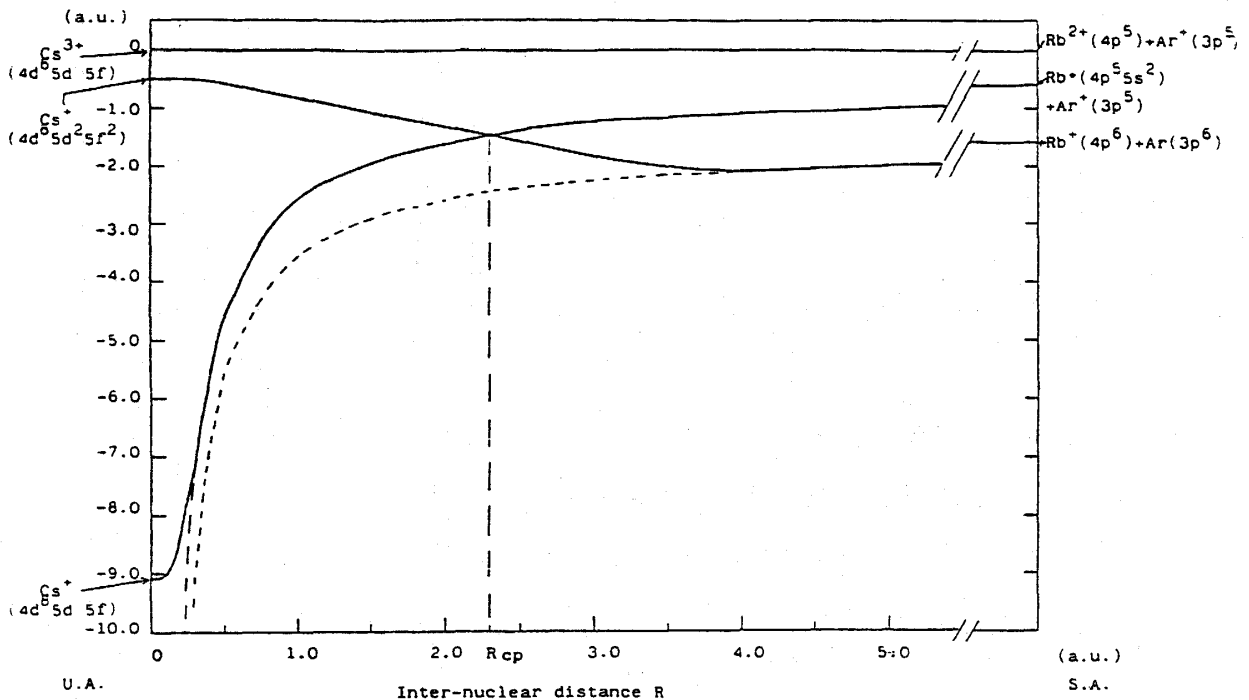


Fig. 36 the state correlation diagram

(ii) 励起微分断面積の計算

実際の計算の方法は, Fig. 36 を参考に計算に必要な parameter (I) ~ (III) を見積り, 計

和田かおる

算を実行し、その結果をもとに励起微分断面積の最大値を与える散乱角が、一軌道近似の場合の散乱角の値に近づくようにパラメータを最適化していく。その結果、最適値は、次のようになった。

(I) $R_{cp} = 2.3$ (a.u.)

(II) $\left. \frac{\partial(\epsilon_1 - \epsilon_2)}{\partial R} \right|_{R=R_{cp}} = 0.7$ (a.u.)

(III) $\Delta\epsilon = 0.02$ (a.u.)

以上の値を入力した時の励起微分断面積の散乱角分布を Fig. 37-a) ~ e) に示す。縦軸は重心系での散乱角である。

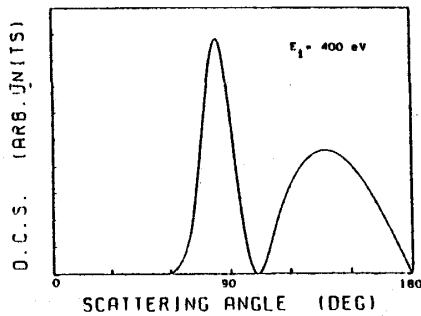


Fig. 37 a)

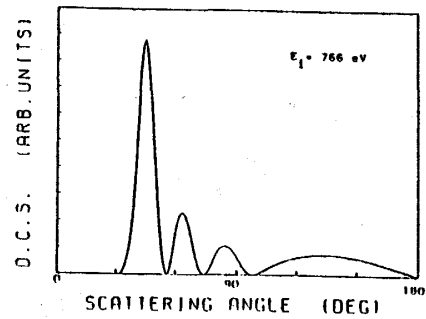


Fig. 37 b)

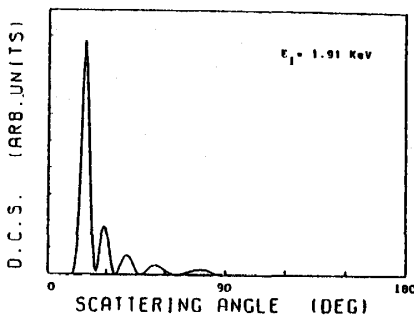


Fig. 37 c)

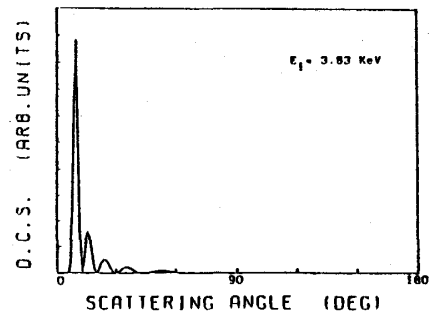


Fig. 37 d)

一軌道近似の結果と比較すると、

θ_1 : 一軌道近似の場合の散乱角 (重心系)

θ_2 : Fig. 37 において励起微分断面積が最大

となる散乱角 (重心系)

E_i (eV)	θ_1 (deg)	θ_2 (deg)	$\theta_1 - \theta_2$ (deg)
400	78.8	83.0	-4.2
766	42.9	45.0	-2.1
1910	18.2	18.9	-0.7
3830	9.35	10.0	-0.7
5740	6.29	6.99	-0.7

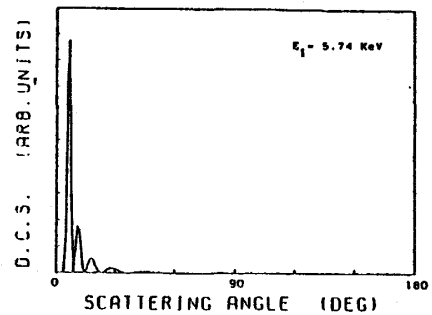


Fig. 37 e)

装置の角度分解能 ($\sim \pm 2 \text{ deg}$) を考慮すればかなり良い結果といえる。

<C> 結論

Fig. 37 からわかるように、第1部第4章 § 3 で予想したように、ある散乱角で励起断面積が鋭いピークをもっている。つまり、ある一つの軌道を通る時の励起が支配的であることを示している。但し、衝突エネルギーが低くなると散乱角の分布が広がっている（後方に）。（Fig. 37 -a, b）しかし、

- ① 大角散乱は、最近接距離が小さい場合におこる。Fig. 36 の状態相関図は着目している始状態と励起状態のみが描いてあるが、実際には、始状態は、核間距離 R の小さいところでもっと高い励起準位へつながる状態と交差している。よって、今着目している励起状態への断面積は大角散乱の励起断面積の一部にすぎないと考えられる。
- ② Fig. 37 の縦軸は、単位立体角あたりの断面積なので

$$d\Omega = \sin\theta \, d\theta \, d\phi$$

であることを考慮すると θ 方向から観測すると実際に観測される断面積は、Fig. 37 の結果に $\sin\theta$ をかけたようになる。よって大角散乱の部分の断面積は実際はもっと小さい。

- ①②より、散乱角分布の広がりは一軌道近似の妥当性に影響を与えない。

また、計算の最適パラメータの値を A. Wada の結果²⁾と比較すると、 R_{cp} が大きく、 $\partial\varepsilon/\partial R$ と $\Delta\varepsilon$ が小さい。これは、両者の状態相関図を比べれば reasonable な相違である。 R_{cp} の値が一軌道近似を使った解析の最適パラメータ R_x の値 ($R_x = 2.3 \pm 0.1 \text{ (a.u.)}$) と一致している。

故に、一軌道近似が本実験のような質量の重い粒子間の衝突（相対速度の遅い衝突）では、妥当な近似である。

参 考 文 献

- 1) A. Yagishita, Thesis (Sophia University, 1979)
- 2) A. Wada, 上智大学修士論文
「低速アルカリ金属イオンと希ガスの衝突における放出電子スペクトルの研究」(1982)
- 3) H. Aizawa, 上智大学修士論文「低エネルギーアルカリ金属イオンと希ガスの衝突により励起される自動電離状態の測定およびエネルギー準位の CI 計算」(1982)
- 4) M. Furune, 上智大学修士論文「 $\text{Li}^+ - \text{He}$ の衝突における準分子自動電離の研究」

(1982)

- 5) A. Gleizes, P. Benoit-Cattin, A. Bordenave-Montesquieu and H. Merchez, J. Phys. **B9**, (1976), 473
- 6) R. B. Barker and H.W. Berry, Phys. Rev. **151**, (1966), 14
- 7) A. Bordenave-Montesquieu, A. Gleizes and P. Benoit-Cattin, Phys. Rev. **A25**, (1982), 245
- 8) R. Morgenstern, A. Niehaus and G. Zimmermann, J. Phys. **B13**, (1980), 4811
- 9) K. Jost J. Phys. **E12**, (1979), 1006
- 10) W. Lichten, Phys. Rev. **131**, (1963), 229
- 11) U. Fano and W. Lichten, Phys. Rev. Lett. **14**, (1965), 627
- 12) M. Barat and W. Lichten, Phys. Rev. **A6**, (1972), 211
- 13) A. Yagishita, 13th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collision, Invited Papers, (1983) (will be published)
- 14) Y.S. Gordeev and G.N. Ogurtsov, Sov. Phys. JETP **33**, (1971), 1105
- 15) R.E. Weber and L.F. Cordes, Rev. Sci. Inst. **37**, (1966), 112
- 16) 原伸宣, 高橋浩編「ゼオライトー基礎と応用」, 講談社
- 17) T. Goto, 上智大学卒業論文, 「熱放出型イオンソースの活性化における諸特性について」 (1983)
- 18) J. Frayar and J. McConkey, J.Phys. **B9**, (1976), 619
- 19) L.O. Werme, T. Bergmark, and K.Siegbahn, Physica Scripta, **6**, (1972), 141
- 20) S. Ohtani, H. Nishimura and H. Suzuki, Phys. Rev. Lett. **36**, (1976), 863
- 21) R. Morgenstern and M. Trainer, 9th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Abstracts of Papers, (1975), 872
- 22) M. Valin and P. Marmet, J. Phys. **B8**, (1975), 2953
- 23) V. Pejcev, D. Rassi, K. J. Ross, and T.W. Ottley, J. Phys. **B10**, (1977), 1653
- 24) V. Pejcev and K.J. Ross, J.Phys. **B10**, (1977), 2935
- 25) G. Gerber and A. Niehaus, J. Phys. **B9**, (1976), 123
- 26) R. Morgenstern, A.Niehaus and U.Thielman, J. Phys, **B10**, (1977), 1039

- 27) F. Koike, A. Yagishita and M. Furune, Phys. Rev. Lett. **48**, (1982) 735
- 28) M. Furune, F. Koike and A. Yagishita, J. Phys. **B16**, (1983) 2539
- 29) K. Jost, J. Phys. **E12**, (1979) 1001
- 30) E. Harting and F.H. Read, *Electrostatic Lenses*, Amsterdam Elsevier,
(1976)
- 31) F. Koike, Atomic collision research in Japan, Progress Report, 43, (1980)
- 32) I. Miyashita, 上智大学卒業論文「イオン-原子衝突実験装置の改造とその装置特性」
(1984)