

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05594

研究課題名(和文) 超低エネルギー電子-水素分子衝突で発現した新たな散乱現象の研究

研究課題名(英文) Anomalous behavior of the cross sections for electron scattering from hydrogen molecule in the ultra-low-energy region

研究代表者

北島 昌史 (Kitajima, Masashi)

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：20291065

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：超低エネルギーの電子-分子衝突では、電子のde Broglie波長が極めて長くなり、さらに衝突時間も分子の振動周期程度まで長くなる。このため入射電子と核の運動が強く相互作用し、特異的な散乱現象が期待される。

本研究では、世界で初めて10 meVを下回る衝突エネルギーにおけるH₂および同位体であるHD、D₂の超低エネルギー電子衝突断面積の測定し、特異的な散乱現象を見出した。また、水素分子で得られた興味深い結果と比較するために、酸素分子の超低エネルギー電子衝突断面積の測定・解析を行った。これらの結果、超低エネルギー電子-分子衝突における特異な散乱過程を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水素分子は最も簡単な分子であり、電子-水素分子衝突は量子力学における散乱理論モデルの検証という点で最も優れた系である。このような最も基礎的な系で、超低エネルギーにおいては、これまで広範な系に適用されてきた理論モデルの破綻が明らかになったことは重要である。

さらに、電子-原子・分子衝突により引き起こされる過程は、自然界から身の回りの製品に至るまで広く応用され、広範な分野の基礎過程である。特に、室温以下のエネルギーに対応する超低エネルギー電子衝突全断面積は不足しており、本研究による研究は極めて重要な物理量を与えるものである。

研究成果の概要(英文)：The scattering of low-energy electrons by atoms and molecules has been the subject of extensive experimental and theoretical investigations. When the collision energy is very low, the de Broglie wavelength of electrons becomes very much greater than the typical size of an atom or a molecule. In this ultra-low-energy regime, collision time becomes comparable to the time scale of molecular vibration and rotation which may also lead to an interesting physical phenomena. In this study, we measured the total cross sections for electron scattering from H₂, HD, and D₂ at very-low energies where effect of the molecular-motions such as vibration and rotation of hydrogen molecules may show up in the total cross sections.

The measured total cross sections for electron scattering from H₂, HD, and D₂ in the energy region of 10 meV to 20 eV showed very interesting isotope effects especially at the very-low energy region below 100 meV.

研究分野：原子・分子科学

キーワード：超低エネルギー電子衝突 衝突断面積 放射光

1. 研究開始当初の背景

低エネルギー電子-原子・分子衝突は、電子の de Broglie 波長が長いことにより量子力学的効果が顕著になる。また、粒子間の支配的な相互作用が既知であることから、量子力学における散乱問題の代表的なモデルとして広く研究されてきた。特に、近年では標的原子・分子内の電子相関まで考慮した精密な理論モデルによる計算の取り組みや、種々の分子への拡張を前提とした汎用な計算方法の開発が広く行われ、実験との比較により多体系の散乱理論の検証が行われている。ここで重要な物理量が衝突断面積である。

本研究グループでは、近年、放射光を用いて超低エネルギー電子ビームを生成する独自の手法「しきい光電子源」を開発し、従来の熱フィラメントを電子源とする手法では極めて困難であった 100 meV をはるかに下回る超低エネルギー電子衝突全断面積の測定を、極めて高い分解能で成功させ、理論モデル検証のベンチマークとなるデータを公表してきた。これらの成果により、例えば電子-原子衝突では、図 1 に示すように、これまで信頼されてきた、Ramsauer-Townsend 極小として知られている量子力学的効果を正しく再現できる理論モデルであっても、衝突エネルギー 100 meV 以下の超低エネルギー領域においては信頼できないことが露わにした。このことは、理論において原子の大きな分極率により系の散乱状態の波動関数が正しく記述出来ていないためなのか、相対論的效果によるものか、明らかになっていない。すなわち、電子衝突断面積の理論において有限系の少数多体問題の取り扱いに解決すべき本質的な課題が残されている。

2. 研究の目的

低エネルギー電子-分子衝突過程は、分子内の核の運動、すなわち振動・回転の自由度が存在するという点で、有限系の少数多体問題の取り扱いを検証するうえで、電子-原子衝突以上に興味深い系となる。一般に電子衝突過程は非常に速いため、散乱電子の運動は分子の振動・回転運動に対して断熱的に追従する。その結果、電子衝突断面積は、原子核を固定して算出した散乱振幅を始状態・終状態の分子振動・回転の波動関数で平均したもので表す Fixed-Nuclei (FN) 近似を用いて理解されてきた。一方で断熱近似が破れる条件における分子の振動・回転の効果は、未だに良く分かっていないことが多い。

断熱近似が破れるのは、衝突時間が長くなるときである。例えば、電子の衝突エネルギーを 10 meV まで下げることができたとすると、衝突時間は 10^{-14} s 程度となる。この衝突時間は、分子振動の時間スケールとほぼ同じオーダーであり、もはや電子衝突は分子振動に対して断熱的でない。弾性散乱断面積において、断熱近似の破綻に伴いどのような形で分子振動・回転の影響が現れるかは良く分かっていないが、衝突断面積に何らかの効果が現れることが期待される。本研究では、 H_2 および同位体 D_2 として HD について超低エネルギーにおける電子衝突全断面積を測定し、核の運動の効果を探ることを目指した。これらの分子は原子核の質量が小さく、振動・回転運動が速いため、断熱近似の破れにおける分子の振動・回転の効果を観測するには最適であるためである。

ところで、衝突時間は衝突エネルギーが低くなるとともに長くなるが、入射電子が分子に一時的にトラップされる共鳴散乱によっても長くなる。ここで言う共鳴散乱とは、入射電子が標的分子に一時的に束縛されることで短寿命の負イオンを形成する現象である。酸素分子では、衝突エネルギー 1.5 eV から 100 meV を下回るエネルギー領域にかけて、 $^2\Pi_g$ 形状共鳴が存在することが知られている。この共鳴の寿命は負イオンの振動・回転周期に比べて十分に長いと考えられており、電子-分子衝突における衝突中の分子の振動・回転運動が電子衝突断面積に与える影響の解明に重要な系である。そこで、本研究では、電子-分子衝突過程に現れる分子の振動・回転運動の効果を探ることを目的とし、水素分子だけでなく、酸素分子を標的とした超低エネルギー電子衝突実験も行った。

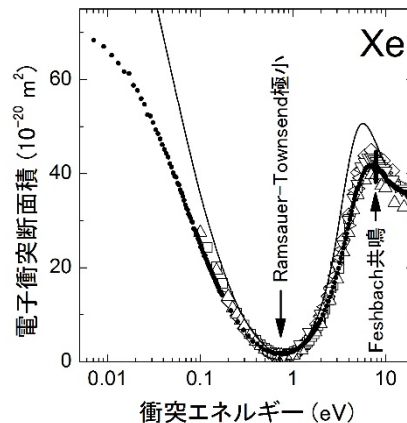


図 1. Xe の電子衝突断面積は量子効果により 0.8eV 近傍で断面積がほぼ 0 になる (Ramsauer-Townsend 極小)。0.1eV 以下の断面積値および 10eV 近傍の鋭い構造 (Feshbach 共鳴) は応募者が初めて測定に成功した (●)。相対論まで考慮した理論計算 (—) ですら、超低エネルギー領域の断面積計算は困難なのが現状である。

すなわち、電子衝突断面積の理論において有限系の少数多体問題の取り扱いに解決すべき本質的な課題が残されている。

3. 研究の方法

本研究では、高エネルギー加速器研究機構・放射光実験施設 KEK-PF の高分解能真空紫外分光ビームライン BL-20A からの放射光を用いて実験を行った。図 2 に示すように、実験装置は大きく分けて、光イオン化セル、電子レンズ系、衝突セル、電子検出器の 4 つの要素から構成されている。光イオン化セルに充填した Ar にその第一イオン化ポテンシャルに単色化された放射光を照射する。Ar の光イオン化により放出されたエネルギーがほぼ 0 eV のしきい光電子を浸み出し電場により捕集し、静電レンズ系 (1st lens) でビームに整形する。浸み出し電場法はしきい光電子分光測定で広く用いられている手法であり、非常に緩やかな電位勾配によりゼロエネルギーの電子のみを選択的に捕集することが可能である。1st lens により整形した電子ビームを 2nd lens で目的のエネルギーまで加減速し、標的分子を充填した衝突セルに照射する。標的分子と衝突せずに衝突セルを透過した電子ビームを 3rd lens を通して電子検出器で検出し、次の透過減衰法に従い衝突エネルギーの関数として電子衝突全断面積の絶対値を決定する。実験装置は、真空チャンバー中の二重の磁気シールド内に組み込まれている。また、真空チャンバー内は、光イオン化セルを含む区画と静電レンズ系・衝突セル・電子検出器を含む区画の 2 つに分けられており、それぞれの区画で差動排気を行うことで、標的分子が光イオン化セル内に流れ込むことを防いでいる。

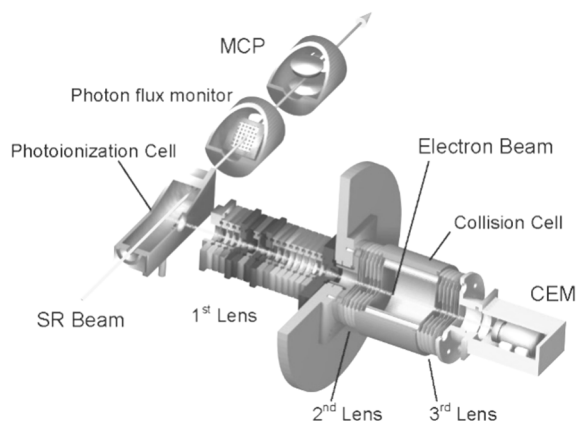


図 2. 超低エネルギー電子衝突実験装置の概略図

しきい光電子源では、しきい光電子と浸み出し電場を組み合わせることにより、高分解能・低エミッタンスの電子ビームを得ることができる。また、しきい光電子源は、標的分子存在下での電子ビームの安定性の面でもフィラメントを始めとする一般的な熱電子源に比べて優れている。透過減衰法では、電子衝突全断面積を決定するために、標的分子が存在するときの透過電子ビーム強度と存在しないときの透過電子ビーム強度を同一の実験条件で測定する必要がある。フィラメントからの熱電子放出の状態は、フィラメント近傍の標的分子数がわずかでも変動すると大きく変化し、常に問題となってきた。本研究で標的とする水素分子は軽いため拡散が速く、差動排気を用いてもフィラメント近傍への水素分子の侵入を防ぐことは難しいほか、電極への吸蔵の問題もあるため、上記問題が顕在化しやすい。一方、しきい光電子源では、光イオン化セル内に標的分子がわずかに侵入してもその影響は無視でき、熱電子源の場合に比べて高い精度での電子衝突全断面積の測定が可能である。

しきい光電子源では、しきい光電子と浸み出し電場を組み合わせることにより、高分解能・低エミッタンスの電子ビームを得ることができる。また、しきい光電子源は、標的分子存在下での電子ビームの安定性の面でもフィラメントを始めとする一般的な熱電子源に比べて優れている。透過減衰法では、電子衝突全断面積を決定するために、標的分子が存在するときの透過電子ビーム強度と存在しないときの透過電子ビーム強度を同一の実験条件で測定する必要がある。フィラメントからの熱電子放出の状態は、フィラメント近傍の標的分子数がわずかでも変動すると大きく変化し、常に問題となってきた。本研究で標的とする水素分子は軽いため拡散が速く、差動排気を用いてもフィラメント近傍への水素分子の侵入を防ぐことは難しいほか、電極への吸蔵の問題もあるため、上記問題が顕在化しやすい。一方、しきい光電子源では、光イオン化セル内に標的分子がわずかに侵入してもその影響は無視でき、熱電子源の場合に比べて高い精度での電子衝突全断面積の測定が可能である。

本実験手法では、光イオン化セルと衝突セルの電位差により衝突エネルギーを決定するが、光イオン化セルの電位は、浸み出し電場やイオンによる空間電荷効果、水素分子の吸蔵などに起因する接触電位差の存在により正確な値を求めるのが困難である。分子の電子衝突全断面積上にはエネルギー較正の基準になるような、エネルギーが精度良く知られた構造はあまり存在しない。そこで本研究では、電子衝突全断面積上にエネルギーが精度良く知られている共鳴構造の存在する Kr を用いて衝突エネルギーの較正を行った。このようにして決定したエネルギー較正值の誤差は、いずれの分子でも 10 meV 以下と従来一般的な手法と比べて極めて小さい。

4. 研究成果

水素分子の電子衝突過程に関する研究は、実験・理論の両面に渡り、非常に古くから行われている。特に 1980 年代以降の広く行われた実験により概ね 20 eV から 1 eV 程度のエネルギー範囲において、その電子衝突断面積は確定している。また、このエネルギー範囲では FN 近似による理論計算も良い結果を与えている。本研究においても、このエネルギー領域で測定した H₂ の電子衝突断面積は、これまで知られていた結果と一致した。一方、本研究により得られた D₂ の電子衝突断面積には、明らかな同位体効果が存在することが見出された。これまで H₂ と D₂ の電子衝突断面積は変わらないと考えられてきたが、本研究により明確な同位体効果があることが明らかになった。この同位体効果は、3 eV 近傍で顕著であり、水素の共鳴散乱と関係していると考えられる。

本研究で目的とした超低エネルギー領域についての電子衝突全断面積の測定では、さらに興味深い結果が得られた。100 meV を下回るエネルギー領域において、H₂ と D₂ の電子衝突全断面積と HD の電子衝突全断面積との間に奇妙な同位体効果が現れたのである。この同位体効果による電子衝突断面積の差は衝突エネルギーが小さくなると大きくなり、10 meV においては電子衝突

断面積の差は $1.0 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ にも達する。この同位体効果は、本研究により、はじめて見出すことができたものである。

本研究では得られた、水素分子の低エネルギー極限における電子衝突断面積について、これまで低エネルギー極限で有効とされてきた修正有効距離理論に基づくフィッティングを行った結果を図 3 に示した。修正有効距離理論は、2 粒子間の相互作用を散乱長で表す有効長理論に電子-原子・分子衝突で現れる長距離性の分極ポテンシャルを取り入れたものであり、比較的球対称に近いポテンシャル場を有する水素分子については、良いモデルであると考えられてきた。ところが、図 3 に示すように、超低エネルギー領域において、修正有効距離理論が成立しないことが明らかになった。超低エネルギー電子-分子衝突では、分子系における原子核の運動と散乱過程の相関が強調されることが見出されているが、ここで現れた現象は、これまで知られている現象では説明できない、新しい現象である。修正有効距離理論の破綻は、本研究の当初の目的であった超低エネルギー電子衝突過程への分子の振動・回転運動の影響に起因するものであり、断熱近似の破れが露わになったものと考えられる。

本研究では、電子-分子衝突過程に現れる分子の振動・回転運動の効果を探ることを目的とし、水素分子だけでなく、酸素分子を標的とした超低エネルギー電子衝突実験を行った。本研究で測定した酸素分子の電子衝突断面積と、これまでの理論による断面積との比較を図 4 に示した。本研究で得られた酸素分子の電子衝突全断面積は、低エネルギー極限から 1.5 eV 程度まで急速に増加する。その後、1.5 eV から 7 eV まで緩やかに、7 eV から 11 eV までは傾きを増して断面積値が増大した後、11 eV を中心としたブロードなピーク構造を形成する。このピーク構造は短寿命の共鳴に由来するものと考えられている。14 eV から上のエネルギー領域では、本研究で得た電子衝突全断面積はほぼフラットである。

一方、理論計算と比較すると、7 eV 以下のエネルギー領域で、計算による断面積が実験結果よりも遥かに大きくなっている。この不一致は、現代の散乱理論計算の限界を示しているものと考えられる。この不一致の原因について、計算において分極効果の大部分を無視している点が問題であることが指摘されているが、現在のところこれを改善することには成功していない。

本研究で得られた酸素分子の電子衝突断面積は 1.5 eV 以下の領域にピークの系列が観測されているが、これが酸素分子の $^2\Pi_g$ 形状共鳴による構造である。本研究では、この構造を精密に解析することで、この形状共鳴の情報を得ることに成功した。この共鳴の寿命幅は、長らく議論になっていたものであり、その値は数 μeV 程度から数 10 meV 以上まで 10^3 以上に亘る値で揺らいでいた。本研究によりその寿命幅は 10 μeV 程度であることを明らかにし、議論を決着させることが出来た。また、これらの解析から、酸素分子の共鳴散乱においては局所複素ポテンシャルに基づく分子の振動・回転運動の取り扱いが有効であることが明らかになった。

なお、本研究では、これまで直接的に得られていなかった、100 meV 以下の電子衝突全断面積を初めて実験的に明らかにするとともに、従来の実験値の間に不一致が見られた 1~5 eV の断面積値を確定させ、2 eV 以下に存在する共鳴の構造を精密に得ることが出来ている。本測定での電子ビームのエネルギー幅は 7 meV 程度、衝突エネルギーの精度は 5 meV 程度であり、断面積絶対値の誤差と合わせて、従来の実験とは比較にならない精密な実験となっている。このような、精密なデータを得ることが出来たため、この測定結果を用いて、 $^2\Pi_g$ 形状共鳴の共鳴幅を確定させることも可能になった。ここで得られた電子衝突断面積は、今後の理論研究のベンチマー

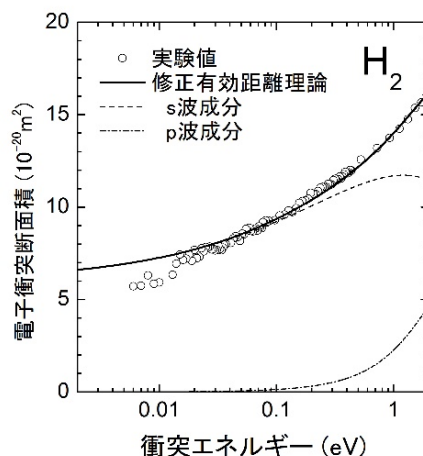


図 3 本研究で得られた超低エネルギーにおける H_2 分子の電子衝突断面積 (○) と、修正有効距離理論によるフィット (—, ---, - · -)。20 meV 以下の超低エネルギー領域は、既存のモデルでは説明できないことが明らかになった。

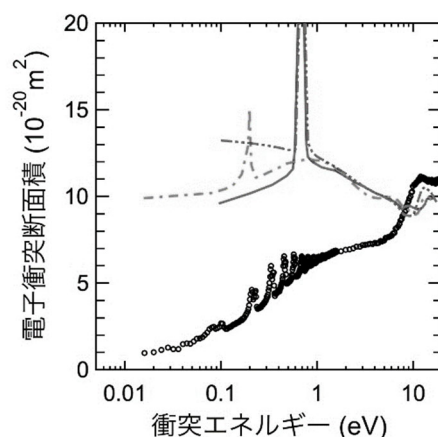


図 4 本研究で得られた酸素分子の電子衝突断面積 (○) と FN 近似に基づく理論による断面積との比較。理論計算は、弾性散乱断面積の結果であるが、いずれも 10 eV 以下において、実験による全断面積を大きく上回っている。本研究による実験結果には、形状共鳴の構造が明確に観測されており、超低エネルギーでの共鳴散乱の情報が明らかになった。

クとなるデータであるとともに、大気科学、放射線作用をはじめとする種々の応用過程の重要な基礎データである。

本研究では、 H_2 および同位体の D_2 そして HD について超低エネルギーにおける電子衝突全断面積を測定し、核の運動の効果を探ることを目指した。これらの分子は原子核の質量が小さく、振動・回転運動が速いために、断熱近似の破れにおける分子の振動・回転の効果を観測するには最適であると考えたためである。さらに、本研究では、共鳴散乱を経由することで分子の振動・回転運動周期ほどに電子の衝突時間が伸びた系との比較を目的とし、酸素分子を標的とした超低エネルギー電子衝突の研究も行った。これらの研究の結果、電子-酸素分子衝突における共鳴散乱においては、局所複素ポテンシャルに基づく分子の振動・回転運動の取り扱いが有効であることが明らかになった。一方で、電子-水素分子衝突においては直接散乱そのものに、従来用いられてきた近似が破綻する、散乱現象が発現することが明らかになった。これこそが、電子衝突過程と分子の振動・回転との相関に起因するものであると考えられる。

水素分子は最も簡単な分子であり、電子-水素分子衝突は量子力学における散乱理論モデルの検証という点で最も優れた系である。このような最も基礎的な系で、これまで広範な系に適用されてきた理論モデルの破綻が明らかになったことは、本研究の重要な成果である。また、超低エネルギー電子衝突において散乱電子と分子の振動・回転が強く結合するような、これまで認識されてこなかった衝突ダイナミクスが発現することを本研究は明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Okumura T, Kobayashi N, Sayama A, Mori Y, Akasaka H, Hosaka K, Odagiri T, Hoshino M, Kitajima M	4. 巻 52
2. 論文標題 Total cross-section for low-energy and very low-energy electron collisions with O ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 035201-1 ~ 11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1088/1361-6455/aaf48d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 4件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 M Kitajima, T. Ejiri, T. Okumura, D. Itoh, K. Hosaka, T. Odagiri and M. Hoshino
2. 発表標題 Low-energy and Very-low-energy total cross sections for electron collisions with small molecules
3. 学会等名 XX International Workshop on Low-Energy Positron and Positronium Physics, XXI International Symposium on Electron-Molecule Collisions and Swarms (POSMOL2019)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masashi Kitajima
2. 発表標題 High-resolution measurements of total cross section for very-low-energy electron collisions with molecules
3. 学会等名 International Workshop on Atomic and Molecular Data for Plasma Applications, Satellite Workshop of XXXIV ICPIG & ICRP-10（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江尻智一, 奥村拓馬, 伊藤大智, 穂坂綱一, 小田切丈, 星野正光, 北島昌史
2. 発表標題 高分解能超低エネルギー電子ビームによるCH ₄ およびNH ₃ の電子衝突全断面積測定
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江尻智一, 奥村拓馬, 伊藤大智, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 しきい光電子源を用いた超低エネルギー電子-CH ₄ , NH ₃ 衝突全断面積の測定
3. 学会等名 2018量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江尻智一, 奥村拓馬, 伊藤大智, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 CH ₄ , NH ₃ を標的とした高分解能低エネルギー電子衝突全断面積測定
3. 学会等名 原子衝突学会第43回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奥村拓馬, 江尻智一, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 水素分子の超低エネルギー電子衝突全断面積に現れる同位体効果
3. 学会等名 原子衝突学会第43回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奥村拓馬, 江尻智一, 赤坂博史, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 水素分子の超低エネルギー電子衝突全断面積における同位体効果
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Okumura, T. Ejiri, K. Hosaka, M. Kitajima, T. Odagiri and M. Hoshino
2. 発表標題 Very-low energy electron collision with H ₂ , HD, and D ₂
3. 学会等名 13th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 北島昌史
2. 発表標題 放射光の二次ビーム利用：超低速電子ビームを用いた電子 - 分子衝突実験
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奥村拓馬, 赤坂博史, 江尻智一, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光, 田中大
2. 発表標題 しきい光電子源を用いた超低エネルギー電子-HD衝突全断面積の測定
3. 学会等名 量子ビームサイエンスフェスタ, 第35回PFシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奥村拓馬, 赤坂博史, 江尻智一, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 HDの超低エネルギー電子衝突全断面積
3. 学会等名 日本物理学会 第73回年次大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

北島研究室

<http://www.chemistry.titech.ac.jp/~kitajimai/index.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----