

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K21862

研究課題名（和文）電子-分子衝突で生成する中性ラジカルの革新的計測法の開発

研究課題名（英文）Development of a novel method for investigating radical species produced by electron-molecule collisions

研究代表者

渡邊 昇（Watanabe, Noboru）

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：90312660

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：プラズマ中での電子-分子衝突で誘起される電子励起を引き金として放出される高活性解離化学種は、半導体微細加工に広く利用されている。本研究では、解離フラグメントの状態分析法の開発と生成機構解明に取り組んだ。中性ラジカルに対する運動量イメージングの実現を目指すとともに、非弾性散乱電子と解離イオンの同時計測実験による解離性電子衝撃イオン化過程の研究や電子励起の理論研究を行った。対称分子からの解離イオン放出でありながら、その放出方向が非対称となる特異な現象を見出すなどの成果を得ている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、電子-分子衝突で放出される高活性ラジカルの分析技術の開発を目指すとともに、中性解離種の計測に先行した解離イオンと散乱電子の同時計測実験により、工業的に重要な六フッ化硫黄などの分子に対する解離性イオン化の詳細な調査を行った。また、ハロゲン含有分子を対象とした電子励起断面積の理論研究からは、四塩化炭素の価電子励起を引き金とした上層大気中でのCl生成において非対称伸縮振動が大きな影響を持つことを明らかにするなど、大気環境への影響理解にも資する知見が得られている。

研究成果の概要（英文）：Dissociative chemical species which are released in plasmas as a result of electronic excitation induced by electron collisions in plasmas play a central role in semiconductor microfabrication. The purpose of this study is to develop a method for state analysis of dissociated fragments and to elucidate the formation mechanism. In addition to attempting the realization of momentum imaging for neutral radicals, we have conducted scattered electron-fragment ion coincidence measurements to investigate the electron-induced dissociative ionization and also performed theoretical studies on electronic excitation of molecules. Our findings revealed a peculiar phenomenon in which dissociative ion emission from a symmetric molecule is asymmetric in the direction of emission.

研究分野：原子・分子物理

キーワード：電子散乱分光 解離化学種 電子励起

1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクス産業の急速な進歩にともなうデバイスの高集積化に対する要請から、プラズマエッチングを利用した半導体微細加工の精密化に対する要求は日々高度になっている。ハロゲン原子を含む CF_4 などの分子(エッチングガス)がプラズマ内で電子と衝突すると高活性な解離フラグメントが放出され、それが Si 基板上の SiO_2 層を削り取ることで微細加工が成される(図 1)。加工の精密化にはプラズマの高度な制御やエッチングガスの選定が必須であり、それにより加工形状やエッチングレートが変化する。このため、プラズマ制御に必要な種々の反応素過程に対する散乱断面データの蓄積が進められてきた。様々なエッチングガスを対象に電子散乱断面が測定されるとともに、電子衝突後の後続緩和過程で生成する化学種の収量測定なども報告されてきている。特に電子衝突で生成する各種イオンに対しては、電場による操作を用いた荷電粒子計測技術の利用により、その収量や運動エネルギー分布が高精度で測定できるようになってきた。

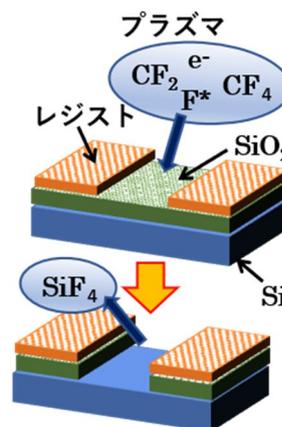


図 1 プラズマエッチング

しかしながら、 SiO_2 層との反応に主として関与しているのは、 F^* (フッ素原子ラジカル)などの電的に中性な高活性ラジカルである。プラズマ中では様々な中性ラジカル種が生じており、個々の化学種の生成確率や電子状態および運動エネルギー分布が SiO_2 層との反応を大きく左右しているが、電場による操作が不可能な中性ラジカルの計測は難しい。ラジカルから放出される蛍光をとらえる手法や、冷却基板上に堆積した Xe への衝突で放出される光を検出する手法[1]などが提案されているものの、検出効率が低く適用できる化学種にも制限がある。このため、基板加工を担う中性ラジカルの生成に関するデータは非常に限られており、十分とは言えない。また、ラジカル生成は電子衝突で誘起された電子励起状態からの結合解離に起因しており、生成機構の理解にはエッチングで用いられる分子の励起電子構造に関する正確な知見が必要となる。しかし、これまで報告された研究の間にはしばしば不整合が見られ、その解消には更なる研究が不可欠である。

我々は、高速電子の非弾性散乱過程を利用して分子内の電子運動を探る電子非弾性散乱分光研究に取り組んできた。その中で、電子衝突でプラズマ中に生成される中性ラジカルが半導体微細加工で重要な役割を果たしていること、また、その重要性にもかかわらず中性ラジカル生成に対する測定手法の発展が遅れており、十分なデータ蓄積が成されていないことに気がついた。この問題に対し、我々が近年開発を進めてきた解離イオン同時計測電子エネルギー分光(解離イオン同時計測 EELS)法で用いた技術の発展的利用が有効であるとの着想を得た。解離イオン同時計測 EELS では、散乱電子と同時計測するイオンの放出角度方向から標的分子の配向方向を特定することで、分子座標系において電子散乱分光を行う[2]。計測電子数に比べて桁違いに多く発生するイオンの中から検出電子と対になるものを確実に同定するため、パルス電子線やそれと同期したパルス電場によるイオン操作、そしてイオンの運動量イメージングを駆使している。これら技術基盤を念頭に考察を深めた結果、レーザーイオン化法を新たに導入した装置開発により、電子衝撃で生成する中性ラジカルの詳細分析が可能になるとの見通しを得た。これに加え、標的分子内の電子励起断面を高精度で計算する我々独自の理論計算法を組み合わせれば、中性化学種生成の機構解明が可能となる。以上の考察に基づき、本研究課題の提案に至った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、電子-分子衝突によって生成する高活性な中性解離フラグメントの状態分析を行う新規研究法を開発することにある。これにより、半導体基板加工に広く用いられるプラズマエッチングで重要な役割を果たす中性解離フラグメントに関し、その生成機構や生成効率および内部状態分布を決定する手法として確立する。

3. 研究の方法

本研究の装置開発で基礎となる解離イオン同時計測 EELS 装置[3]は、主にパルス電子銃、エネルギー分散型電子分析器および運動量イメージングイオン分析器より構成される。標的分子により特定の角度方向へ散乱された電子を選別し、半球型アナライザーでエネルギー分散させた後、二次元検出器で計測する。散乱電子が検出されると直ちに衝突領域へパルス電場を印加し、生成イオンをイオン分析器へ引き込む。分析器終端に位置する二次元検出器へ到達したイオンの初期エネルギーと運動量は、飛行時間と検出器上への到達位置により決定できる。散乱電子と解離イオンとの同時計測データにより、散乱条件に応じたイオン収量や励起エネルギーに依存した解離イオンの運動エネルギー分布が得られ、電子誘起解離性イオン化過程の詳細な研究が行える。

本研究では、上記装置で用いるイオン運動量イメージングにレーザーイオン化法を組み合わせることで、電子衝突で生成した中性解離フラグメントの電子状態分析および運動エネルギーの測定の実現を目指す。本測定法では、まず(1)パルス電子線を試料ガスと反応領域で交差させる(図2)。パルス電子線通過後の反応領域には、励起分子の緩和で生じた種々の中性ラジカル R^* に加えて各種イオンも混在するため、(2)衝突領域へパルス電場を印加してイオンを取り除く。その後、紫外レーザーを反応領域へ照射し、(3)共鳴二光子イオン化により中性ラジカル R^* をイオン化する。二光子吸収は二次の摂動過程であり、経過する中間状態が始状態から一光子分エネルギーが高い共鳴条件でイオン化確率が劇的に増大する。この性質を利用し、測定したい化学種の共鳴条件に合致するようレーザー波長を調整することで、状態選別が行える。さらに、レーザー照射と同時に印加する(4)パルス電場によりイオン化した中性ラジカル R^+ を運動量イメージング型のイオン分析器内へ引き込む。全立体角方向へ放出された解離フラグメントを全て捕集するため高い効率での測定が行え、さらに、運動量イメージング法によりラジカルの運動エネルギー分布も決定できる。

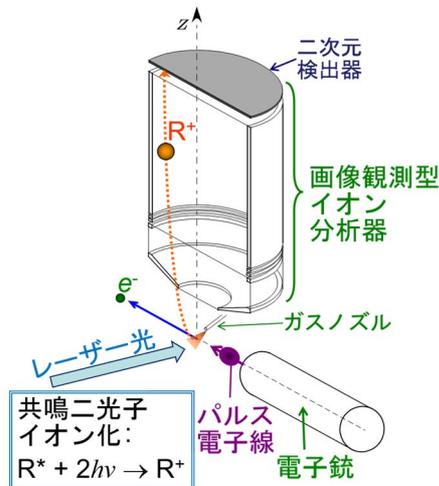


図2 装置模式図

これら実験研究に加え、中性解離種生成の引き金となる電子励起の理論研究を行った。入射電子エネルギーが ~ 1 keV を超える高エネルギー条件においては一般に Born 近似が成り立ち、電子散乱断面積は次式で定義される一般化振動子強度 (GOS) に比例する。

$$f(K) = \frac{1}{4\pi} \frac{2E_{n0}}{K^2} \int |\langle \Phi_n | \sum_j \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j) | \Phi_0 \rangle|^2 d\Omega_K \quad (1)$$

ここで、 Φ_0 と Φ_n は標的始状態と終状態の波動関数、 r_j は j 番目の電子の座標を意味している。特に移行運動量 K が 0 となる前方散乱の条件において GOS は光学的振動子強度 (OOS) に一致し、光吸収実験と等価な情報を与える。四塩化炭素やヒドロフルオロカーボンなどに対する GOS の高精度計算を実施し、電子励起バンドの曖昧さない帰属や、電子励起を経由する結合解離に対する分子振動効果を調べた。

4. 研究成果

(1) 六フッ化硫黄の電子衝撃イオン化解離の研究

六フッ化硫黄 (SF_6) は半導体微細加工におけるエッチングガスや高電圧トランスの絶縁ガスとして工業的に広く用いられており、その実用上の重要性から電子衝突で誘起される励起・イオン化および後続解離過程に関する詳細な知見が求められてきた。さらに、本分子のイオン化スペクトルには形状共鳴による特異なバンドが現れるため、分子分光の観点からも興味深い。そこで本研究では、散乱電子と解離イオンを同時計測する解離イオン同時計測 EELS を使い、 SF_6 の電子衝撃イオン化解離を調査した[4]。また、 SF_6 は中性解離種の測定対象として想定している分子であるため、解離イオンの検出実験を通して、レーザー照射で電離させる中性解離種の計測に向けた測定条件の検討も行っている。

本実験より、移行運動量の増加に伴いイオン化解離の分子方向依存性が急激に減ることが示され、高次多重極相互作用による電子衝撃イオン化の立体ダイナミクスが光イオン化とは全く異なることが明らかになった。更に、より詳細な解析から SF_6 のイオン化解離機構の解明を試みている。 SF_6 より生じた SF_5^+ と SF_4^+ の速度分布を図4に示す。これら二つの解離種は異なる親イオン状態を経て放出されたにも拘わらず、両者の速度分布は似通っていた。このことから、 SF_4^+ の生成において、 SF_6^+ が高速に内部転換した後に逐次的に二つの F を放出していることがわかる。以上の結果は、散乱電子と解離イオンの同時計測測定が電子衝突で生成する分子イオンの崩壊機構を解明する上で強力な実験手法であることを示している。

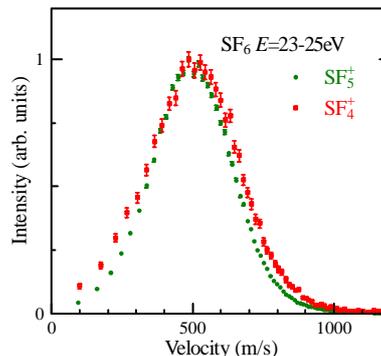


図3 SF_6 の解離性イオン化で生成した SF_5^+ と SF_4^+ の速度分布

(2) 四塩化炭素の解離性価電子励起の研究

紫外および真空紫外光の吸収による四塩化炭素 (CCl_4) の価電子励起は、オゾン層破壊に関与する Cl 生成のトリガーとして興味を集め、これまで多くの分光研究が行われてきた。しかしその重要性にも拘わらず、本分子の価電子励起に対する高精度 *ab initio* 計算は報告されていない。

このため、観測された励起バンドの帰属は半経験的手法に頼らざるを得ず、その妥当性には疑問が残る。実際、幾つかのバンドは帰属が不明確なままである。解離性状態への励起によるブロードなバンドが複数重なり合っていることに加え、分子振動に応じた正四面体型構造からの歪みが励起確率に影響を与えることがスペクトルの解析をより困難にしている。

電子エネルギー損失分光 (EELS) 実験より得られる GOS は、電子励起状態を反映した特徴的な移行運動量依存性を示すため、信頼できる理論計算との比較により明確なバンド帰属が可能となる。本研究では GOS の高精度計算を行い[5]、最新の実験結果[6]と比較することで価電子励起バンドの起源解明を試みた。

本研究では、分子振動の影響を考慮した計算を行った。分子振動の波動関数には調和振動子近似を用い、電子波動関数 $\Psi_n(\mathbf{r}; \mathbf{Q})$ は核変位に対してゆっくり変化すると仮定すると、GOS は以下のように近似できる。

$$f(K) = \frac{2E_{n0}}{K^2} M_{n0}(K, \mathbf{Q}_0) + \frac{2E_{n0}}{K^2} \sum_L \langle \xi_{vL} | M_{n0}(K, \mathbf{Q}_0 + Q_L \hat{q}_L) - M_{n0}(K, \mathbf{Q}_0) | \xi_{vL} \rangle, \quad (2)$$

$$M_{n0}(K, \mathbf{Q}) = \frac{1}{4\pi} \int | \langle \Psi_n(\mathbf{r}; \mathbf{Q}) | \sum_j \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j) | \Psi_0(\mathbf{r}; \mathbf{Q}) \rangle |^2 d\Omega_K. \quad (3)$$

ここで、 $\xi_{vL}(Q_L)$ は L 番目の基準モードに対する振動の波動関数である。(2)式の右辺第一項は平衡核配置 \mathbf{Q}_0 における GOS であり、第二項が分子振動の寄与を表す。計算には電子相関効果を高度に取り込んだ EOM-CCSD レベルの理論波動関数を用いた。

CCl_4 の電子エネルギー損失スペクトルで $E \sim 8.6 \text{ eV}$ に観測されたバンドは、帰属が明らかにされていない。本研究で行った EOM-CCSD 計算は、 8.6 eV 近傍に $3^1T_1 (2t_1 \rightarrow 4s)$ と $2^1E (2t_1 \rightarrow 8t_2 \sigma^*, 2e \rightarrow 7a_1 \sigma^*)$ 状態の存在を予測している。そこで、これら状態への遷移に対する理論 GOS を実験と比較した(図4)。どちらの遷移も光学禁制なため、構成原子が平衡位置に止まると仮定した計算(図中点線)は、GOS が OOS に収束する $K^2 = 0$ で値がゼロとなる。一方、実験結果は移行運動量の減少に伴い強度が増加しており、理論予測からの顕著な相違がみられた。この結果は、分子振動に伴う電子波動関数の歪みが本遷移で重要な役割をもつことを強く示唆している。そこで、分子振動の影響を取り入れた計算を行った(図中実線)。低移行運動量領域で強度が大幅に増加し、実験との不一致が解消されている。更なる解析から、 $K^2 \sim 0$ での強度増加には C-Cl 非対称伸縮振動が主に関与していることが分かった。同様の傾向は他の遷移でも見られており、この結果は、価電子励起を引き金とした上層大気中での Cl 生成において非対称伸縮振動が大きな影響を持つことを示している。

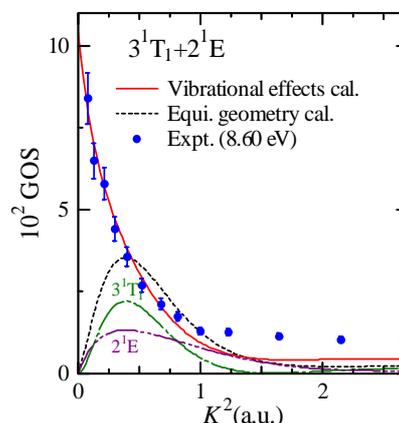


図4 8.6 eV の電子励起バンドの GOS 分布。

同様の理論研究を CH_3Cl と CF_3Cl [7] およびハイドロフルオロカーボン[8] に対しても行った。

(3) 中性解離種計測法の開発

研究方法欄で述べたように、中性化学種の計測では、パルス電子線を標的分子気体へ照射後に反応領域へパルス電場を印加することで、まずは生成イオンを取り除く。その後、反応領域近傍へ残留する中性解離種をレーザー照射によりイオン化させ、引き込み電極へのパルス電場印加で既存の画像観測型イオン分析器へ導き、その質量と運動量分布を計測する。そこで、既存の解離イオン同時計測装置へレーザー光を導入すべく、レーザー発生装置を含む種々機器の整備を行った。このとき、レーザー照射前に先立つ反応領域より直ちにイオンを除去することが必要なことから、1.5 keV まで電圧印加可能な高速パルス電源を用いることにした。さらに、中性解離種の測定対象として想定している CF_4 や SF_6 などの分子に対して解離イオンの計測を行い、イオンイメージングの最適な測定条件を精査した。

(4) 電子衝撃イオン化解離における対称性の破れ

分子の関与する現象の多くは、対称性に強く支配される。例えば、分子の対称性は光遷移の選択則を定めるし、電子励起後の緩和で放出される解離フラグメントの角度分布にも反映される。等核二原子分子 A_2 の光イオン化解離では、親イオンの対称な電子密度から A^+ が分子軸方向に沿って左右どちらへ放出されるかは相等しい。この対称性による制約は、外場の導入で崩し得る。実際、 D_2 の光イオン化解離に対し、レーザー電場を用いた gerade と ungerade 状態間の結合誘起により D^+ 放出を非対称に出来ることが示され [9]、新たな反応制御法として注目を集めている。

本研究では、電子衝撃イオン化解離においては、レーザー電場等の外場を導入せずとも対称性が破れ得ることを示す。 CO_2 と N_2 に対する解離イオン同時計測電子エネルギー損失分光実験より、解離イオンが移行運動量方向へより高い割合で放出される現象を見出した[10]。実験結果の解析より非対称性が発現する機構を解明するとともに、この新規機構に基づく解離イオンの非

対称放出が電子衝撃イオン化において一般的な現象であることを明らかにした。

解離イオン放出の対称性を調べるため、散乱電子-解離イオン同時計測装置を用いて CO_2 と N_2 の inner-valence イオン化を対象に実験を行った。ここでは CO_2 の結果について議論する。電子衝撃イオン化で生成した CO^+ の放出角度分布を図 5 に示す。運動エネルギー 1.4~2.3 eV をもつ CO^+ が検出された事象を選別し、その反跳方向と移行運動量ベクトル K が成す角 ϕ_K の関数として角度分布を求めた。図には、入射電子から標的分子へ与えられたエネルギー（損失エネルギー E ）の異なる二つの領域に対し、結果を示している。

解離性イオン化では、通常、電離電子が直ちに無限遠方へと飛び去り、その後、分子イオンの結合が切れると考えられている。例えば CO_2 の分子軸が K ベクトルと平行な場合、上記描像では CO_2^+ の反転対称性により、 CO^+ が分子軸に沿った $\phi_K = 0^\circ$ と 180° の二方向へ飛び出す確率は互いに等しい。実際、 $E = 34\text{--}36\text{ eV}$ で求めた角度分布は、 $\phi_K = 90^\circ$ を中心に対称である。ところが、 $E = 28\text{--}30\text{ eV}$ の結果は予想に反し非対称であり、 $\phi_K = 0^\circ$ 方向へ CO^+ が放出される割合は 180° 方向よりも倍近く大きい。

それでは、如何なる機構が対称性の破れを生むのであろうか。測定した同時計測事象には、 $3\ ^2\Pi_u$, $2\ ^2\Pi_g$, $4\ ^2\Pi_u$ 状態の CO_2^+ を生じる三種のイオン化チャンネルが関与し得る。それらのイオン化ポテンシャルは 27.3, 29.7, 30.5 eV と近接しており、また、 $E = 28\text{--}30\text{ eV}$ で放出される電離電子のエネルギーは $\sim 3\text{ eV}$ 以下と低い。低速電離電子からのクーロン場により近接している $^2\Pi_u$ 状態と $^2\Pi_g$ 状態が相互作用すれば、電子密度は偏り得る。電子間反発から CO_2^+ の電子密度は電離電子の放出方向と反対側で高くなり、 CO^+ は電子放出方向へ優先して飛び出すだろう。電子衝撃イオン化では入射電子と標的電子との二体衝突で運動量を受け取った電離電子は、移行運動量ベクトル K 方向へ高い割合で放出されるため、 K 方向で CO^+ が強く観測されたと考えられる。

この機構によれば、反転対称性をもつ他の分子においても、非対称な解離イオン放出が生じ得る。実際、 N_2 を対象に $^2\Sigma_g^+$ 状態と $^2\Sigma_u^+$ 状態へのイオン化エネルギーが近接した領域で測定を行ったところ、 $\phi_K = 180^\circ$ 方向に比べ N^+ が 0° 方向へ放出される割合が高くなっており、上記機構に基づく対称性の破れが電子衝撃イオン化解離において一般的な現象であることが明らかとなった。

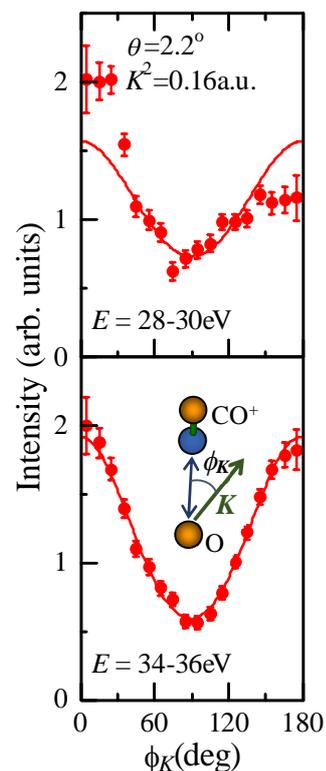


図 5 CO^+ の角度分布

< 引用文献 >

- J. J. Corr *et al*, Int. J. Mass Spectrom. 376 巻, 2015, 19.
- N. Watanabe *et al*, Phys. Rev. A 95 巻, 2017, 060702(R).
- N. Watanabe, T. Hirayama, S. Yamada, and M. Takahashi, Rev. Sci. Instrum. **89** 巻, 2018, 043105.
- N. Watanabe and M. Takahashi, Phys. Rev. A 108 巻, 2023, 042814.
- N. Watanabe and M. Takahashi, J. Phys. Chem. A 127 巻, 2023, 1866.
- L. H. Wang *et al*, J. Phys. Chem. A 126 巻, 2022, 453.
- N. Watanabe and M. Takahashi, J. Phys. B 55 巻, 2022, 015201.
- N. Watanabe and M. Takahashi, Chem. Phys. 581 巻, 2024, 112265.
- M. F. Kling *et al*, Science 312 巻, 2006, 246.
- N. Watanabe and M. Takahashi, Phys. Rev. A 104 巻, 2021, 032812.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Watanabe Noboru, Kume Kenichi, Takahashi Masahiko	4. 巻 259
2. 論文標題 A joint experimental and theoretical study of the valence electron momentum distributions of trans-stilbene	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena	6. 最初と最後の頁 147240 ~ 147240
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elspec.2022.147240	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 -
1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 127
2. 論文標題 Theoretical Study of Valence Shell Excitation by Electron Impact in CCl4	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 1866 ~ 1873
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.2c08619	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 -
1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 54
2. 論文標題 Vibrational effects on generalized oscillator strengths of ammonia	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 135202 ~ 135202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ac0769	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 -
1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 104
2. 論文標題 Symmetry breaking in electron-impact dissociative ionization of linear symmetric molecules	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 032812-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physreva.104.032812	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 -

1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 55
2. 論文標題 Theoretical study of generalized oscillator strengths for the low-lying electronic excitations of CH ₃ Cl and CF ₃ Cl	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 015201 ~ 015201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ac4a22	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 -

1. 著者名 Noboru Watanabe, So Yamada, and Masahiko Takahashi	4. 巻 1412
2. 論文標題 Relation between the spatial shape of excited molecular orbital and molecular-frame electron scattering cross section	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 142017 ~ 142017
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1412/14/142017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Noboru Watanabe, Keita Takahashi, Kimihiro Sato, and Masahiko Takahashi	4. 巻 124
2. 論文標題 Temperature-Dependent Electron Momentum Spectroscopy on the Molecular Orbitals of Dimethyl Ether	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 10258 ~ 10265
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.0c08799	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 -

1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 152
2. 論文標題 Forward-backward asymmetry in electron impact ionization of CO	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 164301-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0006256	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 -

1. 著者名 Watanabe Noboru, Takahashi Masahiko	4. 巻 53
2. 論文標題 Generalized oscillator strengths of low-lying electronic excitations in acetylene	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 075202-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ab6cc5	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14件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Symmetry breaking in dissociative ionization of symmetric molecules by electron impact
3. 学会等名 XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Symmetry breaking in electron-impact dissociative ionization of symmetric molecules
3. 学会等名 22nd International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC 2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Theoretical electronic excitation cross sections of CCl4
3. 学会等名 XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 CC14の価電子励起と遷移断面積に対する分子振動効果
3. 学会等名 第17回分子科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 CC14 の価電子励起に対する分子振動の影響
3. 学会等名 原子衝突学会第48回年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Symmetry breaking in electron-impact dissociative ionization of CO ₂ and N ₂
3. 学会等名 37th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 CO ₂ とN ₂ の電子衝撃イオン化解離おける対称性の破れ
3. 学会等名 原子衝突学会第47回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 対称分子の電子衝撃イオン化解離に現れる対称性の破れ
3. 学会等名 第16回分子科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Forward-backward asymmetry in electron-impact ionization of CO studied by (e, e ⁺ ion) spectroscopy
3. 学会等名 (virtual) International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi
2. 発表標題 Measurement of the forward-backward asymmetry in electron impact ionization of CO
3. 学会等名 (virtual) International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions in 2021, (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 COの電子衝撃イオン化における分子配向依存性：前方・後方異方性の観測
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金谷諭, 立花佑一, 鬼塚侑樹, 渡邊昇, 高橋正彦
2. 発表標題 多原子分子に対する原子運動量分布の量子化学計算法の開発
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡邊昇
2. 発表標題 電子散乱分光で探る分子内電子挙動
3. 学会等名 第7回森野ディスカッション(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡邊昇, 平山司, 高橋正彦
2. 発表標題 電子散乱分光を用いたSF6の価電子励起における振電相互作用効果の研究
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------