

低エネルギー電子衝撃による多原子分子 の微分散乱断面積測定

-弾性散乱・振動励起・電子励起素過程-

上智大学理工学部 物質生命理工学科

星野正光、加藤英俊、河原弘朋、田中大

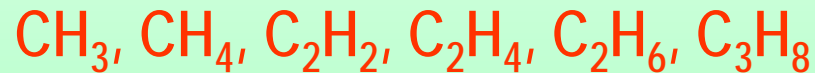


はじめに

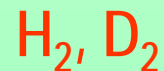
荷電粒子と壁の相互作用の理解

ダイバーター周辺における比較的溫度の低い領域の原子分子過程のデータが必要

1. 物理的あるいは化学的なスパッタリングで生成される炭化水素系分子



2. 振動励起された分子からの断面積データ



放電の引き金が、外部電場に加速された電子と材料ガス原子・分子との衝突で始まる

低エネルギー電子衝撃による 多原子分子の微分散乱断面積

- 弾性散乱
(含回転励起)
- 振動励起
- 電子励起
- 解離性電子付着
- 中性解離
- **ホット分子振動励起**

CH₄, C₂H₄, C₂H₆, C₃H₄, C₃H₆, C₃H₈, C₆H₆
CF₄, C₂F₄, C₂F₆, C₃F₆, C₃F₈, c-C₄F₈, C₆F₆
CH₃Cl, CH₃Br, CH₃I
CF₃H, CF₂H₂, CFH₃
CF₃Cl, CF₃Br, CF₃I
CF₂Cl₂, CFCl₃
1, 1-C₂H₂F₂
C₆H₆, C₆H₅CH₃, C₆H₅CF₃
(CH₃)₂O, H₂O
SiH₄, Si₂H₆, SiF₄, GeH₄
NF₃, C₆₀
N₂O, CO₂, COS, CS₂, XeF₂, HCl
H₂CO, F₂CO, (CH₃)₂CO, (NH)₂CO
H₂, N₂, CO, NO
Hot-CO₂, Hot-N₂O

微分断面積

- 散乱過程

$$e(E_0) + X(I.E. = 0) \rightarrow e(E_r, \theta, \phi) + X^*(I.E. = E_a) \quad q(E_0, \theta, \phi) = \frac{d\sigma}{d\Omega}$$
$$E_0 = E_r + E_a$$

- 散乱強度と微分断面積

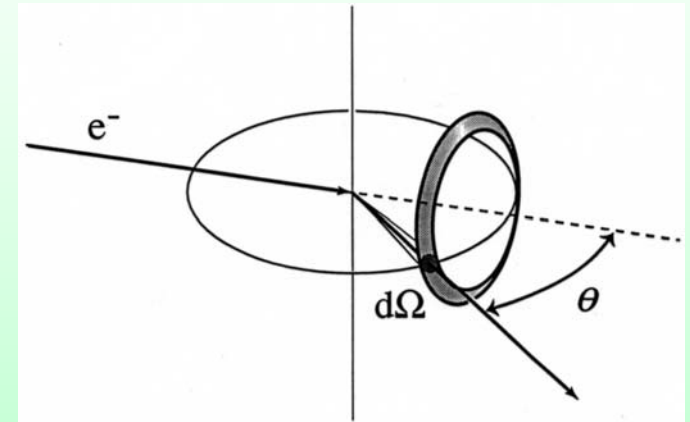
$$I_a(E_0, \theta) = q_a(E_0, \theta) F(E_r) G(V) I_0$$

$$G(V) = \int_V n(r) f(r) \Delta\Omega dr$$

$I_a(E_0, \theta)$; 散乱電子強度、 $F(E_r)$; 散乱電子の透過関数、
 $G(V)$; 衝突体積、 $I_0(E_0, \theta)$; 入射電子強度

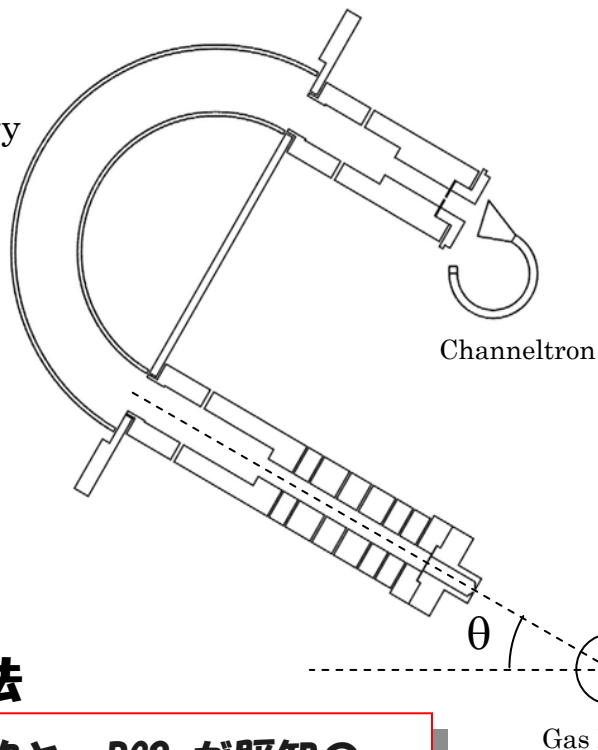
- 微分断面積測定の特徴

特定の散乱過程を抽出し、その角度分布情報を得ることが可能



実験装置 (EELS I)

Electron Energy
Analyzer



ビーム交差法

入射電子エネルギー: 1.5 - 200 eV

Angle: 3.5 ~ 130°

分解能: 40 meV

規格化: He elastic, 2¹P DCS

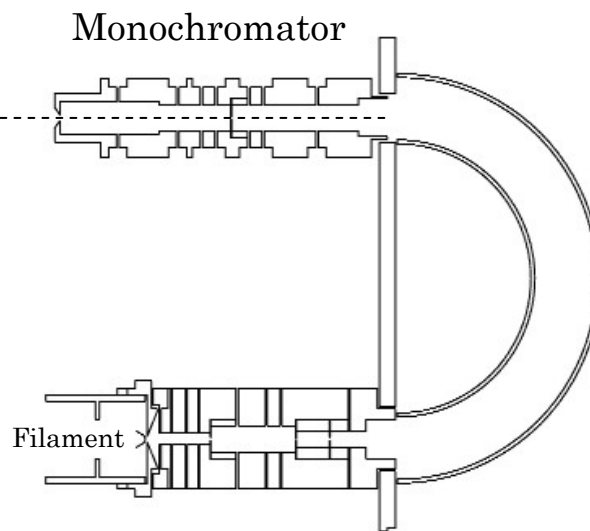
測定誤差: ~ 25 %

Relative Flow法

DCS が未知の標的と、DCS が既知の He 弾性散乱における散乱強度を、同じ実験条件下で測定することで、未知標的の DCS を絶対値化する

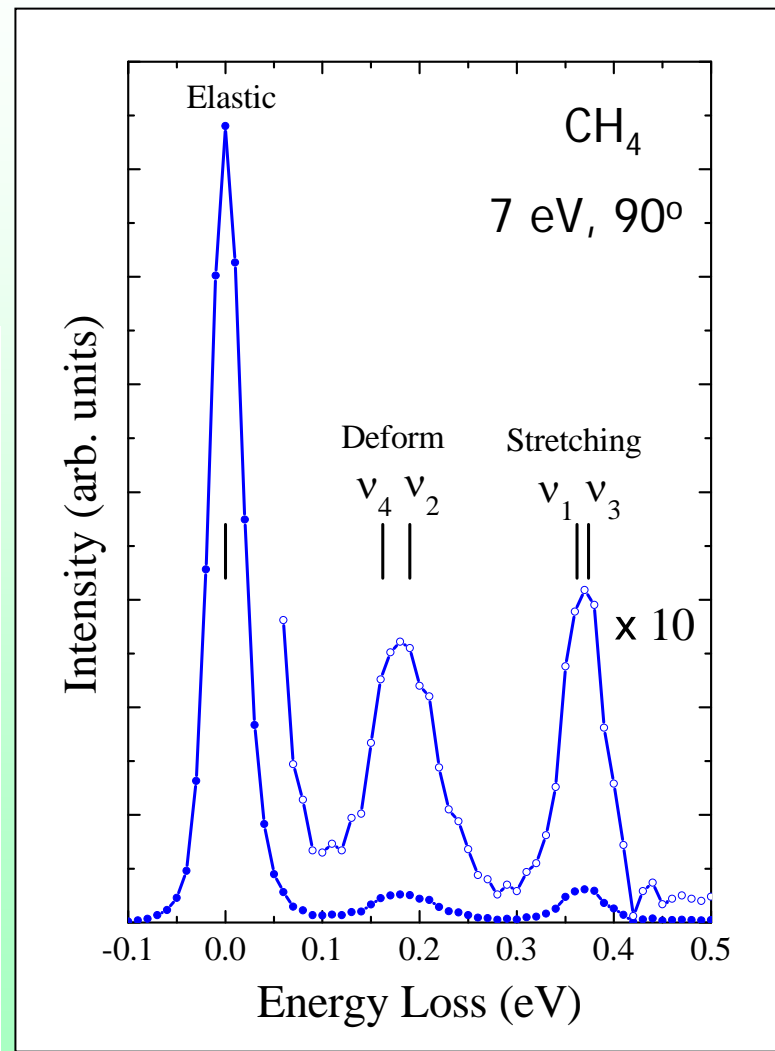
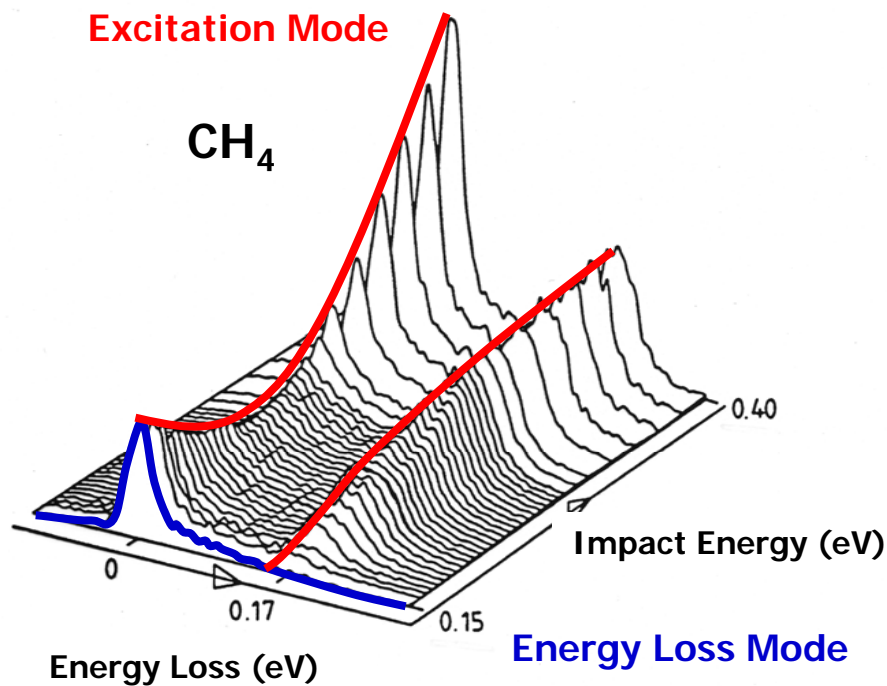
$$\sigma_G(\theta) = \frac{I_G}{I_{He}} \frac{P_{He}}{P_G} \sigma_{He}(\theta)$$

I : 散乱強度 P : ガス背圧



測定モード（損失スペクトルと励起関数）

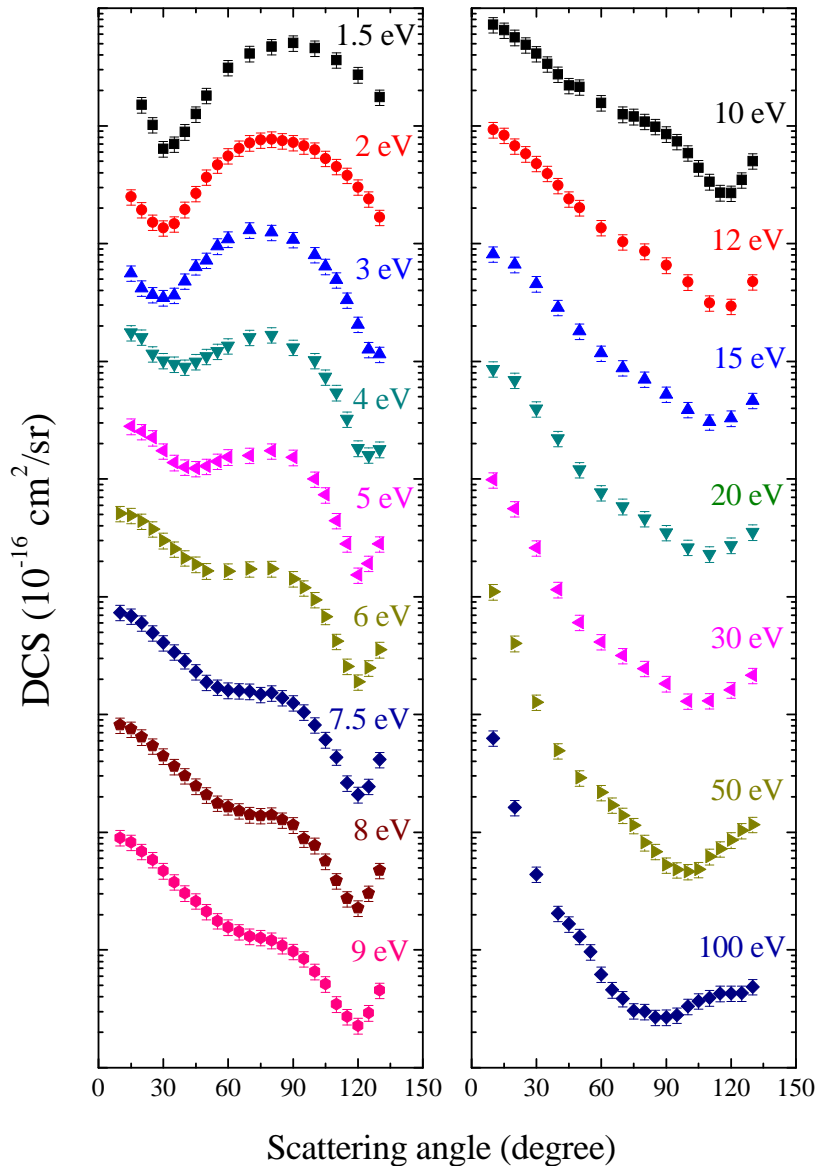
- Energy Loss Mode
- Excitation Mode





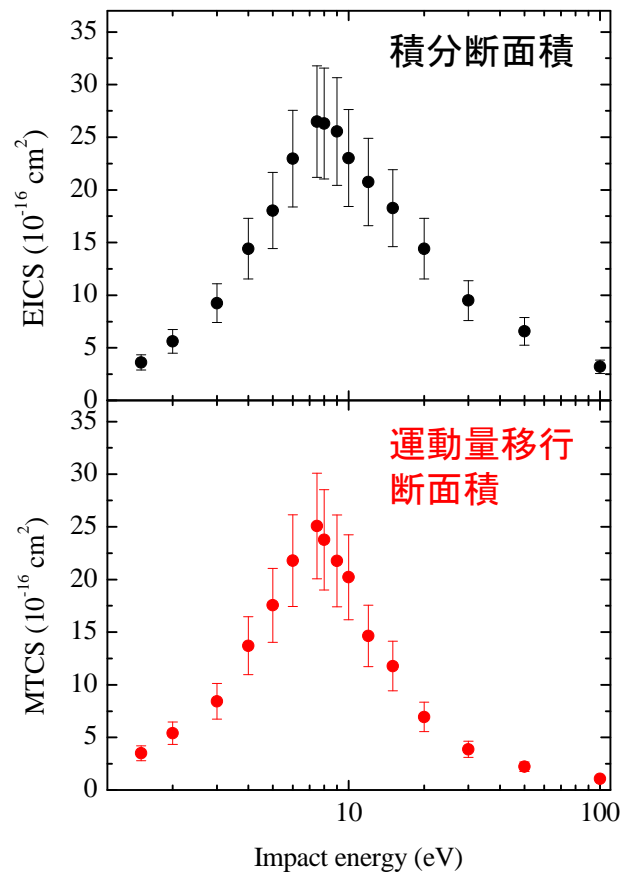
弹性散乱

弾性散乱微分断面積 (CH₄)



$$\sigma_a = \int_0^{4\pi} q_a(\theta, \phi) d\Omega = 2\pi \int_0^\pi q_a(\theta) \sin \theta d\theta$$

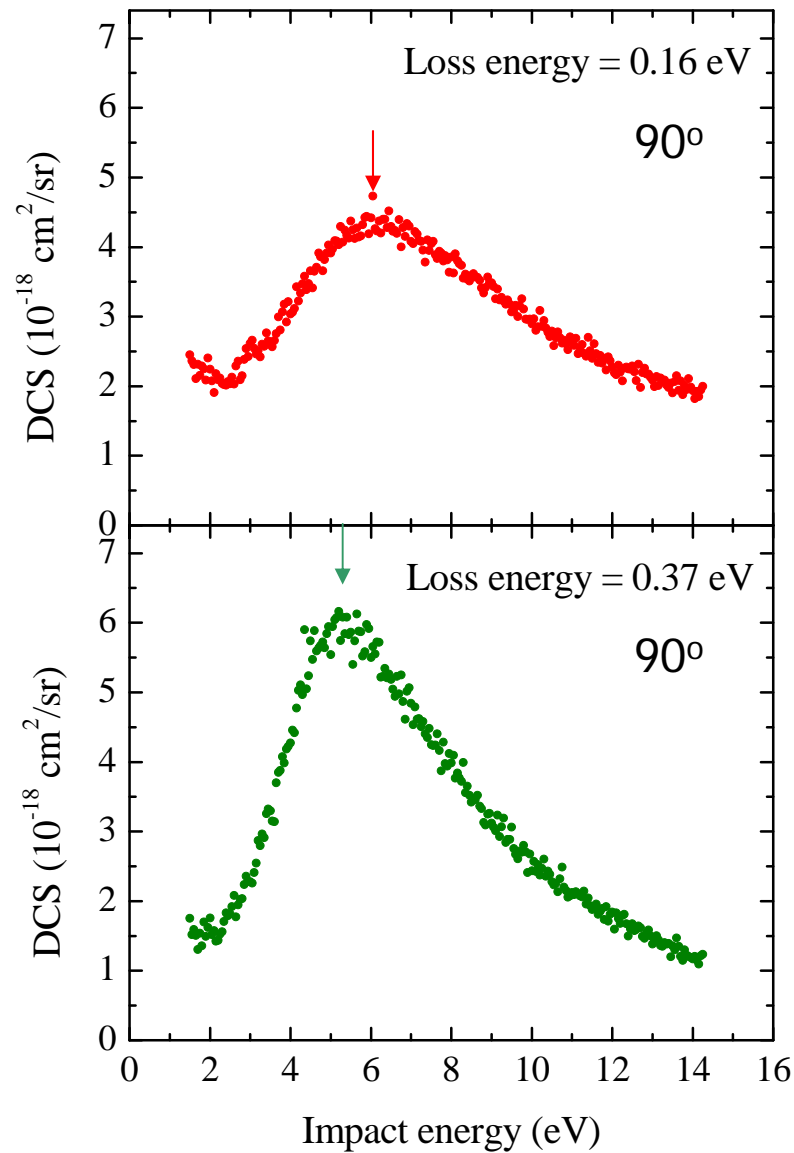
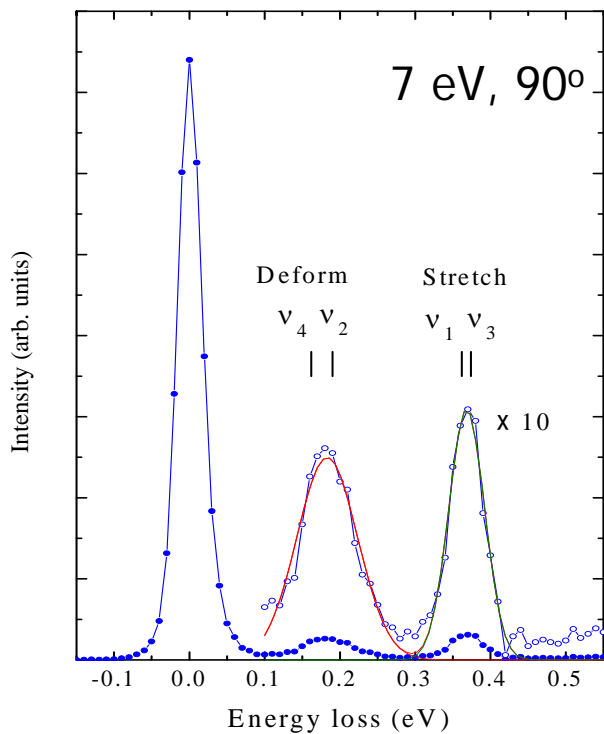
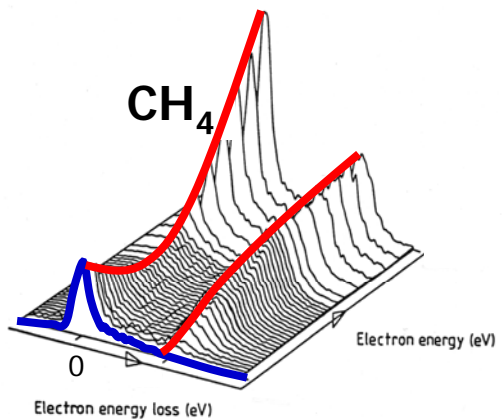
$$\sigma_m = 2\pi \int_0^\pi q_a(\theta) (1 - \cos \theta) \sin \theta d\theta$$





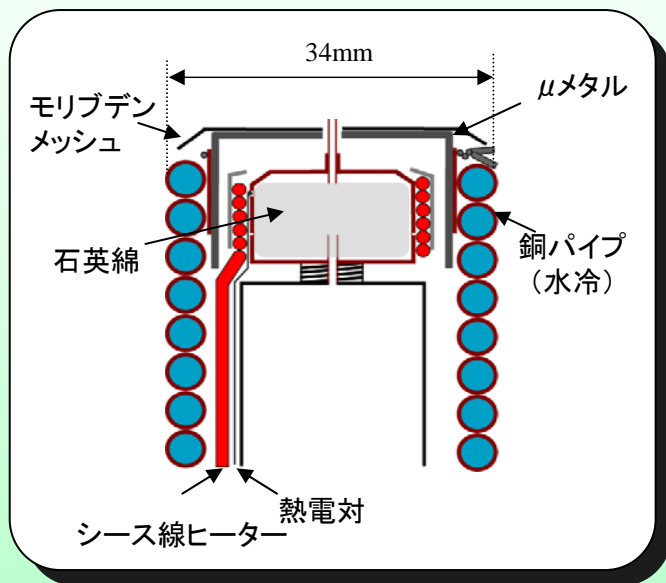
振動励起

振動励起関数と共鳴 (CH_4)



実験装置（加熱用ガスノズル）

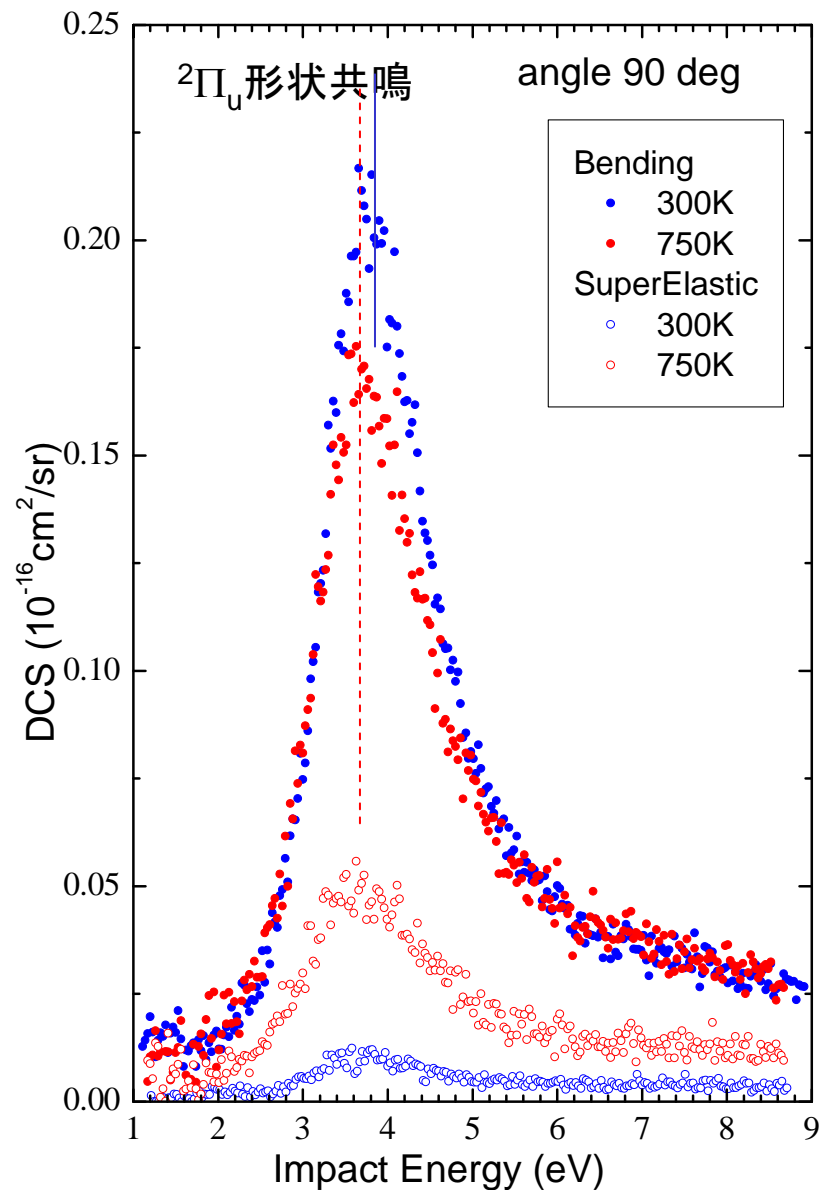
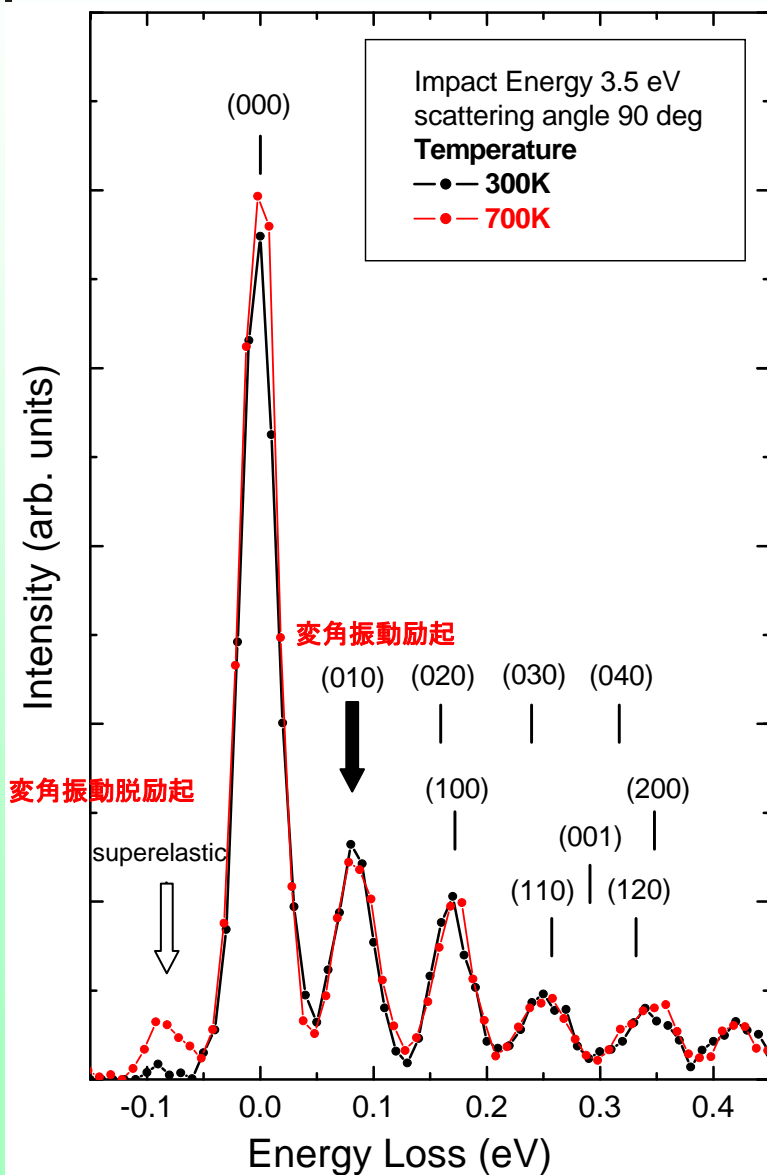
加熱用ガスノズルを製作し、既存の電子分光装置に導入



800Kまで温度上昇を確認

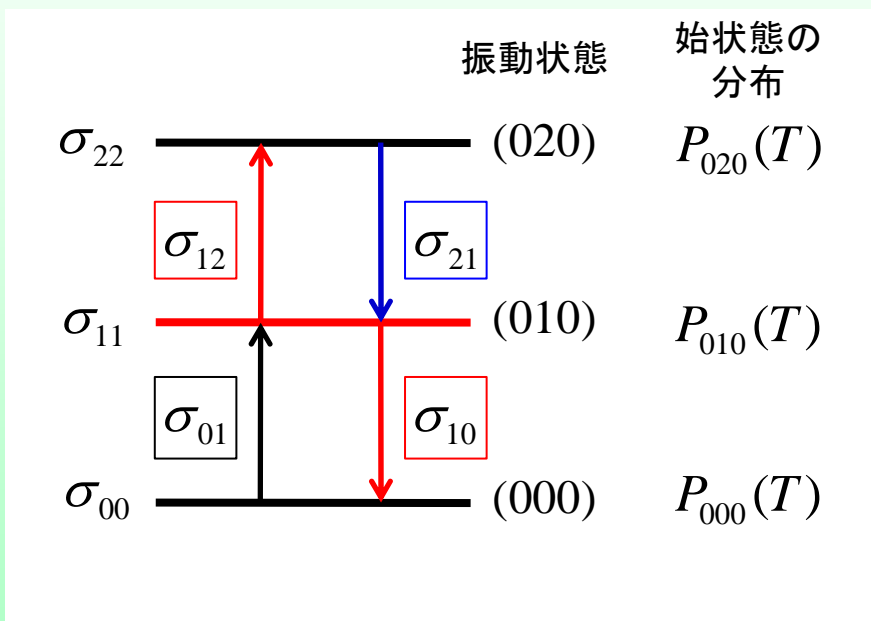


CO₂ hot EELS



CO₂ hot 始状態分離

測定された微分断面積より、ボルツマン分布を仮定し、それぞれの断面積を決定



Boltzmann分布

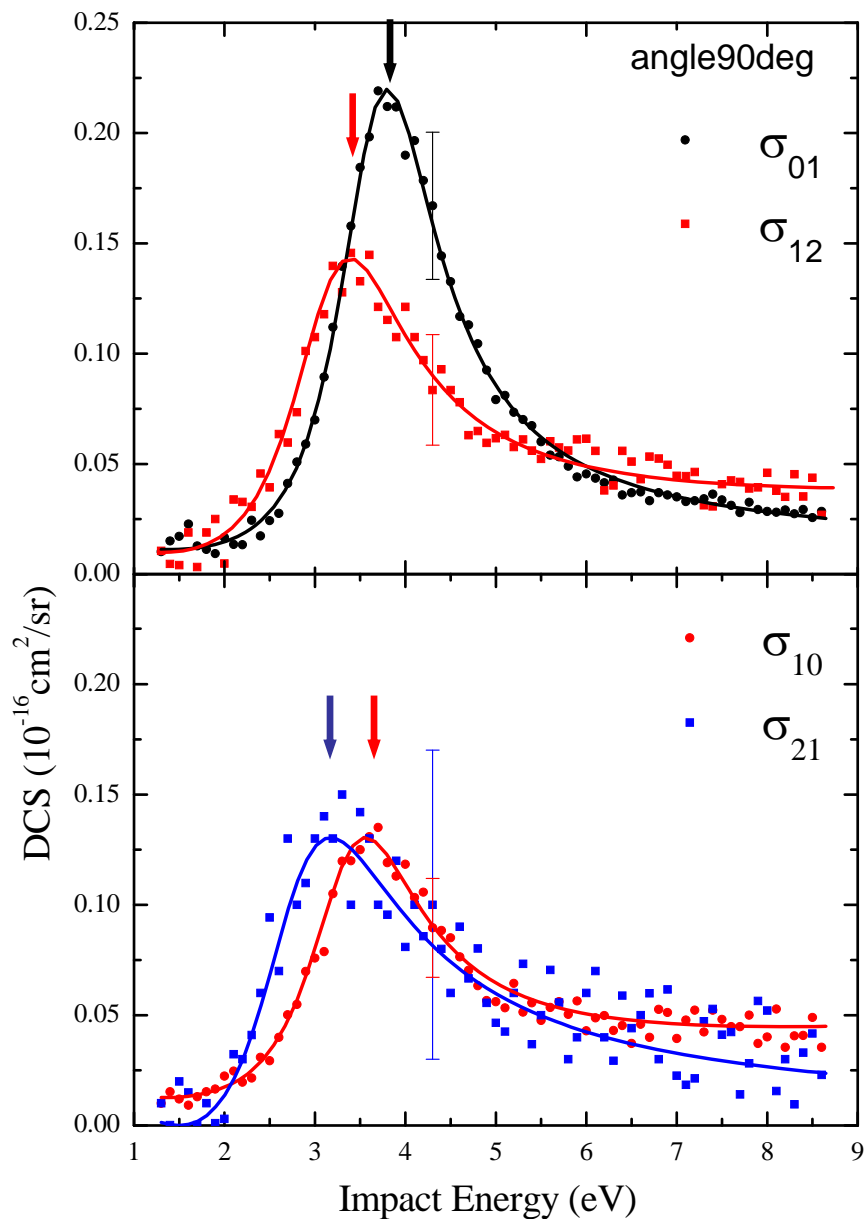
$$P_v = \frac{\exp(-\Delta E_v / kT)}{\sum_v \exp(-\Delta E_v / kT)}$$

| mode | energy(eV) | 300K | 550K | 750K |
|-------------------|------------|--------|--------|--------|
| ground state | 0.000 | 91.863 | 66.439 | 49.872 |
| 01 ¹ 0 | 0.083 | 7.482 | 23.184 | 27.722 |
| 02 ⁰ 0 | 0.159 | 0.193 | 2.302 | 4.236 |
| 02 ² 0 | 0.166 | 0.304 | 4.042 | 7.700 |
| 10 ⁰ 0 | 0.172 | 0.118 | 1.759 | 3.478 |
| 03 ¹ 0 | 0.240 | 0.017 | 0.847 | 2.449 |
| 03 ³ 0 | 0.248 | 0.012 | 0.704 | 2.137 |
| 11 ¹ 0 | 0.258 | 0.009 | 0.581 | 1.856 |
| 00 ⁰ 1 | 0.291 | 0.001 | 0.142 | 0.550 |

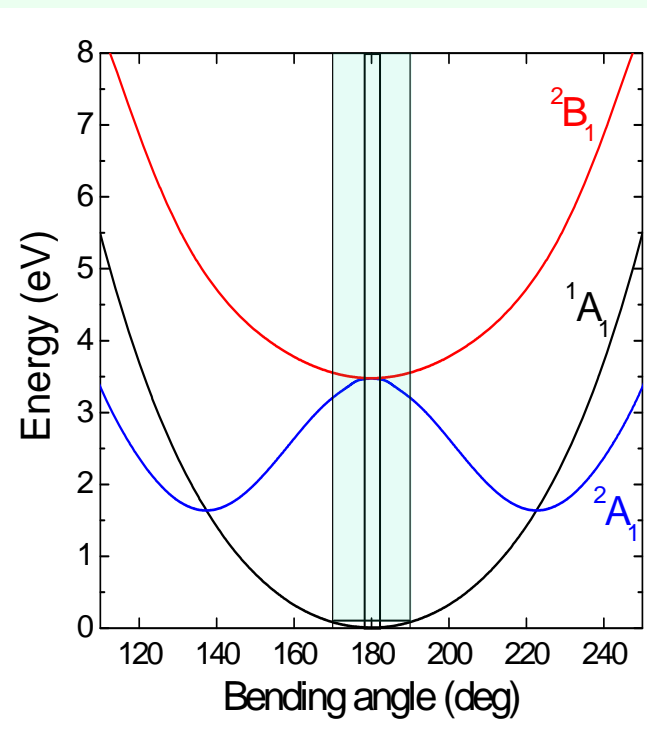
$$\sigma_{bend}(T) = P_{000}(T) \cdot \sigma_{01} + P_{010}(T) \cdot \sigma_{12}$$

$$\Rightarrow \begin{cases} \sigma_{01} = \frac{\sigma_{bend}(T_1) - P_{010}(T_1) / P_{010}(T_2) \cdot \sigma_{bend}(T_2)}{P_{000}(T_1) - P_{010}(T_1) / P_{010}(T_2) \cdot P_{000}(T_2)} \\ \sigma_{12} = \frac{\sigma_{bend}(T_1) - P_{000}(T_1) / P_{000}(T_2) \cdot \sigma_{bend}(T_2)}{P_{010}(T_1) - P_{000}(T_1) / P_{000}(T_2) \cdot P_{010}(T_2)} \end{cases}$$

CO₂ hot 振動励起関数 (始状態分離) 90deg



(010)では約5度変角



H. Kato et al., CPL 465 (2008) 31-35

M. Krauss and D. Meumann, Chem. Phys. Lett. **14**, 26 (1972).

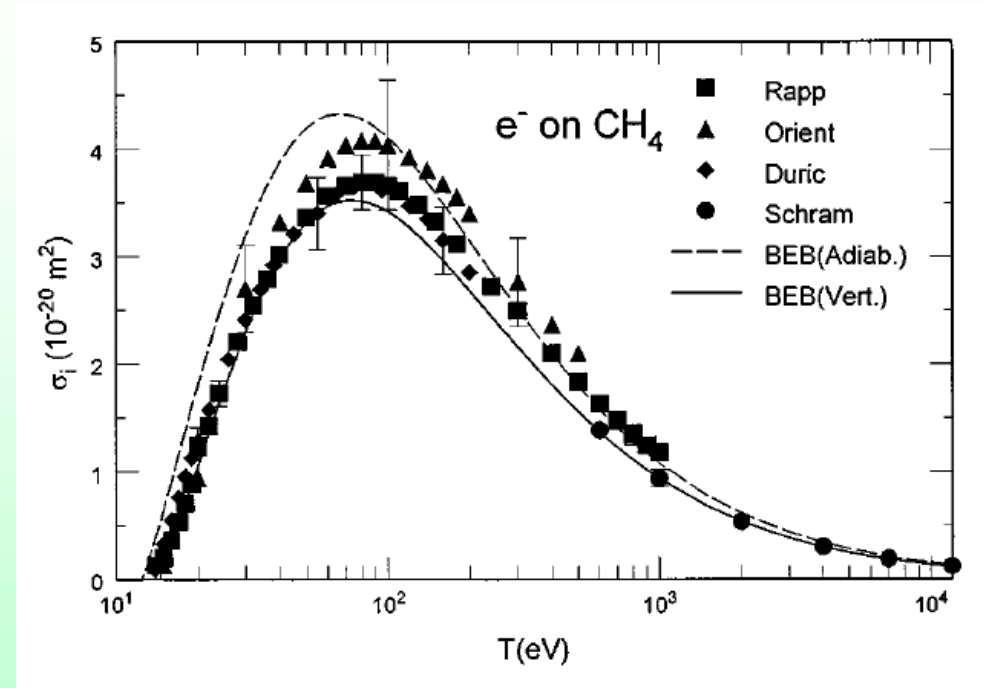
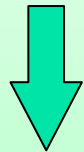


電子勵起

電子励起とスケーリング則

BEB model

1994年NISTのKimにより電子衝突による原子・分子の電離断面積を導出するMott散乱とBorn近似を組み合わせたBEB(Binary-Encounter Bethe) modelが提唱された

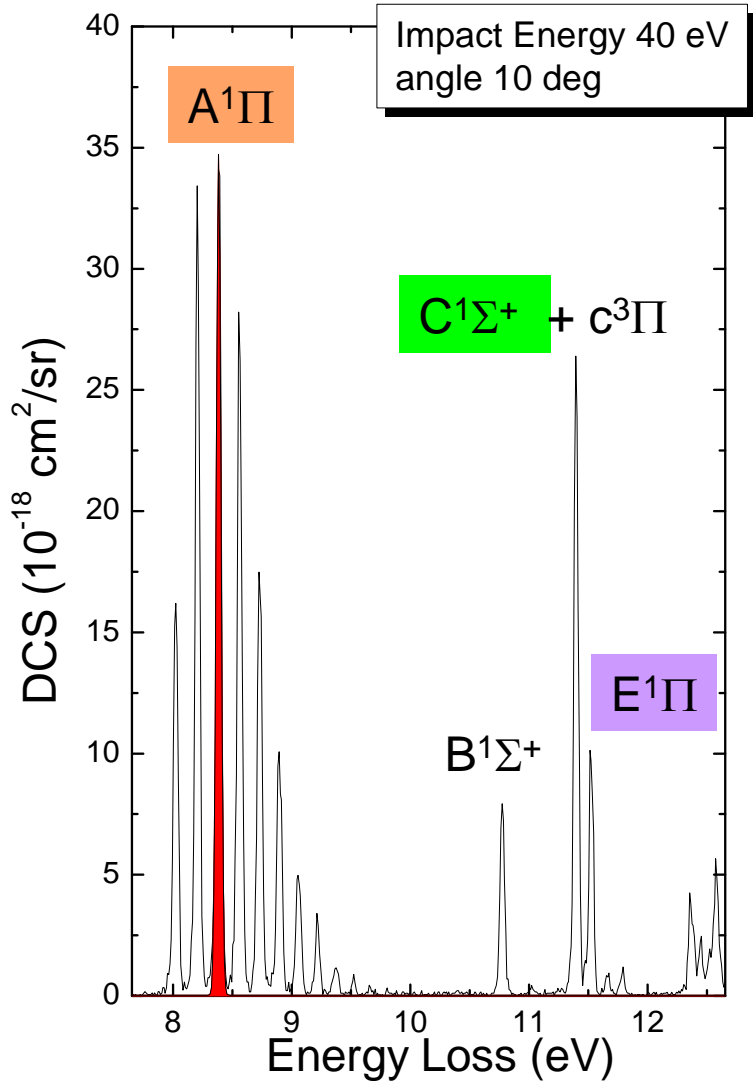


束縛状態の光学的許容遷移の励起積分断面積に拡張

$$BEf\text{-scaling} \quad \sigma_{BEf} = \frac{T}{T + B + E_{\alpha}} \cdot \frac{f_{accur}}{f_{PWB}} \sigma_{PWB}$$

σ_{BEf} : BEf - scaling による ICS, σ_{PWB} : PWB 近似による ICS, T : 入射エネルギー, B : イオン化エネルギー
 E_{α} : 励起エネルギー, f_{accur} : 光学的振動子強度 (OOS) の実験値, f_{PWB} : PWB 近似の OOS

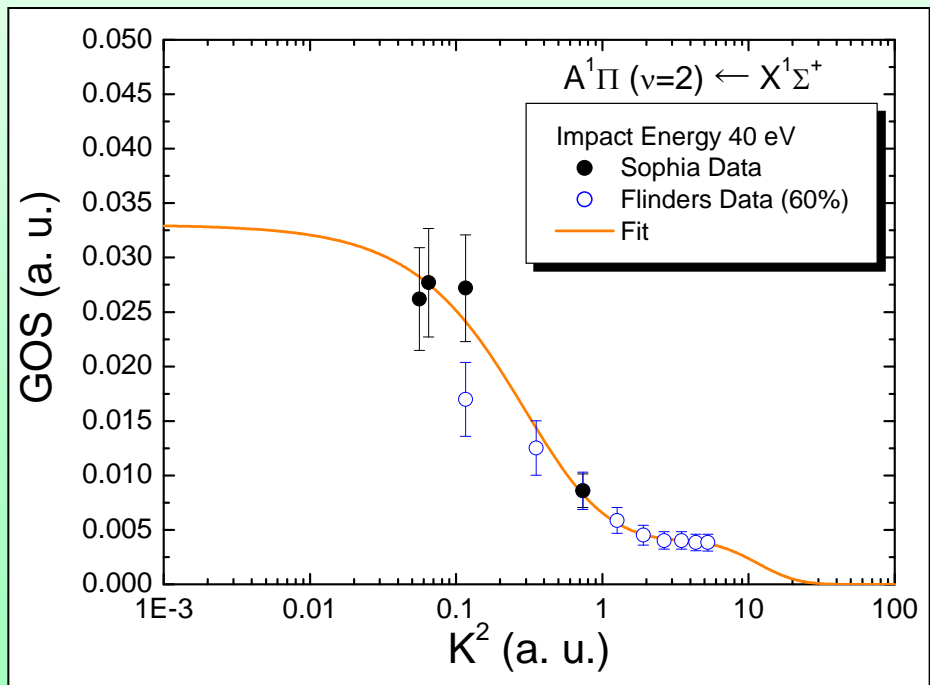
電子励起 (COの例)



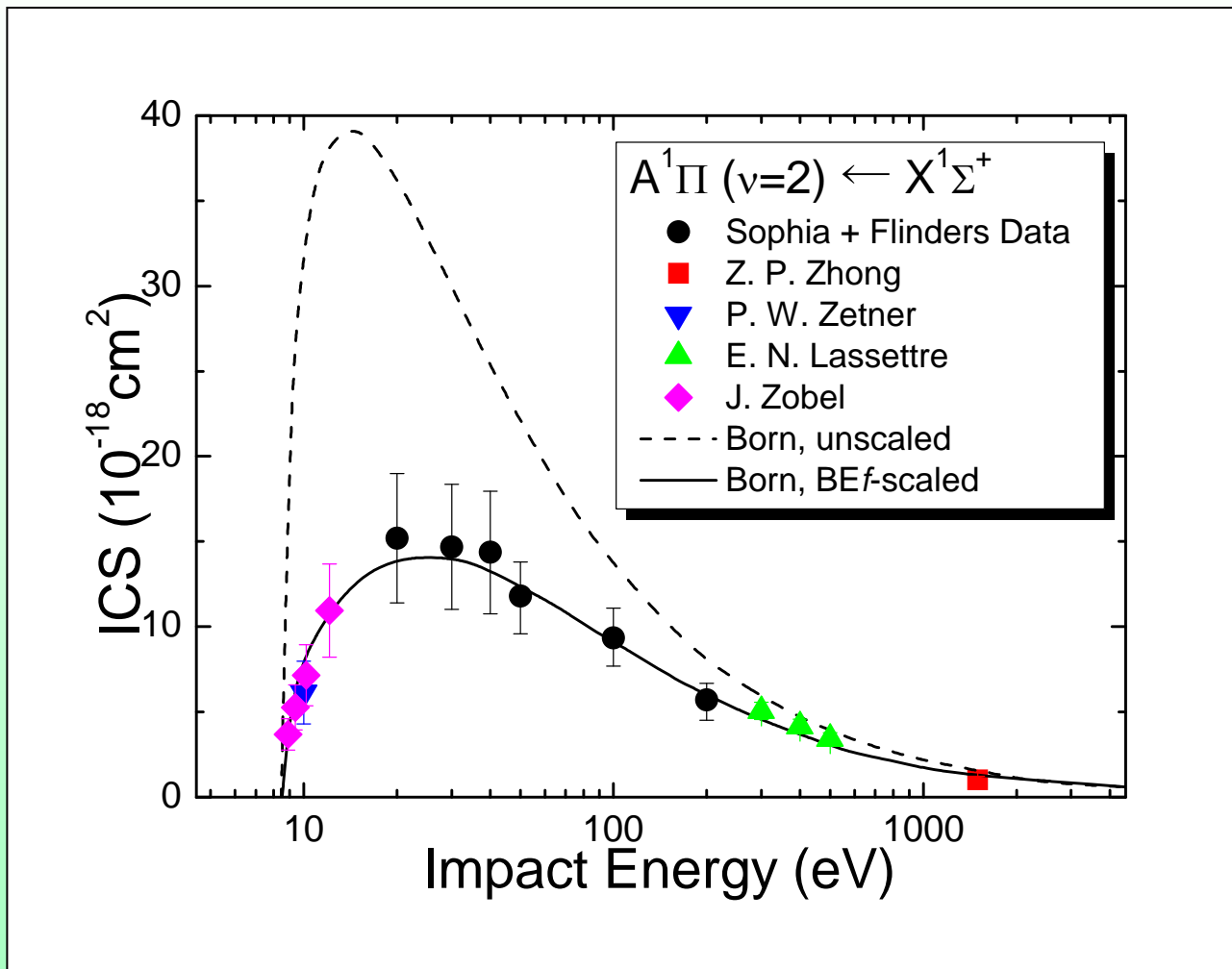
DCS → effective GOSを求める。

$$F_{0\alpha}(\mathbf{K}) = \frac{k_0}{k_\alpha} \cdot \frac{K^2 \hbar^2 E_\alpha}{2me^4} \cdot q(\theta)$$

$K^2 = k_0^2 + k_\alpha^2 - 2k_0k_\alpha \cos \theta$,
 $q(\theta)$: DCS, K : 運動量移行,
 k_0 : 入射電子運動量, k_α : 散乱電子運動量



電子励起とスケーリング則



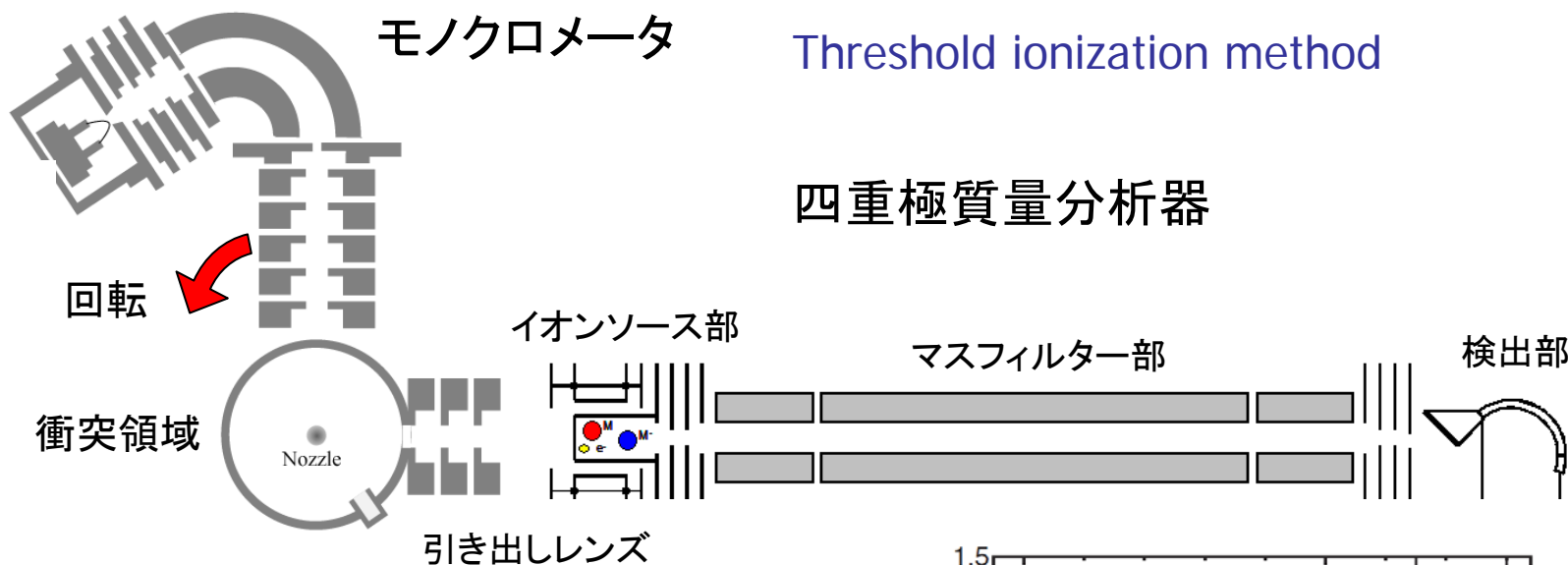
CO分子の他の状態、CO₂、H₂、H₂O、N₂Oなど様々な分子に適用を確認



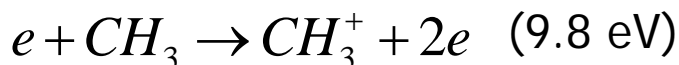
その他

中性解離過程
解離性電子付着過程

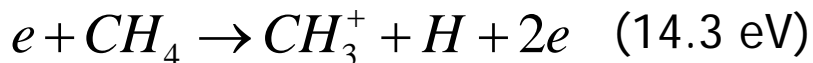
中性ラジカル生成断面積 ($CH_4 \rightarrow CH_3$)



第一イオン化室(クロスビーム法)

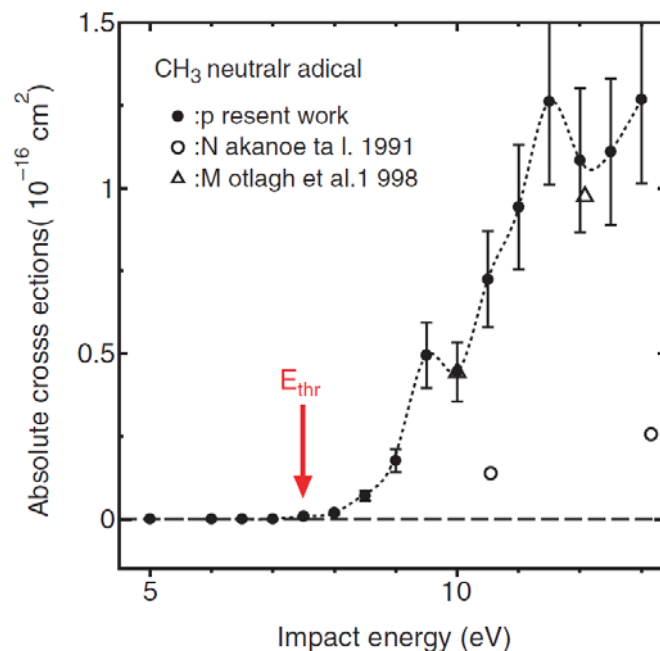


第二イオン化室(QMS電子銃)



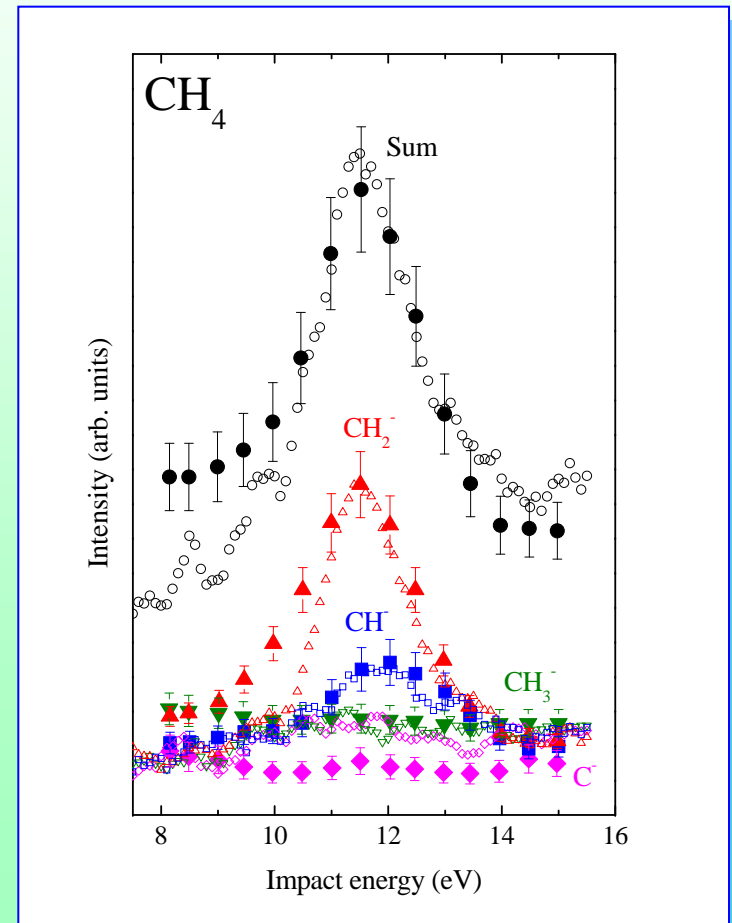
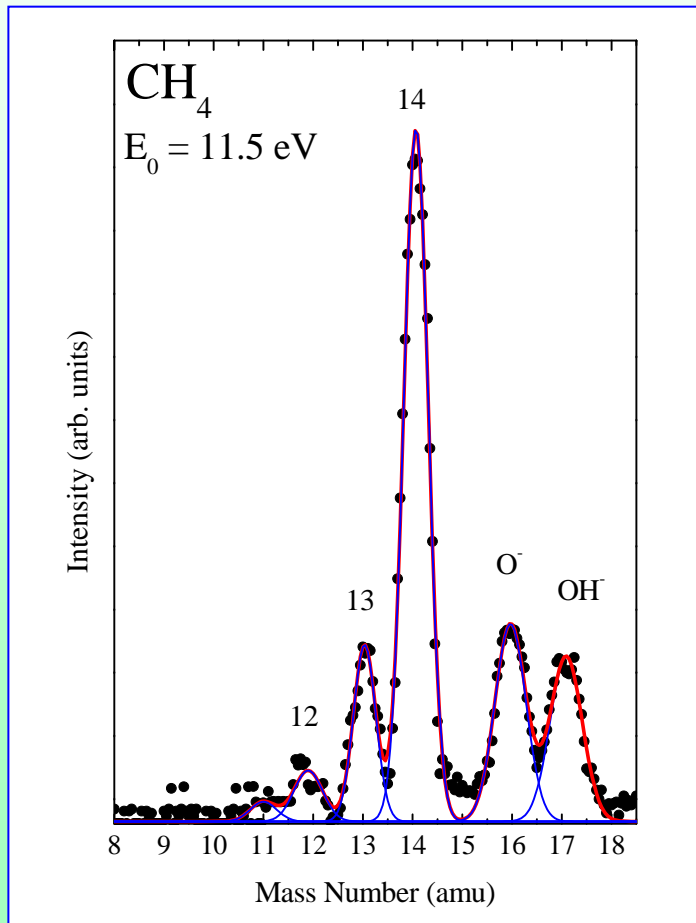
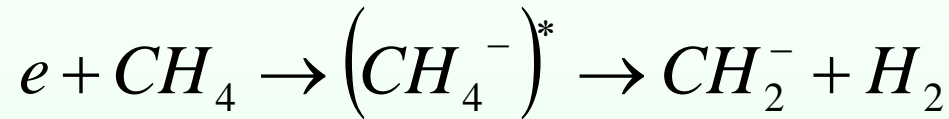
第二イオン化室電子銃のエネルギー: $9.8 < E < 14.3$

と設定することで直接解離の寄与を除去できる



負イオン測定 ($CH_4 \rightarrow CH_2^-$) SiH_4 、 GeH_4 についても測定

四重極質量分析器を用いた解離性電子付着過程の研究





NIFS DATA-101 (2008)

Elastic Differential Cross Sections for Electron Collisions with Polyatomic Molecules

M. Hoshino¹, H. Kato¹, C. Makochekanwa^{1, 2}, S.J. Buckman², M. J. Brunger³,
H. Cho⁴, M. Kimura⁵, D. Kato⁶, I. Murakami⁶, T. Kato⁶, and H. Tanaka¹

¹Department of Physics, Sophia University, Tokyo 102-8554, Japan

²Center for Antimatter-Matter Studies, Australian National University, Canberra ACT 0200, Australia

³Center for Antimatter-Matter Studies, Flinders University, Adelaide SA 5001, Australia

⁴Department of Physics, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Korea

⁵Graduate School of Sciences, Kyushu University, Fukuoka 812-8581, Japan

⁶National Institute of Fusion Science, Toki 509-5292, Japan

NIFS-DATA-101

Table 2. Differential cross sections for elastic electron scattering (in units of 10^{-16} cm²/sr) and integral elastic (ICS) and elastic momentum transfer cross sections (MTCS), respectively (in units of 10^{-16} cm²), from CH₄. The estimated uncertainty in the DCS data is 15%, whilst the uncertainty on the ICS and MTCS is 25%.

| Angle (deg) | Energy (eV) | | | | | | | |
|----------------|-------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 1.5 | 2.0 | 3.0 | 4.0 | 5.0 | 6.0 | 7.5 | 8.0 |
| 10 | - | - | - | - | - | 5.101 | 7.360 | 8.127 |
| 15 | - | 0.250 | 0.562 | 1.753 | 2.810 | 4.909 | 6.862 | 7.517 |
| 20 | 0.151 | 0.194 | 0.419 | 1.604 | 2.532 | 4.390 | 6.000 | 6.432 |
| 25 | 0.102 | 0.152 | 0.368 | 1.158 | 2.247 | 3.765 | 4.942 | 5.407 |
| 30 | 0.064 | 0.136 | 0.347 | 1.014 | 1.734 | 3.009 | 4.078 | 4.431 |
| 35 | 0.070 | 0.147 | 0.364 | 0.948 | 1.383 | 2.546 | 3.396 | 3.622 |
| 40 | 0.089 | 0.195 | 0.480 | 0.895 | 1.262 | 2.139 | 2.859 | 3.016 |
| 45 | 0.126 | 0.266 | 0.635 | 0.992 | 1.232 | 1.889 | 2.315 | 2.466 |
| 50 | 0.181 | 0.367 | 0.722 | 1.102 | 1.283 | 1.661 | 1.879 | 2.076 |
| 55 | - | 0.465 | 0.953 | 1.217 | 1.416 | - | 1.706 | 1.765 |
| 60 | 0.312 | 0.555 | 1.092 | 1.357 | 1.540 | 1.653 | 1.609 | 1.643 |
| 65 | - | 0.645 | - | - | - | - | 1.591 | 1.517 |
| 70 | 0.412 | 0.718 | 1.306 | 1.595 | 1.588 | 1.725 | 1.574 | 1.409 |
| 75 | - | 0.758 | - | - | - | - | 1.484 | 1.382 |
| 80 | 0.471 | 0.771 | 1.246 | 1.673 | 1.737 | 1.733 | 1.528 | 1.403 |
| 85 | - | 0.748 | - | - | - | - | 1.387 | 1.271 |
| 90 | 0.505 | 0.722 | 1.082 | 1.313 | 1.530 | 1.421 | 1.255 | 1.153 |
| 95 | - | 0.677 | - | - | - | 1.190 | 1.050 | 0.879 |
| 100 | 0.458 | 0.625 | 0.804 | 1.016 | 1.001 | 0.945 | 0.816 | 0.773 |
| 105 | - | 0.528 | 0.640 | 0.738 | 0.734 | 0.680 | 0.612 | 0.568 |
| 110 | 0.363 | 0.451 | 0.492 | 0.543 | 0.444 | 0.419 | 0.435 | 0.387 |
| 115 | - | 0.380 | 0.332 | 0.323 | 0.282 | 0.257 | 0.262 | 0.273 |
| 120 | 0.272 | 0.302 | 0.206 | 0.183 | 0.153 | 0.189 | 0.209 | 0.227 |
| 125 | - | 0.239 | 0.126 | 0.160 | 0.192 | 0.249 | 0.245 | 0.303 |
| 130 | 0.175 | 0.167 | 0.115 | 0.179 | 0.281 | 0.356 | 0.414 | 0.474 |
| ICS | 3.61 | 5.61 | 9.25 | 14.41 | 18.04 | 22.97 | 26.49 | 26.30 |
| MTCS | 3.49 | 5.40 | 8.43 | 13.71 | 17.55 | 21.79 | 25.07 | 23.76 |

Electron-induced Resonant Vibrational Excitations in Polyatomic Molecules

H. Kato¹, M. Hoshino¹, H. Kawahara¹, C. Makochekanwa^{1,2}, S. J. Buckman²,
M. J. Brunger³, H. Cho⁴, M. Kimura⁵, D. Kato⁶, H. Sakaue⁶, I. Murakami⁶, T.
Kato⁶ and H. Tanaka¹.

¹Department of Physics, Sophia University, Tokyo 102-8554, Japan.

²Centre for Antimatter-Matter Studies, Australian National University, Canberra ACT 0200, Australia.

³Centre for Antimatter-Matter Studies, Flinders University, Adelaide SA 5001, Australia

⁴Department of Physics, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Korea.

⁵Graduate School of Sciences, Kyushu University, Fukuoka 812-8581, Japan.

⁶National Institute of Fusion Science, Toki 590-5292, Japan.

Vibrational Excitation DCS (NIFS)

A. Fusion Plasma-Related Gases

A1. CH₄

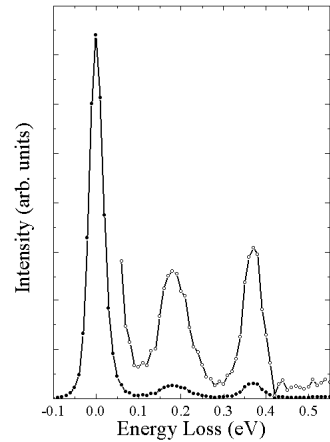


Figure A1.1. Energy loss spectrum of CH₄ at impact energy 7 eV for a scattering angle 90 degree.

Table A1.1. Vibrational fundamental mode

| Vibrational mode | Energy (eV) | Sym. Species |
|----------------------|-------------|--------------|
| ν_1 (Sym str) | 0.362 | a_1 |
| ν_2 (Deg deform) | 0.190 | e |
| ν_3 (Deg str) | 0.374 | f_2 |
| ν_4 (Deg deform) | 0.162 | f_2 |

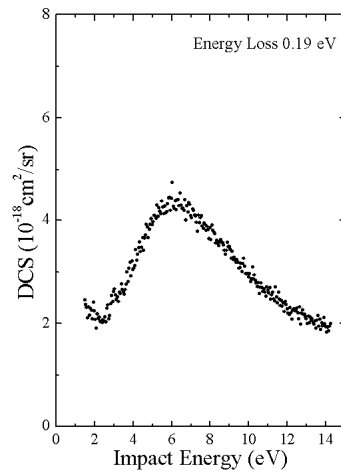


Figure A1.2. Vibrational excitation function of CH₄ at a scattering angle 90 degree.

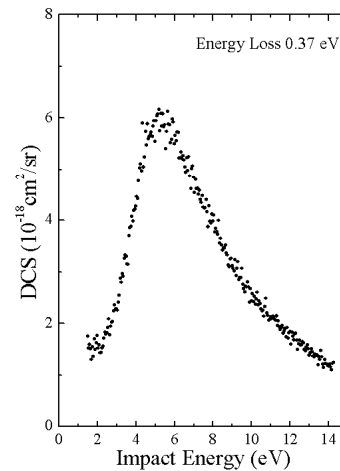


Figure A1.3. Vibrational excitation function of CH₄ at a scattering angle 90 degree.



To be submitted to NIFS-DATA

Electron-impact Excitation of Electronic States in Polyatomic Molecules

*-Application Examples of the BEB-scaling model
in Optically-allowed Transitions-*

H. Kawahara¹, H. Kato¹, M. Hoshino¹, M. C. Garcia^{1#}, S. J. Buckman², M.
J. Brunger³, H. Cho⁴, Yong-Ki Kim[†], D. Kato⁵, H. Sakaue⁵, I. Murakami⁵, T.
Kato⁵, and H. Tanaka¹

¹Department of Physics, Sophia University, Tokyo 102-8554, Japan

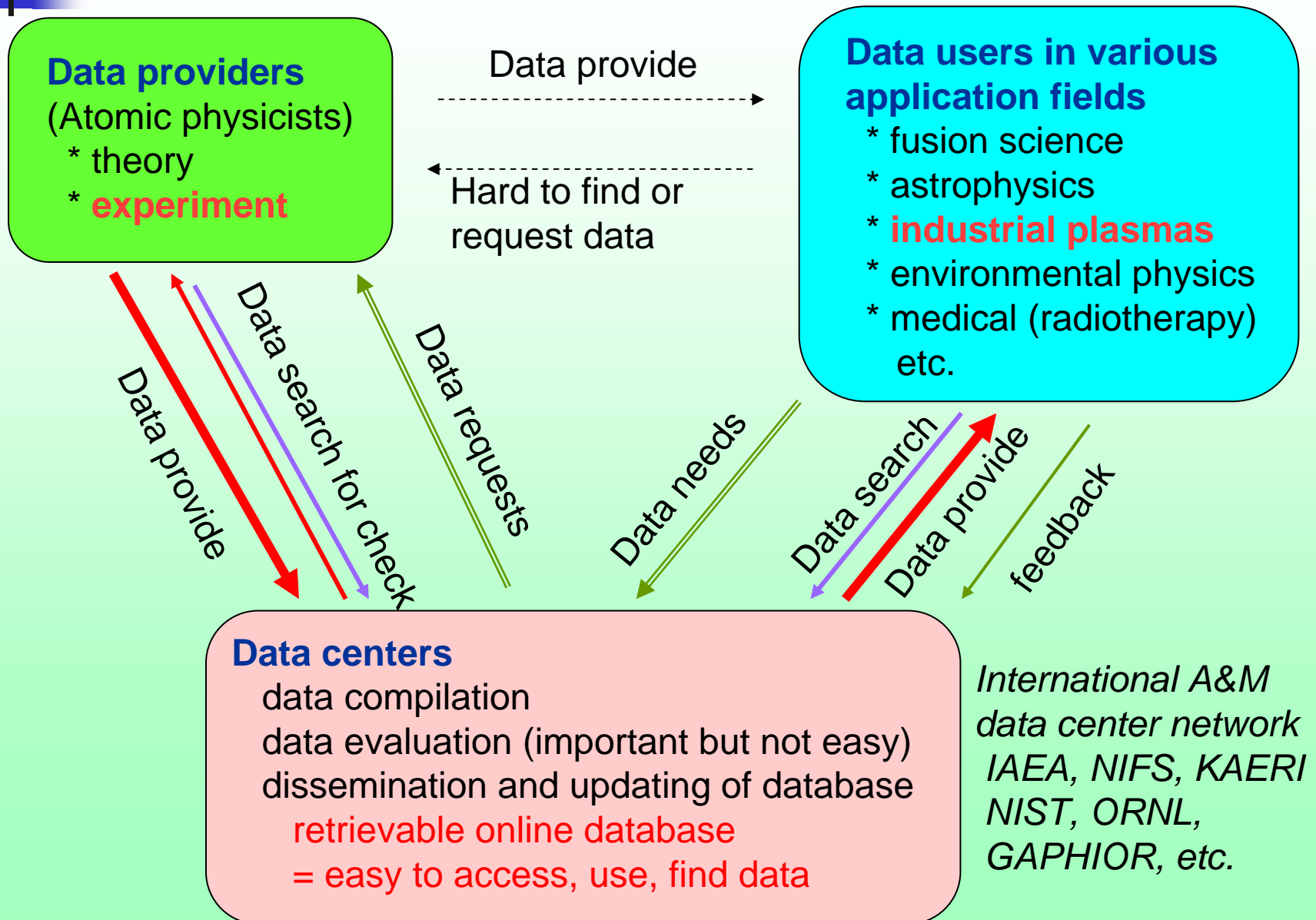
²Center for Antimatter-Matter Studies, Australian National University,
Canberra ACT 0200, Australia

³Center for Antimatter-Matter Studies, Flinders University,
Adelaide SA 5001, Australia

⁴Department of Physics, Chungnam National University, Daejeon 305-764,, Korea

⁵National Institute of Fusion Science, Toki 590-5292, Japan

Views from Database *assessed data on electron collision cross sections*





研究室紹介（メンバー）

上智大学理工学部物質生命理工学科 電子物性研究室（田中研究室）

スタッフ：田中大、星野正光

加藤英俊（D3）：EELS I, II

河原弘朋（M2）：EELS I, II

永井蓉子（M2）：EELS I

小林新太郎（M2）：Threshold Electron Spectroscopy by TOF

富田大樹（M2）：Positron Scattering Experiment

金澤悠（M2）：Capillary Experiment on Highly Charged Ion

朝比奈竜也（M1）：EELS II

増井広樹（M1）：EELS I

四至本知秀（M1）：Negative Ion Experiment



共同研究機関

International

- Flinders University, Australia (Prof. Brunger AU)
- Australian National University (Prof. Buckman AU)
- Chugnam National University (Prof. Cho Korea)
- The Open University (Prof. Mason UK)

Domestic

- NIFS (Prof. Kato under the Japan-Korea CUP program)
- JAERI (Dr. Kubo under the Fusion Plasma Project in Japan)
- Tohoku University (Prof. Ueda, SR experiment at Spring-8)
- RIKEN (Prof. Yamazaki, Highly Charged Ion)
- Science Univ. of Tokyo (Prof. Nagashima, Positron Collision)
- Tokyo Inst. of Tech. (Prof. Kitajima, Ultra-Low Energy Electron Collision)

* 「熱励起分子を含むプラズマ関連分子の電子衝突励起過程の研究」
平成20年度 核融合科学研究所共同研究 NIFS08KYAM017



まとめ

- **低エネルギー電子衝撃による多原子分子の微分散乱断面積の定量測定**
 - 弾性散乱（角度分布、積分断面積、運動量移行断面積）
 - 振動励起（ホット分子標的へ展開）
 - 電子励起（スケーリング則の検証）
 - 中性解離過程（ラジカル生成反応）
 - 解離性電子付着過程
- **定量データの生産**
- **ほかにも・・・**
 - 軟X線を用いた光電子分光、吸収スペクトル測定
 - 陽電子と原子分子散乱実験
 - 超低エネルギー（1eV以下）の電子分光実験
 - 飛行時間電子分光装置の開発など