

2012年12月12日 原子分子データ応用フォーラムセミナー
核融合科学研究所 研究I期棟4階402号室

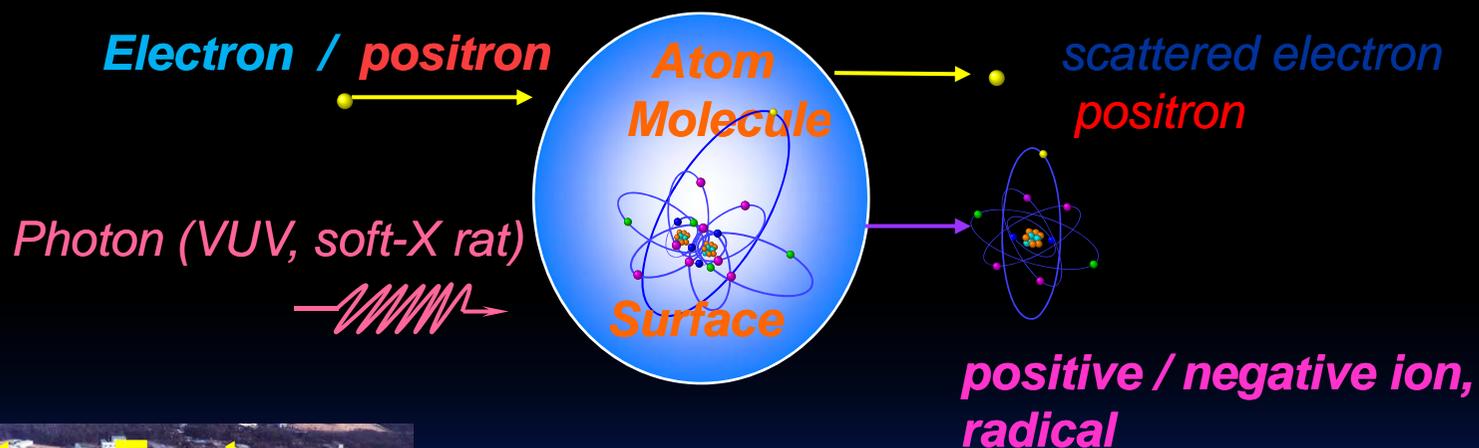
電子衝撃による原子分子過程と スケーリング則

上智大学 理工学部
物質生命理工学科（物理学領域）

星野 正光

はじめに

- ✓ 低エネルギー電子分光実験
 - 微分散乱断面積の絶対値測定
 - 加熱分子（振動励起分子）の電子分光実験
 - 解離性電子付着過程の研究

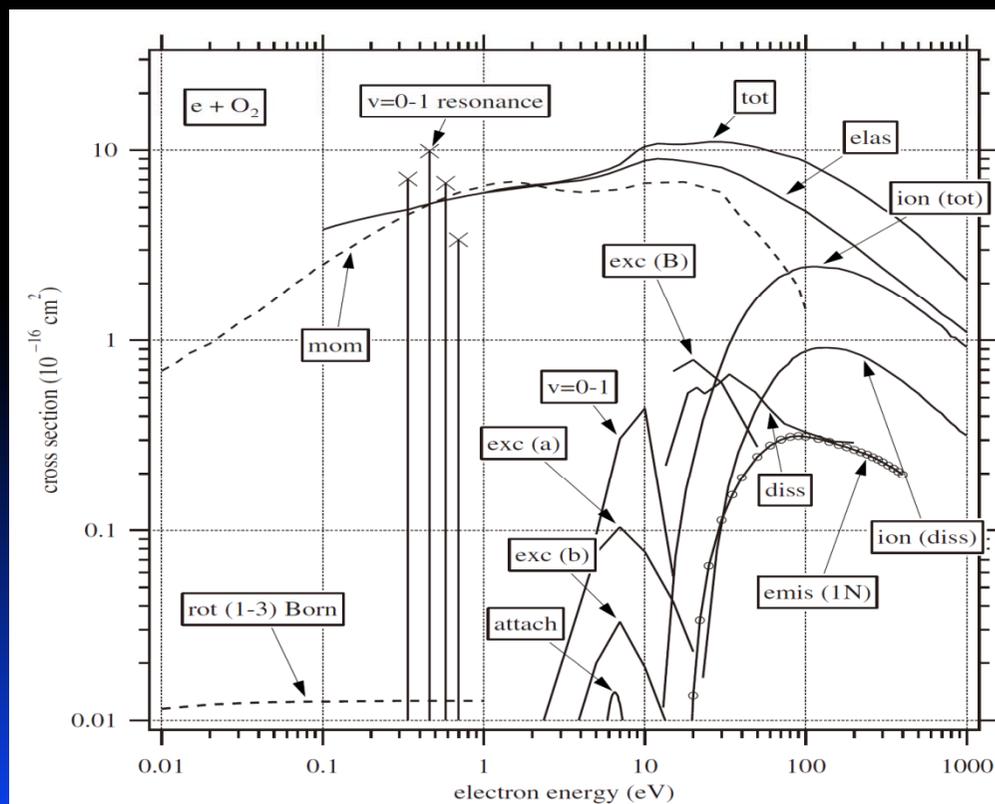
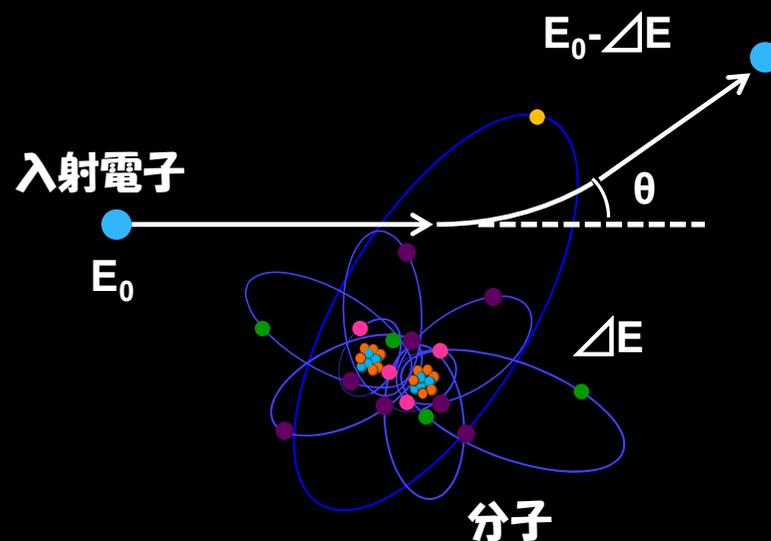


- * 超低エネルギー電子分光実験
(Clod electron collision, 東工大)
- * VUV 吸収スペクトルの精密分光実験
⇒ 吸収断面積測定

はじめに

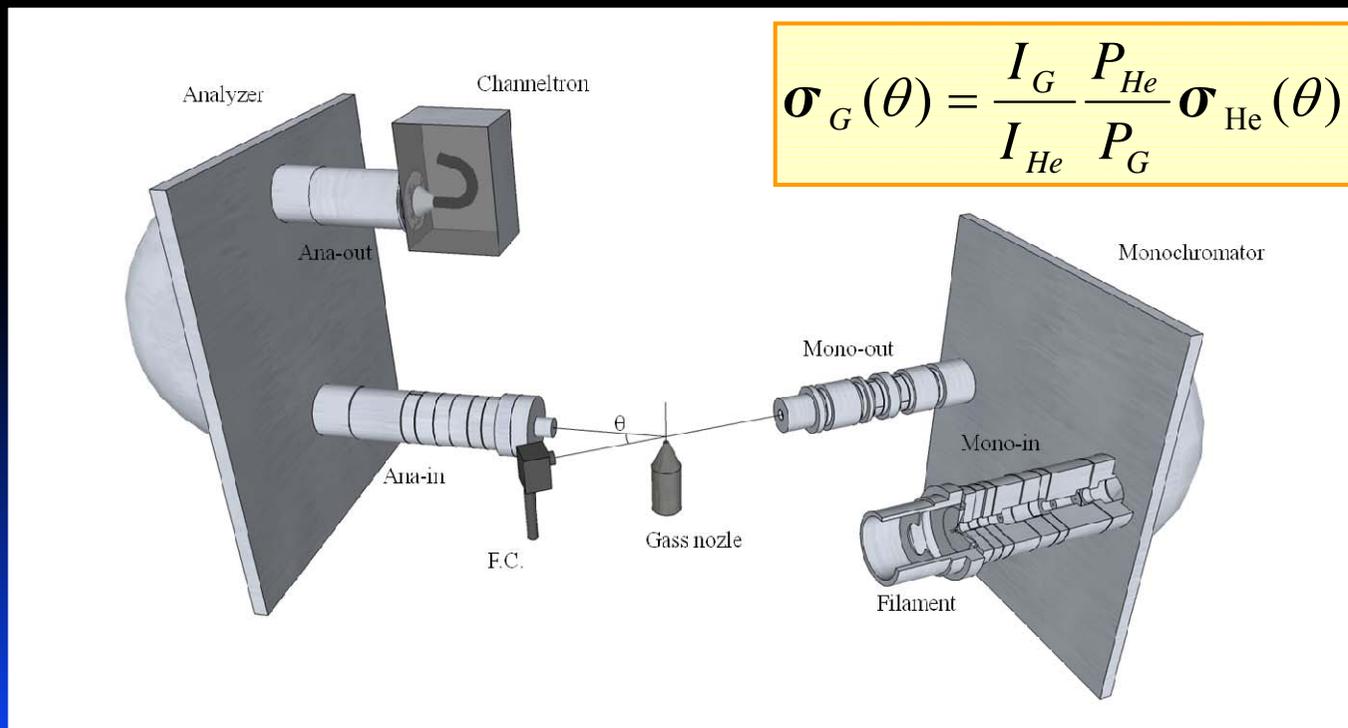
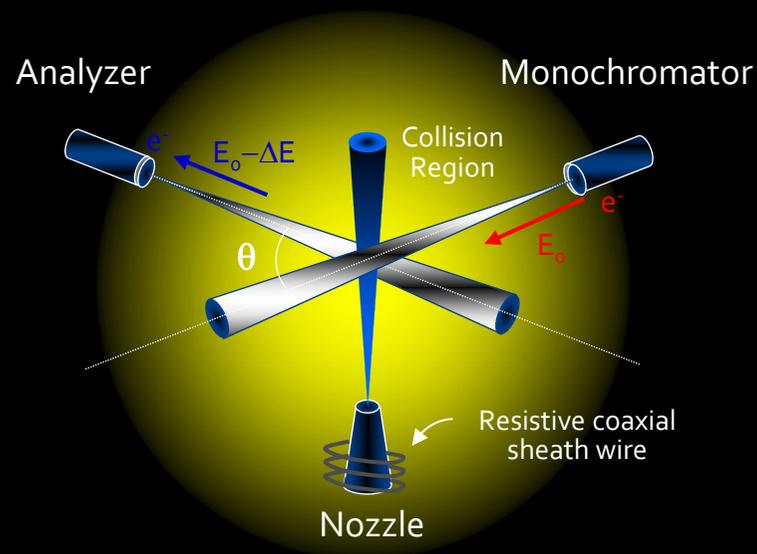
✓ 低エネルギー電子と原子・分子の散乱過程

- ✓ $\Delta E = 0$: 弾性散乱過程
- ✓ $\Delta E \neq 0$: 非弾性散乱過程
 - 回転励起 ($< \text{meV}$)
 - 振動励起 ($\sim \text{meV}$)
 - 電子励起 ($\sim \text{eV}$)
 - 電離 ($\sim \text{eV}$)



実験装置と実験条件

- ✓ クロスビーム法による断面積測定
⇒ 入射エネルギー 1.0eV-200eV,
散乱角度 -10° - 150°
- ✓ Relative Flow法による絶対値化
⇒ 絶対値が既知であるHeの弾性散乱
断面積に規格化

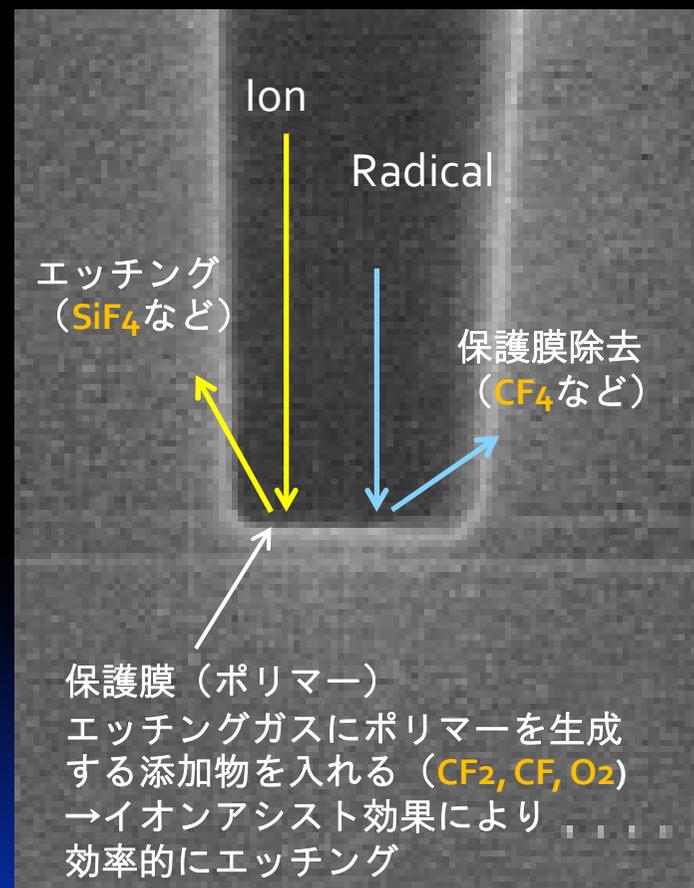


例) プラズマエッチングにおける電子散乱過程

✓ ドライエッチングプロセス

弱電離プラズマ中における電子温度：数 eV

励起	$A + e \rightarrow A^* + e$	電子衝突
電離	$A + e \rightarrow A^+ + 2e$	直接電離
	$A^m + e \rightarrow A^+ + 2e$	累積電離
	$A + B^m \rightarrow A^+ + B + e$	ペニング電離
	$A^m + A^m \rightarrow A^+ + A + e$	準安定原子同士の衝突
電子付着	$B + e \rightarrow B^-$	
解離	$AB + e \rightarrow A + B + e$	イオン解離
	$(AB)^+ + e \rightarrow A^+ + B + e$	
再結合	$(AB)^+ + e \rightarrow AB + hv$	放射再結合
	$A^+ + e \rightarrow A + hv$	解離再結合
	$(AB)^+ + e \rightarrow A^* + B^*$	
	$A^+ + B^- \rightarrow A + B$	イオン再結合
電荷交換	$A + B^+ \rightarrow A^+ + B$	



数eVの電子と原子分子衝突に関する定量データが重要

講演内容

- ✓ 主にドライエッチング工程に必要なフッ素化合物と酸素分子の電子散乱データについて紹介

1) フッ素化合物の弾性散乱過程における微分断面積

例) BF_3 分子

- * ドライエッチングの際のドーパントとしての利用
- * 激しい反応性と腐食性から基礎データの測定が不足している

2) 電子励起断面積（光学的許容遷移）のスケーリング則

例) O_2 分子

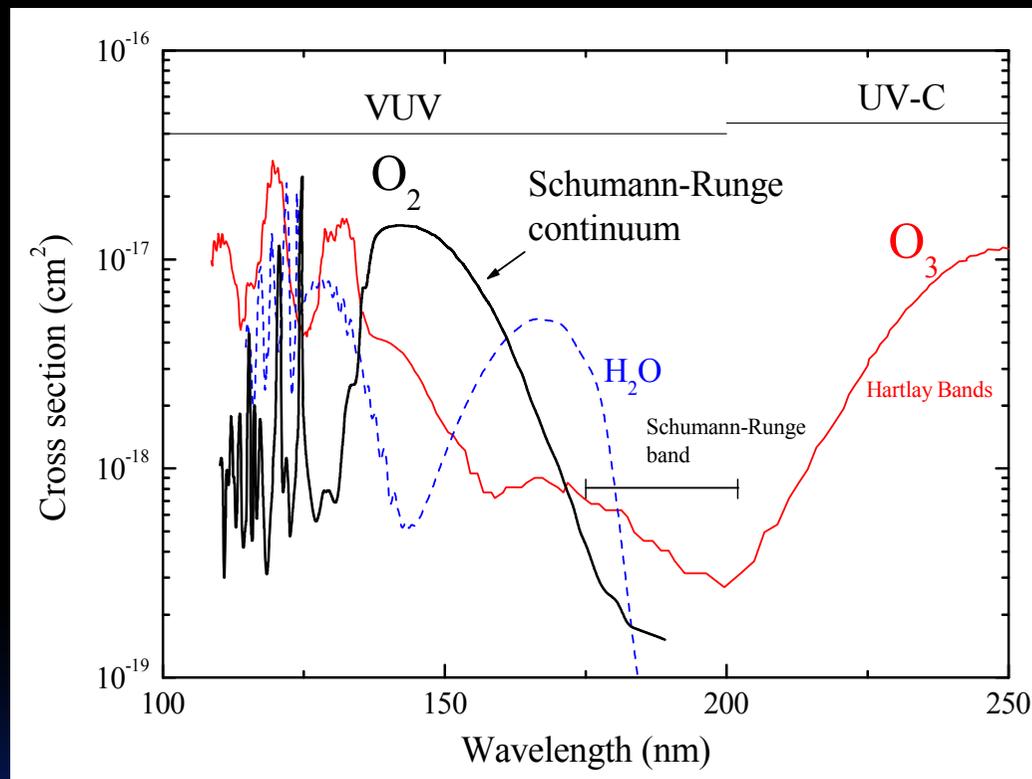
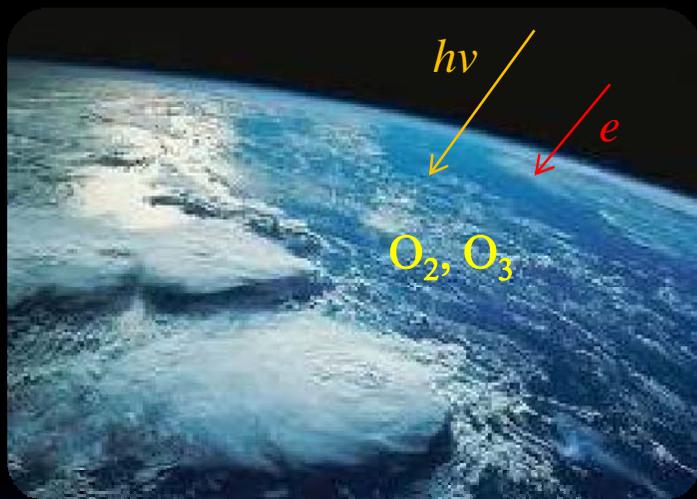
- * 工業的側面だけでなく、環境面でも非常に重要な分子

酸素分子の電子励起過程と スケーリング則

酸素 O_2 分子の例

酸素分子（上層大気における役割）

Schumann-Runge continuumと呼ばれる電子励起過程により紫外線 (VUV) を効率よく吸収



オゾン形成



活性酸素



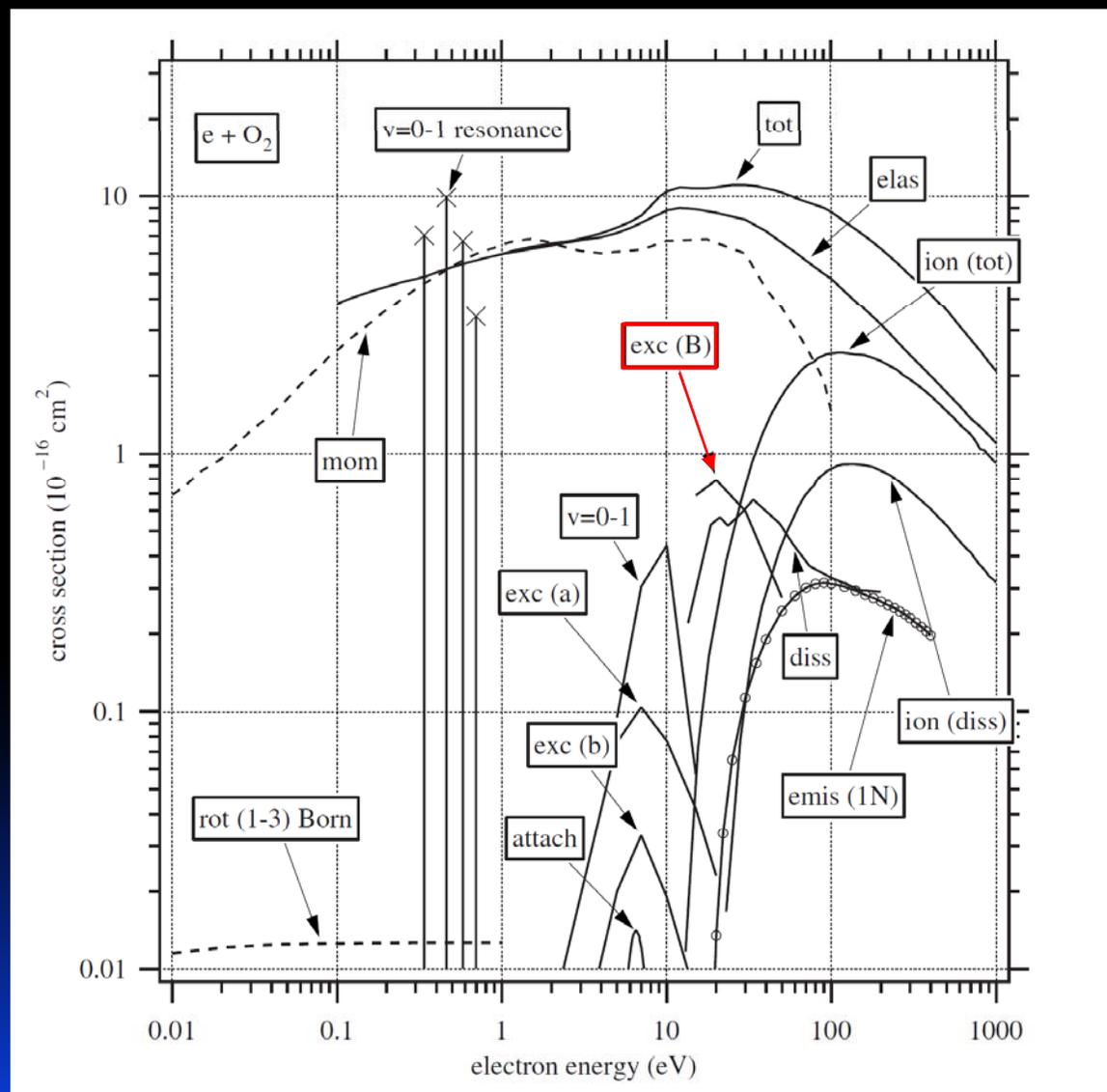
酸素分子の電子散乱断面積のデータセット

Itikawa による O₂の断面積データセット

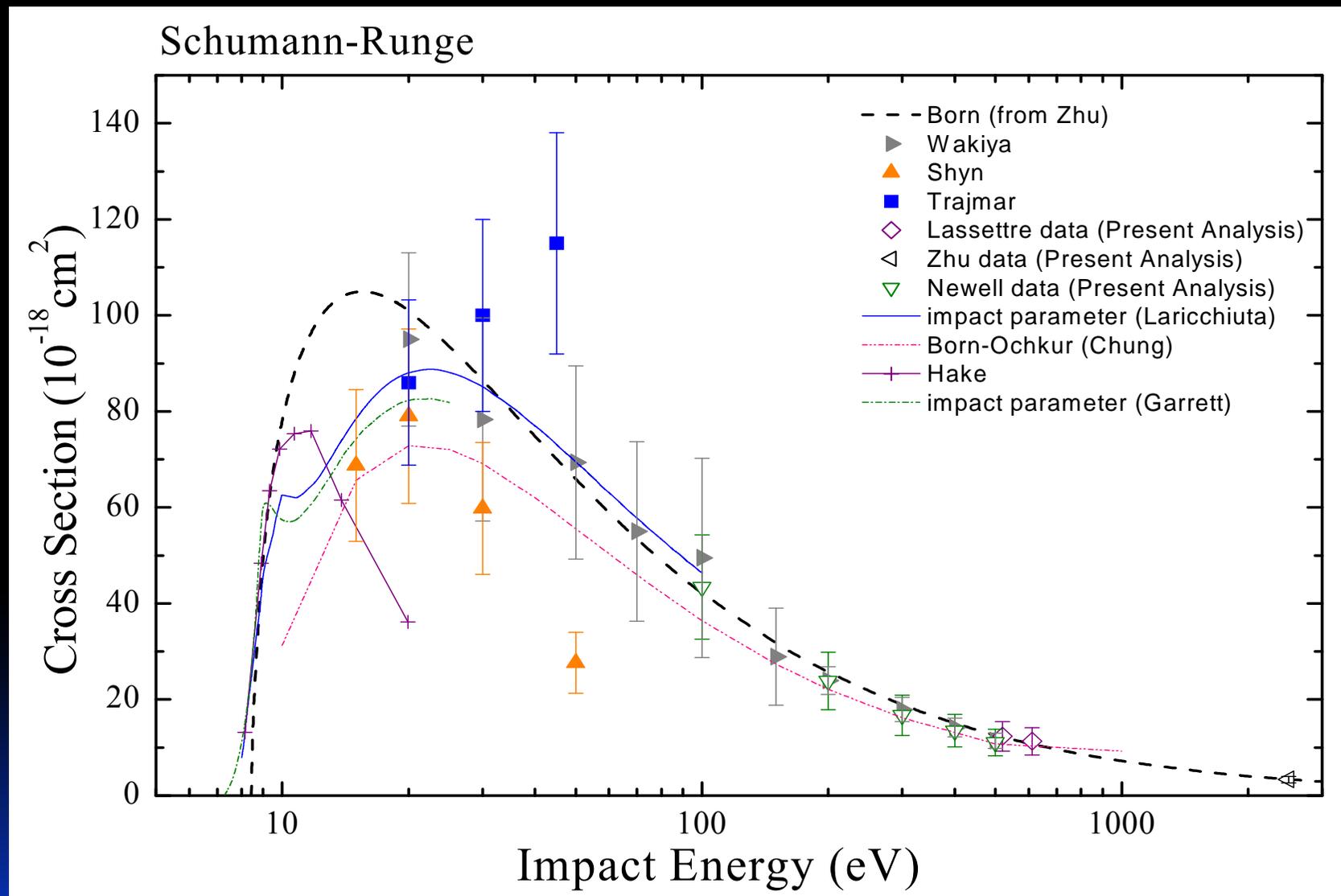
応用で用いるために、広いエネルギー範囲にわたり、さまざまな過程の正確な断面積の情報が必要

Exc (B)
→ Schumann-Runge
continuum

ベンチマークデータ
Shyn *et al.*



測定データの現状 (Schumann-Runge Continuum)



低エネルギー側 (15 – 50 eV) 相違点が多い
低エネルギーでもBorn 近似を支持

測定データの現状

現状 . . .

過去に多くの研究

⇒100 eV以下のエネルギー領域において相違点が多い



* 相違点の多い 15 – 200 eV で微分断面積の精密測定

{ Schumann-Runge continuum
Longest band
Second band

* ベンチマークとなる積分断面積を導出

* 光学的許容遷移の積分断面積を導出するBEf-scalingの検証

スケーリング則

イオン化断面積を導出するBEBモデル（1994年にKimにより提唱）

Binary-Encounter 理論と Born 近似を組み合わせることにより、精度のよい断面積の導出に成功

標的固有の定数と、振動子強度分布からイオン化断面積を導出

BEB(Binary-Encounter-Bethe) Model

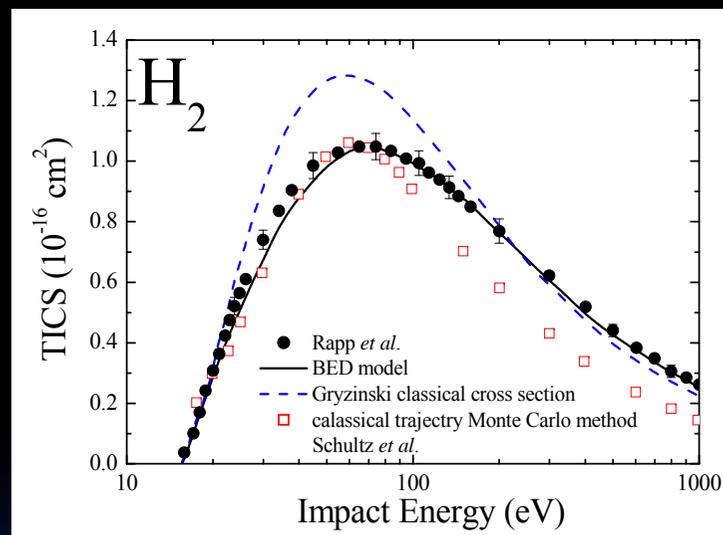
$$\sigma_{BEB} = \frac{S}{t+u+1} \cdot \left\{ \frac{1}{2} Q \left(1 - \frac{1}{t^2} \right) \ln t + \left(2 - Q \left[\left(1 - \frac{1}{t} \right) - \frac{\ln t}{t+1} \right] \right) \right\}$$

$t = T/B$, $u = U/B$, $S = 4\pi a_0^2 N (R/B)^2$, Q : Born近似で定義される定数

T : 入射エネルギー, U : 副殻の運動エネルギー, N : 副殻の電子数

$$Q = N_i / N, M_i = RN_i / 2B,$$

$$N_i = \int_0^\infty \frac{df(\omega)}{d\omega} d\omega$$



様々な標的（原子・分子・イオン）に対し、実験値を非常によく再現

BEB model を離散状態（特に光学的許容遷移）へ拡張

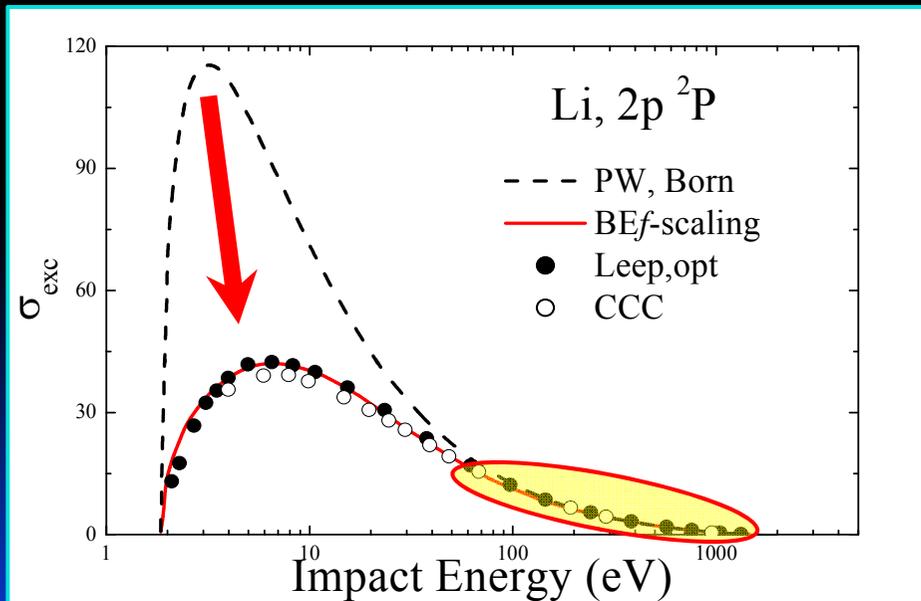
→ BEf-scaling

スケーリング則

Born 近似より導出された光学的許容遷移の ICS を標的固有の定数で補正することにより、幅広いエネルギー領域で実験値を再現

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

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



これまでに、当研究室では以下の標的について検証

希ガス	He, Ne, Ar, Kr, Xe
2原子分子	H ₂ , CO
3原子分子	H ₂ O, CO ₂ , N ₂ O
多原子分子	C ₆ H ₆

現在、N₂, NOなど検証中

酸素分子のエネルギー損失スペクトル

基底電子配置 O_2 : $(\sigma_g 1s)^2(\sigma_u 1s)^2(\sigma_g 2s)^2(\sigma_u 2s)^2(\sigma_g 2p)^2(\pi_u 2p)^4(\pi_g 2p)^2 \quad X^3\Sigma_g^-$

Excitation energy

Schumann Runge continuum

7.1 - 9.7 eV

Longest band

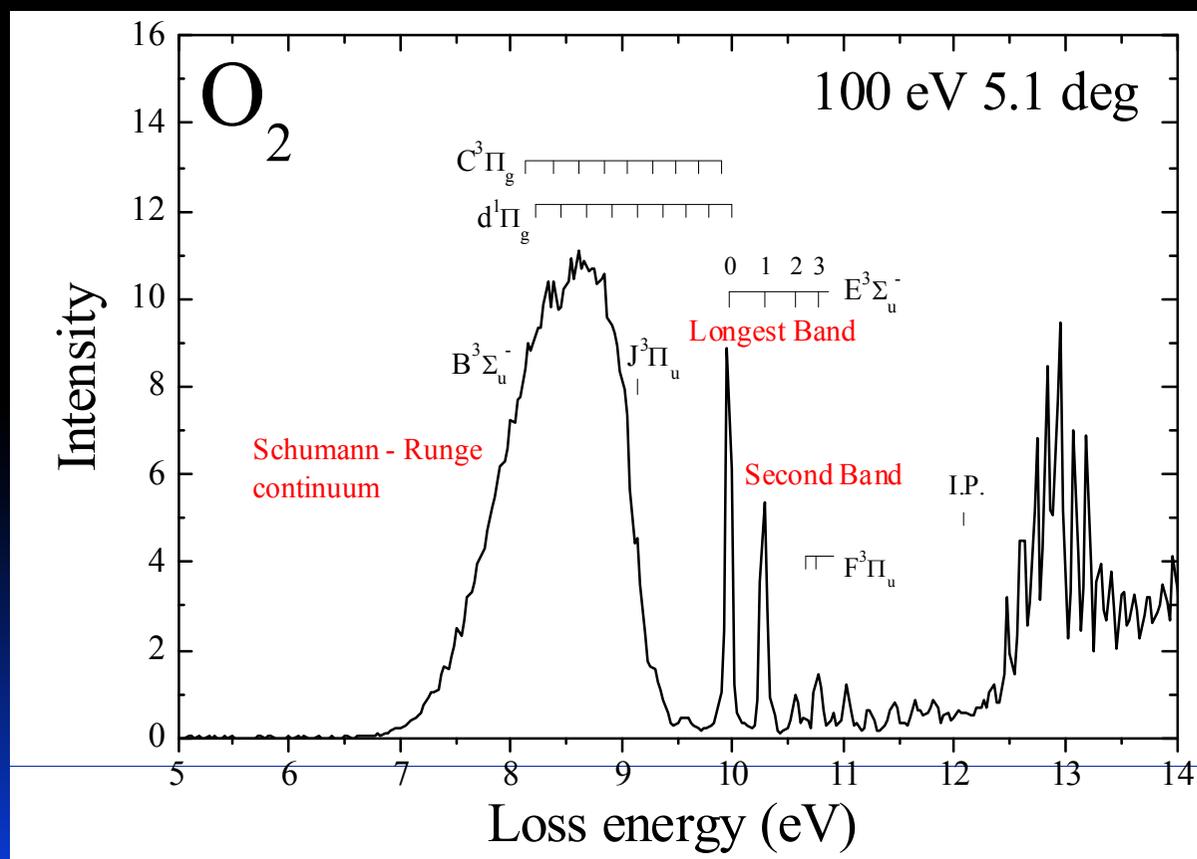
9.97 eV

Second band

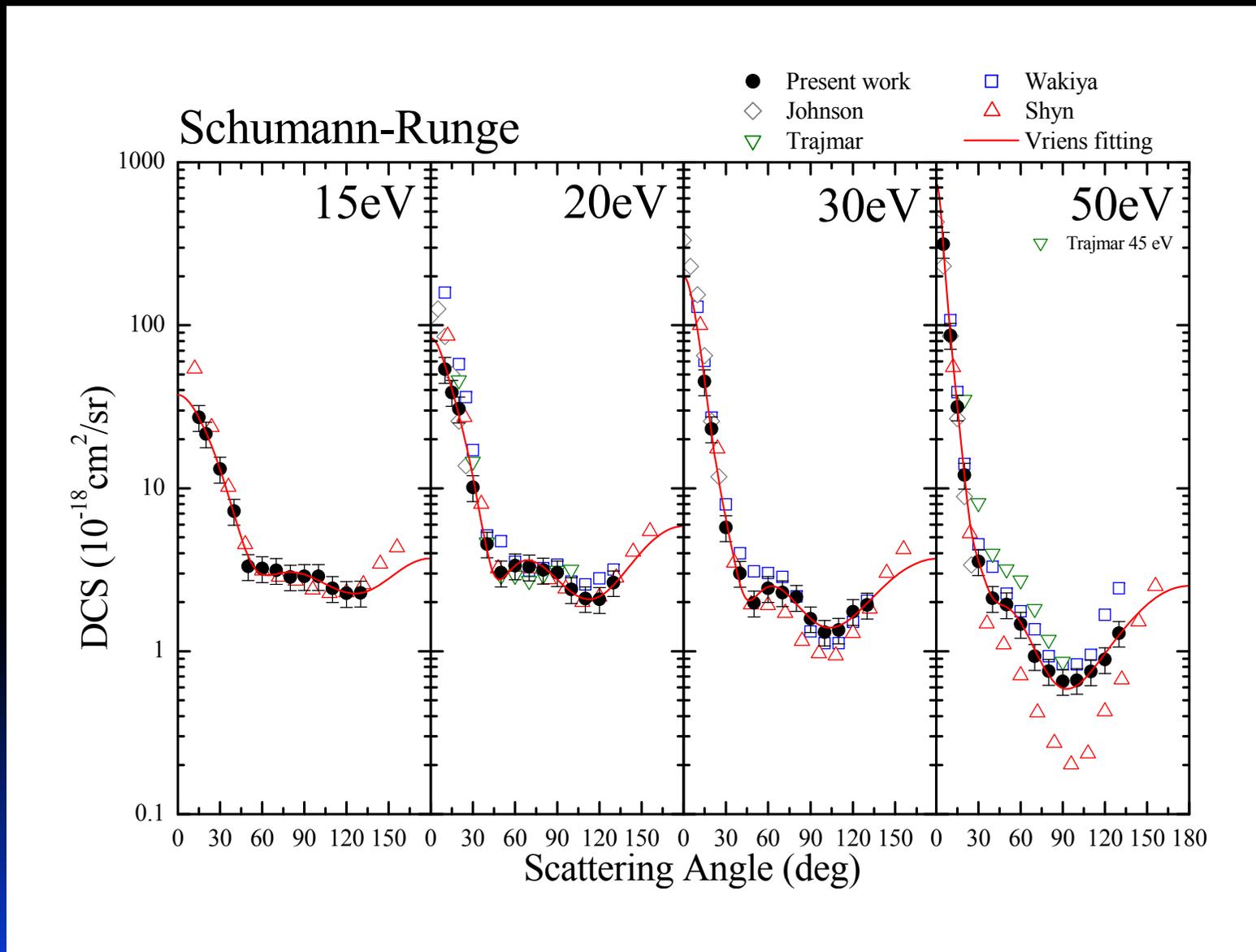
10.28 eV

Ionization Potential

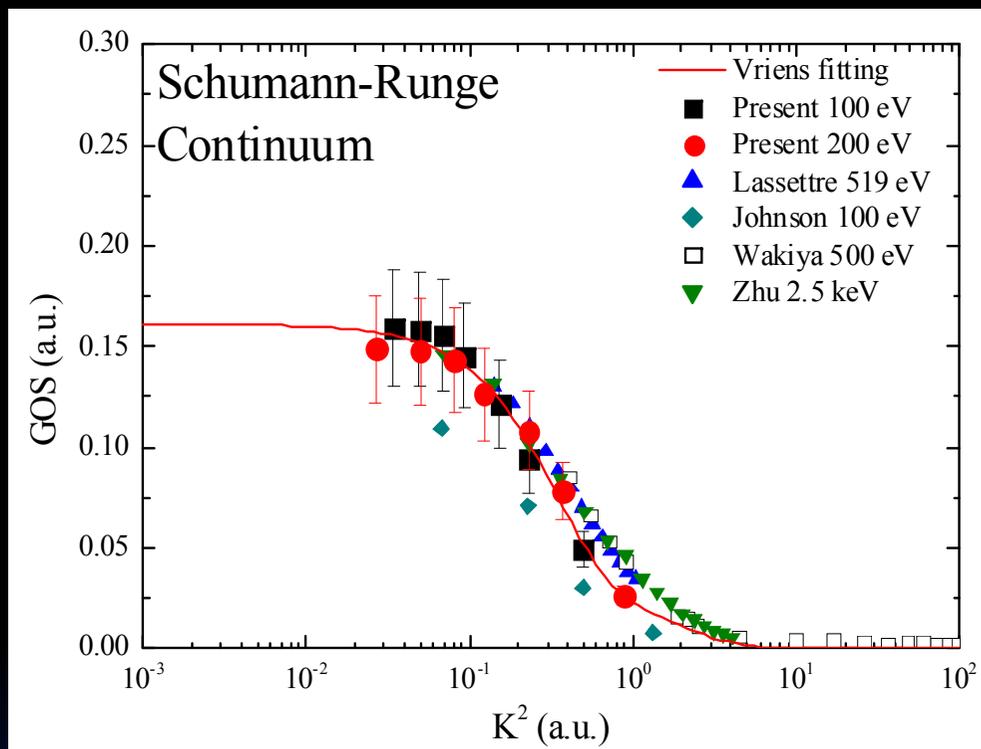
12.071 eV



微分散乱断面積 (Schumann Runge)



外挿方法



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

$F_{0\alpha}(K)$: 一般化振動子強度

$q(\theta)$: DCS

K : 運動量移行量

k_0 : 入射電子の運動量

k_α : 散乱電子の運動量

実験値の外挿、OOSの導出

$$f(K) = \frac{1}{(1+x)^6} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{f_n x^n}{(1+x)^n}$$

$$x = (K/\alpha)^2$$

$$\alpha = \sqrt{B/R} + \sqrt{(B-E)/R}$$

積分断面面積の導出

$$\sigma_\alpha = \frac{4\pi a_0^2 R}{T} \int_{(Ka_0)_{\min}^2}^{(Ka_0)_{\max}^2} \frac{f_{0\alpha}(K)}{E_\alpha/R} \frac{d(Ka_0)^2}{(Ka_0)^2}$$

$$(Ka_0)_{\min}^2 = 2 \frac{T}{R} \left[1 - \frac{E_\alpha}{2T} - \sqrt{1 - \frac{E_\alpha}{T}} \right] \quad \theta=0$$

$$(Ka_0)_{\max}^2 = 2 \frac{T}{R} \left[1 - \frac{E_\alpha}{2T} + \sqrt{1 - \frac{E_\alpha}{T}} \right] \quad \theta=180$$

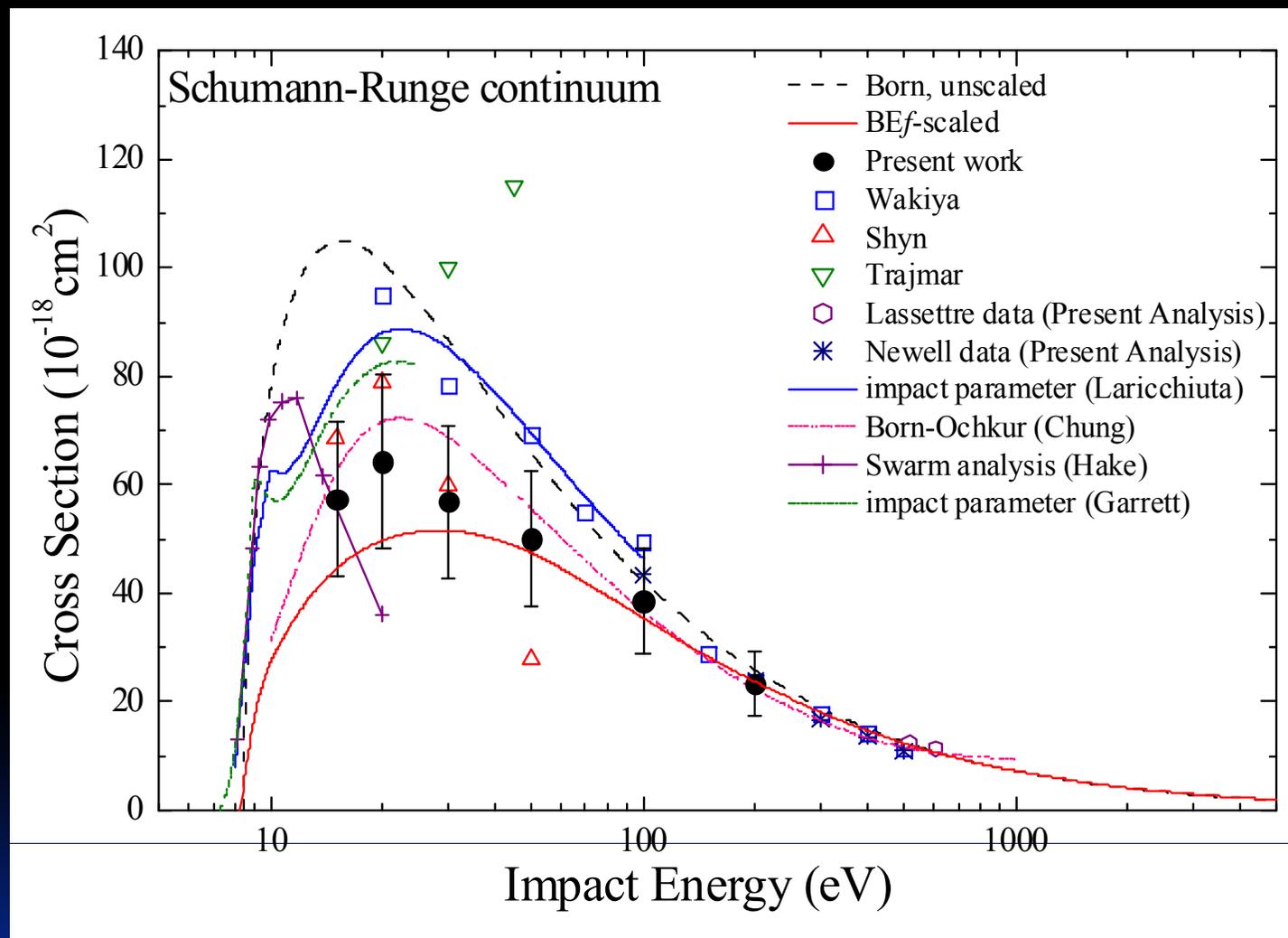
光学的振動子強度

- ✓ フィッティング曲線の $K \rightarrow 0$ の極限への外挿により、**光学的振動子強度**を求めることが可能

Author	Optical oscillator strength		
	SR	LB	SB
Electron impact			
Present work	0.161	0.00705	0.00623
Lassetre	0.23	-	-
Huebner	0.161	0.01024	0.00804
Chan	0.169	0.00844	0.00759
Photoabsorption			
Goldstein	0.156	-	-
Metzger	0.142	-	-
Watanabe	0.161	-	-
Ditchburn	0.215	-	-
Ladenburg	0.193	-	-
Lewis	-	-	0.00705
Ogawa	-	0.00833	0.00706
Theory			
Buenker	-	0.0136	0.0157
Yoshimine	-	0.0103	0.0124
Li(diabatic result)	-	0.01742	0.00562
Li(adiabatic result)	-	0.0182	0.00651

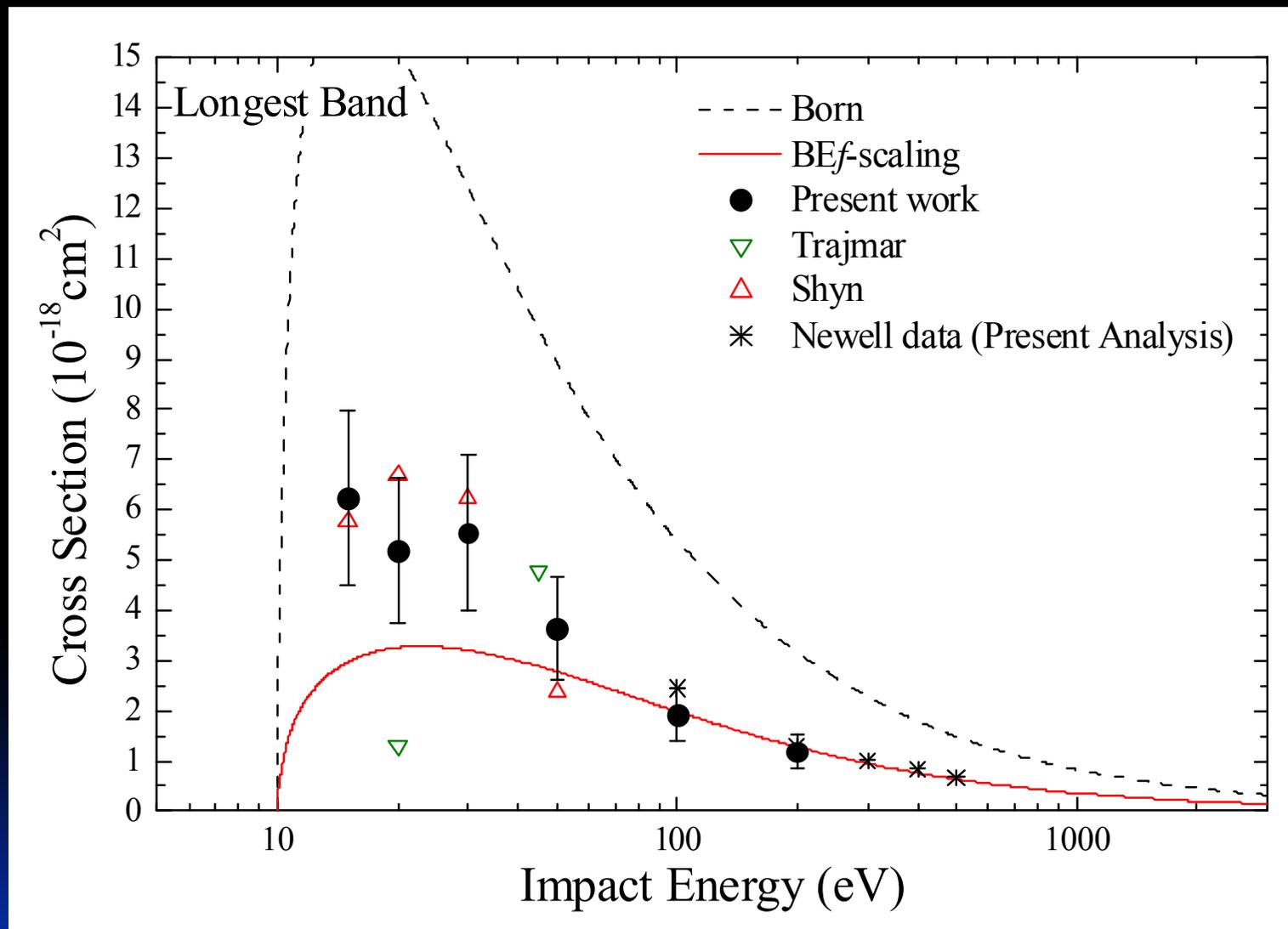
過去の光吸収および、電子散乱実験と良く一致

積分断面積 (Schumann Runge)



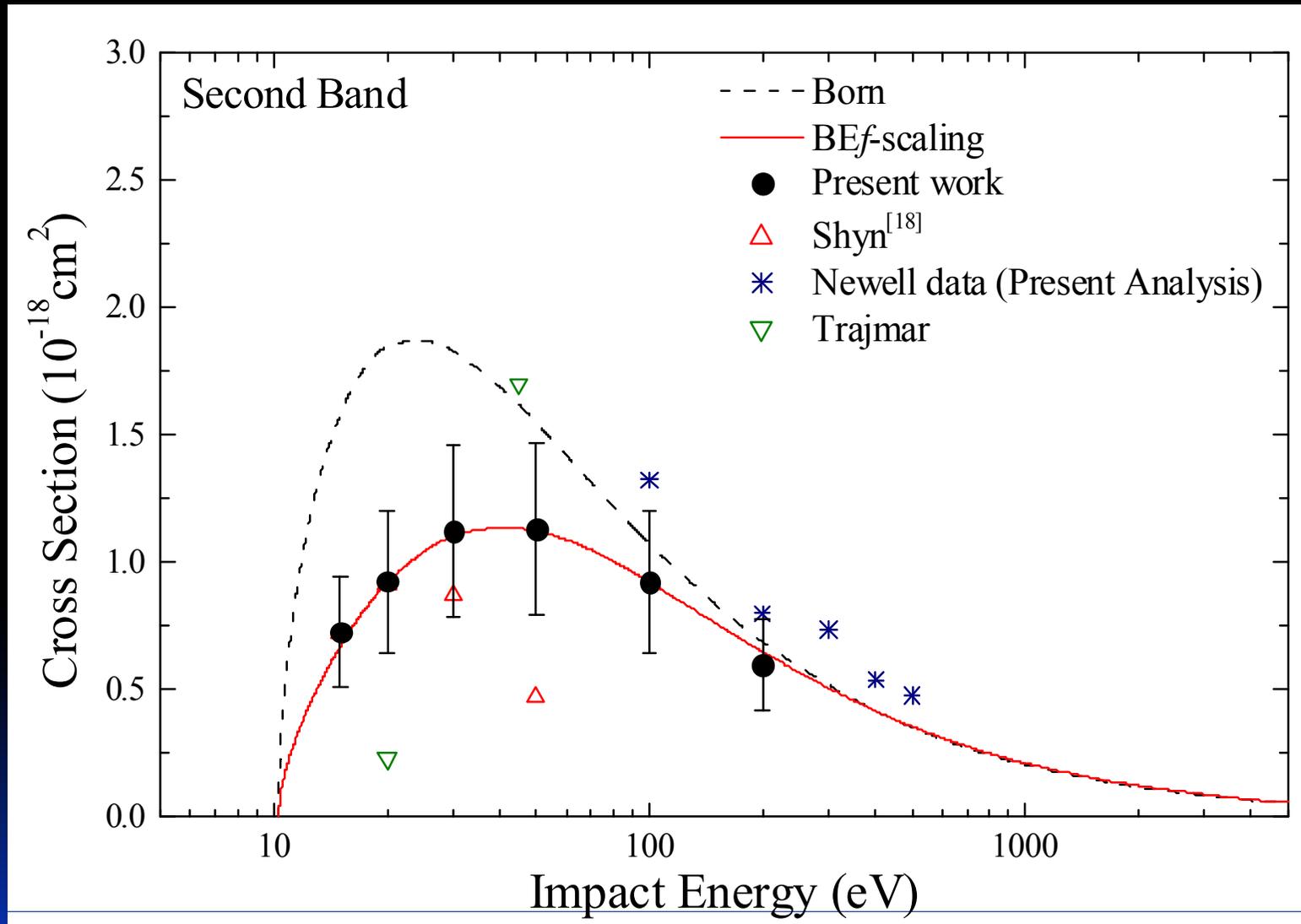
- BEf-scalingと実験値は誤差の範囲でほぼ一致
- ずれは、Schumann Rungeに含まれる禁制遷移の寄与
- Shynらの結果と15 – 30 eVにおいては傾向は比較的好く一致

積分断面積 (Longest Band)



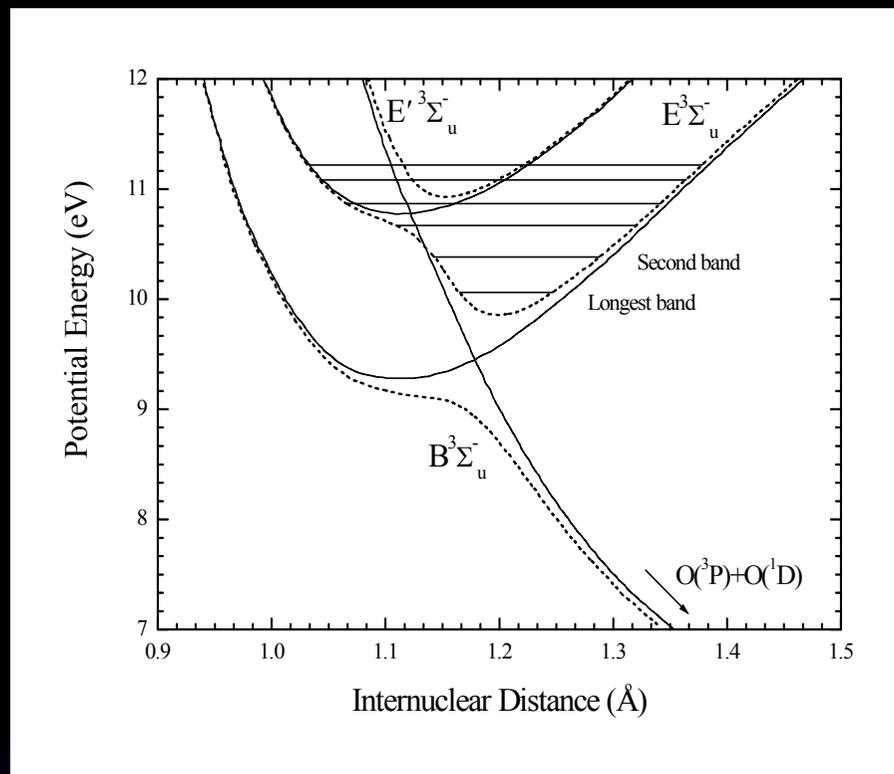
50 eV 以下の低エネルギーでBEf-Scalingと大きくずれる
Longest band は特異的な性質を持つことが知られている

積分断面積 (2nd Band)



BEf-scalingと実験値は非常によく一致

考察



B-state (Valence)とE-state (Rydberg)で Crossingが起きている

↓ 非交差則から同じ対称性を持つ B-state とE-state は交差回避により 点線で示したポテンシャルとなる

Rydberg-Valence のMixingにより、遷移モーメントに影響を与える可能性を示唆

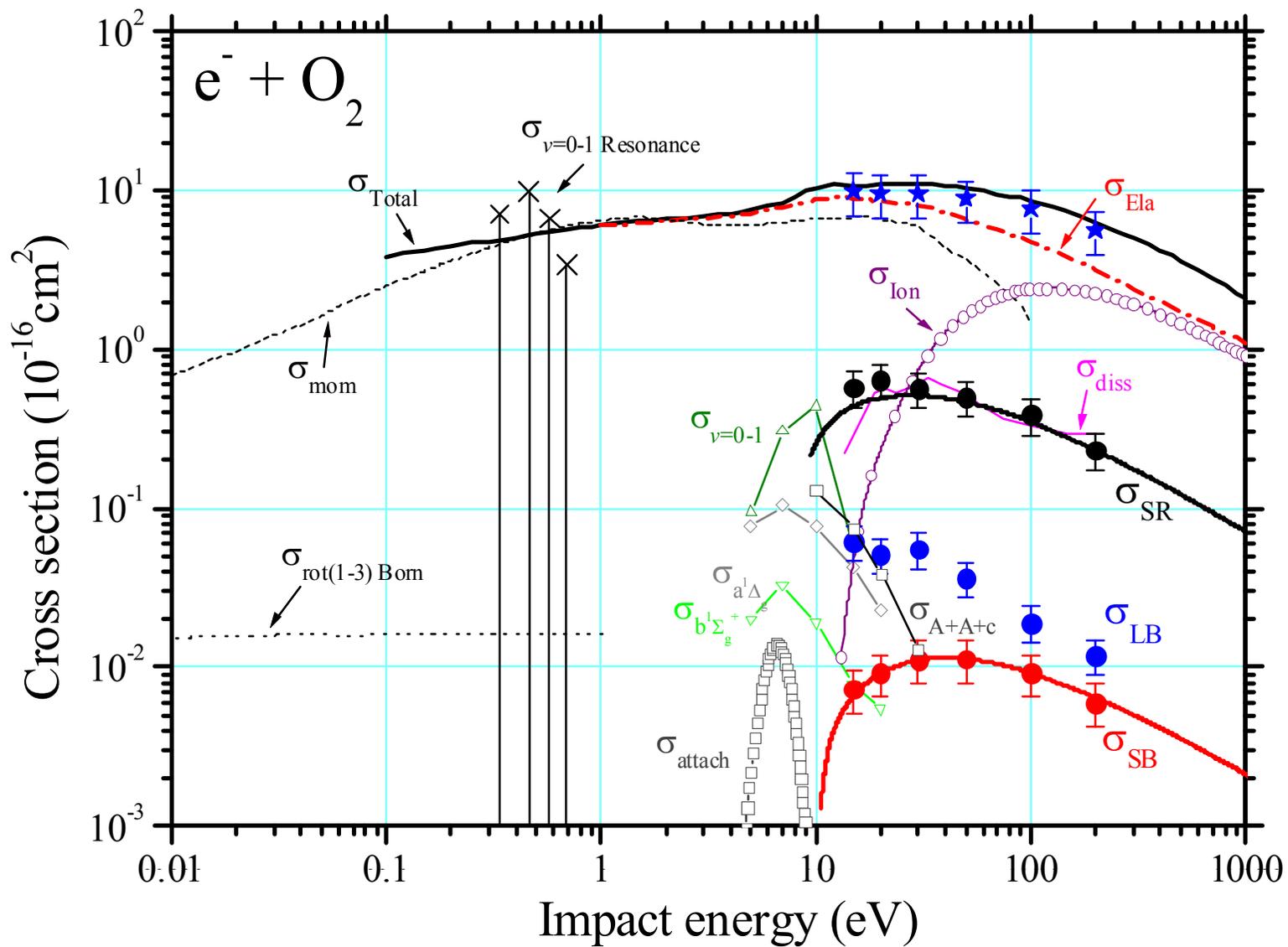
B. R. Lewis らによる、Diabatic potential-energy curves の理論計算

交差するエネルギーに近いLongest bandにのみ影響
→2nd BandにはBEf-Scalingは適用可能

B. R. Lewis et al. Phys. Rev. A **63** (2001) 022707

データセットのまとめ

Anzai et al. Eur. Phys. J. D 66, (2012)



まとめ

✓ 様々な応用面の基礎過程

→ 低エネルギー電子と原子分子の衝突における定量測定

▫ フッ素化合物の弾性散乱過程

→ IAM-SCARのモデルは非常に有効な理論計算

→ 周囲のF素原子の数により断面積をスケール可能

(ただし、 $E_0 > 30 \text{ eV}$)

▫ 電子励起過程（光学的許容遷移）

→ BEf-Scaling : Born近似の使えない低エネルギー領域で
BEBモデルに次ぐ有効なスケージング則