

JAERI-Conf  
95-022



原子分子衝突素過程研究会報告書  
1995年3月14~15日、東海村

1995年12月

原子分子データ研究委員会

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 株原子力資料サービス

原子分子衝突素過程研究会報告書

1995年3月14日～15日，東海村

日本原子力研究所東海研究所

原子分子データ研究委員会

(1995年11月22日受理)

原子分子衝突素過程に関する原子分子データ研究委員会の研究会が，1995年3月14，15日の2日間原研東海研究所で開催された。研究会の主題として，水素，ヘリウムのイオン・原子・分子が関与する衝突素過程を取り上げ，関連する最近の理論・実験研究，核融合開発上でのデータニーズ，原子分子データの評価研究の現状に関する講演が行われた。本報告書は，20の講演内容をまとめたものである。主な内容は，化学反応，イオン-分子反応，電荷移動，励起，電離，解離に関するものである。

Report of the Workshop on  
Atomic and Molecular Collision Processes  
March 14-15 1995, Tokai, Japan

A & M Data Research Committee

Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November, 22, 1995)

The workshop of the A & M data research committee on atomic and molecular collision processes was held at Tokai Research Establishment, JAERI, on 14-15 March 1995. Collision processes involving ionic, atomic, or molecular species of hydrogen and helium were selected as the main subject of the workshop, and the corresponding presentations on recent theoretical and experimental studies, data needs from the fusion energy community, and data evaluation work were made. This report contains 20 contributed papers concerning chemical reactions, ion-molecule reactions, charge transfer, excitation, ionization, dissociation, and so forth.

Keywords: Hydrogen, Helium, Cross Section, Chemical Reaction, Ion-molecule Reaction, Charge Transfer, Excitation, Ionization, Dissociation

---

Editors : Hiroki NAKAMURA and Toshizo SHIRAI

## 目 次

1. IAEA Advisory Group Meeting on "Atomic, Molecular and Particle Surface Interaction Data for Divertor Physics Design Studies" (1994.11.7-9, Vienna) 報告 核融合科学研究所 俵 博之	1
2. 3原子系化学反応素過程の量子動力学 分子科学研究所 中村 宏樹	5
3. $H^+, D^+, He^+, H_2^+, HD^+, D_2^+, H_3^+$ を含む系の反応 姫路工業大学理学部 小谷野猪之助	8
4. 原子と二原子分子の衝突における組み替え・解離反応 宇宙科学研究所 崎本 一博	14
5. 水素分子が関与する衝突素過程 東京理科大学基礎工学部 恩田 邦蔵	17
6. 励起 $\bar{p}He^+$ の $He$ との衝突による励起, 脱励起過程 国際基督教大学 渡部 力	21
7. 核融合エッジプラズマに関わる低エネルギーイオン-分子衝突における電荷移行反応 近畿大学理工学部 日下部俊男	29
8. 低エネルギー $Ar^{q+}$ ( $q = 6 \sim 11$ ) - $H_2, He$ 衝突における電子捕獲反応断面積 東京都立大学理学部 奥野 和彦	38
9. $A^{q+} + H_2$ における電子捕獲衝突 京都大学原子核工学教室 今井 誠	46
10. 低, 中間エネルギー領域における多価イオンによる電子捕獲過程 新潟大学理学部 島倉 紀之	50
11. 裸のイオン衝突による励起状態水素及び水素様イオンの電離断面積 日本原子力研究所原子炉工学部 五十嵐明則, 白井 稔三	60
12. ITER-NBI用の負イオン源とプラズマ中性化セルの開発 日本原子力研究所核融合工学部 奥村 義和	68
13. 電子衝突による励起水素原子 ( $H, D$ ) の生成過程と生成断面積 九州大学大学院総合理工学研究科 中島 慶治	80
14. 水素分子, ヘリウムに対する衝突輻射モデルと実効的反応速度係数 京都大学工学部 藤本 孝	84
15. JT-60Uにおける不純物(炭素, メタン)の発生 日本原子力研究所炉心プラズマ研究部 清水 勝宏	87
16. 炭素含有分子の電子衝突励起素過程 上智大学理工学部 田中 大, L. ボーステン, 由利 正忠	93

17. イオン分子と電子の衝突による解離および振動遷移過程 .....	103
北里大学医学部 高木 秀一	
18. ガドリニウムおよびネオジムの電荷移行断面積の測定 .....	107
日本原子力研究所燃料研究部 小倉 浩一, 柴田 猛順	
19. ガドリニウムおよびネオジムの対称電荷移行断面積の計算 .....	114
日本原子力研究所燃料研究部 柴田 猛順, 小倉 浩一	
20. 核融合のための原子分子データ活動 .....	122
日本原子力研究所原子炉工学部 白井 稔三	

## Contents

1.	Report of IAEA Advisory Group Meeting on "Atomic, Molecular and Particle Surface Interaction Data for Divertor Physics Design Studies"	1
	H. Tawara National Institute for Fusion Science	
2.	Quantum Dynamics for Chemical Reactions in Three-atom Systems	5
	H. Nakamura Institute for Molecular Science	
3.	Reactions Involving $H^+$ , $D^+$ , $He^+$ , $H_2^+$ , $HD^+$ , $D_2^+$ , and $H_3^+$	8
	I. Koyano Himeji Institute of Technology	
4.	Particle-rearrangement and Dissociation Processes in Collisions of Diatomic Molecules with Atoms	14
	K. Sakimoto Institute of Space and Astronautical Science	
5.	Collision Processes Involving Hydrogen Molecules	17
	K. Onda Science University of Tokyo	
6.	Excitation and De-excitation in Collisions between Excited $pHe^+$ and He	21
	T. Watanabe International Christian University	
7.	Charge Transfer in Low Energy Ion-molecule Collisions Relevant to Fusion Edge Plasmas	29
	T. Kusakabe Kinki University	
8.	Cross Sections for Electron Capture in Low Energy Collisions of $A^{q+}$ ( $q=6\sim 11$ ) with $H_2$ and He	38
	K. Okuno Tokyo Metropolitan University	
9.	Electron Capture Collisions in the $A^{q+}+H_2$ System	46
	M. Imai Kyoto University	
10.	Electron Capture Processes by Multiply-charged Ions at Low and Intermediate Energies	50
	N. Shimakura Niigata University	

11. Ionization of Excited Hydrogen and Excited Hydrogen-like Ions	60
in Collisions with Bare Ions	
A. Igarashi and T. Shirai	
Japan Atomic Energy Research Institute	
12. Development of NBI Negative Ion Source and Plasma Neutralizer	68
for ITER	
Y. Okumura	
Japan Atomic Energy Research Institute	
13. Production Processes of Excited Hydrogen (H and D) by	80
Electron Impacts	
K. Nakashima	
Kyushu University	
14. Collisional-radiative Model and Effective Reaction Rate	84
Constants for Molecular Hydrogen and Helium	
T. Fujimoto	
Kyoto University	
15. Occurrence of Impurities (Carbon and Methane) in JT-60U	87
K. Shimizu	
Japan Atomic Energy Research Institute	
16. Electron Impact Excitation Processes for Carbon-containing	93
Molecules	
H. Tanaka, L. Boesten, and M. Yuri	
Sophia University	
17. Dissociation and Vibrational Transition Processes of	103
Molecular Ions by Electron Impacts	
H. Takagi	
Kitasato University	
18. Measurements of Cross Sections for Charge Transfer of	107
Gadolinium and Neodymium	
K. Ogura and T. Shibata	
19. Calculations of Cross Sections for Symmetric Charge Transfer	114
of Gadolinium and Neodymium	
T. Shibata and K. Ogura	
Japan Atomic Energy Research Institute	
20. Activities on Atomic and Molecular Data for Fusion	122
T. Shirai	
Japan Atomic Energy Research Institute	

1. IAEA Advisory Group Meeting on "Atomic, Molecular and Particle Surface Interaction Data for Divertor Physics Design Studies" (1994.11.7 - 9, Vienna) 報告

核融合科学研 俵 博之

上記のAGMの目的は、1995年度秋より開始されるIAEA Atomic Data UnitでのCoordinate Research Program (CRP) on "Atomic, Molecular and Particle Surface Interaction Data for Divertor Physics Design Studies"を開始するにあたっての問題点と今後の活動方針を討論するための予備会合といえるものであった。

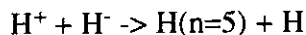
概要

現在計画中のITER divertorでのpower densityが50 MW/m<sup>2</sup>にも達し、通常の固体divertorではその負荷に耐えられないので、いわゆるgas divertor/gas dumperという概念が提案されている。これを実現するには、これまで以上に信頼のおける（特に励起状態を含む）原子・分子データが要求されている（詳細はIAEA Report -- INDC(NDC)-331 (1995)にまとめられている）。

1) ITER Divertorへ必要なA & M data

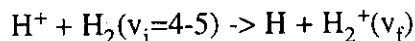
現在解っているA & Mデータをもとに、gas dumperの問題点を衝突データの立場から纏めてみると、次のようになろう：

- 1) divertor plasmaのcoolingには、一つのcollision processだけがdominantではなく、多くの衝突過程が複雑にからんでいる。
- 2) たとえば、次の過程

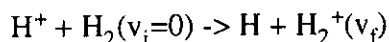


は断面積が0.1 eVで10<sup>-13</sup> cm<sup>2</sup>にも達し、plasma coolingにもっとも有効な方法の一つであろう。従って、強力なH<sup>-</sup>イオン源かそれに類似する励起状態にある水素分子H<sub>2</sub>(v<sub>i</sub>≠0)を多量に含むplasmas源/ガス源をdivertorの付近におくことが考えられる。

- 3) これらの励起水素分子の存在は、

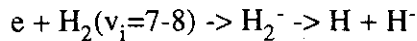


過程がresonantになるので、断面積も低エネルギー(=0.1 eV領域)で、>10<sup>-14</sup> cm<sup>2</sup>にもなり、ground stateの水素分子反応



がほとんど寄与しないのに比べ、plasma coolingに大きな作用をされると思われる。

[注] H<sup>-</sup>イオン生成には、次の過程



のように、励起水素分子が大きく寄与し、強力なH<sup>-</sup>-イオンが実現するようになったことは良く知られている。

- 4) 2)が有効に機能するためには、もちろん、前もって、他の手段でplasmaを適当に冷却していなければならない。HやH<sub>2</sub>との衝突(たとえば、elastic collisionによるmomentum transfer)によってのみで充分なのか、くわしく検討する必要がある。
- 5) 一方、radiative coolingの効率をあげるために、現在提案されているように、たとえば、Neなどを注入すると、上記の励起状態の水素分子イオンH<sub>2</sub><sup>+</sup>(v<sub>i</sub>≠0,1)はNe原子との衝突で、ただちにquench (H<sub>2</sub><sup>+</sup>(v<sub>i</sub>≥2) + Ne → NeH<sup>+</sup> + H)のcross sections, rateは非常に大きい: 10<sup>-9</sup> cm<sup>3</sup>/s)されて、H<sub>2</sub>(v<sub>i</sub>=0) になり、上記2)のH<sup>-</sup>を利用したplasma coolingが有効ではなくなってしまう。
- 6) 励起水素分子H<sub>2</sub>(v<sub>i</sub>)の存在が、divertor designにどのように有効に機能するかについては、もっと総合的な検討が不可欠である。
- 7) 励起水素原子H(nl)との衝突もこれまであまり検討されていない。たとえば、次のようなelectron transfer
- $$H^+ + H(nl) \rightarrow H(nl) + H^+$$
- もnが大きくなると、増加することが期待される。同時に、この励起原子H(nl)はimpurity ionsによるplasma coolingにも有効なはずである。
- 8) plasma中にあるproton coolingには、上記とは全く別の衝突過程いわゆる(laser-) stimulated-radiative recombination :
- $$H^+ + e + hv \rightarrow H(nl) + 2 hv$$
- も、低エネルギーで大きな断面積を持つが、divertorのような場所では必ずしも有効では無いであろう。
- 9) divertorのように、中性粒子密度の高いところでは、いわゆる3体衝突の効果が大きく効いてくることが考えられるので、これらのデータもくわしく検討する必要がある。
- 10) wall effectsは、必ずしも明確でない。特に、surface experimentsはいかにきれいなsurfaceを実現するかが大事であるが、実際のdivertor surfacesはいわば、"dirty"であり、(定性的にはともかく、定量的には)いまのデータをそのまま適用出来ない可能性がある。たとえば、水素が付着しているsurfacesではrelaxation processesが減少する可能性がある。vibrational excitation/relaxationのほか、極低エネルギー(<1 eV)粒子の固体表面へのstickingも重要になると考えられるが、まだ充分理解されていない。

## II) 現在のgas dumperに関連するデータの現状

## 1) 電子・原子・分子衝突データ

ground state分子 $H_2(v_i=0)$ 衝突に関するデータは、すでにIPPJ-AM-46 (H.Tawara et al. 1986)にも報告したように、実験および計算で得られており、精度もかなり良い。一方、vibrationally excited stateにある分子 $H_2(v_i \neq 0)$ に関する実験はごく少ないが、かなり信用できる計算がある：

a)  $e + H_2(v_i) \rightarrow H_2(v_f)$  : vibrational excitation/deexcitation

$v_f$ -distributions (dissociative attachmentを経由してのvibrational excitationが低エネルギーで著しい)。

->  $H_2^- \rightarrow H^- + H$  : dissociative attachment

$v_i=6-$ で、 $v_i=0$ に比較して、 $10^5 - 10^6$ 倍もenhanceされる。

( $H^-$ イオン生成およびdivertor plasma cooling (?)に特に重要である)

->  $H(1s) + H(1s)$  : dissociation

low energies (<1-2 eV)で、large  $v_i$ に対し、大きなenhancementが起こる

(dissociative attachmentを経由してのdissociationのenhancement)。

b)  $e + H_2^+(v_i) \rightarrow H(1s) + H^*(nl)$  : dissociative recombination->  $H(1s) + H^+$  : dissociative excitation

これらは、低エネルギーで大きい。放出されたkinetic distributionに関するデータは充分でない。

2)  $H, H_2, H_3, He$ , およびこれらのイオン間の衝突：

( $AB, CD$ は原子および分子を含み、 $v_i, v_f$ は衝突前後のvibrational stateを示す)。考慮すべきprocessesとそのデータは電子衝突の場合とくらべ、種類が多くなる。例えば、

elastic scattering (momentum transfer, viscosity)

vibrational/rotational excitation/deexcitation

charge transfer

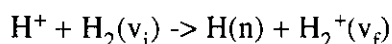
dissociation

particle transfer (particle rearrangement reaction).

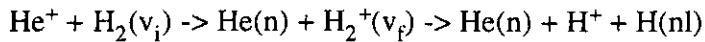
これまでのところ、 $v_i=0$ の分子に関してのデータはかなり信頼おけるものがあり、

また、Franck-Condonのような分布を持つ場合には少しデータがあるが、 $v_i \neq 0$ での

データは限られている。衝突過程たとえば charge transfer processes



では、 $v_i=0$ に比べ、 $v_i=4-5$ では resonant になり、断面積は低エネルギーで非常に大きくなると予想され、また、



では、 $v_i=0$ から $v_i=1$ にふえると、断面積は100倍近くに増える。

これらの断面積を決定している重要なパラメーターは、

- a) 衝突の際のenergy defect  $\Delta E$  (数10 meVでも低エネルギーでは顕著)
- b) vibrational excited state  $v_i$  ( $v_i$ -依存性は低エネルギーで顕著)
- c) isotope/mass effect (低エネルギーで顕著)。

### 3) 固体表面での衝突

clean surfacesでのデータは信頼できるところにきているが、plasma devicesのように "undefined dirty" surfacesへのデータ accessは注意を要する。

ITER divertor plasmaに対するwall effectsは明確でない。特に、surface experimentsはいかにきれいなsurfaceを実現するかが大事であるが、実際のdivertor surfacesはいわば,"dirty"であることを考慮しなければならない。たとえば、水素が付着しているsurfacesではrelaxation processesが減少する可能性がある。以下の固体表面での衝突過程のデータはいまだ、充分ではない：

- a) vibrational excitation/relaxationでの $v_f$ -distribution
- b) reflection, sticking (特に、極低エネルギー(<1 eV)粒子に関して)
- c) 分子などのdesorption/adsorption
- d) 表面でのrecombination
- e) dissociative scattering.

もっとも広く利用されているTRIM codeがITER divertorで重要な(1 eV以下の)低エネルギーで正しいかどうか疑問があり、Molecular Dynamic (MD) codeなどを取り入れる必要がある。

これまで(ITER divertor meeting, AGMなど)の討論を通して、かなり、A & Mデータの現状が解ってきたので、collision関係者とplasma関係者が額を合わせて、critical discussionをし、いま、なにが不足しているのか、ほかに、まだ考慮してない重要な衝突過程がなにかをくわしく検討すべき時期に来ていると思う。来年からのCRPでは、総合的検討を行い、まだ不十分なデータの検討・新たな計算などを進める予定である。

なお、参加者のくわしい報告がありますので、興味をお持ちの方は連絡ください。

## 2. 3 原子系化学反応素過程の量子動力学

分子科学研究所 中村宏樹

### § 1. 序

反応動力学論の目的はポテンシャルエネルギー曲面のトポグラフィー及び反応分子の質量や内部エネルギーが反応の起り易さにどのような影響を及ぼすのかを理解し、必要に応じて散乱行列、反応確率、反応断面積、反応速度定数等の諸量を定量的に評価する事を可能にする事である。原子-2原子分子系反応については最近の理論的(数値計算的)進歩がめざましく、量子化学によるポテンシャルエネルギー曲面の評価及び分子線実験との緊密な相互影響による発展が可能となってきた。本講演では我々の研究室での活動を中心に最近の進歩の概略を紹介する。

### § 2. 量子動力学の理論的手法

反応の最小単位である原子-2原子分子系の動力学を量子力学的に正しく理解しようとする研究は近年急速に進歩した。方法論を分類すると大略次の様になる。<sup>1)</sup>

- (1)超球座標系での緊密結合方程式法：超球座標とは反応系の大きさを表す超球半径( $\rho$ )と超球角からなる座標系で複数個の組替えチャンネルを統一的に記述出来、反応領域で有効な座標系である。超球半径一定の所での内部状態を解き、それに関する展開を用いて超球半径方向に関する散乱を記述する連立微分方程式(緊密結合方程式)を解いて散乱行列を求める。
- (2)変分法：散乱問題に対する変分原理(Kohn, Newton等)を用いる。
- (3)時間依存波束の方法：時間依存シュレーディンガー方程式を解く。精度は落ちるが計算は容易である。
- (4)古典・量子混合：ある自由度については古典力学的に近似してしまう。
- (5)負虚数ポテンシャル法：生成物領域に吸収型の虚数ポテンシャルを置いて、全反応確率を簡便に求めようとするものである。

### §3. 反応動力学の定性的理解

超球座標は数値計算上の偉力に加えて、反応動力学の定性的理解にも力を発揮する。それは特に、低次元化した時に顕著となる。内部固有状態を超球半径の関数として表したポテンシャルエネルギー曲線群をながめる事によって、以下に述べる様な点についての定性的理解が進められる。

- (1) 反応遷移（粒子組替え）はどこで起るのか  
——ポテンシャルリッジの重要性、
- (2) ポテンシャル曲面のトポグラフィの効果、
- (3) 内部状態の役割、
- (4) 同位体効果（反応物の質量を変えるとどうなるか）、
- (5) 配向依存性（立体効果）、
- (6) 共鳴現象の解析。

動力学の詳細なしかも大変な計算をしなくても、上述のポテンシャルエネルギー曲線図をながめる事によって、これらの定性的設問には相当答える事が出来る。<sup>2)</sup>

### §4. 反応動力学の定量的評価

超球半径  $\rho$  を固定して超球角に関する内部運動の固有値問題を先ず離散変数表示 (DVR) 法で解き、更にコリオリ相互作用をも対角化して、全角運動量  $J$  の下での断熱固有状態を  $\rho$  の関数として求める。動力学はこれを基にして、 $\rho$  方向の散乱問題（連立微分方程式）をR-行列伝播法で解き、反応の散乱行列、反応確率、反応断面積、反応速度定数等を求める。

最近の理論的手法の進歩により、この3次元系の量子力学的厳密計算が実行可能となっている。反応動力学論の新しい時代の幕開けを迎えていると言ってよい。具体例として、我々の研究室で最近研究した  $D + H_2$ 、 $Cl + H_2$ 、 $O + HCl$ 、 $Mu + H_2$  等の反応系についての結果を紹介する。ポテンシャルエネルギー曲面の効果、初期回転状態の効果、トンネル効果等について興味ある知見が得られている。<sup>3-6)</sup>

### §5. 将来の展望

反応動力学解明の将来に向けての私見を述べる。

- (1) 定性的理解の進め：全ての状態が一度に反応に寄与している筈はないので、何らかの“隠れた対称性”に基づく有効な状態数減減化法を案出すべきである。
- (2) 量子化学及び実験との相互作用：精度の良いポテンシャル曲面が必要となってきている。また、

実験との交流が益々大切となる。

(3) 電子的非断熱反応：既に試みは始まっているが、大事な挑戦である。

(4) 多原子分子系：自由度の分離と環境効果の取り込みについて有効な方法の開発が必要である。

#### 文献

1. 例えば、Adv. in Molec. Vibr. and Collision Dynamics, vol. 2A ed. J. M. Bowman ( JAI Press, 1994 ).
2. A. Ohsaki and H. Nakamura, Phys. Rep. **187**, 1 ( 1990 ).
3. S. Takada, A. Ohsaki and H. Nakamura, J. Chem. Phys. **96**, 339 ( 1992 ).
4. K. Moribayashi, S. Takada and H. Nakamura, J. Chem. Phys. **100**, 4284 ( 1994 ).
5. S. Takada, K. Tsuda, A. Ohsaki and H. Nakamura, 文献 1, p.245.
6. K. Tsuda, K. Moribayashi and H. Nakamura, Chem. Phys. Lett. **231**, 439 ( 1994 ).

### 3. $H^+$ , $D^+$ , $He^+$ , $H_2^+$ , $HD^+$ , $D_2^+$ , $H_3^+$ を含む系の反応

姫路工業大学理学部 小谷野猪之助

#### 1. 序論

本研究会の中心課題である「水素・ヘリウムのイオン・原子・分子が関与する反応過程」のうち、イオン-分子反応についてレビューを行った。ガスダイバータの概念設計等においてまず必要とされるデータは、これらの化学種が共存している系に各種のイオンができた場合にどのような反応が起こるか（何と何かから何が出来るか）ということとそれらの速度定数であろうと思われるので、まずこれらのデータの所在について紹介した。ついで、イオン-分子反応の速度定数には温度依存性がないと長い間いわれてきたが、実際はけっしてそうではないことを強調し、とくに、高温や低温における反応を論ずる場合には注意を要することを述べた。さらに、反応の内部エネルギー依存性の重要性に鑑み、内部状態選択法および状態を指定した反応の最近の動向について概観した。

#### 2. 反応速度定数のデータ

上記の系における反応は、反応論的立場からいっても応用的見地からいっても基礎的なものばかりであり、いずれも非常によく研究されている。とくに最近、SIFT法やICR法をはじめとする新手法によって、信頼できる速度定数データの蓄積が急速に進み、それらを集成した便利なデータ集も多く出されている。それらのうち、下記の2つが便利である。

(1) Y. Ikezoe, S. Matsuoka, M. Takebe, and A. Viggiano,

"Gas Phase Ion-Molecule Reaction Rate Constants through 1986".

(Maruzen, Tokyo, 1987).

(2) V. G. Anicich,

"Evaluated Bimolecular Ion-Molecule Gas Phase Kinetics of Positive Ions for Use in Modeling Planetary Atmosphere, Cometary Comae, and Interstellar Clouds"

J. Phys. Chem. Ref. Data **22**, 1469 (1993).

とくに後者は、反応の種類こそ前者より少ないが、存在するデータの羅列ではなくきちんと評価された値が載っており、反応ごとに最も信頼できる速度定数をすぐ知ることができる。たとえば、上記の系では  $H_2^+$  は  $H$ ,  $H_2$ ,  $D_2$ , および  $He$  と反応すること、それらの反応の生成物はそれぞれ  $H^+$ ,  $H_3^+$ ,  $H_2D^+/HD_2^+$ ,  $HeH^+$  であること、およびそれらの速度定数がすぐわかるようになっている。

### 3. 速度定数の温度依存性

イオン-分子反応の速度定数には温度依存性がないと一般にいられている。これに理論的(?)根拠を与えているものは、旋回運動(オービティング)に至る衝突径数  $b_0$  より小さい衝突径数で近づいたイオンと分子は 100% 反応するという仮定である。しかしこの仮定は必ずしも正しくない。旋回軌道より内側に入る断面積  $\pi b_0^2$  に対応した速度定数には確かに温度依存性はないが、反応の活性化エネルギーやエントロピー的なボトルネックは原子や原子団の組み替えが実際に起こるところに存在する。その起こる場所は多くの場合旋回軌道より内側にあり、したがって、旋回軌道の内側に入り込んだからといって100%反応するわけではない。実際、最近の広い温度範囲にわたる測定は、速度定数の温度依存性はきわめてまちまちであることを示している。とくに注目すべきことは、ある温度範囲においては見かけ上負の活性化エネルギー(温度の上昇とともに速度定数が減少する)を示すものがあることである。Fig. 1 に、測定された速度定数の温度依存性の例を示す。<sup>1)</sup>

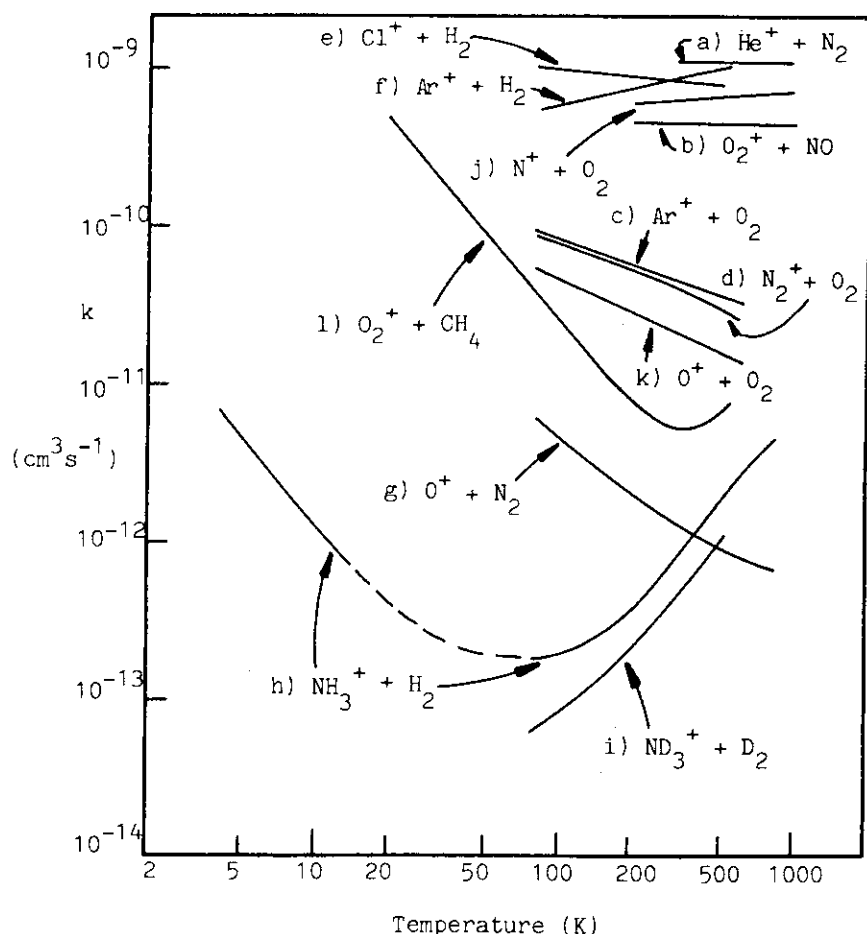
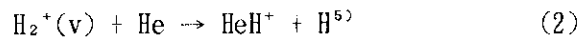
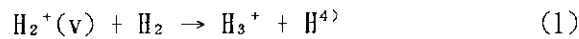


Fig. 1. Temperature dependence of the rate constants  $k$  for several types of exoergic binary ion-molecule reactions.

[Adapted from ref.1]

## 4. 速度定数/断面積の内部エネルギー依存性

イオン-分子反応の速度は、反応イオンの内部エネルギーに大きく依存する。プラズマ中での反応等、特殊な条件下での反応を考えるとときにはとくにそのことを念頭におかなければならないであろう。幸い、気相のイオン反応においては、光イオン化を利用したユニークな状態選択法<sup>2)</sup>が可能であることから、状態選択イオン-分子反応の研究は1970年代の中頃から活発に行われ、これまでに反応断面積の振動状態依存性やスピン-軌道状態依存性についてかなりのデータが蓄積されている<sup>3)</sup>。ここでは、 $H_2$ , He を含む系での例として次の2つの典型的な反応についての結果を示す(それぞれ Fig. 2 および Fig. 3)。



(1)は2 eVの発熱反応、(2)は0.8 eVの吸熱反応である。図から、イオンの振動エネルギーの影響は衝突エネルギーが小さいときほど大きく、とくに吸熱反応において顕著であることがわかる。Fig. 3は、吸熱反応を起こさせるエネルギー源として振動エネルギーの方が衝突エネルギーよりずっと有効であることを示している。

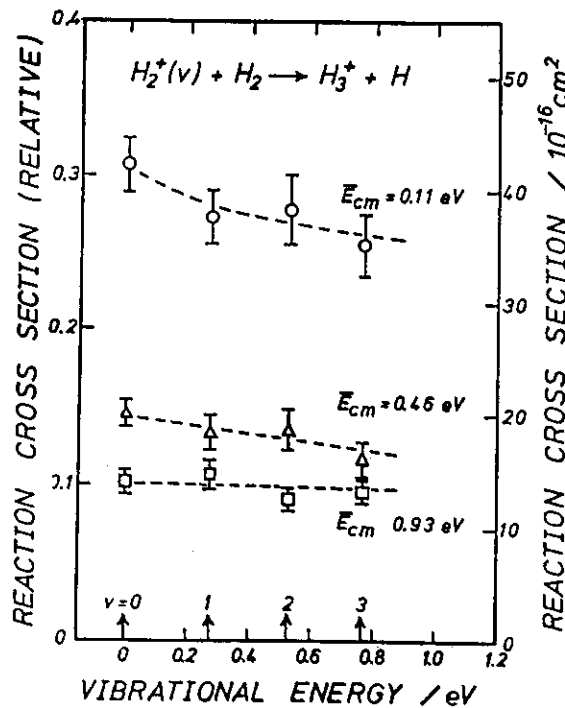


Fig. 2. Cross sections for reaction (1) as a function of vibrational energy of  $H_2^+$  at three different average collision energies indicated. [Adapted from ref. 4]

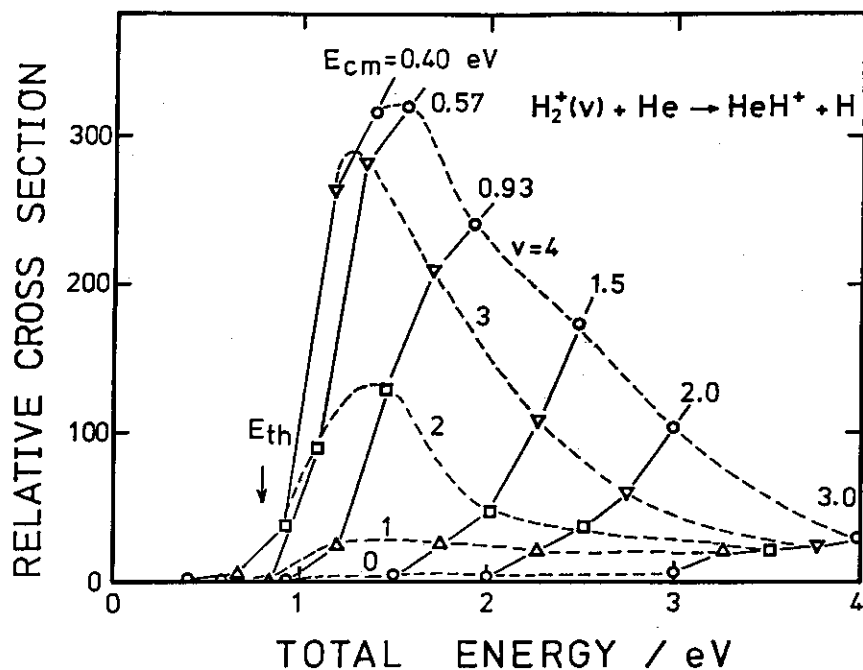
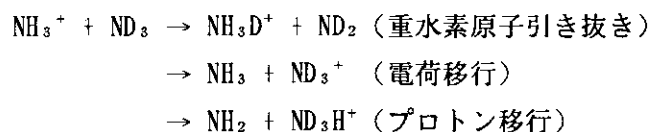


Fig. 3. Cross sections for reaction (2) as a function of both the vibrational energy of  $H_2^+$  and collision energy.  
[Adapted from ref. 5]

### 5. 状態選択イオン-分子反応研究の新しい展開

近年、波長可変レーザーの進歩とそれに伴う多光子イオン化研究の発展によって、光イオン化による状態選択イオン-分子反応の研究も新しい展開を見せている。なかでも、複雑な分子イオンの異なった振動モードを区別して励起イオンをつくれるようになったことと、2原子分子イオンの回転状態を選択できるようになったことが注目される。前者の例としては、アンモニアイオンの反応：



においてN-H対称伸縮振動 ( $\nu_1$ 振動) と傘型変角振動 ( $\nu_2$ 振動) が果たす相対的役割を明らかにした研究<sup>6)</sup>を挙げる事ができる。しかしここではこれについては詳述しない。

後者の例として、ZEKE-PES(zero kinetic energy photoelectron spectroscopy)の手法を発展させたMATI法(mass-analyzed threshold ionization)による反応(1)の回転エネルギー依存性の研

究を紹介する。Fig. 4 に Mackenzie と Softley<sup>7)</sup> が製作したこの目的のための装置を示す。2つのスキマーを通してよくコリメートされたパルスビームを発生させ、その飛行途上、F1領域内の一点でレーザー（1光子または多光子）により目的の振動回転状態（ $j$ 状態とする）に収斂する高いリュドベリ状態（Ry状態）（複数）に励起する。F1領域には飛行方向と直角方向に弱い（0.1~1 V/cm）電場がかかっており、これによって  $j-1$  以下の状態に直接イオン化されたイオンがビームから取り除かれる。（これと同時に、 $j$ 状態に収斂するRy状態のうちの高いほうの一部もこの電場でイオン化され、ビームから失われる。）F1でイオン化を免れたRy状態がF2領域に入り、そこにビームの到達に同期してかけられたパルス電場（ $\sim 3.6$  V/cm, 飛行方向）によってイオン化され、これが反応イオンとなる。F2の電場として、F1より強かつ  $j+1$  以上の状態に収斂するRy状態はイオン化されない範囲の強さを選ぶことによって、純度よく  $j$ 状態のイオンがつくられる。これがさらに下流の電場のない領域でビーム中の分子と反応する。衝突エネルギーはF2の強さとパルス持続時間で決められる。

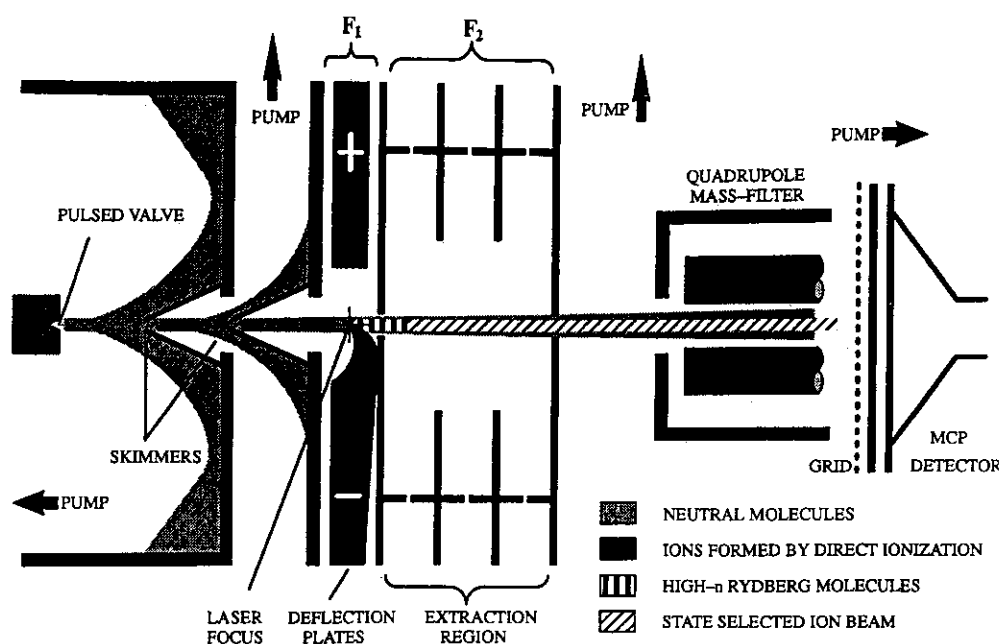


Fig. 4. Experimental apparatus designed for the study of rotational state resolved ion-molecule reactions, utilizing a new technique MATI. [Adapted from ref. 7]

Fig. 5 に、この方法で得られた最初の実験結果を示す。反応イオン  $\text{H}_2^+$  の振動・回転状態 ( $v^+=0, N^+=1$ ) を選択した反応(1)の（相対）断面積を衝突エネルギーの関数としてプロットしたものである。今のところ選択された状態はこれだけであり、 $N^+$  の関数としての断面積は知るよしもない。調べられた反応も反応(1)だけであるが、私信によれば  $\text{N}_2^+$  についてもすでによい結果が得られて

いる<sup>8)</sup>とのことであり、今後の発展が大いに期待される。この、レーザーの高度な単色性とRy状態の電場イオン化を巧みに組み合わせた方法によって、回転状態を純度よく選択したイオン-分子反応の研究が始めて可能になったといえる。

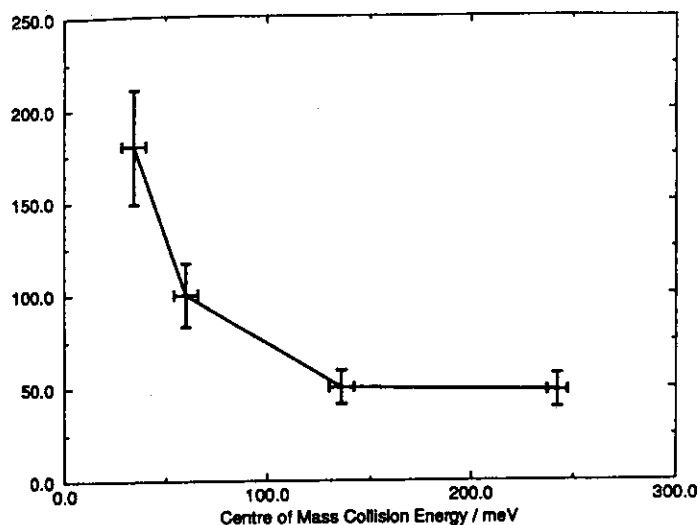


Fig. 5. Rotational state selected relative reaction cross sections for reaction (1) ( $H_3^+/H_2^+$  signal ratios) as a function of collision energy. The selected state is ( $v^+=0$ ,  $N^+=1$ ) of  $H_2^+$ . [Adapted from ref 7]

#### 参考文献

- 1) D. Smith and N. G. Adams, in Swarms of Ions and Electrons in Gases, W. Lindinger, T. D. Mark, and F. Howorka, eds., Springer, Wien, 1984, p.194.
- 2) I. Koyano, in Dynamics of Excited Molecules, K. Kuchitsu, ed., Elsevier, Amsterdam, 1994, p. 243.
- 3) I. Koyano, in State-Selected and State-to-State Ion-Molecule Reaction Dynamics, C. - Y. Ng and M. Baer, eds., Advan. Chem. Phys. vol. **82**, Wiley, New York, 1992, p. 263.
- 4) I. Koyano and K. Tanaka, J. Chem. Phys. **72**, 4858 (1980).
- 5) Z. Herman and I. Koyano, J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2 **83**, 127 (1987).
- 6) R. D. Guettler, G. C. Jones, Jr., L. A. Posey, and R. N. Zare, Science **266**, 259 (1994).
- 7) S. R. Mackenzie and T. P. Softley, J. Chem. Phys. **101**, 10609 (1994).
- 8) S. R. Mackenzie, 私信.

## 4. 原子と二原子分子の衝突における組み替え・解離反応

宇宙科学研究所 崎本一博

### 1. はじめに

高温あるいは非平衡ガスにおいて分子の衝突誘起解離は重要な過程であり、これらのガスダイナミクスを理解するためには分子のすべての振動・回転状態に対する衝突誘起解離の反応速度定数がわかっていないといけない。しかし、衝突誘起解離の量子力学計算を正確に行うことは残念ながら今のところ不可能である。そこで、反応速度定数を求めるために古典軌道計算がしばしば用いられる。古典軌道計算は必要とされるデータを求めるには十分な精度を与えるかもしれない。しかし、だからといって、それは素過程としての衝突誘起解離の反応機構を完全に理解できたというわけではない。さらに、古典軌道計算の正しさを評価するためには量子力学的研究が十分に行われ、量子力学による計算結果と比較する必要がある。また、衝突誘起解離のように反応の後に散乱された粒子と解離した粒子の2種類の連続状態が存在する場合、物理学一般の問題としても、その量子力学的記述の仕方はまだよくわかっていない。このような理由から本研究では衝突誘起解離過程を量子力学的に研究することを試みている。

これまでの衝突誘起解離過程の量子力学的研究ではほとんどが共線配置での衝突 (collinear collision) しか扱っていない。低エネルギーでの組み替え反応のように、遷移状態のみが重要な役割をする場合、特定の衝突配置のみでの研究は意味があるかもしれない。しかし、衝突誘起解離は高エネルギー反応であり、様々な衝突配置を考えなければいけないであろう。そこで、本研究では共線配置のみに限らないことにした。また、さらに IOS (Infinite Order Sudden) 近似のもとに有効的な軌道角運動量を導入し、断面積を求めることも考えている。以下に本研究の進行状況についてごく簡単に触れたいと思う。

### 2. 伝統的緊密結合法による計算 [1,2]

ヘリウム原子と水素分子の衝突を考えてみよう。この場合にはHeHは振動束縛状態をもたないため、組み替え反応のチャンネルは存在しない。このために、解離過程は振動励起の延長 (連続状態への振動励起) として考えることができる。そこで、振動励起の計算で普通用いられる緊密結合法を解離過程にも拡張して適用することが考えられる。しかし、解離連続状態はそのままでは緊密結合計算することが困難であるため、何らかの工夫が必要である。そこで、ここでは分子の振動運動を箱に閉じ込めることによって連続状態を離散化させる方法を考えた。離散化された状態であれば数値計算で扱えるようになる。箱をより大きくすると連続状態に近づくと考えられるから、この計算では箱をできるだけ大きく取ることが望ましい。しかし、箱が大きくなると離散化された状態の密度も上がり、緊密結合計算に結合する状態数は膨大になってしまう。従って、この計算では、箱を大きくしていき計算可能な範

囲で箱の大きさに依存しない結果が得られるか否かが重要なポイントとなる。

本研究ではヘリウムと水素分子のT型配置での衝突に対して計算を行い、一応箱の大きさに依らない結果が得られることがわかった。さらに、解離確率の衝突エネルギー依存性あるいは解離生成物の運動エネルギー分布に興味ある振動構造がみられることを発見した。この振動構造の原因を調べるために、古典論、半古典論 (classical S-matrix theory) による解析も行ってみた。その結果、2つの古典軌道が干渉しあって解離確率に振動構造を作ることが判明した。

本研究によって緊密結合法が衝突誘起解離過程にある程度適用できることがわかった。しかし、衝突エネルギーが高いか、あるいは分子の振動状態が大きくなると、この方法には限界がある。また、組み替え反応チャンネルを持つような衝突系にたいしては緊密結合法を適用することができない。そこで、より一般的なことを議論するために、次に述べるような新しい計算方法を開発した。

### 3. 新しい計算方法 [3-6]

組み替え反応チャンネルがある場合の解離過程には、組み替え反応と解離反応が競合するので、両方の反応過程を正しく記述できる計算方法でないといけない。さらに分子の高い状態も関与してくる。このような衝突過程では波動関数がかかなり分散的になり、従来の(局所的)基底関数で展開する方法ではけっして効率が良くない。そこで、最近広く使われつつある discrete-variable-representation を利用することを考えた。衝突配置を固定した3原子系では数学的に2次元空間の問題になる。この2次元空間上で波動関数を直接解くことにした。また、組み替え・解離チャンネルを同等に記述できるメリットを生かし、超球座標を導入した。実際の計算では、角度 ( $w$ ) 方向はチェビシェフ多項式を用い、動径 ( $r$ ) 方向は差分法(ラグランジュ多項式)で iteration で解いている。この直接解法により、いくら分散的であろうとも波動関数を正確に求めることができるようになった。連続状態を扱うにはこれらもっとも適した方法の1つと思われる。

これまでに、組み替え反応チャンネルがある場合の解離過程として  $H+HD$ ,  $H+H_2$ ,  $He+H_2^+$  の共線衝突について計算を行った。本研究の方法は高エネルギー衝突でしか適用できないという訳ではなく、解離が起こらない低エネルギー衝突でも使える。上記の反応系では共鳴現象が有名であるが、本計算方法は組み替え反応確率における共鳴の様子を正しく与えることができた。また、これまでは高振動状態にある分子の反応についてはほとんど計算が行われてこなかったが、本研究によってそれも可能になった。さらに、前章で述べた非反応系のT型  $He+H_2$  に対しても直接解法を適用してみた。その結果、緊密結合法よりもはるかに効率よく計算できることがわかった。そこで、衝突配置を共線、T型、45度の3通りに変えてみて、衝突配置による解離の違いについて調べた。そして、He 衝突では多重衝突が重要であること、45度配置では非反応系でもポテンシャルエネルギー面にダブルウェル構造があり、それが解離に大きな影響を与えていることがわかった。

超球座標は組み替え・解離チャンネルを同時に1つの座標系で記述できる点で非常にすぐ

れている。しかし、超球座標を使って有限の  $r$  で散乱の境界条件を課すと問題が生じる。というのは、本来、相互作用が存在しない漸近領域を記述するには Jacobi 座標が適している。しかし、Jacobi 座標と超球座標との間には  $1/r$  の違いがあり、このため超球座標で漸近状態を記述すると、漸近状態間に見掛けの結合が存在してしまう。低エネルギーでの組み替え反応を扱うときには、この見掛けの結合を避けるため、ヤコビ座標につき換えをする。しかし、解離チャンネルがオープンになるとこの方法は使えない。そこで、いくつかの近似法を考えてみた。その結果、全解離確率は正確に求めることができるが、解離生成物のエネルギー分布を計算するにはいろいろと問題があることがわかった。この問題は今後さらに考察が必要である。

#### 4. IOS 近似による断面積の計算 [7]

今までは限られた衝突配置での解離過程しか計算しなかった。そのために、動力学は比較的単純になり、いろいろと面白い現象を見出すことができた。しかし、実際にはいろいろな配置での衝突を考慮しなければいけない。He+H<sub>2</sub> の場合、衝突配置を様々に変えた計算を行ったが、それによると解離過程が配置に強く依存することがわかる。従って、特定の配置だけで解離現象を調べたのでは、解離動力学の真の理解には程遠いといえる。He+H<sub>2</sub> に対しては IOS 近似を用いて、全ての衝突配置を考慮した 3D 計算を行い、解離動力学の理解を深める研究を進めている。

#### 参考文献

1. K. Nobusada, K. Sakimoto, and K. Onda: Chem. Phys. Letters 216 (1993) 613-618.
2. K. Nobusada, K. Sakimoto, and K. Onda: Chem. Phys. Letters 233 (1995) 399-404.
3. K. Sakimoto and K. Onda: J. Chem. Phys. 100 (1994) 1171-1178.
4. K. Sakimoto and K. Onda: Chem. Phys. Letters 226 (1994) 227-234.
5. K. Sakimoto: Chem. Phys. Letters 228 (1994) 323-328.
6. K. Nobusada and K. Sakimoto: Chem. Phys. (1995) in press.
7. K. Nobusada and K. Sakimoto: J. Chem. Phys. (1995) in preparation.

## 5. 水素分子が関与する衝突素過程

東京理科大学基礎工学部 恩田 邦藏

### 1. 序

現在計画されているトカマク型核融合実験炉ITER(International Tokamak Experimental Reactor)では、主プラズマ領域からダイバータ領域に放出されるエネルギーは50MW/m<sup>2</sup>と推定されている。このような多量のエネルギーを器壁に大きな損傷を与えずに排気する方法として、高密度の気体ダイバータが検討されている。気体ダイバータでは、粒子密度は10<sup>21-22</sup>/m<sup>3</sup>、主要構成粒子はH, H<sub>2</sub>, Heとそれらのイオンと電子である。これら粒子間の衝突素過程では、100eV以下の衝突エネルギー領域が最も重要である。

注目されている気体ダイバータが期待通り多量のエネルギー放出を効率よく排出出来るかどうかを見極めるには、主要構成粒子間の様々な衝突素過程についての衝突断面積やレート係数が十分な精度で得られている必要がある。言い換えれば、原子・分子衝突素過程の広いエネルギー範囲にわたってのデータが求められているわけである。ここでは粒子密度が高い水素分子が関与する衝突素過程の内、H<sub>2</sub>の振動・回転遷移を中心に、衝突エネルギーが100eV以下の範囲に限って、衝突素過程の研究の現状を概観する。

### 2. 衝突素過程研究の現状

水素分子が関与する衝突素過程の内、H<sub>2</sub>の回転と振動励起断面積についての総合報告は、古くはTakayanagi<sup>1,2)</sup>が<sup>3</sup>、その後、Toennies<sup>3)</sup>、Faubel<sup>4)</sup>、Sidis<sup>5)</sup>が行っている。1970年代以降電子計算機が急速に普及し、化学反応の量子力学的研究が行われるようになり、実験結果の検証に利用されるようになった。H + H<sub>2</sub>系については、Truhlar and Wyatt<sup>6)</sup>、その後、Schatz<sup>7)</sup>、Levine<sup>8)</sup>、Miller<sup>9)</sup>が理論結果と実験結果の詳細な比較をしている。同時期に、Phelps<sup>10)</sup>がH<sub>2</sub>が関与する衝突断面積とスオーム実験の解析に利用される移動速度や反応あるいは励起レート係数について理論及び実験結果をまとめている。そこで取り上げられている衝突系は(H<sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup>, H<sub>3</sub><sup>+</sup>, H, H<sub>2</sub>, H<sup>-</sup>) + H<sub>2</sub>である。その後、状態を選別したイオン-分子反応動力学の実験結果がPart 1としてNg and Baer<sup>11)</sup>により、理論結果がPart 2としてBaer and Ng<sup>12)</sup>によりまとめられている。Part 1ではH<sub>2</sub>が関与する衝突系として、GerlichがH<sup>+</sup> + H<sub>2</sub>系、WeisshaarがM<sup>+</sup> (金属イオン) + H<sub>2</sub>系、Koyano and Tanakaが(Ar, O<sub>2</sub>, NO, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>)<sup>+</sup>の衝突系で電荷移行と化学反応系、Brenot and FergusonがX<sup>-</sup> (負イオン) + H<sub>2</sub>系、Ngが(Ar, O, H<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>)<sup>+</sup>系、Schatteburg and ToenniesがH<sup>+</sup> + H<sub>2</sub>系について実験結果をまとめている。Part 2ではH<sub>2</sub>が関与する衝突系として、Gianturco and SchneiderがDIMポテンシャルを利用し

て、(H, He, B + H<sub>2</sub>)<sup>+</sup>系、BaerがIOS近似を適用した(H, Ar + H<sub>2</sub>)<sup>+</sup>系、ChapmanがClassical Trajectory Surface Hopping法による(H, He, Ar + H<sub>2</sub>)<sup>+</sup>系について理論結果をまとめている。続いて、Neumark<sup>13)</sup>が総合報告の中で、H + H<sub>2</sub>とH<sub>2</sub><sup>+</sup> + Heの共鳴現象に焦点を当て、実験値と理論値のまとめをしている。

## 2. 1 回転状態・振動状態の遷移

入射粒子がH, H<sup>+</sup>, H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub><sup>+</sup>の場合、実験室系での衝突エネルギーが1 eV以下では、H<sub>2</sub>の始状態として電子、振動、回転状態全てが基底状態であれば、非弾性衝突としては、回転励起が主要な励起過程である。そのエネルギー領域では、H<sub>2</sub>の回転励起を引き起こすには、H<sup>+</sup>が最も効率良く、続いて、H<sub>2</sub>, Hの順である。原子の組み替えが起こるエネルギー領域(1~10 eV)になると、H衝突によるH<sub>2</sub>の回転励起断面積は10<sup>-20</sup>m<sup>2</sup>の大きさになり、電子衝突による回転励起断面積と同程度で、H<sup>+</sup>衝突の場合の約1/10程度になる。H<sup>+</sup>と電子衝突の場合には、H<sub>2</sub>の回転励起断面積は実験結果があり、信頼できるデータがある。他方、HとH<sub>2</sub>衝突の場合には、信頼出来るデータはまだ少ない。

H<sub>2</sub>の始状態が電子的に基底状態で、振動・回転状態が励起状態の場合には、研究は更に少なく、衝突断面積のエネルギー依存性を正しく把握出来る状態にはない。H + H<sub>2</sub>系ではMiller<sup>9)</sup>がまとめているように、H<sub>2</sub>(v=0,1,j)の状態では限られたエネルギー範囲ではあるが、理論値と実験値の一致は良く、十分信頼できることを示している。また、Mandy and Martin<sup>14)</sup>は準古典力学に基づく軌道計算法により、H + H<sub>2</sub>(v=0,1,j)での非弾性衝突と原子組み替え反応レート係数の理論値をT ≤ 4500Kの範囲で計算している。衝突エネルギー範囲を広げた研究が望まれる。

更に、高い振動の始状態については、研究は非常に少なくなる。H + H<sub>2</sub>系では、組み替え反応を無視しているが、H<sub>2</sub>の全ての振動状態からの振動遷移の研究が、Onda et al.<sup>15)</sup>により成されている。予想されるように、振動非弾性衝突断面積は振動状態が高くなるに従い大きくなる。従って、物理的にも、また、応用面から考えても、全ての振動励起状態からの遷移を広い衝突エネルギーにわたって研究する必要があることをこの結果は示している。He + H<sub>2</sub><sup>16)</sup>とH<sub>2</sub><sup>+</sup> + He<sup>17)</sup>系については、一次元に限ってはいるが、全ての振動励起状態からの遷移を全エネルギーが10 eV以下の範囲で研究が続けられている。He + H<sub>2</sub>系では原子の組み替えは起こらないが、H<sub>2</sub><sup>+</sup> + He系では原子の組み替えが可能で、振動遷移や分子の解離確率の衝突エネルギー依存性は、明らかに、両系で異なっている。振動遷移や分子の解離断面積のエネルギー依存性を明らかにする研究が望まれる。H<sub>2</sub><sup>+</sup> + He系では、理論的に予想されている共鳴現象を実験的に研究し、反応や解離断面積の振動の始状態依存性を明らかにする目的で、いくつかのグループで実験が行われている<sup>18 - 23)</sup>。研究されている振動の始状態は、v ≤ 6~8で、更に、高い振動状態についての研究が行われる必要がある。

H<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>系では、Buck<sup>24)</sup>のグループが実験と理論両面から研究を重ね、限られた衝突エネルギー

範囲ではあるが、信頼できるデータを提供している。今後、衝突エネルギー範囲を広げた研究が望まれる。Buck達は同位体効果を研究しているが、興味があるのはHD分子のような異なる同位体原子から成る分子では、質量中心と電荷中心が僅かにずれているために、あたかも、固有双極子モーメントを持っているかのように振る舞い、HDの回転励起断面積は $H_2$ や $D_2$ の回転励起断面積に比べて約8倍も大きい。衝突素過程により効率よくエネルギー移動を行わせる手段として、注目すべき結果である。今後、振動遷移についても同様の効果が得られるかどうかを見極める研究を行う必要がある。最近では、Arnold<sup>25)</sup>のグループが $H_2(v=1, j=1) + H_2, Ar, HD, D_2$ の衝突系で $H_2$ の振動・回転遷移を実験的に研究している。彼等の結果では、回転エネルギー移動が振動エネルギー移動より遥かに早く、 $H_2, HD, D_2$ の振動遷移レート係数の大きさには、顕著な差異は報告されていない。

$H_2^+ + He, H_2$ 系では、Guyon and Gislason<sup>26)</sup>が原子の組み替え、電荷移行と解離過程について振動の始状態として $v \leq 10$ の範囲で実験値をまとめている。

( $H_2, H_2^+ + H_2$ )系のような4原子からなる衝突系では、自由度が格段に増えるために、理論的研究により定量的に信頼できるデータを得るのは、かなり難しい問題ではあるが、理論結果と実験結果の比較や他の実験グループの結果との比較など研究を続ける必要がある。

## 2. 2 電子状態の励起

入射粒子が $H, H^+, H_2, H_2^+$ の場合、 $H_2$ の電子状態の励起過程については、研究結果は殆ど報告されていない。衝突エネルギーが数10~100 eVの範囲では、衝突による電子状態間の遷移過程は無視できないと思われるので、今後、研究が行われることが望ましい。

## 文献

- 1) K. Takayanagi, Progr. Theoret. Phys. (Kyoto) Suppl. No. **25**, 1 - 98 (1963).
- 2) K. Takayanagi, Adv. At. Mol. Phys. **1**, 149 - 194 (1965).
- 3) J. P. Toennies, Ann. Rev. Phys. Chem. **27**, 225 - 260 (1976).
- 4) M. Faubel, Adv. At. Mol. Phys. **19**, 345 - 394 (1983).
- 5) V. Sidis, Adv. At. Mol. Phys. **26**, 161 - 208 (1990).
- 6) D. G. Truhlar and R. E. Wyatt, Ann. Rev. Phys. Chem. **27**, 1 - 43 (1976).
- 7) G. C. Schatz, *The Theory of Chemical Reaction Dynamics*, ed. D. C. Clary, NATO ASI, D. Reidel, Dordrecht (1986),  
G. C. Schatz, Ann. Rev. Phys. Chem. **39**, 317 - 340 (1988).
- 8) L. D. Levine, *Fifty Years of H + H<sub>2</sub> Kinetics*, Int. J. Chem. Kinet. **18**, 919 - 1112 (1986).  
13 papers of H + H<sub>2</sub> reactions are reported in this issue.
- 9) W. H. Miller, Ann. Rev. Phys. Chem. **41**, 245 - 281 (1990).

- 10) A. V. Phelps, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **19**, 653 - 675 (1990).
- 11) *State-Selected and State - to - State Ion - Molecule Reaction Dynamics*, Part 1. Experiment, eds. C. Y. Ng and M. Baer, John Wiley & Sons Inc. New York (1992).
- 12) *State-Selected and State - to - State Ion - Molecule Reaction Dynamics*, Part 2. Theory, eds. M. Baer and C. Y. Ng, John Wiley & Sons Inc. New York (1992).
- 13) D. M. Neumark, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **43**, 153 - 176 (1992).
- 14) M. E. Mandy and P. G. Martin, *Ap. J. Suppl.* **86**, 199 - 210 (1993).
- 15) K. Onda, M. Iwai, and T. Wada, *J. Phys. Soc. Japan* **60**, 3327 - 3339 (1991),  
K. Onda, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24**, 4509 - 4529 (1991).
- 16) K. Nobusada, K. Sakimoto, and K. Onda, *Chem. Phys. Letters* **216**, 613 - 618 (1993),  
K. Nobusada, K. Sakimoto, and K. Onda, *Chem. Phys. Letters* **233**, 399 - 404 (1995).
- 17) K. Sakimoto and K. Onda, *Chem. Phys. Letters* **226**, 227 -234 (1994),  
K. Onda and K. Sakimoto, in preparation.
- 18) W. A. Chupka and M. E. Russell, *J. Chem. Phys.* **49**, 5426 - 5437 (1968),  
W. A. Chupka , J. Berkowitz, and M. E. Russell, *VI International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions*, MIT, Cambridge, (1969) pp. 71 - 72.
- 19) T. Turner, O. Dutuit, and Y. T. Lee, *J. Chem. Phys.* **81**, 3475 - 3481 (1984).
- 20) M. Baer, S. Suzuki, K. Tanaka, I. Koyano, H. Nakamura, Z. Herman, and D. J. Kouri, *Phys. Rev. A* **34**, 1748 - 1751 (1986).
- 21) T. R. Govers and P. M. Guyon, *Chem. Phys.* **113**, 425 - 443 (1987).
- 22) U. Havemann, V. Pačák, Z. Herman, F. Schneider, C. Zuhrt, and L. Zülicke, *Chem. Phys.* **28**, 147 - 154 (1978),  
C. Zuhrt, F. Schneider, U. Havemann, L. Zülicke, and Z. Herman, *Chem. Phys.* **38**, 205 - 210 (1979),  
Z. Herman and I. Koyano, *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, **83**, 127 - 137 (1987).
- 23) J. E. Pollard, J. A. Syage, L. K. Johnson, and R. B. Cohen, *J. Chem. Phys.* **94**, 8615 - 8617 (1991),  
J. E. Pollard, L. K. Johnson, and R. B. Cohen, *J. Chem. Phys.* **95**, 4894 - 4903 (1991).
- 24) U. Buck, F. Huisken, J. Schleusener, and J. Schaefer, *J. Chem. Phys.* **74**, 535 - 544 (1981),  
U. Buck, F. Huisken, G. Maneke, and J. Schaefer, *J. Chem. Phys.* **78**, 4430 - 4438 (1983),  
U. Buck, F. Huisken, A. Kohlhase, D. Otten, and J. Schaefer, *J. Chem. Phys.* **78**, 4439- 4450 (1983).
- 25) J. Arnold, T. Dreier, and D. W. Chandler, *Chem. Phys.* **133**, 123 - 136 (1989).
- 26) P. M. Guyon, T. Baer, S. K. Cole, and T. R. Govers, *Chem. Phys.* **119**, 145 - 158 (1988),  
P. M. Guyon and E. A. Gislason, *Topics in Current Chemistry*, **151**, 161 - 178 (1989).

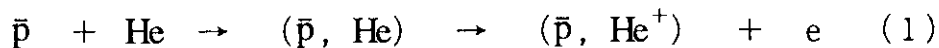
6. 励起 $\bar{p}\text{He}^+$ のHeとの衝突による励起、脱励起過程

国際基督教大学 渡部 力

## 1. はじめに

$\bar{p}$ という反粒子は事前会に於いては原子核に捕らえられて $p$ と消滅反応をしてしまう。その寿命は $10^{-12}$ 秒の程度である。ところがこの $\bar{p}$ のビームをHeの気体、液体中に照射するとその寿命が伸びて $10^{-6}$ 秒の程度になる事が知られた[1]。この反応は実は $\mu^-$ 粒子、 $K^-$ 粒子などでもHe中で寿命が異常に伸びる事が知られていた[2,3]。しかしこれらの寿命はそれ自身自己崩壊の寿命があるので、He中でどこのまで寿命をのばせるかは解らなかつた。その点 $\bar{p}$ は $p$ の反粒子で、それ自身では自己崩壊しないので、 $p$ との消滅反応をしなければ何処までも寿命を伸ばす事が可能である。たかがマイクロ秒( $10^{-6}$ 秒)と思うかも知れないが、 $p$ との消滅反応の寿命 $10^{-12}$ 秒と比べると実に $10^{+6}$ 倍であり、これはこれらの素粒子反応の時間から見ると無限大に近い値である。従って $10^{-6}$ 秒を1秒にさらには時間の程度に伸ばす事は夢でなくなる。こうした意味で近年、はじめは高エネルギー研で、後にはスイスのCERNの $\bar{p}$ ビームを用いて、異常長寿命 $\bar{p}$ の探索実験が山崎敏光(東大核研)等のグループによって行われている[1~4]。長寿命の原因はいわゆるCondo模型[5]と云うもので考えられている。それは $\bar{p}$ が $\text{He}^+$ の高いRydberg励起状態でかつ、高い角運動量状態に捕らえられているというものである。このいわゆる高 $n$ 高 $l$ 状態( $n$ 、 $l$ )は $\bar{p}$ 状態の主量子数、角運動量子数はオージェ過程、あるいは放射過程によって脱励起するが、前者は放出電子のエネルギーと運動量の保存から考えて適当な脱励起の候補の過程がなく、後者は確率が非常に小さいとされている。種々の解析の結果[6]現在では $n=38$ 、 $l=37$ 以上のRydberg状態であればこうした $10^{-6}$ 秒以上の寿命もって励起状態にあり、原子核に吸収される事がないと考えられる[7~9]。

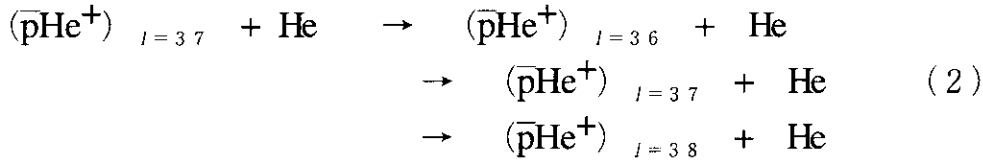
高エネルギーでHe中に打ち込まれた $\bar{p}$ 粒子ははじめ主としてHeの電離、電子励起を引き起こし、減速して運動エネルギーがHeの第1励起エネルギー以下になると、



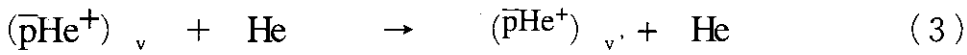
という反応を起こして $\bar{p}$ は $\text{He}^+$ に捕獲される。このうち $n \geq 38$ 、 $l \geq 37$ のものが長寿命(約3%)として残る。この場合 $\bar{p}$ が20 eVの運動エネルギーを持っていたとして、静止しているHe反応したとすると $\bar{p}\text{He}^+$ は約4 eVの運動エネルギーで走る事になる。これがHeとの衝突によって熱エネルギーにまで減速するのであるが、この間に $\bar{p}\text{He}^+$ の回転状態( $\bar{p}$ のRydberg状態の角運動量状態 $l$ )が変化する事があり、また

$\bar{p}\text{He}^+$  分子の振動状態 ( $\bar{p}$  のRydberg状態での  $n - l - 1 = v$  の状態) の変化が起こる事が考えられる。

例えば、



あるいは、



という過程を通して励起状態の変化が起こる。この過程を考察する。

## 2. 衝突過程

いま標的に  $\bar{p}\text{He}^+$  分子がいてこれに入射係数  $b$ 、速度  $V$  で入射する過程を考える。いま図 1. で与えられているような座標系を採ることにする。 $\bar{p}\text{He}^+$  は分子モデルで回

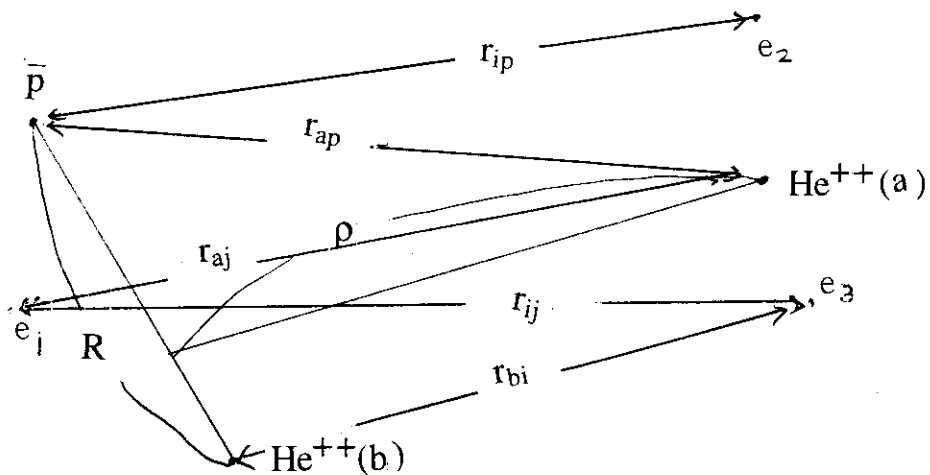


図 1.  $\bar{p}\text{He}^+$  の He による励起および脱励起過程の座標の概念図

転状態  $J = 1$ , 振動状態  $v = n - l - 1$  に居るとする。入射係数法 (半古典的方法) による定式化を考える。まづ全景の状態 (電子、振動、回転) を各固有状態の線形結合であらわす。すなわち、

$$\Psi = \sum_{v,\mu} C_{v,\mu}(t) \Psi_{av}(r_i) \Psi_{b\mu}(r_j) \exp[-i(E_{av} - E_{b\mu})t/\hbar] \quad (4)$$

で与えられるとする。ここで、 $a = \text{He}$ 、 $b = \bar{p}\text{He}^+$ 、 $\Psi_{av}$ 、 $\Psi_{b\mu}$ などは分子間距離  $\rho$  が  $\infty$  に離れたときの固有状態を表す。すなわち  $H_a$ 、 $H_b$ を  $\text{He}$  および  $\bar{p}\text{He}^+$  の内部ハミルトニアンとすると、

$$\begin{aligned} H_a \Psi_{av} &= E_{av} \Psi_{av} \\ H_b \Psi_{b\mu} &= E_{b\mu} \Psi_{b\mu} \end{aligned} \quad (5)$$

である。系の全ハミルトニアン ( $\text{He}$ 、 $\bar{p}\text{He}^+$ 間の相対運動を除いた) は

$$H = H_a + H_b + H'(t) \quad (6)$$

で  $H'$  は  $\text{He}$ 、 $\bar{p}\text{He}^+$ 間の相互作用ハミルトニアンである。すなわち、

$$\begin{aligned} H' &= \frac{Z_a Z_b e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ab}} + \sum_{ij} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + \sum_i \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ip}} \\ &\quad - \frac{Z_a e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{aj}} - \sum_i \frac{Z_b e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{bi}} - \frac{Z_a e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ap}} \end{aligned} \quad (7)$$

である。ただし、電子に対する番号付けは  $i$  は  $\text{He}$  に属し  $j$  は  $\bar{p}\text{He}^+$  に属する、また  $Z_b$ 、 $r_{bi}$ などはそれぞれ  $\bar{p}\text{He}^+$  の  $\text{He}$  原子核の電荷、 $\text{He}$  原子核からの距離を意味するものとする。

$\Psi$  を時間依存のシュレーディンガー方程式、

$$i\hbar d\Psi/dt = [H_a + H_b + H'(t)]\Psi \quad (8)$$

に代入し、(5)式を用いると(8)式は  $C_{v\mu}$  についての1階の連立常微分方程式となる。

$$\sum_{v\mu} S_{v\mu} i\hbar \frac{dC_{av}}{dt} = \sum_{v\mu} H'_{v\mu} C_{av}, \quad (9)$$

ただし、 $S_{\nu\mu} = \langle \psi_\nu | \psi_\mu \rangle$ 、 $H'_{\nu\mu} = \langle \psi_\nu | H' | \psi_\mu \rangle$ 。いま、はじめ ( $t = -\infty$ )  $\text{He}$  は基底の電子状態、 $\bar{\text{pHe}}^+$  は励起回転状態にあるとして  $C_{b\mu}$  の値を決め、 $t = \infty$  のときの  $C_{b\mu}$  の値から励起または脱励起 (回転、振動状態の変化) の断面積が得られる。すなわち励起、脱励起の断面積は

$$\sigma_{\mu\mu'} = 2\pi \int_0^\infty |C_{b\mu}(\infty)|^2 b db \quad (10)$$

の形で与えられる。今回はさしあたり、第1次摂動 (ボルン近似) を考える。この場合

$$P_{\mu\mu'} = \int_{-\infty}^{\infty} |\langle \mu | H'(t) | \mu' \rangle \exp[-iE_{b\mu} - E_{b\mu'}] t / \kappa l^2 dt$$

$$\sigma_{\mu\mu'} = 2\pi \int_0^\infty P_{\mu\mu'}^2 b db \quad (11)$$

で与えられる。

### 3. 相互作用

相互作用  $H'$  は  $\bar{\text{pHe}}^+ - \text{He}$  の間の距離が  $\bar{\text{pHe}}^+$  の大きさに比べて大きいという近似のもとに多重極展開を行う。 $\bar{\text{pHe}}^+$  の展開の中心は分子の重心に取る。ここでは  $\text{He}$  と  $\bar{\text{pHe}}^+$  分子の重心との距離を  $\rho$  とする。相互作用 [(7) 式] は  $\text{He}$  および  $\bar{\text{pHe}}^+$  の電子状態が基底状態 (それぞれ  $(1s)^2$ 、および  $(1s\sigma)$ ) にあるとしてこの2次摂動まで考慮した場合、

$$\langle \psi_{el}(1,2,3) | H' | \psi_{el}(1,2,3) \rangle = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\rho^6} \frac{e^2}{\Delta E_e} I_{\text{He}} \alpha_{\text{He}}$$

$$\times \{ \langle \psi_{el}(1) | x_1^2 + y_1^2 + z_1^2 | \psi_{el}(1) \rangle + x_p^2 + y_p^2 + z_p^2 \} \quad (12)$$

の形に書く事ができる。ここで  $\Delta E_e$  は  $\text{He}$  の平均励起エネルギー、 $I_{\text{He}}$  は  $\text{He}$  のイオン化ポテンシャル、 $\alpha_{\text{He}}$  は  $\text{He}$  原子の分極率である。

### 3. 1 振動励起

$\bar{p}\text{He}^+$ の振動状態  $v \rightarrow v'$  Heの撰移行列要素は、振動の波動関数を  $X_v(R)$  とするとき（これは $\bar{p}$ 動径方向の波動関数と同じである）、(12)式で分子 ( $\bar{p}\text{He}^+$ ) の分子軸を  $z_p$  軸に取り、極角を  $\theta_p$ 、方位角を  $\phi_p$  とするとき、 $x_p = R \sin \theta_p \cos \phi_p$ 、 $y_p = R \sin \theta_p \sin \phi_p$ 、 $z_p = R \cos \theta_p$  として

$$\left\langle \chi_{v'} \left| \left\langle \psi_{el}(1,2,3) | H | \psi_{el}(1,2,3) \right\rangle \right| \chi_v \right\rangle = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{W_6(\rho)}{\rho^6} \frac{e^2}{\Delta E_e} I_{\text{He}} \alpha_{\text{He}} \\ \times (1 + 3 \cos^2 \theta_p) \langle \chi_{v'}(\mathbf{R}) | R^2 | \chi_v(\mathbf{R}) \rangle \quad (13)$$

として与えられる。振動撰移の選択則は  $v = v'$ 、 $v = v' \pm 2$  である。ここで注意する必要があるのは、振動を調和振動子と近似すると同じポテンシャルの場合には撰移の確率が小さく、異なるポテンシャルに属するもの（異なる回転状態に属するもの）が比較的大きな確率を示す。式(13)での  $W_6(\rho)$  は  $\rho$  が小さいときに相互作用が発散するのを避けるために導入された収束因子で

$$W_6(\rho) = 1 - \exp[-\lambda \rho^6] \quad (14)$$

( $\lambda$ は経験的に導入されたパラメータでHeと $\bar{p}\text{He}^+$ の距離の逆数の程度の大きさ)である。

### 3. 2 回転励起、回転脱励起

ここで扱う  $\bar{p}\text{He}^+$  分子の回転状態の特徴は通常分子と異なり、回転量子数が非常に大きい事である ( $J \geq 36$ )。このために回転順位間の間隔も大きい。回転の波動関数は級長和漢数を用いて表すことができる。相互作用ポテンシャルは

$$H' = 0.5502 \frac{W_6(\rho)}{\rho^6} (A + B \cos \theta_p) \quad (\text{atomic unit}) \quad (15)$$

の形に書くことができる。定数A, BはJに依存する値であり、個々の状態によって事なり計算によって求められる。図2にその一例を示す。分子軸の角度 ( $\theta_p$ ) の依存性が式(15)で与えられているので回転励起、脱励起の確率は式(15)の第2項の係数Bによって決定される。

4. 結果およびまとめ

我々は呼び的な計算の結果、振動励起、脱励起過程は回転の撰移に比べて1桁以上小さい事が解った。呼び的な計算としてBorn近似による計算を行った。回転撰移の断面積をsとすると、

$$\sigma_{\mu\mu'} = 2\pi \int_0^\infty |f(K)|^2 \frac{KdK}{k_0k} \quad (16)$$

$$f(K) = - \frac{2m}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{\Delta E_e} I_{He} \alpha_{He} \langle J\mu | H' | J'\mu' \rangle g(K)$$

$$g(K) = \int_0^\infty \frac{W_{6(\rho)}}{\rho^5} \sin(K\rho) d\rho$$

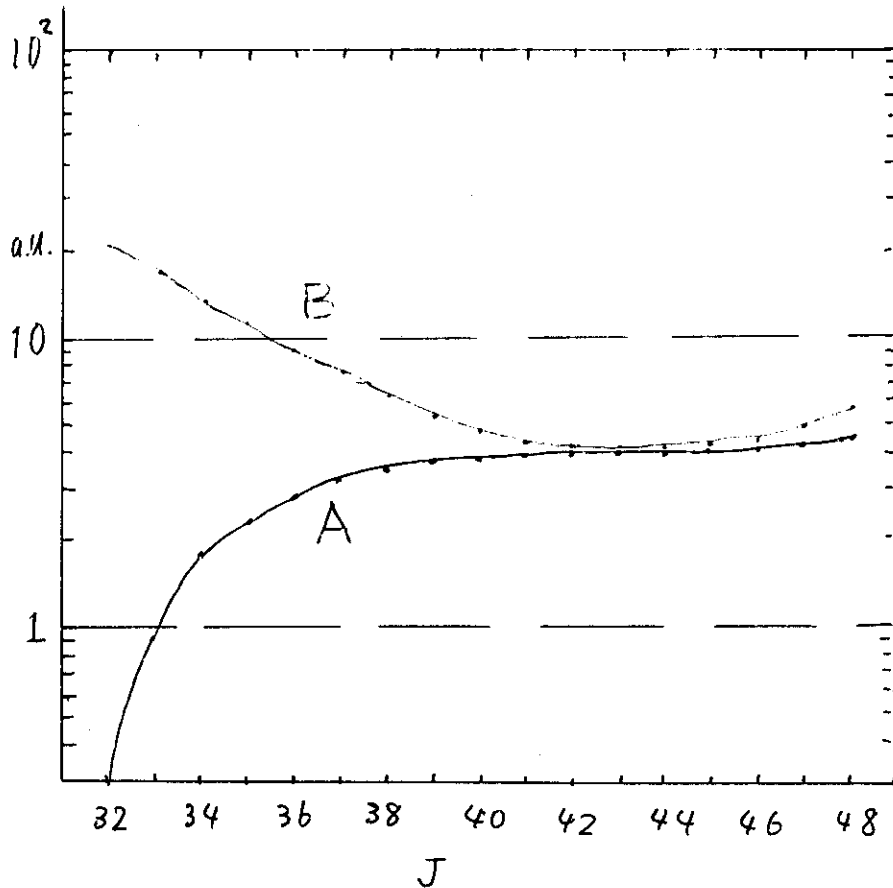
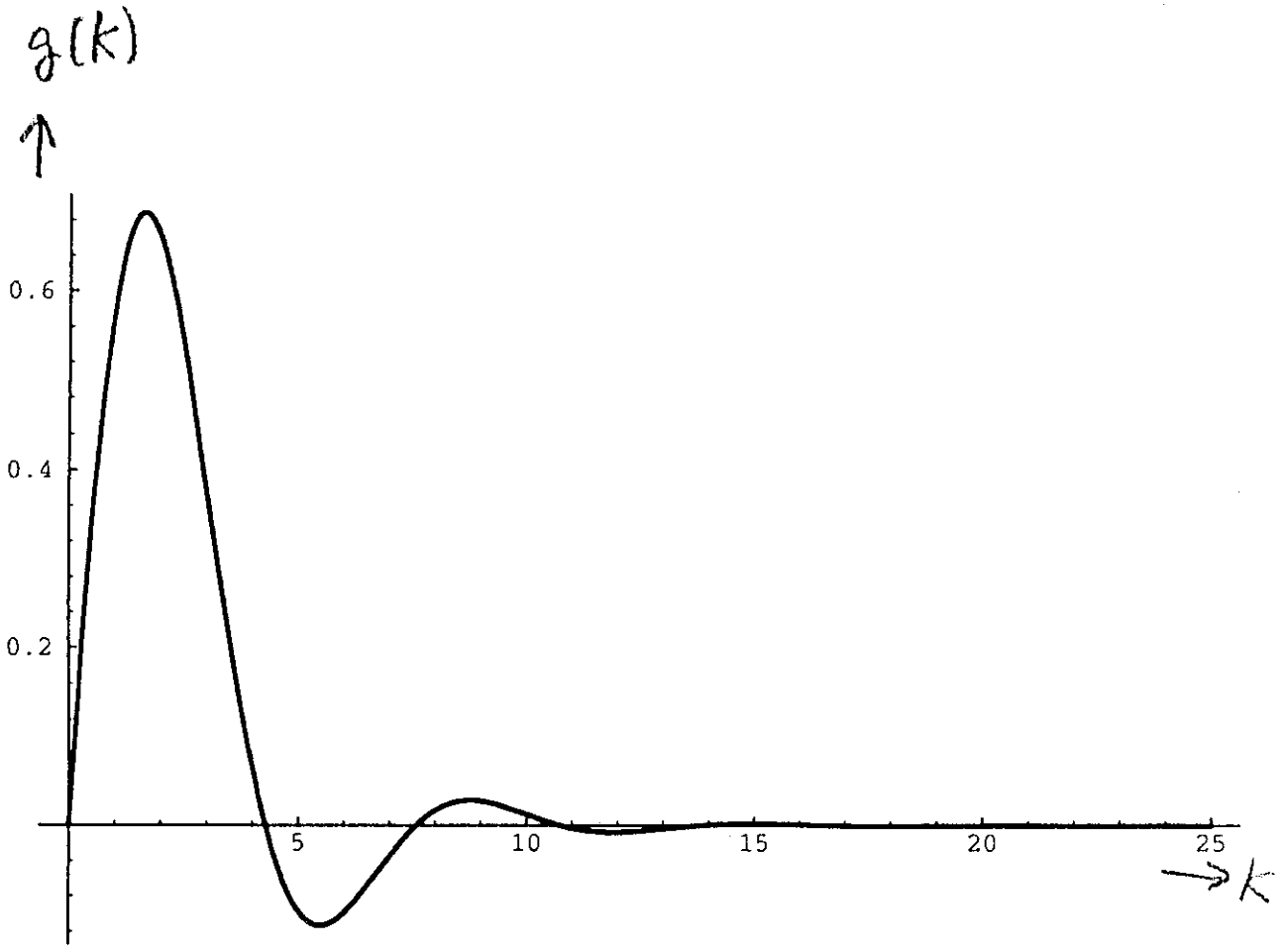


図2. 相互作用の係数A, BのJ (回転量子数) 依存性



$$\lambda = 1.5$$

図3.関数  $g(K)$  の  $K$ 依存性 ( $\lambda = 1.5 a_0^{-1}$ の場合)

## 文献

- [1] M. Iwasaki, S. N. Nakamura, K. Shigaki, Y. Shimizu, H. Tamura, T. Ishikawa, R. S. Hayano, E. Takada, E. Widmann, H. Outa, M. Aoki, P. Kitching and T. Yamazaki, *Phys. Rev. Lett.* 67, 1246 (1991)
- [2] T. Yamazaki, M. Aoki, M. Iwasaki, R. S. Hayano, T. Ishikawa, H. Outa, E. Takada, H. Tamura, and A. Sakaguchi, *Phys. Rev. Lett.* 63 1950 (1989)
- [3] S. N. Nakamura, M. Iwasaki, H. Outa, R. S. Hayano, Y. Watanabe, T. Nae, T. Yamazaki, H. Tada, T. Numao, Y. Kuno, and R. Kadono, *Phys. Rev. A* 45 6202 (1992)
- [4] T. Yamazaki, E. Widemann, R. S. Hayano, M. Iwasaki, S. N. Nakamura, K. Shigaki, F. S. Hartmann, H. Daniel, T. von Egidy, P. Hofmann, Y.-S. Kim, and J. Eades, *Nature (London)* 261 238 (1993)
- [5] G. T. Condo, *Phys. Lett.* 9 65 (1964)
- [6] J. E. Russell, *Phys. Rev. Lett.* 23 63 (1969); *Phys. Rev.* 185 187 (1969); *Phys. Rev. A* 1 721 (1970); *Phys. Rev. A* 1 735 (1970); *Phys. Rev. A* 1 742 (1970); *J. Math. Phys.* 12 1906 (1971); *Phys. Rev. A* 6 2488 (1972)
- [7] R. Abler, O. Dumbrajs, H. Pilkuhn, and H. G. Schlaile, *Z. Phys. A* 306 297 (1982)
- [8] T. Yamazaki and K. Ohtsuki, *Phys. Rev. A* 45 7782 (1992)
- [9] I. Shimamura, *Phys. Rev. A* 46 3776 (1992)

## 7. 核融合エッジプラズマに関わる 低エネルギーイオン-分子衝突における電荷移行反応

近畿大学 理工学部 日下部 俊男

### 1. 序 論

熱核融合プラズマ中では、核融合反応以外に種々の原子衝突過程がプラズマの性質を決定している。特にエッジプラズマ領域は低温で、低電荷の不純物イオンや中性の分子の密度が相対的に高く、これらの電荷移行衝突に対する知見が必要である。ところが、数keV以下の低エネルギー領域におけるイオンの電荷移行反応断面積の測定は、個々の衝突系に対して見ると、意外と少なく極めて不十分である。また測定値のかなりそろっている衝突系においても、電荷移行衝突後の反応粒子の捕集効率や入射イオンの電子状態などの不明確さから、どの程度信頼できるのか疑わしいのが現状である。

我々はこれまでに、keV領域を中心に数々の衝突系に対する電荷移行反応断面積を、位置検出器(MCP-PSD)を用いた生長率法で測定してきた。入射イオンや標的分子(Heを含む)は、燃料の $H^+$ イオン、 $H_2(D_2)$ 、核融合反応生成物の $He^{2+}$ イオンやHe、近年多用されてきた炭素材料に関わる $C^+$ や $O^+$ イオン、炭素含有分子および炭化水素分子などから組み合わせを選んだ。これらを大まかに類別すると以下のようなになる。

- (1)  $^3He^{2+} - He, H_2$  衝突系における1電子及び2電子移行反応断面積測定<sup>1, 2)</sup>
- (2)  $C^+, N^+, O^+ - He, H_2$  衝突系における電荷移行反応断面積測定<sup>3)</sup>
- (3)  $H^+, C^+, O^+ - H_2(D_2), CO, CO_2, CH_4$  衝突系における電荷移行反応断面積測定
- (4)  $C^+ - C_2H_2, C_2H_4, C_2H_6, C_3H_4(\text{アレン}), C_3H_4(\text{メチルアセレン}), C_3H_6, (CH_2)_3, C_3H_8$  衝突系における電荷移行反応断面積測定

そこで本報告書では、我々のこれまでの研究活動を中心に紹介すると共に、今後の展望について述べたい。

### 2. 実験方法

本研究で用いてきた実験装置や方法については、これまでに日本物理学会や研究論文で詳しく述べてきたので、ここでは概略にとどめる。

Fig. 1に示すように、Nier型の電子衝撃型イオン源(EIIS)から引き出され、Wienフィルターにより質量分析されたイオンビームが衝突室に入射し、標的ガスと電荷移行反応を起こす。反応で生じた電荷分布は、MCP-PSDによって位置スペクトルとして測定される。イオン源の動作ガス及び標的ガスには高純度ガスを用い、それぞれ可変リークバルブで導入される。衝突室内の標的分子のガス圧力は、バラトロンで校正された高感度のピラニ真空計を用いて測定された。イオン源を格納した8"超高真空槽は500 l/sターボ分子ポンプで、また衝突室とMCP-PSDを格納した1

4" 超高真空槽は6" クライオポンプで、それぞれ排気される。残留ガス圧力は、 $6 \times 10^{-8}$  Torr 以下で測定が行われた。

MCP-PSDは、有効面積 $46 \times 13$ mmの2段のMCPで、後面には数k $\Omega$ の抵抗性アノードが張られている。衝突室直後の偏向電極板によって荷数 $q$ 別に分析されたイオンビームをMCPに当て、特定の入射位置 $X$ で2次電子増倍を起こさせ、その2次電子の電荷がアノードに集められる。その結果、アノードの両端に $q_1$ ,  $q_2$ という電圧パルスが $X$ に比例配分して生ずる。これらを波形変換及び増幅した後、割り算回路で処理し、最終的に入射位置 $X$ に比例した波高を持つ信号( $q_1/(q_1+q_2)$ )を作る。生長率法での電荷移行反応断面積測定では、この位置信号を波高分析器で分析して得られた位置(電荷)スペクトルを使用し、このスペクトル上の各ピーク積算値を用いて、目的とする電荷数のフラクシヨンの標的ガス圧力に対する生長率から求められる。

EIISでの電子衝撃エネルギーは、裸の $\text{He}^{2+}$ や $\text{H}^+$ イオンでは、電子による電離断面積が大きいところ、即ちそれぞれ300及び50 eVとした。しかし裸でないイオンの場合、準安定な励起状態のイオンと基底状態のイオンとでは、一般的に電荷移行反応断面積が異なることが既に解っている。そこで $\text{C}^+$ ,  $\text{N}^+$ や $\text{O}^+$ イオンに対する生長率法による電荷移行反応断面積測定においては、出来る限り純粋な基底状態のイオンビームとなるように、電子衝撃エネルギーをイオン生成の閾値付近とした。即ち $\text{C}^+$ ,  $\text{N}^+$ 及び $\text{O}^+$ イオンはEIISで、それぞれ $\text{CO}$ ,  $\text{N}_2$ 及び $\text{CO}_2$ 分子に電子ビームを衝突させることによって生成された。この時、各気体分子からイオンを生成させるのに必要な最小の電子衝撃エネルギーは、Frank-Condon原理に従うとして、気体分子のイオン化エネルギーとその分子イオンの解離エネルギーとの和以上の値が必要であるが、各イオンの準安定状態の最小エネルギーを加算した値よりは低くした。(2)の研究においては、励起イオンの断面積に与える効果を調べるために、150eVでの電子衝撃エネルギーで生成したイオンに対しても測定し、ほとんど基底状態だけの断面積と比較した。

### 3. 電荷移行反応断面積の測定結果と考察

#### 3-1. ${}^3\text{He}^{2+}$ - He, $\text{H}_2$ 衝突系における1電子及び2電子移行反応断面積測定

これらの衝突系に対して、1990年に我々は1~10 keVでのエネルギー領域で1電子( $\sigma_{21}$ )及び2電子移行反応断面積( $\sigma_{20}$ )を測定した。<sup>1)</sup>特に $\text{H}_2$ 標的の $\sigma_{21}$ ではNuttらの測定値が過小評価していること、 $\sigma_{20}$ ではAfrosimovらの測定値に近いことを確認した。その後都立大の奥野らがOPIG法を用いて2 keV以下のエネルギー領域で測定した。<sup>4)</sup>彼らの測定値は、He標的では我々のと、エネルギー依存性が似ており、合理的に接続した。 $\text{H}_2$ 標的での $\sigma_{21}$ も我々の測定値に良く接続するが、ビーム減衰法によるビーム減衰断面積 $\sigma_{21t}$ から予測される $\sigma_{20}$ 値は、我々のより大きくかつ $\sigma_{21}$ とは逆に入射エネルギーの減少と共に増加し、極低エネルギー領域では、支配的になることを示した(Fig. 2参照)。島倉らは分子軌道展開法を用いて理論計算し、<sup>5)</sup>エネルギー依存性についてはこれを支持したものの、 $\sigma_{20}$ 値は奥野らの測定値の約半分以下であった。

そこで新たにわれわれは、1.2 keV以下のエネルギー領域での測定を生長率法で実施した。<sup>2)</sup>その結果、これらは1990年の我々の測定値に良く接続し、 $\sigma_{21}$ 値は奥野らの測定値や島倉らの理

論値とほぼ一致した。しかし $\sigma_{20}$ 値は他のと異なりエネルギー依存性がほとんど認められなかった。しかし測定した位置スペクトルから、低エネルギーになるほど電荷移行反応を起こした粒子が大角度に散乱され、衝突室の出口スリットから一部の粒子しか捕集されず、断面積値が見かけ上小さくなってしまふと考えられる。このことから奥野らのOPIG法による $\sigma_{20}$ 値のほうが、信頼性が高いと言える。しかし同じようにピークが広がっているのに、 $\sigma_{21}$ 値は他とほぼ同じ値が得られているのに対し、 $\sigma_{20}$ 値は大きく異なっているのは理解できないことであり、今後のより深い研究の進展が望まれる。

### 3-2. $C^+$ , $N^+$ , $O^+$ - He, $H_2$ 衝突系における電荷移行反応断面積測定

これらの衝突系に対する0.7から4.0keVの我々の測定値は、1990年に公表されたが、<sup>3)</sup> この研究のねらいは以下の2点である。

(i) 入射イオンの電子状態、即ち基底状態のイオンのみの場合と準安定な励起状態(メタステーブル)を含む場合とで、電荷移行反応断面積がどのような影響を受けるかを明らかにする。

(ii) 測定データのほとんど存在しないHe標的に対する断面積値を明らかにすること。

この結果、 $N^+$ イオンと分離不可能な $N_2^{2+}$ イオンの生成の兼ね合いから、「ほとんど基底状態の場合」のみしか測定の出来なかった $N^+$ イオンを除き、他の衝突系では、すべてメタステーブルイオンを含む場合の方が断面積が大きくなった(Fig. 3参照)。これらのことから既存のデータの存在する $H_2$ 標的では、Nuttらの低エネルギー領域の測定値が励起状態イオンを含んでいる可能性があるとして指摘された。また既存のデータがほとんど無いHeで、新データを与えた。特に $C^+$  - He衝突系に対しては、知る限りにおいて世界初のデータであり、数keVの領域で $10^{-18}$ から $10^{-17}$ ( $cm^2$ )という小さな値であることが解った。

最近、アルゴン研究所の季村らは、 $N^+$ 及び $O^+$  - He衝突系に対し、理論計算を行った。<sup>6, 7)</sup> 何れも我々の測定結果を、合理的に説明している。Fig. 4に示す $O^+$  - He衝突系では、我々の基底状態の場合の断面積値のエネルギー依存性を概ね再現するだけでなく、メタステーブルイオンに対する断面積値も計算し、我々の混合ビーム(励起状態のイオンを含む場合)中の、メタステーブルイオンの混合率の推定も行っている。<sup>6)</sup>

### 3-3. $H^+$ , $C^+$ , $O^+$ - $H_2(D_2)$ , CO, $CO_2$ , $CH_4$ 衝突系における電荷移行反応断面積測定

$H^+$ 衝突系は他の研究グループによる測定の報告があるが、それらの信頼性を評価するために、本研究でも0.2から4.0 keVのエネルギー領域で測定した。特に $H_2$ 衝突系では測定例が多く、我々の実験方法の信頼性の確認ともなる。一例としてFig. 5に $H^+$  -  $H_2$ 衝突系の電荷移行反応断面積 $\sigma_{10}$ を示す。他の報告値と極めて良く一致している。しかし0.2 keV以下では弾性散乱の影響がきき始め断面積値を確定することが出来なかった。CO,  $CH_4$ は概ねBerknerらのまた $CO_2$ ではKoopmanらの測定値を支持する結果となった。

$C^+$  -  $H_2$ 衝突系は、(2)で述べた我々の報告とほぼ同時期に、Xuらが0.5keV以下の測定値を報告した。そこでより純粋な基底状態のイオンを作るよう注意深くかつエネルギー領域も0.15

から4.5keVと広げて再測定したものである。誤差範囲内ではあるが、1990年のものより更に断面積値はやや小さくなりかつXuらの測定値と完全に接続した。

既存のデータの少ない $C^+ - CO, CO_2, CH_4$ 衝突系に対しても、0.2から4.5keVのエネルギー範囲で新しい測定値が得られた。その中でも $CH_4$ の断面積値の低エネルギー部分での依存性が、特徴的である(後述。(4)のFig. 7参照)。これは(4)の各種の炭化水素分子との衝突系と共に、衝突の機構について今後深く検討していかなければならない。

$D_2$ は $H_2$ の同位体分子であり、質量以外はあまり大きな差異はないのであるが、何らかの同位体効果が、電荷移行反応断面積に現れるかどうかを確認しておく必要がある。そこで $H^+$ と $C^+$ イオンに対し、 $D_2$ 標的に対しても測定した。何れの衝突系でも概ね $H_2$ に対する断面積値と誤差範囲内で一致し、特に同位体効果は見られなかった。

$O^+ - H_2$ 衝突系では、 $CO_2$ ガスから作成した基底状態の $O^+(^4S)$ イオンに対する今回の我々の測定値は、Fig. 6に示すように、入射エネルギーの増加と共に2 keVまではゆるやかに減少し、それ以上で急激に増加してHoffmanらの高エネルギーデータに接続していく。実効電子衝撃エネルギーがやや高めであった我々の1990年の報告値は、やはりエネルギー依存性は今回と同じであるが、最大35%大きい。これは $^2P$ や $^2D$ 状態の $O^+$ イオンが、わずかに混入している可能性があると思われる。一方、ビーム減衰法を用いたXuらの低エネルギーデータと今回の測定値とは、全く接続していない。Irvineらの低エネルギーデータも、0.6, 0.75及び1keVでは我々の近くに来るが、0.4, 0.2及び0.1 keVではXuらのデータと一致している。前述したように $C^+$ イオンではXuらのデータと我々のとは良く一致したのに、 $O^+$ イオンでの不一致の原因は分からない。念のためイオン源の条件を変えるために、 $O_2$ ガスを20.8eVの電子で衝撃して $O^+$ イオンを作って同じ測定を行っても、今回の $CO_2$ による測定値とほとんど同じであった。

またやはり既存の測定値の少ない $O^+ - CO, CO_2, CH_4$ 衝突系に対しては、新データを測定することが出来た。

### 3-4. $C^+ - C_2H_2, C_2H_4, C_2H_6, C_3H_4$ (アレン), $C_3H_4$ (メチルアセレン), $C_3H_6, (CH_2)_3, C_3H_8$ 衝突系における電荷移行反応断面積測定

一般式  $C_nH_{2n+2}$  で表され、1重結合の鎖式構造を持つ飽和炭化水素はパラフィン炭化水素と呼ばれ、 $CH_4, C_2H_6$ 及び $C_3H_8$ がこれに該当する。

また一般式  $C_nH_{2n}$  で表され、2重結合を1つ持つ鎖式構造の不飽和炭化水素はオレフィン炭化水素と呼ばれ、 $C_2H_4$ 及び $C_3H_6$ がこれに該当する。 $[CH_2]_3$ は環状構造を持ち2重結合のない炭化水素で、オレフィン炭化水素の仲間ではないが、CとHの数の関係は同じで、 $C_3H_6$ の異性体である。

さらに一般式  $C_nH_{2n-2}$  で表され、3重結合を1つ持つ不飽和鎖式構造の炭化水素はアセチレン炭化水素と呼ばれ、 $C_2H_2$ 及び $C_3H_4$ (メチルアセレン)がこれに該当する。異性体の $C_3H_4$ (アレン)は、2つの2重結合を持ちアセチレン炭化水素の仲間ではないが、やはりCとHの数の関係は同じである。

パラフィン炭化水素: Fig. 7に示すように、我々の測定値はいずれも、入射エネルギーが約1 keV以下においては、その増加に伴い断面積値は減少していき、およそ0.8 ~ 1 keVの領域で最小値をとり、約1 keV以上では入射エネルギーとともに断面積値は増加していき、京大工の測定値

に接続する。Olson-Demkov 理論による計算値は、1 keV以上の我々の測定値の傾向を説明できる。また各分子のイオン化ポテンシャルから定まるエネルギー欠損の値と断面積の大小関係も良く説明できる。しかし1 keV以下の測定値の“異常”なエネルギー依存を説明することは出来ない。

オレフィンおよびアセチレン炭化水素： $C_2H_4$ 以外のすべての炭化水素に対して、低エネルギー部での断面積値の“異常”がやはり認められた。パラフィン炭化水素系のような“システムティック”は明確とは言えないが、それでも1keV以上のエネルギー領域で、オレフィン炭化水素はほぼ一定となり、アセチレン炭化水素では、緩やかな構造を持っていると言える。

#### 4. 今後の研究の展開に関する計画

本研究により、核融合エッジプラズマ領域に関わりのある数多くの衝突系に対する電荷移行反応断面積が測定され、新しい知見と問題点が明らかになった。今後これらのデータを基に、考察を深めていく予定である。そのために次の2点を中心に検討している。

- (i) 奥野らの開発したOPIG法の導入により、粒子の発散を防止しつつより低エネルギーの電荷移行反応断面積を測定する。
- (ii) 電荷移行反応の機構を異なる角度から検討するために、標的分子の二次イオンの計測を可能にすること。

一方入射イオンや標的粒子の種類は、核融合プラズマ実験装置の進展と共に、興味の対象が年々変わっていく。我々もこれまでの「炭素プラズマ」に対応した衝突系だけでなく、特に国際協力のITERで問題となると考えられている衝突系も、今後測定出来るように実験装置を整備していきたいと考えている。特に「高融点金属イオンの電荷移行反応」には関心があり、出来るだけ取り扱いの容易な金属イオン源を試作し始めている。

なおこの研究の初期 [(1)と(2)] においては、故人の水本良彦博士と病気退職された桂山幸典教授が、また研究の大部分 [(2)以降] において、核融合科学研究所の俵博之博士が、それぞれ共同研究者としてこの研究の推進のために尽力下さいましたことを、追記させていただきます。

#### 引用文献

- 1) T. Kusakabe, H. Yoneda, Y. Mizumoto and K. Katsrayama : J. Phys. Soc. Jpn., **59** (1990) 1218.
- 2) T. Kusakabe : J. Fac. Sci. Technol. Kinki Univ., **30** (1994) 165.
- 3) T. Kusakabe, Y. Mizumoto, K. Katsrayama and H. Tawara : J. Phys. Soc. Jpn., **59** (1990) 1987.
- 4) K. Okuno, K. Soejima and Y. Kaneko : J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **25** (1992) L105.
- 5) N. Simakura, M. Kimura and N. F. Lane : Phys. Rev. A, **47** (1993) 709.
- 6) M. Kimura, J. P. Gu, H.-P. Liebermann, Y. Li, G. Hirsch, R. J. Buenker and A. Dalgarno : Phys. Rev. A, **50** (1994) 4854.
- 7) M. Kimura : Phys. Rev. A, **51** (1995) 2063.

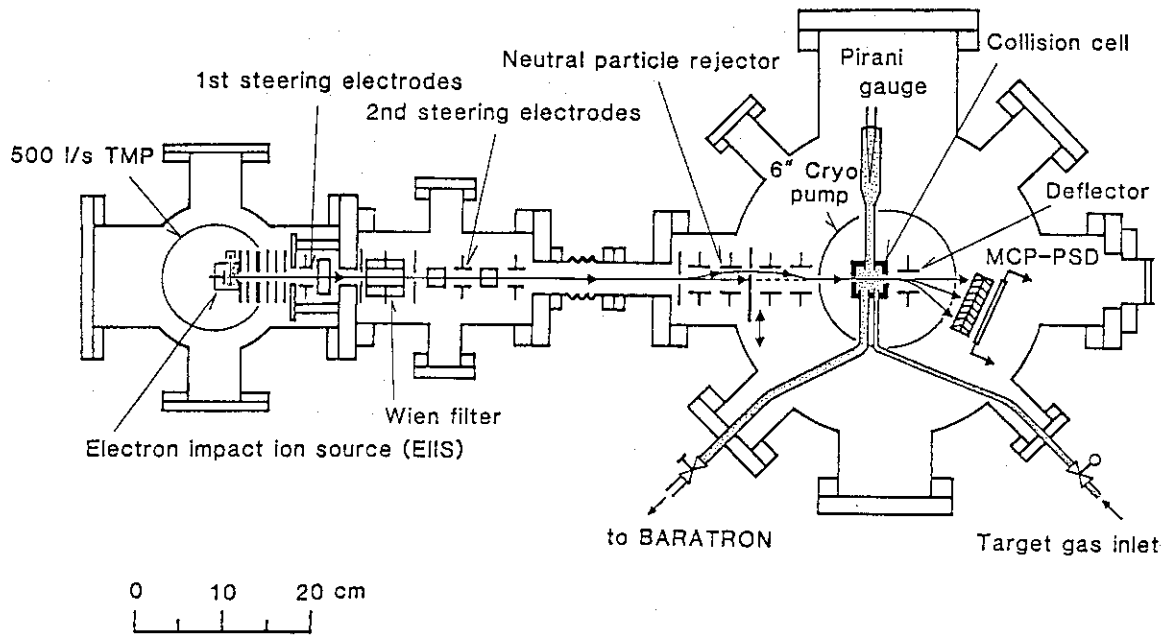


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental arrangement.

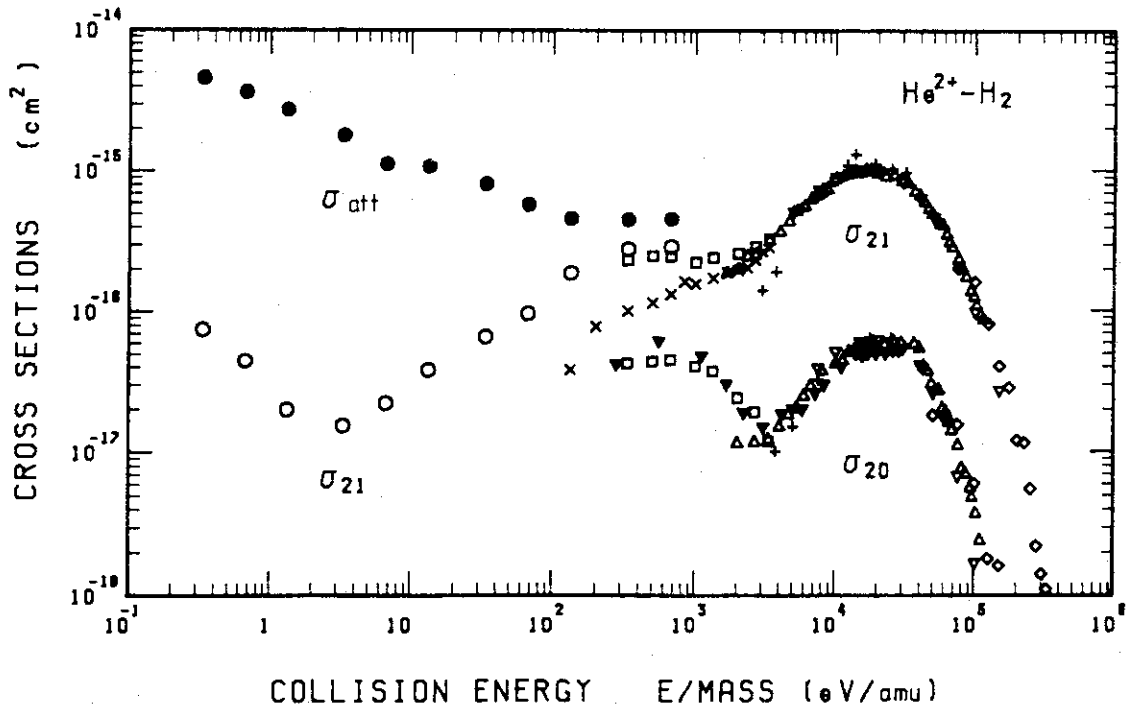


Fig. 2. Total attenuation cross section,  $\sigma_{att}$ , and single- and double-charge transfer cross sections,  $\sigma_{21}$  and  $\sigma_{20}$ , in  $\text{He}^{2+} - \text{H}_2$  collisions as a function of  $\text{He}^{2+}$  energy/mass in units of eV/amu. Experimental data:  $\square$ , this work;  $\bullet$ ,  $\circ$ , Okuno *et al.*;  $\blacktriangle$ ,  $\blacktriangledown$ , Afrosimov *et al.*;  $\times$ , Nutt *et al.* (Reproduced from J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 25 (1992) L105.)

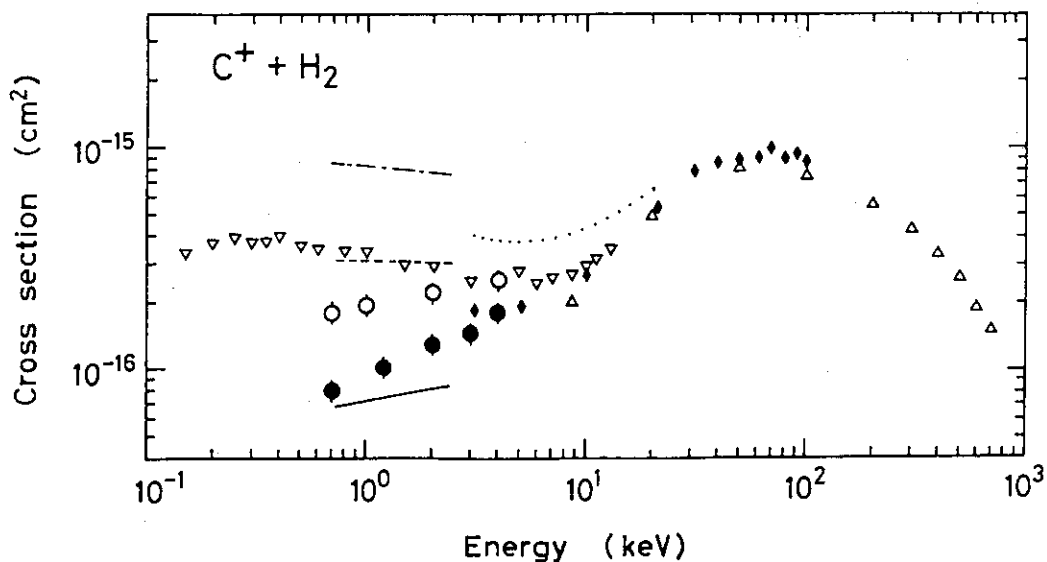


Fig. 3. Charge transfer cross sections of  $C^+$  ions colliding with  $H_2$  molecules.  
 ● - present data for the mostly ground state ions (produced from CO by 29.8 eV electrons);  
 ○ - present data for the mixed ions (produced from  $CO_2$  by 150 eV electrons);  
 —, - - - - - data for the ground state, mixed and metastable state ions, respectively, by Moran and Wilcox; ▽ - data for the mixed ions by Nutt *et al.*;  
 ◆, ····· - data for the ground state and mixed ions, respectively, by Hoffman *et al.*;  
 △ - data for the mixed ions by Phaneuf *et al.*  
 (Reproduced from J. Phys. Soc. Jpn., 59 (1990) 1987.)

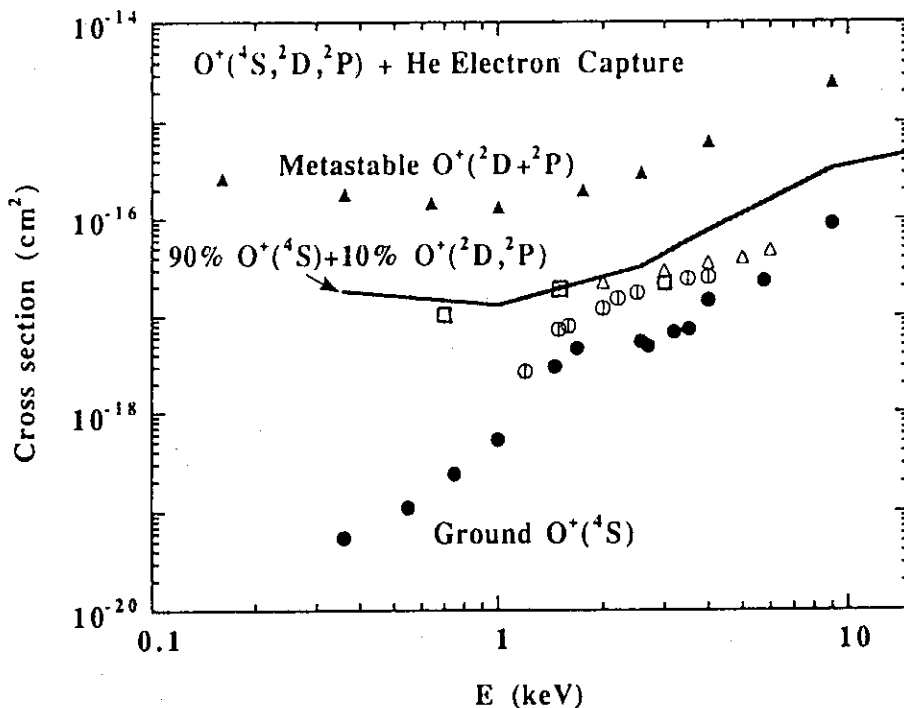


Fig. 4. Charge transfer cross sections of  $O^+$  ions colliding with He atoms.  
 Theory: ● -  $O^+(^4S)$ , ▲ -  $O^+(^2D, ^2P)$ , Kimura *et al.* Experiment: ○ -  $O^+(^4S)$ ,  
 □ - mixed ground and metastable state  $O^+(^4S, ^2D, ^2P)$ . Our data: △ - Wolfrum,  
 Schweinzer and Winter. (Reproduced from Phys. Rev. A, 50 (1994) 4854.)

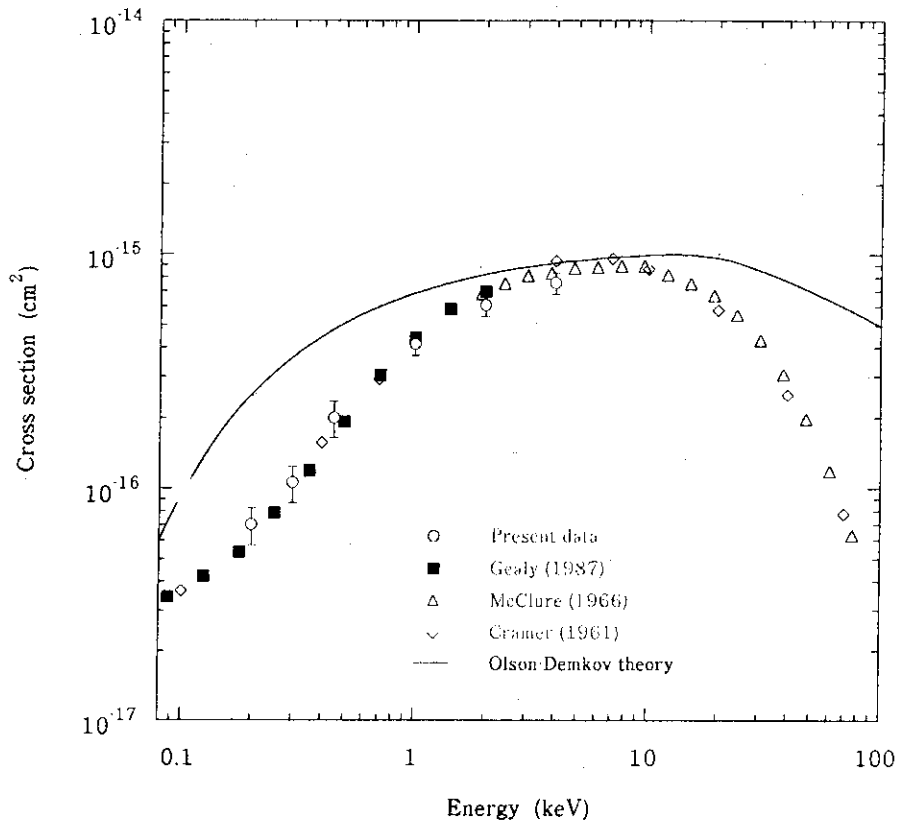


Fig. 5. Charge transfer cross sections of  $H^+$  ions colliding with  $H_2$  molecules.

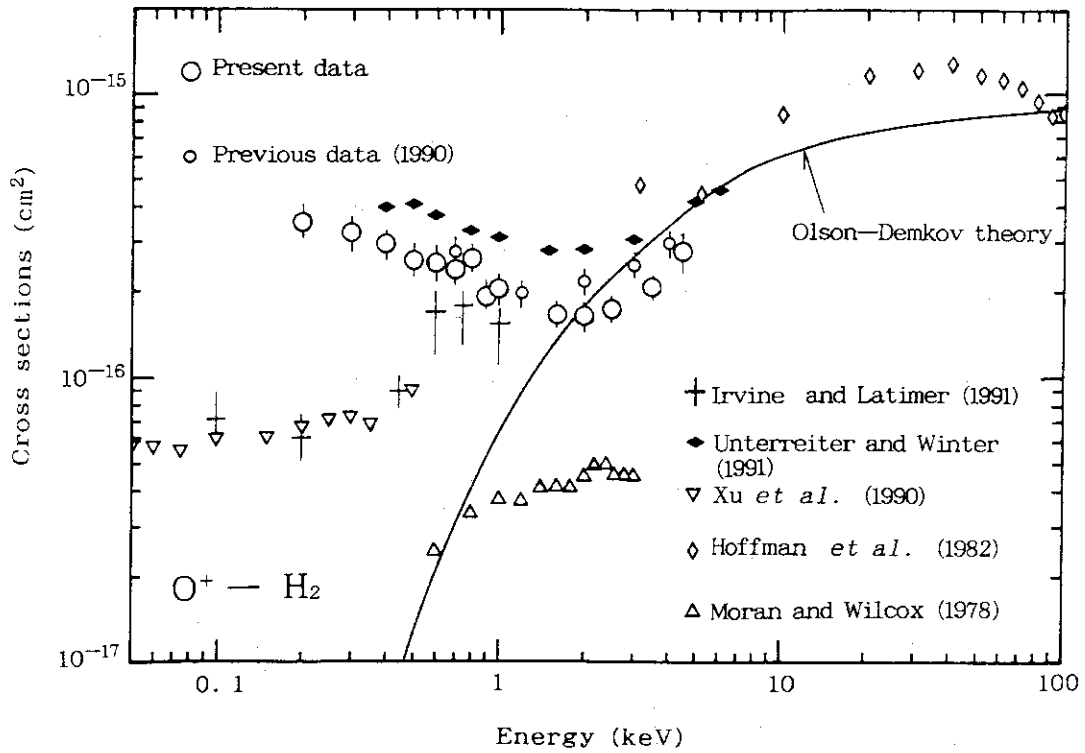


Fig. 6. Charge transfer cross sections of  $O^+$  ions colliding with  $H_2$  molecules.

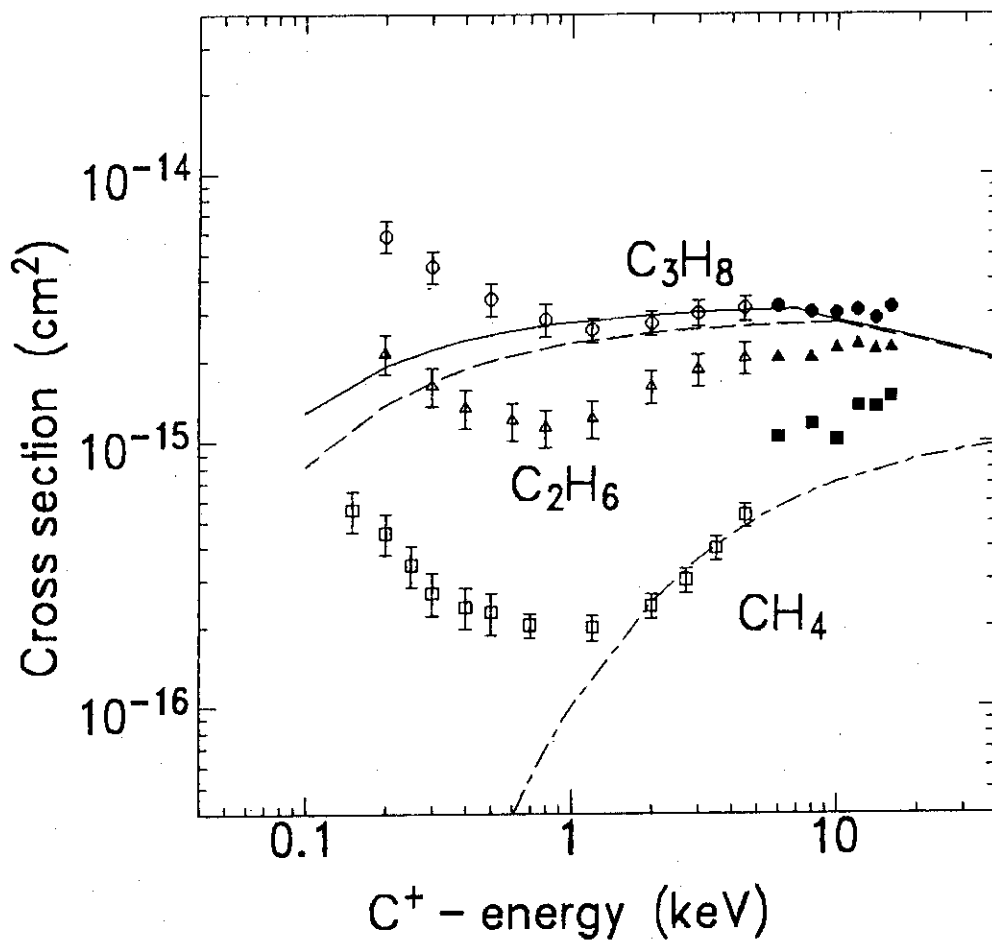


Fig. 7. Charge transfer cross sections of  $C^+$  ions colliding with  $CH_4$ ,  $C_2H_6$  and  $C_3H_8$  molecules. Experiment:  $\square$  -  $CH_4$ ,  $\triangle$  -  $C_2H_6$ ,  $\circ$  -  $C_3H_8$ , present data;  $\blacksquare$  -  $CH_4$ ,  $\blacktriangle$  -  $C_2H_6$ ,  $\bullet$  -  $C_3H_8$ , Kyoto Univ. Olson-Demkov theory:  $-\cdot-\cdot-$  -  $CH_4$ ,  $- - -$  -  $C_2H_6$ ,  $—$  -  $C_3H_8$ .

8. 低エネルギー  $\text{Ar}^{q+}$  ( $q=6\sim 11$ )- $\text{H}_2$ , He 衝突における電子捕獲反応断面積

東京都立大学・理学部 奥野和彦

## 1. 序論

多価イオンと中性原子分子との衝突過程では、衝突はイオンコアの電荷によるクーロン場に支配され、イオンの電荷数が大きく成るに従い強くなるクーロン場による標的原子分子の分極も強くなる。衝突エネルギーが高いと多価イオンと標的原子分子間に作用する分極力はほとんど無視されるが、衝突エネルギーが低くなるにつれこの遠距離力である分極力が衝突散乱過程に影響を及ぼし始めるであろう。多価イオンの衝突過程では、電子移行反応は反応断面積も大きく最も主要な反応過程のひとつである。比較的高いエネルギー領域における一電子移行反応については、これまで実験的にも理論的にも数多くの研究がなされ、その反応断面積の実験データもかなり蓄積され、理論的にもLandau-Zener model やClassical Over Barrier modelなどの比較的簡単な理論でも結構反応断面積を予測できることが分かってきた。しかし、多価イオンの低エネルギー衝突や多電子捕獲過程などについては、今日の多くの研究者が強い関心を持っているが、実験的にも理論的にもその取り扱いに難しさがあられこれからの研究課題とされてきた。

これまでに筆者等は、1978年にイオン移動管法を用いて、 $\text{Kr}^{2+}\text{-Kr}$ と $\text{Xe}^{2+}\text{-Xe}$ 衝突系における電子移行反応断面積を重心系0.04~20eVの低エネルギー領域で測定し、対称共鳴型二電子移行過程の反応断面積が1eV以下のエネルギー領域で急増し、低エネルギー側での対称共鳴二電子移行断面積の値が $\text{Kr}^+\text{-Kr}$ と $\text{Xe}^+\text{-Xe}$ 衝突系における対称共鳴型一電子移行反応の反応断面積の値より大きくなることを確認し、この低エネルギー領域での反応断面積の急増現象は標的原子の分極効果による、いわゆる、“オーベティング効果”によるものと結論してきた[1,2]。その後も、高周波電場でイオンの発散を防止する8重極イオンビームガイド (OPIG) の開発により低エネルギー領域でのイオンビーム・ガス衝突実験を可能にし[3]、 $\text{Ar}^{3+}\text{-Ar}$ と $\text{Kr}^{3+}\text{-Kr}$  衝突系における対称共鳴型の三電子移行反応断面積も衝突エネルギーの減少と共に増大し、低エネルギー領域で最も主要な反応過程となっていることを示してきた[4]。更に電荷数の大きな多価イオン衝突ではどのようなことになるかを追求するがため、エネルギー幅の狭い安定な低エネルギー多価イオンビームを引き出せる小型多価イオン源 (Mini-EBIS) を開発し[5]、今日までいろいろな多価イオン衝突系における電子移行反応について調べてきた[6,7]。

一般の対称型でない多価イオン衝突系の電荷移行反応では、通常衝突後にイオン対を生成する発熱反応で、対称共鳴型電荷移行反応とは様子が大きく異なる。このような一般の低エネルギー多価イオン衝突系では、分極力による効果がどのような現象となって現れるかは全く知られていない。最も基本的な水素分子とヘリウム原子を標的にした低エネルギー多価イオン衝突において、標的の違いやイオンの電荷数の違いが電荷移行反応断面積にどのような差異となって現れるか、また、多価イオンの電荷数の二乗に比例して増大するイオンと標的間の分極力による相互作用が電子移行反応衝突にどのような影響をもたらしているのか大変興味深い。このような観点から、0.07~300eV/amuの低エネルギー領域で $\text{Ar}^{q+}$  ( $q=6,7,8,9,11$ )- $\text{H}_2$ , He 衝突系におけるアルゴン多価イオンの一電子および二電子移行反応断面積を系統的に測定した。今回の測定結果を含むこれまでの一連の研究結果に基

づき、多価イオンの低エネルギー電子移行衝突におけるイオン・標的間の分極力がなす役割の重要性について考えてみる。

## 2. 実験方法

Mini-EBIS と OPIG とを組み合わせた多価イオンの電子移行反応断面積測定用の実験装置の概略を Fig.1 に示す。

Mini-EBIS は、高密度電子線の空間電荷で電子ビーム中に閉じ込めたイオンを電子衝撃の逐次電離で多価イオンを生成するタイプのイオン源で、電子線を高密度化するための磁場を作るソレノイドコイルを液体窒素中で直接冷却するアイデアでソレノイド自身と励磁

電源の小型化に成功したもので、イオン強度はそれ程強くはないが安定でかつエネルギー幅の狭い基底状態の多価イオンビームを供給できる[5]。Mini-EBIS から引き出された多価イオンビームは MS1 で選別され、適当なエネルギーまで減速されて衝突箱に打ち込まれる。衝突箱には OPIG が設置され、OPIG 内に誘起された高周波電場が中心軸に沿って入射したイオンおよび生成イオンの動径方向の運動を閉じ込め、実験室系で前方に散乱される全イオンを MS2 に導びく。イオンビームを電場で減速して衝突箱に打ち込む通常のイオン衝突実験法では、低エネルギー衝突における生成イオンの完全捕集のみならず入射イオン強度の確保も難しい。ところが、OPIG を使用する本実験では、OPIG 中のイオンの発散が防止されて前方に散乱する全イオンの捕集ができるだけでなく、高周波電圧を印加した OPIG 入口直前でのイオンビームの減速でイオン強度の減衰もなく、低エネルギーの全測定領域に渡りイオン強度一定の衝突実験が行えるという OPIG 使用の大きなメリットがある[3,4,6]。多価イオンの電荷移行過程の反応断面積は MS2 分析されて計測されるイオンの強度比の標的ガス圧依存から算出される。

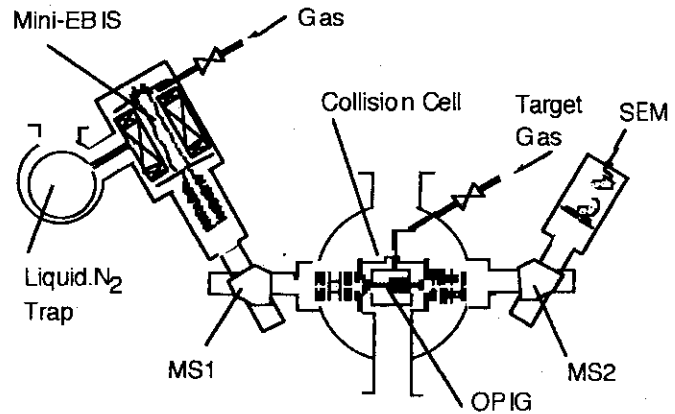
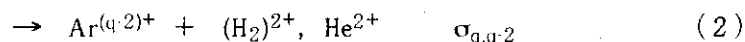
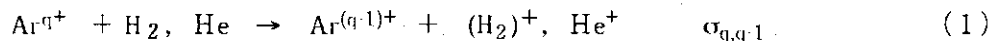


Fig.1 Schematic diagram of apparatus.

## 3. 実験結果

$\text{Ar}^{q+} + \text{H}_2, \text{He}$  衝突系では、1 電子捕獲過程 (1) と二電子捕獲過程 (2) の電荷移行反応が起こるが、二電子捕獲後にオージェ電子を放出する transfer ionization process (3) が起こる可能性がある。



この実験では、反応 (1) と (3) とによる生成イオンが同一なので  $\sigma_{\text{TI}}$  を分離測定できない。測定された反応断面積は、 $\sigma_1 = \sigma_{q,q-1} + \sigma_{\text{TI}}$  と  $\sigma_2 = \sigma_{q,q-2} - \sigma_{\text{TI}}$  なる関係で示される一電子および二電子

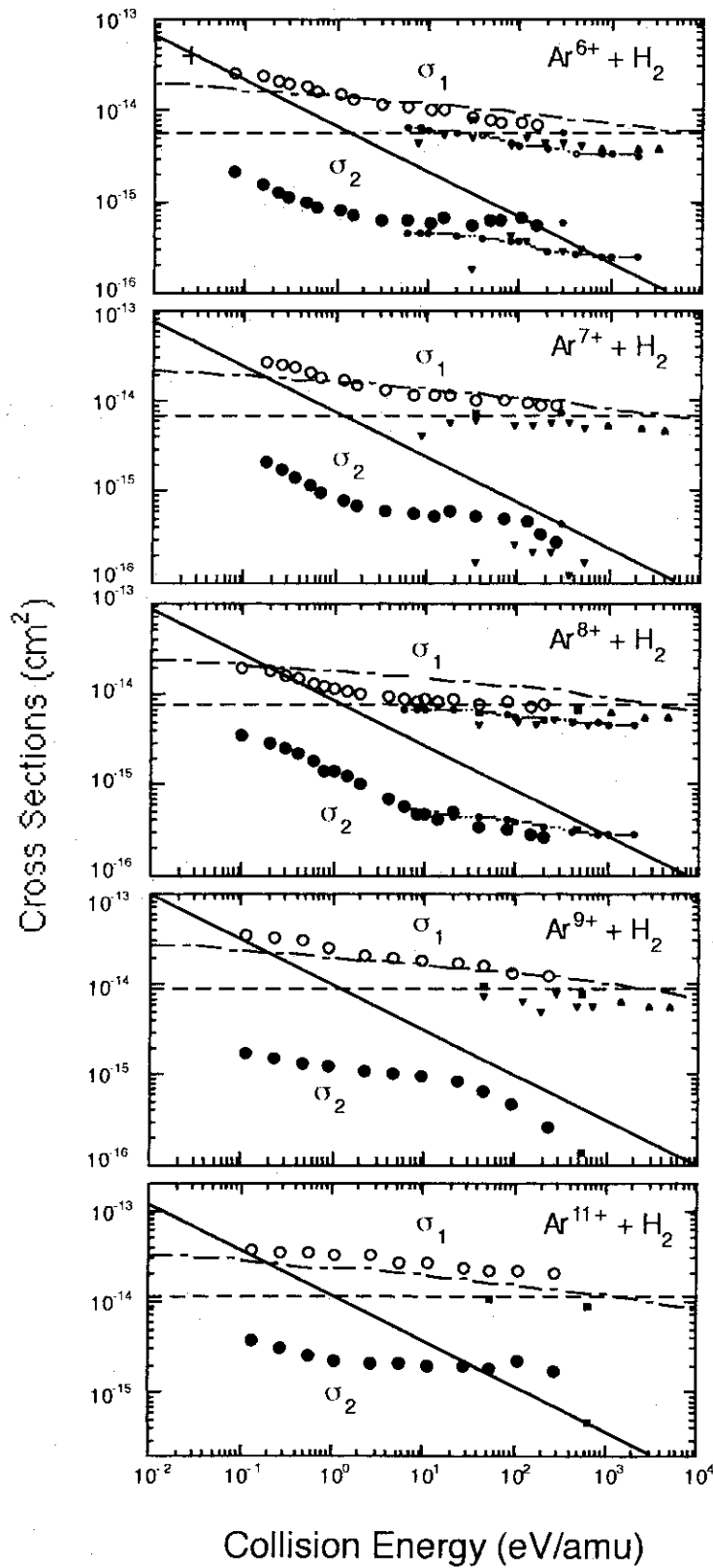


Fig.2 Electron transfer cross sections in collisions of  $Ar^{q+}$  ( $q=6,7,8,9,$  and  $11$ ) with  $H_2$ . Present data are denoted by  $\bigcirc$  for  $\sigma_1$  and  $\bullet$  for  $\sigma_2$ . Legend; --- for MS scaling low, - · - for absorbing sphere model, — for Langevin.

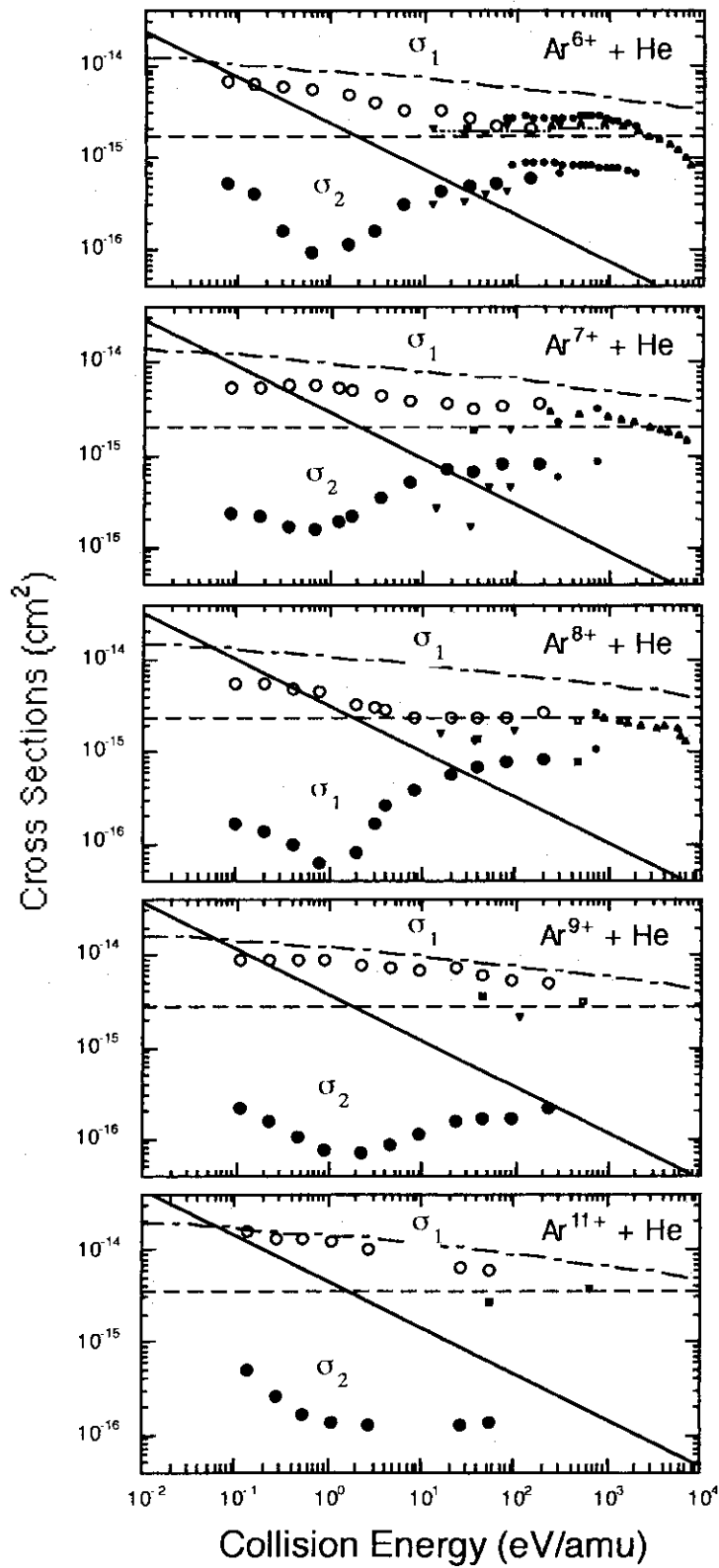


Fig.3 Electron transfer cross sections in collisions of Ar<sup>q+</sup>(q=6,7,8,9,and 11) with He. Present data are denoted by  $\bigcirc$  for  $\sigma_1$  and  $\bullet$  for  $\sigma_2$ . Legend; ---- for MS scaling low, - - - for absorbing sphere model and ——— for Langevin.

移行反応断面積の $\sigma_1$ と $\sigma_2$ である。また、標的の質量が入射イオンの質量に比べて非常に小さな衝突系であれば、衝突エネルギー $E$ (eV/amu)に比べて反応の発熱エネルギー $Q$ (eV)が相当大きな反応であっても $E$ (eV/amu) $> Q m_b/m_a(m_a - m_b)$  ( $m_a$ ; 入射イオンの質量、 $m_b$ ; 標的の質量) のエネルギー領域で重心系において全方位に散乱される全イオンは実験室系で前方散乱となる。OPIGを使用したこの測定では、実験室系で前方( $\theta < \pi/2$ )に散乱される全イオンの捕集ができるので、 $Ar^{q+}$ イオン衝突の $H_2$ 標的では $E$ (eV/amu) $> Q/760$ 、 $He$ 標的では $E$ (eV/amu) $> Q/360$ の各衝突エネルギー領域では重心系で全方位に散乱される全イオンが捕集されていると見なしてよい。

$Ar^{q+}$ ( $q=6,7,8,9,11$ )- $H_2$ 衝突系および $He$ 衝突系で測定された一電子移行反応断面積( $\sigma_1$ )、および、二電子移行反応断面積( $\sigma_2$ )とをそれぞれFig.2とFig.3とに衝突エネルギー $E$ (eV/amu)の関数として示し、従来の結果およびLangevin cross section, absorbing model やスケーリング則と比較してある。 $H_2$ 標的についてはすでに文献[7]に詳しく報告してある。

$H_2$ 分子標的では、一電子移行反応(1)+(3)が主反応でその反応断面積 $\sigma_1$ は二電子移行反応断面積 $\sigma_2$ より一桁程大きく、衝突エネルギーの減少と共に $\sigma_1$ と $\sigma_2$ のいずれも緩やかに増大し、低エネルギー側で急増する傾向を示している。 $He$ 原子標的では、 $H_2$ 分子標的の場合と同様に一電子移行反応が主要反応で $\sigma_1$ と $\sigma_2$ が低エネルギー側で増大傾向を示しているが、測定された $He$ 標的の断面積の $\sigma_1$ と $\sigma_2$ 値はいずれも $H_2$ 分子標的のものより小さく、 $\sigma_2$ において $E=1$  eV/amu近傍で極小を示す $H_2$ 分子標的と異なる顕著な特徴が見られている。

#### 4. 考察と結論

Fig.2およびFig.3で測定結果と比較した scaling law は、Muller と Saltborn らが10-100 keV のエネルギー領域で測定された電子移行反応断面積からイオンの電荷数 $q$ と標的のイオン化ポテンシャル $I$ を用いて導いた経験則で、次式の関係式で表される[8]。

$$\sigma_{MS} = A q^\alpha I^\beta \quad (4)$$

$A$ と $\alpha$ と $\beta$ は衝突エネルギーには依存しないパラメータ定数で、一電子移行反応断面積に対しては $A=(1.43 \pm 0.76) \times 10^{-12} \text{ cm}^2$ 、 $\alpha=1.17 \pm 0.09$ 、 $\beta=-2.76 \pm 0.19$ 、二電子移行反応断面積に対しても、 $A=(1.08 \pm 0.95) \times 10^{-12} \text{ cm}^2$ 、 $\alpha=0.71 \pm 0.14$ 、 $\beta=-2.80 \pm 0.32$ の値が求められている。二電子移行反応に対してのスケーリング則と実験結果との一致が余り良くないので、Fig.2およびFig.3には一電子移行反応に対するスケーリング則のみを表示した。Fig.2およびFig.3に見られるように、一電子移行反応断面積 $\sigma_1$ は衝突系ごとに固有なエネルギー依存を示しているが、エネルギー依存のないスケーリング則値とは高エネルギー側でおおむね良い一致を示している。

図中に一点鎖線で示した曲線は、Olson と Salop らにより Landau Zener Theory に基づき提唱された吸収球モデル[9]による計算値で、電荷移行の沢山の反応経路が存在するときに有効とされ、沢山の反応経路をある核間距離 $R_c$ でポテンシャル交差し確率1で電子が移行する一つの反応経路に近似する手法である。反応断面積は $\sigma_{OS} = \pi R_c^2$ で与えられ、 $R_c$ は次式で定められる。

$$R_c^2 \exp(-2.648 \alpha R_c/q^{1/2}) = 2.864 \times 10^{-4} q(q-1) v_0/f \quad (5)$$

ここで、 $\alpha = (I/13.6)^{1/2}$ 、 $I$ は標的のイオン化ポテンシャル、 $q$ はイオンの電荷数、 $v_0$ は入射イオンの初期速度で $f$ はFranck-Condon factorである。ここでは $f = 1$ として $\sigma_{OS}$ を求めた。 $H_2$ 分子標的とHe原子標的のいずれの場合も、おおよそ $1 \text{ eV/amu}$ 以上エネルギー領域の実験データ $\sigma_1$ はいずれもほぼ吸収球モデル計算値を上限としMSスケーリング則値を下限とする領域内に位置している。 $q = 8$ の実験値 $\sigma_1$ が特別に小さくほとんどMSスケーリング則値に合致し、 $q = 8$ 以外の実験値 $\sigma_1$ はむしろ吸収球モデル曲線に近いことが分かる。 $H_2$ 分子標的の一電子移行反応断面積 $\sigma_1$ がHe原子標的の断面積値より2~4倍大きな値をとるのは、He原子より $H_2$ 分子における電子の結合エネルギーが小さいため電子がイオンの状態密度のより高い高励起準位に捕獲され、また、電子捕獲後の標的の電子遷移 $(H_2)^+$ 終状態の数が多く電子移行反応に関与できる反応経路が多いことに起因していると解釈される。

低エネルギー側で反応断面積が急増する現象について検討する。電荷 $q$ の多価イオンが分極率 $\alpha$ の標的にゆっくり接近すると分極力によるポテンシャル $V = -\alpha q^2 / 2R^4$ でイオンの軌道が曲げられ、ある衝突計数 $b_0$ のとき軌道半径 $R_0$ の旋回軌道をとる。 $b_0$ は $b_0 = 2^{1/2} R_0$ の関係にあり次式で与えられる。

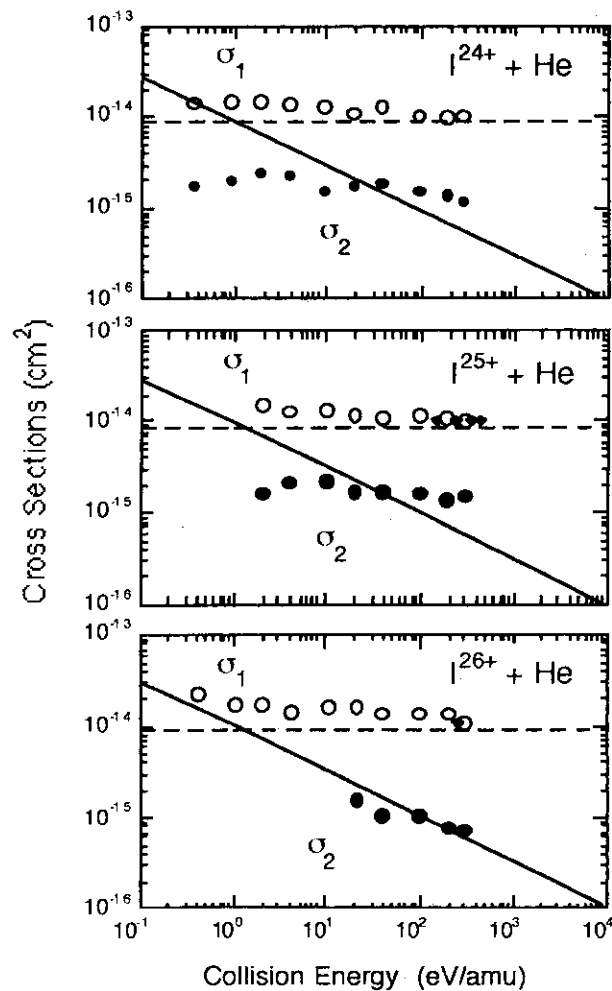


Fig.4 Single- and double electron transfer cross sections in  $Iq^+(q=24-26)$ -He.

$$b_0 = (4 q^2 \alpha / \mu v_r^2)^{1/4} \quad (6)$$

$\mu$  は換算質量で  $v_r$  は相対速度である。この断面積  $\sigma_L$  は、衝突係数  $b$  が  $b < b_0$  の領域での衝突で反応確率が 1 であるときの Langevin の断面積 [10] としてよく知られている。

$$\sigma_L = \pi b_0^2 = \pi q (4 \alpha / \mu v_r^2)^{1/2} \quad (7)$$

反応断面積が衝突速度に反比例するこの Langevin 様の反応断面積は、一価イオンの熱エネルギー領域の衝突過程で“オービティング効果”として良く知られている。測定断面積  $\sigma_1$  はいずれも Langevin の断面積  $\sigma_L$  に漸近的に近づく傾向を示し、 $\text{Ar}^{6+} \cdot \text{H}_2$  衝突系においては、低エネルギー側のペニングトラップ実験による  $\sigma_L$  に一致する全電荷移行反応断面積の結果 [11] は、ほぼ測定値  $\sigma_1$  の低エネルギー側外挿上にある。

(7) 式に示すよう  $\sigma_L$  はイオンの電荷  $q$  に比例して増大するので、電荷数の大きな多価イオン衝突では熱エネルギー領域よりもより高いエネルギー領域で“いわゆるオービティング効果”が観測されても良いはずである。このような期待のもとに、イオンの電荷数の大きな  $\text{I}^{q+}$  ( $q=24, 25, 26$ ) - He 衝突系 (Fig.4)、そして、標的の分極率の大きな  $\text{C}^{4+} - \text{Ar}, \text{Kr}$  衝突系 (Fig.5) で電子移行反応断面積を測定したが、Langevin 様の反応断面積とはなっていない。Fig.4 に実線で示すように  $\sigma_L$  は電荷数  $q^{1.0}$  に比例して大きくなっているが、測定エネルギー領域内では  $\text{I}^{q+}$  ( $q=24, 25, 26$ ) - He 衝突系で

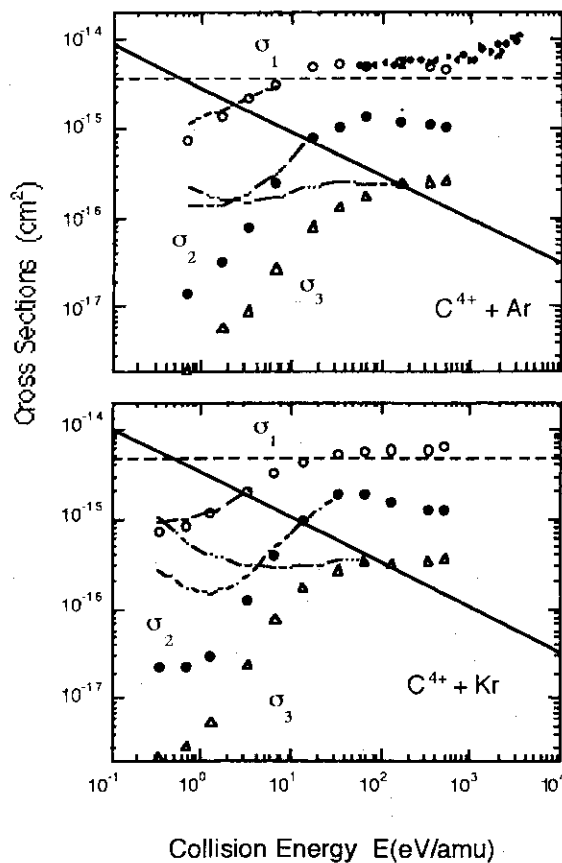


Fig.5 Charge transfer cross sections in collisions of  $\text{C}^{4+}$  with Ar and Kr

測定される $\sigma_1$ の値の方も $q^{-1.17}$ に比例するMSスケーリング則に従って大きくなり、 $\sigma_1$ と $\sigma_{MS}$ との相対的な関係はFig.2やFig.3の状況とほとんど変化していない。また、Fig.5では、 $C^{4+}-Ar, Kr$ 衝突系でのいずれの測定断面積も予想に反し、低エネルギー領域で衝突エネルギーの減少と共に急速に減少している。しかし、 $C^{4+}-Ar, Kr$ 衝突系では入射イオンの質量が標的の質量より軽いため、電子捕獲入射イオンの計測から得られた測定結果は実験室系での前方散乱の部分断面積に相当し全断面積にはなっていない。実際の断面測定において、衝突エネルギーの減少と共に測定された前方散乱の断面積が急激に減少し始めるエネルギー領域で、標的から生成された標的イオンが出現し低エネルギー側で急増することを見出した。標的イオンの観測から得られる後方散乱の断面積を見積もり加味すると、各電荷移行反応の全断面はFig.5の鎖線で示すように修正される。この後方散乱の出現は分極力による散乱現象に依拠し、電子移行を起こす反応領域がより内側に存在する多電子移行過程ほどより高いエネルギー領域から後方散乱の影響が現れ低エネルギー領域における後方散乱の占める割合が大きく成っていることがわかる。

全方位散乱のイオン捕集の可能な $Ar^{q+}(q=6,7,8,9,11)-H_2, He$ 衝突系で測定された反応断面積に見られる低エネルギー側で増大するエネルギー依存は、いずれも衝突エネルギーの減少と共に増大していくオービティング軌道半径 $R_0$ が電子移行反応の反応経路のポテンシャル交差の核間距離 $R_c$ を越える当たりから始まり、He標的の二電子移行反応における測定断面積 $\sigma_2$ の極小値を示すエネルギー位置も丁度オービティング半径 $R_0$ が関係する二電子移行の反応経路のポテンシャル交差位置 $R_c$ を越える位置に相当している。以上の実験結果と考察から、低エネルギー多価イオン衝突では、分極による相互作用力は電子移行反応において反応領域 $R_c$ の小さな多電子捕獲過程ほど高いエネルギー領域から影響を与えはじめ、低エネルギー領域で大角散乱を引き起こす重要な役割を演じている。そして、反応断面積のエネルギー依存はオービティング軌道半径と反応経路のポテンシャル交差位置との競合関係で特徴付けられていると結論される。

## References

- 1) K. Okuno, T. Koizumi and Y. Kaneko, Phys. Rev. Lett., **40** (1978) 1708.
- 2) T. Koizumi, K. Okuno and Y. Kaneko, J. Phys. Soc. Jpn., **51** (1982) 2650.
- 3) K. Okuno, J. Phys. Soc. Jpn., **55** (1986) 1504.
- 4) K. Okuno and Y. Kaneko, Mass Spectrom. Jpn., **34** (1986) 351.
- 5) K. Okuno, AIP Conf. Proc., **188** (1988) 33; Jpn. J. Appl. Phys., **28** (1989) 1124; Buturi, **47** (1992) 285.
- 6) K. Okuno, K. Soejima and Y. Kaneko, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., **B53** (1991) 387.
- 7) S. Kravis, H. Saitoh, K. Okuno, K. Soejima, M. Kimura, I. Shimamura, Y. Awaya, Y. Kaneko, M. Oura and N. Shimakura, Phys. Rev., **A52** (1995) in press.
- 8) A. Müller and E. Salzborn, Phys. Lett., **62A** (1977) 391.
- 9) R. A. Olson and A. Salop, Phys. Rev., **A14** (1976) 579.
- 10) G. Gioumousis and D. P. Stevenson., J. Chem. Phys., **29** (1958) 294.
- 11) S. D. Kravis, D. A. Church, B. M. Johnson, M. Meron, K. W. Jones, J. C. Levin, I. A. Sellin, Y. Azuma, N. Berrah-Mansour, H. G. Berry and M. Druetta, Phys. Rev., **A45** (1992) 6379.

## 9. $A^{q+} + H_2$ における電子捕獲衝突

京都大学原子核工学教室 今井 誠

「研究会」では以下の事柄につき発表した。

- ①  $A^{q+} + H_2$ 衝突時に起こる素過程
- ② 核融合研究における  $A^{q+} + H_2$ 電子捕獲断面積データの必要性
- ③ 電子捕獲断面積測定に用いられる実験的手法
- ④ 最近10年間の  $A^{q+} + H_2$ 電子捕獲断面積データ
- ⑤ 当研究室における  $Be^{q+} + H_2$ 電子捕獲断面積測定

ここでは、このうち②、④につきまとめる。

### 1. 核融合研究における $A^{q+} + H_2$ 電子捕獲断面積データの必要性

1992年10月のIAEA Technical Committee Meeting on "A+M Data for Fusion Reactor Technology" (注: IAEAでは原子分子のことをA+Mと呼称する)でまとめられた、核融合研究に必要とされている原子分子データは、以下のように大別される。

1. Atomic and Molecular
  - (a) Spectroscopic Data
  - (b) Collision Data for Plasma Edge Studies  
(Includes: neutral particle transport modelling and diagnostics, H-recycling, He-exhaust)
  - (c) Radiative Plasma Cooling
    - i. Plasma core region
    - ii. Plasma edge region
2. Plasma-Material Interaction
3. Materials Properties

このうち1-(b),1-(c)-ii.には、水素分子ターゲットからの電子捕獲衝突が関係する項目として、

- 1-(b) ・ Inelastic collision processes of He,  $He^+$  and  $He^{2+}$  with e, H,  $H^+$ ,  $H_2$ ,  $H_2^+$  at low energies, including processes with excited H, He and  $H_2$ .
- 1-(b) ・ Completion of collisional data bases for Be, B and their ions (including collision processes of  $Be^{q+}$ ,  $B^{q+}$  with electrons, and quasi-resonant processes of  $Be^{q+}$ ,  $B^{q+}$  with H, He and  $H_2$ ).
- 1-(b) ・ Collision processes of high-Z impurities (Ga, V, Mo, W) with e,  $H^+$ , H,  $H_2$ .
- 1-(c)-ii. ・ Collisions of  $A^{q+}$  with H, He,  $H_2$ , including state selective electron capture.
- 1-(c)-ii. ・ All processes of Kr and Kr-ions with H,  $H^+$ ,  $H_2$ ,  $H_2^+$ , He,  $He^+$ ,  $He^{2+}$  (for the proposed Kr-radiative cooling scheme of diverters).

が含まれている。若干の補足を加えると、ITERなどの大型の核融合炉の建設が考えられている

昨今、プラズマ閉じ込め容器はこれまでのような軽元素ではなく、SUSなどのスパッタリングの起きにくい金属が候補として有力となっていることに伴い、Ni, Cr, Feのイオンが関係した過程についての断面積データが、またプラズマの大型化による熱負荷の増大のため、従来の固体ダイバーターに代えてガスダイバーターを使用することが提案されていることに伴い、希ガスの関与した過程についての断面積データおよび励起水素分子の関与した衝突についての詳細な断面積データが、これらの過程の有効性を議論するため、希ガスと励起水素分子のイオン、原子が相互に衝突する過程の断面積データなどが、特に高い必要性を有すようになった。比較的測定値の少ない、state-selectiveな衝突データも相変わらず求められている。

## 2. 最近10年間の $A^{q+} + H_2$ 電子捕獲断面積データ

筆者の属する研究室では、1984年以降原研核データセンターからの委託研究として、学術誌等に掲載された原子・分子・イオンの衝突断面積データを収集整理している。そのうちターゲットが水素分子であるものについて代表的なものを以下に紹介する。掲載誌名等をお知りになりたい方は、ご連絡下さい。1987年以降 RTE (Resonant Transfer and Excitation ; 一回の衝突でターゲットからの電子捕獲と、入射粒子が元々持っていた電子の励起とが共鳴的に起こる過程で、衝突エネルギーが比較的高い場合電子捕獲過程の一つとして無視できない)の研究が盛んとなっており、一項を設けた。その他の項で振動励起を伴った水素分子に関する論文が12編挙げられているが、これについては「研究会」で詳しい紹介があったのでそちらをご覧ください。

### ・ Report, Review 類

Tabata et al. 1986	$H^0, H^+$	$1 \sim 10^7$ eV/u	fitting
Gilbody 1989	$C^{q+}, O^{q+}$	$0.1 \sim 200$ keV/u	
Tawara et al. 1989	$C^{q+}, O^{q+}$		
Tabata et al. 1990	$H^+$	$1 \sim 10^7$ eV/u	fitting, state-selective
Fritsch et al. 1991	$Fe^{q+} (Ti^{q+})$	$0.01 \sim 14000$ keV/u	
Tawara 1991	$Be^{q+}, B^{q+}$		
Phaneuf et al. 1992	$Be^{q+}, B^{q+}$		

### ・ Total Cross Sections

Can et al. 1985	$Ne^{q+} (q=2-7), Ar^{2+, 3+}, Kr^{2+}$	$2 \sim 300$ eV/u
Ciric et al. 1985	$C^{3+}$	$1 \sim 2$ keV/u
Dijkkamp et al. 1985	$C^{4+}, N^{5+}, O^{6+}$	$0.5 \sim 5$ keV/u
Meyer et al. 1985	$C^{6+}, N^{6+, 7+}, O^{7+, 8+}, F^{8+, 9+}, Ne^{9+, 10+}$	$0.2 \sim 9$ keV/u
Rudd et al. 1985	$^3He^{2+}$	$4 \sim 150$ keV/u
Wilkie et al. 1985	$N^{2+}$	$0.04 \sim 15$ keV/u
Gealy et al. 1987	$H^0, H^+$	$60 \sim 2000$ eV/u
Phelps 1987	$H^+, N^+, Ar^+$	
Huq et al. 1988	$O^{2+}$	$1 \sim 40$ eV/u

Kusakabe et al. 1990	$C^+, N^+, O^+$		40 ~ 300 eV/u	
Yaodong et al. 1990	$C^+ (^2P_0, ^4P)$		1 ~ 40 eV/u	
Irvine et al. 1991	$O^+$		3 ~ 6 keV/u	
Sanders et al. 1991	$O^{7,8+}, F^{8,9+}$		0.5 ~ 1.5 MeV/u	
Tanis et al. 1991	$U^{90+}$		90 ~ 170 MeV/u	
Unterreiter et al. 1991	$C^+ (^2P_0, ^4P), C^{2+} (^3P_0, ^1S)$		30 ~ 400 eV/u	
Hvelplund et al. 1992	$Au^{q+} (q=3-24), Dy^{q+} (q=4-20), Re^{q+} (q=6-20), 20 \sim 100$ keV/u $Ta^{q+} (q=4-21), U^{q+} (q=4-25)$			
Montenegro et al. 1992	$C^{3+}, O^{5+}$		100 ~ 300 keV/u	
Okuno et al. 1992	$^3He^{2+}$			
Rottmann et al. 1992	$C^+$		10 ~ 100 keV/u	
Soejima et al. 1992	$C^{4+}$		0.3 ~ 500 eV/u	
Kravis et al. 1993	$Ar^{6,7,8+}$		6 ~ 8000 eV	
El Motassadeq et al. 1993	$Ar^{5,6+}$		10q keV	
Vancura et al. 1993	$Ar^{q+} (q=8-16)$		500 eV/u	
Vancura et al. 1993	$Ar^{q+} (q=8-16)$		2.3q keV	
Aguillon 1994	$He^+$ (dissociative capture)		2 ~ 10 eV	Theory
· Differential Cross Sections				
Schafer et al. 1985	$O^+ (^4S, ^2D)$	0.05 ~ 5 °	1.5 ~ 5 keV	
Williams et al. 1986	$H^+$	30 ~ 90 ° into (2s)	3.3 ~ 24 keV	
Smith et al. 1987	$H^+, He^+$	0.01 ~ 1 °	keV region	
Shingal et al. 1989	$H^+$	3 ° into (2s),(2p)		Theory
Gao et al. 1990	$He^+$	0.02 ~ 1.0 °	1.5 keV	
Gao et al. 1991	$H^+$	~ 1 °	0.5, 1.5, 5.0 keV	
· State-selective Cross Sections				
Druetta et al. 1987	ions of C,N,O,Kr	into (nl)	low	
Bouchama et al. 1988	$O^{7+}$	into (nl)		
Hippler et al. 1988	$I^{q+} (q=12-18)$	into (n)	100 ~ 250 keV/u	
Lindsay et al. 1988	$Ar^+$	into $^2P_{3/2}, ^2P_{1/2}$	10 ~ 1500 eV	
Rajgara et al. 1988	$N^{2+}$	into (n)	0.5 ~ 5.0 keV	
Hoekstra et al. 1989	$He^{2+}$	into (2p)	0.2 ~ 2 keV/u	
Salmoun et al. 1989	$O^{4+}$	into (nl)	40 keV	
Hoekstra et al. 1990	$He^{2+}$	into (nl)	2 ~ 13, 50 ~ 125 keV/u	
Hoekstra et al. 1990	$C^{4+}$	into (3s)	40 ~ 1200 eV/u	
Salmoun et al. 1991	$C^{5+}, N^{5+}, O^{5+}, Ar^{5+}$	into (nl)		
Boduch et al. 1992	$Kr^{8+}$	into $3d^{10}6p^2^2P, 3d^{10}6d^2^2D, 3d^{10}6f^2^2F$	120 keV	
Frieling et al. 1992	$He^{2+}$	into (4l)	30 ~ 150 keV/u	
McLaughlin et al. 1992	$C^{4+}$	into (3l)	0.3 ~ 1.2 keV/u	

Hoekstra et al. 1994	He <sup>2+</sup>	into (21)	1 ~ 25 keV/u
· RTEs			
Anthony et al. 1987	C <sup>4+</sup>		
Bernstein et al. 1987	Nb <sup>31+</sup> , La <sup>40+</sup>		
Schultz et al. 1989	F <sup>8+</sup>		
Chen 1990	Ca <sup>q+</sup> (q=16-19)		Theory
Pindzola et al. 1990	U <sup>90, 89+</sup>		Theory
Badnell 1991	S <sup>15+</sup> , Ge <sup>31+</sup>		Theory
Chen 1991	U <sup>82, 89, 90+</sup>		Theory
Graham et al. 1991	U <sup>90+</sup>		
Kuplyauskene 1991	Ca <sup>17+</sup>		Theory
Lee et al. 1991	F <sup>7+</sup> ( <sup>1</sup> S, <sup>3</sup> S)		
Parameswaran et al. 1991	C <sup>5+</sup>		
Chen 1992	Fe <sup>9+</sup> , Nb <sup>24+</sup> , La <sup>40+</sup>		Theory
Clark et al. 1992	Fe <sup>23, 24, 25+</sup>		
· Misc.			
Related Interest (Bragg-rule, molecular orientation など)			5 編
H <sub>2</sub> <sup>+</sup> (v) に関するもの			12 編

全断面積はともかく、state-selectiveな断面積測定が種々の入射イオンと衝突エネルギーについて不足している現状がわかる。またstate-selective断面積そのものに加え、励起状態から脱励起する際の分岐比の評価も重要である。「研究会」ではこれらのうち1電子捕獲全断面積データを、Tabata et al. 1987 [1]の解析的フィッティング式と共に紹介した。この経験式はH, H<sub>2</sub>, Heターゲットに関して広いエネルギー範囲で適用できるもので、H<sub>2</sub>ターゲットに関しては、入射エネルギー1 eV/amu ~ 1 MeV/amu、入射電荷4以上で入射イオン種に依らず、測定データを±30%以内で再現する。裸に近い比較的軽いイオンから多数の電子を持っている重イオンまでが、同じ価数でありさえすれば、広いエネルギー範囲にわたり一つの曲線に載ってしまうというのは、ある種の驚きですらある。state-selectiveあるいはpartial断面積についても同種の試みが行われているが、全断面積の時のようなユニバーサルな曲線は得られず、衝突系、着目ステート毎に異なった曲線となる。

#### Reference

- [1] Tabata et al. Single-Electron-Capture Cross Sections of Multiply-Charged Ions Colliding with H, H<sub>2</sub> and He, Radiat. Center Osaka Prefect. Tech. Rep. 9 (1987).

## 10. 低、中間エネルギー領域における多価イオンによる電子捕獲過程

新潟大学 理学部 島倉紀之

### 1. 序論

多価イオンによる電子捕獲過程は原子物理学の基礎的問題を多く提供するのでそれ自体興味深い  
が、そればかりでなくこの過程は (a) 核融合炉内のプラズマ中の反応、(b) X線レーザーの開発、(c)  
宇宙物理、(d) 新素材の開発等と関連して応用上非常に重要な反応であり、その断面積の数値を得る  
こと、反応機構を解明することは緊急を要する重要な課題である。多価イオンによる電子捕獲断面  
積が他の非弾性過程の断面積と比べて大きな値を持つこともこの反応を重要なものにしていく。

核融合炉内、宇宙空間で起こっている反応はいわゆる低、中間エネルギー領域 ( $E \leq 25$  keV/amu)  
の反応である。このエネルギー領域で電子捕獲過程を理論的に扱うには分子基底を用いなければい  
けない。この方法ではまず (1) 多価イオンの電子状態の計算を行う。このような多価イオンを含む系  
の電子状態の計算、特に高い電子励起状態の計算というのはこれまであまり行われておらず、いろ  
いろな問題を含んでいる。更にこの電子状態の計算は、衝突エネルギーが低くなればなる程精度の  
良いものが要求されるという傾向があり、技術的に難しいばかりでなく、かなりの計算時間を必要  
とする。次に (2) 電子並進因子を含めて、遷移を引き起こす結合項の計算を行わなければいけない。  
分子基底を用いた時の電子並進因子の扱いは一般論としては解決しているが、計算実行上の技術的  
な問題はまだ残っている。最後に (3) 多チャンネルの半古典的及び量子力学的緊密結合方程式を解く  
ことが必要となる。これも良い数値を得ようとすると相当な計算時間を必要とする。更に量子力学  
的緊密結合法に関して言うと、電子並進因子に関連して角運動量保存則をどのように取り込むか  
という理論上の問題さえ解決されていない。

このようにいろいろな問題点がまだ存在しているにしろ、現在かなりの精度で電子捕獲断面積が  
得られるようになってきている。我々はこれまで、分子基底に基づいて多価イオンによる電子捕獲  
断面積の計算、特に核融合炉の開発と関連の深いベリリウム、ホウ素、炭素、窒素、酸素の多価イ  
オンを水素原子、水素分子、ヘリウム原子に衝突させた時に起こる電子捕獲断面積の計算を低、中  
間エネルギー領域で行ってきた。本講演ではここ数年間我々が行ってきた計算の結果をまとめてお  
話ししたい。

### 2. 計算方法

我々の計算方法は分子基底展開法に基づいており、(1) 電子状態の計算、(2) 結合項の計算、(3) 遷  
移確率、断面積の計算、の3つの段階に大きく分けられる。

#### 2-1 電子状態の計算

衝突対が作る準分子の電子状態の計算は主に原子価結合法に基づく配置間相互作用法 (Generalized  
-Valence-Bond 法、略してGVB 法) により行なうが、必要な時には分子軌道法も併用する。このGVB  
法においてガウス型、Hellmann 型等の擬ポテンシャルを使うことができる。例えばガウス型の擬ポ  
テンシャルは次の形をしている。

$$V(r) = \sum_{l,m} V_l(r) |Y_{lm}\rangle \langle Y_{lm}| \quad (1)$$

ここで  $V_l(r)$  は

$$V_l(r) = A_l \exp(-\xi_l r^2) - \frac{\alpha_d}{2(r^2 + d^2)^2} - \frac{\alpha_q}{2(r^2 + d^2)^3} - \frac{Z}{r} \quad (2)$$

であり、 $|Y_{lm}\rangle$  は球面調和関数、 $A_l, \xi_l$  はコア電子を表す方位量子数に依存する擬ポテンシャルパラメータである。 $\alpha_d$ と $\alpha_q$ はそれぞれ双極、4重極分極率であり、これらの値の求め方は Dalgarno [1] の総説に載っている。切断半径  $d$  はハートリ・フォック計算から求められる。基底関数としては GVB 法ではスレーター型軌道が、分子軌道法ではガウス型軌道が用いられる。この計算により緊密結合方程式を解く際に（以下の (5)、(12) 及び (20) 式を参照）必要なポテンシャル・エネルギーが求まる。これまで行った計算では計算値は最大でも 0.5 % 以内の誤差で実験値 [2] と一致している。

## 2-2 結合項の計算

緊密結合方程式を解くにはポテンシャル・エネルギーの他に遷移を引き起こす動径結合、回転結合の値が必要になる（以下の (5)、(12) 及び (20) 式を参照）。この結合項の計算の際に電子並進因子を考慮する必要があるが、我々は専ら原子型の電子並進因子を用いた。

## 2-3 遷移確率、断面積の計算

ポテンシャルエネルギー、結合項を入力データとして用い、緊密結合方程式を解くことにより遷移確率、断面積を求める。

### 2-3-1 半古典的緊密結合法

数 10 eV/amu から 25 keV/amu の衝突エネルギー領域では半古典的方法を用いる。この方法はまず全散乱波動関数を次のように

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_n a_n(t) \phi_n^{BO}(\vec{r}, R) F_n(\vec{r}, \vec{R}) \quad (3)$$

時間に依存する係数、電子の断熱波動関数、及び電子並進因子の3つの項の積で展開する。ここで  $\vec{r}$  は多電子の座標をまとめて表しており、 $\vec{R}$  は標的から入射粒子までの座標ベクトルを示す。電子並進因子  $F_n(\vec{r}, \vec{R})$  は次のように切り替え関数、 $f_n(\vec{r}_k, \vec{R})$ 、を用いて表わせる。

$$F_n(\vec{r}, \vec{R}) = \exp \left[ \frac{i}{2} \sum_k f_n(\vec{r}_k, \vec{R}) \vec{v} \cdot \vec{r}_k - \frac{i}{8} \int v^2 dt' \right]$$

(3) 式を時間依存のシュレーディンガー波動方程式

$$i \frac{d}{dt} \psi(\vec{r}, t) = H_{el} \psi(\vec{r}, t) \quad (4)$$

( $H_{el}$  は電子ハミルトニアン) に代入し、電子並進因子を衝突対の相対速度  $\vec{v}$  で展開し、1次まで取ると遷移確率を求める緊密結合方程式が得られる。

$$i \frac{da_j}{dt} = \epsilon_j a_j + \sum_i \vec{v} \cdot (\vec{P} + \vec{A})_{ji} a_i \quad (5)$$

ここで  $\vec{P}$  と  $\vec{A}$  はそれぞれ非断熱結合項及び電子並進因子による補正項を表しており、

$$\vec{P}_{ji} = \langle \phi_j^{BO} | -i \vec{\nabla}_R | \phi_i^{BO} \rangle \quad (6a)$$

$$\vec{A}_{ji} = -\frac{1}{2} (\epsilon_j - \epsilon_i) \langle \phi_j^{BO} | \sum_k f_i(\vec{r}, \vec{R}) \cdot \vec{r}_k | \phi_i^{BO} \rangle \quad (6b)$$

である。 $\epsilon_j$  及び  $\phi_j^{BO}$  はそれぞれ  $j$  番目の電子状態の断熱電子エネルギー及びその固有関数であり

$$H_{el} \phi_j^{BO}(\vec{r}, R) = \epsilon_j \phi_j^{BO}(\vec{r}, R) \quad (7)$$

である。結合項  $\vec{P}$  と  $\vec{A}$  は分子骨格座標系では動径結合、回転結合の2つの項に分けられる。我々の扱う系では通常大きい核間距離での結合項が重要なので、原子型の電子並進因子(電子が所属する原子に依存して  $f_i(\vec{r}, \vec{R}) = \pm 1$  という値を持つとする)を用いる。重粒子の軌道としては古典的な軌道、通常は直線軌道が用いられるが、クーロン軌道を用いた計算も行い、両者の比較、検討を行った。(5)式を  $a_i(t \rightarrow -\infty) = \delta_{ij}$  の初期条件のもとで数値的に解くと、衝突エネルギー  $E$  及び衝突径数  $b$  の関数として展開係数が得られ、これから  $m$  番目の状態への遷移確率は

$$P_m(E, b) = |a_m(E, b)|^2 \quad (8)$$

と求められる。 $m$  番目の状態への断面積は

$$\sigma_m(E) = 2\pi \int db b P_m(E, b) \quad (9)$$

である。

### 2-3-2 量子論的方法

低エネルギー領域(数 10 meV/amu から数 100 eV/amu) では量子力学的緊密結合方程式を解いて断面積を求める。この方法は全散乱波動関数を次のように

$$\psi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_n \phi_n^{BO}(\vec{r}, R) X_n(\vec{R}) F_n(\vec{r}, \vec{R}) \quad (10)$$

電子波動関数、原子核の（散乱）波動関数、及び電子並進因子の3つの項で展開し、シュレーディンガーの波動方程式

$$H\psi(\vec{r}, \vec{R}) = E\psi(\vec{r}, \vec{R}) \quad (11)$$

（ $H$ は全ハミルトニアン）に代入し、電子並進因子を速度  $\vec{v}$  で展開し、1次の項まで残すと原子核の動径関数  $X^a(\vec{R})$  に対する2次の緊密結合方程式が得られる。

$$\left[ \frac{1}{2\mu} \left\{ -\vec{\nabla}_R \cdot \mathbf{I} + (\vec{P} + \vec{A}) \right\}^2 + \varepsilon - E \mathbf{I} \right] X^a(\vec{R}) = 0 \quad (12)$$

ここで  $\vec{P}$ 、 $\vec{A}$ 、 $\varepsilon$  は半古典的方法の所（(5)式）で出てきたものと同じであり、 $E$  は衝突エネルギー、 $\mathbf{I}$  は恒等行列、また  $\mu$  は換算質量である。我々はこの式を部分波展開法によって解くことにする。 $X^a(\vec{R})$  を部分波展開すると

$$X^a(\vec{R}) = \frac{1}{R} \sum_J \sum_M (-1)^J \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{\Lambda M}^J(\vec{R}) f^J(R) \quad (13)$$

となる。ここで  $J$  は全角運動量子数、 $M$  は  $J$  を分子軸上に射影した量子数、 $\Lambda$  は電子の軌道角運動量を分子軸上に射影した量子数である。結合項に鋭いピークがある時（一般にはこうなる）には、断熱基底のまま結合方程式を解くよりは透熱基底に変換した後解く方が易しいので、(12)式を透熱表示に変換する。すなわち

$$\frac{d\mathbf{C}}{dR} + (\vec{P} + \vec{A}) \mathbf{C} = 0 \quad (14)$$

と  $(\vec{P} + \vec{A})$  を対角化する変換行列  $\mathbf{C}(\vec{R})$  を用いると断熱基底での原子核の波動関数は

$$X^d = \mathbf{C}^{-1} X^a \quad (15)$$

と透熱基底のものに変換される。一方ポテンシャル行列は

$$V^d = \mathbf{C}^{-1} \varepsilon \mathbf{C} \quad (16)$$

と変換される。ここで  $\mathbf{C}$  は次の境界条件を満たさなければならない。

$$\lim_{R \rightarrow \infty} \mathbf{C}(\vec{R}) = \mathbf{I} \quad (17)$$

部分波展開した透熱基底での緊密結合方程式は次のようになる。

$$\left(\frac{d^2}{dR^2} + 2\mu E - \frac{J(J+1) - A^2}{R^2}\right) I f^J(R) - 2\mu V(R) f^J(R) = 0 \quad (20)$$

ここで始状態、終状態の波動関数が漸近的には

$$f_i^J \sim \frac{1}{\sqrt{k_i}} \left\{ \exp[-i(k_i R - \frac{1}{2} J \pi)] - S^J(i, i) \exp[i(k_i R - \frac{1}{2} J \pi)] \right\} \quad (21)$$

$$f_f^J \sim \frac{1}{\sqrt{k_f}} S^J(i, f) \exp[i(k_f R - \gamma \frac{1}{k_f} \ln 2 k_f R + \sigma_f - \frac{1}{2} J \pi)] \quad (22)$$

と書けることを用いると、(20)式は log-derivative 法 [3] を用いて部分波ごとに数値的に解くことができ、その結果、状態  $i$  から状態  $f$  への遷移に対する  $S$  行列が求まる。更に各部分波に対する  $S$  行列から

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{4k^2} \left| \sum_l (2l+1) S^l P_l(\cos\theta) \right|^2 \quad (23)$$

により微分断面積が求まる。ここで  $k = \sqrt{2\mu E}$  であり、 $P_l(x)$  はルジャンドルの多項式を表している。 $d\sigma/d\Omega$  を角度に関して積分すると全断面積

$$\sigma_{if} = \frac{\pi}{k_i^2} \sum_J (2J+1) |S^J(i, f)|^2 \quad (24)$$

が得られる。

### 3. 結果と考察

我々がこれまで扱った系を表 I にまとめてある。このうちのいくつかの系については以下で簡単に説明するが、その前に、得られた一般的な結論をまとめておく。

- (1) 標的が水素原子の場合にはほとんどの計算値は  $\pm 10\%$  程度の誤差で実験値を再現することがわかった。ただ ( $N^+ + H$ ) 系では我々の得た計算値と Zygelman 等 [4] の結果が定性的にも異なっており、いまだにその原因ははっきりしない。
- (2) 標的が水素分子の場合は計算できる衝突エネルギー領域が数 10 eV/amu から 25 keV/amu の比較的狭い範囲に限られる。
- (3) 標的がヘリウム原子の場合は、いつでもというわけではないが、イオン化（連続）状態が電子状態の計算を困難にすることがあり、その場合は精度がかなり悪くなる。

Table I. Our calculated systems

	2	3	4	5	6	8	1
H		(Be <sup>3+</sup> +H)	(B <sup>4+</sup> +H), (N <sup>4+</sup> +H)	(C <sup>5+</sup> +H), (N <sup>5+</sup> +H), (O <sup>5+</sup> +H)			(He <sup>+</sup> +H)
He		(Be <sup>4+</sup> +He)	(B <sup>5+</sup> +He)	(N <sup>5+</sup> +He), (O <sup>5+</sup> +He)	(O <sup>6+</sup> +He)		
H <sub>2</sub>	(He <sup>2+</sup> +H <sub>2</sub> )			(C <sup>5+</sup> +H <sub>2</sub> )	(Ar <sup>6+</sup> +H <sub>2</sub> )	(Ar <sup>8+</sup> +H <sub>2</sub> )	
その他	(He <sup>2+</sup> +Na)						(H <sup>+</sup> +Li)

3 - 1 (N<sup>5+</sup> + H) 系

計算で得られた (N<sup>5+</sup> + H) 系の電子捕獲断面積 [5] を Fig. 1 に示す。非常に広い範囲の衝突エネルギーで計算を行っているが、その結果は (1) 実験値との良い一致を示しており、又 (2) 低エネルギー領域で "orbiting" と呼ばれる低エネルギーに向かってのゆっくりとした断面積の増加と準分子の振動、回転状態との共鳴による鋭いピークの2つの構造を示した。

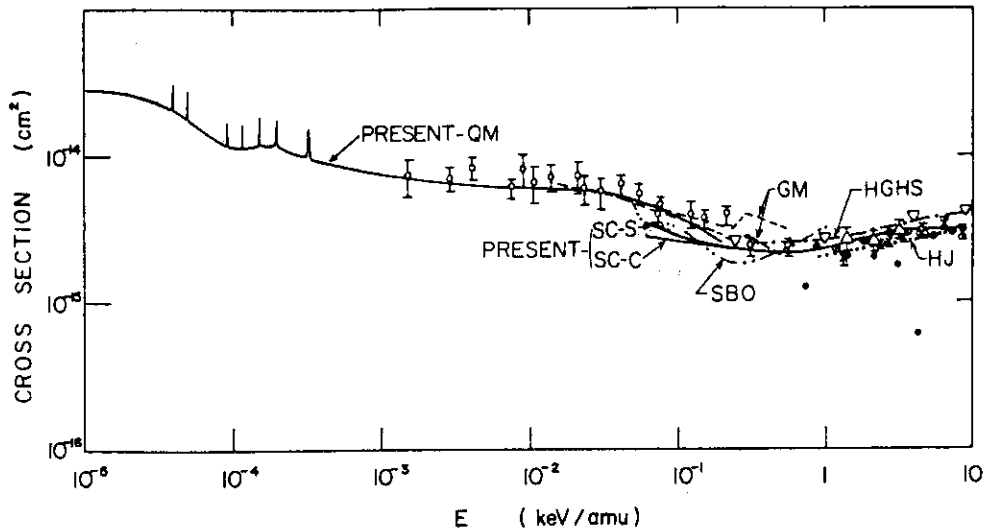


Fig. 1. Total electron-capture cross section. Theory: solid line, present-QM, quantum mechanical; SC-C, Coulomb trajectory; SC-S, straight-line trajectory; HGHS, Ref. [6]; GM, Ref. [7]; SBO, Ref. [8]; HJ, Ref. [9]; All other symbols, experiments.

3 - 2 (N<sup>4+</sup> + H) 系

1 eV/amu から 10 keV/amu のエネルギー領域において N<sup>4+</sup> イオンによる水素原子からの電子捕獲断面積の計算を行った ([10], Fig. 2 参照)。低エネルギー領域で Feickert 等 [11] の計算結果との一致はあまりよくなかったが、実験値 [12] との一致はかなり良いことがわかる。ところが 1992 年に

Zygelman 等 [4] がこの系に対する新しい計算結果を発表した (Fig. 3 参照)。それは定性的にさえ我々の結果とは異なっており、両方で用いられている計算の質 ([13]、参考に 2 つの計算方法の比較を表 II に

Table II. Summary of approximations used in the two theoretical approaches.

	Present work	Zygelman et al
<u>Molecular State</u>		
Method	Generalized valence bond method	Spin-coupled valence-bond CI method
Pseudopotential	N <sup>5+</sup> core	None
Basis	Slater-type orbital (48-STO)	Gaussian-type orbital (47-CGTO)
Position (and height) of dominant coupling	8.14 a <sub>0</sub> (1.27 au)	8.14 a <sub>0</sub> (2.1 au)
<u>Coupling</u>		
Method	$\left\langle \psi_i \left  \frac{\partial}{\partial R} \right  \psi_j \right\rangle$	$\frac{\langle \Psi_i(R)   \Psi_j(R+\Delta) \rangle}{\Delta}$
ETF	Atomic-type ETF	None
<u>Dynamics</u>		
State included	<u>Fully quantum-mechanical coupling method</u>	<u>Fully quantum-mechanical close-coupling method</u>
	4-channel N <sup>4+</sup> + H initial N <sup>3+</sup> (3s, 3p, 3d) + H <sup>+</sup>	4-channel N <sup>4+</sup> + H initial N <sup>3+</sup> (3s, 3p, 3d) + H <sup>+</sup>
	<u>Semiclassical close-coupling method</u>	
	13-channel (8Σ + 5Π)	

示す) から言っても何故このような大きな違いが現れるのか今のところわからない。更に細かい点では、例えば衝突エネルギー 100 eV/amu 付近で我々の計算値と実験値では振動構造が異なっているという差も見られる。

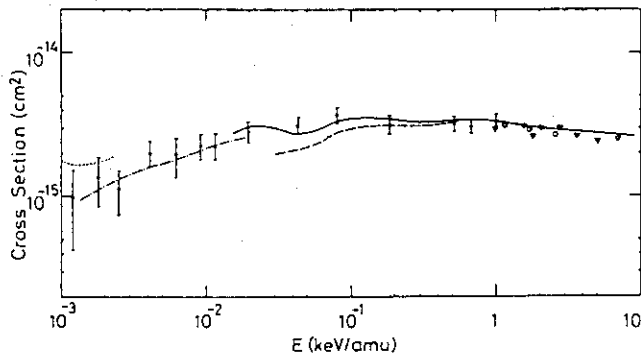


Fig. 2. Collision energy dependence of total electron-capture cross sections. Solid and dashed curves present results obtained by the semiclassical method using straight-line and Coulomb trajectories, respectively. The dash-dotted curve presents results obtained by the quantum-mechanical method. The dotted curve is the calculated results of Feickert *et al.* [6]. Other symbols are all experiments: Refs. [12], [14], and [15].

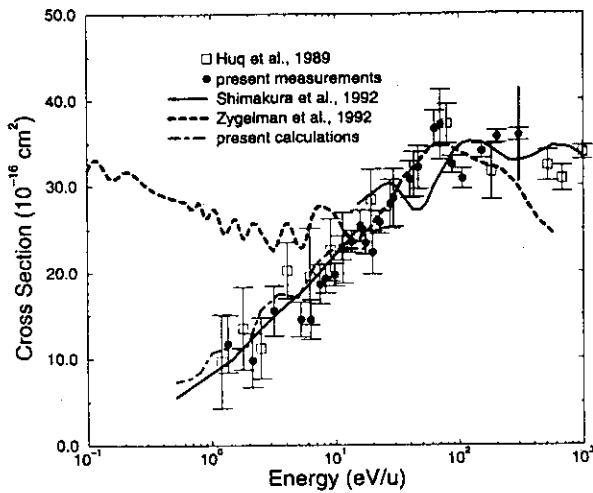


Fig. 3. Present results compared with previous measurements and calculations for  $N^{4+} + D$  collisions. Experimental results: solid circle, present work; open square, Huq *et al.* [12], Theoretical results: solid line, Shimakura, Itoh, and Kimura [10]; dashed line, Zygelman *et al.* [14]; and dash-dotted line, present work.

### 3 - 3 $(C^{5+} + H)$ 系及び $(C^{5+} + H_2)$ 系

標的が水素分子の場合は我々のこれまでの方法ではその振動、回転遷移が扱えないので低衝突エネルギー領域で精度があまり良くなる。Fig. 4 に標的が水素分子の場合と水素原子の場合の  $C^{5+}$

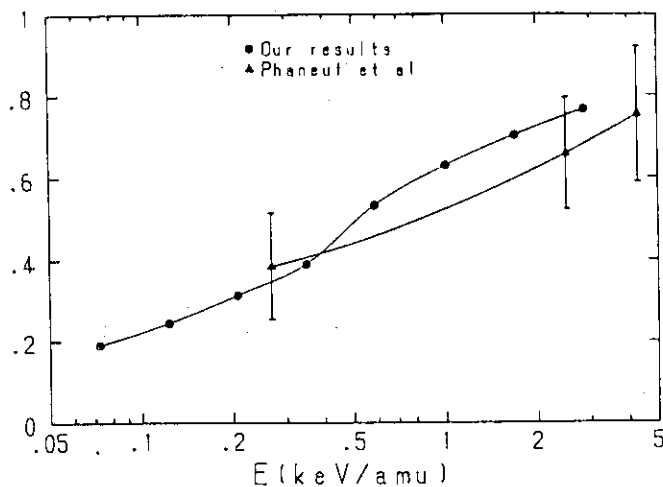


Fig. 4. The ratio of the cross sections for  $(C^{5+} + H)$  and  $(C^{5+} + H_2)$ . Closed circles, our theoretical results; closed triangle, Phaneuf *et al.* [16].

イオンによる電子捕獲断面積の比が衝突エネルギーの関数として描かれている。Phaneuf *et al* の実験値 [16] と良く一致していることがわかる。この図に描かれている衝突エネルギー領域では、標的が水素分子でも我々の方法で十分良い値が得られることが期待される。

### 3 - 4 ( $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$ ) 系及び ( $\text{Ar}^{6+} + \text{H}_2$ ) 系

Fig. 5 に  $\text{He}^{2+}$  イオンを水素分子に衝突させた時に起こる 1 電子捕獲、2 電子捕獲断面積 [17] の計算結果を示した。2つの過程とも計算値は実験値をかなり良く再現していることがわかる。0.5 keV より高い衝突エネルギーでは 1 電子捕獲が、一方それより低い衝突エネルギーでは 2 電子捕獲が支配的であることがわかった。( $\text{Ar}^{6+} + \text{H}_2$ ) 系、( $\text{Ar}^{8+} + \text{H}_2$ ) 系についても ( $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$ ) と同じく 1 電子及び 2 電子捕獲断面積を計算した [18] が、同様な良い結果が得られた。詳しくは論文を参照されたい。

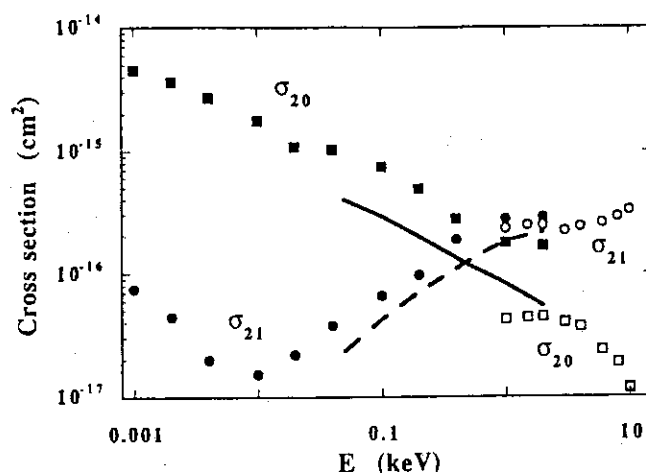


Fig. 5. Double- ( $\sigma_{20}$ ) and single- ( $\sigma_{21}$ ) electron-capture cross sections. Present theory: solid line, ( $\sigma_{20}$ ); dashed line, ( $\sigma_{21}$ ). Okuno *et al.* [19]; solid squares ( $\sigma_{20}$ ), solid circles ( $\sigma_{21}$ ). Kusakabe *et al.* [20]; open squares ( $\sigma_{20}$ ), open circles ( $\sigma_{21}$ ).

### 3 - 6 ( $\text{O}^{6+} + \text{He}$ ) 系

標的がヘリウム原子の場合でも我々の方法で計算した結果は実験値と良い一致を示す。このことを示すために、その一例として計算で得られた ( $\text{O}^{6+} + \text{He}$ ) 系の電子捕獲断面積を Fig. 6 [21] に示した。次に述べる ( $\text{Be}^{4+} + \text{He}$ ) 系を除けば他の多価イオンの場合も実験値と同様な一致を示した。

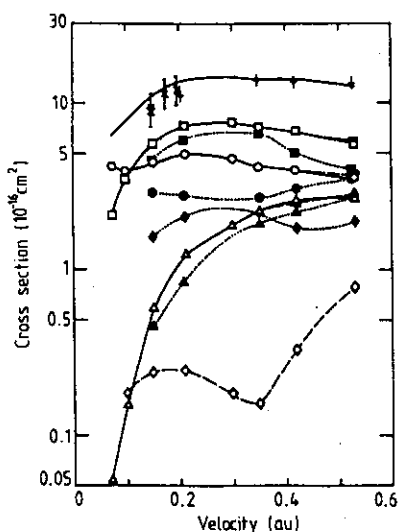


Fig. 6. Velocity dependence of total and partial one-electron capture cross sections. Full and broken curves link our calculated results using seven and eight channels, respectively; open triangles, squares, circles and diamonds denote calculated partial cross sections for transfer into 3s, 3p, 3d and all  $n = 4$  projectile states, respectively. Closed symbols linked by dotted lines denote corresponding results measured by Dijkkamp *et al* [22]. Measured total cross sections by Iwai *et al* [23],  $\times$ , and by Dijkkamp *et al* [22],  $+$ , are also shown.

3 - 7 ( $\text{Be}^{4+} + \text{He}$ ) 系

最後に計算があまりうまくいかなかった例として  $\text{Be}^{4+}$  イオンによるヘリウム原子からの電子捕獲過程について述べる。この系に対しては実験は全く行われていないが、計算は我々の他、Fritsch と Lin [24]、Martin 等 [25]、Hansen 等 [26] が報告している。しかしその4つの計算結果には全断面積さえも衝突エネルギー 2 keV/amu 以下ではかなりのばらつきが見られる。もちろん部分断面積ではばらつきは更に大きい。この原因としては電子移行した電子状態が連続状態に埋め込まれているため、これを記述するのに用いられる基底関数を決めるのが難しいということが第一に挙げられる。

## 参考文献

- [1] A. Dalgarno, *Adv. Phys.*, 11 (1962) 281.
- [2] S. Bashkin and J. R. Stoner, Jr., *Atomic Energy Levels and Grotorian Diagram I* (North-Holland, Amsterdam, 1975).
- [3] B. R. Johnson, *J. Comput. Phys.*, 13 (1973) 445.
- [4] B. Zeygelman, D. L. Cooper, M. J. Ford, A. Dalgarno, J. Gerratt, and M. Raimondi, *Phys. Rev.*, A46 (1992) 3846.
- [5] N. Shimakura and M. Kimura, *Phys. Rev.*, A44 (1991) 1659.
- [6] J. Hanssen, R. Gayet, C. Harel, and A. Salin, *J. Phys.*, B17 (1984) L323.
- [7] M. Gargaud and R. McCarroll, *J. Phys.*, B18 (1985) 463.
- [8] E. J. Shipsey, J. C. Browne, and R. E. Olson, *J. Phys.*, B14 (1981) 869.
- [9] C. Harel and H. Jouin, *J. Phys.*, B21 (1988) 859.
- [10] N. Shimakura, M. Itoh, and M. Kimura, *Phys. Rev.*, A45 (1992) 267.
- [11] C. A. Feickert, R. J. Blint, G. T. Sturatt, and W. D. Watson, *Astrophys. J.* 286, 371 (1984).
- [12] M. S. Huq, C. C. Havener, and R. A. Phaneuf, *Phys. Rev.*, A40 (1989) 1811.
- [13] L. Folkerts, M. A. Haque, C. C. Havener, N. Shimakura, and M. Kimura, *Phys. Rev.*, A51 (1995) 3685.
- [14] W. E. Scim, A. Muller, I. Wirkner-Bott, and E. Salzborn, *J. Phys.*, B14 (1981) 3475.
- [15] D. H. Crandall, R. A. Phaneuf, and F. W. Meyer, *Phys. Rev.*, A19 (1979) 504.
- [16] R. A. Phaneuf, I. Alvarez, F. W. Meyer, and D. H. Crandall, *Phys. Rev.*, A26 (1982) 1892.
- [17] N. Shimakura, M. Kimura, and N. F. Lane, *Phys. Rev.*, A47 (1993) 709.
- [18] S. Kravis, H. Saitoh, K. Okuno, K. Socjima, M. Kimura, I. Shimamura, Y. Awaya, Y. Kancko, M. Oura, and N. Shimakura, *Phys. Rev.*, (in press).
- [19] K. Okuno, K. Socjima, and Y. Kancko, *J. Phys.*, B25 (1991) L105.
- [20] T. Kusakabe, H. Yoneda, Y. Mizumoto, and K. Katsurayama, *J. Phys. Soc. Jpn.* (1990) 1218.
- [21] N. Shimakura, H. Sato, M. Kimura, and T. Watanabe, *J. Phys.*, B20 (1992) 267.
- [22] D. Dijkkamp, Y. S. Goedecv, A. Brazuk, A. G. Drentje, and F. J. de Heer, *J. Phys.*, B18 (1985) 737.
- [23] T. Iwai, Y. Kancko, M. Kimura, N. Kobayashi, S. Ohtani, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara, and S. Tsurubuchi, *Phys. Rev.*, A26 (1982) 105.
- [24] W. Fritsch and C. D. Lin, *Phys. Rev.*, A45 (1992) 6411.
- [25] F. Martin, A. Riera, and M. Yancz, *Phys. Rev.*, A34 (1986) 4675.
- [26] J. P. Hansen and K. Taulbjerg, *Phys. Rev.*, A47 (1993) 2987.

## 11. 裸のイオン衝突による励起状態水素及び水素様イオンの電離断面積

日本原子力研究所原子炉工学部 五十嵐明則 白井稔三

### 1 はじめに

核融合プラズマの高密度化、入射原子の高エネルギー化に伴い、励起原子を含む多段階衝突励過程は注目されている課題である [1]。これらの衝突過程は大きな断面積を持ちプラズマの加熱効率を解析する上で断面積の評価は急務であるが、励起状態を含む断面積のデータ蓄積は乏しく、実験値においては皆無である。

本報では、比較的計算の容易な CDW-EIS 近似を用いて、裸のイオンと励起状態水素及び水素様イオンの衝突における電離断面積を計算した。励起状態からの電離断面積については、主量子数  $n$  を持つ縮退した  $n^2$  個の角運動量状態からの寄与を合計したものと示すものとする。

### 2 CDW-EIS 近似について

CDW-EIS 近似を、簡単に説明する。Crothers と McCann により導入され [2]、裸のイオンによる基底状態水素の電離断面積の実験データを、最も良く再現している高エネルギー近似である。ボルン近似を改良した、歪曲波近似である。入射チャンネルにおいては、裸のイオンの入射による標的內部状態の歪みの効果をアイコナル近似により考慮している。出口チャンネルでは、放出電子の感ずる入射核と標的核の 2 つの場からの作用がクーロン関数の積として同等に扱われている。ボルン近似に対する改良点は、入射、出口の両チャンネルにおいて、入射体イオンによる標的状態の歪みを取り込んでいることである。

### 3 結果と考察

#### 3.1 裸のイオンと励起水素原子の電離衝突

CDW-EIS 近似の適用は、Fainstein 等 [4] や Olivera 等 [5] により陽子と励起状態水素の衝突において行われている。しかし、彼らの結果は高エネルギーにおいてもボルン近似と一致せず、その不一致は高い励起状態ほど顕著という疑問の残るものであった。追試計算の結果 [3](以後 I とする)、基底状態からの電離ばかりでなく励起状態からについても、ある程度エネルギーが高くなれば CDW-EIS 近似とボルン近似は近づき一致することを確認した。 $n = 2$  の励起状態からの電離断面積を I-Fig.2 に示した。CDW-EIS 近似とボルン近似は、100 keV 付近で一致する。CDW-EIS 近似の始状態と終状態における陽子による電子状態の歪みの効果が、断面積にいかに関与するかを調べた。CDW-EIS 近似から、始状態の歪みを無視すると、ボルン近似より大きめの断面積 (DWB) になる。

逆に、始状態の歪みだけ保持すると小さい断面積 (EIK) が得られる。したがって、CDW-EIS 近似の始 (終) 状態の歪みは断面積をそれぞれ下 (上) げ、両者の効果が打ち消しあってボルン近似と同程度の断面積を与えるようになる。I-Fig.1 は衝突エネルギー 25keV と 300keV での、陽子による水素原子の電離過程における放出電子エネルギーに対する微分断面積である。横軸の電子エネルギーについては  $n^2$  倍に拡大している。25keV の  $n \geq 3$ , 300keV の  $n \geq 1$  の微分断面積の形には良い相似があり、 $n^6$  に比例して大きくなる。 $n^6$  は、主量子数  $n$  を持つ水素原子の電子の広がりが  $n^4$  に比例し、縮態度が  $n^2$  であるためである。全断面積は横軸が  $n^2$  倍に拡大していることから、 $n^6/n^2$  で  $n^4$  で大きくなっている。電荷が 1 価から 8 価までの裸のイオンと水素原子の電離断面積のエネルギー依存性を I-Fig.5 に示した。高エネルギーでは、ボルン近似と CDW-EIS 近似が一致するようになる。一致するエネルギーは入射粒子の電荷が大きいほど高エネルギー側に移動している。それより高いエネルギー領域では断面積が平行になっているが、そこでは  $n^4$  に比例して断面積が大きくなっている。I-Fig.6 では、固定したエネルギーで水素の電離断面積の入射粒子電荷依存性を調べたものである。衝突エネルギーは 300eV と 1MeV について、電荷は 1 価から 26 価まで変化させた。ボルン近似は電荷の 2 乗の依存性がある。電荷が小さいところでは、ボルン近似と CDW-EIS 近似は一致しているが、電荷を増やしたとき後者はより小さい断面積を与える。期待されるように、CDW-EIS 近似とボルン近似は大きいエネルギーの方がより近い依存性を示す。固定したエネルギーでは、高い  $n$  からの電離断面積ほど両者の振るまいは似ている。高い  $n$  ほど軌道内電子の速度が遅くなるため、相対的により高エネルギーの衝突になっているためである。I-Fig.4 では、ヘリウムの裸のイオンと水素の電離断面積を、今までに報告されている断面積と比較している。基底状態については実験と理論値ともに豊富であることから推奨断面積 [6] があり、高エネルギー領域では CDW-EIS 近似が採用されている。励起状態については断面積はなく、理論値のみで CTMC [7], ASPM [8] の計算がある。評価としては、低エネルギーでは ASPM が高エネルギーでは CDW-EIS 近似が良いと思われる。その中間領域として CTMC の断面積があり、3 つの近似を滑らかにつなぐことによって広いエネルギー領域にわたる断面積が得られる。しかしながら、低・中間エネルギーにおいてより信頼性を高めるには、緊密結合法による正確な断面積が望まれる。

### 3.2 裸のイオンと励起水素様イオンの電離衝突

Fig.1 は、陽子と基底状態のヘリウムイオンの電離断面積である。3 種類の緊密結合法の計算が報告されている。2 中心原子基底展開法 [9], 3 中心原子基底展開法 [12], スターマン基底展開法 [10][11] である。これらの大がかりな計算による断面積は 2 倍の範囲内で一致し、低エネルギー領域では実験誤差内にある。CDW-EIS 近似は、低エネルギーにおいて 2 中心展開法と同程度であるが、ボルン近似は明らかに大きい。100keV より大きいエネルギーでは、ボルン近似と CDW-EIS 近似は一致してくる。Fig.2 にヘリウムイオンの裸のイオンによる電離断面積を示した。I-Fig.5 と同様のことが言える。陽子衝突について、ASPM による計算がある。 $n = 1, 2$  においては、近似の妥当領域の境界付近で交差が見られるが、より高い励起状態においては、一致は良くない。近似の正しい評価のためには、より多くの断面積の蓄積が必要である。Fig.3 は陽子による  $\text{Li}^{2+} \sim \text{C}^{5+}$

の水素様イオンの基底状態からの電離断面積である。水素様イオンの核電荷が大きくなるに従い、ピーク値は小さくなり、より高いエネルギーに移動する。ピーク位置は、ほぼ軌道内電子の平均速度と入射速度が等しいエネルギー付近にある。軌道内電子速度より衝突速度が遅い低エネルギー領域においても、CDW-EIS 近似と大がかりなスターミアン基底 [11] による緊密結合法が非常に良い一致を示す。一方ボルン近似は大きめである。陽子およびヘリウムの裸のイオンによる水素様イオンの電離断面積を、励起状態も含めて Fig.4 に示した。エネルギーと断面積について核電荷について、ボルン近似で成り立つスケールリングを行っている。すべての主量子数状態について、核電荷が大きいほどボルン近似と CDW-EIS 近似が似た振るまいをする。核電荷が大きいほど電子はより強く束縛され入射体からの摂動を受けにくく、一次摂動が良い近似になるためである。

## 4 まとめ

裸のイオンによる水素原子、水素様イオンの電離断面積を比較的計算の容易な CDW-EIS 近似により計算し、高エネルギー領域では信頼できる断面積を得た。しかし、励起状態に関する衝突過程の断面積は 1 電子系においても不十分であり、その妥当領域を詳しく議論できない。データの必要性和近似の評価のためには、より信頼できる大がかりな計算や実験が必要である。

## 参考文献

- [1] C.D. Boley, R.K. Janev, and D.E. Post, Phys. Rev. Lett. **52**, 534 (1984); R.K. Janev, C.D. Boley, and D.E. Post, Nucl. Fusion **29**, 2125 (1989).
- [2] D.S.F. Crothers and J.F. McCann, J. Phys. B **16**, 3229 (1983).
- [3] A. Igarashi and T. Shirai, Phys. Rev. A **50**, 4945 (1994)
- [4] P.D. Fainstein, V.H. Ponce and R.D. Rivarola, J. Phys. B **23**, 1481 (1990).
- [5] G.H. Olivera, P.D. Fainstein, V.H. Ponce, and R.D. Rivarola, in *Abstracts of contributed papers, XVII International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions*, Aarhus, 1993, edited by T. Andersen, B. Fastrup, F. Folkmann, and H. Knudsen (Aarhus University, Aarhus, 1993), p. 449.
- [6] J.K. Janev and J.J. Smith, *Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion* (Suppl. to Nucl. Fusion) **4**, 68 (1993).
- [7] R.E. Olson, J. Phys. B **13**, 483 (1980).
- [8] P.S. Krstic and R.K. Janev, Phys. Rev. A **47**, 3894 (1993).

- [9] W. Fritsch and C. D. Lin, in *Abstracts of contributed papers, XIII International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions*, Berlin, 1983, edited by J. Eichler, I. V. Hertel, N. Stolterfort, and U. Wille, (North-Holland, Amsterdam, 1983), p. 502.
- [10] T. G. Winter, *Phys. Rev. A* **33**, 3842 (1986).
- [11] T. G. Winter, *Phys. Rev. A* **35**, 3799 (1987).
- [12] T. G. Winter, *Phys. Rev. A* **37**, 4656 (1988).

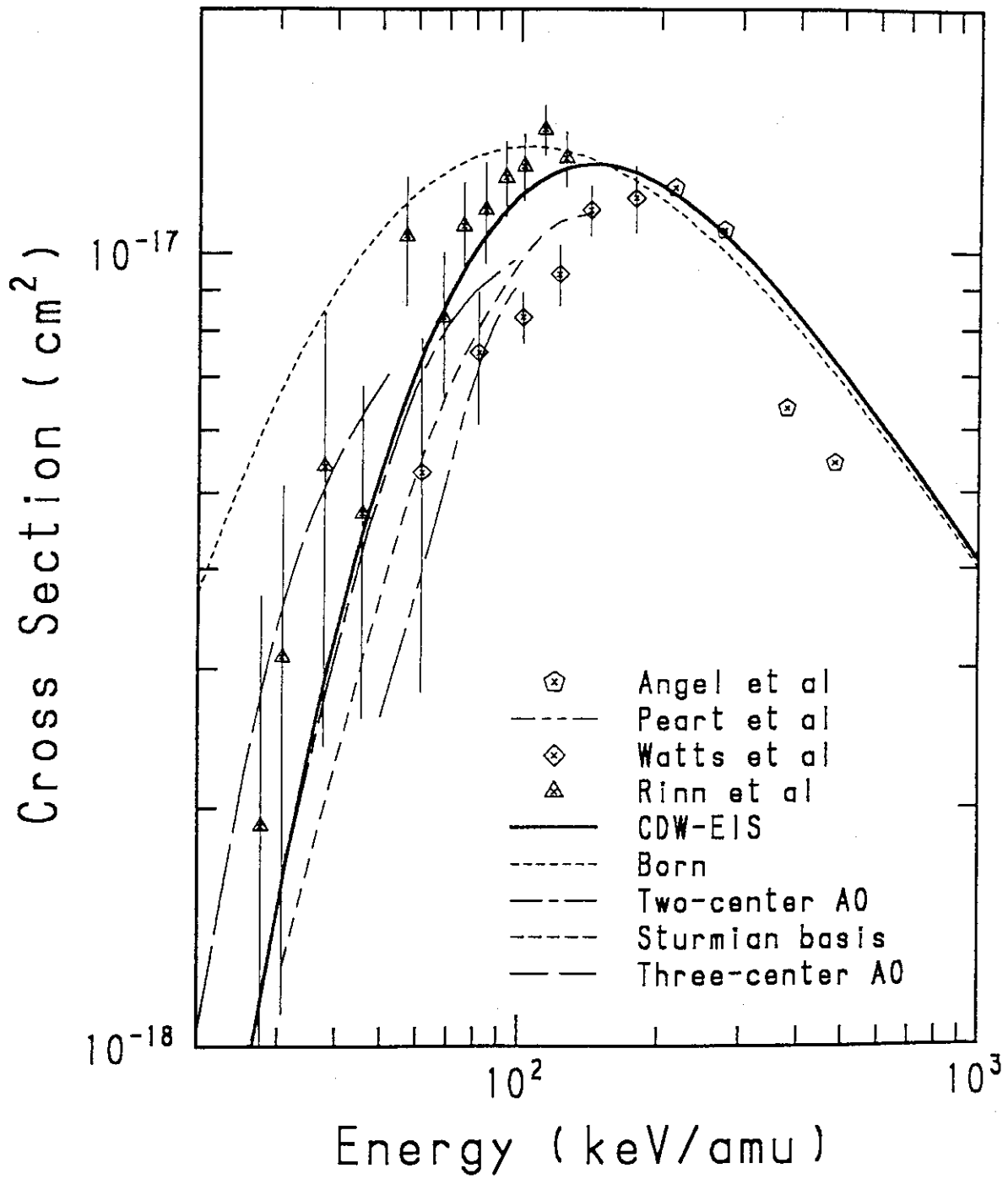


Fig.1 Total ionization cross section for the  $H^+ + He^+(1s)$  collision system.

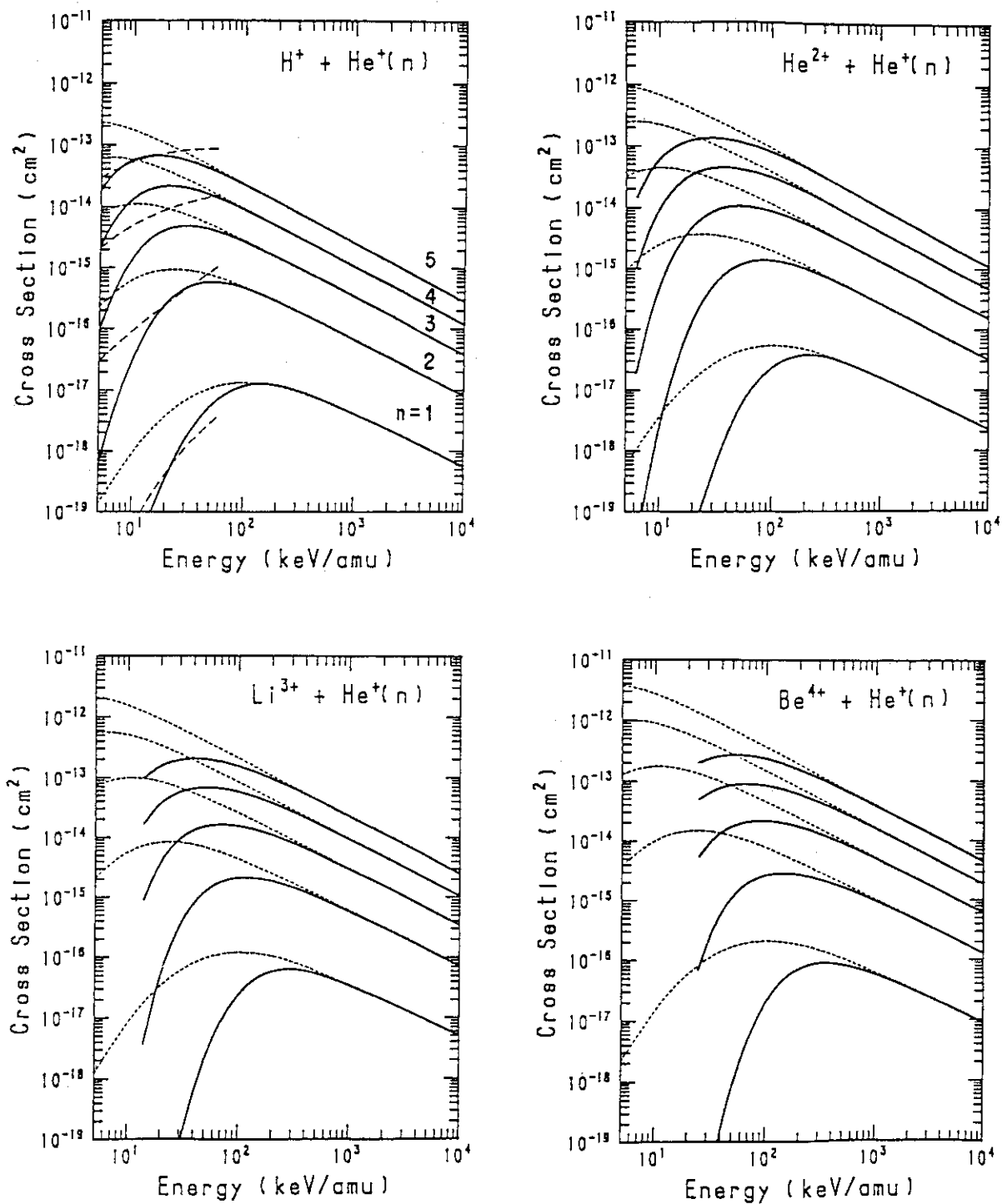


Fig.2 Total ionization cross section of excited  $He^+(n=1$  to  $5)$  in collisions with  $H^+$  through  $Be^{4+}$ . Solid and dotted curves designates the present CDW-EIS and Born calculations. Five curves from bottom to top are for  $n=1$  to  $5$ . For the  $H^+ + He^+(n=1$  to  $5)$  collisions, data depicted with dashed curves are ASPM cross sections.

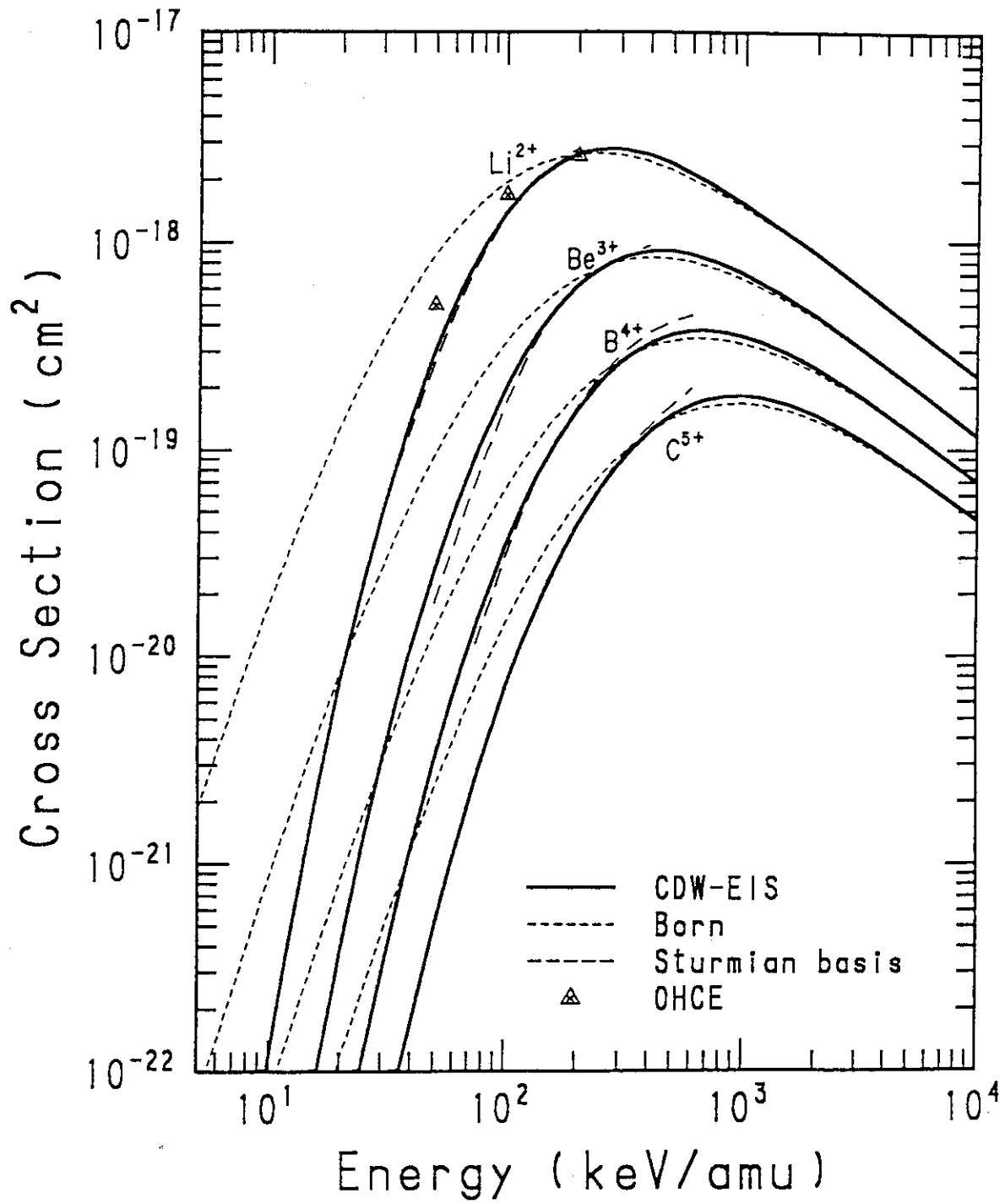


Fig.3 Total ionization cross sections of the ground hydrogenlike ions in collisions with  $H^+$ . Four curve from top to bottom are for  $Li^{2+}(1s)$ ,  $Be^{3+}(1s)$ ,  $B^{4+}(1s)$ , and  $C^{5+}(1s)$ .

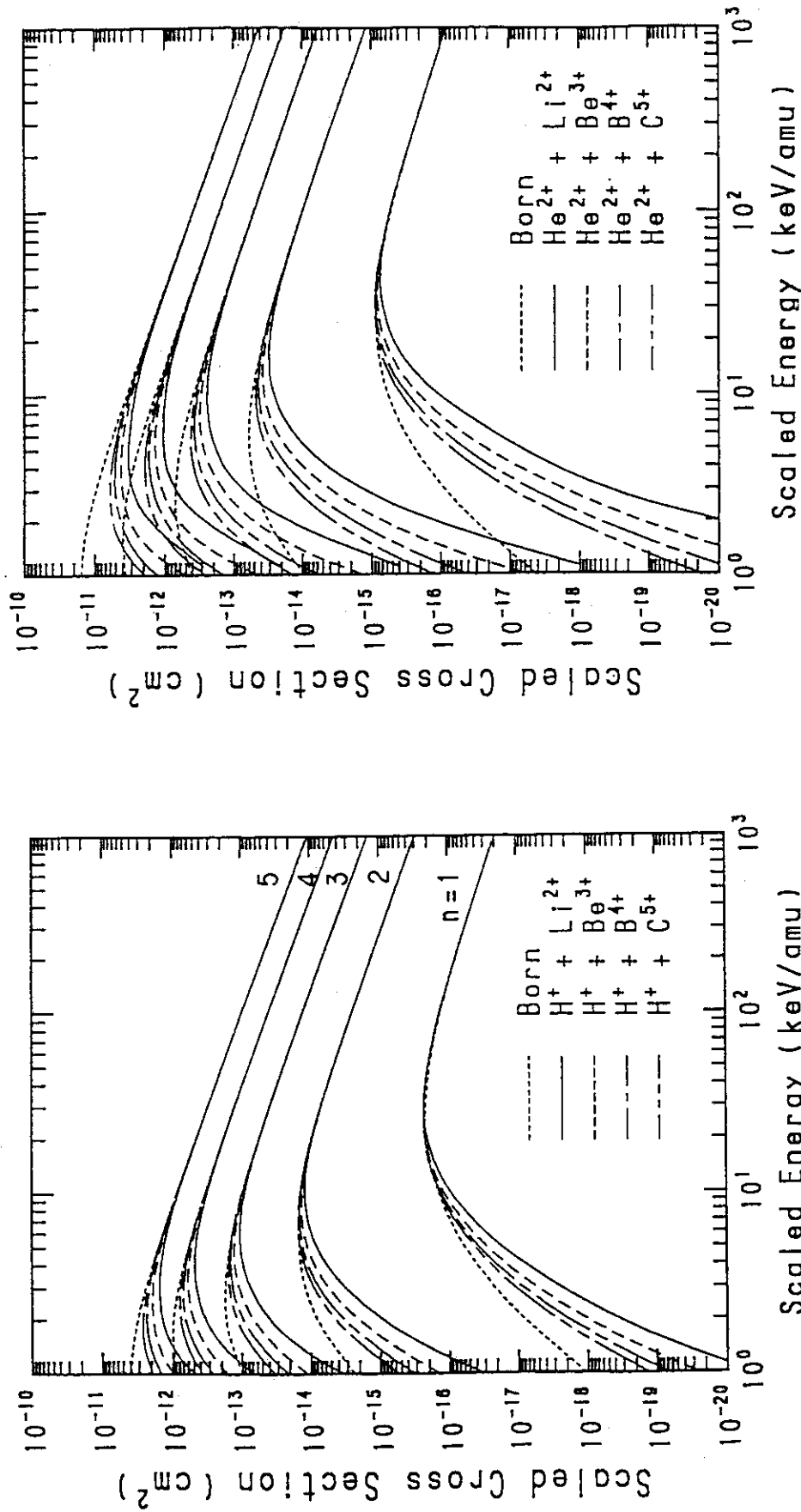


Fig.4 Scaled total cross section as a function of scaled energy for the ionization of excited hydrogenlike ions from  $\text{Li}^{2+}$  ( $n=1$  to 5) to  $\text{C}^{5+}$  ( $n=1$  to 5) in collisions with  $\text{H}^+$  and  $\text{He}^{2+}$ . The scaled total cross section is defined as total cross section multiplied by  $Z_T^4$  and the scaled energy is defined as collision energy divided by  $Z_T^2$ , where  $Z_T$  is the atomic number of the target ion. Five groups of curves from bottom to top are for  $n=1$  to 5.

## 1 2. ITER-NBI用の負イオン源とプラズマ中性化セルの開発

日本原子力研究所 核融合工学部

奥村 義和

## 1. はじめに

中性粒子入射 (Neutral Beam Injection - NBI) は、磁気閉じ込めの核融合プラズマを加熱する手段として、現在最も確立されたものであり、JT-60を始めとする主要な核融合実験装置において不可欠の加熱手段となっている。これらのNBIにおいては、まず正の水素または重水素イオンを作り、それを所定のエネルギーまで加速した後にガスとの衝突によって高速の中性粒子に変換し、標的プラズマに入射している。システム全体の効率は、中性化の効率によって決定されるが、図1にみるようにビームエネルギーを上げると正イオンの中性化の効率は急激に低下してしまう。必要なビームエネルギーは標的プラズマの密度と大きさから決まり、現在の大型核融合装置で適切な入射エネルギー分布を得るためには核子あたり100keV以上が必要とされているが、このとき、中性化効率は20%以下に低下してしまう。更に、国際熱核融合実験炉 (International Thermonuclear Experimental Reactor - ITER) などの実際の核融合炉のためには、核子あたり500keV程度のエネルギーが望ましいが[1,2]、そのような高エネルギーにおいては中性化効率は殆ど零となり、正イオンを用いたのではシステムとして成立し得ない。

この問題に対する解決策は、1次イオンとして正イオンのかわりに負イオンを用いることである。水素負イオンは水素原子に対する電子親和力(結合エネルギー)が0.75eVと小さいので、ガスとの衝突などにより電子がはぎ取られる(電子脱離)断面積はかなり大きく、高エネルギーにおいても中性化が容易である。図1に示すように、ガスとの衝突による通常の中性化セル(ガス中性化セル)の場合でも60%程度の効率が得られ、しかもエネルギー依存性が殆ど無い。更に、プラズマとの衝突による中性化セルを用いれば85%程度の効率が[3]、またレーザー光による電子の光脱離を利用した光中性化セルでは[4]、原理的に100%近い効率が得られる。中性化効率が高いことは、ただ単にシステム全体の効率を高めるばかりでなく、処理しなくてはならない残留イオンが大きく減ることを意味し、徐熱機器や排気の観点からもNBIシステムを単純で安価なものとする。

そのため、原研においては1984年から大電流負イオン源の開発に着手し、1990年には世界で初めて核融合で必要とされる10アンペア級の負イオン源の開発に成功した[5]。1994年にはビーム光学や負イオン加速の観点からもNBIでの使用に耐える350keV、16mA/cm<sup>2</sup>(0.23A)の負イオンビームを、5mradという小さな発散角のもとで生成することに成功している[6]。これらの成果をもとに、世界で初めての負イオンNBI装置がJT-60用に建設されており、1996年3月からの稼働を予定している[7]。このための負イオン源は、500keV、22A(11MW)の重水素負イオンビームを10秒間発生できる極めて大型のものである[8]。

また、JT-60用の負イオンNBIにおいては、従来方式であるガス中性化を用いているが、システムの効率を更に高めるためにプラズマ中性化セルの検討と予備実験も開始さ

れている。

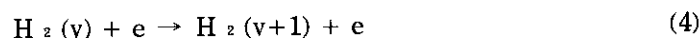
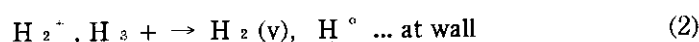
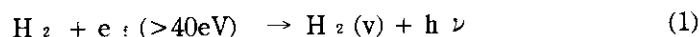
本稿においては、核融合用に開発されている、体積生成型負イオン源と呼ばれる水素（重水素）負イオン源の原理と構造を述べるとともに、今後本格的な開発を予定しているプラズマ中性化セルについて簡単に紹介する。

## 2. 体積生成型負イオン源

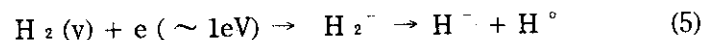
核融合用に必要なアンペア級の負イオンを発生できる負イオン生成法には3方式ある。荷電交換法 (Double Charge Exchange)、表面生成法 (Surface Production)、そして体積生成法 (Volume Production) である。このうち、イオン源の構造が簡単で大型化が容易であること、得られるビームの収束性が良いこと、動作が安定していることなどの核融合用に必要な条件を満たすものとしては、体積生成法が最適であり、現在ではこの方式が研究開発の主流となっている。

### 2-1 生成メカニズム

負イオンがプラズマ中で生成されることは古くから知られていた。しかし、この方式が脚光を浴びるのは1977年にフランスのBacalらが通常の水素アーク放電において条件を選ぶと、正イオンの30%以上の大量の負イオンが存在することを見出し[9]、かつそれが広く認められて以来である。Bacalらが見出した負イオン密度は、当時知られていた負イオン生成過程で予想される値よりも2桁大きく、それを説明するためにPolar dissociationをはじめとしてさまざまな仮説が唱えられた。今日では、負イオンは次の二段階過程によって生成されると考えられている。まず、主に次の反応によって振動励起された水素分子が生成される。



次に振動励起された水素分子に低速の電子が衝突して付着解離 (dissociative attachment) することにより負イオンが生成される。

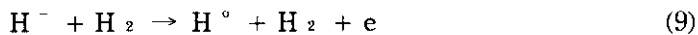
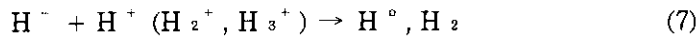


なお、振動励起レベルには量子化された13のレベルがあるが、主として負イオン生成に寄与するのは $v=6$ 以上のレベルの分子である。

この生成メカニズムを検証する興味ある実験が、Leungらによって行われた[10]。Leungらは水素放電中にキセノンガスを混入することにより放電電圧を水素の電離電圧以下に下げ、水素の正イオンの存在しないプラズマを作った。そしてその中にも大量の水素負イオンが存

在することを観測し、正イオンを経由しないプロセス（上記の(1)と(5)）が負イオン生成の主要なプロセスであることを示した。

一方、負イオンの損失メカニズムには、



などがある。

これらの反応をはじめとするさまざまな反応過程を考慮し、さらに振動励起レベルによって水素分子を多群に分けた詳細な議論が、ローレンスリバモア研究所のHiskesやKaro[11,12]、山口大学の福政ら[13]、慶応大学の小笠原ら[14]によってなされている。今日では、実験的に観測される負イオン密度を定性的に説明でき、また定量的にもおよそファクター2の範囲内で一致するまでになっている。

現在、主要な反応断面積は殆ど手中にあるが、振動励起分子と負イオンの損失過程がいまだに明確になっていない。特に水素原子がそれらに及ぼす効果については、水素原子の密度が不明なこともあって良くわかっていない。実験的にこれらの効果を調べ、理論に反映させることが必要であろう。

また、後述のセシウムを添加した際の負イオン生成メカニズムについては、理論的研究が開始されたところであり、実験結果を十分に説明するには至っていない。今後の大きな研究課題である。

## 2-2 構造

二段階過程(1)と(5)のそれぞれに対する最適の電子温度は大きく異なり、またそれらの中間のエネルギーの電子は負イオンの損失過程(6)に対して大きな反応率を持つ。そこで、負イオン密度を高める最も良い方法は、プラズマを二つの領域、即ち、振動励起分子の生成領域と負イオンの生成領域に分け、それぞれの領域においてそれぞれの反応過程に最適な電子のエネルギー分布をつくりだしてやる事である。この方法はタンデム方式と呼ばれ、殆ど全ての体積生成型負イオン源はこの方式を採用している。

具体的な体積生成型負イオン源の構造を、原研で開発された負イオン源を例にとって説明する。図2に示す負イオン源は、世界で初めて10Aの水素負イオンビームの生成に成功したアンペア級負イオン源と呼ばれるイオン源である[5]。プラズマは24cm x 48cmの広さで15cmの深さを持つ多極磁場型プラズマ源で生成される。タンデム方式の負イオン源の特徴として、磁気フィルターと呼ばれる横方向の磁場でプラズマを二つの領域（放電室と負イオン生成室）に分けている。横磁場を作る方法としては、永久磁石を挿入したパイプを一定の間隔をあけて並べる方法や、放電室の外側に一對の強力な永久磁石を置いて横方向の磁場を作

る方法などがある。フィラメントから飛び出した高速の電子はこの磁場を横切ることが出来ず、放電室に閉じ込められる。一方、プラズマ中の低速電子は正イオンとともに拡散によって負イオン生成室に集められ、その結果、負イオン生成室の電子温度は1eV程度と付着解離反応(5)に最適の温度となる。高速電子との衝突で生成された振動励起分子は、磁場の影響を受けることなく負イオン生成室に流れ込み、そこで負イオンが生成される。生成された負イオンは、磁石を挿入した多孔型電極を用いて電子と分離されつつ、静電的に引き出され加速される。この負イオン源の場合には、14cmx36cmの領域に直径11.3mmの孔が253個あけられており、孔の総面積で加速された負イオン電流を割った電流密度は37mA/cm<sup>2</sup>である。

磁気フィルターの働きを実験的に調べたものを図3に示す。これは原研の負イオン源において、2列の直線上のソレノイドコイルをプラズマ中に挿入し、外部から電流を流すことによって磁気フィルターを形成した場合の結果である。電流を変化させてフィルター強度を変え、負イオン生成率と放電室、負イオン生成室の電子温度を測定したものである。フィルター電流を増やして磁場を強くすると、負イオン電流が増大する。また、フィルター磁場とともに負イオン生成室の電子温度が下がり、1eV程度の電子温度になった時に負イオン電流値が最大値をとることがわかる。フィルター磁場があまりに強いと負イオン生成室のプラズマ密度が低下し、負イオン電流は減少してくる。このように、プラズマを「タンデム化」することによって、負イオン生成率を数倍に高めることが可能である。

図4には、世界で初めての負イオンを用いた中性粒子入射装置である、JT-60U負イオンNBI [7]用イオン源の断面図を示す。この負イオン源は、直径が約2m、高さ1.7m、重さ6.5トンの巨大なものであって、500keV、22Aの重水素負イオンビームを10秒間発生できるように設計されている[15,16]。負イオンは直径60cm、長さ124cmの半円筒形の多極磁場型プラズマ容器中で生成される。タンデム方式に必要な一様な横磁場を作るために、PGフィルターと呼ばれる新方式の磁気フィルターが採用されている。これは、プラズマ電極自身に大電流(数kA)を流し、その電流が作る磁場を利用するものである。生成された負イオンは3枚の電極から成る引き出し部の働きにより電子と分離されながら引き出され、3段の静電加速系によって所定のエネルギーまで加速される。この負イオン源は現在までに、400keV、13.5A (5.4MW)の重水素負イオンビームの生成に成功しているが、これは負イオン源として、世界最大の電流及び出力パワーである。

### 2-3 セシウム添加による負イオン密度の増加

体積生成型負イオン源の負イオン生成効率を高めるために、タンデム化のほか、さまざまな研究開発がなされた。それらのうち、最も効果的であったのはプラズマ源中にごく少量のセシウムを添加することである。上述のアンペア級負イオン源の場合では、100mg程度のセシウム蒸気をプラズマ中に入射することによって負イオン電流は4倍以上になる。図5にセシウムを添加しない場合と、添加後の負イオン電流のアーク放電電流依存性を示す。セシウムを添加しない場合、負イオン電流は10A以下で飽和する傾向にあるのに対して、セシウム添加後は放電電流に比例して増加し、アーク電流800Aで10Aの負イオン電流が得られている。

セシウム添加により何故負イオン電流が増加するかについては、1)セシウムが放電中に存在することにより電子温度が下がり、付着解離反応が高められる、2)セシウム原子とH<sup>+</sup>

の反応により振動励起分子が生成される、3)セシウムの付着により仕事関数が低くなった電極表面で負イオンが生成されるなどの可能性が考えられた。そこで、実験的にセシウム添加の際の電子温度や、プラズマ中のイオン組成、プラズマ源の壁面やプラズマ電極の温度を変化させた場合の負イオン電流の依存性などを調べた。その結果、負イオン電流増加の主たる原因は、プラズマ電極での表面生成であることが明らかとなった [17]。

更に確証を得るために、プラズマ電極表面の仕事関数をレーザーを用いて測定し、負イオン生成率との相関を調べた [18],[19]。その結果、図6に示すように両者には強い相関関係があり、電極の仕事関数が2eV以下になったとき、負イオン生成率が急激に上昇することがわかった。このことから、表面での反応過程が深く関与していることは間違いのないところであるが、実際にどの粒子からどういう過程で負イオンが生成されているかということを知るには、今後、理論的な検討が必要である。また、プラズマ電極で表面された負イオンは、電極近傍のシース電位（通常、数ボルト）により、逆方向に加速されるはずであり、そのままでは負イオンは引き出し孔に到達し得ない。負イオンのビーム収束性が極めて良いことから、負イオンの温度は0.5eV以下であることがわかっており、シースで数eVの運動エネルギーを持った負イオンが如何にしてエネルギーを失うのか、如何にして引き出されるのかは今後の研究課題である。

### 3. プラズマ中性化セル

負イオンの中性化効率を高めることができれば、システムの効率を高められるばかりでなく、処理しなくてはならない残留イオンの量を減らすことができる。ガス中性化セルの場合には約40%の残留イオンがあり、それを処理するために大きなイオンビームダンプが必要である。例えば効率85%のプラズマ中性化セルを使用することができれば、残留イオンの量は15%と半分以下になり、システムを小型化できる。また、ガス中性化セルのためには、ガスを排気するための大型のクライオポンプが必要であるが、中性化デバイスとしてプラズマやレーザーを用いることができれば、ポンプの容量を格段に小さくできる可能性もある。

レーザー中性化に関しては、必要なレーザー出力に対する現在の技術レベル、発振効率を考慮したシステム全体の効率、反射鏡の性能、また反射鏡や窓等へのビームによるスパッタリングなどを考えると、現時点では非現実的であると思われる。そこで、プラズマ中性化セルに的を絞り、開発を進めることとした。

プラズマ中性化セルとして、水素プラズマか多価イオンプラズマかの二通りの選択がある。水素プラズマ中性化セルに関しては Grossman[20]により詳しい解析がなされており、完全電離の水素プラズマを使用する場合、1MeVの水素負イオンに対する最大中性化効率は88%程度、最適の標的厚みは $3.4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 程度となる。また、意味のある中性化効率（80%以上）を得るためには、極めて高い電離度（50%以上）が必要とされる。つまり、密度が $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 台の高密度プラズマを使用するとしても10m以上の長さの中性化セルが必要となり、システムが大きくなってしまう。まして、水素で10%以上の電離度を得るのは容易では無い。

これに対して多価イオンは水素負イオンに対して大きな電子脱離断面積を持つため、多価イオンのプラズマを用いれば、必要な線密度を大幅に小さくすることができる。図7に schlachter らの評価 [21]による、1MeVの水素負イオンに対するアルゴンの多価イオンのプラズマ中性化セルの中性化効率を線密度の関数として示す。1MeVの水素負イオンビームに

対して、例えば価数が5のアルゴンプラズマを用いれば、線密度が  $2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  程度で十分な中性化効率を得ることができる。従って、密度が  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$  のプラズマを用いれば、中性化セルの長さは2mとなり、現実的である。また、アルゴンやキセノンなどの質量数の大きな稀ガスは電離も容易であるし、価数が5のアルゴンプラズマは電子サイクロトロン共鳴 (ECR) などを用いた電子エネルギーの高いプラズマ生成容器では実現可能な値である。実際に、原研で行われたECRプラズマ生成実験においては、比較的低いパワー密度においても平均価数3のアルゴンプラズマが得られている [22]。

Schlachter らの評価では、多価イオンの電子脱離断面積は価数の2乗に比例すると仮定している。しかしながら、Giessenのグループによる実験によれば、2乗ではなく、1.3乗に比例するという結果を得ている [23]。もし、1.3乗を仮定すれば、多価イオンを用いても必要な線密度はそれほど減少せず、1価のイオンを用いる場合と比較して1/3程度に短くなるにとどまる。

現在、ITER-NBIに用いるプラズマ中性化セルの設計を行おうとしているが、水素負イオンや水素原子と多価イオンとの衝突断面積に関するデータベースが十分では無い。今後、精密な議論をするためには、

- 1) 水素負イオンや水素原子と稀ガス多価イオンとの衝突による1重及び2重電子脱離断面積を、核融合炉に必要なエネルギーである数100keV～数MeVの範囲で測定した実験データをとること、
- 2) 電子脱離過程により生成された水素原子は、必ずしも基底状態にあるものだけでなく、いろいろの励起状態にわたって分布する。励起状態の水素原子の衝突電離断面積を考慮すること、
- 3) 水素負イオンビームは電子やイオンと衝突して容易に2重励起状態に励起され、自動電子脱離を起こす。この過程を考慮に入れると、脱離断面積がどの様になるか、検討すること、

が必要である。

#### 4. おわりに

ここ十年間、核融合プラズマを加熱するための大電流負イオン源の開発は大きく進展し、十アンペア級の水素負イオンビームが得られるようになった。原研では、世界で初めての負イオンを用いた中性粒子入射装置をJT-60U用に建設中であり、それに用いる負イオン源の試験が開始されている。この負イオン源は45cmx110cmの広い引き出し面積を持つ体積生成型負イオン源であり、これまでに400keV, 13.5A (5.4MW)の重水素負イオンビームを0.2秒間発生することに成功している。電流密度やビーム収束性の観点からも、ITERで必要とされる重水素負イオン源の実現性に明るい見通しを得るに至っている。しかしながら、その生成機構には不明な点が多くあり、今後、効率の改善や構造の最適化、信頼性の向上などの研究開発を行うためには、原子分子反応過程の詳細な検討が欠かせない。

一方、今後の大きな課題として、システムの効率を高めコンパクトにするためのプラズマ中性化セルの開発がある。アルゴンやキセノンなどの稀ガスの多価イオンを用いたプラズマ中性化セルが有望であるが、研究開発の目標を定めるとともに、詳細な設計検討を行うためには多価イオンと高エネルギー水素負イオン、水素原子との衝突電離断面積データが必要である。

## 参考文献

- [1] R. Hemsworth et al., "Neutral Beams for ITER", to be published in Rev. Sci. Instrum.
- [2] Y. Okumura et al., "Design Study on a 1MeV, 12.5MW Neutral Beam Injector Module for ITER", JAERI-Tech 95-018 (1995).
- [3] A. L. Hershkovitch et al., Rev. Sci. Instrum. 55 (1984) 1744.
- [4] J. H. Fink, Fusion Technology 6 (1984) 548.
- [5] Y. Okumura et al., Proc. 16th Symp. on Fusion Technology, London (1990) 1026.
- [6] K. Miyamoto et al., Proc. 18th Symp. on Fusion Technology (1994) 625.
- [7] M. Kuriyama et al., Fusion Engineering and Design, 26 (1995) 445.
- [8] Y. Okumura et al., "Development of a 500keV, 22A D- Ion Source for the Neutral Beam Injector for JT-60U", to be published in Rev. Sci. Instrum.
- [9] M. Bacal and G. W. Hamilton, Rhys. Rev. Lett. 42 (1979) 1538.
- [10] K. N. Leung and W. B. Kunkel, LBL-Report 23157 (1987).
- [11] J. R. Hiskes and A. M. Karo, J. Appl. Phys. 56 (1984) 1927.
- [12] J. R. Hiskes et al., J. Appl. Phys. 58 (1985) 1759.
- [13] O. Fukumasa, J. Appl. Phys. 71 (1992) 3193.
- [14] M. Ogasawara et al., Proc. 5th Int. Symp. on Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, BNL, AIP Conf. Proc. No. 210 (1990) 596.
- [15] Proc. 15th Symp. on Fusion Engineering, Hyannis (1993) 466.
- [16] Proc. 6th Int. Symp. on Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, BNL, AIP Conf. Proc. No. 287 (1992) 839.
- [17] Y. Okumura et al., Proc. 13th Symp. on Ion Sources and Ion-Assisted Technology, Tokyo (1990) 149.
- [18] Y. Suzuki et al., JAERI-M 92-169 (1992).
- [19] M. Shinto et al., "Correlation between the Negative Hydrogen Ion Production and the Work Function of the Plasma Grid in a Volume Production Type Negative Hydrogen Ion Source", Jpn. J. Appl. Phys.
- [20] M. W. Grossman, Proc. of the Symp. on the Production and Neutralization of Negative Hydrogen Ions and Beams, BNL, BNL-50727 (1977) 189.
- [21] A. S. Schlachter et al., Proc. 4th Int. Symp. on Production and Neutralization of Negative Hydrogen Ions and Beams, BNL, AIP Conf. Proc. No. 158 (1987) 631.
- [22] Y. Matsuda et al., Proc. 12th Symp. on Ion Source and Ion-Assisted Technology, Tokyo, (1989) 107.
- [23] F. Melchert et al., Europhys. Lett. 9 (1989) 433.

# 中性化効率のビームエネルギー依存性

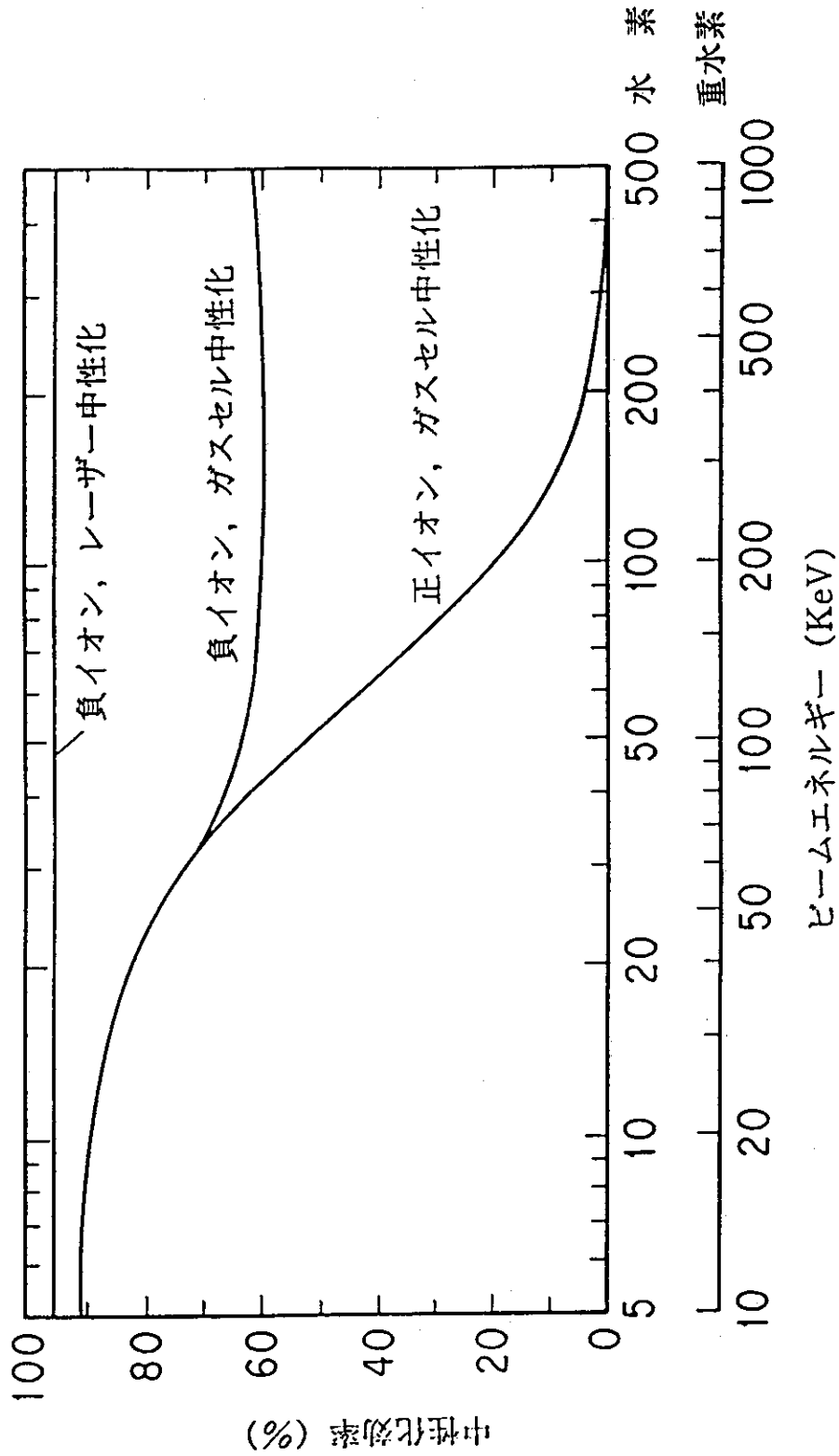


図1 中性化効率のビームエネルギー依存性。1次イオンとして正イオンを用いた場合、効率はエネルギーとともに急激に低下する。負イオンの場合には、高エネルギーでも高い中性化効率を得ることができる。

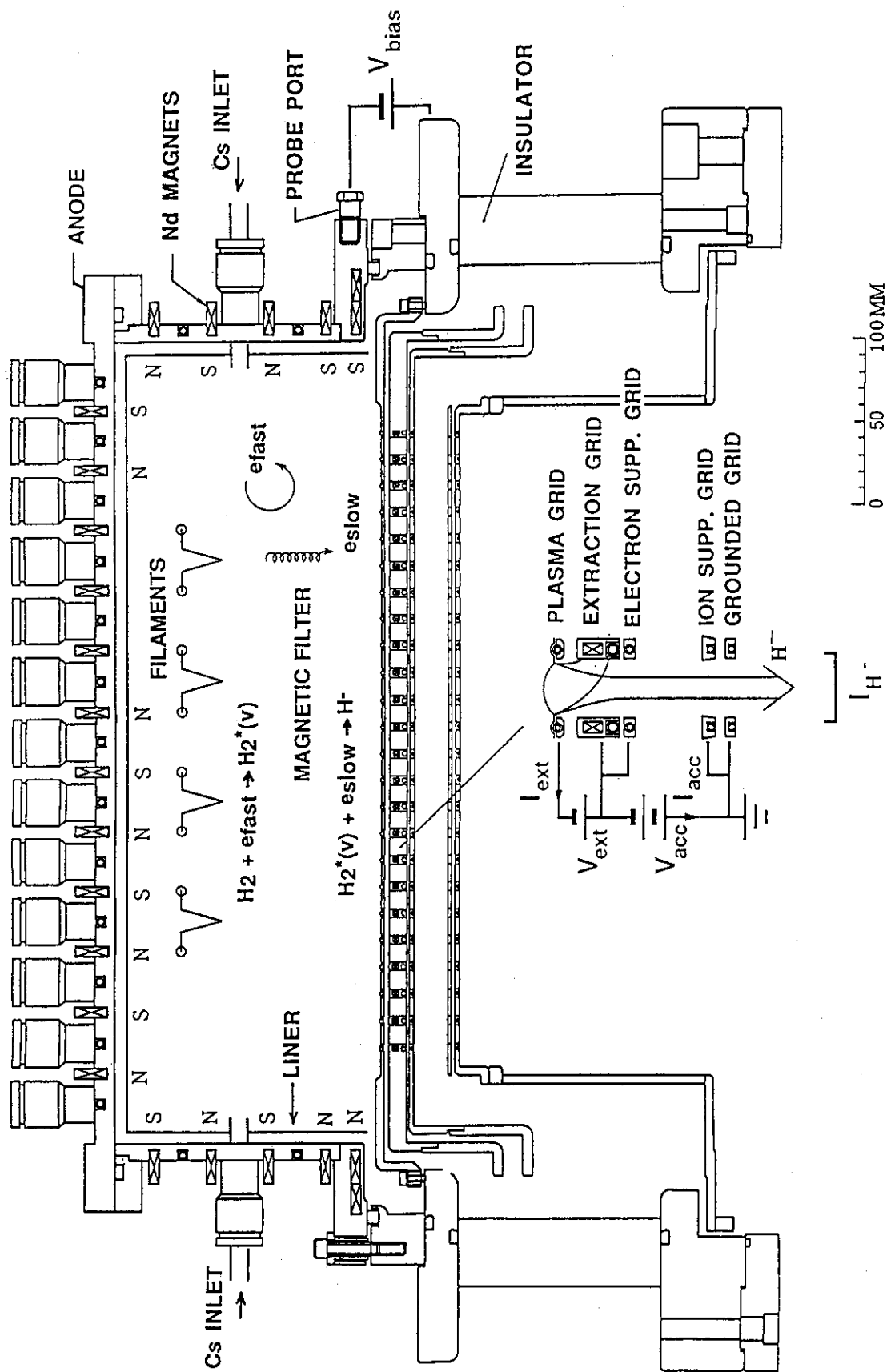


図2 原研で開発したアンペア級負イオン源。体積生成方式の負イオン生成部を持ち、50keV、10Aの水素負イオンビームを発生することができる。

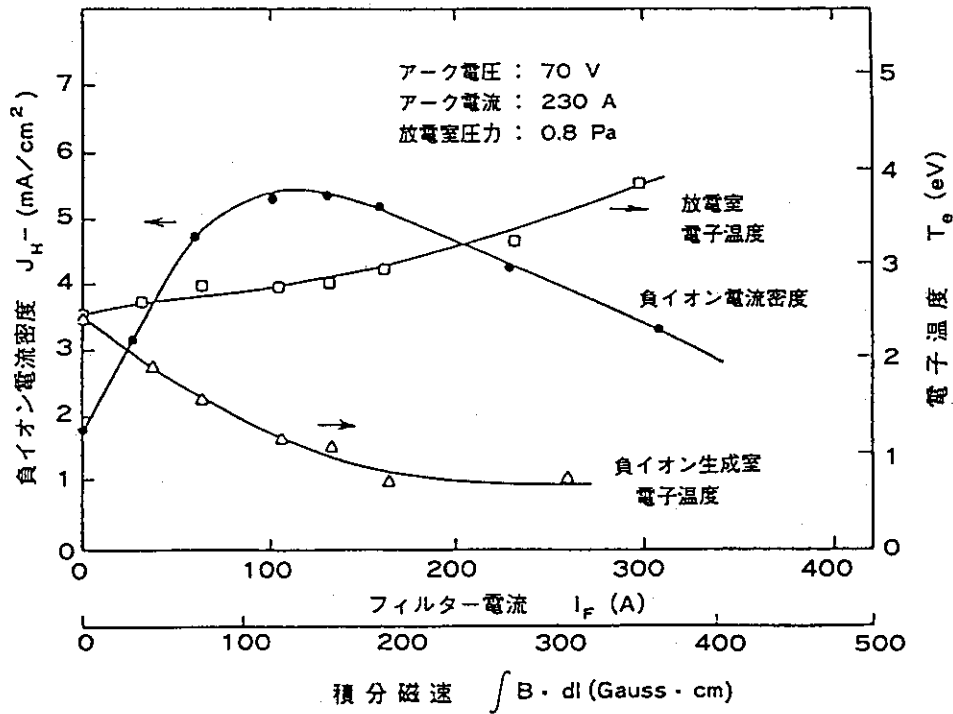


図3 体積生成型負イオン源における負イオン電流のフィルター磁場依存性。放電室と負イオン生成室の電子温度も同時に示す。負イオン生成室の電子温度が1eV程度の時、負イオン電流が最大値となる。

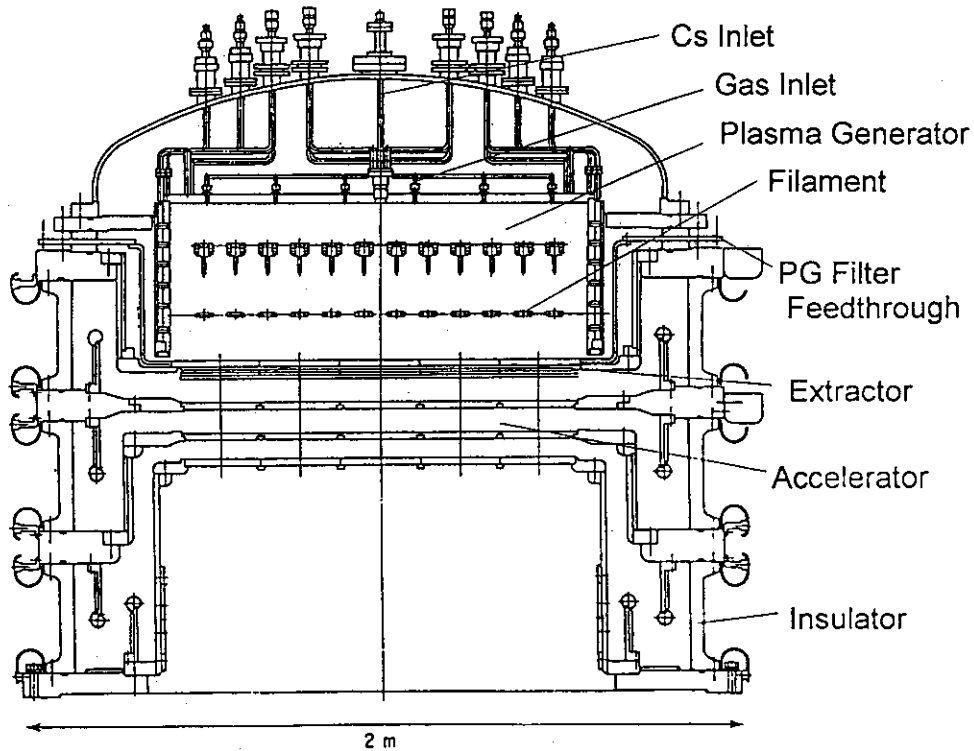


図4 世界最初の負イオンを用いた中性粒子入射装置である、JT-60U負イオンNB I用の大型負イオン源。500keV、22Aの重水素負イオンビームを10秒間発生できるように設計されている。

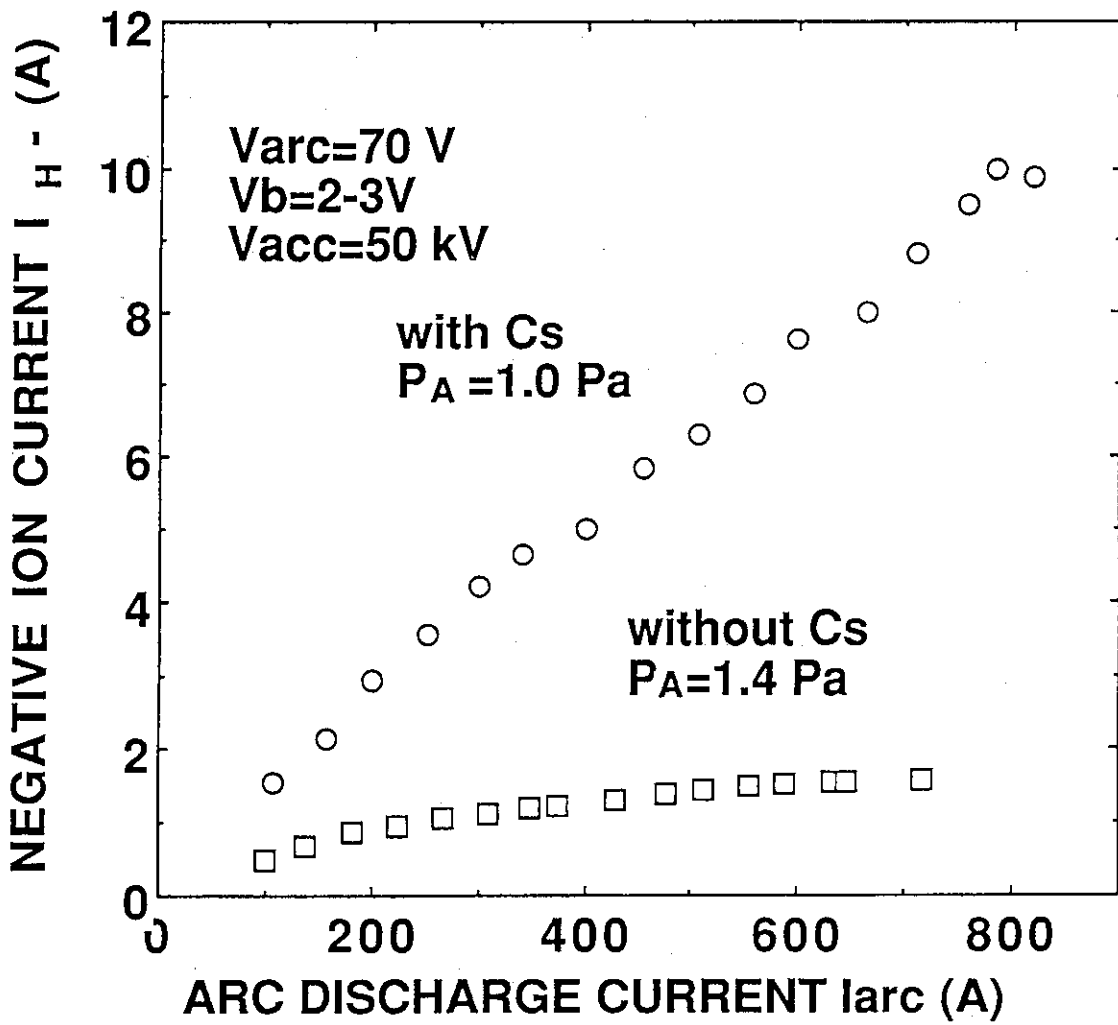
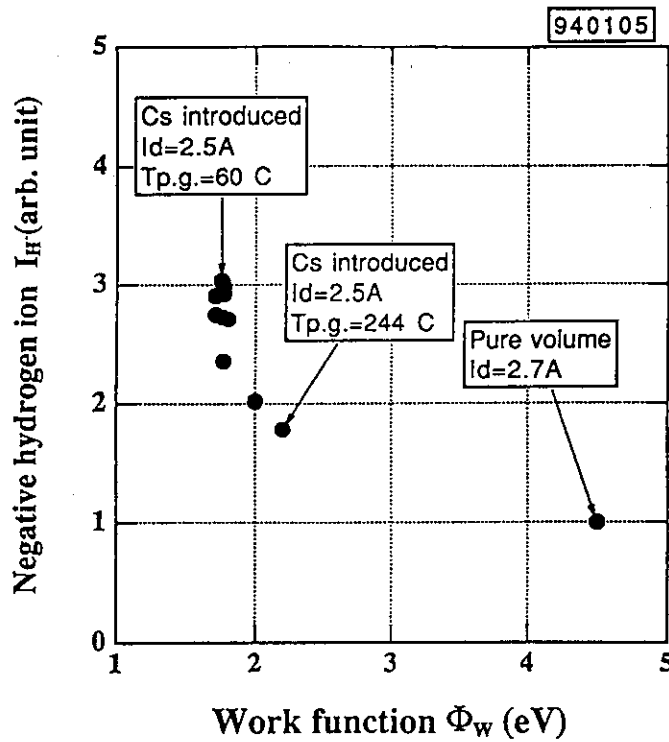


図5 アンペア級負イオン源にセシウムを添加する前後の負イオン電流のアーク電流依存性。セシウム添加により、負イオン生成率は4倍以上に高められる。



Correlation between negative hydrogen ion current and work function of plasma grid  
 ( Pa=0.5mTorr, Vd=70V, Vacc=400V, Vext=200V, Vb=+2.0V)

図6 プラズマ電極の仕事関数と負イオン生成率の関係。仕事関数が2eV以下になると、負イオン生成率が急激に上昇する。

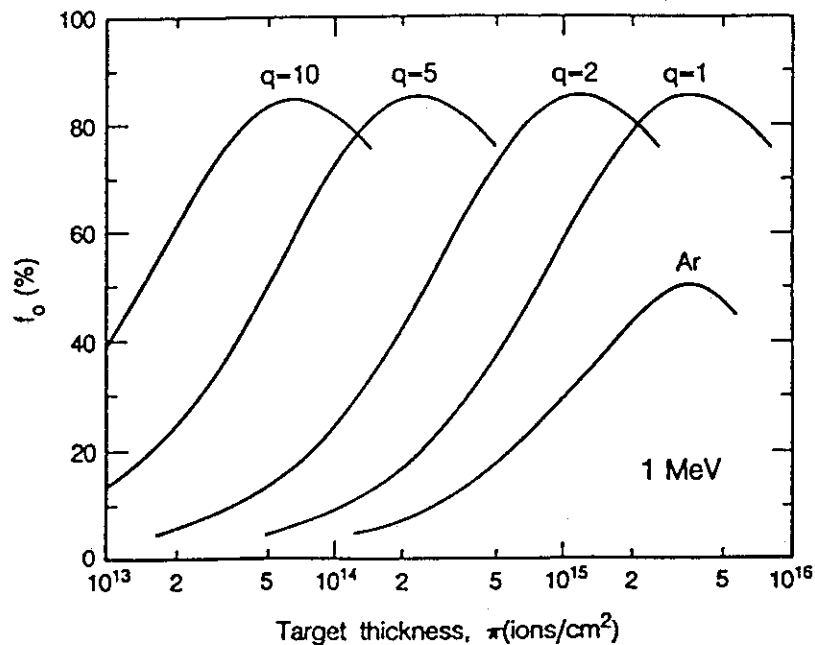


図7 1MeVの水素負イオンに対するアルゴンガス中性化セルとアルゴンの多価イオンプラズマ中性化セルの中性化効率の線密度依存性 [21]。

## 13. 電子衝突による励起水素原子 (H, D) の生成過程と生成断面積

九大総理工 中島 慶治

## 1. 序論

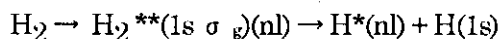
分子と電子が衝突することにより、分子は 10eV 以上の高励起状態へ容易に励起される。この結果、水素原子を含む分子の電子衝撃解離で生成する励起水素原子は大きな並進運動エネルギー (10eV 以上) し、Balmer 線は大きなドップラー幅 (~0.1nm) を持つ。その解析から励起水素原子の並進運動エネルギー分布を知ることができ、高励起状態の失活過程を明らかに出来る。我々は、 $H_2$ ,  $D_2$  の電子衝撃で生成する励起水素原子の空間分布の異方性や方位・磁気量子数分布を求めめるため、種々のドップラー線形の測定法や解析法を考案し、電子衝撃による水素分子の高励起状態の解離の動力学を明らかにした。

## 2. パルス電子衝撃による解離原子の方位量子数分布の研究

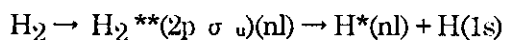
水素原子の Balmer 線は、 $ns-2p$ ,  $np-2s$ ,  $nd-2p$  の 3 種の遷移からなる。分子の電子衝撃により生成する Balmer 線では、ドップラー幅が微細構造の 10 倍以上あるため、高分解能分光を行っても各遷移を分離することはできない。しかし、 $s$ ,  $p$ ,  $d$  原子は寿命が異なるため、時間分解測定を行えば分離が可能である。本研究では、時間幅 10 ns のパルス電子ビーム衝撃で  $H_2$  から生成する Balmer  $\beta$  線を時間分解測定し、方位量子数分布を決定した。Table.1 に  $H_2$  から生成する  $4s$ ,  $4p$ ,  $4d$  原子の生成比の衝撃エネルギー依存性を示す。高エネルギーになるに従って、 $4s$  原子の寄与が減少することが観測され、各解離過程の方位量子数分布に違いがあることが分かった。我々は、 $H_2O$ 、 $CH_4$  等の多原子分子についても研究を行ったが、方位量子数分布にエネルギー依存性は観測されず、この事は  $H_2$  の電子衝撃励起の特徴である。

Fig.1 に時間分解法で測定した、 $4s$  原子の励起関数、及び、全 Balmer  $\beta$  線の励起関数を示す。30eV 以下では、両者はほぼ比例しているが、30eV 以上では  $4s$  原子の増加率は相対的に減少する。 $H_2$  の電子衝撃による励起水素原子の生成過程は、主に下記の 3 つからなる。

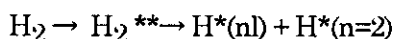
(1)  $H_2^+$  の  $(1s \sigma_g)$  状態に収れんする Rydberg 状態 (しきい値 ~17eV、運動エネルギー 0-2 eV)



(2)  $(2p \sigma_u)$  状態に収れんする 2 電子励起状態 (しきい値 ~24-26eV、運動エネルギー 6-10 eV)



(3)  $(2p \sigma_u)$  状態以上の準位の 2 電子励起状態 (しきい値 >30eV、運動エネルギー 4-6 eV)



従って、30eV 以上では  $4s$  原子の減少は、(3) の過程では  $4s$  原子は生成されない、もしくは、生成比が少ないと考えられる。

この確認のため、分子をパルス電子ビーム衝撃で励起し、ファブリペロー干渉系を用いて時間分解測定し、寿命の異なる成分のドップラー線形を、高分解能かつ選択的に測定する装置

を開発した。パルス電子衝撃により生成する Balmer  $\beta$  線のドップラー線形の時間依存性を測定し、4S 原子からドップラー線形を分離することに成功した。本装置を用いて、電子-H<sub>2</sub> 衝突により生成する寿命の長い 4s 原子発光のドップラー線形を測定し、その並進運動エネルギー分布を決定した。結果を Fig.2、3 に示す。

全 Balmer  $\beta$  線の運動エネルギー分布では、0、4、8eV にピークが見られる。これらは、前記の解離過程(1)、(3)、(2)に対応する。それに対して、4S 原子では 4eV のピークが消失しており、過程(3)の寄与が無いことがわかる。従って、4p、4d 原子は3種の超励起状態の解離で生成するが、4s 原子は3つの内の最もエネルギー準位の高い状態からは生成しないことを確認できた。過程(3)は、H<sub>2</sub><sup>+</sup>の(2p  $\pi$   $\sigma$ )や(2s  $\sigma$   $\sigma$ )に収れんする Rydberg 状態と考えられる。

### 3. H<sub>2</sub>、D<sub>2</sub> の電子衝撃で生成する励起水素原子の偏光

解離で生成した励起原子が電子ビームに対して異方的空間分布を持つ場合、生じる発光は偏光している場合が多い。こうした場合、偏光度、P、

$$P=(P_{\parallel}-P_{\perp})/(P_{\parallel}+P_{\perp})$$

の測定が、有効な研究手法である。実際、H<sub>2</sub>、D<sub>2</sub> からの Balmer 線は 10-20% の偏光度を持つことが知られており、しかしながら、前節で述べたように、水素分子からの Balmer 線は複数の解離過程から生成されるため、全発光の偏光度で全ての過程の異方性を検討することは無理が多い。我々は、水素分子の電子衝撃により生成する Balmer  $\alpha$ 、 $\beta$  線(n=3,4)の偏光成分を高分解能測定し、複数の解離過程からの発光の偏光度を成分毎に分離した。

Fig.3 から明らかなように、水素分子からの励起水素原子は、並進運動エネルギー1-2eV の遅い成分(前記の過程(1))と 2eV 以上の速い成分(同、過程(2)と(3))に大別される。Fig.4 に、この2成分の偏光度の衝撃エネルギー依存性を示す。遅い成分では、n=3,4 とともにほぼ同じPが観測されるのにたいして、速い成分では、n=3 のPは、n=4 に比べて全てのエネルギーで低い値となった。H<sub>2</sub> からの速い成分には角度異方性を持たない無偏光の成分が存在し、その寄与は n=4 よりも n=3 の励起水素原子の方が大きいと考え、この結果が解釈できる。実際、過程(2)には(2p  $\sigma$   $\sigma$ )状態に収れんする  $^1\Sigma_u(2p \sigma \sigma)(nl)$  状態以外に、最低準位の2電子励起状態  $^1\Sigma_g(2p \sigma \sigma)^2$  状態が含まれることが明らかになっている。 $^1\Sigma_g$  という対称性から考えて、後者は解離異方性を持たないと予想されるため、この成分からの分岐比が n=3 で相対的に多いと、速い成分の主量子数依存性は妥当な結果と言える。

この仮定を確認するために、D<sub>2</sub> についても偏光差線形の測定を行い、成分別の偏光度を求めた。遅い成分については H<sub>2</sub> と同様の結果となったが、速い成分では、Balmer  $\beta$  線では同位体効果が認められないのに、Balmer  $\alpha$  線では H<sub>2</sub> より大きな偏光度が得られた。 $^1\Sigma_g(2p \sigma \sigma)^2$  状態は、自動イオン化幅が大きいため、解離に時間のかかる D<sub>2</sub> では自動イオン化への分岐比が大きくなり、H<sub>2</sub> に比べて中性状態に解離する確率が小さくなると考えられる。このため、無偏光である  $^1\Sigma_u(2p \sigma \sigma)^2$  状態からの解離発光の寄与が D<sub>2</sub> では小さいため、速い成分の偏光度が相対的に大きいと結論した。

Table.1 Relative branching ratio(%) of 4l atoms produced in e-H<sub>2</sub> collisions.

Electron Energy(eV)	$\sigma(4s)$	$\sigma(4p)$	$\sigma(4d)$	$\sigma(4f)$
19	21 ± 5	44 ± 30	27 ± 3	8 ± 4
24	19 ± 4	42 ± 35	29 ± 5	10 ± 5
32	21 ± 3	48 ± 40	29 ± 5	2 ± 2
50	14 ± 2	53 ± 30	32 ± 5	1 ± 1
100	14 ± 2	48 ± 30	35 ± 5	3 ± 2

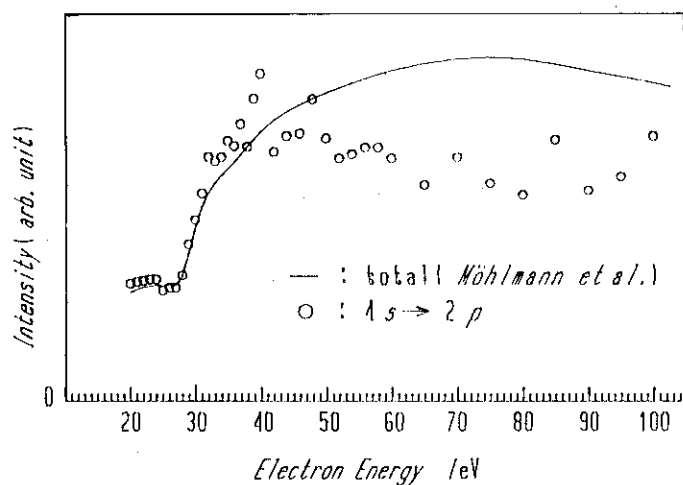


Fig. 1 Excitation functions of Balmer  $\beta$  emission (full line) and 4s-2p transition(circles). from H<sub>2</sub>

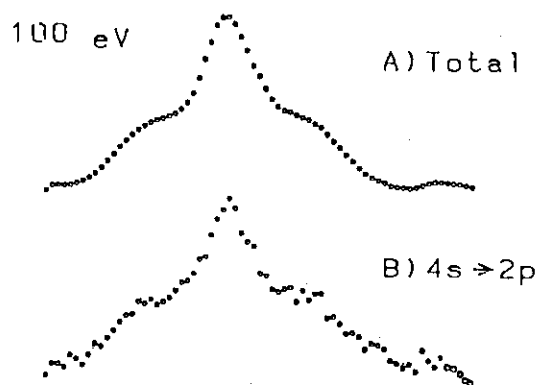


Fig. 2 Doppler profiles of Balmer  $\beta$  line (A) and 4s-2p transition(B) at 100 eV.

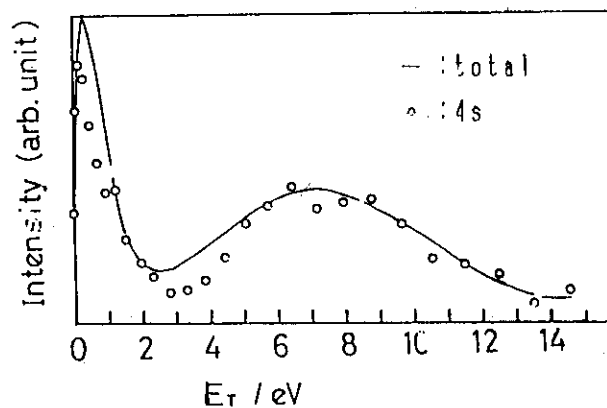


Fig. 3 Translational energy distributions of n=4 (full line) and 4s (circles) atoms.

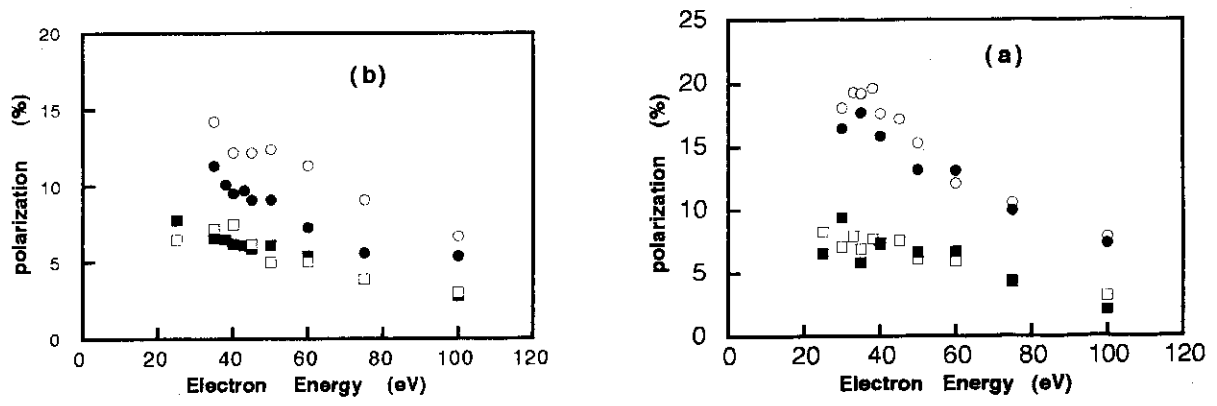


Fig. 4 Polarization of Blamer (a)  $\alpha$  and (b)  $\beta$  lines for the slow and the fast components produced in e-H<sub>2</sub> and e-D<sub>2</sub> collisions.

## 14. 水素分子、ヘリウムに対する衝突輻射モデルと実効的反応速度係数

京大・工 藤 本 孝

### 1. はじめに

たとえば、トカマクの周辺プラズマや、ITER計画の成否を決めるといわれるダイバーター・プラズマは、今まで多くの研究の対象になっていたプラズマに比して著しく低温であることがひとつの特徴である。このようなプラズマ中では中性種、とくに分子の存在がそのプラズマの特性を大きく規定するであろうことは容易に想像できる。とくに後者のプラズマではその温度領域の下限が1 eV程度であり、分子の役割が重要となる。また、その密度の上限が $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ に達するといわれており、そのような高密度プラズマ中では励起状態を経由して生ずる間接的な原子、分子過程が無視できないのみならず、むしろ主要な過程となる。プラズマ分光の研究で直接的に対象となる励起状態原子、分子、イオンのポピュレーションの生成にもこれら間接過程の寄与は本質的である。そのような過程の寄与をも含めて、プラズマ中原子、分子、イオン励起種のポピュレーション、また原子、分子、イオンの電離、再結合、さらに分子の解離過程などを包括的に取り扱う方法が衝突輻射モデルである。

本講演では、中性ヘリウム原子、水素分子それぞれに対して建設された衝突輻射モデルについて述べ、その結果の一部を紹介した。

### 2. ヘリウム

1979年に藤本によって衝突輻射モデルが報告されたが[1]、核燃焼プラズマについてのヘリウムに対する近年の興味から、そのモデルの改善、再検討が行われている。1重項-3重項間の波動関数混合について、ごく最近カナダのウィンザー大学の Drake 教授が計算を完了した[2]。それによれば、角運動量量子数3以上の状態ではL-S結合は成立せず、波動関数はほとんど完全に混合している。この計算にもとづいてこの効果が取り入れられた。さらに磁場によって波動関数の混合の割合が変わり、核融合研究プラズマの分光においてその効果が重要になりうる。その効果をコードに取り入れることが検討されている。

基底状態からの電子衝突励起断面積について de Heer 教授のグループが最近のデータをもとに再検討を行い、その結果にもとづいて加藤と Janev が断面積を比較的簡単な経験式にフィッティングした。この結果がコードに採用された。準安定状態からの衝突励起断面積も同グループによって再検討されたが、その結果のうち $2^3\text{S}$ からの励起断面積の10 eVよりも低エネルギー領域における値に疑問が残る。暫定的に、この再評価値が採用された。主量子数が不変で角運動量量子数が1だけ変わる衝突(*l*-changing transition)については、速度係数に若干の実験値がある。いくつかの半経験式を検討した結果、1979年に採用されていたものが信頼できる実験値と最もよい一致を与えることが見いだされ、それを改良した断面積が採用された。

これらの修正が施された衝突輻射モデルをもちいて、基底状態、2つの準安定状態、イオンそれぞれの間の遷移の実効的速度係数が計算された。

ヘリウムを10%含むWT-3トカマク・プラズマに対して $3^3P$ 、 $3^3D$ 準位のポピュレーションの小半径方向の依存性が測定された。別の方法で決定された電子密度、温度の空間分布をもちい、衝突輻射モデルによってこれら励起準位のポピュレーションが計算され、それらが実験値に合うようそれに必要な基底状態原子密度、準安定状態原子密度が決定された。この手続きが可能であるのは、 $3^3P$ 準位は基底状態からの励起断面積が大きく、 $3^3D$ 準位は逆に $2^3S$ 準安定準位からの断面積が大きいという、一般にあまり気づかれていない事実による。これらの結果を中性粒子輸送シミュレーションコードEIRENEによるものと比較した。ヘリウムの発生はリミター、容器壁に到着したヘリウムイオンは中性原子となってリサイクリングする、という条件での結果とほぼ良い一致をみたが、準安定原子の密度は実験値に比して約2分の1であった。この違いの原因については今の所不明である。

準安定原子の密度分布に粒子輸送が重要な役割を果たしているかどうかを調べるために、衝突輻射モデルにおいて準安定準位ポピュレーションの取扱い方を変えた2通りの計算を行った。その結果は、両者が良い一致を示し、準安定準位ポピュレーションも通常の励起準位ポピュレーションと同様に準定近似が成立することが明かとなり、今後の研究に明るい見通しが得られた。

### 3. 水素分子

我々の以前の研究で、トカマク周辺プラズマ中の中性水素はそのほとんどが分子であることが見いだされたが[3]、分子の粒子輸送を理解するために分子にたいする衝突輻射モデルが構成された[4-6]。それによって分子の解離、分子イオンの生成、プロトンの生成の実効的速度係数を電子温度、密度の関数として計算することができる[6]。これはすでにおこなわれている低密度極限にたいするこれら速度係数を有限密度に拡張するものである。我々の以前の実験結果をこれらの新たな速度係数を用いて解釈し、粒子輸送を議論した。原子の空間的輸送のフラックスは周辺プラズマの外側では外向きの、内側では内向きの方向を持つことが明かとなった。これは分子解離の速度の空間分布を勘案すると、解離した原子が持つ運動量によって説明可能であるように思われる。これは普通に理解されている描像、すなわちリサイクリングによる水素原子の内向きみのフラックス、と異なるものである。

我々の興味は上に述べたようにトカマクの周辺プラズマであったので、扱うプラズマは「電離フェーズにあるプラズマ」だけで良かった。そのようなプラズマでは、分子イオンから出発する再結合や解離、励起過程はもともと無視できるので、それら過程にたいする原子データの不十分さは何等障害とはならなかった。しかしながら、ダイバーター・プラズマは上に述べたように低温高密度となり得て、そのような条件のもとでは今までは無視できていた「再結合フェーズにあるプラズマ」成分も無視できなくなることが予想される。我々の衝突輻射モデルコードをこの条件にまで拡張する必要がある。そのためには原子過程のデータが整備される必要がある。理論的、実験的研究の進展により近い将来それが実現されることが強く希望される。

参考文献

1. T. Fujimoto, J. Quant. Spectrosc. Radiative Transfer 21, 439 (1979).
2. G. Drake (私信).
3. T. Fujimoto *et al.*, Nucl. Fusion 29, 1519 (1989).
4. T. Fujimoto, K. Sawada and K. Takahata, J. Appl. Phys. 66, 2315 (1989).
5. K. Sawada, K. Eriguchi and T. Fujimoto, J. Appl. Phys. 73, 8122 (1993).
6. K. Sawada and T. Fujimoto, J. Appl. Phys. (September 1, 1995).

## 15. JT-60 Uにおける不純物（炭素、メタン）の発生

原研 那珂研究所 清水勝宏

## 1. はじめに

トカマク型核融合炉では、炉心プラズマから流出する熱及び粒子の処理は、ダイバータによって行われる。第1図に示すように、熱及び粒子は、スクレイブ層（SOL）と呼ばれる周辺プラズマを通して、開いた磁力線に沿って、ダイバータ領域へと導かれる。この時、問題となるのが、ダイバータ板への熱負荷である。現在、国際協力で工学設計が進められているITER（国際熱核融合炉）では、ダイバータへのピーク熱流束が $20 \text{ MW/m}^2$ 程度と評価されている。しかし、現在の技術で工学的健全性を確保するには、その値を $5 \text{ MW/m}^2$ 程度に抑える必要がある。このダイバータ板への熱負荷を下げるために、磁力線に沿って流れる熱を放射パワーとして逃がす遠隔放射冷却が有効と考えられている。

この遠隔放射冷却のメカニズムについて、少し説明する。磁力線に沿って、ダイバータ板へ流れてきたイオンは、ダイバータ板で中性化される。発生した中性粒子の多くは、電子、イオンとの衝突で電離され、プラズマ粒子となり、再びダイバータ板へと流れて行く。このリサイクリングによって、ダイバータ板への粒子束の増倍が起こり、ダイバータ板近くでの密度が高くなるとともに、温度が低下する。このことによって、中性粒子の平均自由行程が短くなり、ますます、ダイバータ板近くで、プラズマは低温高密度になる。不純物による放射パワーは、ダイバータ・プラズマの低温、高密度化によって、増大するので、ダイバータ板への熱流束を減少させることが出来る。また、ダイバータ板で発生した不純物をイオンとの摩擦力で押し戻す不純物の遮蔽効果が、高密度化によって機能するようになる。このように、主プラズマへの不純物の混入を防ぎながら、主プラズマから離れたダイバータ領域で放射パワーを増大させるという意味で、「遠隔」放射冷却と呼ばれる。

遠隔放射冷却によって、ダイバータ板の熱負荷を低減するには、ダイバータ・プラズマを低温高密度にする必要がある。しかし、そうした低温高密度ダイバータ・プラズマを得るために、真空容器内へのガス注入（ガスパフ）を強力に行うと、MARFE（Multifaced Asymmetric Radiation From the Edge）と呼ばれる局所的な放射冷却による熱的不安定性が生じ、時にディスラプションに至る。ディスラプションは、プラズマの閉じこめが一瞬にして失われる不安定で、装置損傷を与える可能性があり、これを抑制する制御技術が強く求められている。MARFEは、主プラズマの境界付近での磁力線に沿った熱伝導（それは、温度低下とともに減少）よりも、軽元素不純物による放射損失（それは、温度低下とともに増大）が大きくなった時に生じる。MARFEが生じると、ダイ

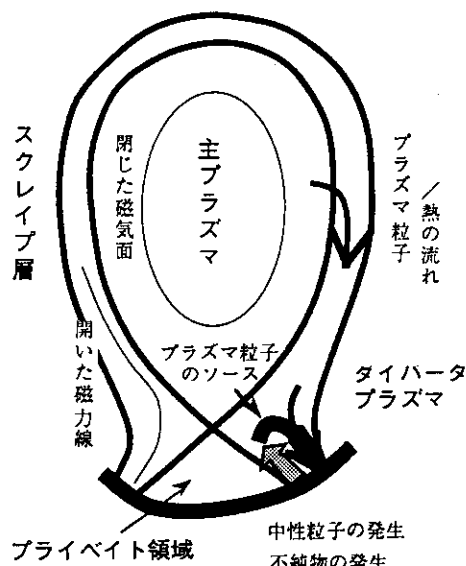


Fig. 1 Divertor Plasma Configuration.

バータ板への熱負荷は減少するが、ダイバータ部でのイオン化が激減し、不純物遮蔽効果が劣化し、不純物が直接主プラズマへ混入することになる。その結果主プラズマが直接冷やされ、混入量によって、ディスラプションに至るのである。

従って、安定な(MARFEを起こすことなく)低温高密度ダイバータ・プラズマを得るための条件を明らかにする事が、ダイバータ板の熱負荷低減の観点から、核融合研究での最重要課題となっている。そのためには、高密度プラズマ中での不純物の発生と輸送の理解が不可欠である。本報告書では、JT-60Uにおける不純物(炭素, メタン)の発生について、モンテカルロ法に基づくモデル計算で明らかにした事柄について述べる。

## 2. モンテカルロによる不純物の輸送モデル

ダイバータ領域における不純物輸送を解析する際には、その挙動の二つの側面に注目しなければならない。一つは、不純物原子の運動は、本質的に2次元であり、不純物イオンに働く力も2次元構造を持つ事である。もう一つは、イオンの運動には、磁力線に沿った運動、垂直方向の拡散、電離及び荷電交換再結合、そして、プラズマ粒子との衝突といった様々な物理過程が含まれ、しかもそれらの特性時間がプラズマ・パラメータに応じて大きく変化する事である。そのため、SOLにおける不純物の挙動を流体方程式で記述する事は難しい。磁力線方向に沿った運動と各種衝突効果を同時に考慮することや、不純物と壁との相互作用をモデリングする時、モンテカルロのアプローチによって、それらを適切に扱うことができる。

我々は、実平衡配位の下での不純物輸送を調べるため、モンテカルロ技法を用いた2次元不純物輸送コード(IMPurity code based on Monte Carlo techniques: IMPMC)の開発を行った[1]。このモデルは、●不純物発生、●原子/分子過程、●荷電粒子の案内中心の運動、●異常拡散に対応した拡散過程、●クーロン散乱過程の物理過程を考慮しながら、不純物の粒子軌道追跡を行うものである。不純物の挙動の例を、第2図に示す。重水素イオンの物理スパッタリングによって、ダイバータ板から、炭素原子がたたき出される。炭素は電離され、イオンとのクーロン衝突で、速度を

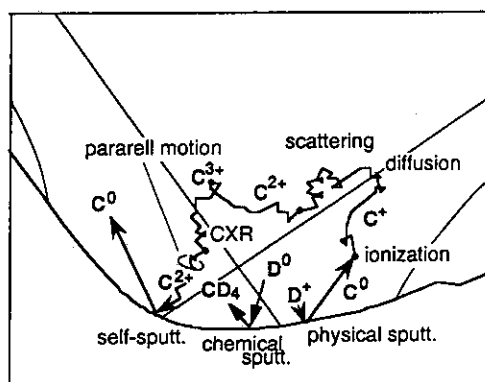


Fig. 2 2D Impurity Transport Modelling.

を変えながら、電離/再結合によってその価数を変える。イオンとの摩擦力で、一部は、ダイバータ板へと戻され、そこで自己スパッタリングが起こる。スパッタリング率、ダイバータ板への入射フラックス量を考慮して、スパッタされる不純物量をセルフコンシステントに決めている。重水素原子が壁に衝突すると、そのエネルギーに応じて、物理スパッタリング、あるいは、化学スパッタリングが生じる。中性粒子の場合、ダイバータ板の前面にあるシース電場による加速がないので、その入射エネルギーは50 eV程度と低いので、化学スパッタリングが支配的である。化学スパッタリングによって発生したメタンの解離過程、解離生成物( $CD_4^+$ ,  $CD_3$ ,  $CD_3^+$ 等)のダイナミクスの追跡も、IMPMCには含まれている[2]。

3. 炭素不純物発生の観測事実

高密度ダイバータ・プラズマにおいて、C II の分布がMARFE発生前後で大きく変化するという興味ある現象が観測された。第3図(a)に、その時の放電波形を示す。5秒から始まったガスパフで、密度が上昇し続け、それに伴い、ダイバータ部での放射パワーが増大し(これに対し、主プラズマでの放射パワーが一定であることに注意)、7.8秒にMARFEが起きている。その結果、不純物遮蔽効果が劣化し、主プラズマに不純物が混入し、そこでの放射パワーが急増している。幸いにも、このショットでは、ディスラプションは起きなかった。

MARFE発生前後での、C II分布の変化を第3図(b)に示す。分布の測定時刻を放電波形の図にA, B, C, Dの細線で示している。MARFE発生前は、セパトリックスがダイバータ板に当たるヒットポイント(矢印)でピークする分布(A)となっているが、その後上流側でピークする分布に変化して(B)、最終的にMARFEへ移行する(C, D)。低/中密度の通常(MARFE発生のない)のNB加熱プラズマでは、炭素不純物の発生のメカニズムとして、重水素による物理スパッタリングと炭素自己スパッタリングが主である事がJT-60Uの分光測定で示された[3]。

しかし、強いガス・パフのある高密度放電で観測されたC II分布の変化は、これらの機構では説明できない。なぜなら、 $C^+$ イオンがX点に到達する事が出来ないからである。炭素不純物の侵入距離について評価する。MARFEの発生する前、ラングミュアー・プローブの測定データによると、 $T_e \geq 20 \text{ eV}$  ,  $n_e \geq 10^{19} \text{ m}^{-3}$  である。 $C^0 \rightarrow C^+$ になる反応率は、 $T_e = 20 \text{ eV}$ の時、 $\langle \sigma v \rangle = 5 \times 10^{-14} \text{ m}^3/\text{s}$ なので、炭素原子の侵入距離はわずか

$V_{\text{emit}}/n_e \langle \sigma v \rangle \leq 1.8 \text{ cm}$ である。ここで、炭素の発生時のエネルギーは10 eVとした。

$C^+ \rightarrow C^{2+}$ になる反応率は $\langle \sigma v \rangle = 8 \times 10^{-15} \text{ m}^3/\text{s}$ である。イオンは磁力線方向にしか進めないで、これを考慮してポロイダル断面に射影したその侵入距離は

$V/n_e \langle \sigma v \rangle \cdot (B_p/B_T) \leq 0.45 \text{ cm}$ である。ここで、 $(B_p/B_T)$ は、磁力線のピッチである。

このことは、X点に向かって2.2 cmも動けば、 $C^{2+}$ まで電離される事を意味している。しかし、X点までの距離は、10 cm以上ある。従って、X点近傍でのC IIの発光は、ダイバータ板から物理スパッタリングで発生した炭素によるものとは考えられない。この現象を理解するため、

IMPICコードを用いたシミュレーション解析を行った。次節で、これについて述べる。

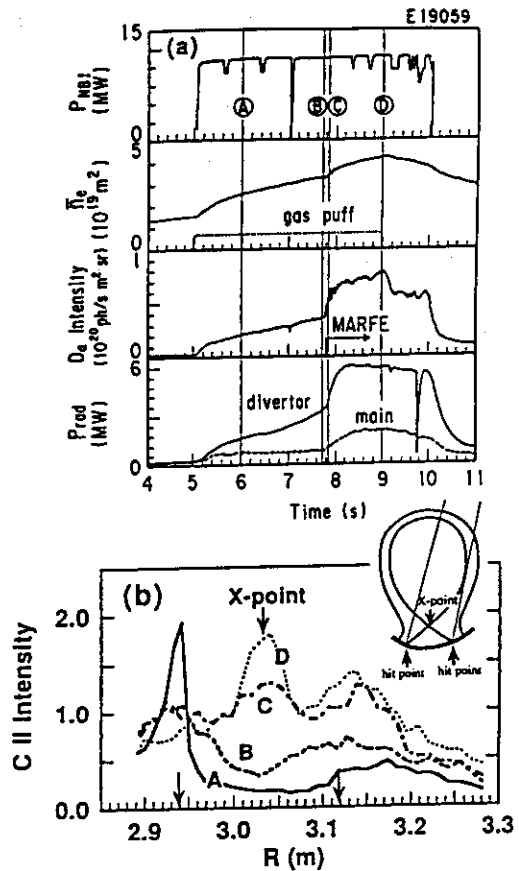


Fig. 3 (a) Time evolution of plasma parameters in an NB-heated discharge with a MARFE. (b) Time evolution of C II line intensity profiles in the divertor region.

## 4. シミュレーション解析

IMPMCコードを用いて、不純物の挙動を調べるとき、SOLのプラズマ・パラメータ（電子密度、温度、流速）が必要である。そうした物理量は、簡易ダイバータコードと呼ばれる解析用コードを用いて計算した[4]。そこでは、ダイバータ板での密度、温度のラングミュアー・プローブの測定値を境界条件として、磁力線に沿った流体方程式を各フラックス・チューブについて解いている。

低密度（第3図のAの時刻）と高密度（Bの時刻）の場合について、炭素の発生分布を第4図に示す。実線が重水素イオンによる物理スパッタリングの炭素の発生量であり、破線は重水素原子による化学スパッタリングのメタンの発生量を示す。物理スパッタリングでは、ダイバータ板での密度、温度から（プローブの測定データ）重水素イオンのフラックスと、入射エネルギーを求め、スパッタリング・イールドから発生量を求めている。重水素中性粒子の壁へのフラックス量は、2次元モンテカルロ中性粒子輸送コードを用いて、計算している。中性粒子の壁への入射エネルギーは、ダイバータ板で約20 eV、プライベート領域（内と外のセパトトリックスのヒットポイントに挟まれた領域で、主半径（R）が2.95 mから3.15 mの領域である。第1図参照）で約50 eVである。物理スパッタリングを起こすには、入射エネルギーが低いので、中性粒子は、化学スパッタリングを主に引き起こすと考えられる。ダイバータ・プラズマが高密度になって、温度が減少したために、物理スパッタリングが、ファクター3程度小さくなっている。一方、ダイバータ・プラズマが低温高密度になって、中性粒子の輸送で荷電交換が支配的となり、プライベート領域の壁への中性粒子のフラックスが増大し、化学スパッタリングの発生が4倍程度に増えているのが分かる。

メタンの解離過程のシミュレーションに必要な反応率については、プリンストン・プラズマ物理研究所のレポート[5]のものを用いた。CD<sub>4</sub>がC<sup>+</sup>になるまでの過程には、34種類もの反応があるが、実験的に求められている反応率は極めて限られている。レポートでは、類似の反応の実験データから推測したり、測定されていないエネルギー領域では、補間/外挿によって、完備したデータを完成させている。反応率の信頼に足る測定データではないということで、データ収集/適用しないというのも、研究者の一つの考え方とは思ふ。しかし、例え根拠が確固としたものでないにしろ、考えうる方法を用いてデータを完備させるのは（根拠を明示した上で）、研究を進めていく上で必要な態度と筆者は考える。

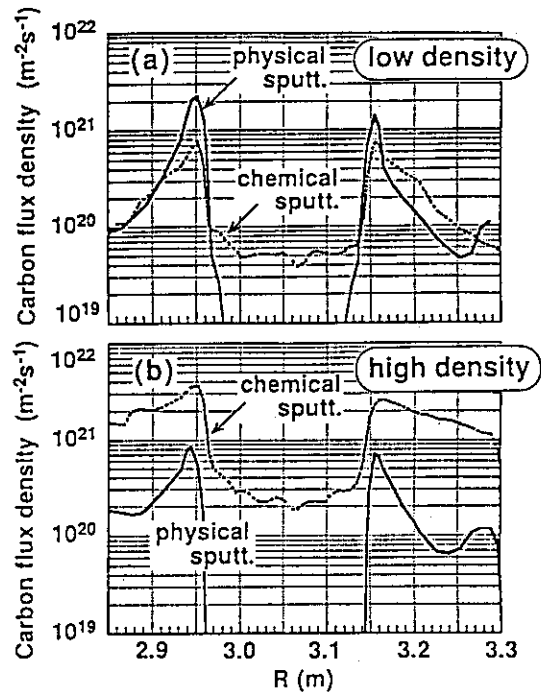


Fig. 4 Carbon flux density for deuterium ion physical sputtering (solid line) and chemical sputtering (dashed line) in a low density (a) and a high density plasma (b).

3. 炭素不純物発生の観測事実

高密度ダイバータ・プラズマにおいて、C II の分布がMARFE発生前後で大きく変化するという興味ある現象が観測された。第3図 (a) に、その時の放電波形を示す。5秒から始まったガスパフで、密度が上昇し続け、それに伴い、ダイバータ部での放射パワーが増大し(これに対し、主プラズマでの放射パワーが一定であることに注意)、7.8秒にMARFEが起きている。その結果、不純物遮蔽効果が劣化し、主プラズマに不純物が混入し、そこでの放射パワーが急増している。幸いにも、このショットでは、ディスラプションは起きなかった。

MARFE発生前後での、C II 分布の変化を第3図 (b) に示す。分布の測定時刻を放電波形の図に A, B, C, D の細線で示している。MARFE発生前は、セパトトリックスがダイバータ板に当たるヒットポイント (矢印) でピークする分布 (A) となっているが、その後上流側でピークする分布に変化して (B)、最終的にMARFEへ移行する (C, D)。低/中密度の通常 (MARFE発生のない) のNB加熱プラズマでは、炭素不純物の発生のメカニズムとして、重水素による物理スパッタリングと炭素自己スパッタリングが主である事がJT-60Uの分光測定で示された [3]。

しかし、強いガス・パフのある高密度放電で観測されたC II 分布の変化は、これらの機構では説明できない。なぜなら、 $C^+$  イオンがX点に到達する事が出来ないからである。炭素不純物の侵入距離について評価する。MARFEの発生する前、ラングミュアー・プローブの測定データによると、 $T_e \geq 20 \text{ eV}$ ,  $n_e \geq 10^{19} \text{ m}^{-3}$  である。 $C^0 \rightarrow C^+$  になる反応率は、 $T_e = 20 \text{ eV}$  の時、 $\langle \sigma v \rangle = 5 \times 10^{-14} \text{ m}^3/\text{s}$  なので、炭素原子の侵入距離はわずか  $V_{\text{emit}}/n_e \langle \sigma v \rangle \leq 1.8 \text{ cm}$  である。ここで、炭素の発生時のエネルギーは  $10 \text{ eV}$  とした。 $C^+ \rightarrow C^{2+}$  になる反応率は  $\langle \sigma v \rangle = 8 \times 10^{-15} \text{ m}^3/\text{s}$  である。イオンは磁力線方向にしか進めないで、これを考慮してポロイダル断面に射影したその侵入距離は  $V/n_e \langle \sigma v \rangle \cdot (B_p/B_T) \leq 0.45 \text{ cm}$  である。ここで、 $(B_p/B_T)$  は、磁力線のピッチである。このことは、X点に向かって2.2 cmも動けば、 $C^{2+}$  まで電離される事を意味している。しかし、X点までの距離は、10 cm以上ある。従って、X点近傍でのC IIの発光は、ダイバータ板から物理スパッタリングで発生した炭素によるものとは考えられない。この現象を理解するため、IMPICコードを用いたシミュレーション解析を行った。次節で、これについて述べる。

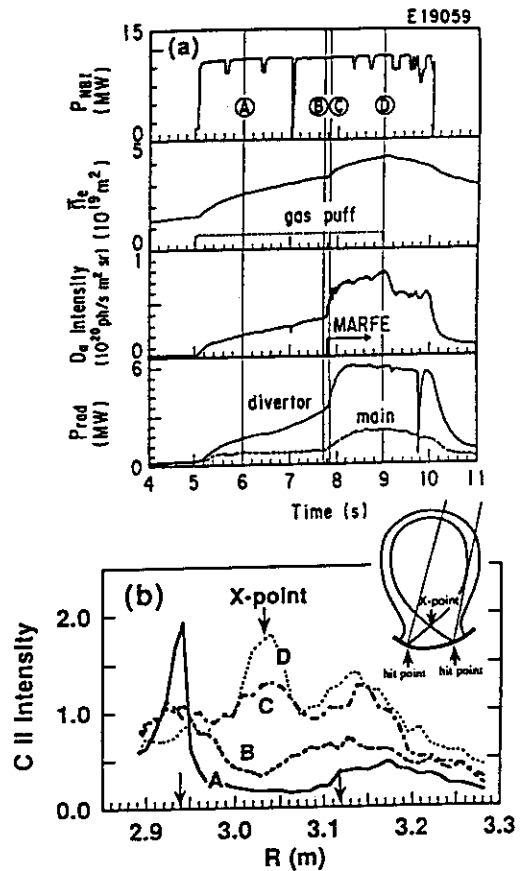


Fig. 3 (a) Time evolution of plasma parameters in an NB-heated discharge with a MARFE. (b) Time evolution of C II line intensity profiles in the divertor region.

第5図は、高密度プラズマに於いて、発生したメタンが解離してC<sup>+</sup>イオンに電離した位置を示している。サンプル粒子数は1000個とした。ダイバータ板から発生した場合、1000個のうち97個が、プライベート領域の壁から発生した場合、430個が、ダイバータ・プラズマ内で電離している。残りの粒子は、解離過程の途中で、ダイバータ板へ戻っている。ダイバータ板で発生したメタンは、その前面のプラズマの密度が高いために、その極近傍で解離/電離を受ける。その結果CD<sub>4</sub><sup>+</sup>、CD<sub>3</sub><sup>+</sup>の様なイオンの一部は、拡散過程でダイバータ板へ直ぐに戻る。それに加えて、CD<sub>3</sub><sup>+</sup> → CD<sub>2</sub>の様に、イオンから中性の炭化水素になったとき、ラーモア回転で速度がランダム化されるので、その回転の位相によっては壁に衝突する。最終的に、ダイバータ板から発生したメタンの内10%のみが、C<sup>+</sup>イオンになる。これまでの分光測定による解析では[3]、化学スパッタリングが否定されていた。それは、発生したメタンが全てC IIの発光に寄与するとして評価していたために、測定値の発光量に比べてかなり大きな値となっていたためである。メタンの解離過程のダイナミクスをモンテカルロで模擬する解析の結果、発生量の内C IIの発光に寄与するのは10%に過ぎないことが、初めて明らかになった。これに対して、プライベート領域の壁から発生したメタンは、半分近くがC<sup>+</sup>イオンになっている。それは、壁から離れた領域で、解離/電離過程が生じるからである。これらの粒子が主プラズマへと混入する。

第6図 (a) は、高密度プラズマにおけるC IIの発光量の計算値である。●印で示した測定値と良く一致している。第6図 (b) には、物理スパッタリングで発生した炭素が寄与する割合と、化学スパッタリングで発生したメタンが寄与する割合とを分けて表示している。X点近傍でのC IIの発光が化学スパッタリングによって説明されることが分かる。また、第3節の炭素イオンの侵入距離についての考察で述べたように、物理スパッタリングはX点近傍のC IIの発光に寄与しない事も示されている。

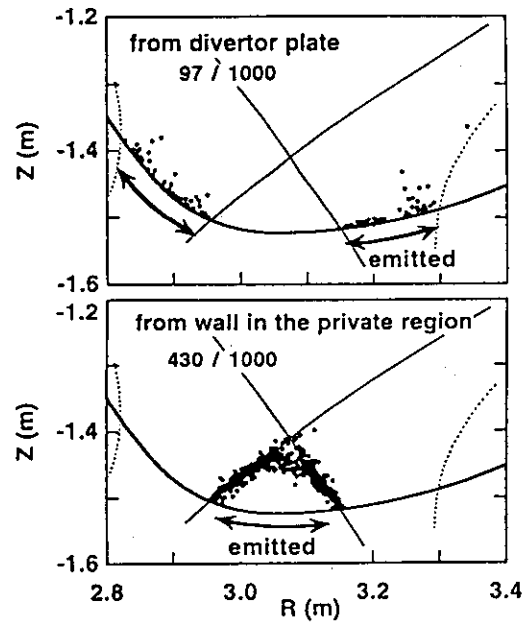


Fig. 5 Birth positions of C<sup>+</sup> ion from methane. Small fraction (~10%) of methane released from divertor plates is dissociated to C<sup>+</sup> ion. In contrast, half of methane released from the wall in the private region becomes C<sup>+</sup> ion finally.

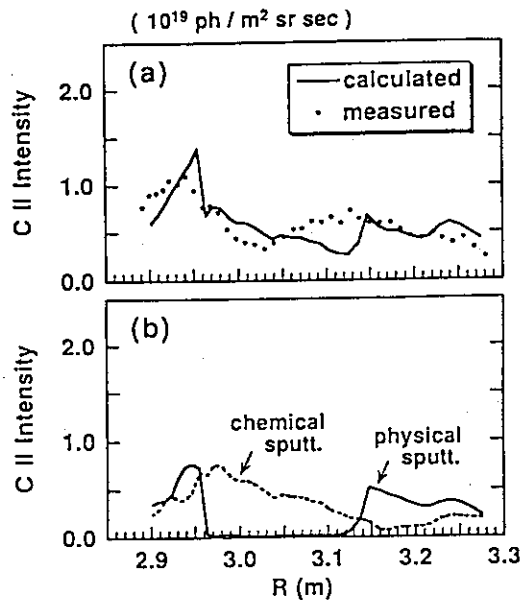


Fig. 6 (a) Calculated profiles of C II line intensity in a high density plasma. The measured profile is plotted with closed circles. (b) Calculated profile of C II intensity due to physical and chemical sputtering. The experimentally measured intensity near the X-point cannot be explained without chemical sputtering.

第7図は、放射損失分布である。物理スパッタリングで発生した炭素による放射損失は、ダイバータ板近傍に局在している。一方、化学スパッタリングによる放射損失分布は、X点とヒットポイントとの間でピークした分布となっている。これは、MERFEが発生する直前に、放射損失分布のピークがヒットポイントから上流へ移動する観測事実と一致する。X点近傍は、熱的不安定を起こしやすいので、こうした局所的な放射損失がMARFE発生の原因と考えられる。

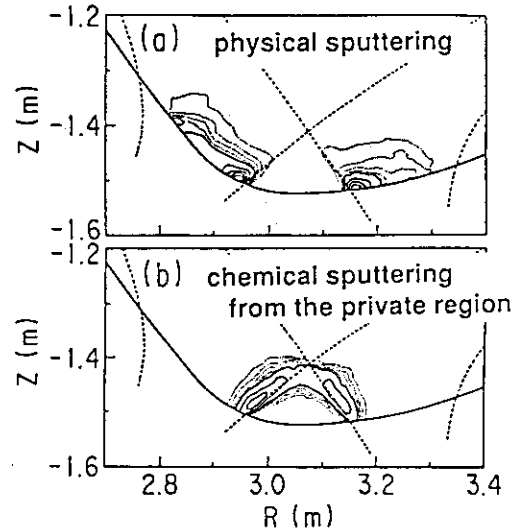


Fig. 7 Contour map of radiation of carbon originating from physical sputtering (a), and chemical sputtering at the wall in the private region (b).

## 5. まとめ

2次元不純物輸送コード (IMPMC) を用いて、JT-60Uにおける不純物の発生についてシミュレーション解析を行った [2]。低密度プラズマにおける不純物の発生は、重水素イオンによる物理スパッタリングと自己スパッタリングで決まる。一方、高密度プラズマでは、ダイバータプラズマが低温になるため、物理スパッタリングが減少する。そして、中性粒子輸送で荷電交換が支配的となり、プライベート領域の壁への中性粒子のフラックスが増大し、化学スパッタリングによるメタンの発生が重要となる。そうした不純物がX点近傍での放射損失を増大させ、MARFEを引き起こすと考えられる。ここに述べた解析によって、MARFEの抑制には、化学スパッタリングを抑える事が重要であることが明らかになった。これを踏まえて、ダイバータ板の水冷却の実験が行われた。化学スパッタリングは、壁の温度に強く依存し、温度が低いほどイールドは小さくなるのである。ダイバータ板を水で冷却すると、CHバンドの強度が減少し、MARFE発生時のプラズマ密度が増大した。こうした実験事実は、シミュレーション解析の結論を支持するものである。

## 参考文献

- [1] SHIMIZU, K., et al., J. Nucl. Mater. 220-222 (1995) 410.
- [2] SHIMIZU, K., et al., Proc. 15 th Int. Conf. on Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research, Seville, 1994, paper IAEA-CN60 / D-P-I-2.
- [3] SAKASAI, A., Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research 1992 (Proc. 14th Int. Conf. Wurzburg, 1992), IAEA, Vienna, Vol. 1 (1993) 195.
- [4] SHIMIZU, K., et al., J. Nucl. Mater 196-198 (1992) 476.
- [5] EHRHARDT, A.B., LANGER, W.D., "Collisional Processes of Hydrocarbons in Hydrogen Plasmas", PPPL-2477 (1987).

## 16. 炭素含有分子の電子衝突励起素過程

上智大理工物理 田中大、L. ボーステン、由利正忠

### 1. 序論

低温プラズマ<sup>1)</sup>は、新材料創製や加工処理技術のために極めて広い分野で利用されている。例えば、高圧合成では難しいとされていたダイヤモンド薄膜<sup>2)</sup>は、炭化水素多原子分子の化学活性を巧みに利用したプラズマCVD法で、容易に作成できるようになってきている。このような技術の発展に伴い、プラズマ特性の原子分子レベルでの基本的理解<sup>3)</sup>が急務となっている。

本稿では、低温プラズマ中での気相一次反応過程で主役を演ずる。低エネルギー電子と、原料ガスである炭素含有分子との衝突励起素過程の研究について述べる。

### 2. プラズマ内の衝突現象

低温プラズマで用いられるグロー放電プラズマでは、気体分子はほぼ室温状態である。それに比べて電子の平均エネルギーは1~10 eVと高温で、プラズマは非平衡状態になっている。プラズマ中には荷電粒子に比べて数桁も多い中性分子が含まれているのも特徴である。

このプラズマの中で起こるプロセスは、大雑把に次の過程に分けられる。外部エネルギーで加速された電子が気体分子と衝突し弾性および非弾性的に散乱される。非弾性散乱の結果、分子の励起イオン化が起こる(気相一次反応)。生成された励起分子、イオンは化学的活性種として種々の反応(気相二次反応)を起こしながら、輸送され基板と表面反応(輸送、表面反応)する。最近では、プラズマのモデリング手法<sup>4)</sup>及び新しいプラズマ診断<sup>5)</sup>に基づく、これら諸過程の物理化学的反應機構が解明されてきている。

しかしながら、これらの衝突反応過程は複雑で多岐にわたるので理解をするためには、まず分子の電子衝突励起素過程についての情報が不可欠である。図1に、ダイヤモンド膜作成で使われる原料ガスの代表分子である $\text{CH}_4$ 及びエッチング分子の $\text{CF}_4$ の電子衝突励起断面積のセット<sup>6)</sup>を示す。分子との衝突後、散乱電子の速さが殆ど変化せず運動方向(散乱角 $\theta$ )のみが変わる弾性散乱(微分断面積:DCS)はすべてのエネルギー領域で起こる。この弾性散乱DCSに $(1 - \cos \theta)$ を掛けて全角度( $0^\circ \sim 180^\circ$ )で積分した量を運動量移行断面積( $q_m$ )と呼び、プラズマ中で最も基本的断面積を与える。その他の $q$ は、それぞれエネルギーしきい値を持ち、特長あるエネルギー依存性を示している。励起エネルギーの低い方から、振動( $q_v$ )、電子付着( $q_a$ )、電子励起( $q_e$ )、解離( $q_{an}$ )、電離( $q_i$ )の各励起素過程の断面積が与えられている。これらすべての過程の合計が全断面積となる。

### 3. 断面積の測定方法

一般に、広いエネルギー領域にわたる断面積の測定では、透過減衰法（全断面積測定）、スウォーム法（図1）、電子ビーム法（各励起過程のDCS）等の複数の方法が用いられる。測定できない条件では、理論値の助けを必要とすることもある。そのため、データ収集、評価<sup>7)</sup>も含め、相補的に信頼性のあるデータ決定が行われているのが実状である。

ここで、電子ビーム法について少し詳しく述べる（図2）。標的分子ビームに、既知のエネルギー（ $E_0$ ）に加速した電子ビームを直角に交差させ衝突させる。入射電子ビームは、半球型静电分析器でエネルギー選別される（エネルギー分解能： $\Delta E = 20 \sim 30 \text{ meV}$ ）。散乱された電子も同様の分析器で、各励起過程ごとにエネルギー分析する。固定された入射電子方向に対して、エネルギー分析器を分子ビームを中心に回転する（角度分解能： $\Delta \theta = 1 \sim 1.5^\circ$ ）ことで、散乱電子の角度依存性（DCS）が測定できる。上記の二つの方法と比較するとこの方法は、各素過程の入射エネルギー及び散乱電子の角度依存性から多くの物理化学的情報が得られる。しかし、低エネルギー電子ビームの制御、断面積の定量化等に難点もある。断面積の定量化には、既知のHeのDCSに規格化する方法がよく用いられる。試料ガスについては、我々が測定した炭素含有分子（ $\text{CH}_4$ 、 $\text{C}_2\text{H}_6$ 、 $\text{C}_3\text{H}_8$ 、 $\text{C}_3\text{H}_6$ 、 $\text{C}_3\text{H}_4$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$ ）に限れば、高純度のものが市販で入手が可能である。しかし、プロセス分子の中でもシラン系、ゲルマ系等危険なガスもあり取り扱いに十分注意が必要である。また、ガスの種類によって分析器への被毒性もあり測定の安定性のためには、分析器の差動排気が必要となる。

### 4. 励起素過程断面積の考察

我々の研究室で測定した上記分子を中心に、 $1 \sim 100 \text{ eV}$ のエネルギー領域での電子と多原子分子の相互作用について微分断面積から得られる知見を述べる。

#### 4-1 弾性散乱微分断面積

図1の $q_m$ は、エネルギーに関する情報は示しているが、散乱角については何も与えてくれない。図3には、ビーム法による同じ $\text{CH}_4$ のDCSを示す。弾性散乱DCSが入射エネルギー、及び散乱角度に大きく依存することがわかる。実線は部分波近似による理論計算によるフィッティング曲線である。 $\text{CH}_4$ は厳密には多中心による理論的あつかいが必要である。しかし、分子の対称性が良いことと、ガス中の分子はいろいろの方向を向いているため、球対称のポテンシャルで散乱されたと考え部分波近似した。この部分波近似の各部分波 $l$ の重ね合わせにより、DCSの‘うねり’は定性的には説明できる。実際には、少数多体系の多中心に基づく理論計算の手法<sup>8)</sup>も進んでおり、厳密な扱いも可能になっている。

#### 4-2 振動励起と不安定負イオン状態

図1の $q_v$ を見ると、振動励起エネルギーしきい値及び $\sim 8 \text{ eV}$ 近傍で、その断面積が強調されている。特に、 $\sim 8 \text{ eV}$ の幅広い構造はC-H系多原子分子のC-H結合の振動モードに共通に現れることが、我々の測定で確認できた。また、分子に二重、三重結合が含まれる場合には、C-H、及びC-C結合の振動モードには、低エネルギー側（ $\sim 2 \text{ eV}$ ）に共通に振動励起の強

調が現れることも観測された(図4)。表Iにそれらをまとめた。C-F系多原子分子では、F原子はHに比べて大きいこと、電子親和力が大きいこと、p軌道が関することで、事情は複雑になる。

以上のように、エネルギーの狭い領域で、断面積が大きく変化する現象を物理学では、共鳴と呼ぶ。ここで観測された比較的幅の広い共鳴構造は、次のように説明される。入射電子が分子より受ける引力ポテンシャルと、その電子自身が散乱で感じる遠心力による斥力ポテンシャルによる有効ポテンシャルに、入射電子が一時的に束縛され短寿命の負イオン状態(準安定状態)を形成する。その寿命が分子の振動周期と同程度か長ければ、電子のエネルギーが有効に分子の振動運動に移譲され、断面積が強調される。この準安定状態は、中性分子のLUMOと同じ対称性を持つと考えてよい場合が多い。最近、分子軌道法でGauss関数を基底とした近似法が簡便に使い予測はできる。共鳴状態を経由した散乱電子の散乱角依存性と、負イオン状態の対称性ことから、より詳細な系統的な解析ができそうである。

#### 4-3 解離性付着と安定負イオン生成

図1の $q_0$ は $\sim 8$  eV近傍に位置し解離性付着の断面積を現している。断面積は他のものに比べ100分の1で極めて小さい。しかし、放電中で蓄積されるとプラズマ内の電界分布に影響を及ぼすようになる。図5に $\text{CH}_4$ の安定負イオン生成の入射エネルギー依存性を示す。 $\text{CH}_2^-$ と $\text{CH}^-$ の生成が共鳴的に起こることから、上で述べた負イオン状態( $\text{CH}_4^-$ )と関連がある。電子が分子に一時的に束縛され負イオン状態を作るとき、負イオンが中性分子と電子とに分かれないうちに(自動電子脱離)分子が解離を起こし、電子の持つ運動エネルギーを吸収して安定化すると考えられている。

#### 4-4 三重項状態と解離及び電離過程

低エネルギー電子衝突実験では、光学的禁制準位への励起が可能であることが一つの特長といえる。 $\text{CH}_4$ の電子励起状態は、ほとんどが非束縛状態であると考えられている。即ち、電子励起状態に励起されると分子は解離する。 $\text{CH}_4-\text{H}_2$ 系低温プラズマ中の活性種としては $\text{CH}_3$ ラジカルが最も多く生成され、 $\text{CH}_n$  ( $n=1\sim 2$ )の生成は少ないと言われている。また、イオン種としては、 $\text{CH}_4^+$ 、 $\text{C}_n\text{H}_n^+$  ( $n\geq 2$ )なども比較的多いが、イオンの総数は、中性活性種と比べるとはるかに少ないことが知られている。

低温プラズマ中では、電子のエネルギー分布の低エネルギー領域が支配的である。そのため、この光学的禁制遷移のうち三重項状態への励起が期待できる。ところが、 $\text{CH}_4$ の電子励起は、 $\sim 8.7$  eV近傍をしきい値として、無数の非束縛状態が混在している。電子ビーム実験で分離できる、中性解離を伴う三重項励起過程は、最低三重項状態への励起のみである。上記の電子励起しきい値より下に $1^3\text{T}_2$ という状態が量子化学計算でも予測されている。図6に $\text{CH}_4$ のエネルギー損失スペクトルの実験結果を示す。入射エネルギー100 eVのしきい値に比べて、15 eVのDCSは、低エネルギー側に長いテールを示し、非束縛状態への遷移の特徴を現している。しかし、一般に多原子分子の場合、電子状態の解析は極めて困難で、励起の逆過程の発光スペクトルや直接解離生成物を測定したり、エネルギー損失電子とそれらの同時計測をするなどの工夫

が必要で、データは少ない。最近、菅井ら<sup>9)</sup>は、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{CF}_4$ について、これまで検出が難しいとされていた電子衝撃による非発光解離生成物の断面積をしきい値イオン化法で測定している(図7)。

また電離過程は、プラズマ内の電子源でもあり、放電の維持にも寄与している。叩き出される二次電子は20 eV以下が支配的で入射電子エネルギーにあまり依存しない。図8に $\text{CH}_4$ の電離により生成される各種正イオンの入射エネルギー依存性を示す。

## 5 おわりに

低温プラズマ中の電子と多原子分子の衝突過程について、電子ビーム法による炭素含有分子の電子衝突断面積の現状を概観してみた。プラズマを理解するためには電子以外の荷電粒子、光、中性活性種に対する断面積の情報も必要となっている。我々の研究室ではビーム法による電子衝突励起DCSの測定に限られている。広いエネルギー領域で信頼性のおける断面積測定には研究室間の相互協力が不可欠と思える。特に、データ収集、評価は今後益々必要となってくるであろう。

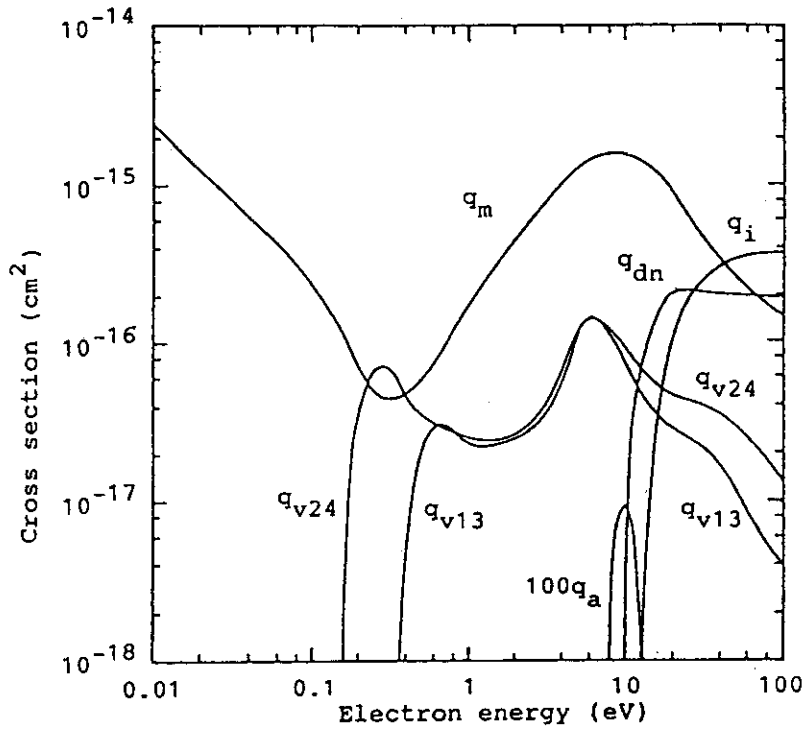
## 参考文献

- 1) 長田義仁編著 低温プラズマ材料化学 産業図書 1995.
- 2) 犬塚直夫著 ダイヤモンド薄膜 表面薄膜分子設計シリーズ10  
日本表面科学会編 1990 共立出版.
- 3) 田中大、L. ボーステン 応用物理 62 (1993) 695.
- 4) 真壁利明 応用物理 60 (1991) 663.
- 5) 後藤俊夫 応用物理 62 (1993) 666.
- 6) M.Kurachi and Y.Nakamura: Proc. 13th Symp. Ion-Sources and Ion-assisted Technology  
Kyoto, 1990, ed. T.Takagi, p205.
- 7) H.Tawara, Y.Itikawa, H.Nishimura, H.Tanaka and Y.Nakamura: J. Nuclear Fusion  
(International Atomic Energy Agency, Vienna) Vol 2. (1992) 41.
- 8) H.Ehrhardt and L.A.Morgan, eds.: Electron Collisions with Molecules, Clusters and Surfaces  
(Plenum New York and London 1994).
- 9) T.Nakano, H.Toyoda and H.Sugai: Jpn. J. Appl. Phys. 30 (1991) 2912

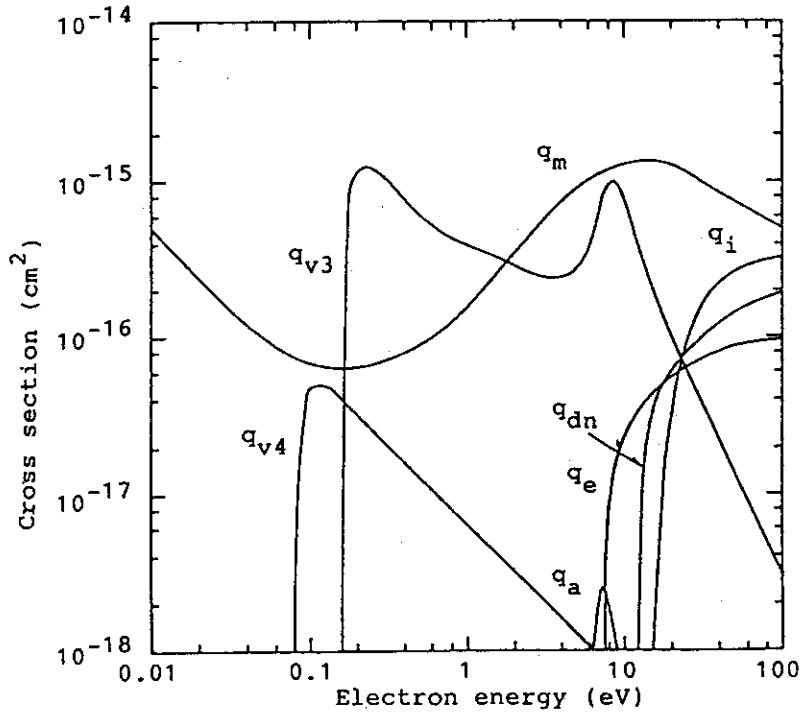
Table I Resonance energy of vibrational excitation in some hydrocarbon-polyatomic molecules.

## 炭化水素原子分子の共鳴エネルギー

結合	分子	eV		
		$\nu_s$	$\nu_b$	$\nu_b$
1重	プロパン	—	7	9
2重	エチレン	1.8	7.5	9.5
	プロピレン	2	7	9
	アレン	2.1	7	11
3重	アセチレン	2.5	6	
	メチルアセチレン	3.2	7	7.5



A set of electron collision cross sections for CH<sub>4</sub>.



A set of electron collision cross sections for CF<sub>4</sub>.

Fig.1 Electron collision cross sections for CH<sub>4</sub> and CF<sub>4</sub>.

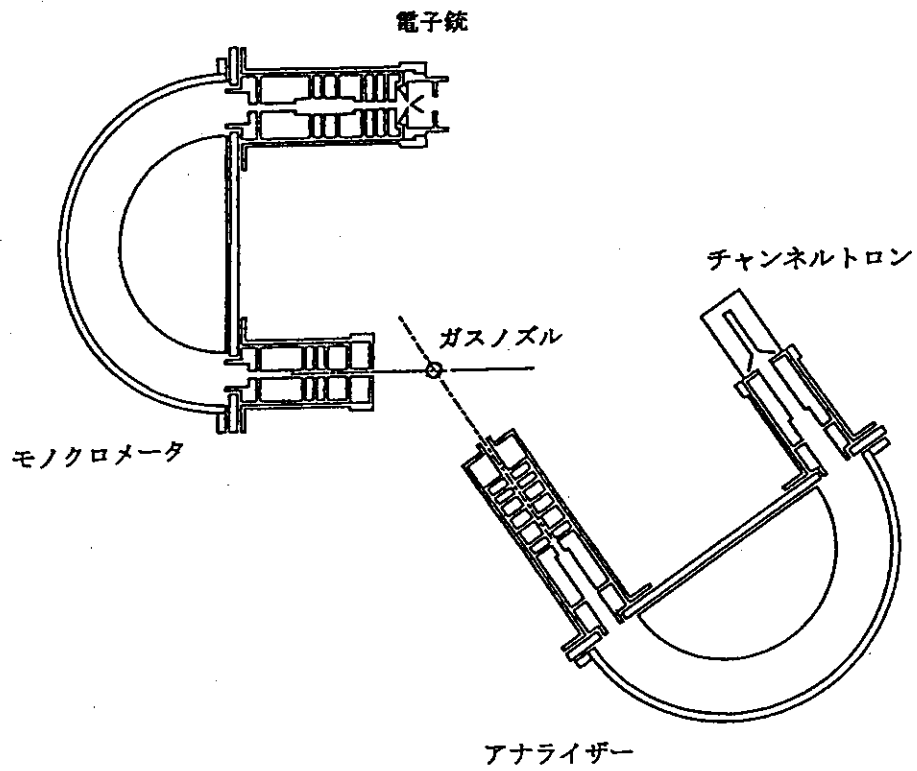


Fig.2 Schematic diagram of the hemispherical electron spectrometer.

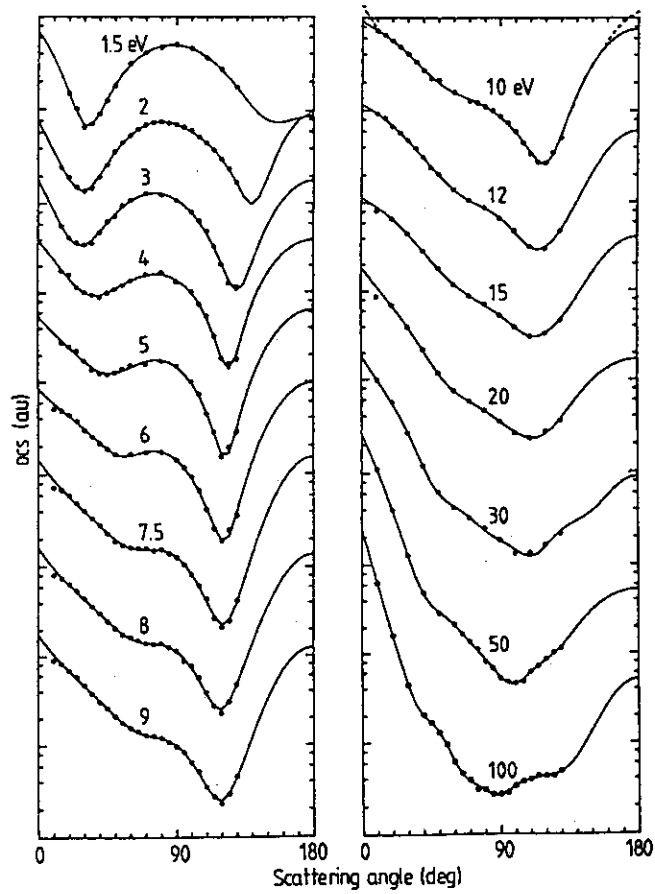


Fig.3 Elastic DCS for electron scattering from CH<sub>4</sub>.

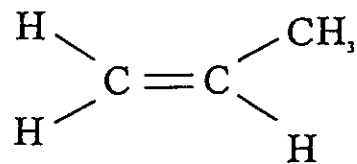
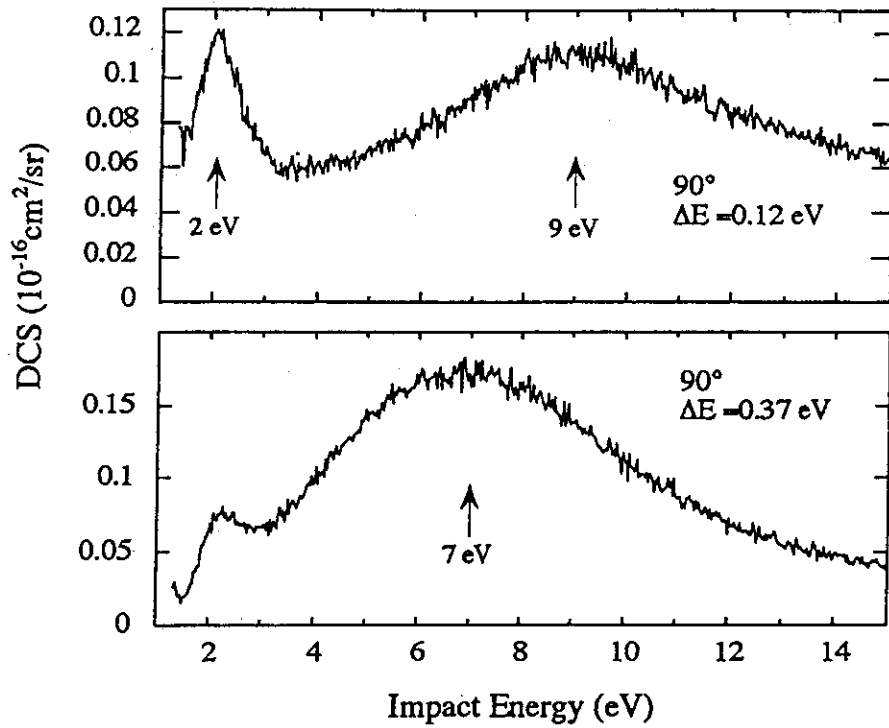


Fig.4 Excitation measurements of the two vibrational modes of C<sub>3</sub>H<sub>4</sub> (stretching and bending) as function of impact energy for 90° scattering.

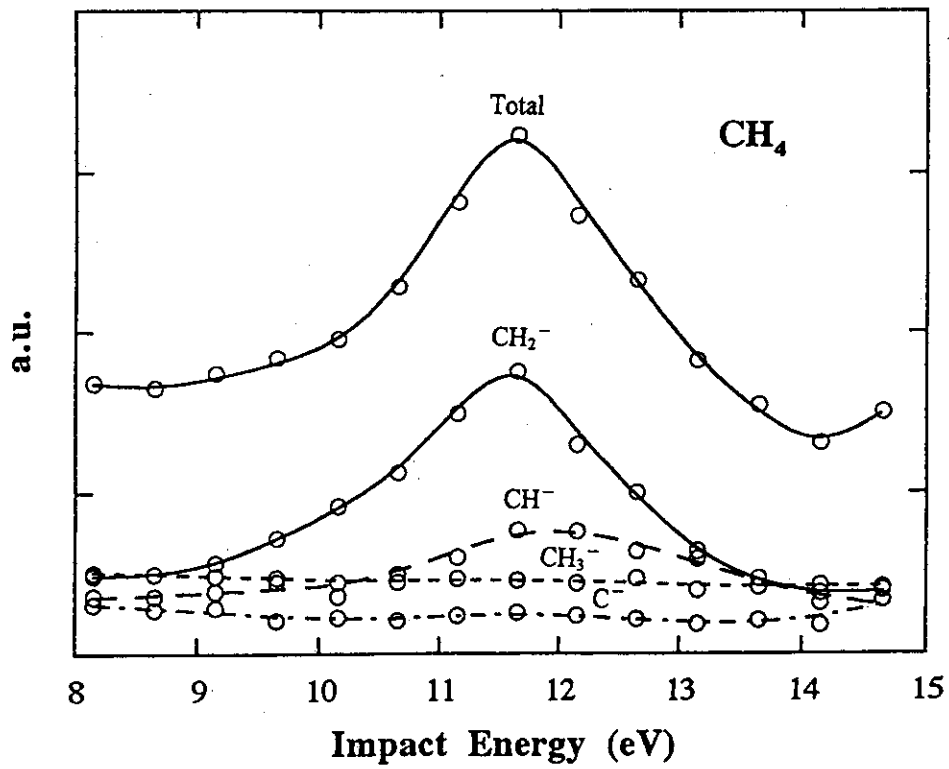


Fig.5  $\text{CH}_3^-$ ,  $\text{CH}_2^-$ ,  $\text{CH}^-$  and  $\text{C}^-$  production from  $\text{CH}_4$  by electron impact.

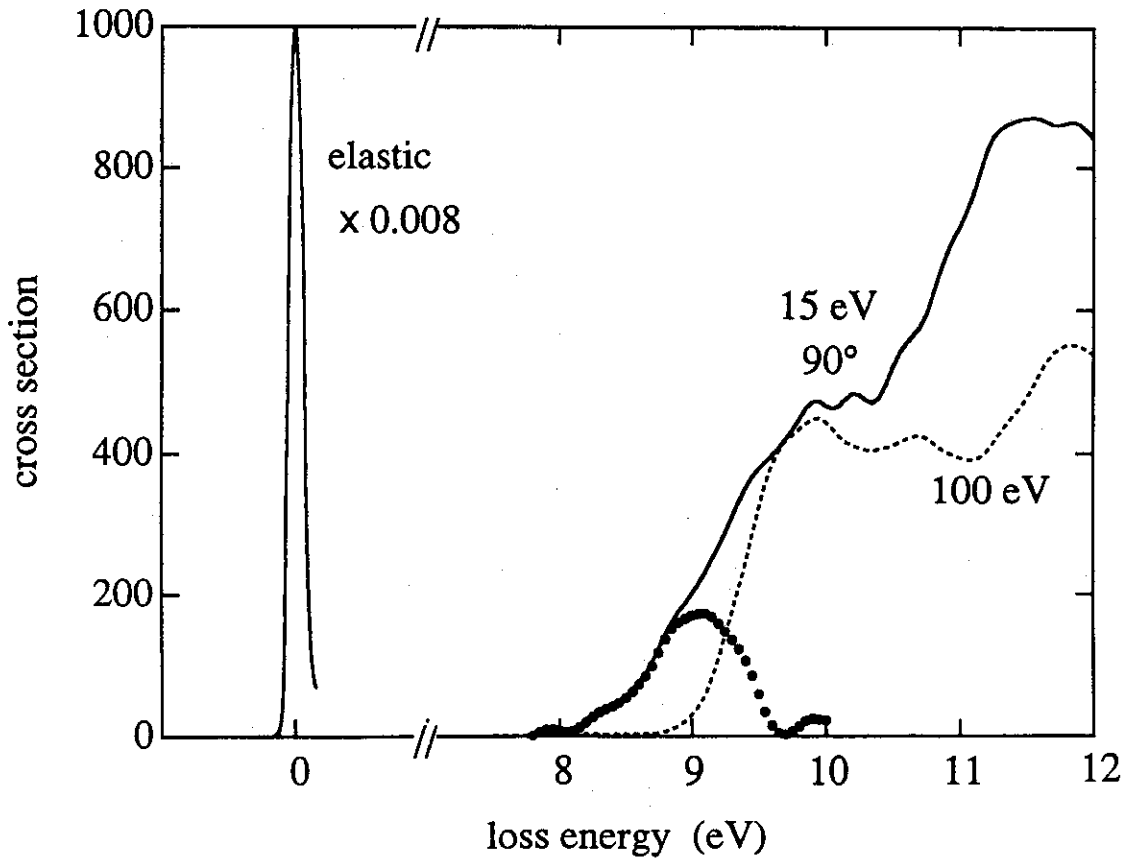


Fig.6 Triplet state excitation of  $\text{CH}_4$  by electron impact (solid dots).

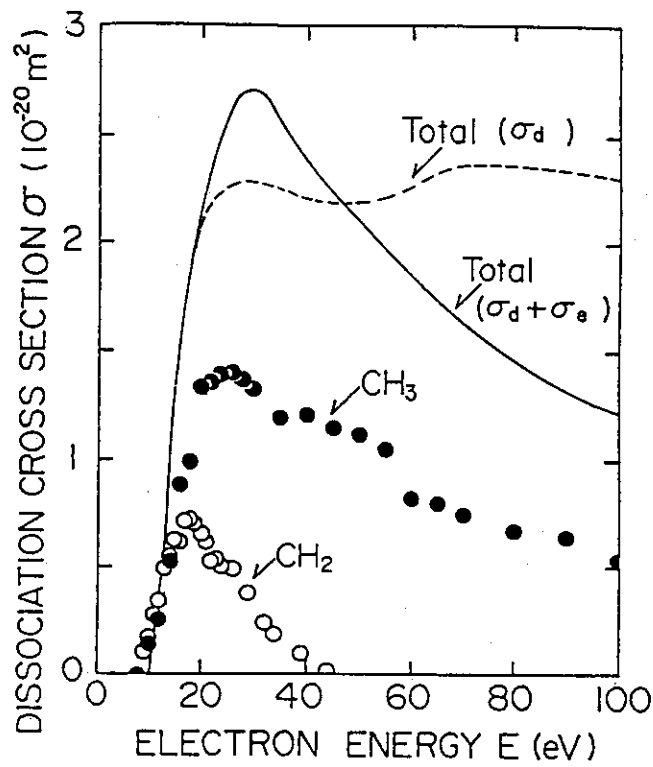


Fig. 7 Absolute partial cross sections for dissociation of  $\text{CH}_4$  by electron impact.

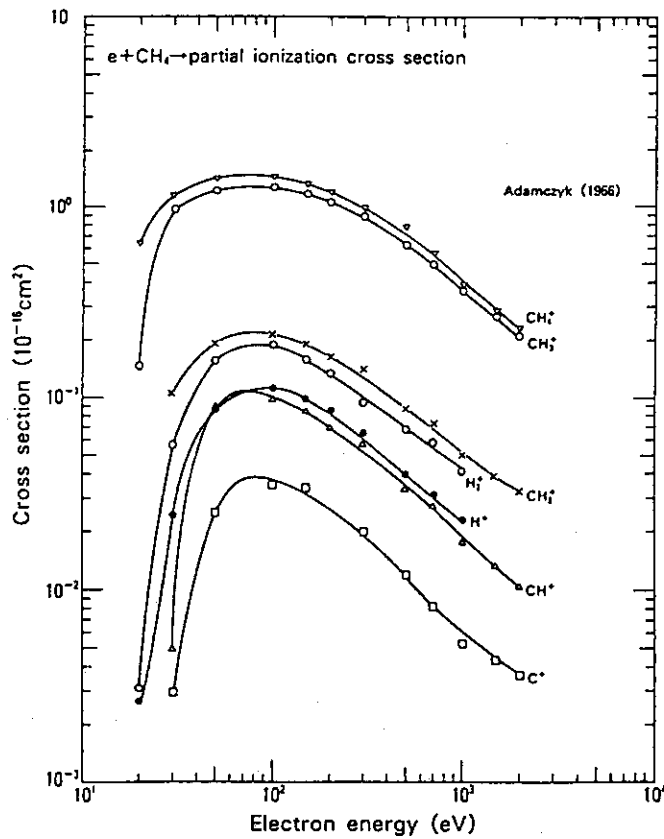


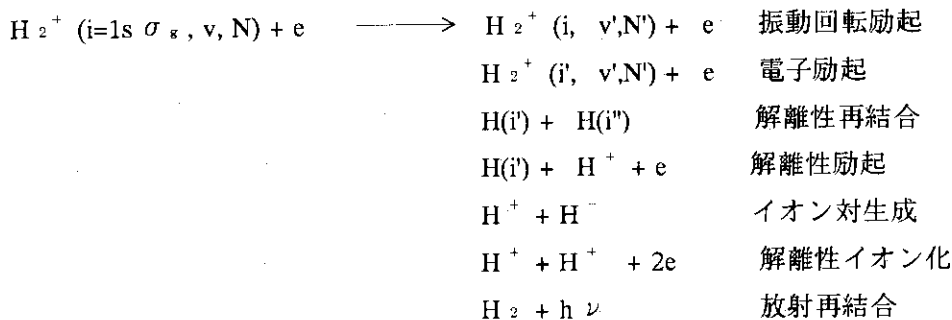
Fig. 8 Partial ionization cross section of  $\text{CH}_4$  by electron impact.

## 17. イオン分子と電子の衝突による解離および振動遷移過程

北里大学 医学部 高木秀一

## 1. はじめに

水素分子イオンと電子との衝突によって引き起こされる過程を考える。衝突の前に、分子イオンの電子状態  $i$  が基底状態 ( $1s \sigma_g$ ) にあり、振動状態が  $v$ 、回転状態が  $N$  にあったとすると、次に示す過程が起こり得る。



最後の放射再結合は水素分子の場合断面積が小さく無視できる。ほかの過程については1970年代からビーム実験による研究が続けられデータが蓄積している。しかし分子イオンの振動回転状態や解離原子の電子状態を特定して断面積を測定することは困難であった。1990年代になってビーム蓄積リングを使った実験が行われるようになり、初めて  $v=0$  の  $\text{HD}^+$ 、 $\text{HeH}^+$ 、 $\text{H}_3^+$ 、 $\text{CH}^+$  について、信頼できる解離性再結合の測定がなされた。その結果、従来のいろいろな振動状態が混じっていると思われる測定と食い違う結果が得られ、また数 eV 以上の高い衝突エネルギーで反応確率が一桁以上大きくなる領域があることもわかってきた。最近、解離原子の電子状態についても原子の運動エネルギーを測ることにより確実な情報が得られつつある。

しかし、ビーム蓄積リングによる実験も、現状では  $v=0$  以外の振動状態で行うことはできず、また断面積の絶対値を精度よく測ることもできない。特に  $\text{H}_2^+$  のように双極子モーメントを持たない分子イオンでは、従来の実験と同様  $v=0$  にそろえることはできない。そこで、これらの諸過程の原子データを収集するという意味でも、正確な理論計算が必要になる。もちろん理論的な研究は諸過程の特性や機構を解明する上でも重要である。

本報告では、10eV 以下の衝突エネルギーでの、解離性再結合、解離性励起、振動回転遷移に関する理論計算について報告する。このエネルギー領域では、電子励起と解離性イオン化は起きない。イオン対生成は近い将来の課題である。

## 2 理論計算の方法

### 2.1 低エネルギー領域・・・量子欠損理論

解離性再結合を中心にその理論の考え方を見てみよう。電子の分子イオンへの付着は、入射電子が分子イオンの電子を励起することによって起き、その二電子励起性共鳴状態が解離性であれば、電子の再離脱と競合しながら解離が起こる。すなわち、解離性再結合は一電子励起状態と二電子励起状態との間の配置関相互作用 (CI) で起こる。これは 1950 年に D. R. Bates により提唱された考えである。1970 年代になって、入射電子の付着が分子イオンの振動回転運動を励起することによっても起こることが指摘され、この機構で電子付着が起きたあと、先に述べた Bates の機構で解離が起きる可能性が提唱された。いわゆる間接過程である。振動回転のエネルギーは小さいので、最初に電子が付着するのは高い Rydberg 状態であると考えられた。この付着を引き起こすのは非断熱遷移 (NA) である。量子欠損理論は Rydberg 状態の解析的な表現を与える理論であるが、分子系に適用されると、非常に強い非断熱遷移を効率よく表現することができる。この二つは一見関係なさそうに見えるが、分子イオンに近い内部領域と遠い外部領域の (近似的) 固有状態間の frame 変換というアイデアから両方とも導かれる。この量子欠損理論を間接過程の電子付着に用いるため、A. Giusti は CI と NA を段階的に取り込む方法を提案した。まず CI による散乱問題を解いて散乱状態の固有状態を求め、それを展開基底として量子欠損理論を使って NA による散乱問題を解こうというものである。1990 年代になり我々はこの定式化を、回転運動を含むように拡張するとともに、CI による散乱問題を正確に解く方法を提案した。最近ビーム蓄積リングによる HD<sup>+</sup> の実験を解析した結果、これら 2 つの拡張は 1eV 以下では決定的な影響を与えることがわかった。

### 2.2 高エネルギーへの拡張

1eV より高い領域では、二電子励起状態の Rydberg 系列を扱う必要が生じる。しかもいろいろな対称性の系列が効く。これらを全て考慮しない限り、一桁以上も大きい解離確率の存在は説明できない。Rydberg 系列全体を扱うために二電子励起状態に対しても量子欠損理論を使う。多チャンネル量子欠損理論はもともと、M. J. Seaton らによって電子励起に対して確立されたものであるから、電子状態の記述は問題がない。原子核の相対運動は、二電子励起状態は解離性であるので、連続状態を扱わなくてはならない。そこで、この連続状態をエネルギーについて離散化した展開基底を用いて内部状態を記述する。一電子励起状態もエネルギーが上がると分子結合が切れて解離状態になる。これも同様に離散化して表現する。以上の拡張をしたうえ、外部領域の境界条件を課して、断面積を求める。以上の方法は、解離性再結合のほか、解離性励起の計算を可能にする。また、共鳴状態があると、ほとんどの振動励起が共鳴状態を経由して起こる。そのため、今回の計算は振動励起にたいしても高いエネルギーまで有効である。計算で考慮した状態は共鳴幅と非弾性散乱の断面積から重要と思われる次の 5 つの対称性を選んだ。 $^1\Sigma_g$ ,  $^1\Sigma_u$ ,  $^1\Pi_g$ ,  $^3\Pi_g$ ,  $^3\Pi_u$  である。なを高いエネルギーでは、回転運動は無視し、CI は一次摂動で扱った。

### 3. 結果

解離性再結合, 解離性励起, 振動回転励起について計算した. そのうちの解離性再結合と解離性励起の一例を図に示す. 当然であるが, 衝突エネルギーがあがるにつれ, 解離性励起が解離性再結合を凌駕する. 今回の計算では, 解離性再結合でどの Rydberg 状態に電子が捕まるかわかる. この Rydberg 状態がそのまま同じ主量子数の原子に解離すると仮定すると, 解離原子の量子数を見積もることができる. イオン対生成を考慮していないなど, この仮定には問題があるが, 大きな主量子数では妥当であると思われる. こうして求めた解離原子の主量子数  $n$  は数 eV 以上では,  $n=3,4,5$  など広い範囲に分布している. 振動状態が高くなるほど, 低いエネルギーで大きな  $n$  に分布する. 振動遷移については, 共鳴が関与する場合の特徴として, 振動量子数が 2 以上変化する過程もかなりの断面積で起こる. いずれの過程にも共通して, 衝突前の振動状態依存性が顕著である.

ビーム蓄積リングを始めとする実験結果により, 理論計算をチェックしながら, 実験では得られないデータを計算により蓄積して行くことが必要である.

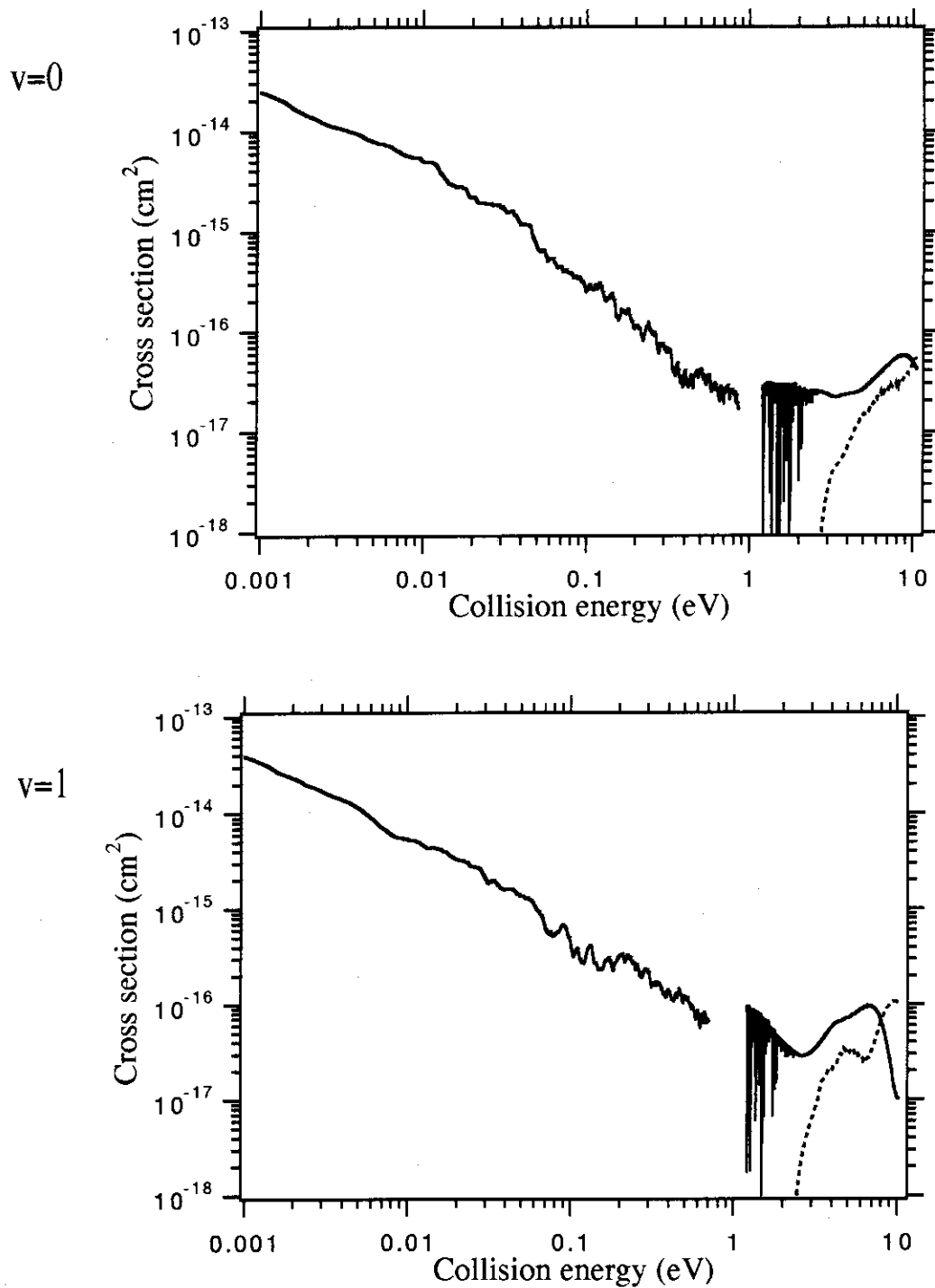


Figure. Dissociative processes in  $H_2^+(v) + e$ .

The solid line indicates dissociative recombination and dashed line does dissociative excitation.  $v$  denotes vibrational quantum number. In the lower part of the solid line, the cross section is convoluted by assuming a thermal distribution of 800K for the initial rotational state and 56K for transversal motion of electrons against the beam axis.

## 18. ガドリニウムおよびネオジムの電荷移行断面積の測定

日本原子力研究所

小倉浩一・柴田猛順

## 1. はじめに

電荷移行反応は断面積が大きいのでプラズマプロセスを利用する多くの分野でプラズマ中の重要な素過程である。同種原子・イオン間の対称電荷移行反応は衝突エネルギーが小さくても大きい反応断面積を持つので特に重要である。対称電荷移行衝突の断面積の測定値は、希ガス<sup>1,2)</sup>や原子蒸気をつくり易いアルカリ金属原子等に関するもの<sup>3)</sup>がほとんどであり、原子蒸気の作りにくい重金属原子に関する電荷移行断面積の報告はほとんどない。

阪部等<sup>4)</sup>は衝突エネルギー10~1000eVの領域で希土類元素のガドリニウムの電荷移行断面積を測定している。彼らの得た断面積の値は他の元素に比べて非常に大きく、衝突エネルギー300eV以下では衝突エネルギーに逆比例するものであった。彼らは希土類元素特有の現象であると述べている。

ところで、電荷移行反応は原子法レーザー同位体分離<sup>5)</sup>の重要な素過程の一つである。原子法レーザー同位体分離では原子ビーム中の目的同位体原子のみを選択的にイオン化し、これを電極に回収する。イオン化されていない非目的同位体原子と目的同位体イオンとが電荷移行を起こすと目的同位体イオンの損失が起り効率が低下する。電荷移行による損失を正しく評価するために、同種原子・イオン間の対称電荷移行反応の断面積の値が必要である。阪部等が指摘しているように希土類元素の電荷移行断面積が非常に大きいならば原子法レーザー同位体分離の効率は低いものになってしまう。

ここでは、希土類元素のガドリニウム<sup>6)</sup>とネオジムの電荷移行断面積を行った。レーザーイオン源で生成したイオンビームを用いて一価のイオンを生成し、電荷移行反応によって生成したイオンをコレクター電極で検出して電荷移行断面積を測定した。

## 2. 実験装置

Fig.1に実験装置の概略図を示す。実験装置は、原子ビーム発生部、イオン生成部、電荷移行反応部に大別される。Fig.2にイオン生成部と電荷移行反応部の平面図を示す。電子ビーム加熱蒸発で原子ビームを生成した。除去電極<sup>7)</sup>に負の電圧を印加して原子ビーム中の荷電粒子を取り除いた。原子ビームをイオン生成部と電荷移行反応部に入れた。電荷移行反応部での原子密度は蒸発面から385mm上部に置いた水晶振動子膜厚計で測定した蒸着速度と、別にラングミュアープローブと真空電磁式天秤で測定した原子ビーム速度<sup>8)</sup>から推定した。原子ビーム速度は蒸着速度に依存して600~900m/sである。水晶振動子膜厚計は高い蒸着速度ではすぐに飽和してしまうので高さ973mmにも水晶振動子膜厚計を置いて実験中蒸着速度をモニターした。高さ973mmの水晶振動子膜厚計での蒸着速度はあらかじめ高さ385mmのところの水晶振動子膜厚計の蒸着速

度で較正した。電荷移行反応部での原子密度は加熱用の電子ビームの入力に依存して  $0.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3} \sim 8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  である。

電極1、電極2間のイオン生成部の原子ビームにパルス色素レーザーを照射した。レーザー光によりガドリニウム原子およびネオジウム原子を次の二波長二段階共鳴イオン化でイオン化した<sup>9)</sup>。

$$0 \text{ cm}^{-1} \longrightarrow 26955 \text{ cm}^{-1} \longrightarrow \text{イオン化、(ガドリニウム)} \quad (1)$$

$$1128 \text{ cm}^{-1} \longrightarrow 23756 \text{ cm}^{-1} \longrightarrow \text{イオン化、(ネオジウム)} \quad (2)$$

レーザー光のパルス幅は10nsなので、生成したガドリニウムイオンは脱離した電子と共にパルスのプラズマを形成する。このプラズマの電位は電極1の電位 $V_1$ 、電極2の電位 $V_2$ の高い方の電位と等しくなる<sup>10,11)</sup>。ここでは、電極2に対し、電極1に正電位 $V_1$ を印加することにより電極1と電極2の電位差( $V_1 - V_2$ )に等しいエネルギーでイオンを電極2の4mm×8mmの穴を通して電荷移行反応部に入射させた。

反応部では入射イオンと原子が電荷移行を起こす。原子ビームは長さ25mm×20mmのスリットを通して電荷移行反応部に入射するが原子ビームは蒸発部を点源として広がるので反応部での形状は28mm×22mmとなる。反応部でのイオンビームの幅は原子ビームの幅22mmに比べずっと狭いので反応部に入射するすべてのイオンは原子ビームの内部を通過しコレクター電極1で検出される。

電荷移行反応部の周囲の電極2、電極3、コレクター電極1の入口等すべて同じ電位 $V_2$ を印加した。これに対し、コレクター電極2の入口のみは接地して、生成したイオンがコレクター電極2に入るようにした。電荷移行によって生じたイオンを全て検出できるようにコレクター電極2の入口は55mm×60mmと電荷移行反応領域に比べ十分大きくした。Fig.3に電荷移行反応部のポテンシャル分布を示す。

反応部に印加する電圧 $V_2$ を高くするとイオンビームが偏向されるためコレクター電極1に入射するイオンビーム量が減少してしまう。また、電圧 $V_2$ を低くするとコレクター電極2に生成イオンを回収するのに時間がかかり過ぎイオン電流パルスとして計測できなくなる。このため、用いた印加電圧 $V_2$ はコレクター電極1に入射するイオン量が減少しない範囲で、しかもコレクター電極2に入る生成イオン電流パルスが検出でき、検出した電荷量が印加電圧 $V_2$ を変えても変化しないような電圧に選んだ。その結果、 $V_2$ は入射イオンのエネルギー100~1000eVに対して+30~+100Vにした。

なお、コレクター電極1、2ともCu製の板である。コレクター電極の周囲はステンレス板で、その前面にだけ透過率80%のステンレス製のメッシュを張った。Cu製の板であるコレクター電極にイオンが衝突すると2次電子が放出される。従って、コレクター電極で検出されるイオン電流には2次電子による効果も含まれている。そこで、ガドリニウムイオンまたはネオジウムイオンをコレクター電極に衝突させて2次電子放出係数を別に測定した。ガドリニウムイオンまたはネオジウムイオン衝撃いずれの場合も2次電子放出係数について次のような関係が得られた<sup>12)</sup>。

$$\gamma = 4 \times 10^{-4} (E_i - 300) \quad E_i > 300 \quad (3)$$

$$\gamma = 0 \quad E_i > 300 \quad (4)$$

ここで、 $E_i$ はイオンのエネルギーで単位はeVである。実験ではコレクター電極1に入射するイオンビームのエネルギー $E_i$ は $e(V_I + 76)$  eVである。生成イオンの場合は $e(0.8V_I + 76)$  eVである。この因子0.8はFig.3の反応領域のポテンシャルから求めた。

### 3. 実験結果と考察

Fig.4に入射エネルギーが300eVのときの2つのコレクター電極に入射するガドリニウムイオンのイオン電流波形の例を示す。Fig.4の電流波形を積分して求めた電荷量には2次電子の効果が入っているので電荷移行断面積 $\sigma$ を次の式を用いて求めた。

$$\sigma = \frac{\frac{Q_{ex}}{(1 + \gamma_{ex})}}{\frac{Q_i}{(1 + \gamma_i)}} \cdot \frac{1}{n \cdot l} \quad (5)$$

ここで、 $Q_{ex}$ は生成イオン電流の積分値、 $Q_i$ は入射イオンビームの電流の積分値である。 $\gamma_{ex}$ および $\gamma_i$ はそれぞれ、コレクター電極2の2次電子放出係数、コレクター電極1の2次電子放出係数である。また、 $n$ は反応部での原子密度、 $l$ は反応領域の長さである。電荷移行反応部でのポテンシャルによる加速の効果を考慮してFig.5に実験で得られた電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を示す。また、阪部等による実験データもFig.5に示している。

ここで測定された断面積の値は阪部等によって測定された値よりも小さく、衝突エネルギーが300eV以下でも衝突エネルギーに逆比例していない。従って、ガドリニウムやネオジムのような遷移元素のレーザー同位体分離でも原子密度を高くした効率的な原子法レーザー同位体分離が可能である。また、ネオジムの断面積がガドリニウムの断面積の値より約2倍大きい。対称電荷移行断面積は通常その原子のイオン化ポテンシャルに反比例する。しかし、ガドリニウムとネオジムではイオン化ポテンシャルは10%しか違わない。これらの希土類原子は電子配置が $f^6s^2$ 、 $f^7ds^2$ 等で $s^2$ 電子の内側の $d$ 電子や $f$ 電子は閉殻でないので共鳴電荷移行反応だけではなく非共鳴電荷移行反応も同時に起こる。この効果を取り入れて断面積を計算するとガドリニウムとネオジムの違いを良く再現することができる<sup>13,14</sup>。希土類元素の対称電荷移行反応の機構とその断面積の計算については本プロシーディングスの後報で述べる<sup>15</sup>。

### 4. おわりに

希土類元素のガドリニウムとネオジムの電荷移行断面積の測定を行った。レーザーイオン源で生成したイオンビームを用いて一価のイオンを生成し、電荷移行反応によって生成したイオンをコレクター電極で検出して電荷移行断面積を測定した。衝突エネルギーが100~1000eVでガドリニウムの電荷移行断面積は約 $1.5 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ 、ネオジムの場合は約 $3 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ であった。測

定されたガドリニウムの電荷移行断面積の値は阪部等によって測定された値よりも小さく、衝突エネルギーが300eV以下でも衝突エネルギーに逆比例していない。従って、ガドリニウムのような遷移元素のレーザー同位体分離でも原子密度を高くした効率的な原子法レーザー同位体分離が可能である。また、ネオジムの断面積がガドリニウムの約2倍である理由を考える中で本プロシーディングスの後報で述べるように、希土類元素の電荷移行の反応機構を明らかにすることができた。

#### 参考文献

- 1) W.L.Fite, R.F.Stebbins, D.G.Hummer, and R.I.Brockmann: Phys. Rev. **119** (1960) 663.
- 2) N.Kobayashi and Y.Kaneko: J.Phys.Soc.Jpn. **34** (1973) 496.
- 3) J.Perel, H.L.Daley and F.J.Smith: Phys. Rev. **A1** (1970) 1626.
- 4) S.Sakabe, Y.Izawa, M.Hashida, S.Niki, and C.Yamanaka, Phys. Rev. **A45** (1992) 252.
- 5) P.T.Greenland: Contemporary Phys. **31** (1990) 405.
- 6) K.Ogura and T.Shibata, 質量分析(J.Mass Spectrom.Soc.Jpn.) **41** (1993) 37..
- 7) H.Ohba, A.Nishimura, K.Ogura, and T.Shibata, Rev.Sci.Instrum. **65** (1994) 957.
- 8) K.Ogura and T.Shibata, Rev.Sci.Instrum. **65** (1994) 3455.
- 9) 小倉浩一、有澤孝、柴田猛順: **JAERI-M 91-221** (1992).
- 10) K.Ogura, T.Arisawa, and T.Shibata, Jpn.J.Appl.Phys. **31** (1992) 1485.
- 11) K.Ogura and T.Shibata, Jpn.J.Appl.Phys. **33** (1994) L131.
- 12) 柴田猛順、小倉浩一: 真空 **37** (1994) 132.
- 13) 柴田猛順、小倉浩一: 日本原子力研究所研究報告書 **JAERI-Research 95-025** (1994).
- 14) T.Shibata and K.Ogura, J.Phys.Soc.Jpn. **64** (1995) ( to be published).
- 15) 柴田猛順: 本プロシーディングス (1995).

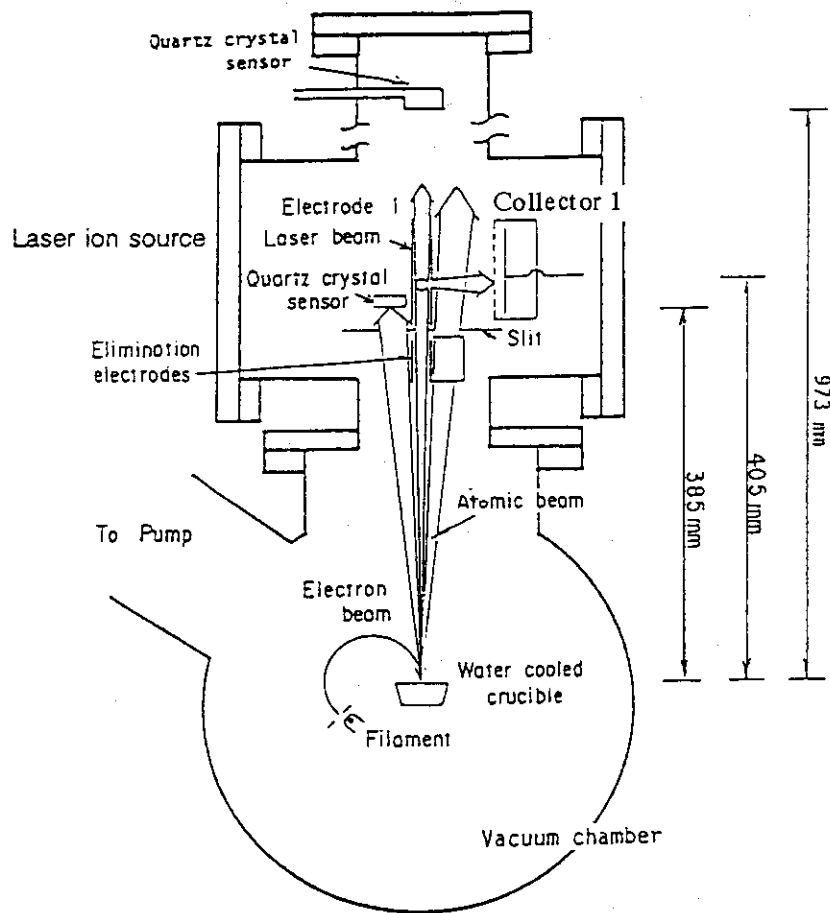


Fig.1. A schematic view of the experimental apparatus.

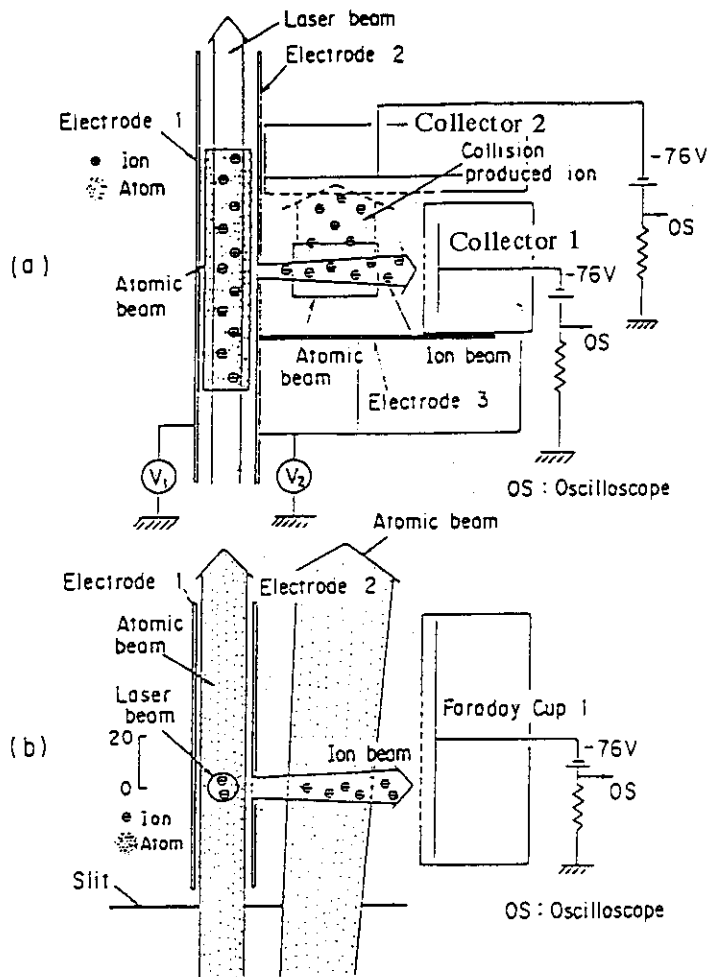


Fig.2. A detailed diagram of ion source region and collision region. (a) front view (b) vertical view.

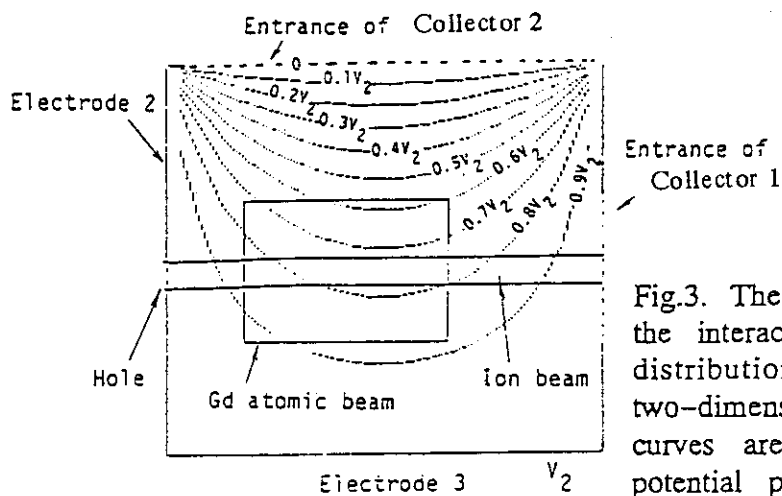


Fig.3. The distribution of the potential in the interaction region. The potential distribution was calculated using two-dimensional Laplace' equation. The curves are contour lines of constant potential plotted at every potential of  $0.1V_2$ , where  $V_2$  is the potential applied to the electrode 2.

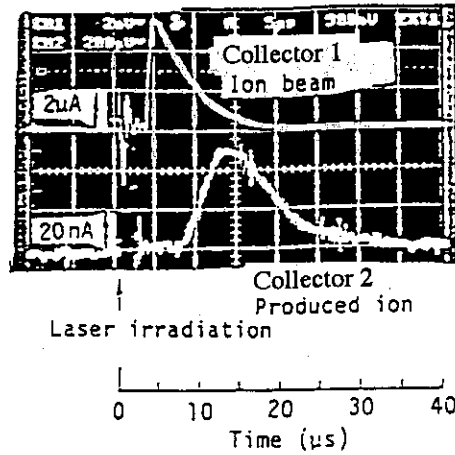


Fig.4. Typical oscillograms of the ion currents detected by the two collectors. Signal of primary beam ions and produced slow ions in the case of  $V_1=400$  V and  $V_2=100$ V. Atomic density at the collision region was  $4.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-3}$ .

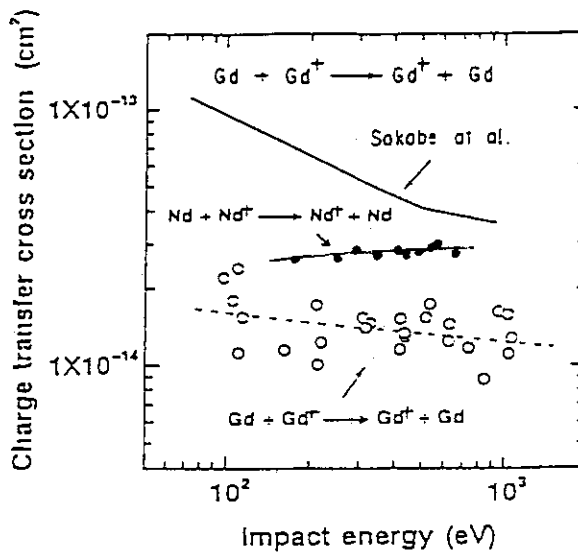


Fig.5. Cross section for symmetrical charge transfer on gadolinium and neodymium as a function of the impact energy. Closed circles and open circles indicate the cross section obtained in our experiments for gadolinium and neodymium, respectively. A solid curve indicate experimental data obtained by Sakabe *et al.*

## 19. ガドリニウムおよびネオジムの対称電荷移行断面積の計算

日本原子力研究所 柴田猛順・小倉浩一

## 1. はじめに

同種原子・イオン間の対称電荷移行反応は原子のエネルギーから運動エネルギーへの移動のない共鳴電荷移行反応で、その反応断面積 $\sigma$ は原子のイオン化ポテンシャルにほぼ反比例し、<sup>1) 2)</sup> エネルギー依存性は

$$\sigma = (c_1 - c_2 \log E)^2$$

である。ここで $E$ は衝突エネルギー、 $c_1$ 、 $c_2$ は定数である。ガドリニウム、ネオジムのイオン化ポテンシャルは6.15eV、5.52eVで約10%の違いしかない。ところが前報<sup>3)</sup>で述べたように100～1000eVの衝突エネルギー領域で測定したネオジムの断面積<sup>4)</sup>はガドリニウムの断面積<sup>5)</sup>の約2倍で、しかもエネルギー依存性も異なっていた。

当初、ガドリニウムとネオジムで断面積が大きく異なる理由が理解できなかったが、これらの遷移金属は $d^n s^2$ 、 $f^n s^2$ 、 $f^n d s^2$ 等の電子配置をもち、 $s^2$ 電子の内側の $d$ 電子や $f$ 電子は閉殻でないためであることに気付いた。遷移金属のイオンは $d^n s$ 、 $f^n s$ 、 $f^n d s$ でこれらの原子・イオン間の対称電荷移行反応では原子の2個の $s$ 電子のうちイオンの $s$ 電子とはスピンの反対方向の電子が移行する。Fig. 1 (a)には $f^4 s^2$ のネオジムの電荷移行反応を示す。 $s^2$ 電子の内側にある $f^4$ 電子が閉殻でなく $J=0$ でないため共鳴電荷移行反応とともに、 $\Delta E=0$ でなく原子のエネルギーから運動エネルギーへの移動のある非共鳴電荷移行反応も同時に起こる。衝突エネルギーが十分高い場合は、非共鳴経路も近共鳴となり反応が進行し二つのイオンの状態は統計重率に比例して生成する。しかし衝突エネルギーが低くなると共鳴電荷移行反応のみ進行し、断面積が小さくなる。これまで実験、理論ともよく研究されているアルカリ土類金属の対称電荷移行反応でもFig. 1 (b)のように原子の2個の $s$ 電子のうちイオンの $s$ 電子とはスピンの反対方向の電子が移行するが $s$ 電子の内側は希ガス様の閉殻で $J=0$ であるため移行電子のスピンの向きがどちらでも共鳴電荷移行となる。

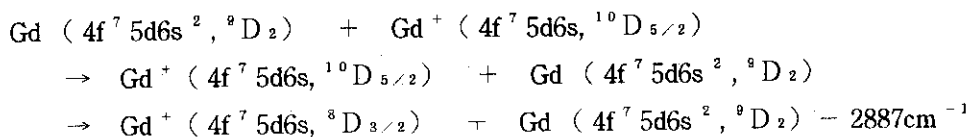
ここでは、ガドリニウム、ネオジムの例に閉殻でない $d$ または $f$ 殻の存在を考慮して電荷移行断面積を計算し、測定値と比較してみた。

## 2. 原子、イオンとも基底状態のときのガドリニウム、ネオジムの対称電荷移行断面積

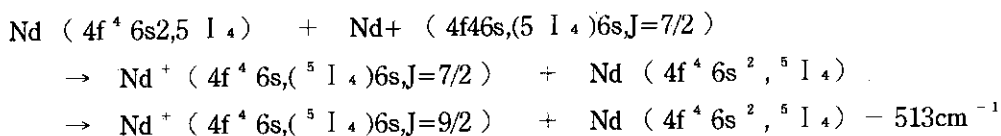
## (1) 可能な反応経路

基底状態のガドリニウム原子 ( $4f^7 5d6s^2, {}^9D_2$ ) と基底状態のガドリニウムイオン ( $4f^7 5d6s, {}^{10}D_{5/2}$ ) との反応で原子からイオンへ6 $s$ 電子が移行すると反応後の原子は基底状態になる。6 $s$ 電子が抜けてできるイオンは、残っている $s$ 電子のスピンの方向と $4f^7 5d$  ( ${}^9D_2$ ) 殻の角運動量の方角により基底状態の $Gd^+$  ( $4f^7 5d6s, {}^{10}D_{5/2}$ ) だけでなく励

起エネルギーが  $2887\text{cm}^{-1}$  の  $\text{Gd}^+ (4f^7 5d6s, {}^8D_{3/2})$  も生成する可能性があり、次の二つの反応経路がある。



基底状態のネオジウム原子 ( $4f^4 6s^2, {}^5I_4$ ) と基底状態のネオジウムイオン ( $4f^4 6s, ({}^5I_4)$   $6s, J=7/2$ ) との反応でも原子からイオンへ  $6s$  電子が移行すると次のように基底状態の  $\text{Nd}^+ (4f^4 6s, ({}^5I_4) 6s, J=7/2)$  だけでなく励起エネルギーが  $513\text{cm}^{-1}$  の  $\text{Nd}^+ (4f^4 6s, ({}^5I_4)$   $6s, J=9/2)$  も生成する可能性がある。



非共鳴の場合、反応のエネルギー差  $\Delta E$  は、 $f^4$  または  $f^7 d$  電子と  $s$  電子との結合で決まる。 $d$  電子は  $f$  電子と  $s$  電子の間に分布しているためガドリニウムの  $\Delta E$  は大きいのに対し、ネオジウムは  $d$  電子がないので  $\Delta E$  が小さい。 $\Delta E$  が小さいほど衝突エネルギーが低くても非共鳴電荷移行が近共鳴となり反応が進行する。ネオジウム原子の電荷移行の場合、非共鳴の  $\Delta E$  が小さいので非共鳴電荷移行も同時に進行するのでガドリニウムとネオジウムの実験結果の差を説明できる可能性がある。

## (2) 計算方法と結果

アルカリ土類金属のようにスピンの向きによらず共鳴電荷移行になる場合の断面積  $\sigma_{res}$  を計算した。このときガドリニウム、ネオジウムの  $6s$  電子のハートレー=フォック波動関数を用い、Bardsley 等<sup>6)</sup> や Smirnov 等<sup>7)</sup> により述べられている方法を用いた。次にエネルギー差が  $\Delta E$  の非共鳴電荷移行断面積  $\sigma_E$  を Olson<sup>8)</sup> の計算結果を用いて計算した。Fig.2 はネオジウムの  $6s$  電子の波動関数を用いたときの共鳴および非共鳴電荷移行断面積である。

最後に各反応経路の  $\sigma_{res}$  または  $\sigma_E$  にそれぞれの統計重率比  $f$  をかけて加え合せた。これを Fig. 3 に示す。ガドリニウムは非共鳴反応の  $\Delta E$  が大きく、衝突エネルギー  $5000\text{eV}$  以下では共鳴電荷移行のみしか進行しないのに対し、ネオジウムは非共鳴反応の  $\Delta E$  が小さいため数  $100\text{eV}$  以上の衝突エネルギーでも非共鳴電荷移行が進行する。このためネオジウムの電荷移行断面積は数  $100\text{eV}$  以上で大きく、エネルギー依存性も通常とは異なることがわかる。

## 3. ガドリニウム、ネオジウムの電荷移行断面積測定値との比較

測定に用いたイオンは 1 波長 2 段階共鳴イオン化で生成したが、このとき光イオン化断面積の大きくなる波長を用い、生成イオンの状態までは考慮しなかった。光励起経路から推定すると  $\text{Gd}^+$  は  ${}^8D_{3/2}$  ( $2857\text{cm}^{-1}$ ) または  ${}^8D_{5/2}$  ( $3082\text{cm}^{-1}$ )、 $\text{Nd}^+$  は  $({}^5I_5) 6s, J=11/2$  ( $1470\text{cm}^{-1}$ ) または  $({}^5I_5) 6s, J=9/2$  ( $1650\text{cm}^{-1}$ ) と考えられる。またイオンと衝突させた原子ビームも 5 準位の準安定準位が含まれる。光イオン化を用いて準安定準位分布を測定したところ、ほぼボルツマン分布に近くその原子励起温度はガドリニウムの場合、約  $500\text{K}$ <sup>9)</sup>、ネオジウムの場合、約

1400 K<sup>10)</sup>であった。イオンと原子のすべての衝突組合せの反応経路について基底準位同志の場合と同様に考えた。Table 1に Gd<sup>+</sup> (<sup>8</sup>D<sub>5/2</sub>) または Gd<sup>+</sup> (<sup>8</sup>D<sub>3/2</sub>) と Gd 原子との反応経路を示す。表 2 には Nd<sup>+</sup> (4f<sup>4</sup> (<sup>5</sup>I<sub>5</sub>) 6s, J = 9/2) または Nd<sup>+</sup> (4f<sup>4</sup> (<sup>5</sup>I<sub>5</sub>) 6s, J=11/2) とネオジウム原子との反応経路を示す。表中に数字を記入したところの反応経路が可能で数字の値は cm<sup>-1</sup> の単位で表した  $\Delta E$  である。

各反応組合せの断面積を基底準位の原子と基底準位のイオンの場合と同様に計算し、各断面積と各反応経路をとる確率との積を加えて電荷移行有効断面積を求めた。これを Fig. 4 に示す。ガドリニウムの場合、主要な反応経路が  $\Delta E$  が 0cm<sup>-1</sup> か数 10cm<sup>-1</sup> で非常に小さいか、または  $\Delta E$  が 1000cm<sup>-1</sup> より大きいかのどちらかである。100 ~ 1000eV の衝突エネルギー領域では  $\Delta E$  が 1000cm<sup>-1</sup> より大きいときは電荷移行断面積に寄与しない。電荷移行断面積に寄与するのは  $\Delta E = 0\text{cm}^{-1}$  の共鳴電荷移行かほとんど共鳴電荷移行断面積に等しくなる  $\Delta E$  が数 10cm<sup>-1</sup> の場合である。このためガドリニウムの電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性は共鳴電荷移行の場合と同様である。これに対しネオジウムでは共鳴電荷移行だけでなく主要な反応過程として  $\Delta E$  が 100 ~ 500 cm<sup>-1</sup> の場合が多い。その結果電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性が共鳴電荷移行の場合とは異なってくる。またネオジウムでは各反応組合せについて 2 反応経路とも 100eV 以上では反応が進行するので電荷移行断面積がガドリニウムより大きくなっている。

測定値と比較するとガドリニウム、ネオジウムとも絶対値は約 1.5 倍測定値のほうが大きい、断面積のエネルギー依存性、ガドリニウムとネオジウムの差は計算値と測定値が良く一致している。この一致は閉殻ではない f 電子や d 電子の影響を取入れた電荷移行断面積の計算が妥当なものであることを示していると思われる。なお文献 (11)(12) は計算の詳細を述べている。

#### 4. おわりに

ガドリニウム、ネオジウムの対称電荷移行では閉殻でない d または f 殻が存在するため共鳴電荷移行だけでなく、非共鳴電荷移行も同時に進行することをはじめ指摘し、これを考慮して電荷移行断面積を計算した。計算結果は測定値とほぼ一致し、衝突エネルギーが 100 ~ 1000 eV で、ガドリニウムでは、共鳴電荷移行しか進行しないのに対し、ネオジウムでは非共鳴の反応経路も近共鳴となり進行するため、ネオジウムの断面積はガドリニウムの断面積より大きく、エネルギー依存性も異なることがわかった。

ガドリニウムやネオジウムだけでなく、d<sup>n</sup>s<sup>2</sup>、f<sup>n</sup>s<sup>2</sup>、f<sup>n</sup>d s<sup>2</sup>等の電子配置をもち s<sup>2</sup>電子の内側の d 電子や f 電子が閉殻でない多くの遷移金属原子・イオン間の対称電荷移行断面積をここで行った計算と同様に行なうことができ、原子法レーザー同位体分離など応用上も非常に有益と考えられる。

#### 参考文献

- (1) D. Rapp and W.E. Francis, J. Chem. Phys. 37 (1962) 2631.
- (2) 高柳和夫、「電子・原子・分子の衝突」(培風館、1972、東京)。
- (3) 小倉浩一、柴田猛順、本プロシーディングス

- (4) K. Ogura and T. Shibata, Atomic Collision Research in Japan 19 (1993) 34.
- (5) K. Ogura and T. Shibata, 質量分析 ( J. Mass Spectrom. Soc. Jpn. ) 41 (1993) 37.
- (6) J.N. Bardsley, T. Holstein, B.R. Junker, and S. Sinha, Phys. Rev. A11 (1975) 1911.
- (7) B.M. Smirnov, Soviet Phys. JETP 19 (1964) 692.
- (8) R.E. Olson, Phys. Rev. A6 (1972) 1822.
- (9) K. Ogura and T. Shibata, J. Phys. Soc. Jpn. 63 (1994) 834.
- (10) K. Ogura and T. Shibata, Atomic Collision Research in Japan 18 (1992) 77.
- (11) 柴田猛順、小倉浩一、日本原子力研究所研究報告書 JAERI-Research 94-025 (1994).
- (12) T. Shibata and K. Ogura, J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 3136.

Table 1 Reaction paths and endo- or exo-thermicity  $\Delta E$  for all possible reaction pairs of atomic states and ionic states under the experimental conditions during measurements of charge transfer cross section of Gd. The unit of  $\Delta E$  is  $\text{cm}^{-1}$ .

products reactants		Gd( $^9D_{2,0}$ ) + Gd $^+$									
		Gd $^+$ ( $^1D_J$ )					Gd $^+$ ( $^3D_J$ )				
		J=5/2	7/2	9/2	11/2	13/2	J=3/2	5/2	7/2	9/2	11/2
		0	262	633	1159	1935	2857	3082	3428	3972	4841
Gd $^+$ + Gd ( $^3D_{3/2}$ ) ( $^3D_J$ ) (2857) J=2 (0)		+2857	x	x	x	x	0	x	x	x	x
J=3 (215)		x +2810		x	x	x	x	-10	x	x	x
J=4 (533)		x	x +2757		x	x	x	x	-38	x	x
J=5 (999)		x	x	x +2697		x	x	x	x	-116	x
J=6 (1719)		x	x	x	x +2641		x	x	x	x	-265
products reactants		Gd( $^9D_{3,215}$ ) + Gd $^+$									
		Gd $^+$ ( $^1D_J$ )					Gd $^+$ ( $^3D_J$ )				
		J=5/2	7/2	9/2	11/2	13/2	J=3/2	5/2	7/2	9/2	11/2
		0	262	633	1159	1935	2857	3082	3428	3972	4841
Gd $^+$ + Gd ( $^3D_{5/2}$ ) ( $^3D_J$ ) (3082) J=2 (0)		+2867	x	x	x	x	10	x	x	x	x
J=3 (215)		x +2820		x	x	x	x	0	x	x	x
J=4 (533)		x	x +2767		x	x	x	x	-28	x	x
J=5 (999)		x	x	x +2707		x	x	x	x	-106	x
J=6 (1719)		x	x	x	x +2651		x	x	x	x	-255

Table 2 Reaction paths and endo- or exo-thermicity  $\Delta E$  for all possible reaction pairs of atomic states and ionic states under the experimental conditions during measurements of charge transfer cross section of Nd. The unit of  $\Delta E$  is  $\text{cm}^{-1}$ .

products reactants		Nd( $^5 I_5, 1128$ ) + Nd*( $(^5 L_J) 6s$ )									
		Nd*( $^5 I_4$ )6s		Nd*( $^5 I_5$ )6		Nd*( $^5 I_6$ )6s		Nd*( $^5 I_7$ )6s		Nd*( $^5 I_8$ )6s	
		J=7/2 0	9/2 513	9/2 1650	11/2 1470	11/2 3067	13/2 2585	13/2 4512	15/2 3801	15/2 5985	17/2 5085
Nd* + Nd											
( $^5 I_5$ )6s	( $^5 I_J$ )										
J=11/2	J=4	+342	-171	x	x	x	x	x	x	x	x
(1470)	(0)										
	J=5	x	x	+180	0	x	x	x	x	x	x
	(1128)										
	J=6	x	x	x	x	-318	+124	x	x	x	x
	(2367)										
	J=7	x	x	x	x	x	x	-488	+223	x	x
	(3682)										
	J=8	x	x	x	x	x	x	x	x	-594	+306
	(5049)										

products reactants		Nd( $^5 I_5, 1128$ ) + Nd*( $(^5 L_J) 6s$ )									
		Nd*( $^5 I_4$ )6s		Nd*( $^5 I_5$ )6		Nd*( $^5 I_6$ )6s		Nd*( $^5 I_7$ )6s		Nd*( $^5 I_8$ )6s	
		J=7/2 0	9/2 513	9/2 1650	11/2 1470	11/2 3067	13/2 2585	13/2 4512	15/2 3801	15/2 5985	17/2 5085
Nd* + Nd											
( $^5 I_5$ )6s	( $^5 I_J$ )										
J=9/2	J=4	+522	+9	x	x	x	x	x	x	x	x
(1650)	(0)										
	J=5	x	x	0	+180	x	x	x	x	x	x
	(1128)										
	J=6	x	x	x	x	-138	+304	x	x	x	x
	(2367)										
	J=7	x	x	x	x	x	x	-308	+403	x	x
	(3682)										
	J=8	x	x	x	x	x	x	x	x	-314	+486
	(5049)										

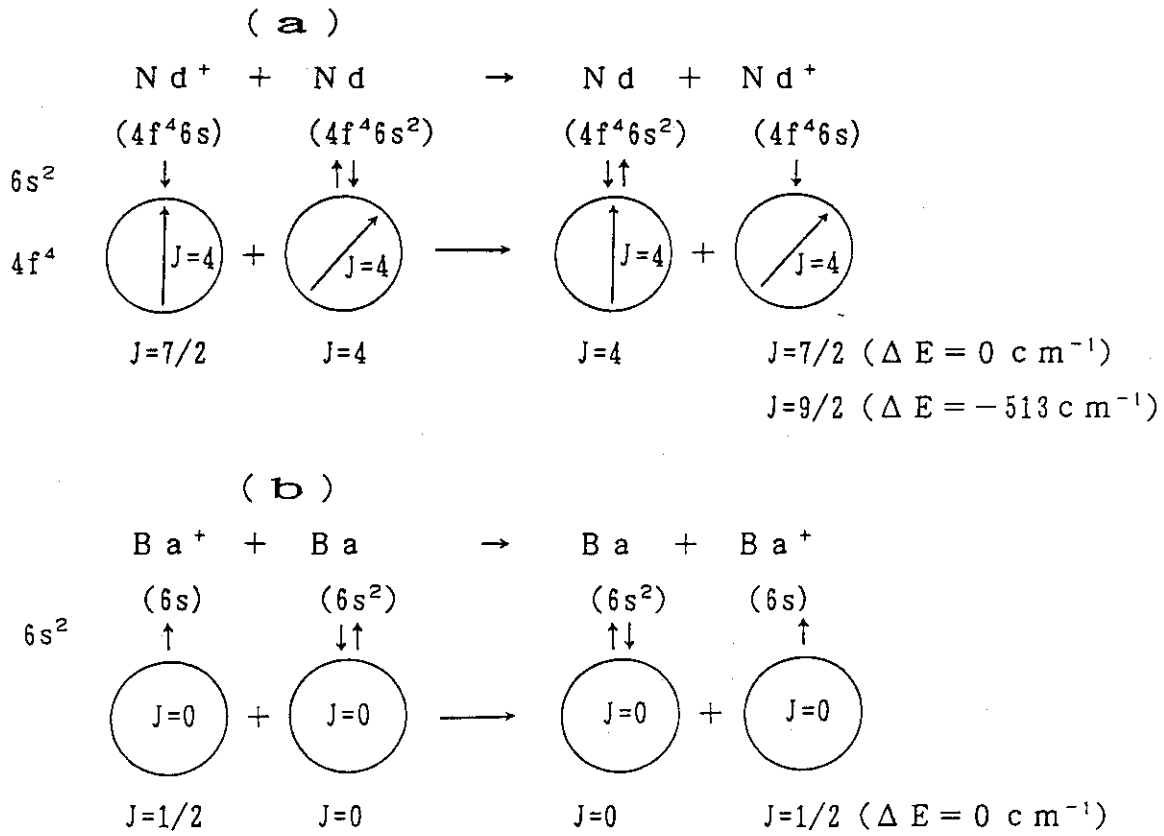


Fig. 1 (a) Conceptual view of charge transfer reaction of Nd<sup>+</sup>+Nd  
 (b) Conceptual view of charge transfer reaction of Ba<sup>+</sup>+Ba

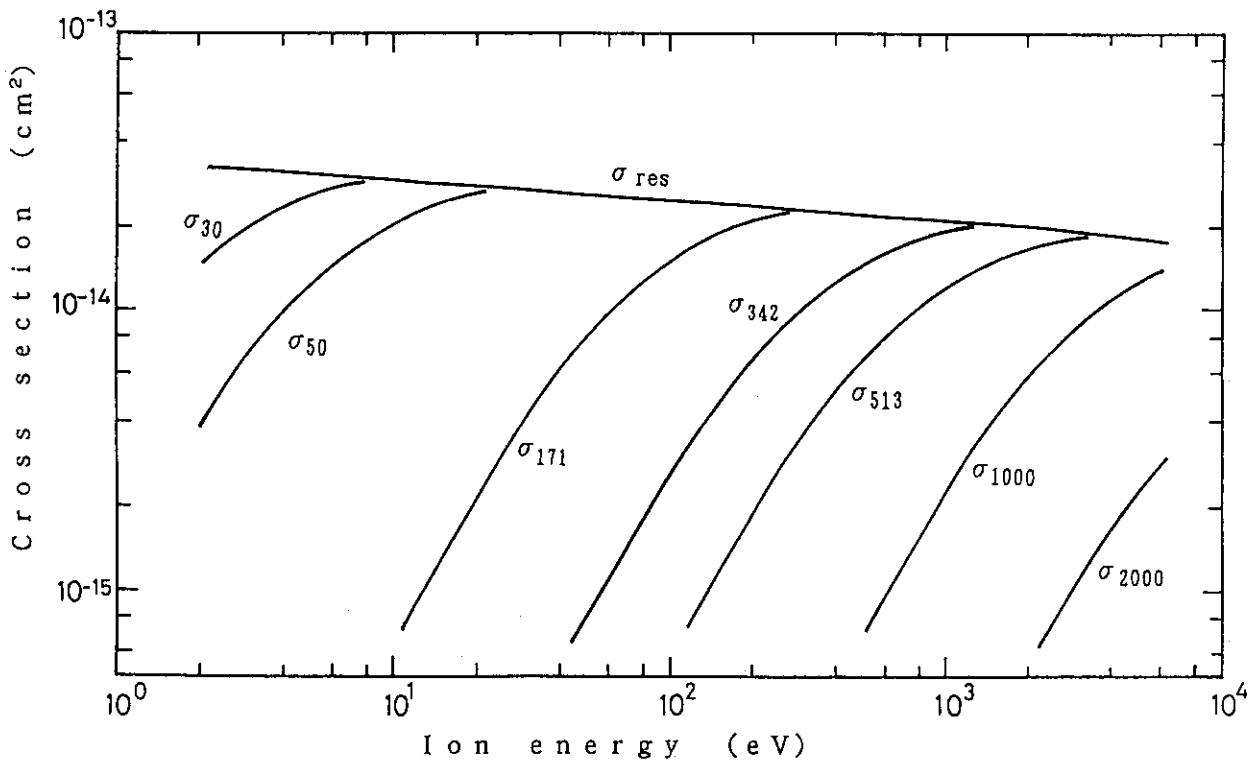


Fig. 2 Calculated  $\sigma_{res}$  and  $\sigma_E$  for Nd<sup>+</sup>+Nd. The unit of  $\Delta E$  is cm<sup>-1</sup>.

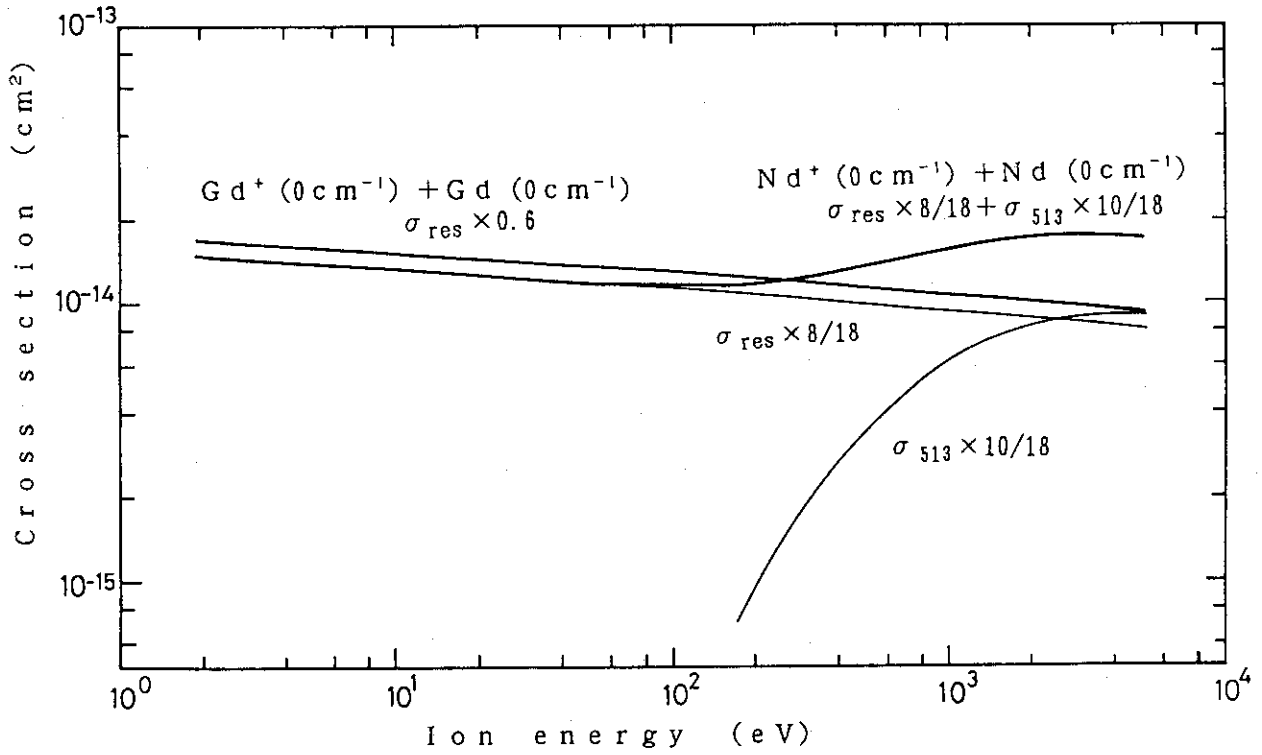


Fig. 3 Calculated cross sections for symmetric charge transfer between ground state atoms and ground state ions of gadolinium and neodymium.

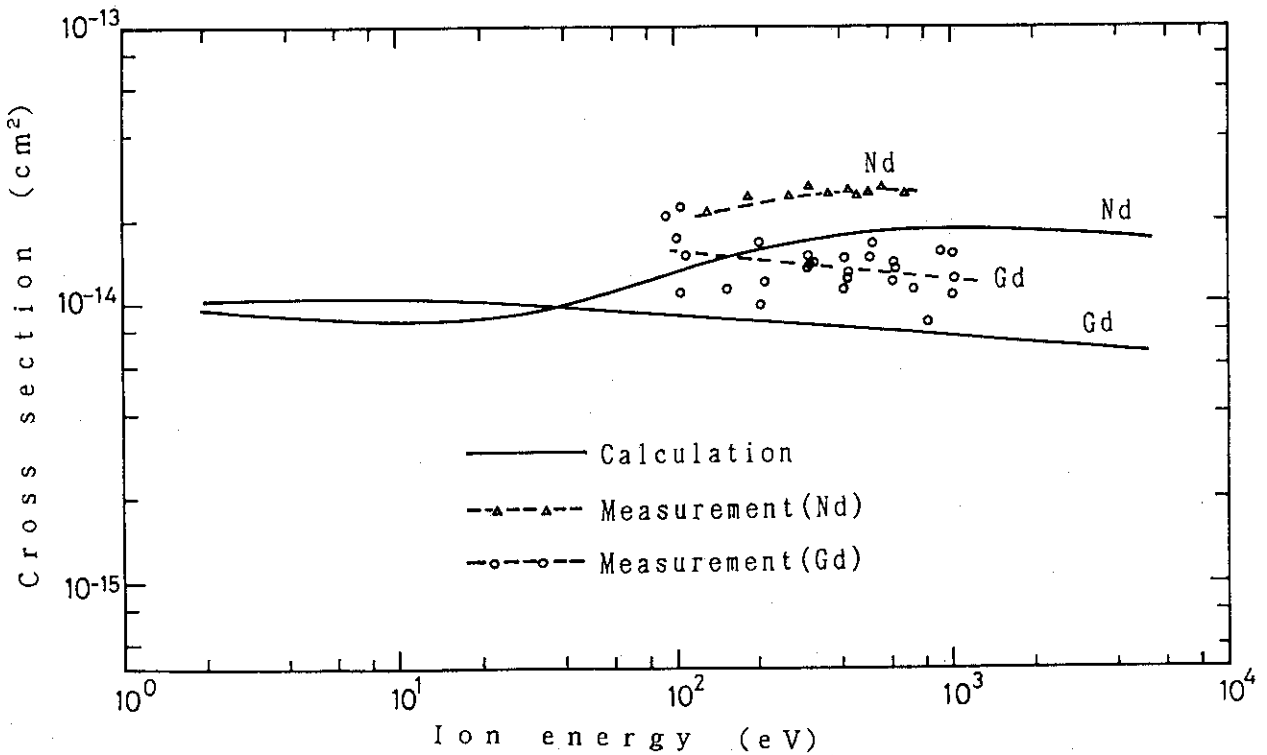


Fig. 4 Calculated effective cross sections of symmetric charge transfer for gadolinium and neodymium where all possible reaction pairs under the experimental conditions are considered. Measured values by Ogura and Shibata are also shown.

## 20. 核融合のための原子分子データ活動

日本原子力研究所 白井稔三

### 1. 序論

核融合プラズマの巨視的現象が理解され制御されるにつれ、プラズマ中での原子分子過程が関与する微視的レベルでの現象を理解し、制御する必要があることがわかってきた。国際熱核融合実験炉 (ITER: International Thermonuclear Experimental Reactor) 等の次期核融合炉の研究開発に資するため、現在 IAEA を中心に 7 カ国 14 のデータセンターが評価済原子分子データライブラリ ALADDIN を分担整備している。核データセンターでは、原子分子データ研究委員会の協力と日米協力により JEAMDL の整備を行っている。

### 2. ALADDIN について

プラズマモデラーである Hulse (PPPL) が考案したデータベースシステムであり、1989年に IAEA 及びデータセンターネットワークがデータセンター間のデータ交換用に採用した。データベースの検索はキーワード形式で行うことが可能で、評価済データの数値表を出力できる。データベース作成に際して物理的モデルを用いてデータの内外挿が可能な場合には、評価済データのパラメータ化が行われている。

#### 2-1 ALADDIN の内容

##### 電子衝撃による励起・電離断面積

- K.L. Bell et al., J. Phys. Chem. Ref. Data 12, 891 (1983).
- Y. Itikawa et al., At. Data Nucl. Data Tables 33, 149 (1985).
- C. Bottcher et al., Nucl. Fusion Special Supplement, (1987).
- R.A. Phaneuf et al. (Editors), "Collisions of Carbon and Oxygen Ions with Electrons, H, H<sub>2</sub> and He", ORNL-6090/V5 (1987).
- R.K. Janev et al., "Elementary Processes in Hydrogen-Helium Plasmas", (Springer-verlag, Heidelberg, 1987).
- M.A. Lennon et al., J. Phys. Chem. Ref. Data 17, 1285 (1988).
- T. Kato and S. Nakazaki, At. Data Nucl. Data Tables 42, 313 (1989).
- M.J. Higgins et al., "Atomic and Molecular Data for Fusion, Part III. Recommended Cross Sections and Rates for Electron Ionization of Atoms and Ions: Copper to Uranium", CLM-R249 (1989).
- R.K. Janev et al., "Atomic Collision Database for Li Beam Interaction with Fusion Plasmas", IAEA-INDC(NDS)-267 (1993).

- R.K. Janev and J.J. Smith, Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion (Supplement to the Journal Nuclear Fusion), 4, (1993).

H、H<sub>2</sub>、He、Li 原子・イオンと原子・分子の衝突素過程断面積

- R.A. Phaneuf et al.(Editors), "Collisions of Carbon and Oxygen Ions with Electrons, H, H<sub>2</sub> and He", ORNL-6090/V5 (1987).
- R.K. Janev et al., "Elementary Processes in Hydrogen-Helium Plasmas", (Springer-verlag, Heidelberg, 1987).
- C.F. Barnett(Editor), "Collisions of H, H<sub>2</sub>, He and Li Atoms and Ions with Atoms and Molecules", ORNL-6086/V1 (1990).
- R.K. Janev and J.J. Smith, Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion (Supplement to the Journal Nuclear Fusion), 4, (1993).
- R.K. Janev et al., "Atomic Collision Database for Li Beam Interaction with Fusion Plasmas", IAEA-INDC(NDS)-267 (1993).
- P.B. Armentrout et al., "Particle Interchange Reactions Involving Plasma Impurity Ions and H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> and HD", IAEA-INDC(NDS)-310.

3. JEAMDLについて

ALADDINと同様に JEAMDLでも評価済データの解析的経験式によるパラメータ化を行っている。高電離不純物イオンによる原子・分子の電子捕獲や電離断面積の評価では、電荷に関するスケールリング則を適用し統一的な解析的経験式を作成した。これらのデータは全て ALADDIN形式でデータベース化されている。

3-1 JEAMDLの内容

H、H<sub>2</sub>、He、Li との衝突系で以下の反応過程の評価済データが格納されている。

反 応 種	反応過程と [参考文献]
H、H <sub>2</sub> 、He、Li	電子捕獲、状態指定電子捕獲 [1] 励起及びスペクトル放出 [2] 電離、荷電粒子生成、電子損失、電子剥離 [3]
不純物多価イオン	電子捕獲 [4]、電離 [5]
C <sup>6+</sup> 、O <sup>8+</sup>	状態指定電子捕獲 [6]
H <sub>2</sub> O、CO、CO <sub>2</sub> 、C <sub>m</sub> H <sub>n</sub>	電荷変化(電子捕獲) [7]
Ne、Ar、Kr	電荷変化 [7]
金属蒸気	電荷変化 [8]

## 4. 今後の課題

評価済データとは「利用できる実験値 and/or 理論値を比較検討し、データ評価者が信頼できると判断したデータ」である。したがって評価済データは、データの蓄積とともに改訂されるのが自然である。参考文献 [1-3] は、ORNL-6086/V1(1990)の推奨データに対する解析的経験式を作成したデータ集である。このなかで広いエネルギー領域で測定データが存在する衝突過程はごく限られているため、1986年以降の実験・理論データとの比較を行い経験式を改訂する事を計画している。またスケールリング則を見出すためには断面積の低（閾値近傍）および高エネルギー極限での解析的表式を導く必要がある。ITER等の高温高密度プラズマでは、電子的、振動回転的に励起した原子・イオン・分子が関与する衝突素過程が重要な役割を演じると思われるが、関連するデータを調べた限りでは皆無の状態といっても過言ではない。今後この方面のデータ生産を積極的に促進する必要がある。

## 5. 参考文献

- [1] R. Ito, T. Tabata, T. Shirai and R. A. Phaneuf, "Analytic Cross Sections for Collisions of H, H<sub>2</sub>, He, and Li Atoms and Ions with Atoms and Molecules. I", JAERI-M 93-117.
- [2] R. Ito, T. Tabata, T. Shirai and R. A. Phaneuf, "Analytic Cross Sections for Collisions of H, H<sub>2</sub>, He, and Li Atoms and Ions with Atoms and Molecules. II", JAERI-Data/Code 94-005.
- [3] R. Ito, T. Tabata, T. Shirai and R. A. Phaneuf, "Analytic Cross Sections for Collisions of H, H<sub>2</sub>, He, and Li Atoms and Ions with Atoms and Molecules. III", JAERI-Data/Code 95-005.
- [4] Y. Nakai, T. Shirai, T. Tabata and R. Ito, Phys. Scr. T28, 77 (1989).
- [5] T. Tabata, R. Ito, T. Shirai, Y. Nakai, H. T. Hunter and R. A. Phaneuf, Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion (Supplement to the Journal Nuclear Fusion), 2, 91 (1992).
- [6] R. K. Janev, R. A. Phaneuf, H. Tawara and T. Shirai, At. Data Nucl. Data Tables 55, 201 (1993).
- [7] Y. Nakai, T. Shirai, T. Tabata and R. Ito, At. Data Nucl. Data Tables 37, 69 (1987).
- [8] T. Tabata, R. Ito, Y. Nakai, T. Shirai, M. Sataka and T. Sugiura, Nucl. Instr. Meth. B31, 375 (1988).