

JAERI-M  
93-202

低エネルギー炭素イオンと炭素含有分子  
との電荷変換衝突断面積  
(委託研究)

1993年10月

濱本 成顯\*・田中 隆次\*・伊藤 秋男\*・今西 信嗣\*  
斎藤 学\*\*・春山 洋一\*\*・白井 稔三

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、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、お申しこしください。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）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are 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, 1993

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日立高速印刷株式会社

## 低エネルギー炭素イオンと炭素含有分子との電荷変換衝突断面積

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

濱本 成顯\*・田中 隆次\*・伊藤 秋男\*・今西 信嗣\*

斎藤 学\*\*・春山 洋一\*\*・白井 稔三

(1993年9月10日受理)

Cイオンと分子ターゲット CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>の組み合せにつき 0.5~5KeV/amu のエネルギー領域で一から三電子捕獲までの断面積を測定した。断面積の測定誤差は約9~20 %である。得られた断面積は入射エネルギーにほとんど依存しないが、入射電荷ならびにターゲットの電離電圧には依存する；分子ターゲットの場合は多電子捕獲の寄与が大きい、等のことが分かった。一電子捕獲過程の結果については、理論モデルと比較して議論した。

---

本報告書は京都大学との委託研究の成果の一部をまとめたものである。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

\* 京都大学

\*\* 京都府立大学

Charge-changing Collision Cross Sections of Low-energy  
Carbon Ions with Carbon Containing Molecules

Nariaki HAMAMOTO<sup>\*</sup>, Takashi TANAKA<sup>\*</sup>, Akio ITOH<sup>\*</sup>  
Nobutsugu IMANISHI<sup>\*</sup>, Manabu SAITO<sup>\*\*</sup>, Yoichi HARUYAMA<sup>\*\*</sup>  
and Toshizo SHIRAI

Department of Reactor Engineering  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 10, 1993)

Cross sections of single-, double-, and three-electron capture collisions have been measured for the carbon ions passing through the CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, and C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> gas targets at energies between 0.5 and 5 keV/amu. Errors of the obtained cross sections are estimated to be 9 to 20 percents. The cross sections hardly depend on incident energy in the present energy region, but depend on charge of the incident particles and ionization potential of the target molecules. Multiple-electron transfer processes are predominant in these complex molecules. The results of single-electron capture process are discussed in a comparison with theoretical models.

Keywords : Cross Sections, Charge Exchange, Electron Capture, Carbon Ions,  
CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>

---

This work was prepared as an account of work supported partly by research contract of JAERI with Kyoto University.

\* Kyoto University

\*\* Kyoto Prefectural University

## 目 次

1. 序論.....	1
1.1 はじめに.....	1
1.2 測定したイオンターゲット系.....	1
2. 実験装置および測定.....	3
2.1 実験の概要.....	3
2.2 イオン源.....	3
2.3 加速部および収束部.....	5
2.4 ウィーンフィルター.....	5
2.5 中性粒子抑止板.....	5
2.6 ガスセルおよびガス圧の測定.....	6
2.7 静電偏向器.....	6
2.8 検出系.....	6
2.9 断面積の決定.....	7
3. 結果.....	15
3.1 断面積の測定結果.....	15
3.2 一電子捕獲断面積.....	15
3.3 二電子捕獲, 三電子捕獲.....	15
4. 解析および考察.....	27
4.1 電子捕獲過程.....	27
4.2 一電子捕獲.....	28
4.3 二電子捕獲.....	31
5. まとめ.....	44
謝辞 .....	44
参考文献.....	45

## Contents

1.	Introduction .....	1
1.1	Preface .....	1
1.2	Ion-target Systems .....	1
2.	Experimental Setup and Measurements .....	3
2.1	Outline of Experiment .....	3
2.2	Ion Source .....	3
2.3	Accelerator and Lens .....	5
2.4	Wien Filter .....	5
2.5	Neutral Particle Rejector .....	5
2.6	Gas Cell and Pressure Measurement .....	6
2.7	Electrostatic Deflector .....	6
2.8	Detector .....	6
2.9	Deduction of Cross Section .....	7
3.	Results .....	15
3.1	Results of Cross Sections .....	15
3.2	One-electron Capture .....	15
3.3	Two- and Three-electron Captures .....	15
4.	Analysis and Discussion .....	27
4.1	Electron Capture Process .....	27
4.2	One-electron Capture .....	28
4.3	Two-electron Capture .....	31
5.	Summary .....	44
	Acknowledgements .....	44
	References .....	45

## 1. 序 論

### 1. 1 はじめに

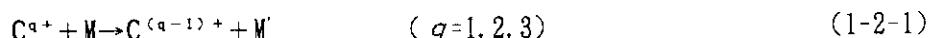
非弾性衝突過程の一つである電荷変換衝突過程は比較的古くから研究され、様々な原子、分子の衝突において理論的、実験的に研究がなされてきた。この様な過程は単に物理的な興味から追求されているだけでなく、核融合やX線レーザー、宇宙物理等の応用分野にも重要な位置を占めつつある。

とくに核融合において電荷変換衝突過程は大きな意味を持っている。例えば核融合炉開発においては、D-T反応によって生成した $\alpha$ 粒子の密度とエネルギー分布を測定するために、中性粒子をプラズマ内に入射して電荷変換衝突により生じた中性 $^4He$ を検出するプラズマ診断法を考えられている<sup>1)</sup>。またプラズマ界面で起こる電荷変換衝突過程は界面プラズマでの粒子リサイクリングに係わる素過程であるとともにプラズマ冷却の原因になる<sup>1)</sup>。トカマク型核融合装置においてプラズマ中に存在する高速イオンが核融合炉の第一壁の物質をスパッタし、これが高速イオンや電子によって高い電荷数に電離される。この様な不純物イオンはプラズマ界面に含まれる不純物と電荷変換を起こし、励起状態になったのち放射遷移を起こしプラズマを冷却する。したがってこの効果を見積るために、数～数十keVの多荷イオンと様々な原子、分子との電荷変換断面積を求めておく必要がある。近年 EBIS (Electron Beam Ion Source)や ECR (Electron Cyclotron Resonance)などの多荷イオン源が開発され、この様な系での研究が飛躍的に進歩している。とくにプラズマ中に多く含まれるC、OイオンとH、H<sub>2</sub>、Heとの電荷変換衝突過程は多くの実験がなされており、理論的にもかなり解析が進んでいる<sup>2)</sup>。しかしながらターゲットにより複雑な分子を用いた場合の低エネルギー領域での電荷変換断面積を測定した例は少ない。

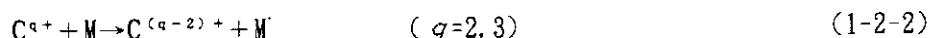
### 1. 2 測定したイオン-ターゲット系

以上のような背景から本実験では低速炭素イオンと分子ターゲットとの電荷変換衝突断面積の測定を行った。分子ターゲットにはCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>を用いた。このエネルギー領域では、一般的に言えば、電荷変換反応のうち、ターゲットから入射粒子へ電子が移行する電子捕獲過程が主に起こる。そこでここでは電子捕獲過程についての測定ならびにその結果について報告する。電子捕獲過程のうち以下の三通りにつき断面積を測定した。

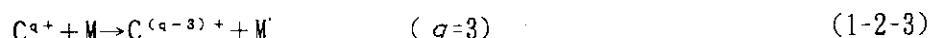
#### ①一電子捕獲



#### ②二電子捕獲



#### ③三電子捕獲



M : CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>

M' : M<sup>n+</sup>およびその励起状態、解離状態全てを含めたもの

但し n は入射イオンが捕獲した電子数

入射エネルギー E : E = 6 q ~ 16 q (keV)

次のような理由から上記の系を選んだ。

- ①トカマク型のJT60プラズマ実験装置においては第一壁に炭素を用いているため、プラズマ中に炭素イオンが不純物として混ざっている。
- ②プラズマ界面における不純物として炭素系の分子が存在する。したがって界面プラズマのモーリングの妥当性、またプラズマ冷却を評価する基礎データとなり得る。
- ③過去にターゲットに分子を用いたような低速領域での測定がほとんど無い。
- ④ターゲットに分子を用いた場合多電子捕獲断面積が大きくなることが予想される。
- ⑤については過去に分子ターゲットを用いた例としてEliot等の測定がある<sup>3)</sup>。彼等は1~20keVのH<sup>+</sup>とN<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>、C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>との一電子捕獲および一電子損失断面積を測定している。また、Kusakabe、Hanaki等は0.286keV/amuのKr、Xeイオンと分子ターゲットとの電荷変換断面積を測定している<sup>4), 5)</sup>。入射粒子にCイオンを用いた測定例としてはMoran等のC<sup>+</sup>とCO<sub>2</sub>の衝突における一電子捕獲断面積測定などがあるが<sup>6)</sup>、入射粒子が二価以上の場合についてはほとんど見あたらぬ。⑥についてはターゲットに分子を用いた場合、入射粒子の励起状態や分子の振動励起および解離状態を考えると原子の場合に比べ考えられる終状態の数が多くなるので、その結果多数のポテンシャル交差が存在するようになり多電子捕獲過程が大きくなることが予想される。

入射粒子が多荷イオンの場合、入射粒子が二電子捕獲したのち電子を放出するような移行電離過程も起こるが本実験ではこの様な過程も含めた断面積を測定している。以下では第2章で実験装置、第3章で結果、第4章で解析および考察、第5章でまとめについて述べることにする。

## 2. 実験装置および測定

### 2.1 実験の概要

実験の概略を述べる。実験装置の概略図をFig. 2-1に示す。まずバンデグラーフ型加速器より $1.7\text{MeV}$ の $0^+$ イオンを引き出し、四極子レンズで集束したのちイオン源真空槽に導く。イオン源は高速イオンとガスとの衝突における多重電離を利用したものでこれを”イオン衝撃型イオン源”と呼ぶ。炭素イオンを引き出すためにイオン源ガスには $\text{CO}_2$ 、および $\text{CH}_4$ を用いた。入射してきた $0^+$ とこれらのガスが衝突したときガスは様々な状態に解離および電離され、リペラー電極によって $90^\circ$ 方向に押し出される。これらのイオンは加速部およびAINツェルレンズで加速、集束され直線型電荷分析器であるウィーンフィルターに導かれ、ここで電荷を選択する。このとき中性粒子はこのフィルターをそのまま通り抜けるのでスリットと電場を組み合わせることによってこれを取り除いた。こうして引き出された炭素イオンはガスセルで電荷変換を起こす。ガスセル内の圧力は真空中に取り付けられた二本の微流量調整弁によって自由に調整できるようになっている。電荷変換したそれぞれの炭素イオンは平行電場によって振り分けられ位置検出用に設置されたMCP(Micro Channel Plate)に入射し計数される。

ビームラインおよびイオン源真空槽、衝突槽はいずれも高真空中に保たれそれぞれ、ビームライン： $1.0 \times 10^{-6}$ (Torr)、イオン源真空槽： $2.0 \times 10^{-6}$ (Torr)、衝突槽： $7.0 \times 10^{-7}$ (Torr)の真空中度で実験を行った。とくに衝突槽においてはビームがガスセルを通過したのち検出器に到達するまでに電荷変換しないようにターボ分子ポンプを取り付け真空中度の維持を保った。したがって計測中にガスを導入しても衝突槽の真空中度は約 $2.0 \times 10^{-6}$ (Torr)であり検出器との距離を考えれば残留ガスの影響は小さく無視できる。これより各部分の細部を説明する。

### 2.2 イオン源

多荷イオンの生成は高速イオンとガスとの衝突による多重電離を利用し、これを $90^\circ$ 方向に引きだした。

#### 2.2.1 イオン衝突による多重電離

高速のイオン（ここではイオンの速度が反応に関与する原子の軌道電子の速度より速いイオンを指す）が原子に衝突すると内殻電子が放出され外殻電子がこの空孔を埋める。この際X線放出やオージェ過程が起こる。このような衝突による電離は比較的古くから研究されている。例えばMaedaは $1\text{MeV N}^{2+}$ を希ガスと衝突させ $\text{Kr}^{9+}$ の様な多荷イオンが生成することを報告しており<sup>7)</sup>、またCockeによれば数十MeVのClイオンを希ガスと衝突させ入射電荷が増えると電離断面積も増え、強いエネルギー依存性を持つことを述べている<sup>8)</sup>。Maedaによれば

①重イオンで電荷数が高いほど多重電離が大きくなる。

②外殻電子の電離確率が大きくなるようにエネルギーを選ぶと多重電離が大きくなる。  
ということが示されている。

#### 2.2.2 入射イオン

本実験に関しては入射イオンを $1.7\text{MeV } 0^+$ とした。これは以下のようない由による。

- ①今回用いたバンデグラーフ型加速器で加速できるイオンで一番重いのが $^{10}$ Oイオンである。
- ②電荷数が大きいほど多荷イオン収率は増えるが入射電荷を大きくするとビーム量が減り、全体としての収率が下がる。
- ③加速器の分析磁石で曲げることのできる最大のエネルギーが $0^+$ の場合1.7MeVである。

### 2.2.3 イオン源

イオン源の構造をFig. 2-2に示す。バンデグラーフ型加速器より引き出された $0^+$ はガスノズルの直下でイオン源ガス( $\text{CO}_2, \text{CH}_4$ )と衝突する。このビームが当たる部分はイオン源真空槽の上流に取り付けられた偏向器で自由に調整できる。さて衝突して生成される反跳イオンは様々な角度、エネルギーを持って反跳される。例えば質量 $M_1$ 、電荷 $Z_1e$ を持つ粒子が質量 $M_2$ 、電荷 $Z_2e$ の粒子に速度 $v$ で入射したときの反跳角、反跳エネルギーは

$$\phi = (\pi - \theta) / 2 \quad (2-2-1)$$

$$\tan(\theta/2) = Z_1 Z_2 e^2 / v^2 b \mu \quad (2-2-2)$$

$$E = 2\mu^2 v^2 / M_2 \sin^2(\theta/2) \quad (2-2-3)$$

$b$  : 衝突径数

$\mu$  : 換算質量

$\theta$  : 重心系での入射粒子の散乱角

$\phi$  : 反跳角

$E$  : 反跳エネルギー

1.7MeV $0^+$ がCの1s軌道に入射したときの $\phi$ および $E$ は

$$\phi = 89.7^\circ \text{ のとき } E = 42.7 \text{ eV}$$

となり $90^\circ$ 方向に反跳されたイオンのエネルギーは加速電圧に比べて無視できるほど小さい。これはこのイオン源の一つの特徴である。

このようにして生成したイオンはリペラー電極によって引き出し電極の方に押しやられる。この間には0~600Vまでの電圧をかけることができるが当然電圧が高い方が引き出し効率は上がるの $で600V$ で実験を行った。この電極の中間にガスノズルがあるが電極間の電場を乱さないために抵抗分割することによってガスノズルに電極間の半分の電位を与えた。したがってこの部分でリペラー電位の半分すなわち300V加速されていることになる。

イオン源ガスには $\text{C}^+$ 、 $\text{C}^{2+}$ を引き出すときは $\text{CO}_2$ 、 $\text{C}^{3+}$ を引き出すときには $\text{CH}_4$ を使った。これはのちほど述べる電荷分析器において、 $\text{C}^{3+}$ を引き出すとき $\text{CO}_2$ を用いると $q/m$ が同じである $0^{4+}$ が混じりこれを分離することができないためによる。

### 2.2.4 準安定状態の混入について

このイオン源は高速イオンとの衝突による電離を利用してあるため基底状態にあるイオンの他にも準安定状態にあるイオンが生成される可能性がある。しかしながらHoriuchiによればイオン源をでたのちにはあとで述べるような様々な電場がかかっているので準安定状態が残っている可能性は低く<sup>⑩</sup>、Kusakabeも電子衝撃型イオン源との比較によりその可能性は低いとしている<sup>⑪</sup>。

### 2. 3 加速部および収束部

反跳されたイオンは引き出し孔を通ったのち加速される。今回の実験では引き出し電圧を6kV～16kVとした。加速管は全部で6枚の電極でできており、そのうち上流から二番目の電極はアインツェルレンズ電極である。レンズ電圧は引き出し孔とレンズ電極の一つ下流の電極との間に可変抵抗を入れることによって調整した。この場合減速型レンズになっているがこの加速電圧の範囲では充分な収束を得ることができた。引き出し孔の径は1mmφであり、ビーム径も大体同じくらいの大きさと考えられる。また全体の加速電圧は引き出し電圧と先ほどの300Vを足したものである。

### 2. 4 ウィーンフィルター

ウィーンフィルターは直線型の電荷分析器であるためビーム軸に沿って設置するとき軸出しが容易であり、また小型化できるという利点を持っている。電場と磁場を互いに直角方向にかけることによって、イオンの比電荷が以下に述べる条件を満たすもののみが直進する。ウィーンフィルターの概略図をFig. 2-3に示す。

今電荷  $q^+$ を持ったイオンに働く電場の力と磁場の力がつり合う条件は

$$q E = q v B \quad (2-4-1)$$

$E$  : 電場

$B$  : 磁場

$v$  : イオンの速度

さらにイオンは加速電圧  $V$ で加速されるので次の式が成り立つ。

$$\frac{1}{2} m v^2 = q V \quad (2-4-2)$$

$m$  : イオンの質量

(2-4-1)と(2-4-2)より次式が導かれる。

$$\frac{q}{m} = \frac{1}{2} \frac{(E/B)^2}{V} \quad (2-4-3)$$

これより(2-4-3)の条件式を満たすイオンだけがウィーンフィルターの出口にあるスリットを通り抜けることができる。なお中性粒子は電場磁場の影響を受けないのでそのまま直進する。これはのちほど述べる中性粒子抑止板で取り除いた。

磁場を0.5～1.0kGの範囲のある値で一定に保ち、一定の時間間隔で電場を掃引してガスのイオン化スペクトルを求める。電場は二枚の平行平板電極にそれぞれ0～2kV、0～-2kVの電圧を同時に印加して発生させた。高圧電源にはDAコンバーターを使ったコントローラーがつながっており、これらの電圧を1024分割で制御できる。実験の際は、一定の電場をかけて目的のイオンを引き出した。Fig. 2-4、Fig. 2-5にCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>のイオン化スペクトルを示す。各イオンは充分分離できており、不純イオン混入の恐れはないことが分かる。

### 2. 5 中性粒子抑止板

先ほども述べたようにウィーンフィルターを通過した粒子の中には中性の反跳粒子の他加速管

内の残留ガスとの電荷変換衝突により生じた中性粒子やスリットでのエッジ散乱によって生成した中性粒子が含まれる。中性粒子は平行移動電場とスリットを用いて除去した。この概略図をFig. 2-6に示す。入射してきたイオンは二枚の電極によってビーム軸から平行移動する。一方中性粒子はそのまま直進するのでこれをスリットで遮る。移動したイオンビームは再び二枚の電極により元のビームコースに戻る。しかし実際には電極の微妙な位置の違いが原因で印加電圧によってビームコースがずれ、検出器の検出面から外れることがあったので注意深く電圧を設定した。

## 2. 6 ガスセルおよびガス圧の測定

これまで述べてきたような方法によって選別されたイオンはガスセル内で衝突し電荷変換を起こす。ガスセルは直径45mmφ、長さ65mmの円筒でビームは直径方向に入射する。さらにこのガスセルにはガス導入用の管、ガス圧測定用のピラニゲージがついている。ガス導入管は真空槽の外につながっており二本の微流量調整弁でターゲットのガスの厚さを自由に変えることができる。

ガス圧の測定は高感度のピラニゲージで行った。真空度の測定にはよく電離真空計が使われるが絶対真空度が測定できないことと、フィラメントからなる熱電子が検出器であるMCPに入射しないとなるからである。ピラニゲージの感度係数はあらかじめ容量型マノメーター(MKS-Baratron)により較正した。ピラニゲージの感度係数をTable 2-1に示す。ガス圧は単回衝突が成り立つ範囲内、つまり $10^{-4} \sim 10^{-5}$ (Torr)の間で変化させた。

## 2. 7 静電偏向器

ガスセルを通過したイオンは様々な電荷状態にあるがこれは平行電場をかけることによって分離できる。実際には数kVもかけばこれらのイオンを充分に分離することができた。

## 2. 8 検出系

イオンの検出には浜松ホトニクス製の位置検出用マイクロチャンネルプレート(MCP)を用いた<sup>10)</sup>。二枚重ねで大きさは検出面で $55 \times 8$ mmである。二次電子増倍率は印加電圧1kVのとき $10^7$ である。

位置検出器の概略図をFig. 2-7に示す。MCPから放出される二次電子は一様な抵抗を持ったフィルム(アノード)に集められる。この電子群はそれぞれ $q_1, q_2$ の電荷量を持ってアノードの両端にあらわれる。この電気量はその位置からと両端とのそれぞれの抵抗の割合に等しい。これらのパルスはそれぞれ前置増幅器、主増幅器で増幅される。増幅されたパルスは和算増幅器でお互い足されたのち位置演算回路により片方のパルス波高で割算する。演算的には $q_1 / (q_1 + q_2)$ を行っていることになる。得られた位置パルスは多重波高分析器で計測される。得られた位置スペクトルをFig. 2-8に示す。

MCPの計数率に対する波高分布のスペクトルをFig. 2-9に示す。図を見れば分かるように計数率が上がるに従って波高分布が低くなっていることが分かる。また粒子があたる位置によっても当然波高分布は変わる。位置演算回路の分母パルスのディスクリレベルが1Vであるので、回路による計数漏れを防ぐためにはこのパルスが1V以下にならないように調整しなければならない。またこのパルスが10Vを超えると位置演算回路は10Vとして演算を行うので位置スペクトルが高い方に

すそを引くようになる。したがって以下のように回路を調整した。

①計測するときの計数率は約300cpsとした。

②静電偏向器をかけたときとかけないときで分母パルスが1V~10Vの波高分布を持つように調整した。

計数率の調整は入射 $O^+$ イオン量の増減により行った。また計数率が変動すると計数漏れが起こるためこれを一定に保つよう注意した。

## 2. 9 断面積の決定

### 2.9.1 ターゲットの厚さ

ターゲットガスの厚さは以下の式で定義される。

$$\pi = \frac{273L p V I}{760 (273 + T)} \quad (\text{atoms/cm}^2) \quad (2-9-1)$$

$L$  : Loschmidt数( $2.6868 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ )

$p$  : ピラニゲージ感度係数(Torr/V)

$V$  : ピラニゲージ電圧(V)

$I$  : ガスセルの長さ(cm)

$T$  : ターゲットガスの温度(°C)

### 2.9.2 生成率法

入射イオンとターゲットが衝突したのち、例えば*i*価のイオンの全粒子数に占める収率を $F_i$ 、ターゲットの厚さを $\pi$ 、*i*価から*f*価に変わった断面積を $\sigma_{i \rightarrow f}$ とする。*z*価に注目したとき全イオンが厚さ $d\pi$ を通過したときの変化量 $dF_z$ は

$$\frac{dF_z}{d\pi} = \sum_i F_i \sigma_{i \rightarrow z} - \sum_f F_z \sigma_{z \rightarrow f} \quad (2-9-2)$$

$$\sum_i F_i = 1 \quad (2-9-3)$$

(2-9-2)式は生成率方程式と呼ばれ、電荷移行実験の基本式とされている。右辺第一項は*i*価イオンが電荷変換して*z*価イオンが増加した割合を示し、第二項は*z*価イオンが*f*価に電荷変換して失われる割合を示す。このとき断面積がそれほど大きくなくターゲットの厚さも薄い範囲で変化させると、入射イオンはターゲットと一回衝突しか起こさない。したがって前述の(2-9-2)式において $\pi \rightarrow 0$ とした条件に等しい。即ち

$\pi \rightarrow 0$ のとき  $F_i \sim 1, F_i > F_z$  より

$$\frac{dF_z}{d\pi} \mid_{\pi=0} = \sigma_{i \rightarrow z} \quad (2-9-4)$$

(2-9-4)式が意味することはターゲットの厚さ $\pi$ を一回衝突が成り立つ範囲で変化させればこの収率の変化が断面積になることを示している。Fig. 2-10にターゲットの厚さを変化させたときの収率の変化を記した図を示す。いずれも厚さと収率には一次の関係があり、ほぼ一回衝突を満たしていることが分かる。しかしながら実際には今回測定した断面積は大きいので若干の二回衝突が含まれると考えられる。そこで厚さを $10^{-4} \sim 10^{-3}$ (Torr)の範囲で4点変化させ重みつき最小二乗法

で2次で近似した。すなわち

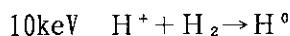
$$F_z = a + \sigma_{q,z} \pi + b \pi^2 \quad (2-9-5)$$

と近似した。右辺第一項は残留ガスおよびピラニゲージの原点のズレによる項、第三項は二回衝突以上による項である。

### 2.9.3 ターゲットの有効長較正<sup>11)</sup>

ターゲットガスは真空中に吹き出すので実際にはガスセルの長さよりもビーム軸にそって長くなっていると考えられる。このターゲットの有効長は信頼のできるStier and Barnett<sup>12)</sup>の実測断面積を用いて求めた。

Stier and Barnett<sup>12)</sup>



$$\sigma_{10}(\text{S.B.}) = 8.19 \times 10^{-16} (\text{cm}^2) \quad (2-9-6)$$

較正されたターゲットの有効長  $l_{eff}$  は

$$l_{eff} = \frac{\sigma_{10}(\text{S.B.})}{\sigma_{10}(\text{pr})} l \quad (2-9-7)$$

$l$  : ガスセルの長さ

$\sigma_{10}(\text{pr})$  : 実験で求めた断面積

これより断面積は

$$\sigma^{cal} = \frac{\sigma_{10}(\text{S.B.})}{\sigma_{10}(\text{pr})} \sigma \quad (2-9-8)$$

と求まる。 $\sigma_{10}(\text{pr})$ の実測値は

$$\sigma_{10}(\text{pr}) = (10.06 \pm 0.80) \times 10^{-16} (\text{cm}^2)$$

であるので

$$\sigma^{cal} = 0.814 \sigma \quad (2-9-9)$$

となる。

### 2.9.4 誤差

誤差は以下のように見積もった。

①統計誤差

②ピラニゲージ電圧変動誤差：ガス厚は常に一定になるように注意したが幾らか変動が見られ、一応最大5%とした。

③ピラニゲージ感度係数較正誤差：ピラニゲージの感度係数は容量型マノメーターで較正したがこの誤差は1%である。

④温度測定誤差：ガスは真空中に吹き出すのでその温度はほぼ真空槽の温度と同じであるので2%も見積もっておけば十分である。

⑤MCPの価数依存性：5%と見積もった。

⑥不純物イオン混入誤差 (C<sup>3+</sup>入射の場合) : C<sup>3+</sup>の場合イオン源ガスにはCH<sub>4</sub>を使ったが残留ガスによるO<sup>4+</sup>が若干含まれる。断面積の大きさはほぼ同じオーダーと考えられるのでピークのカウ

ント数から考えて5%以下であった。したがってこの誤差を5%とした。  
 以上から得られる断面積の全体の誤差は約9~20%である。

Table 2-1. Sensitivity coefficient of  
 the present Pirani gauge

Target Gas	Sensitivity Coefficient (Torr/V)
CO <sub>2</sub>	$4.62 \pm 0.14 \times 10^{-2}$
CH <sub>4</sub>	$3.02 \pm 0.03 \times 10^{-2}$
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	$2.27 \pm 0.05 \times 10^{-2}$
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	$1.55 \pm 0.02 \times 10^{-2}$

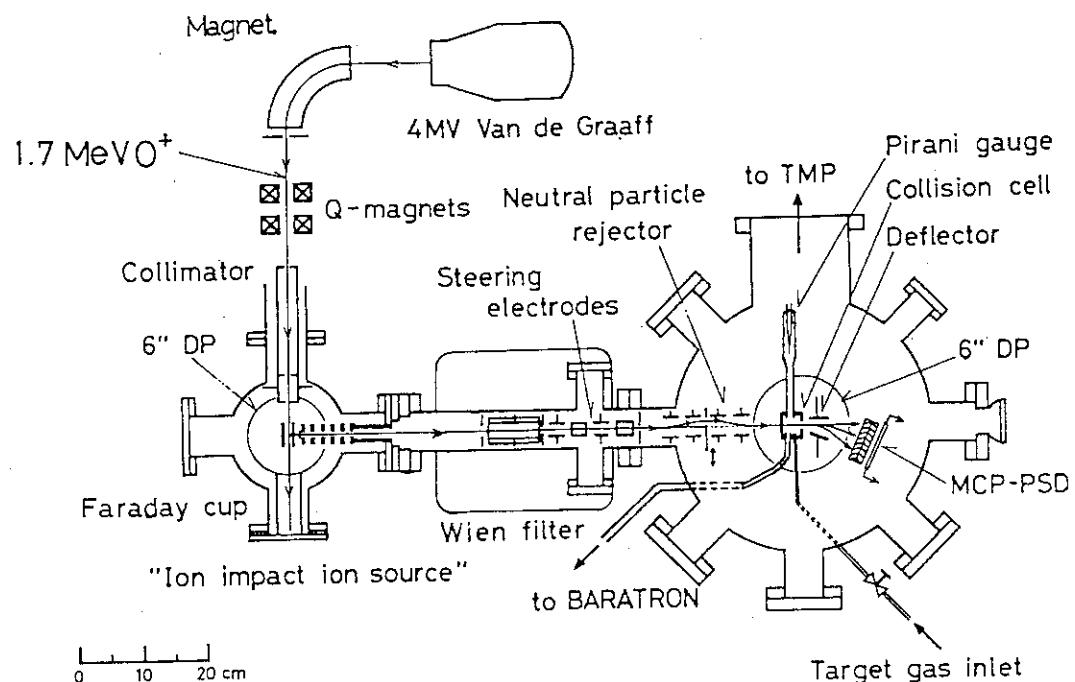


Fig. 2-1. Schematic diagram of the experimental arrangement.

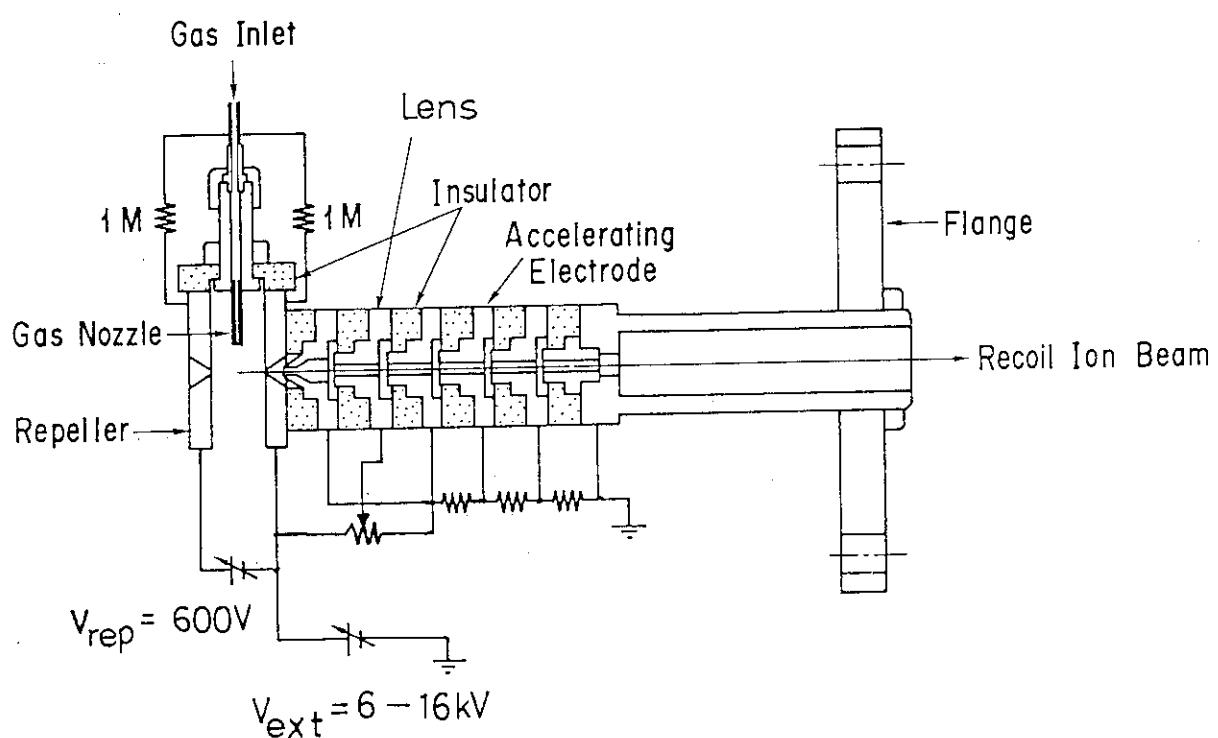


Fig. 2-2. 'Ion Impact Ion Source' and accelerating electrode.

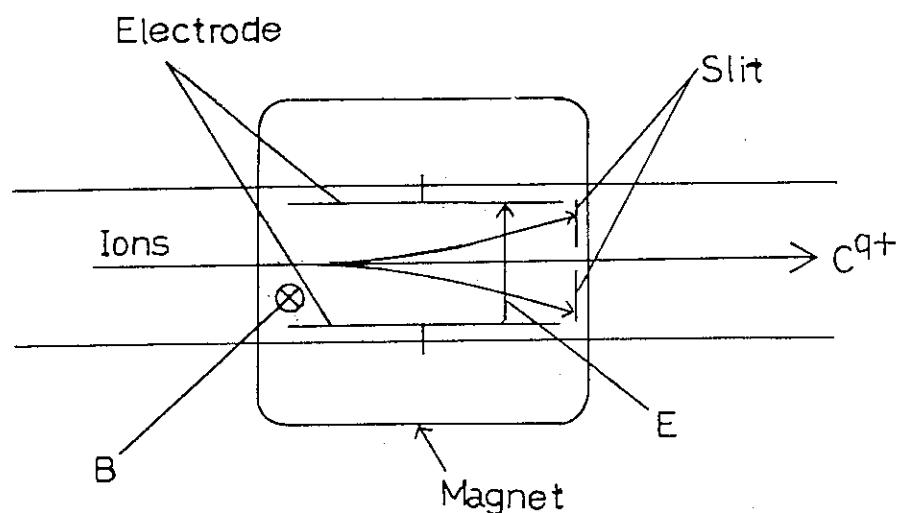
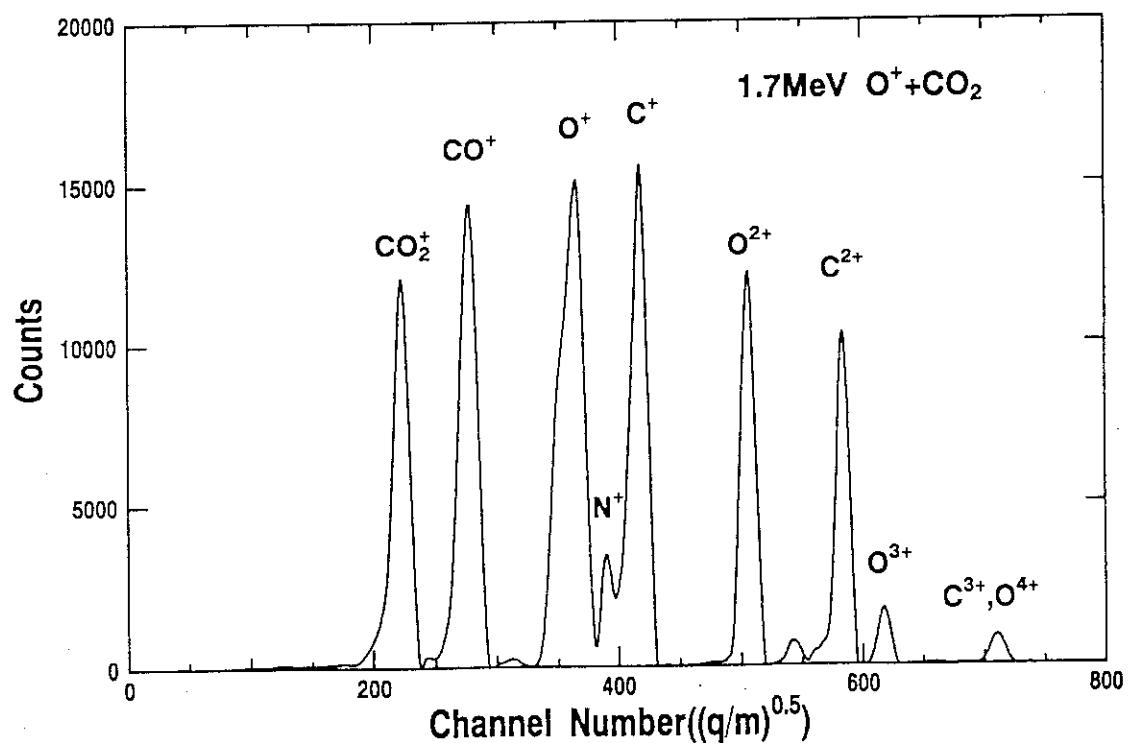


Fig. 2-3. Schematic diagram of Wien Filter.

Fig. 2-4. Dissociation and ionization spectrum of  $\text{CO}_2$  by 1.7 MeV  $\text{O}^+$  impact.

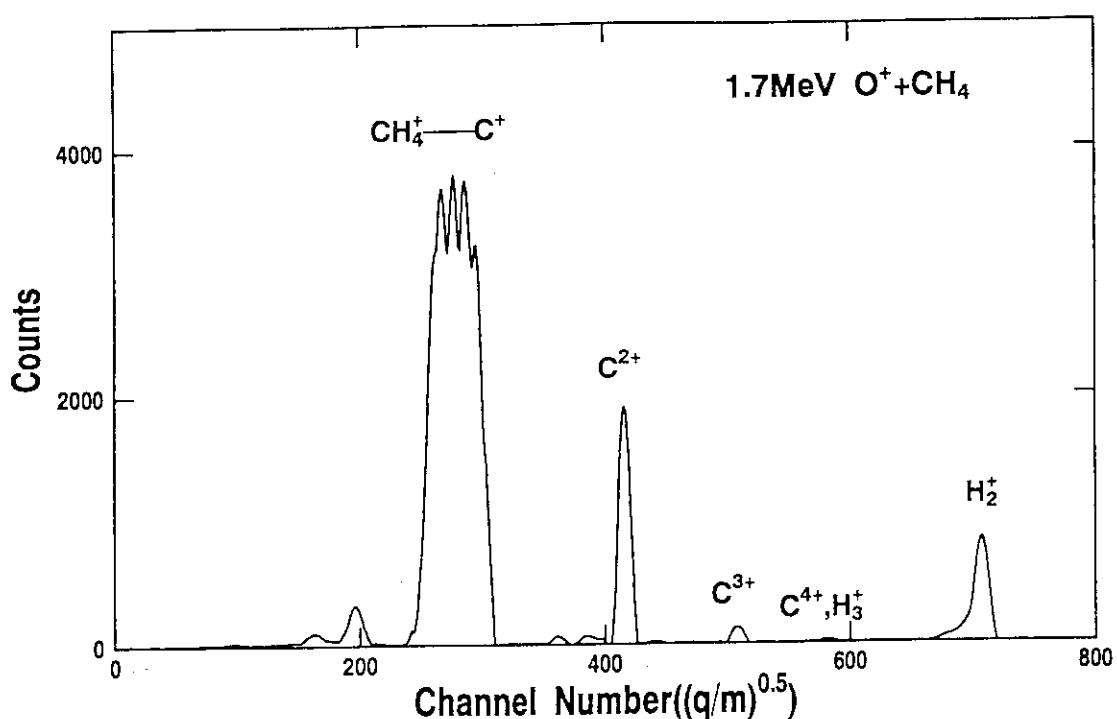


Fig. 2-5. Dissociation and ionization spectrum of CH<sub>4</sub> by 1.7MeV O<sup>+</sup> impact.

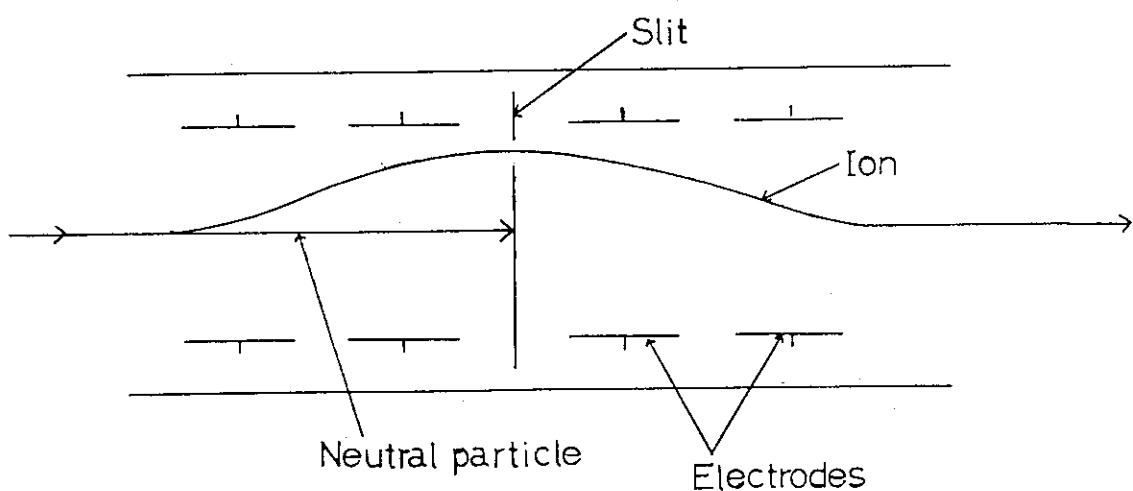


Fig. 2-6. Schematic diagram of neutral particle rejector.

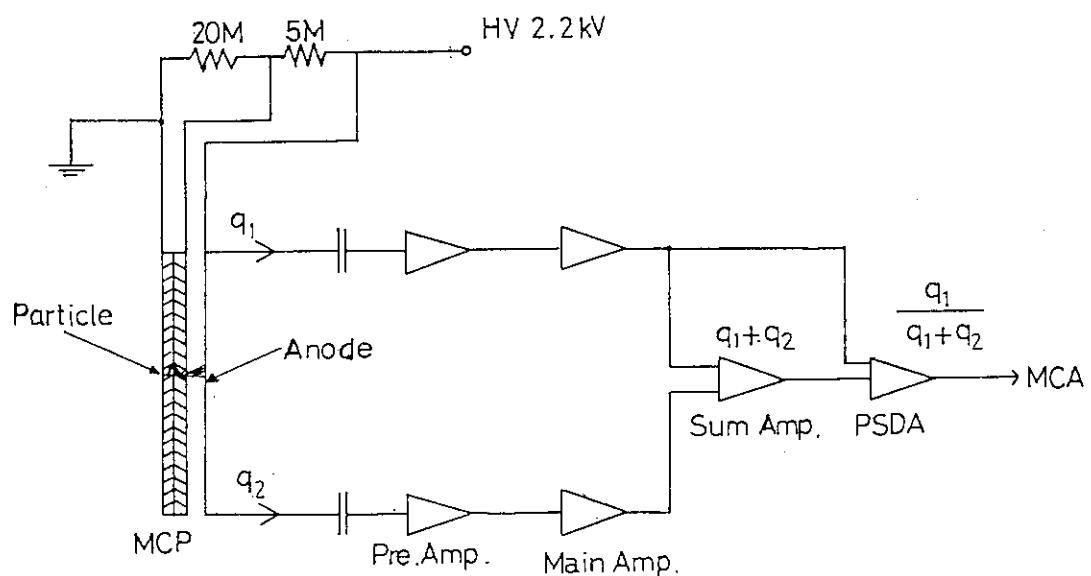
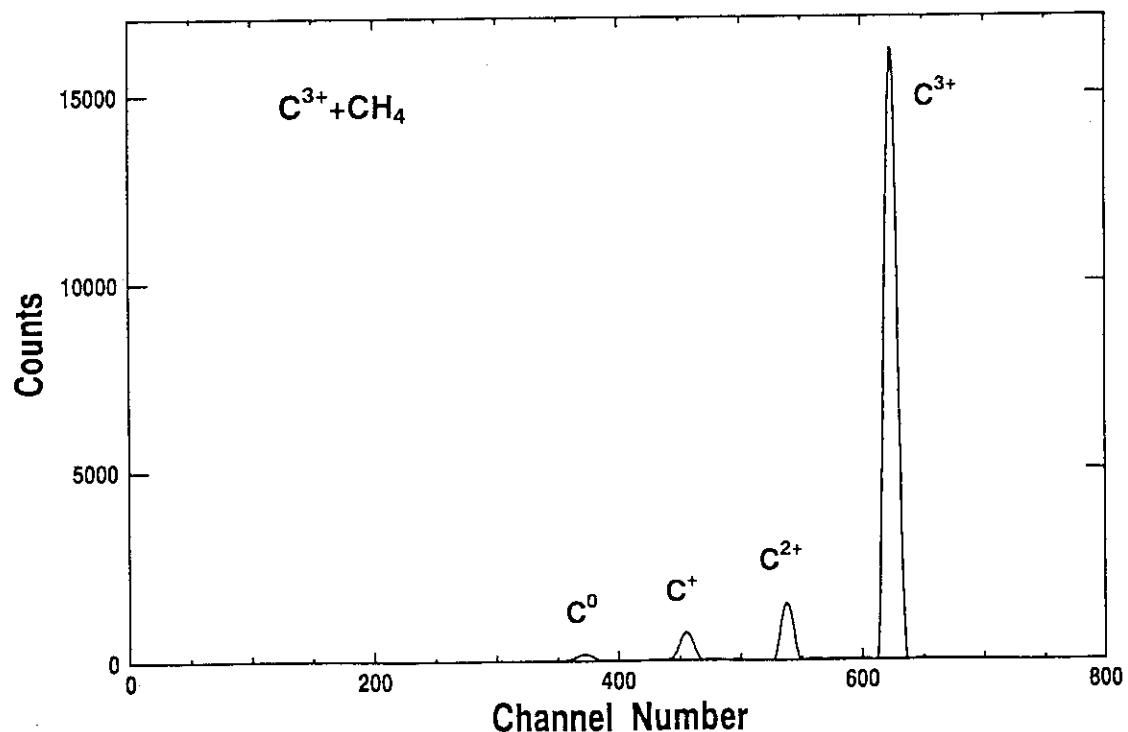


Fig. 2-7. MCP-PSD system.

Fig. 2-8. Position spectrum for  $C^{3+} + CH_4$  system.

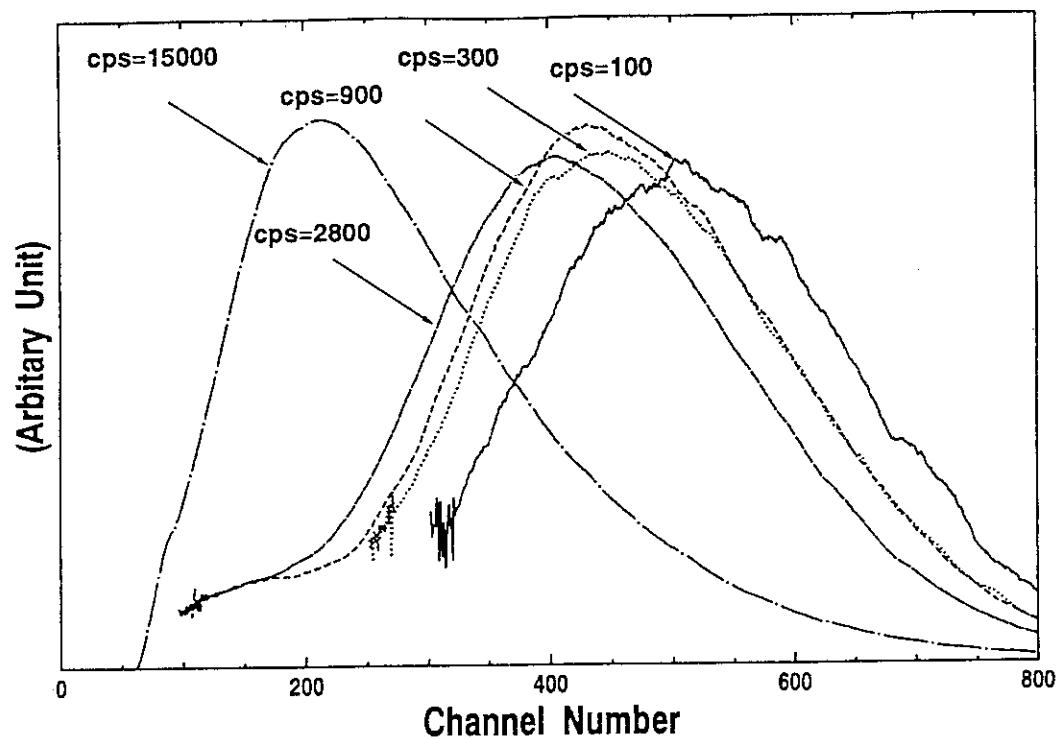


Fig. 2-9. Counting-rate dependence of pulse height distribution of MCP for 14keV C<sup>+</sup> incident ions.

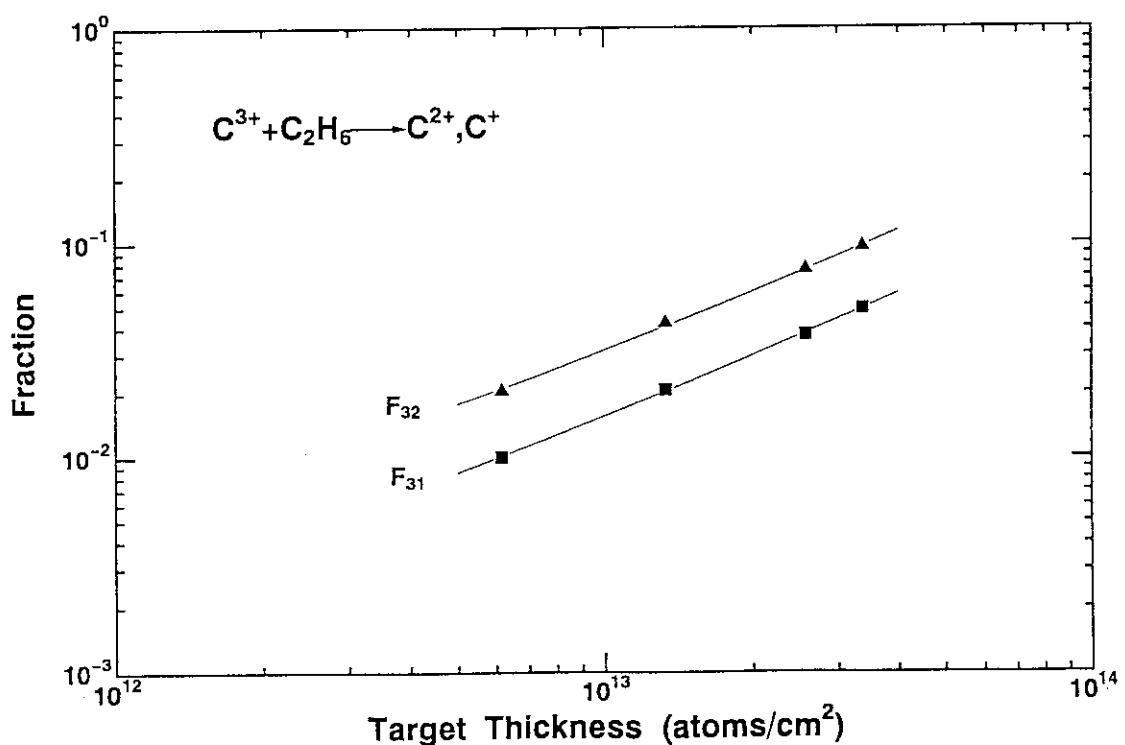


Fig. 2-10. Growth curves.

### 3. 結果

#### 3. 1 断面積の測定結果

得られた断面積の測定結果をTable 3-1~Table 3-6に示す。それぞれ、 $C^{1+}$ 、 $C^{2+}$ および $C^{3+}$ 入射による一電子捕獲断面積、 $C^{2+}$ および $C^{3+}$ 入射による二電子捕獲断面積ならびに $C^{3+}$ 入射による三電子捕獲断面積である。

各ターゲットに対する断面積のエネルギー依存性をそれぞれFig. 3-1~Fig. 3-4に示す。今回測定したエネルギー領域(0.5~4.0 keV/amu)ではほぼいずれの断面積もエネルギーに対してほとんど変化がなく、平坦である。 $C^{1+}$ 入射で $CO_2$ 、 $CH_4$ との一電子捕獲に関してはエネルギーが低くなるにつれ断面積がやや小さくなるような傾向が見られた。以下の項目で述べる断面積については測定したエネルギー範囲で平均したもの用いることとする。

#### 3. 2 一電子捕獲断面積

一電子捕獲断面積の入射電荷数依存性をFig. 3-5に示す。入射電荷が大きくなても単純に断面積が大きくなるわけではなく、振動しているのが分かる。それぞれのターゲットに対する電荷数依存は

$$CO_2 \dots \sigma_{21} > \sigma_{10} \sim \sigma_{32}$$

$$CH_4 \dots \sigma_{10} \sim \sigma_{21} \sim \sigma_{32}$$

$$C_2H_6 \dots \sigma_{10} \sim \sigma_{32} > \sigma_{21}$$

$$C_3H_8 \dots \sigma_{10} \sim \sigma_{32} > \sigma_{21}$$

である。炭化水素系については $CH_4$ から $C_3H_8$ と複雑になるに従って振動は大きくなっている。

他のデーターとの比較としてターゲットに $H_2$ を用いたときの断面積を同時に示しているが<sup>11)</sup>、炭化水素系の分子を用いた場合の方が $H_2$ の場合よりも振動が小さいことが分かる。

一電子捕獲断面積のターゲット依存性をFig. 3-7、Fig. 3-8、Fig. 3-9に示す。ここでは断面積をターゲットの第一電離ポテンシャルでスケーリングしてある。一価入射と三価入射の場合ターゲットの電離ポテンシャルが小さくなるに従って断面積は大きくなるが、二価入射の場合 $CO_2$ のときの断面積が大きくなっている。炭化水素の場合は第一電離ポテンシャルが下がるということは分子の構造が複雑になりターゲットに含まれる電子も増えるので断面積が大きくなるということが予想できる。断面積の比較としてHanaki等のKr、Xe入射の断面積を同時に示す<sup>5)</sup>。二価入射の場合C、Kr、Xeいずれの場合も断面積の大きさおよびターゲットに対する傾向はほぼ同じである。とくに $CO_2$ の断面積がいずれの場合も $CH_4$ より大きいのは注目に値する。三価入射の場合断面積の示す傾向は同じであるが、大きさは二価入射の場合に比べるとばらつきがある。

#### 3. 3 二電子捕獲、三電子捕獲

二電子捕獲の入射電荷数依存性をFig. 3-6に示す。二電子捕獲は一電子捕獲の場合と違って入射電荷数が大きくなるといずれのターゲットについても断面積は大きくなっている。

ターゲットの依存性も同じくFig. 3-8、Fig. 3-9に示している。この場合ターゲット依存性を一応第一電離ポテンシャルでスケーリングしている。断面積は二価入射、三価入射いずれの場合も電離ポテンシャルが大きくなるにつれて小さくなっていることが分かる。一電子捕獲の場合と同じ

ようにKr、Xe入射の断面積を同時に示してあるが、大きさは異なるものの傾向はどれも同じである。

一方三電子捕獲も二電子捕獲と同じように電離ポテンシャルが下がると断面積は大きくなる。

Table 3-1. Cross sections for single electron capture of  $C^{1+}$  incident.  
 $C^{1+} + \text{Target} \rightarrow C^0$

Target	Energy (keV/amu)	Cross Section ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ )	Error ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ )
$\text{CO}_2$	0.5	7.58	0.61
	0.67	9.47	0.76
	0.83	11.26	0.90
	1.0	8.91	0.71
	1.17	10.09	0.81
$\text{CH}_4$	0.5	10.45	0.78
	0.67	11.67	0.93
	0.83	10.2	0.81
	1.0	13.7	1.10
	1.17	13.57	1.09
	1.33	14.79	1.18
$\text{C}_2\text{H}_6$	0.5	20.46	1.80
	0.667	20.39	1.52
	0.833	22.16	2.47
	1.0	22.91	2.51
	1.167	21.95	2.28
	1.333	22.22	2.39
$\text{C}_3\text{H}_8$	0.5	31.78	2.37
	0.667	30.30	2.26
	0.833	29.90	2.17
	1.0	30.85	2.39
	1.167	28.72	2.92
	1.33	31.62	2.37

Table 3-2. Cross sections for single electron capture of  $\text{C}^{2+}$  incident.  
 $\text{C}^{2+} + \text{Target} \rightarrow \text{C}^{1+}$

Target	Energy (keV/amu)	Cross Section ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	Error ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )
$\text{CO}_2$	1.0	21.98	1.76
	1.33	20.09	1.61
	1.67	17.50	1.40
	2.0	19.63	1.57
	2.33	18.56	1.48
$\text{CH}_4$	1.0	13.72	1.10
	1.33	14.45	1.16
	1.67	15.66	1.25
	2.0	13.24	1.06
	2.33	14.43	1.15
	2.67	15.15	1.21
$\text{C}_2\text{H}_6$	1.33	17.61	1.63
	1.67	18.80	1.73
	2.0	17.54	1.74
	2.33	18.76	1.72
	2.67	16.82	1.78
$\text{C}_3\text{H}_8$	1.0	19.96	2.86
	1.33	19.80	2.29
	1.67	20.32	2.11
	2.0	21.80	2.21
	2.33	23.20	2.23
	2.67	20.61	1.57

Table 3-3. Cross sections for single electron  
capture of  $\text{C}^{3+}$  incident  
 $\text{C}^{3+} + \text{Target} \rightarrow \text{C}^{2+}$

Target	Energy (keV/amu)	Cross Section ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	Error ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )
$\text{CO}_2$	2.0	10.42	1.02
	2.5	9.95	0.94
	3.0	11.68	1.25
	3.5	11.11	1.05
	4.0	10.78	0.97
$\text{CH}_4$	2.0	14.91	1.51
	2.5	14.39	1.69
	3.0	14.94	1.59
	3.5	15.57	1.71
	4.0	15.33	1.38
$\text{C}_2\text{H}_6$	1.5	22.26	2.47
	2.0	25.02	2.57
	2.5	23.65	2.44
	3.0	22.97	2.31
	3.5	22.73	2.26
	4.0	23.39	2.42
$\text{C}_3\text{H}_8$	2.0	37.16	5.04
	2.5	35.85	4.02
	3.0	35.05	4.08
	3.5	33.41	2.99
	4.0	35.89	3.87

Table 3-4. Cross sections for double electron capture by C<sup>2+</sup> incident  
C<sup>2+</sup>+Target→C<sup>0</sup>

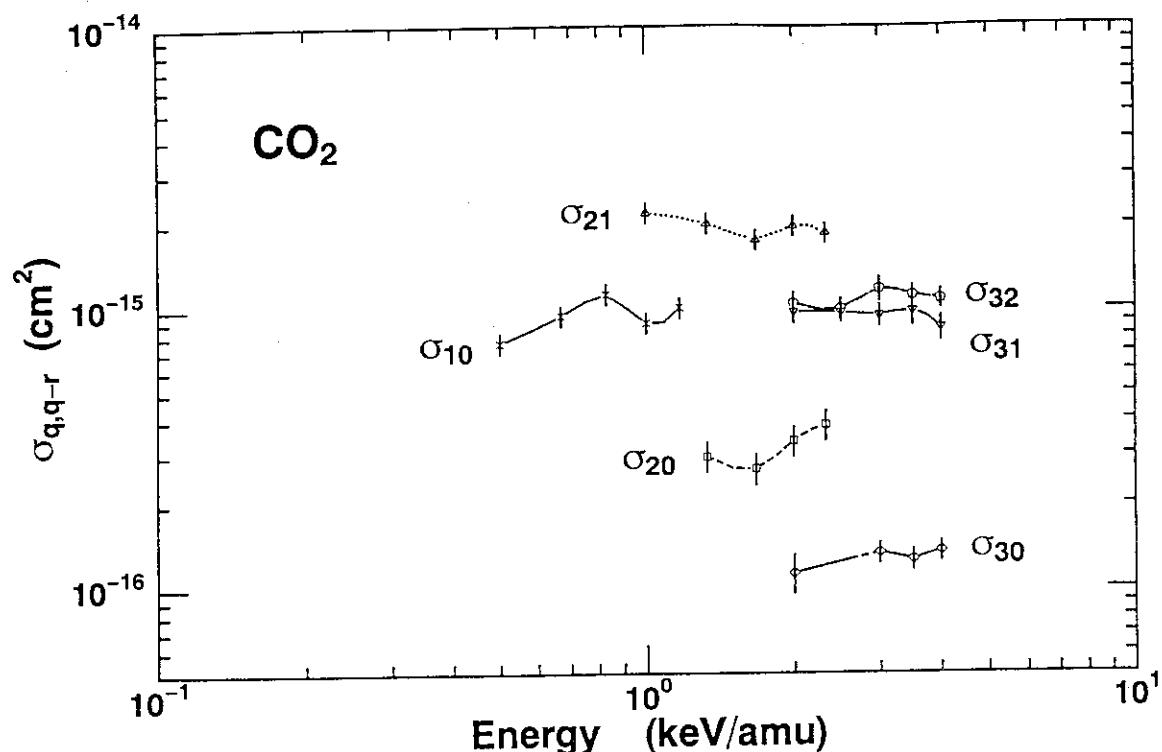
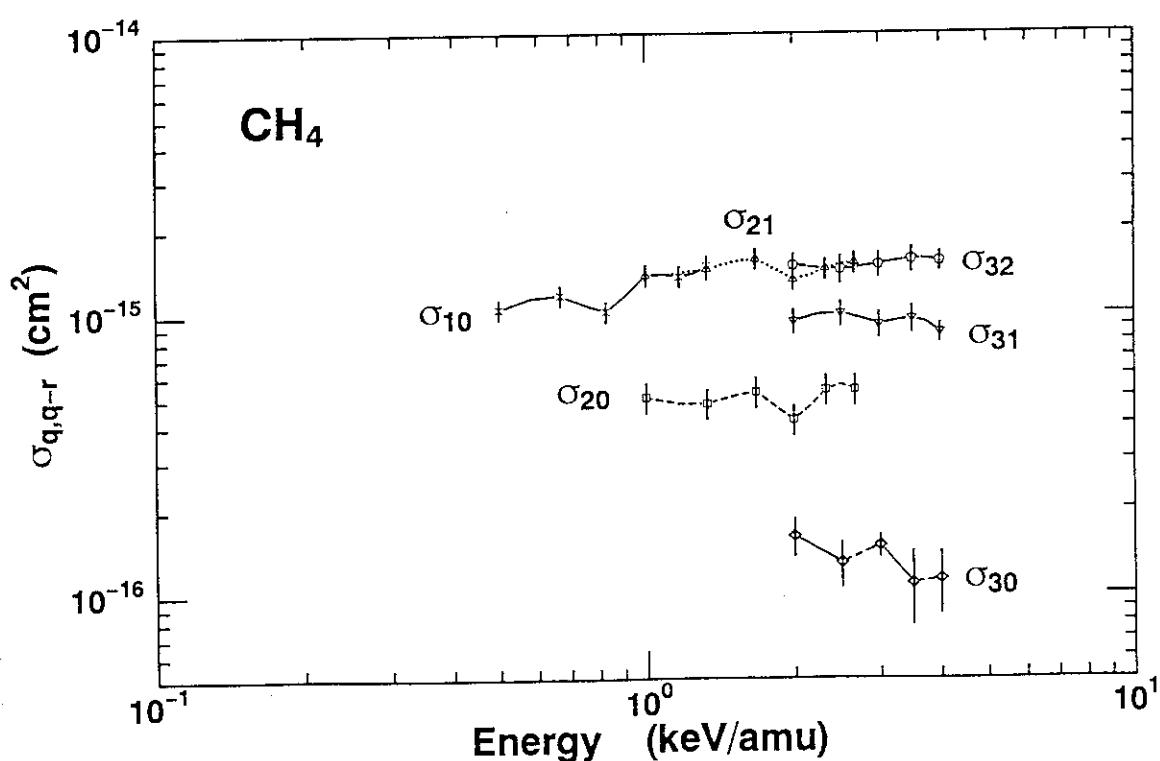
Target	Energy (keV/amu)	Cross Section (10 <sup>-16</sup> cm <sup>2</sup> )	Error (10 <sup>-16</sup> cm <sup>2</sup> )
CO <sub>2</sub>	1.33	2.96	0.36
	1.67	2.67	0.32
	2.0	3.36	0.40
	2.33	3.82	0.46
CH <sub>4</sub>	1.0	5.02	0.60
	1.33	4.77	0.57
	1.67	5.24	0.63
	2.0	4.17	0.50
	2.33	5.34	0.64
	2.67	5.33	0.64
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	1.33	10.80	1.07
	1.67	10.17	1.08
	2.0	9.26	1.10
	2.33	9.64	0.73
	2.67	9.14	0.68
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	1.0	13.95	1.09
	1.33	15.81	1.75
	1.67	14.56	1.66
	2.0	14.22	1.65
	2.33	15.76	1.62
	2.67	14.46	1.11

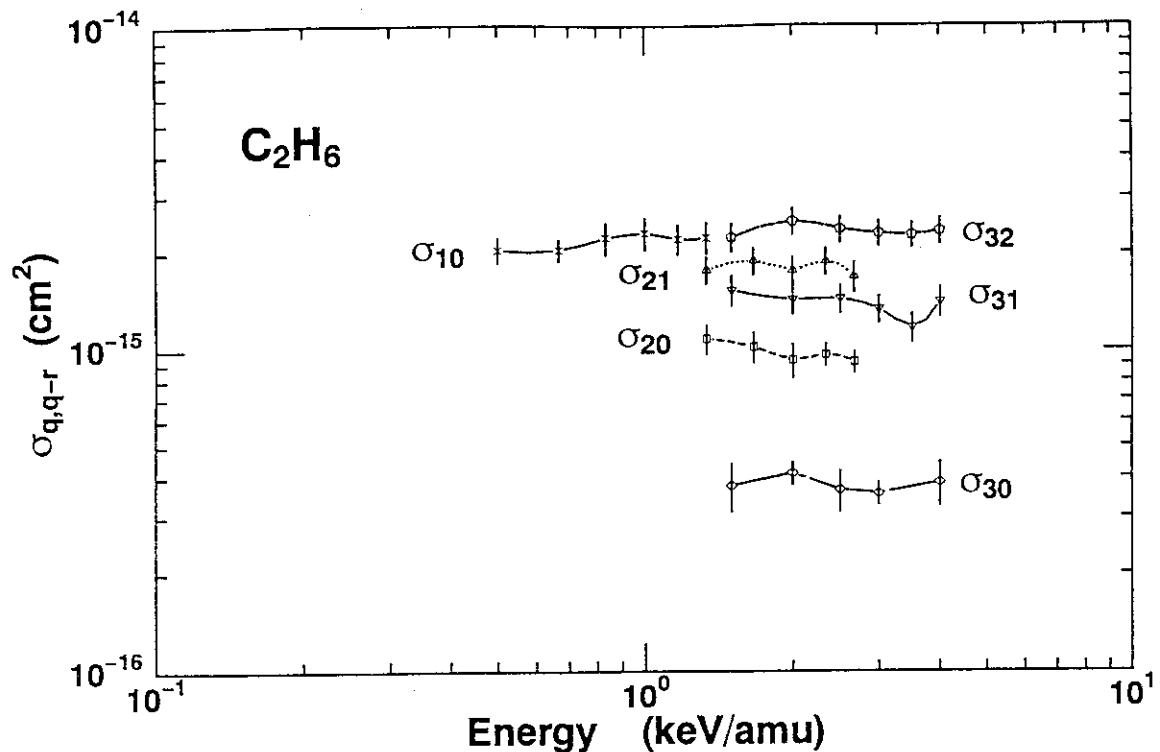
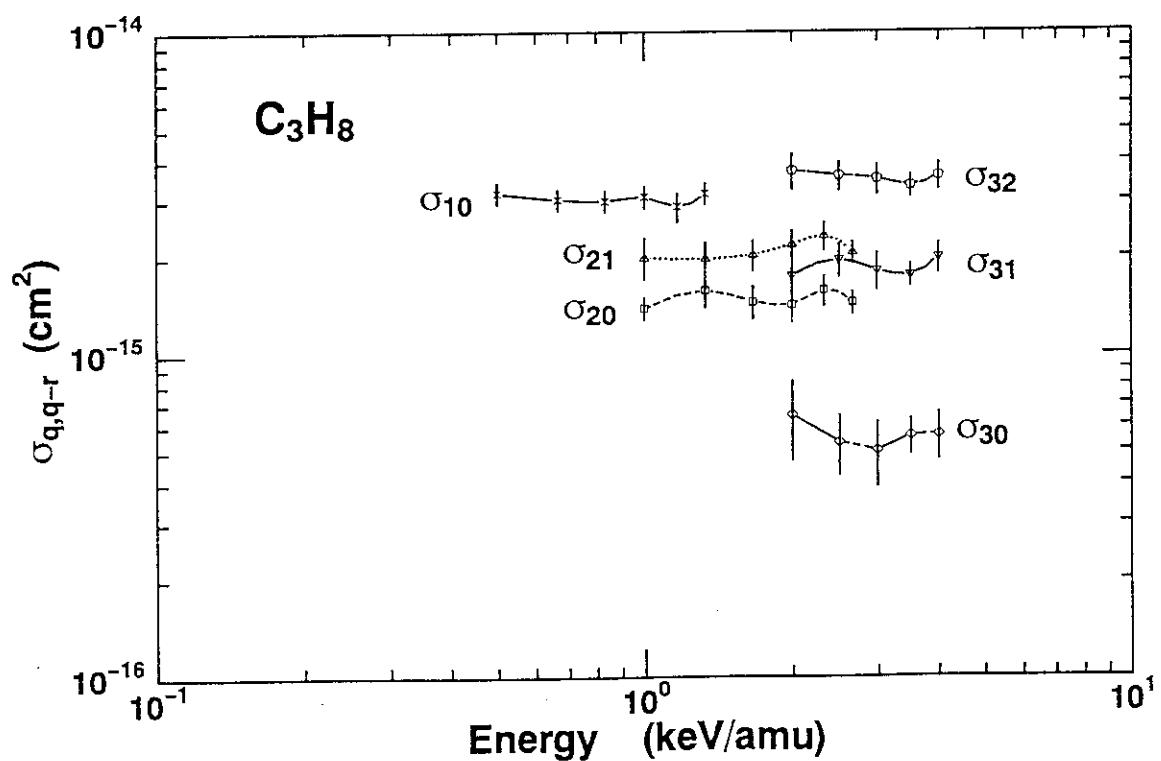
Table 3-5. Cross sections for double electron capture by C<sup>3+</sup> incident  
C<sup>3+</sup>+Target→C<sup>1+</sup>

Target	Energy (keV/amu)	Cross Section (10 <sup>-16</sup> cm <sup>2</sup> )	Error (10 <sup>-16</sup> cm <sup>2</sup> )
CO <sub>2</sub>	2.0	9.70	0.97
	2.5	9.63	0.86
	3.0	9.43	0.93
	3.5	9.74	1.16
	4.0	8.51	0.97
CH <sub>4</sub>	2.0	9.41	0.98
	2.5	10.01	1.11
	3.0	9.15	1.04
	3.5	9.56	1.12
	4.0	8.52	0.77
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	1.5	15.23	1.75
	2.0	14.27	1.58
	2.5	14.37	1.56
	3.0	13.34	1.41
	3.5	11.07	1.30
	4.0	14.06	1.60
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	2.0	17.52	3.22
	2.5	19.58	2.44
	3.0	18.12	2.48
	3.5	17.58	1.58
	4.0	19.94	2.34

Table 3-6. Cross sections for triple electron capture by  $\text{C}^{3+}$  incident  
 $\text{C}^{3+} + \text{Target} \rightarrow \text{C}^0$

Target	Energy (keV/amu)	Cross Section ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	Error ( $10^{-17}\text{cm}^2$ )
$\text{CO}_2$	2.0	1.13	1.81
	3.0	1.33	1.25
	3.5	1.26	1.22
	4.0	1.35	1.27
$\text{CH}_4$	2.0	1.61	2.58
	2.5	1.29	2.40
	3.0	1.48	1.47
	3.5	1.10	3.20
	4.0	1.13	2.81
$\text{C}_2\text{H}_6$	1.5	3.74	6.46
	2.0	4.10	3.77
	2.5	3.64	5.48
	3.0	3.55	3.26
	4.0	3.84	6.23
$\text{C}_3\text{H}_8$	2.0	6.47	3.68
	2.5	5.32	2.88
	3.0	5.01	2.74
	3.5	5.58	7.44
	4.0	5.65	9.82

Fig. 3-1. Measured cross sections for  $\text{CO}_2$  target vs. incident energy.Fig. 3-2. Measured cross sections for  $\text{CH}_4$  target vs. incident energy.

Fig. 3-3. Measured cross sections for  $\text{C}_2\text{H}_6$  target vs. incident energy.Fig. 3-4. Measured cross sections for  $\text{C}_3\text{H}_8$  target vs. incident energy.

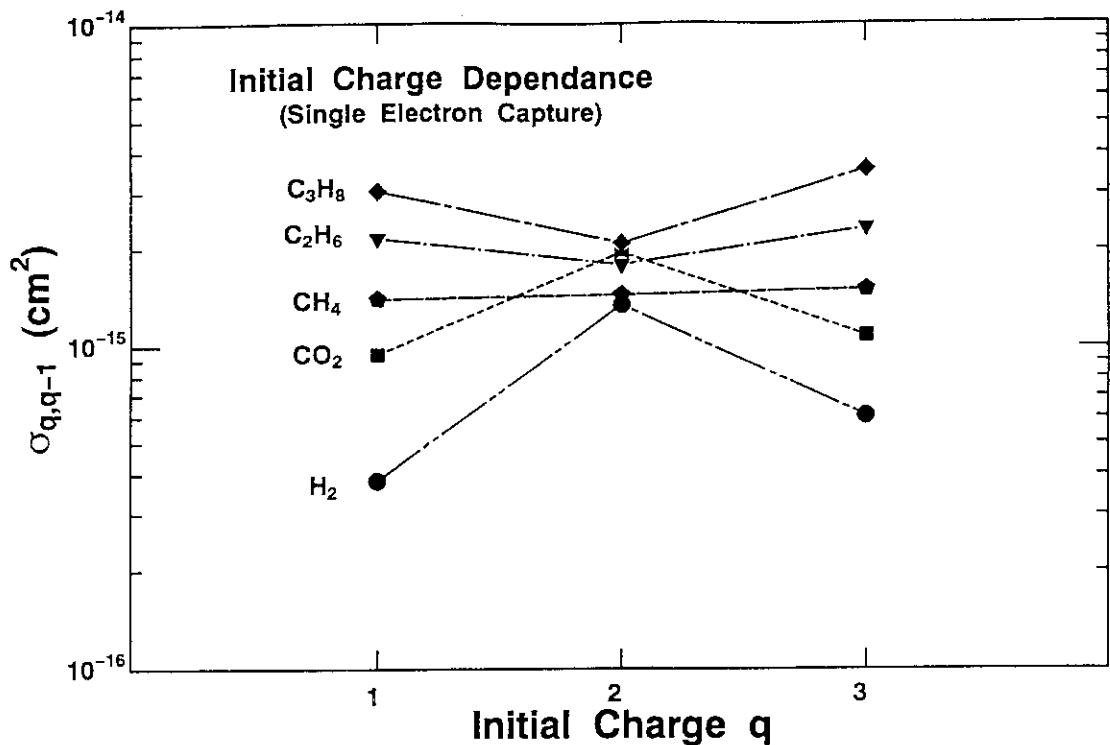


Fig. 3-5. Initial charge dependance of single electron catpure for  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{C}_3\text{H}_8$ ,  $\text{CO}_2$  and  $\text{H}_2$  targets.  $\text{H}_2$ , from Hanawa et al.<sup>11)</sup>

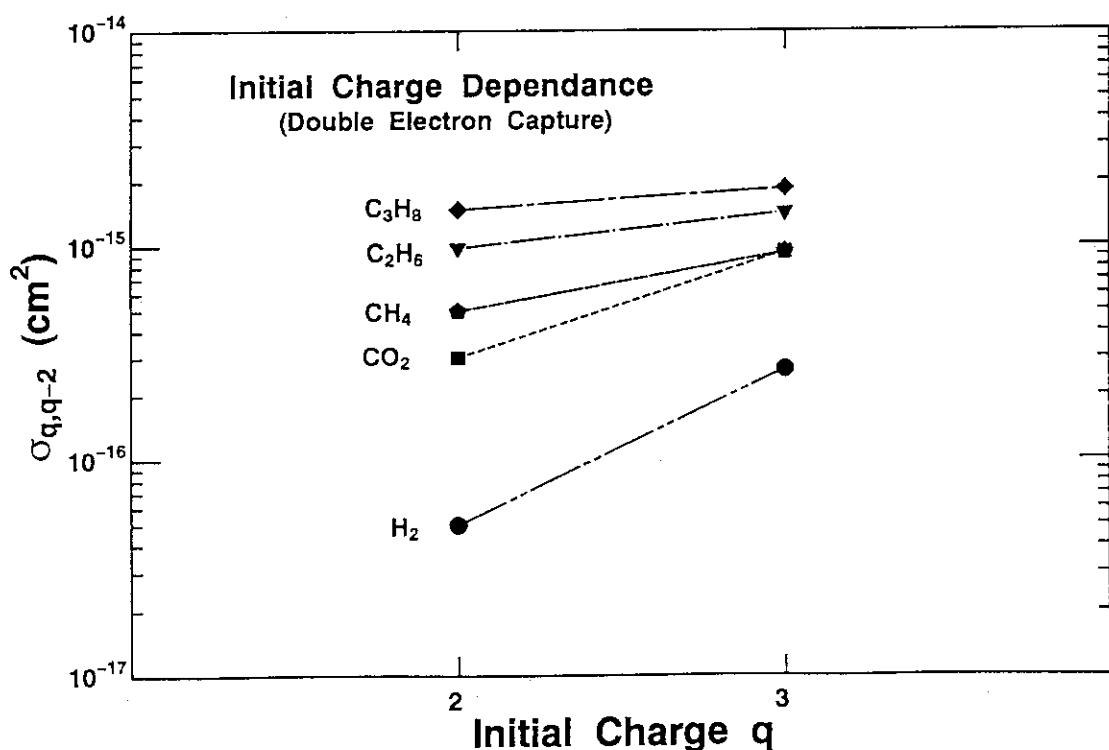


Fig. 3-6. Initial charge dependance of double electron catpure for  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{C}_3\text{H}_8$ ,  $\text{CO}_2$  and  $\text{H}_2$  targets.  $\text{H}_2$ , from Hanawa et al.<sup>11)</sup>

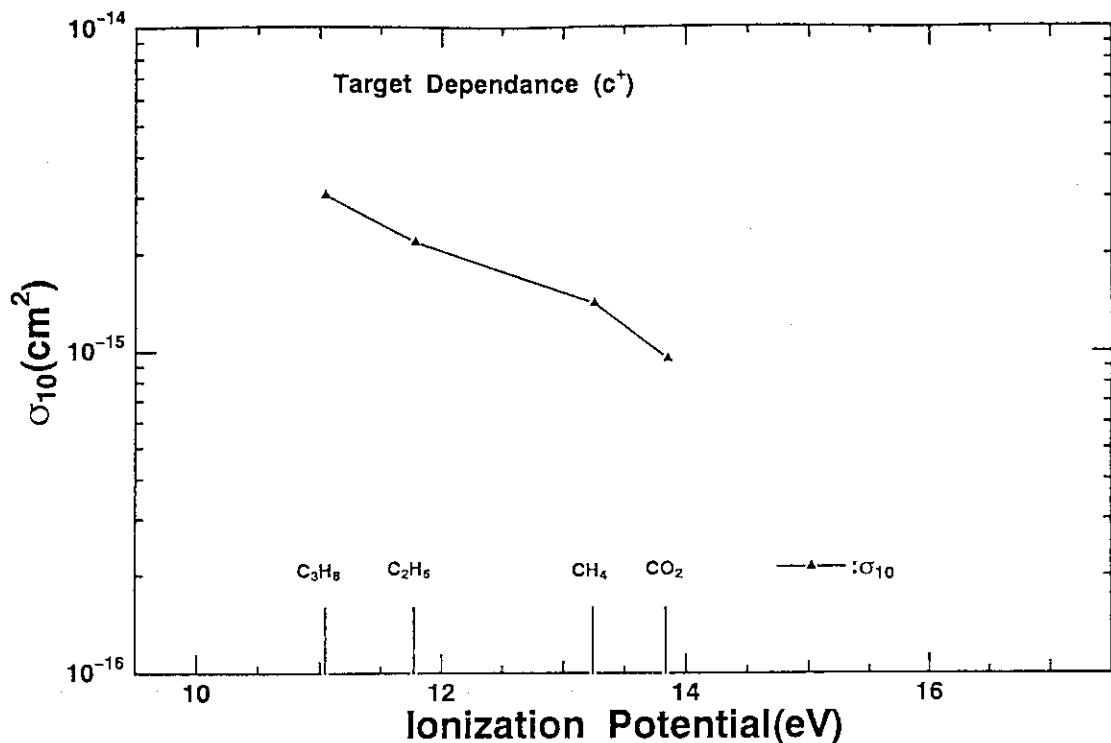


Fig. 3-7. Target dependence of the cross sections for incident  $\text{C}^+$  against the 1st ionization potential of the targets.

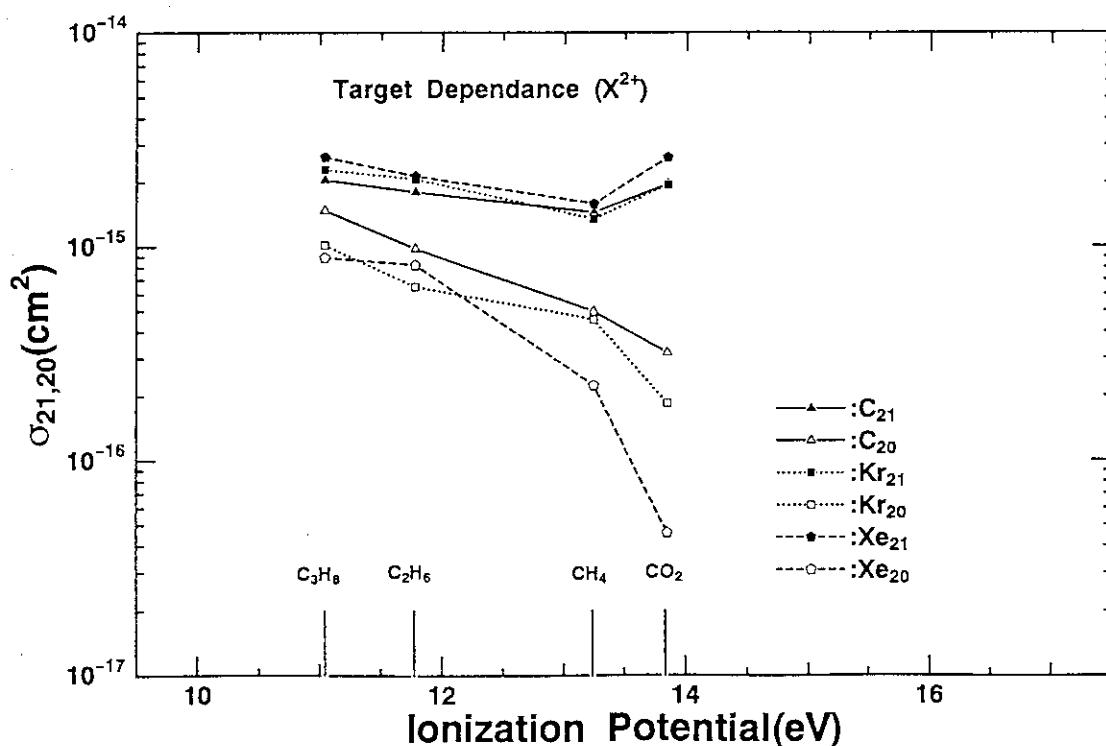


Fig. 3-8. Target dependence of the cross sections for incident  $\text{C}^{2+}$ ,  $\text{Kr}^{2+}$ ,  $\text{Xe}^{2+}$  against the 1st ionization potential of the targets.

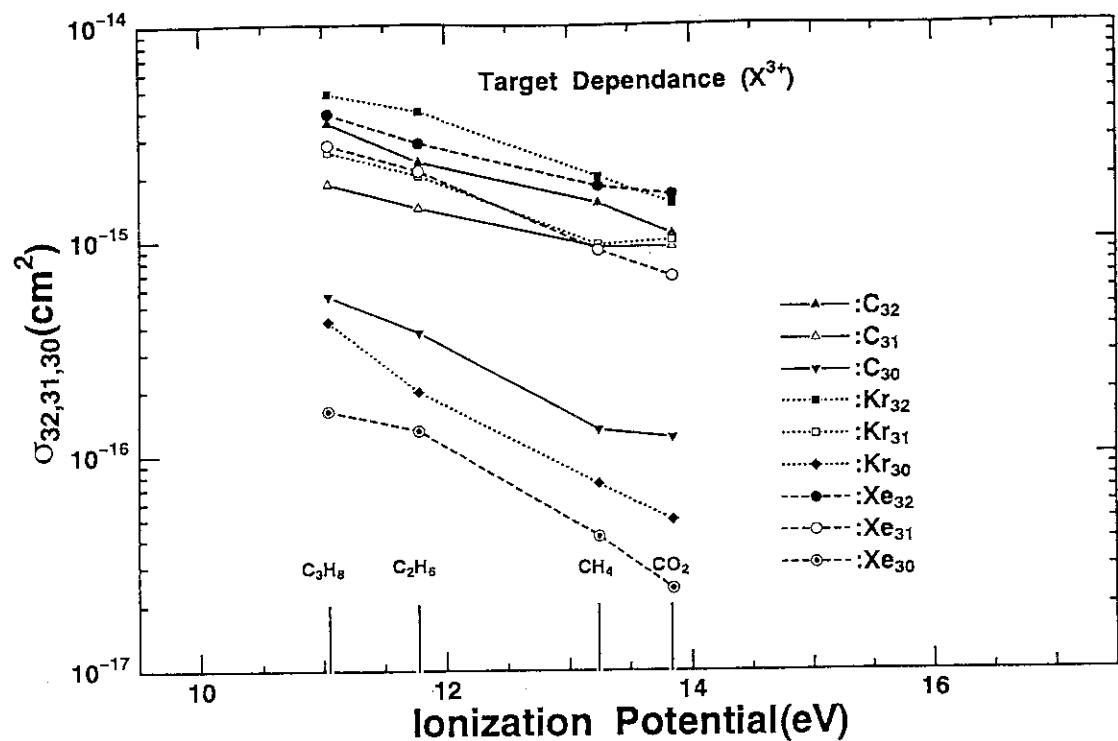


Fig. 3-9. Target dependence of the cross sections for incident  $C^{3+}$ ,  $Kr^{3+}$ ,  $Xe^{3+}$  against the 1st ionization potential of the targets.

#### 4. 解析および考察

##### 4.1 電子捕獲過程

電子捕獲過程の理論は主にその入射速度によって異なる取扱がなされている。入射粒子の速度がボーア速度より速い領域では核間力を無視した一次ボルン近似によるO.B.K.近似がよく用いられる<sup>18), 14)</sup>。また入射粒子の速度がボーア速度と同じくらいの速度領域ではCTMC法(Classical Trajectory Monte Carlo Method)がほどよい結果を示すことが分かっている<sup>15)</sup>。

さて、入射粒子の速度がボーア速度より遅い低エネルギー領域での電荷変換過程についてはこれまでに多くの研究がなされてきた。一般に単純な電子捕獲反応の場合、その反応式は次のようにかける。



ここで $\Delta E$ は入射状態の系のポテンシャルと終状態の系との無限遠でのポテンシャルの差でこれをエネルギー欠損と呼ぶ。この始状態と終状態の核間距離に対するポテンシャル曲線が交差するかしないかで異なった取扱がなされる。

###### (1) ポテンシャル曲線が交差しないとき

この場合ポテンシャル曲線は平行であり、とくに入射粒子が一価の場合が考えられる。この様な反応に対してはDemkov等のモデルが有名である<sup>16), 17)</sup>。すなわち彼等によれば、電子の移行は結合行列要素がポテンシャルの差の1/2に等しくなるような核間距離において起こると考えられる。

$$|H_{12}(R_c)| = \frac{1}{2} |\Delta V(R_c)| \quad (4-1-2)$$

$H_{12}$  : 結合行列要素

$\Delta V$  : ポテンシャルの差

$R_c$  : 電子が移動する核間距離

このときの移行確率 $P$ は

$$P = \operatorname{sech}^2\left(\frac{\pi |\Delta V(R_c)|}{2\lambda v(R_c)}\right) \sin^2\left(\frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} H_{12} dt\right) \quad (4-1-3)$$

で表せられる。断面積は衝突径数について積分してやれば求められる。このモデルは入射エネルギーが数十eV程度のときに有効であり本実験では当てはまらない。エネルギーがもう少し高い領域では $\Delta E \sim 0$ となるような反応でのSmirnovによるモデルがある<sup>18), 19)</sup>。本実験での $\sigma_{10}$ の解析はこのモデルを用いて解析した。Smirnov等のモデルについては4-2で詳しく述べる。

###### (2) ポテンシャルが交差する場合

この場合は入射粒子が二価より大きいときなどが考えられる。このとき始状態と終状態の断熱ポテンシャルは次のように表せられる。

$$V_i(R) = -\frac{q^2 \alpha_B}{2R^4} \quad (4-1-4)$$

$$V_f(R) = \frac{q-1}{R} - \Delta E \quad (4-1-5)$$

$V_i(R)$  : 始状態の断熱ポテンシャル

$V_f(R)$  : 終状態の断熱ポテンシャル

$\alpha_B$  : ターゲットBの分極率

$R$  : 核間距離

但し終状態では分極を無視している。(4-1-4)、(4-1-5)式は、始状態ではお互い近づくに従って分極による引力が働き、終状態ではクーロン反発による斥力が働くことを意味している。これらが交差するときの様子を示した図をFig. 4-1に示す。A<sup>(q-1)++</sup>は励起状態に捕獲されたことを表している。一般にこの交差半径が大きく、捕獲されるチャンネルが多いほど断面積は大きくなり、エネルギー依存性は平坦になる。Landau、Zener等は二状態のみを考えポテンシャルが交差する点での電子の移行確率を求め断面積を計算した。これはLandau-Zenerモデルと呼ばれポテンシャル交差の概念を用いたモデルとしては最初のものである<sup>20), 21)</sup>。このモデルが成り立つのは電子があるチャンネルに強く捕獲される場合で、実際には図に示したように同時に励起状態に捕獲される可能性もあるので多電子系にはあまり適当でない。入射イオンに多荷イオンを用いた場合には捕獲されるチャンネルが多くなり、これに対する交差点も増える。このような場合にはある限界交差半径を考え、その半径内で電子が移行するとするような統計的モデルも提唱されている<sup>21)</sup>。

今回のような分子をターゲットに用いた場合には、捕獲した電子が励起状態に捕獲されることの他に、ターゲットの分子が解離することも考えられる。したがって関連するポテンシャル交差も多くなることが予想される。実際にKamber等のAr<sup>2+</sup>入射による実験では、ターゲットに分子を用いた場合、Ar<sup>+</sup>のエネルギースペクトルは全体に巾の広いピークとなり解離によるチャンネルの増加が見られたことを報告している<sup>23)</sup>。

以下の項では一電子捕獲、二電子捕獲について解析、考察を述べる。なお以下で用いる原子のエネルギー準位についてはMoore等<sup>24)</sup>、分子の第一電離ポテンシャルについては、Robinson等<sup>25)</sup>を用いた。

#### 4. 2 一電子捕獲

##### 4.2.1 $\sigma_{10}$

前項でも述べたように入射粒子が一価の場合ポテンシャル曲線は平行であることが考えられる。この様な反応に対するモデルの一つにSmirnov等の共鳴電子捕獲モデルがある<sup>18), 19)</sup>。彼らによれば、電子が移行する際の核間距離を $R_c$ とすると次の関係が成り立つ。

$$\sigma = \frac{1}{2} \pi R_c^2 \quad (4-2-1)$$

$$\int_{R_c}^{\infty} \frac{|V_i(R) - V_f(R)| R dR}{v \sqrt{R^2 - R_c^2}} = \left( \frac{\pi R_c}{2\gamma} \right) |V_i(R_c) - V_f(R_c)| = \frac{11}{40} \quad (4-2-2)$$

$$\gamma = \sqrt{2 I_1} \quad (4-2-3)$$

$I_1$  : ターゲットの電離ポテンシャル

(4-2-2)における $|V_i(R_c) - V_f(R_c)|$ はそれぞれの波動関数を解くことによって得られる

がややめんどうなので(4-1-2)式を代入することによって簡略化した。(4-1-2)式の結合行列要素はOlson等によって近似式が提唱されている<sup>26)</sup>。すなわち

$$H_{12}(R) = I_1^{0.5} I_2^{0.5} R^* e^{-0.86R^*} \quad (4-2-4)$$

$$R^* = \frac{R}{2} (\sqrt{2I_1} + \sqrt{2I_2}) \quad (4-2-5)$$

$I_1$  : ターゲットの電離ポテンシャル

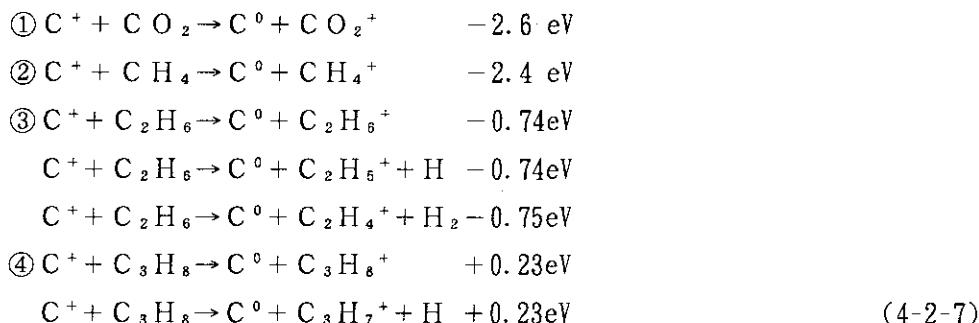
$I_2$  : 入射粒子の電離ポテンシャル

これより(4-1-2)、(4-2-2)、(4-2-3)、(4-2-4)、(4-2-5)式をまとめると結局

$$R_c^{0.5} H_{12}(R_c) = 0.11 v \gamma^{0.5} \quad (4-2-6)$$

を満たす $R_c$ を求めてやれば断面積が求められる。

得られた計算結果と測定した断面積を比較した図をFig. 4-2に示す。まずエネルギー依存性であるが、共鳴モデルで計算した断面積はエネルギーが大きくなるに従って小さくなっているが実際の断面積はCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>はやや増加し、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では平坦になっており大きなくい違いを見せていく。ターゲット依存性については、計算による結果が僅かな依存性しか持たないのに対し、実際の断面積は大きな依存性を持つ。そこでこれらの反応の $\Delta E$ を見てみると



となる。①、②の場合ターゲットが励起や解離したときのものはここに示していないが、この場合 $\Delta E$ は①、②に示した値よりも大きくなる。したがってターゲットにCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>を用いた場合共鳴が起こるチャンネルが無いのに対しC<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>の場合はターゲットの励起、解離を含めていくつかのチャンネルが存在し、これが断面積のターゲット依存性に関係していると考えられる。またEliot等はH<sup>+</sup>と分子ターゲットとの一電子捕獲断面積を測定し、このモデルとの比較を行っているが、ターゲットがCH<sub>4</sub>の場合は測定値とよい一致を得ている<sup>3)</sup>。

#### 4.2.2 $\sigma_{21}$ 、 $\sigma_{32}$

##### (1) 古典的一電子モデル

第三章で述べたように一電子捕獲断面積は入射電荷によって振動しているがこれを説明するモデルとしてRyufuku等の古典的一電子モデル(Classical One Electron Model:COEM)がある<sup>27)</sup>。まず電荷移行が起こるためにには次の条件が満たされなければならない(Fig. 4-3)。

A<sup>q+</sup> + B → A<sup>(q-1)+</sup> + B<sup>+</sup>のとき

$$-I_B - \frac{q}{R} = -I_A - \frac{1}{R} \quad (4-2-8)$$

$$-I_B - \frac{q}{R} \geq -U_{MAX} = -\frac{(\sqrt{q}+1)^2}{R} \quad (4-2-9)$$

$I_A$  : A  $(^{q-1})^+$  の電離ポテンシャル

$I_B$  : B の電離ポテンシャル

(4-2-8)式は電子が  $A^{q+}$  と  $B^+$  に存在するときのエネルギーが等しくなる条件、(4-2-9)式はお互いが作るクーロン障壁を電子のエネルギーが超えている条件を表す。このとき電子を捕獲した  $A^{(q-1)+}$  を水素原子様とすると  $I_A$  は次のように置き換えられる。

$$-I_A = -\frac{q^2}{2n^2} \quad (4-2-10)$$

$n$  : 電子が捕獲される軌道の主量子数

よって以上の式から交差半径  $R_c$  が求められる。

$$R_c = \frac{q-1}{\frac{q^2}{2n^2} - I_B} \quad (4-2-11)$$

$$R_c \leq \frac{(\sqrt{q}+1)^2 - q}{I_B} \quad (4-2-12)$$

(4-2-11)式が(4-2-12)式を満たす条件は

$$n \leq q \left\{ 2I_B \left( 1 + \frac{q-1}{2\sqrt{q}+1} \right) \right\}^{-0.5} \quad (4-2-13)$$

で表される。つまり電子は(4-2-13)式によって選ばれる  $n$  に捕獲されると考えられるわけである。

このとき断面積は

$$\sigma = \frac{1}{2} \pi R_c^2 \quad (4-2-14)$$

で与えられる。のちにIwai等は  $A^{q+}$  や  $B^+$  を有効電荷で置き換えることによって多電子系に拡張した<sup>28)</sup>。

$$I_A = \frac{Z_A^2}{2n_A^2}, \quad I_B = \frac{Z_B^2}{2n_B^2} \quad (4-2-15)$$

$Z_A, Z_B$  : A, B の有効電荷

$n_A, n_B$  : 有効主量子数

これを(4-2-11)、(4-2-12)式に代入してやれば断面積が求められる。

得られた結果と実際の断面積との比較を示した図をFig. 4-4~Fig. 4-7に示す。古典的一電子モデルによる計算では、断面積は有効電荷に対して振動しており、振動の幅は有効電荷が大きくなるに従って小さくなる。これは有効電荷が小さいとき選択される主量子数は小さいため、主量子数が変わるとエネルギー準位が大きく変わるのに対し、有効電荷が大きくなると主量子数も大きくなりエネルギー準位の変化も小さくなるためである。実際の断面積はこの振動の幅の中にあるものの、予想される振幅よりはかなり小さい。これはこのモデルは二状態しか考慮していないのに対し、ターゲットが分子の場合は捕獲された電子の準位を一つに限定してもターゲットの振動励起や解離がおこり、これに対するポテンシャルの交差が多くなっているためであると考えられ

る。なお他の断面積との比較としてKusakabe等によるKr, Xe入射による断面積を同時に示しているが<sup>4)</sup>、いずれも断面積の振動の幅の中に入っていることが分かる。

## (2) 捕獲されるチャンネル

今回の実験では電荷変換したCイオンの内部状態およびターゲットの状態は見ていないためどういうチャンネルを経て捕獲したかということは知ることはできない。捕獲したチャンネルを直接見る方法の一つとしては電荷変換したイオンのエネルギースペクトルを測定することである。Kamber等は6keV Ar<sup>2+</sup>を希ガスおよび分子ターゲットに衝突させ、電荷変換したAr<sup>+</sup>のエネルギースペクトルを測定した。彼等によれば始状態と終状態のエネルギー欠損 $\Delta E$ が主に3~7eVの間のチャンネルに強く捕獲され、分子ターゲットの場合0~10eVの間でエネルギースペクトルが広がっていることを示した<sup>23)</sup>。そこで本実験でもだいたいこの間で電荷変換が起こっているとして捕獲されるチャンネルを見積もってみることにする。

Table 4-1、Table 4-2に電子を捕獲したのちのC<sup>+</sup>、C<sup>2+</sup>の状態を、Table 4-3、Table 4-4にターゲットの励起および解離したときの状態を示す。エネルギーはKamber等のものを用いた<sup>23)</sup>。Table 4-2については主なものを示してある。またそれぞれの状態は $\alpha \sim \iota$ 、G~C、D<sub>1</sub>~D<sub>2</sub>で表すことにする。これらの値から $\Delta E$ が計算できて主なものについてTable 4-5、Table 4-6に示す。

計算された $\Delta E$ をみると、二価入射、三価入射のいずれにおいてもCO<sub>2</sub>からC<sub>3</sub>H<sub>8</sub>と分子が複雑になるにつれて0~10eVの範囲にはいるチャンネルの数が増えていることが分かる。二価入射の場合CH<sub>4</sub>よりもCO<sub>2</sub>をターゲットに用いた場合の方が断面積は大きいが、これは $\Delta E \sim 0$ となるような共鳴捕獲過程が関係しているためであると考えられる。三価入射の場合、CO<sub>2</sub>をターゲットに用いた場合のチャンネルを見ると、強く捕獲されると考えられる3~7eVの間にほとんどチャンネルが存在せず、これによって二価入射の場合より断面積が小さくなっていると考えられる。

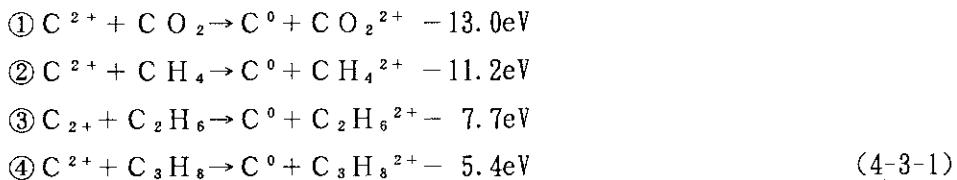
さてここで $\Delta E$ が0~10eVの範囲にはいるときの炭素イオンのチャンネルを見てみると、二価入射の場合 $\alpha$ 、 $\beta$ 、三価入射の場合 $\gamma$ 、 $\delta$ 、 $\varepsilon$ 、 $\zeta$ があてはまり、これはそれぞれn=2, 3の軌道に捕獲されることを示している。これは前項で述べた古典的一電子モデルにおいて、炭素イオンを(4-2-15)式を使って有効電荷に置き換え(4-2-13)式で求めた選択される主量子数nの値といずれのターゲットにおいてもほぼ等しくなっていることが分かる(Fig. 4-4、Fig. 4-5)。

## 4. 3 二電子捕獲

### 4.3.1 $\sigma_{20}$

二電子捕獲過程についてもポテンシャル曲線の概念で説明することが出来る。予想されるポテンシャル曲線の図をFig. 4-8に示す。一般に多荷イオン入射の場合二電子捕獲過程はある核間距離において同時に二つの電子が移行する場合と連続した一電子捕獲によって二つの電子が移行する場合の二つの場合が考えられる。後者の場合は図においてA<sup>2+</sup>イオンがR<sub>1</sub>で一つ電子を捕獲したのち、R<sub>12</sub>でさらに一つ電子を捕獲し終状態A<sup>0</sup>になる経路を通る。前者の場合はポテンシャル曲線は交差しないと考えられるのでお互いのポテンシャルレベルが接近するほど断面積は大きくなる。ここで一電子捕獲断面積に対する二電子捕獲の断面積の比をFig. 4-9に示す。CO<sub>2</sub>をターゲットに用いたときは約0.2なのに対しC<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では0.7と二電子捕獲の割合が大きくなっている。そこで

それぞれの反応を見てみると



となる。ここで分子の第二電離ポテンシャルは次のように求めた。すなわち $\text{CH}_4$ および $\text{C}_2\text{H}_6$ の第二電離ポテンシャルは実験的に分かっているので<sup>29), 30)</sup>、第一電離ポテンシャルとの比をとりこれでスケーリングすることによって他の分子についての値を求めた。また同様に励起状態、解離状態についても測定例がないのでここには記していないが①から④の反応になるに従ってレベルは密接して存在すると考えられる。さて(4-3-1)式を見ると分子が複雑になるにつれて反応の $\Delta E$ は小さくなっている。 $\Delta E$ が小さくなるとFig. 4-8において二番目に電子が移行する核間距離 $R_{12}$ は電子が一つ移行する核間距離 $R_1$ に対してよりその近くに存在することになり、二電子移行の割合が増えることが考えられる。この場合二電子捕獲過程がどのような過程を経て起こったかということは分からぬが、とくに $\text{CO}_2$ のように $\Delta E$ が大きいような場合は連続した一電子捕獲によって起こっていると考えられる。いずれにしても分子が複雑になるに従って関連するポテンシャル交差が増えるので二電子捕獲断面積が大きくなることが考えられる。またFig. 4-9にはHanaki等のKr入射の場合の断面積の比を同時に示してある。ここで $\text{CH}_4$ と $\text{C}_2\text{H}_6$ については電子の数が同じである希ガスター $\sigma$ との比較を示しているが分子の方が二電子捕獲の割合が大きいことが分かる。Krの第一、第二電離ポテンシャルはCと大体同じであるのでCも同じ様な傾向になるとを考えられる。

#### 4.3.2 $\sigma_{31}$

入射粒子が三価より大きい場合は二価の場合と違って二電子捕獲過程は異なる。それは二電子捕獲した終状態のポテンシャル曲線も始状態のポテンシャル曲線と交差するという点である。

Fig. 4-10(a)、(b)にポテンシャル曲線を示す。(a)は同時に二つの電子が移行する核間距離 $R_2$ が一電子移行に対する核間距離 $R_1$ よりも大きい場合で、二電子捕獲断面積は一電子捕獲断面積よりも大きくなる。(b)は(a)の反対で $R_1$ が $R_2$ よりも大きい場合でこのとき二電子捕獲は $R_2$ において同時に二つの電子が移行する過程と、 $R_1$ で電子が一つ移行したのち $R_{12}$ でさらに一つ電子が移行する過程の二つによって起こる。今回のようにターゲットが分子の場合、ポテンシャル曲線が多数交差していると考えられ、二価入射の場合に比べてさらに複雑である。

このようなポテンシャル曲線が密に交差している場合に多電子捕獲に拡張できるモデルとして、Janev等の古典的吸収球モデル(CASM)がある<sup>22)</sup>。彼等によれば多電子移行は連続した一電子移行によって起こることとしてその限界半径を考えることによって断面積を計算した。つまり電子が $n$ 個以上移行する限界半径をそれぞれ $R_n$ とすると

$$R_n = \frac{2\sqrt{q+1-n} + 1}{I_B(n)} \tag{4-3-2}$$

$I_B(n)$  : ターゲットの第 $n$ 電離ポテンシャル

よって電子が $n$ 個移行する断面積は

$$\sigma_n = \pi (R_n^2 - R_{n+1}^2) \quad (4-3-3)$$

で与えられる。このモデルはNiehaus等によって拡張されそれによると電子が移行したのちお互い離れていくときにターゲットに再び電子が捕獲される確率を考慮にいれて計算されている<sup>31)</sup>。今述べた二つのモデルは断面積の絶対値を求めるのには適さないのでここでは断面積の比で考えてみると(4-3-3)式より

$$\frac{\sigma_{31}}{\sigma_{32}} = \frac{R_2^2}{R_1^2 - R_2^2} \quad (4-3-4)$$

であり、これに(4-3-2)式を代入すると断面積の比が計算される。計算された断面積の比と測定された断面積の比をFig. 4-11に示す。但し分子の第二電離ポテンシャルについては前項と同じものを用いた。(4-3-4)式で表される断面積の比は連続する一電子移行によるものを表しておりその値は約0.1であるのに対し実際の値は炭化水素系で0.5~0.6、CO<sub>2</sub>にいたっては0.9とかなり大きくなっている。したがって二電子捕獲過程は(b)のような過程を取りながらも電子が二つ同時に移行するような過程が大きく、とくにCO<sub>2</sub>の場合R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>が非常に近いところにあることが予想される。また前項と同じくKr入射のときの断面積の比をFig. 4-11に示す。希ガスターゲットでみられるような激しい比の変動は分子の場合見られず、やはりポテンシャルの交差の複雑さが影響していると考えられる。

以上のように低速領域ではポテンシャル曲線の概念で過程を理解することができることが分かったが、これは全て原子の場合にあてはまるものであり分子はある程度の大きさを持つので核間距離というものはあいまいである。したがって断面積の計算値が信頼できるものなのかということには疑問が残る。いずれにしても分子の場合に拡張できるような理論の登場が望まれる。

Table 4-1. Energy level of C<sup>+</sup>.

(Label)	C <sup>+</sup>	E (eV)
$\alpha$	2p <sup>2</sup> P <sup>0</sup>	24.4
$\beta$	2p <sup>2</sup> <sup>4</sup> P	19.0
$\gamma$	2p <sup>2</sup> <sup>2</sup> D	15.1
$\delta$	2p <sup>2</sup> <sup>2</sup> S	12.4
$\varepsilon$	3s <sup>2</sup> S	9.93

Table 4-2. Energy level of C<sup>2+</sup>.

(Label)	C <sup>2+</sup>	E (eV)
$\alpha$	2s <sup>2</sup> <sup>1</sup> S <sub>0</sub>	47.9
$\beta$	2p <sup>1</sup> P <sup>0</sup>	29.8
$\gamma$	3s <sup>3</sup> S	18.4
$\delta$	3p <sup>1</sup> P <sup>0</sup>	15.8
$\varepsilon$	3p <sup>3</sup> P <sup>0</sup>	15.7
$\zeta$	3d <sup>3</sup> D	14.4
$\eta$	3d <sup>1</sup> D	13.6
$\theta$	4s <sup>3</sup> S	9.52
$\iota$	4p <sup>3</sup> P <sup>0</sup>	8.49

Table 4-3. Energy levels of ground and excited molecules ion( $M^+$ ).

The states are labeled with A, B, and C.

Target	Ground(G) (eV)	1st Exc.(A) (eV)	2nd Exc.(B) (eV)	3rd Exc.(C) (eV)
$\text{CO}_2$	13.8	17.6	18.1	19.4
$\text{CH}_4$	13.6	14.4	15.0	22.9
$\text{C}_2\text{H}_6$	12.0	13.5	15.2	20.1
$\text{C}_3\text{H}_8$	11.1	13.2	15.2	19.8

Table 4-4. Threshold energy for dissociation.

The dissociation channel are labeled with  $D_1$ ,  $D_2$  and  $D_3$ .

\*:It is approximated from data of  $\text{C}_2\text{H}_6$ .

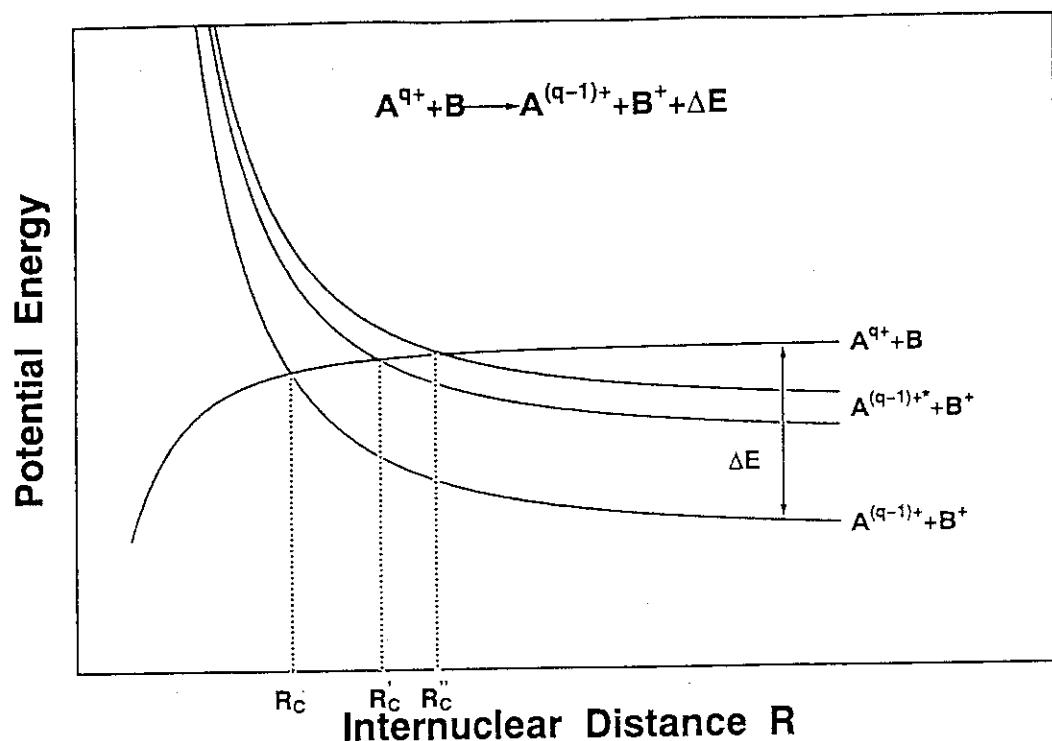
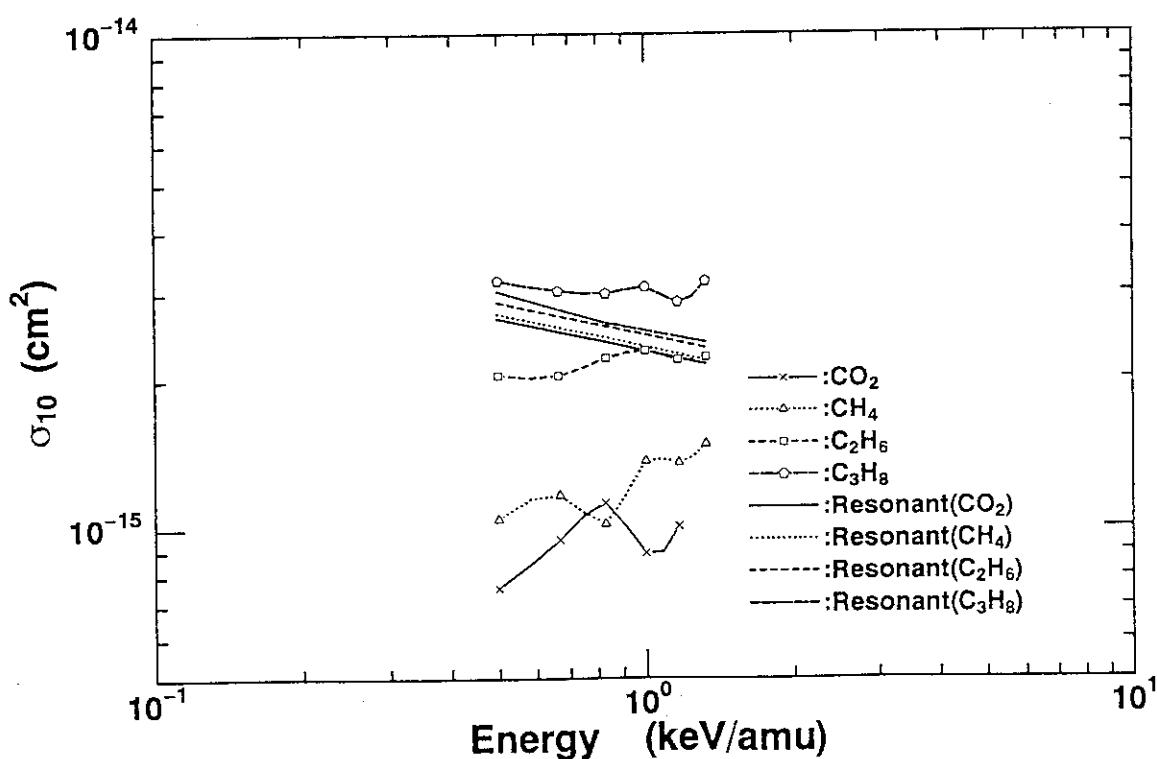
Target	$D_1$ (eV)	$D_2$ (eV)	$D_3$ (eV)
$\text{CO}_2$	$\text{O}^+ + \text{CO}(19.1)$	$\text{CO}^+ + \text{O}(19.4)$	$\text{C}^+ + \text{O}_2(\sim 23)$
$\text{CH}_4$	$\text{CH}_3^+ + \text{H}(14.4)$	$\text{CH}_2^+ + \text{H}_2(15.3)$	$\text{H}^+ + \text{CH}_3(21.3)$
$\text{C}_2\text{H}_6$	$\text{C}_2\text{H}_5^+ + \text{H}(12.0)$	$\text{C}_2\text{H}_4^+ + \text{H}_2(12.1)$	$\text{CH}_3^+ + \text{CH}_3^+(14.1)$
$\text{C}_3\text{H}_8$	$\text{C}_3\text{H}_7^+ + \text{H}(11.1)^*$	$\text{C}_3\text{H}_6^+ + \text{H}_2(11.2)^*$	

Table 4-5. Energy defects  $\Delta E$  for reaction of  $\text{C}^{2+}$  ion  
incident on  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$  and  $\text{C}_3\text{H}_8$ .

State of $\text{C}^+$ ion	State of product	$\text{CO}_2$ (eV)	$\text{CH}_4$ (eV)	$\text{C}_2\text{H}_6$ (eV)	$\text{C}_3\text{H}_8$ (eV)
$\alpha$	G	10.6	10.8	12.4	13.8
	A	6.8	10.0	10.9	11.2
	B	6.3	9.4	9.2	9.2
	C	5.0	1.5	4.3	4.6
	$D_1$	5.3	10.0	12.4	13.3
	$D_2$	5.0	9.1	12.3	13.2
<hr/>					
$\beta$	G	5.2	5.4	7.0	7.9
	A	1.4	4.6	5.5	5.8
	B	0.9	4.0	3.8	3.8
	$D_1$	0.1	4.6	7.0	7.9
	$D_2$	0.4	3.7	6.9	7.8
<hr/>					
$\gamma$	G	1.3	1.4	3.1	4.0
	A	-2.5	0.7	1.6	1.9
	B	-3.0	0.1	-0.1	-0.1
	$D_1$	-4.0	0.7	3.1	4.0
	$D_2$	-4.3	-0.2	3.0	3.9
<hr/>					
$\delta$	G	-1.4	-1.2	0.4	1.3
	A	-5.2	-2.0	-1.1	-0.8
	$D_1$	-6.7	-2.0	0.4	1.3

Table 4-6. Energy defects  $\Delta E$  for reaction of  $C^{3+}$  ion  
incident on  $CO_2$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_6$  and  $C_3H_8$ .

State of $C^{2+}$ ion	State of product	$CO_2$ (eV)	$CH_4$ (eV)	$C_2H_6$ (eV)	$C_3H_8$ (eV)
$\alpha$	G	34.1	34.3	35.9	36.8
$\beta$	G	16.0	16.2	17.8	18.7
$\gamma$	G	4.6	4.8	6.4	7.3
	A	0.8	4.0	4.9	5.2
	B	0.3	3.4	3.2	3.2
	$D_1$	0.7	4.0	6.4	7.3
	$D_2$	1.0	3.1	6.3	7.2
$\delta$	G	2.0	2.2	3.8	4.7
	A	-1.8	1.4	0.6	2.6
	$D_1$	-3.3	1.4	3.8	4.7
$\zeta$	G	-0.6	0.8	2.4	3.3
	A	-3.2	0.0	0.9	1.2
	$D_1$	-4.7	0.0	2.4	3.3
$\theta$	G	-4.3	4.1	-2.5	-1.5

Fig. 4-1. Schematic diagram of potential energy curves for  $(AB)^{q+}$  system.Fig. 4-2. Comparison between the measured  $\sigma_{10}$  values and the calculation with the Smirnov model.

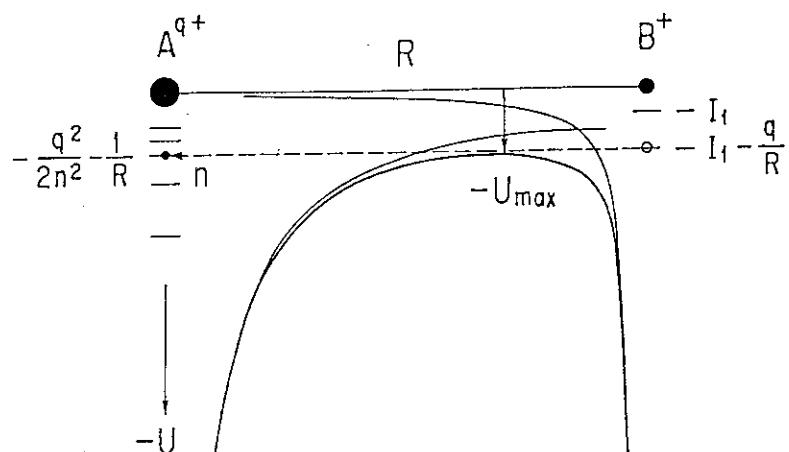


Fig. 4-3. Schematic explanation of classical one electron model (COEM) using effective charge.

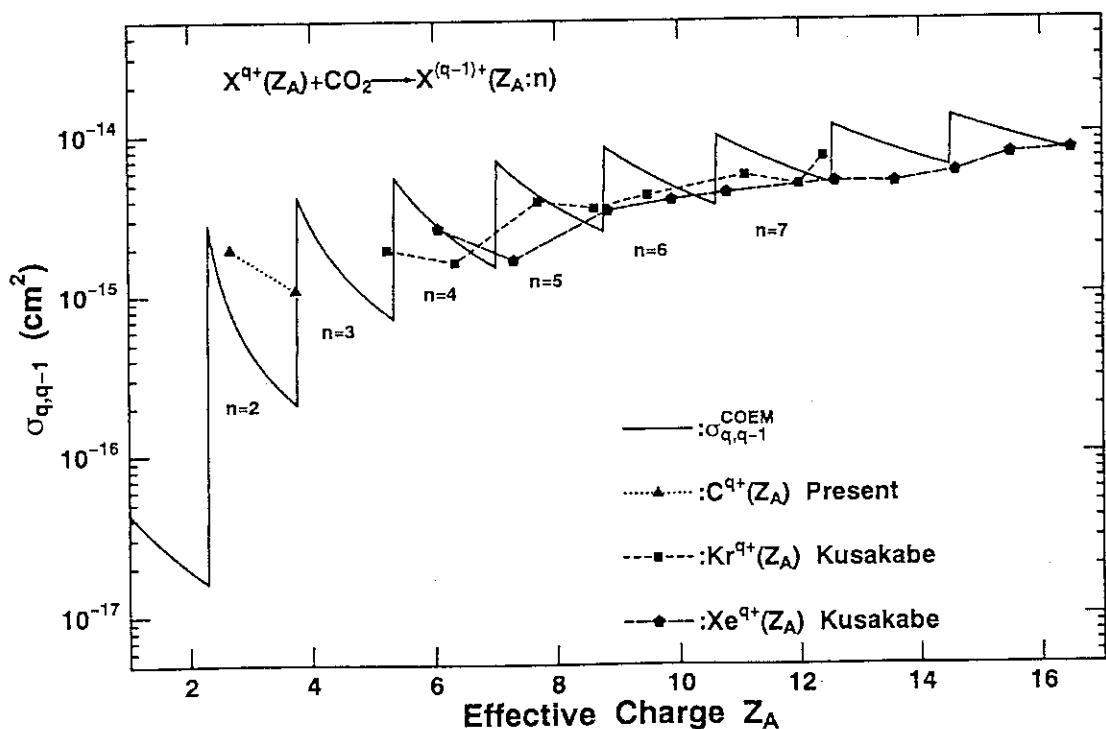


Fig. 4-4. Comparison of the measured  $\sigma_{q,q-1}$  ( $q \geq 2$ ) with the COEM on  $\text{CO}_2$  target. Data for incident Kr, Xe are taken from Kusakabe ( $E=0.286 \text{ keV/amu}$ ).

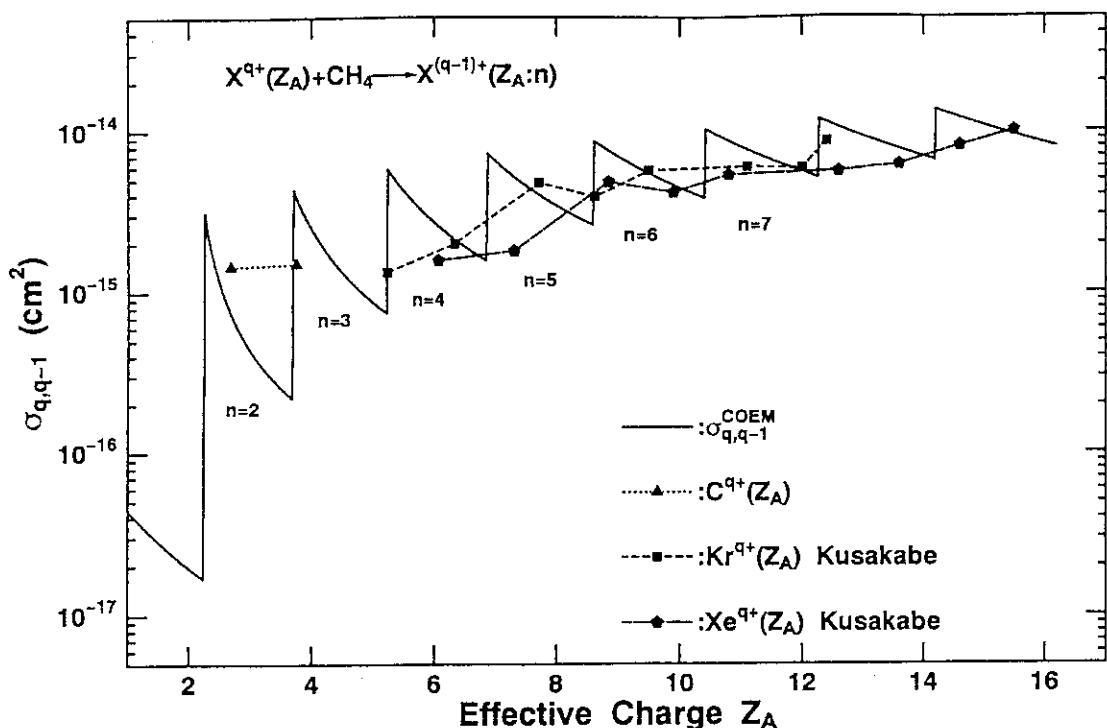


Fig. 4-5. Comparison of the measured  $\sigma_{q,q-1}$  ( $q \geq 2$ ) with the COEM on  $\text{CH}_4$  target. Data for incident Kr, Xe are taken from Kusakabe ( $E=0.286\text{keV}/\text{amu}$ ).

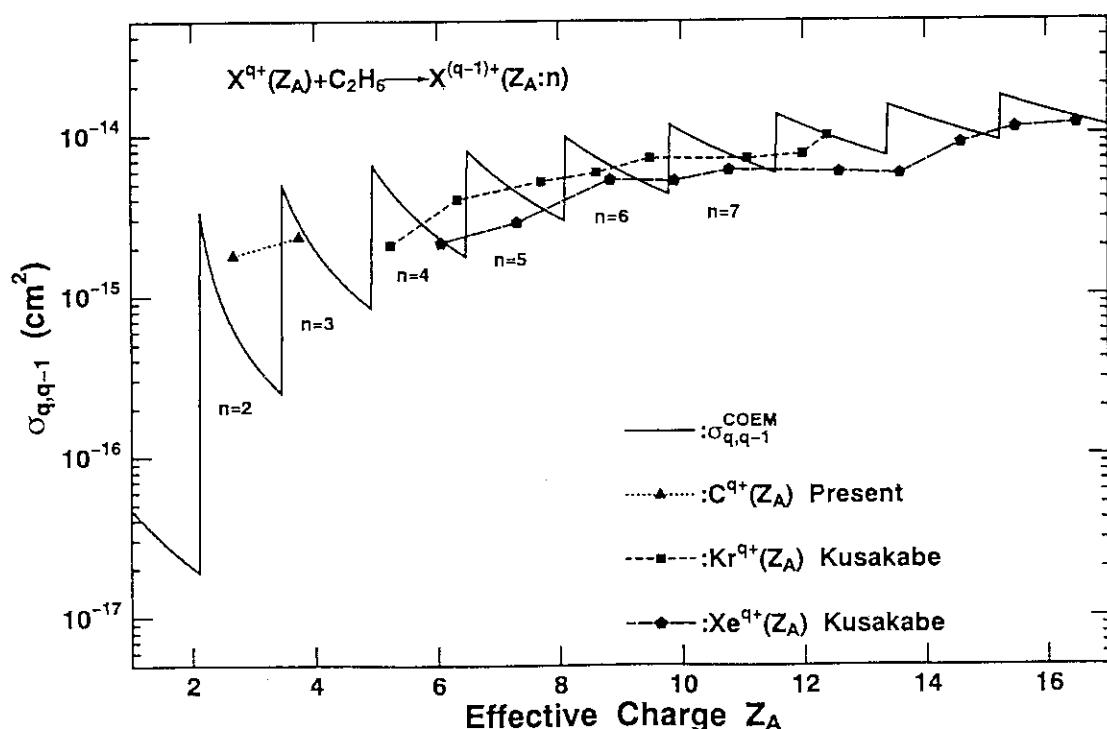


Fig. 4-6. Comparison of the measured  $\sigma_{q,q-1}$  ( $q \geq 2$ ) with the COEM on  $\text{C}_2\text{H}_6$  target. Data for incident Kr, Xe are taken from Kusakabe ( $E=0.286\text{keV}/\text{amu}$ ).

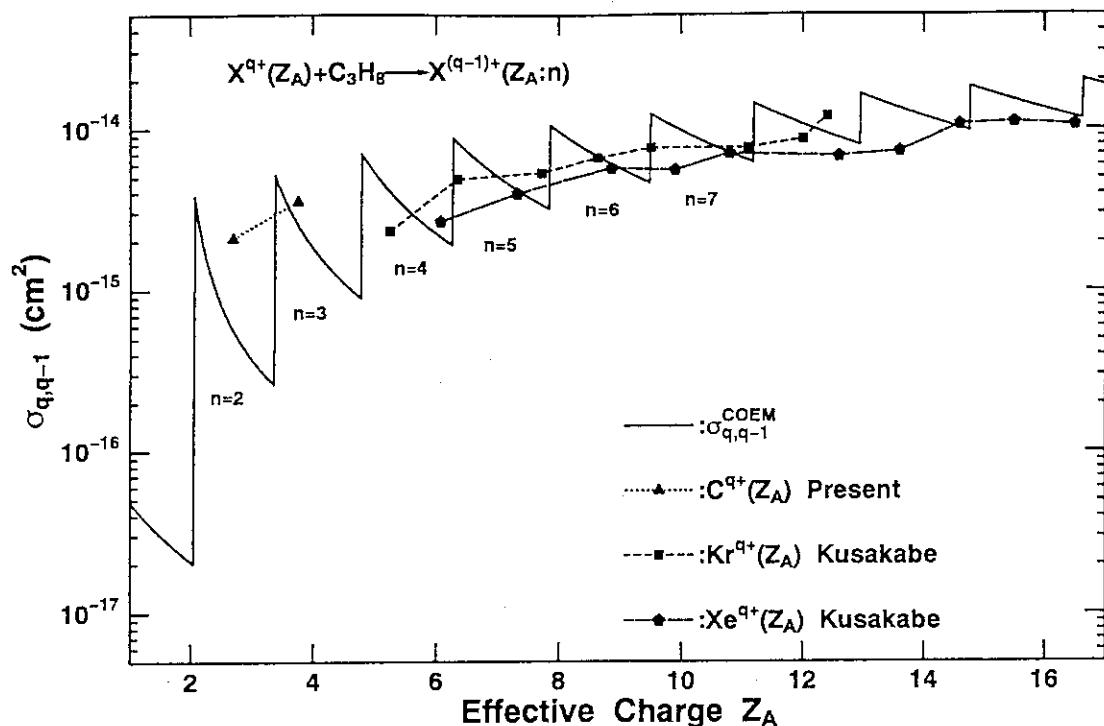


Fig. 4-7. Comparison of the measured  $\sigma_{q,q-1}$  ( $q \geq 2$ ) with the COEM on  $C_3H_8$  target. Data for incident Kr, Xe are taken from Kusakabe ( $E=0.286\text{keV/amu}$ ).

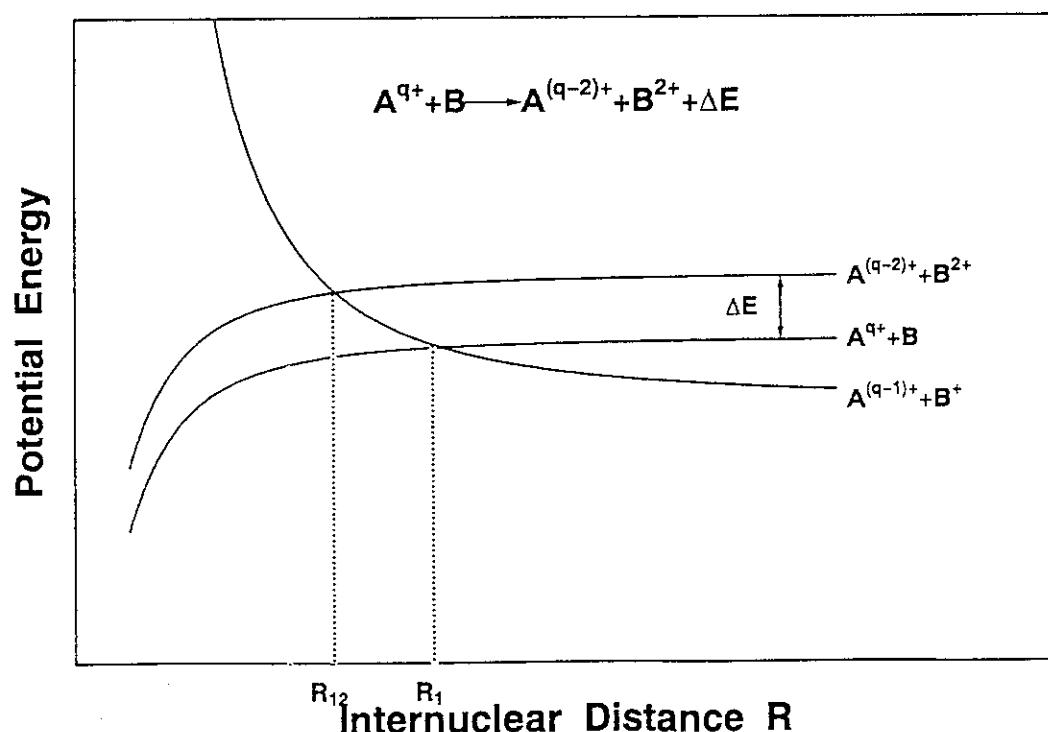


Fig. 4-8. Schematic diagram of potential energy curves for double electron capture process of the incident charge 2.

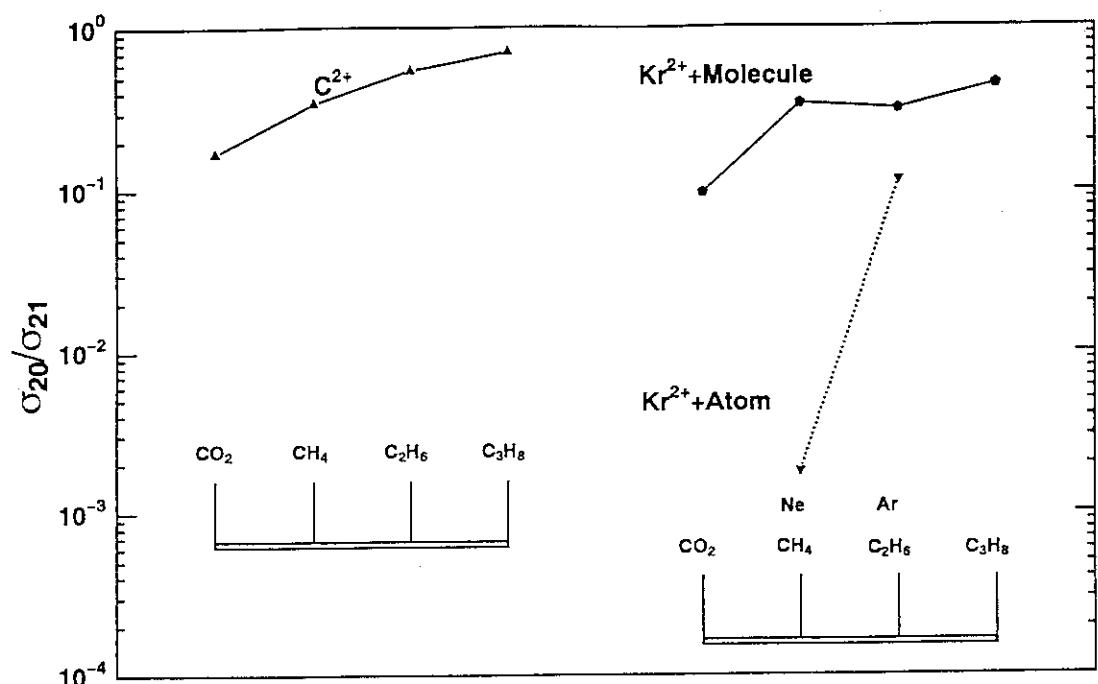


Fig. 4-9. Rations of  $\sigma_{20}/\sigma_{21}$  for the targets in the cases of  $C^{2+}$  and  $Kr^{2+}$  incident ions. Data for  $Kr^{2+}$  are taken from Hanaki et al.

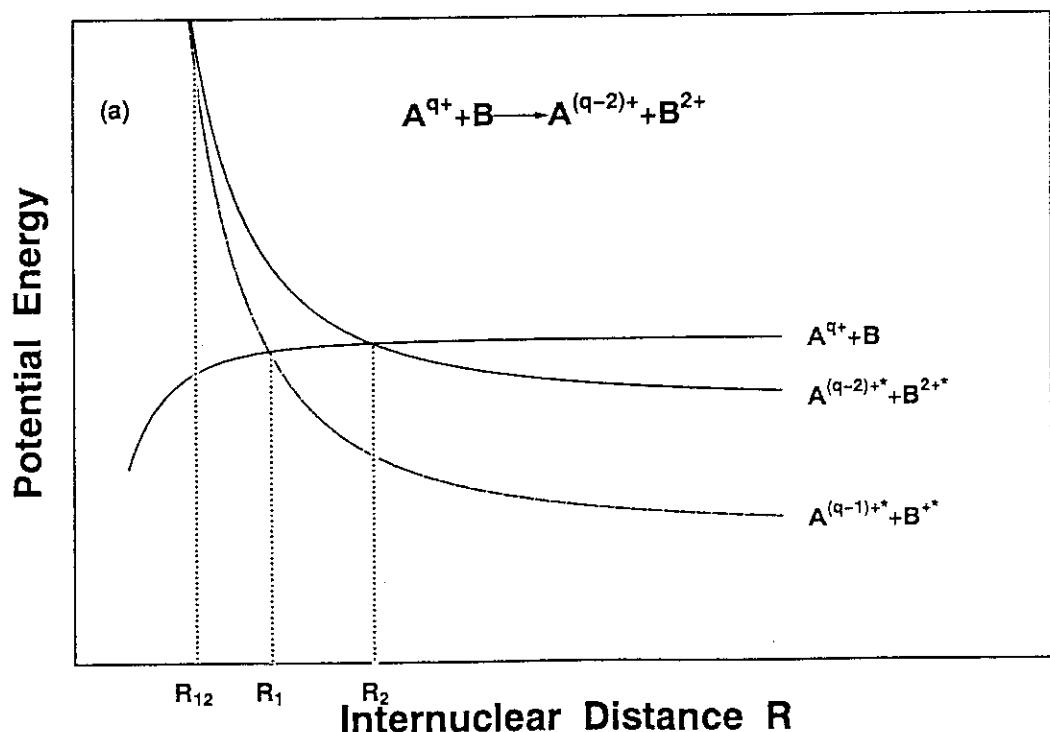


Fig. 4-10(a). Schematic diagram of potential energy curves for the double electron capture process of incident charges  $q \geq 3$ , type (a).

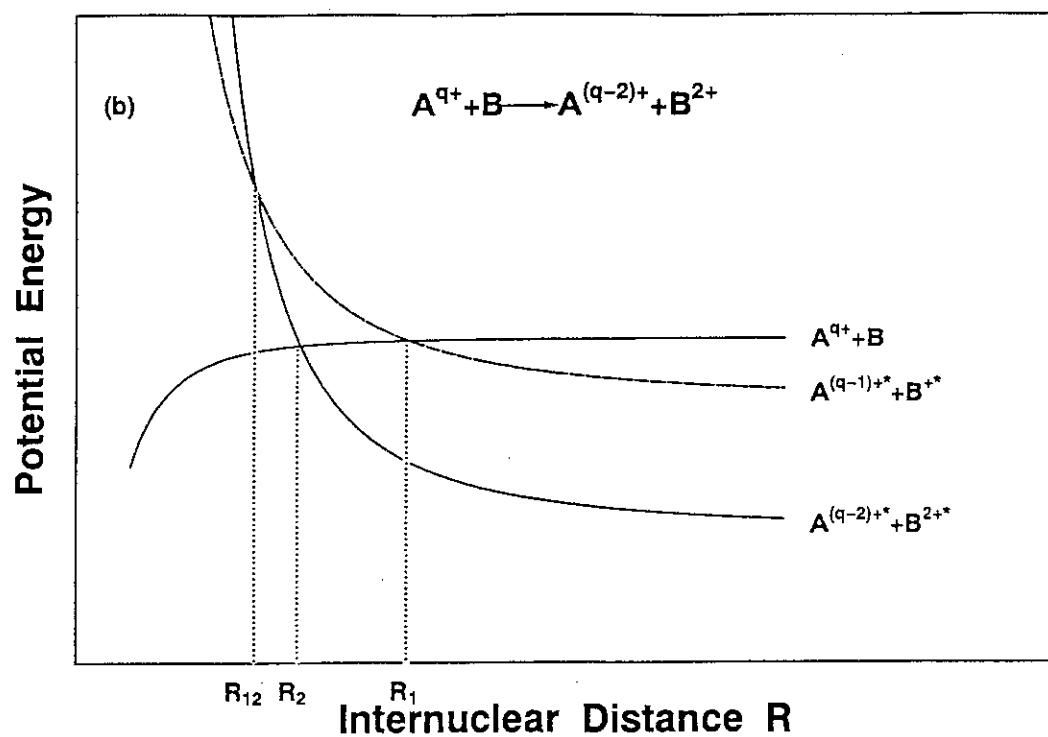


Fig. 4-10(b). Schematic diagram of potential energy curves for the double electron capture process of incident charges  $q \geq 3$ , type (b).

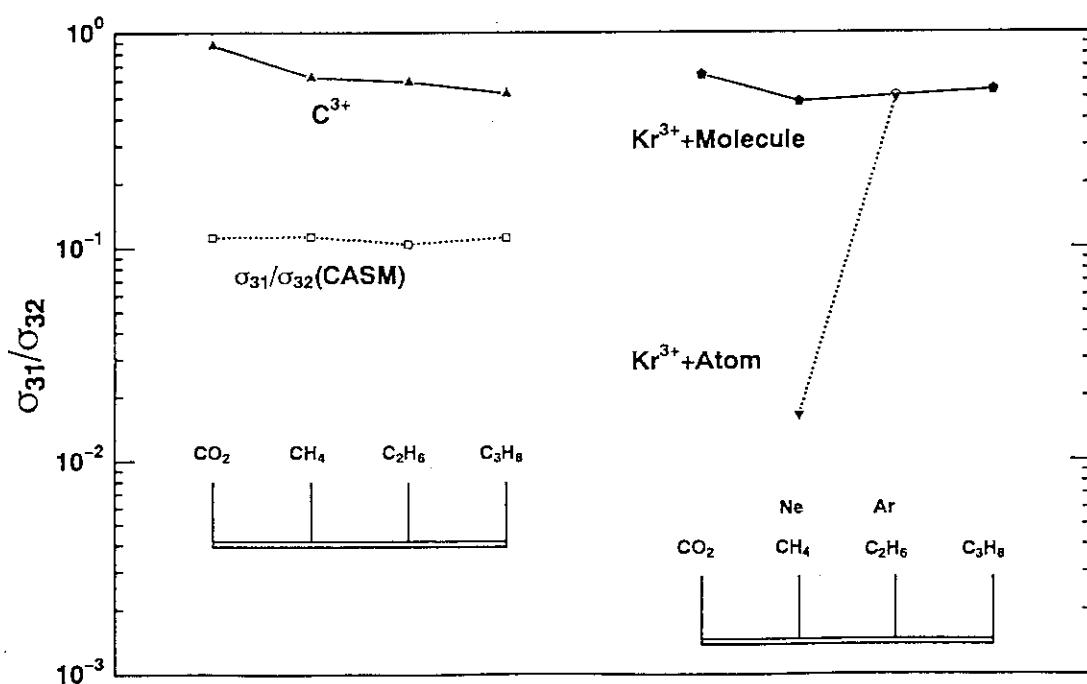


Fig. 4-11. Ratios of  $\sigma_{31}/\sigma_{32}$  for the targets in the cases of  $C^{3+}$  and  $Kr^{2+}$  incident ions. Data for  $Kr^{2+}$  are taken from Hanaki et al.

## 5. まとめ

本実験では低速の炭素イオン（一価～三価）と分子（CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>）との衝突における一電子、二電子、三電子捕獲断面積を測定した。得られた結果、特徴は次の通りである。

- ①断面積の誤差は約9~20%である。
- ②測定された断面積のエネルギー依存性はこのエネルギー領域では平坦であり、僅かにCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>をターゲットに用いたときの一電子捕獲断面積はエネルギーの減少とともに断面積の減少が見られた。
- ③断面積の入射電荷依存性は一電子捕獲断面積の場合振動が見られる。この振動はH<sub>2</sub>をターゲットに用いた場合よりは小さい。二電子捕獲断面積については二価よりも三価の方が大きい。
- ④断面積のターゲット依存性はおおむねターゲットの電離ポテンシャルが小さくなるに従って断面積は大きくなる。
- ⑤ $\sigma_{10}$ についてはSmirnovのモデルを用いて実験結果と比較した。これによるとエネルギー依存性は異なるものの、 $\Delta E \sim 0$ となるようなチャンネルが存在するC<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では値としてはほどよい一致を得た。
- ⑥ $\sigma_{21}$ 、 $\sigma_{32}$ については、古典的一電子模型を用いて実験結果と比較した。また捕獲されるチャンネルを見積もり、主に捕獲されると考えられるチャンネルは古典的一電子モデルで予測される軌道とほぼ同じになる。
- ⑦二電子捕獲過程については、二価入射の場合一電子捕獲断面積との比はCO<sub>2</sub>の場合で0.1なのに對しC<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では0.7と非常に大きくなっていることが分かった。三価入射の場合はCO<sub>2</sub>で0.9、炭化水素系で0.5~0.6と大きく二つの電子が同時に移行する過程が大きくなっていることが予想される。

本実験では入射粒子が電荷変換したのちの電荷状態しか見ていないのでどの軌道に捕獲されるかということは知ることができない。これを知る手がかりとしては電荷変換したのちの粒子のエネルギースペクトルを測定したり、放出される光を測定することが考えられる。また生成したターゲットの反跳二次イオンを同時に計測する方法も有効である。この方法では単純捕獲や移行電離などの過程を別々に測定できるからである。とくに分子の場合、解離した状態を知ることは反応の過程を理解する上で非常に重要なことであり、この様な実験が行われることが望まれる。

## 謝辞

本研究を進めるにあたっては日本原子力研究所核データセンター室長 菊池康之氏に過分のご指導ご鞭撻をいただいた。篤く御礼申し述べる。また、京都大学工学部原子核工学教室吉田紘二氏ならびに法沢恵造氏には実験を進めるにあたって多大の技術的援助をいただいた。また、実験の初期の段階では大平俊行氏、塙 伸一氏の寄与も大きい。ここに記して感謝の意を表す。

## 5. まとめ

本実験では低速の炭素イオン（一価～三価）と分子（CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>）との衝突における一電子、二電子、三電子捕獲断面積を測定した。得られた結果、特徴は次の通りである。

- ①断面積の誤差は約9~20%である。
- ②測定された断面積のエネルギー依存性はこのエネルギー領域では平坦であり、僅かにCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>をターゲットに用いたときの一電子捕獲断面積はエネルギーの減少とともに断面積の減少が見られた。
- ③断面積の入射電荷依存性は一電子捕獲断面積の場合振動が見られる。この振動はH<sub>2</sub>をターゲットに用いた場合よりは小さい。二電子捕獲断面積については二価よりも三価の方が大きい。
- ④断面積のターゲット依存性はおおむねターゲットの電離ポテンシャルが小さくなるに従って断面積は大きくなる。
- ⑤ $\sigma_{10}$ についてはSmirnovのモデルを用いて実験結果と比較した。これによるとエネルギー依存性は異なるものの、 $\Delta E \sim 0$ となるようなチャンネルが存在するC<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では値としてはほどよい一致を得た。
- ⑥ $\sigma_{21}$ 、 $\sigma_{32}$ については、古典的一電子模型を用いて実験結果と比較した。また捕獲されるチャンネルを見積もり、主に捕獲されると考えられるチャンネルは古典的一電子モデルで予測される軌道とほぼ同じになる。
- ⑦二電子捕獲過程については、二価入射の場合一電子捕獲断面積との比はCO<sub>2</sub>の場合で0.1なのに對しC<sub>3</sub>H<sub>8</sub>では0.7と非常に大きくなっていることが分かった。三価入射の場合はCO<sub>2</sub>で0.9、炭化水素系で0.5~0.6と大きく二つの電子が同時に移行する過程が大きくなっていることが予想される。

本実験では入射粒子が電荷変換したのちの電荷状態しか見ていないのでどの軌道に捕獲されるかということは知ることができない。これを知る手がかりとしては電荷変換したのちの粒子のエネルギースペクトルを測定したり、放出される光を測定することが考えられる。また生成したターゲットの反跳二次イオンを同時に計測する方法も有効である。この方法では単純捕獲や移行電離などの過程を別々に測定できるからである。とくに分子の場合、解離した状態を知ることは反応の過程を理解する上で非常に重要なことであり、この様な実験が行われることが望まれる。

## 謝辞

本研究を進めるにあたっては日本原子力研究所核データセンター室長 菊池康之氏に過分のご指導ご鞭撻をいただいた。篤く御礼申し述べる。また、京都大学工学部原子核工学教室吉田紘二氏ならびに法沢恵造氏には実験を進めるにあたって多大の技術的援助をいただいた。また、実験の初期の段階では大平俊行氏、塙 伸一氏の寄与も大きい。ここに記して感謝の意を表す。

### 参考文献

- 1) Gilbody H.B. : "Advances in Atomic and Molecular Phys.", Academic, New York 15, 293 (1979).
- 2) Gilbody H.B., Salin A., Aumayr R., Bárány A., Belkic Dz.S., de Heer F.J., Hoekstra R., Janev R.K., Nakai Y., Rivarola R.D., Tawara H. and Watanabe T. : Phys. Scr., T28, 8 (1989).
- 3) Eliot M. : J. Phys. (Paris), 38, 21 (1977).
- 4) Kusakabe T. : Doctor Thesis, (Kyoto Univ.).
- 5) Hanaki H. : Doctor Thesis, (Kyoto Univ.).
- 6) Moran T.F. and Wilcox J.B. : J. Chem. Phys., 68, 2855 (1978).
- 7) Maeda N., Kobayashi N., Kusakabe T., and Sakisaka M. : Bull. Inst. Chem. Res. (Kyoto Univ.), 57, 23 (1979).
- 8) Cocke C.L. : Phys. Rev. A, 20, 749 (1979).
- 9) Horiuchi T. : Doctor Thesis, (Kyoto Univ.).
- 10) MCP : 浜松ホトニクス
- 11) Hanawa S. : Master Thesis, (Kyoto Univ.).
- 12) Stier P.M. and Barnett C.F. : Phys. Rev., 103, 896 (1956).
- 13) Oppenheimer J.R. : Phys. Rev., 31, 349 (1928).
- 14) Brinkman C.H. and Kramers H.A. : Proc. Acad. Sci., Amsterdam (1930).
- 15) Olson R.E. and Salop A. : Phys. Rev. A 16, 531 (1977).
- 16) Demkov Yu.N. : Sov. Phys.-JETP, 18, 138 (1964).
- 17) Rapp D. and Francis W.E. : J. Chem. Phys., 37, 2631 (1962).
- 18) Smirnov B.M. : Sov. Phys.-JETP, 19, 692 (1964).
- 19) Smirnov B.M. : Sov. Phys.-JETP, 20, 345 (1965).
- 20) Landau L. : Phys. Z. Sov., 2, 46 (1932).
- 21) Zener C. : Proc. Roy. Soc. (London) A, 137, 696 (1932).
- 22) Janev R.K. and Presnyakov L.P. : Phys. Rep., 70, 1 (1981).
- 23) Kamber E.Y., Jonathan P., Brenton A.G. and Beynon J.H. : J. Phys. B, 20, 4129 (1987).
- 24) Moore C.E. : "Atomic Energy Level", NBS Circular, 467, (1971).
- 25) Robinson J.W. : "Handbook of Spectroscopy" (Boca Raton), (1974).
- 26) Olson R.E. : Phys. Rev. A 6, 1822 (1972).
- 27) Ryufuku H., Sasaki K. and Watanabe T. : Phys. Rev. A, 21, 745 (1980).
- 28) Iwai T., Kaneko Y., Kimura M., Kobayashi N., Ohtani S., Okuno K., Takagi S., Tawara H. and Tsurubuchi S. : Phys. Rev. A, 26, 105 (1982).
- 29) Griffiths W.J. : Rapid Commu. Mass Spectrum, 6, 438 (1992).
- 30) Griffiths W.J. and Harris F.M. : Int. J. Mass Spectromet. Ion Process, 110, 135 (1991).
- 31) Niehaus A. : J. Phys. B, 19, 2925 (1986).