The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	希土類元素の対称型電荷移行衝突に関する研究
Author(s)	橋田, 昌樹
Citation	大阪大学, 1996, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3110088
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

希土類元素の対称型電荷移行衝突に関する研究

1996 年 1 月

橋　田　昌　樹

①

希土類元素の対称型電荷移行衝突に関する研究

1996 年 1 月

橋　田　昌　樹

内容梗概

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士前期および後期課程において行った「希土類元素の対称型電荷移行衝突に関する研究」についてまとめたものである。

電荷移行衝突は衝突の際、一方の粒子に属していた電子が他方の粒子へ移ってしまう、いわゆる「組換え衝突」の一種であり、プラズマ物理、核融合、宇宙科学、放電、その他の関連分野における研究で重要な基礎過程である。

1930年以降、実験的に、中、低速度領域において対称型電荷移行断面積が活発に調べられてきた。しかし、測定されている元素は、水素、アルカリ族、希ガスといった単純元素がほとんどで、希土類元素についてはウランが1件報告されているだけである。このように、測定元素が限定されてきたのは

（1）精度の良い測定の困難

（2）理論計算の困難

（3）応用からの強い要請が特にない

などの理由が考えられる。実験では複雑金属元素の場合、高い密度の原子、イオンビームを生成するのが容易ではないため、精度を高められない。理論についても電荷移行衝突では、一方の原子から他方の原子へ電子が移る際に、質量、運動量、エネルギーをもっていくため、その過程が原子の運動に複雑に影響し、衝突前後の状態を根本的に変化させてしまうので、水素やヘリウム等の簡単な系以外の多電子、複雑な原子系に関しては極めて複雑な計算を必要とする。

最近、応用研究でも重金属元素の衝突の重要性が言わるものが現れた。レーザー同位体分離（原子法）である。レーザー同位体分離過程では、レーザー光で選択的に励起イオン化した標的同位体イオンを同位体蒸気中から回収する際、非標的同位体原子と電荷移行衝突し非標的同位体までもがイオンとなり回収され標的回収効率（濃縮比）が低下すると言われている。そのため、この衝突が、レーザー同位体分離法の動作条件を決める重要な要素の一つである。レーザー同位体分離の対象と考えられている原子は例えば可燃性毒物の^{157}Gdや核燃料物質である^{235}Uであり、それらの実験データはほとんど報告されていない。しかも、上に述べたように原子構造が複雑なため、電荷移行衝突断面積を計算により求めるのは困難である。

以上のような背景から、著者は金属元素の電荷移行断面積を測定すべく、レーザー光電離法を利用した新型直交ビーム衝突装置を開発し、希土類元素の対称型電荷移行断面積の測定を行った。本装置を用いることにより、GdやY原子とその一価イオン間の対称型電荷移行衝突断面積を20～1000eV（5×10^5～3.5×10^6cm／sec）の衝突エネルギー（速度）範囲で高い精度で測定した。得られた断面積は、従来、調べられてきた他の元素のものより大きく、その衝突速度依存性も異なることが明らかとなった。

これらの研究は原子衝突物理の研究に新しい発見をもたらすものである。

本論文は7章から構成されている。

第1章は緒論であり、希土類元素の対称型電荷移行の重要性について述べ、本研究の目的と

意義を明らかにした。

第2章では、単純元素の低速度領域での電荷移行断面積を2準位近似で計算し、今日までに測定されてきた元素に関して実験結果と計算結果との比較を行った。2準位近似は断面積を評価するのに有効な計算法であることを示した。この結果から、単純元素の電荷移行断面積σが電離ポテンシャルIと$\sigma \propto I^{-1.5}$の関係にあることを見出し、Heの実験データの断面積の衝突エネルギー依存性は$A'-B'\log_{10}v$で表されることが分かった。この2つの関係から任意の単純元素の電荷移行断面積を評価できる「簡易公式」を得ることができた。簡易公式を適用できる元素についても述べた。

第3章では希土類元素の電荷移行断面積を測定するための直交ビーム衝突装置の開発を行い、この装置により得られる断面積が妥当であることを報告例のあるCaを測定することにより確かめた。Caの結果は断面積の衝突エネルギー依存性にPanev *et al.*と同様の振動構造を示しており、振動周期がほぼ一致しており、振動項を無視した場合の依存性については、簡易公式と<20%内で一致している。このことから本装置で得られる断面積は妥当であると確信できた。

第4章では、希土類元素の中でも、特に同位体分離の研究において注目されている元素の一つであるGdについて、対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性をはじめて測定した。さらに、断面積の主イオン励起状態依存性を測定した。得られた結果を共鳴型電荷移行簡易公式と比較し、衝突過程について考察を行った。基底状態に近接した励起状態をもつ元素の電荷移行衝突は、対称型非共鳴と対称型非共鳴が混在する電荷移行過程と考えると、Gdの実験結果び衝突エネルギー依存性は定性的に説明できることが分かった。しかし、絶対値は現在の理論では解釈できないことが分かった。

第5章では、Gdと同じ希土類元素で、質量数の小さいYについて断面積の測定を行い、Gdの測定結果と合わせて衝突過程を考察した。断面積は衝突エネルギー1000eVで$\sigma_{Gd} > \sigma_{Y} > \sigma_{Ca} \sim \sigma_{簡易公式}$となることが分かった。この結果は、各元素の波動関数の裾部のスケール長がGd、Y、Ca、今日までに調べられてきた元素の順に大きいことを示唆してる。

第6章では、イオン生成に用いる電離過程により断面積の衝突エネルギー依存性が異なることに関して考察を行った。1光子光電離によりGd^{+}イオンを生成して原子間との電荷移行断面積を測定した。結果は1波長3光子電離生成イオンのものと異なる衝突エネルギー依存性を示すことが明らかとなった。

第7章は結論であり、得られた結果をまとめ、本論文の総括を行った。

目 次

第１章　緒論 …… 1
1.1　電荷移行衝突の物理　－対称型と非対称型、共鳴型と非共鳴型－ …… 1
1.2　今日までの電荷移行衝突に関する研究 …… 4
1.3　複雑元素の電荷移行衝突が重要となる応用研究（レーザー同位体分離） …… 7
1.4　本研究の目的と本論文章構成 …… 8
参考文献 …… 9

第２章　単純原子とそのイオン間の共鳴型電荷移行衝突 …… 10
2.1　はじめに …… 10
2.2　半古典法（衝突係数法と原子基底緊密結合法）による断面積の計算 …… 10
2.3　計算結果と実験値の比較 …… 15
2.4　共鳴型電荷移行断面積簡易公式 …… 18
2.5　２準位近似計算法の限界 …… 21
2.6　まとめ …… 22
参考文献 …… 22

第３章　電荷移行断面積測定装置の開発 …… 23
3.1　はじめに …… 23
3.2　電荷移行断面積測定用直交ビーム衝突装置の開発 …… 26
3.2.1　電荷移行断面積測定法 …… 26
3.2.2　電荷移行イオン量測定法 …… 28
3.2.3　原子ビームの生成と特性 …… 34
3.2.4　イオンビームの生成と特性 …… 36
3.3　電荷移行断面積の測定 …… 40
3.3.1　主イオン測定用コレクターからの2次電子放出 …… 40
3.3.2　電荷移行イオン測定器の絶対値較正 …… 41
3.3.3　衝突作用長 …… 44
3.3.4　原子密度の評価 …… 45
3.3.5　高速データ収集装置 …… 47
3.4　測定装置の性能確認 …… 51
3.5　原子ビーム中での他の衝突 …… 54
3.6　まとめ …… 56
参考文献 …… 57

第４章　Gdの電荷移行断面積 ……59
4.1　はじめに ……59
4.2　主イオン生成（内部エネルギー状態の制御） ……59
4.3　電荷移行断面積の主イオン生成光子エネルギー依存性 ……63
4.4　主イオンの励起状態密度分布 ……65
4.5　基底イオンと原子、及び励起イオンと原子間の電荷移行断面積 ……66
4.6　Gdの電荷移行断面積の考察 ……69
4.7　まとめ ……75
参考文献 ……76

第５章　YとGdの電荷移行断面積の比較 ……77
5.1　はじめに ……77
5.2　Yの電荷移行断面積 ……77
5.3　YとGdの電荷移行断面積の比較 ……80
5.4　まとめ ……84

第６章　1光子電離生成Gd主イオンと原子との電荷移行断面積 ……85
6.1　はじめに ……85
6.2　1光子電離生成イオンと原子間に電荷移行断面積 ……85
6.4　考察 ……87
6.5　まとめ ……89
参考文献 ……89

第７章　結　論 ……90

謝辞 ……93

付録 ……94

業績目録 ……106

第１章　緒　論

1.1　電荷移行衝突の物理　ー対称型と非対称型、共鳴型と非共鳴型ー

電荷移行衝突とは、中性原子AとイオンB^+が衝突相互作用し、Aに属していた電子がB^+に移りA^+が生成される衝突過程をいう。すなわち

$$A + B^+ \rightarrow A^+ + B$$

電荷移行衝突は、原子とイオンの元素種により図1-1のように分類できる。原子とイオンが共に同じ元素で、衝突前後で系の区別がつかないものを「対称型電荷移行衝突」といい、原子とイオンの元素が異なるものを「非対称型電荷移行」という。また、原子とイオンの内部エネルギーの和が電荷移行衝突前後で同じものを「共鳴型電荷移行」、異なるものを「非共鳴型電荷移行」という。後述のように、今日までに調べられている元素は、その第一励起状態が基底状態より比較的高いエネルギーをもつ。このような原子とイオンに対し、同一元素で非共鳴型のものは報告例[1]が極めて少ないので、一般に

「対称型」＝「共鳴型」

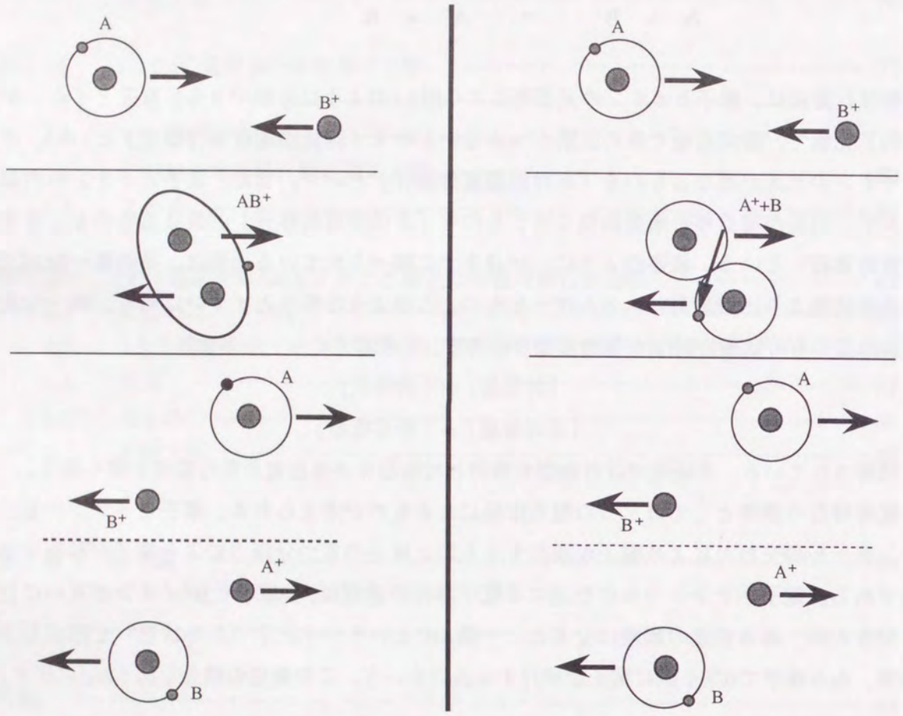
「非対称型」＝「非共鳴型」

と理解されている。本研究では対称型共鳴型と対称型非共鳴型電荷移行衝突を取り扱う。

電荷移行の機構としては二つの相互作用によるものが考えられる。原子とイオンの電子ポテンシャルの交わりにより電子が移行するものと原子のもつ分極力により電子が移行するものである。電子ポテンシャルの交差にる電子移行の過程は、A原子とB^+イオンが互いに近づいてきた時、ある程度の距離になると、一瞬AB^+という分子状態（共鳴状態）を形成し、その後、ある確率でB原子核に電子が移行する過程をいう。この衝突の概念を図1-2(a)に示す。

対称型電荷移行 $A + A^+ \rightarrow A^+ + A$	共鳴型電荷移行 $A + A^+ \rightarrow A^+ + A$
非対称型電荷移行 $A + B^+ \rightarrow A^+ + B$	非共鳴型電荷移行 $A + A^+ \rightarrow A^+ + A^* + \Delta E$ 又は $A + B^+ \rightarrow A^+ + B^* + \Delta E$

図1-1　対称型と非対称型、共鳴型と非共鳴型電荷移行衝突



（a）電子ポテンシャル交差型　　（b）捕獲型

図1-2　電荷移行の概念

図では、上から衝突前、衝突相互作用状態（共鳴状態）、衝突後に分け電荷移行過程を示した。共鳴状態では、電子はAB^{2+}の核の軌道上を回っている。衝突速度が電子軌道速度に比べ遅い場合、共鳴状態は十分長い時間形成され、この間電子はAB^{2+}核の回りを何度も回転する。衝突後、電子が占有される核（AまたはB原子核）は、相互作用を終えた地点で電子がどちらの核（AまたはB原子核）の軌道上を回っていたかできまる。逆に、衝突速度が電子軌道速度よりも速い場合、共鳴状態を形成する時間が短くなり、電子はAB^{2+}核の回りを1回も回転できなくなる。それゆえ、共鳴状態を終える地点で、電子は衝突前の原子核軌道上を回っている確率が高く、電子の移行確率は減る。

原子のもつ分極力により電子が移行する過程を捕獲型電荷移行[2],[3]と呼ぶ。捕獲型電荷移行は、A 原子とB^+イオンがある程度の距離に接近した時、A原子がB^+イオンのクーロン場により分極し、この分極モーメントとイオンとの相互作用を介して電子が移行する過程をいう。捕獲型電荷移行過程の概念を図1-2(b)に示す。この移行過程は中心力(B^+)による相互作用のため、衝突速度に強く依存する。一般に、低速度（電子の軌道速度に比べて極めて遅い衝突速度）で 捕獲型電荷移行過程が支配的となる。数eV以下の衝突エネルギーで、この捕獲型電荷移行過程による衝突断面積σ_Lは、

$$\sigma_L = \frac{\pi\sqrt{2e^2\alpha}}{v} \tag{1-1}$$

と表される。ここで、e は素電荷、αは分極力、v は衝突速度である。

電荷移行過程は衝突速度により特徴づけられ、一般的には衝突速度を次の3つの領域に分けて議論される。

低速度　$\leq \frac{1}{3}$ *a. u.*

中間速度　$\frac{1}{3}$ ~ 1 *a. u.*

高速度　> 1 *a. u.*

ここで、a.u.は原子単位で、1 a.u.$= e^2/\hbar$ (=2.188×10^8cm/sec)。本研究では、衝突速度が電子の軌道速度に比べて小さい低速度での衝突を議論する。前述の2つの衝突過程はこの低速度領域で重要なものである。

1.2　今日までの電荷移行衝突に関する研究

1930年以降、低、中速度領域における対称型電荷移行衝突断面積[4]が盛んに調べられてきた。その測定結果を図1-3に示す。非常に多くの報告があるが、これを表1-1に示すように元素別に分類すると、報告されている元素が限られていることが分かる。表中の数字は報告件数を示している。表から明らかなように、測定されているのは水素、アルカリ族、希ガス族元素がほとんどである。本研究の対象としている希土類元素については1件の報告[5]しかない(注)。このように、測定元素が限定されてきた原因の一つは、遷移金属元素の原子蒸気、イオン生成の困難さにある。

電荷移行について測定報告件数の多い元素と調べられていない元素の特徴の主な違いは、第一励起状態と基底状態のエネルギー差（ΔE）にある。測定報告のある元素の代表としてCa原子、ない元素の例としてGd原子のエネルギーレベルを図1-4に示す。Ca原子はΔE>15158cm^{-1}であるが、GdはΔE≧215cm^{-1}であり、Caに比べてΔEが2桁程度小さい。またGdはΔE<1719cm^{-1}の励起状態は4つもある。各元素の、ΔEを図1-5に示す。図中の黒丸は実験報告のある元素を示す。報告のある元素はいずれもΔE>10000cm^{-1}ある。この元素に

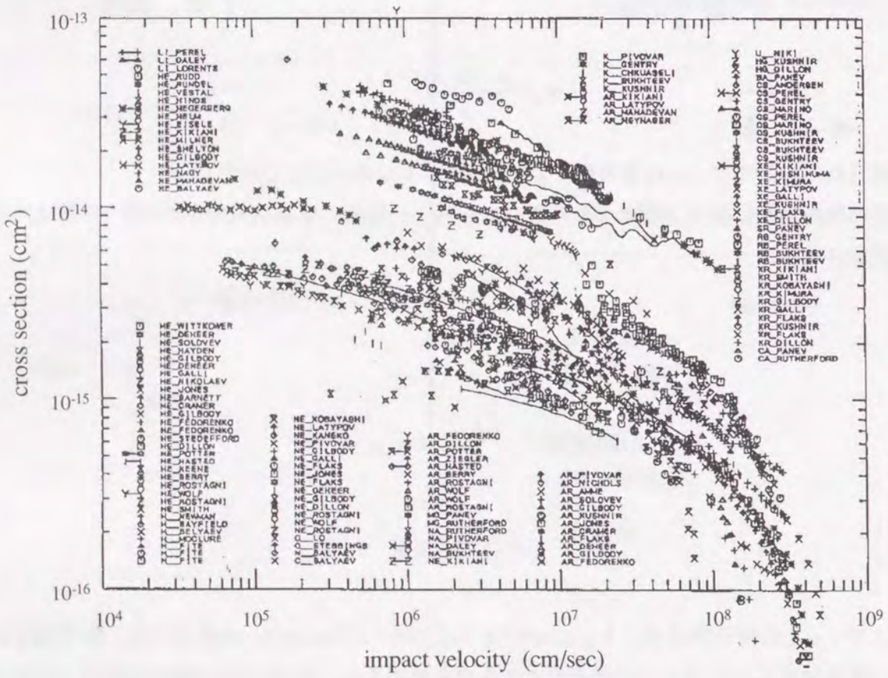


図1-3　1930年以降実験的に調べられてきた対称型電荷移行衝突断面積

表1-1　今日までに対称型電荷移行断面積が調べられてきた元素[4]

（表内の数字は報告件数を示す。　全報告件数145件）

	I アルカリ 銅	II アルカリ土 亜鉛	III アルミニウム 希土	IV 炭素 チタン	V 窒素 バナジウム	VI 酸素 クロム	VII ハロゲン マンガン	VIII 鉄、白金	0 希ガス
I	H 7								He 39
II	Li 3			C 1	N 1	O 2			Ne 16
III	Na 4	Mg 2							Ar 26
IV	K 5	Ca 2							
									Kr 10
V	Rb 4	Sr 1	Y 0						
									Xe 8
VI	Cs 10	Ba 1	Gd 0						
		Hg 2							
VII			U 1						

ついて、基底状態の原子とイオンを衝突させた場合、第一励起状態エネルギーが十分高いため、電荷移行衝突後も励起状態へ移る確率は極めて少ない。つまり衝突後も基底状態となる共鳴型電荷移行衝突になる。本研究で対象とする元素ではΔE～数100cm^{-1}程度といずれも低い。この元素の場合、基底状態の原子とイオンを用意し電荷移行衝突させたとしても、第一励起状態が基底状態に近接しているため衝突後に励起状態へ移る可能性がある。つまり、共鳴型と非共鳴型の2つの過程が混在する。

電荷移行衝突の理論に関しても多くの論文が報告されている。しかし、最も簡単な系であるH^++H→H+H^+という過程についてさえ今なお論文が出されており、この物理が複雑であることを示している。電荷移行の取り扱いが複雑なのは、組み替え衝突だからである。原子、分子衝突による励起や電離過程に関しては、標的と入射粒子を区別できる。標的粒子に対する外からの摂動によって生じた変化を調べれば、衝突過程を調べることができる。つまり、衝突前後の標的粒子+入射粒子の状態は同じハミルトニアンの固有状態のため、それらの遷移の問題として取り扱うことができる。これに対し組み替え衝突では一方から他方へ電子が移り、それが質量、運動量、エネルギーを持ってゆくため、衝突する粒子間の運動に複雑に影響する。加えて、衝突前後の状態はそれぞれ異なったハミルトニアンの固有状態になる。このため、電荷移行は始状態と終状態が直交していない。この点が励起や電離衝突と異なる点である。理論的に取り扱えるのが、水素、アルカリ族や希ガス等の簡単な原子に限られているのが現状であり、これも、測定元素が限られている要因の一つも考えられる。そのため、遷移金属のような複雑な元素の衝突断面積に関しては実験によって調べることが意義深いものとなる。

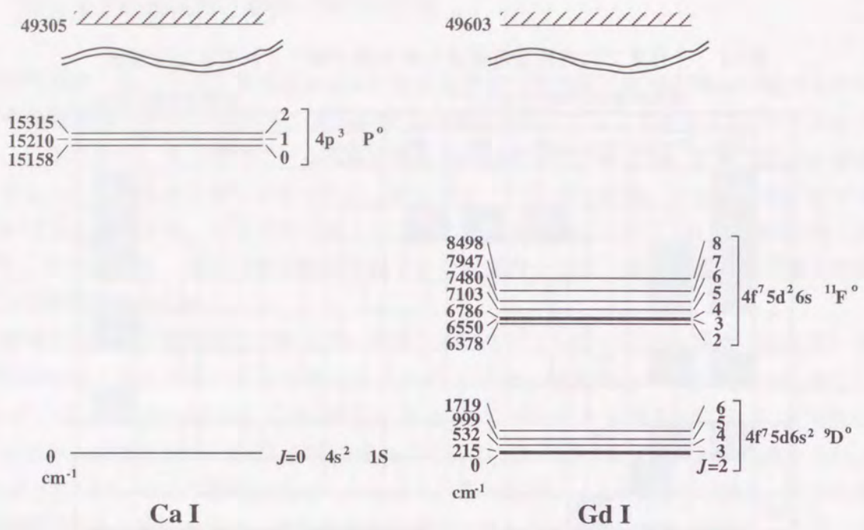


図1-4　測定報告例のある元素とない元素のエネルギー準位の違いの一例

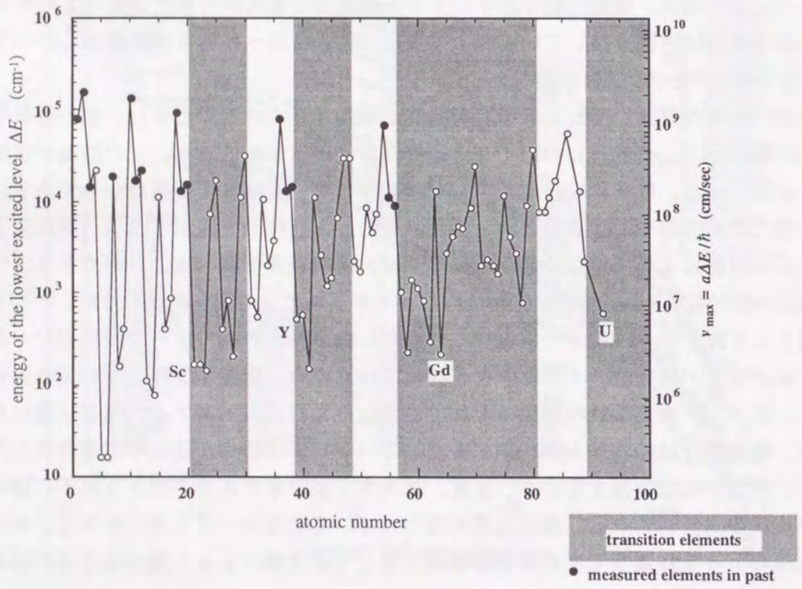


図1-5　各元素の最低励起準位エネルギー[6]

1.3　複雑元素の電荷移行衝突が重要となる応用研究（レーザー同位体分離）

電荷移行衝突は衝突の際、一方の粒子に属していた電子が他方の粒子へ移ってしまう、いわゆる「組換え衝突」の一種であり、プラズマ物理、核融合、宇宙科学、放電、その他の関連分野における研究で重要な基礎過程である。イオンと中性原子間のいろいろな衝突の断面積に関する知識は、地球や惑星の電離層の形成やふるまい、星間空間での分子の形成など、自然界における多くの物理現象を説明するうえで、重要な鍵になる。

電荷移行衝突に関して応用の面から比較的関心の高い元素は、水素、アルカリ族、希ガス、酸素、炭素であった。他の元素の衝突物理の詳細な知見については応用研究からの要請は今日まであまりなかった。しかし、近年、ウラン、ガドリニウムといった重元素の断面積のデータが要求される応用研究が現れた。それはレーザー同位体分離（原子法）である。レーザー同位体分離過程では、レーザー光で選択的に励起イオン化した標的同位体イオンを同位体蒸気中から回収する際、非標的同位体原子と電荷移行衝突し非標的同位体までもがイオンとなり、標的回収効率（濃縮比）が低下すると言われている（図1-6）。そのため、この衝突はレーザー同位体分離法の動作条件を決める重要な要因の一つとなる。レーザー同位体分離の対象と考えられている原子は例えば可燃性毒物の^{157}Gdや核燃料物質である^{235}Uであり、それらの実験データはほとんど報告されていない。しかも、1.3節で述べたように原子構造が複雑なため、電荷移行衝突断面積を計算により求めるのは困難である。

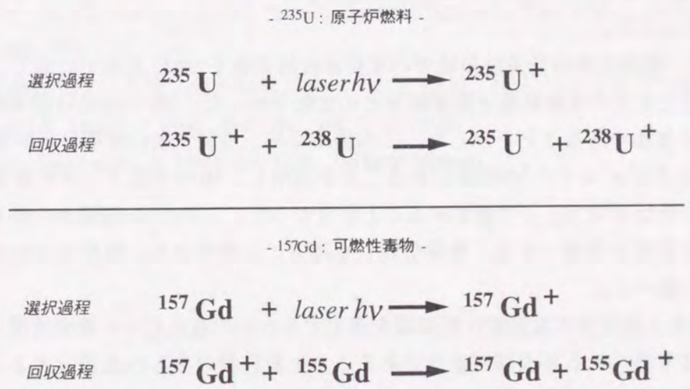


図1-6　レーザー同位体分離（原子法）における選択過程と回収過程
電荷移行衝突が濃縮比の低下の原因となる。

1.4　本研究の目的と本論文章構成

本研究の目的は、近年レーザー同位体分離などの応用研究で興味がもたれている希土類元素について中性原子とその一価イオン間の電荷移行断面積を測定し、複雑元素の衝突物理解明の端緒を開くことである。希土類元素の電荷移行衝突過程については、前節までに述べたように今までに理論研究はなく、実験的にもほとんど調べられていないため、その物理機構につては明らかではない。本研究の最終目的は希土類元素の電荷移行衝突断面積を測定し、その衝突過程の物理を調べることであるが、それに先駆け、100件以上にものぼる過去の実験報告を整理することは、本研究での考察のためにも意義あることである。本研究の課題は次の3点である。

（1）単純元素には適用できる理論計算と過去の全実験データ編纂結果をベースに、任意の単純元素に適用できる簡易公式を見出す。

（2）高融点、高電離ポテンシャルの元素の電荷移行断面積を測定できる直交ビーム衝突装置を開発する。この際、高精度の結果を得るために
○エネルギー広がりの小さい高密度イオンビームを用いる。
○始状態のイオンの励起状態を制御できる。
の2点に重点を置いた

（3）希土類元素のGdとYの断面積の衝突エネルギー依存性、イオン始状態依存性を知る。

本論文は7章から構成されている。

第1章は緒論であり、希土類元素の対称型電荷移行の重要性について述べ、本研究の目的と意義を明らかにした。

第2章では、単純元素の低速度領域での電荷移行断面積を2準位近似で計算し、今日までに測定されてきた元素の実験結果と計算結果との比較を行った。2準位近似は断面積を評価するのに有効な計算法であることを示した。この結果から、単純元素の電荷移行断面積 σ が電離ポテンシャル I と $\sigma \propto I^{-1.5}$ の関係にあることを見出し、Heの実験データの断面積の衝突エネルギー依存性は $A'-B'\log_{10}v$ で表されることが分かった。この2つの関係から任意の単純元素の電荷移行断面積を評価できる「簡易公式」を得ることができた。簡易公式の適応できる元素についても述べた。

第3章では希土類元素の電荷移行断面積を測定するための直交ビーム衝突装置の開発を行い、この装置により得られる断面積が妥当であることを報告例のあるCaを測定することにより確かめた。Caの結果は断面積の衝突エネルギー依存性にPanev *et al.*と同様の振動構造を示しており、振動周期がほぼ一致しており、振動項を無視した場合の依存性については、簡易公式と＜20%内で一致している。このことから本装置で得られる断面積は妥当であると確信できた。

第4章では、希土類元素の中でも、特に同位体分離の研究において注目されている元素の一つであるGdについて、対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性をはじめて測定した。さらに、断面積の主イオン励起状態依存性を測定した。得られた結果を共鳴型電荷移行簡易公式と比較し、衝突過程について考察を行った。基底状態に近接した励起状態をもつ元素の電荷移行衝突は、対称型非共鳴と対称型非共鳴が混在する電荷移行過程と考えると、Gdの実験結果び衝突エネルギー依存性は定性的に説明できることが分かった。しかし、絶対値は現在の理論では解釈できないことが分かった。

第5章では、Gdと同じ希土類元素で、質量数の小さいYについて断面積の測定を行い、Gdの測定結果と合わせて衝突過程を考察した。断面積は衝突エネルギー1000eVで $\sigma_{Gd} > \sigma_{Y} > \sigma_{Ca} \sim \sigma_{簡易公式}$ となることが分かった。この結果は、各元素の波動関数の裾部のスケール長がGd、Y、Ca、今日までに調べられてきた元素の順に大きいことを示唆してる。

第6章では、イオン生成に用いる電離過程により断面積の衝突エネルギー依存性が異なることを考察を行った。1光子光電離によりGd^{+}イオンを生成して原子間との電荷移行断面積を測定した。結果は1波長3光子電離生成イオンのものと異なる衝突エネルギー依存性を示すことが明らかとなった。

第7章は結論であり、得られた結果をまとめ、本論文の総括を行った。

参考文献

[1] N. Hishino, J. Phys. Soc. Jpn., **32**, 1452(1972)

[2] P. Langevin, Ann. Chem. Phys., **5**, 245(1905)

[3] F. A. Wolf and B. R. Turner, J. Chem. Phys., **48**, 4226(1968)

[4] S. Sakabe and Y. Izawa, At. Data Nucl. Data Tables **49**, 257(1991)

[5] H. Niki, Y. Izawa et al., Trans. IEE of Japan, **Vol.102C**, 45(1982)

[6] C. E. Moore, "Atomic Energy Levels", National Standard Reference Data System, NSRDS-NBS, **35**(1971), **60**(1978)

(注) 本研究を遂行している間に他の研究グループからもGd、Ndについて以下の報告があった。

[7] T. Shibata and K. Ogura, J. Phys. Soc. Jpn., **64,** 3136(1995)

[8] K.Tooma, M. Ueno *et al.*, J. Nucl. Sci. Tech., (to be published)

第２章　単純原子とそのイオン間の共鳴型電荷移行衝突

2.1　はじめに

電荷移行の物理に関しては理論、実験とも水素、アルカリ族や希ガス等の簡単な電子構成の元素に限られており、また、このような単純元素でさえ精度良く断面積を知ることにかなりの努力がなされている。本研究では、複雑元素の断面積を実験的に調べることを目的としているが、得られた結果を過去に測定された単純元素の結果と比較することは重要である。しかし、報告されている各実験の精度を考えると数件のデータだけとの比較は危険である。この章では、低速度領域での電荷移行断面積計算法として良く用いられる半古典法を紹介し、今日までに測定されてきた元素と計算結果との比較を行い、単純元素の断面積を計算するのに有効であることを示す。更に、過去の全実験データと計算結果をもとに任意の単純元素に適用できる簡易公式を見出し、本研究で測定する複雑元素の断面積の議論のための参照用表式とする。

2.2　半古典法（衝突係数法と原子基底緊密結合法）による断面積の計算

イオンと原子の衝突では相対運動を記述する波動関数の波長が電子の場合よりもずっと短い。陽子の衝突ならば1eVくらい以上で、重粒子ではさらに低いエネルギーでも、波長が原子の大きさよりずっと小さくなる。つまり波動性は電子の場合のように顕著に現れず、古典的な取り扱いがよい近似で成り立つことになる。そこで電荷移行衝突の理論では相対運動を古典的に取り扱い、原子の内部状態については量子論的に取り扱う半古典法が良く用いられている。本研究で対象とする低速度領域では、粒子の軌道は衝突の前後では大きく曲げられず、直線軌道による相互作用となるため、相対速度は等速直線運動として取り扱える。半古典法の概略を図2-1に示す。イオンと原子間の相対位置ベクトル**R** は

$$\mathbf{R} = \mathbf{b} + \mathbf{v}\ t \tag{2-1}$$

と表せる。ここで、**b** は垂直に選ばれた衝突係数、**v** は相対衝突速度、t は衝突時間である。電子の位置ベクトル**r** は核の重心系にある。核と電子の位置関係は

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_{A,B} \pm \frac{1}{2}\mathbf{R} \tag{2-2}$$

で与えられる。有効断面積 σ を求めるには、ある **b** に対して１回の衝突で電荷移行衝突が起こる確率 $P(\mathbf{b},\mathbf{v})$ を計算し、衝突係数 **b** について０～∞にわたり積分すれば得られる。

$$\sigma = \int P(\mathbf{b},\mathbf{v})\mathbf{b}\ d\mathbf{b} \tag{2-3}$$

このような方法を衝突係数法 (impact parameter method) とよぶ。Pを求めるには時間を含んだ波動方程式

$$H\Psi(\mathbf{r},t) = i\hbar\frac{\partial\Psi(\mathbf{r},t)}{\partial t_r} \tag{2-4}$$

を解かなければならない。ここで、Hはハミルトニアンを示し、時間微分は **r** を一定として実行する。ハミルトニアンは原子AとイオンBの摂動ポテンシャルを加えたもの

$$H(t) = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V_A + V_B \tag{2-5}$$

を用いる。ここで、核同士のクーロン相互作用の項は無視した。波動関数はAとBの基底状態のみを考えた固有関数で展開できる（原子基底緊密結合法）。

$$\Psi(\mathbf{r},t) = \sum_m a_m(t)\chi_m^A(\mathbf{r}_A)\exp\left(-i\frac{E_m}{\hbar}t\right) + \sum_n b_n(t)\chi_n^B(\mathbf{r}_B)\exp\left(-i\frac{E_n}{\hbar}t\right) \tag{2-6}$$

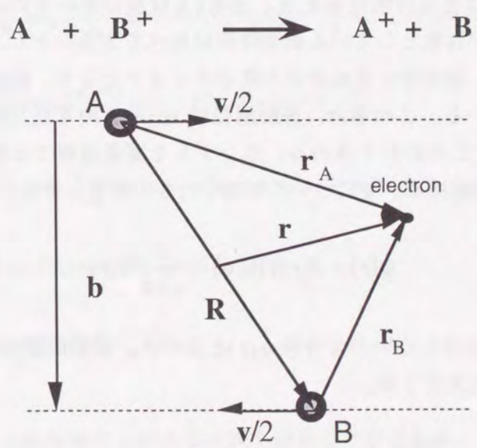


図2-1　半古典衝突係数法

$\chi^{A}{}_{m}(\mathbf{r}_A)$、$\chi^{B}{}_{n}(\mathbf{r}_B)$はそれぞれ孤立原子の並進運動を考慮し、本来の固有関数$\Psi^{A}{}_{m}(\mathbf{r}_A)$、$\Psi^{B}{}_{n}(\mathbf{r}_B)$を書き改めたもので次式で表される。

$$\chi_m^A(\mathbf{r}_A,t)=\Psi_m^A(\mathbf{r}_A)\exp\left(\frac{\hbar^2}{2m}\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}-\frac{\hbar^2}{8m}\mathbf{v}^2t\right) \tag{2-7a}$$

$$\chi_n^B(\mathbf{r}_B,t)=\Psi_n^B(\mathbf{r}_B)\exp\left(-\frac{\hbar^2}{2m}\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}-\frac{\hbar^2}{8m}\mathbf{v}^2t\right) \tag{2-7b}$$

この$\Psi^{A}{}_{m}(\mathbf{r}_A)$、$\Psi^{B}{}_{n}(\mathbf{r}_B)$はおのおの次式

$$\left\{-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla_{\mathbf{r}_A}^2+V_A(\mathbf{r}_A)\right\}\Psi_A(\mathbf{r}_A)=E_m\Psi_A(\mathbf{r}_A) \tag{2-8a}$$

$$\left\{-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla_{\mathbf{r}_B}^2+V_B(\mathbf{r}_B)\right\}\Psi_B(\mathbf{r}_B)=E_m\Psi_B(\mathbf{r}_B) \tag{2-8b}$$

を満足する。単純元素の場合、第一励起状態のエネルギーE_1が基底状態のエネルギーE_0よりも十分高いため

$$\frac{a(E_1-E_0)}{\hbar v}>>1 \tag{2-9}$$

を満足する。ここでaは相互作用長さを表し通常1Å程度が用いられる。この条件は励起状態の固有振動数の逆数が対象としている衝突時間に比べて大きいとし、基底状態のイオンと原子を衝突させた場合、衝突後も基底状態の原子とイオンとなり、励起状態への電子の移行はないことを意味している。この場合、波動関数は$m=n=0$の基底状態のみで展開してもよい。ここでは$m=n=0$として計算を進める。ランダムな衝突過程では原子の方向を区別できないので、原子の波動関数はθ、ϕについて平均したものを考えて良い。すなわち、

$$\psi(\boldsymbol{r})=R(\boldsymbol{r})Y(\theta,\phi)=\frac{1}{\sqrt{4\pi}}R(\boldsymbol{r}) \tag{2-10}$$

となる。$\psi(\mathbf{r})$は方向に依存しないので今後$\psi(\mathrm{r})$と表わす。波動関数[式(2-6)、(2-7a)と(2-7b)]を式(2-4)に代入すれば次式をうる。

$$\left\{-i\frac{\hbar}{2}v\cos\theta_A\frac{\partial\Psi(\mathbf{r}_A)}{\partial\mathbf{r}_A}-\frac{m}{4}v^2\psi(r_A)+V_B\psi(r_A)\right\}\exp(i\mathbf{x}\cdot\mathbf{r})a_0(t)$$

$$+\left\{-i\frac{\hbar}{2}v\cos\theta_B\frac{\partial\Psi(\mathbf{r}_B)}{\partial\mathbf{r}_B}-\frac{m}{4}v^2\psi(\mathbf{r}_B)+V_A\psi(r_B)\right\}\exp(-i\mathbf{x}\cdot\mathbf{r})b_0(t)$$

$$=-i\hbar\left\{\frac{da_0(t)}{dt}\Psi(\mathbf{r}_A)\exp(i\mathbf{x}\cdot\mathbf{r})a_0(t)+\frac{db_0(t)}{dt}\Psi(\mathbf{r}_B)\exp(-i\mathbf{x}\cdot\mathbf{r})b_0(t)\right\} \tag{2-11}$$

ここで、$\psi=\psi_0$、$\boldsymbol{x}=\mathrm{m}\boldsymbol{v}/2\hbar$、$(r_A,\theta_A)$と$(r_B,\theta_B)$は核A、Bを中心点としたそれぞれの座標を示す。両辺に$\psi(\mathbf{r}_A)\exp(-i\boldsymbol{x}\boldsymbol{r})$を乗じ$\mathbf{r}(r,\theta,\phi)$の電子の座標について積分したものと、他方、$\psi(\mathbf{r}_B)\exp(i\boldsymbol{x}\,\boldsymbol{r})$を乗じ積分したものから、おのおの次の2式を得る。

$$V_{AA}a_0(t)+V_{AB}b_0(t)=i\hbar\left\{\frac{da_0(t)}{dt}+S_{AB}\frac{db_0(t)}{dt}\right\} \tag{2-12a}$$

$$V_{BA}a_0(t)+V_{BB}b_0(t)=i\hbar\left\{S_{BA}\frac{da_0(t)}{dt}+\frac{db_0(t)}{dt}\right\} \tag{2-12b}$$

ここで

$$V_{AA}=\int\left\{-\frac{i\hbar}{2v}\cos\theta_A\frac{\partial\psi_0^A(r_A)}{\partial r_A}\psi_0^A(r_A)+\psi_0^A(r_A)V_B\psi_0^A(r_A)\right\}dr-\frac{mv^2}{4} \tag{2-13a}$$

$$V_{AB}=\int\left\{-\frac{i\hbar}{2v}\cos\theta_B\frac{\partial\psi_0^B(r_B)}{\partial r_B}\psi_0^A(r_A)+\psi_0^A(r_A)V_B\psi_0^B(r_B)-\frac{mv^2}{4}\psi_0^A(r_A)\psi_0^B(r_B)\right\}\exp\left(-i\frac{mvr}{\hbar}\right)dr \tag{2-13b}$$

$$V_{BB}=\int\left\{-\frac{i\hbar}{2v}\cos\theta_B\frac{\partial\psi_0^B(r_B)}{\partial r_B}\psi_0^B(r_B)+\psi_0^B(r_B)V_A\psi_0^B(r_B)\right\}dr-\frac{mv^2}{4} \tag{2-13c}$$

$$V_{BA}=\int\left\{-\frac{i\hbar}{2v}\cos\theta_A\frac{\partial\psi_0^A(r_A)}{\partial r_A}\psi_0^B(r_B)+\psi_0^B(r_B)V_B\psi_0^A(r_A)-\frac{mv^2}{4}\psi_0^B(r_B)\psi_0^A(r_A)\right\}\exp\left(i\frac{mvr}{\hbar}\right)dr \tag{2-13d}$$

$$S_{BA}=\int\psi_0^A(r_A)\psi_0^B(r_B)\exp\left(-i\frac{mvr}{\hbar}\right)dr \tag{2-13e}$$

$$S_{BA}=\int\psi_0^B(r_B)\psi_0^A(r_A)\exp\left(i\frac{mvr}{\hbar}\right)dr \tag{2-13f}$$

を表す。式(2-12a)と(2-12b)を連立させれば次式を得ることができる。

$$\frac{da_0(t)}{dt}=\frac{1}{i\hbar}\left\{\frac{V_{AA}-V_{BA}S_{AB}}{1-S_{BA}S_{AB}}a_0(t)+\frac{V_{AB}-V_{BB}S_{AB}}{1-S_{BA}S_{AB}}b_0(t)\right\} \tag{2-14a}$$

$$\frac{db_0(t)}{dt}=\frac{1}{i\hbar}\left\{\frac{V_{BA}-V_{AA}S_{BA}}{1-S_{AB}S_{BA}}a_0(t)+\frac{V_{BB}-V_{AB}S_{BA}}{1-S_{AB}S_{BA}}b_0(t)\right\} \tag{2-14b}$$

これは、A原子とB原子の波動関数の係数の時間変化に関する式である。ここでは初期状態として、原子Aが電子を占有するため、波動関数の係数はそれぞれ $|a_0(-\infty)|=1$、$|b_0(-\infty)|=0$とおける。衝突後、電子がBに占有されれば $|a_0(+\infty)|=0$、$|b_0(+\infty)|=1$となり、電荷移行したことになる。電荷移行するか否かは原子Bの波動関数の係数を調べればわかる。ゆえに電荷移行確率は$P=|b_0(+\infty)|^2$と表される。式(2-14a)と式(2-14b)を連立させれば係数 $b_0(t)$ は得られる。個々の原子A、Bの波動関数はHermannとSkillman[1]らによりHartree-Fock-Slater法で計算されたものを用いた。この波動関数を用い、式(2-13a)-(2-13f)の積分を実行し、係数 $b_0(t)$ が計算できる。

実際に、半古典法により電荷移行断面積[2]を計算した。計算では、積分は2つの核のまわりの(r,θ,ϕ)の正方形メッシュを用い、100の衝突速度 v の値について行った。それぞれのメッシュの間隔は

$$\Delta r=r_{\max}/100 \quad , \quad \Delta\theta=\pi/90$$

$$\Delta\phi=\pi/9 \quad , \quad \Delta b=r_{\max}/100$$

$$\Delta z=v\Delta t=\sqrt{\left(r_{\max}^2-b^2\right)}/100$$

である。ここで、$r_{\max}$は $|\psi(r)|=0.001$を与える最大値 r である。これらの値の選定により起こる固有の数値誤差は、衝突速度10^6-10^7cm/sec、10^7-10^8m/secの時、それぞれ10%と5%であった。この計算誤差は実験結果の分散に比べ小さいものであった。計算誤差が大きくなる速度まで計算した。この限界速度は1a.u.付近で、ここでの計算誤差は約50%であった。

ここで述べた半古典計算は、低速度領域（<1a.u.）を対象としたものであり、基底状態と第一励起状態のエネルギーが十分離れている単純元素に限っている。複雑元素の場合、基底状態に近接した励起状態をもつため、波動関数は励起状態を考慮した固有関数で展開する必要がある。そのため、展開式のm、nは励起状態の数とする必要がある。このように多くの励起状態を考慮した場合、計算では厳密に解けなくなる。

2.3　計算結果と実験値の比較

半古典法による計算の妥当性を確かめるために、今日まで測定されてきた元素の実験結果との比較を行う。実験報告数の少ない元素の場合、計算結果との一致を議論することは困難となる。従って、電荷移行過程に密接に関係し、かつ、すべての元素に共通となるパラメータを関数として、実験データと計算結果の比較を行うことが有効である。低速度領域で、イオンX^+とその原子Xを衝突させた場合の共鳴型電荷移行断面積は、主に衝突相互作用の際に形成される分子状態X_2^+の最も低い状態のポテンシャル曲線で決定される。このポテンシャル曲線は、原子Xの電離ポテンシャルに密接に関係している。簡単に言うと、原子の電離ポテンシャルが大きい元素は電子を強く束縛しているため、電子が取れにくい。つまり、電荷移行が起こりにくい（断面積は小さい）。逆に小さな電離ポテンシャルの場合、電子は弱い力で束縛されているので電子が取れやすい。つまり、電荷移行しやすい（断面積は大きい）。衝突速度を固定し、断面積を電離ポテンシャルの関数としてプロットしたものを図2-2に示す。図(a)、(b)はそれぞれ衝突速度1×10^6cm/secと1×10^7cm/secのときの実験結果（○）と計算結果（+）を示す。計算結果は今日までに報告されてきた実験結果と±15%～25%の範囲内で一致している。2.2章でも述べたように、計算は第一励起状態のエネルギーE_1が基底状態E_0に比べて十分高い元素にのみ適用できる。つまり、次のMasseyの判別式を満足している元素である。

$$\frac{a\,\Delta E}{\hbar\,v}\gg 1 \tag{2-15}$$

ここで、$\Delta E=E_1-E_0$を示す。計算と比較した元素の中でΔEが最も小さいものはBaであった。Baの場合、$\Delta E=9034\text{cm}^{-1}$である。ゆえに、計算は$\Delta E\geqq 9034\text{cm}^{-1}$の元素について有効なものである。測定報告のない元素のほとんどが$\Delta E<9034\text{cm}^{-1}$のものであり、中でも、希土類元素は特に$\Delta E$が小さい。例えば、Gdは$\Delta E=215\text{cm}^{-1}$、Yは$\Delta E=530\text{cm}^{-1}$である。実験データが全くないので、現時点では、半古典法による2準位近似計算は$\Delta E\geqq 9034\text{cm}^{-1}$の単純元素には有効であるとしかいえない。また、図にはRapp&Francis[3]の計算結果と共鳴型簡易公式の結果を破線と実線で示した。簡易公式については2.4節で述べる。Rapp&Francisらは、限られた原子について、その共鳴型電荷移行断面積を計算している。この計算手法は、取り扱いが簡単なため今日まで幅広く用いられてきが、計算精度が悪いため問題となることがある。

Rapp&Francisらによる断面積は

$$\sigma=\frac{\pi}{2}b_1^2 \tag{2-16}$$

$$\left[\frac{2\pi}{\gamma a_0}\right]^{1/2}\left[\frac{I}{\hbar v}\right]b_1^{3/2}\left[1+\frac{a_0}{\gamma b_1}\right]\exp\left[-\frac{\gamma b_1}{a_0}\right]=\frac{\pi}{6} \tag{2-17}$$

と表される。ここでIは原子の電離ポテンシャル(eV)、$\gamma=(I/I_0)^{1/2}$、a_0 はボーア半径を示す。

上式(2-16)と(2-17)から

$$v=\frac{6\sqrt{2}a_0 I_0}{\sqrt{\pi}\hbar}\left[\frac{\gamma b_1}{a_0}\right]^{3/2}\left[1+\frac{a_0}{\gamma b_1}\right]\exp\left[-\frac{\gamma b_1}{a_0}\right]=F(\gamma b_1) \tag{2-18}$$

$$\sigma=\frac{\pi}{2}\left[\frac{F^{-1}(v)}{\gamma}\right]^2\propto I^{-1} \tag{2-19}$$

となり $\sigma\propto I^{-1}$ の関係を得ることができる。図2-2より明らかなように、水素原子よりも低い電離ポテンシャルをもつ原子について、Rapp&Francisらの計算は実験結果との一致が乏しい。Rapp&Francisらの計算は電荷移行する確率Pを分子基底の波動関数から計算し、波動関数は

$$\psi=(\pi a^3)^{-1/2}\left(\frac{I}{I_0}\right)^{3/4}\exp\left[-\left(\frac{I}{I_0}\right)^{1/2}\frac{r}{a_0}\right] \tag{2-20}$$

を用いている（付録A1参照）。ここで、a_0 はボーア半径(0.52×10^{-10}m)、I_0 は水素原子の電離ポテンシャル（13.6eV）、I は対象とする原子の電離ポテンシャル(eV)である。この波動関数は実験結果[4]をもとに導出されたもので、水素原子の波動関数を対象原子の電離ポテンシャルで補正したものになっている。Rapp&Francisらの結果は13.6eV付近で実験結果と一致しているが、電離ポテンシャルが小さくなるとずれが大きくなる。水素原子以外の元素は電子を2つ以上もつ。複数個ある電子間の相互作用と電子による核の静電場の遮蔽効果により、真の波動関数は式(2-20)の波動関数とは異なってくる。それゆえ、水素原子以外の元素についてはRapp&Francisらの計算結果は不正確となる。

ここでは、計算と実験結果の比較を行い、低速度領域において、半古典原子基底緊密結合法による計算が測定結果と±15%～25%の範囲内で一致することを示した。このことから、本法は単純元素（$\Delta E\geqq9034\mathrm{cm}^{-1}$）の電荷移行断面積を計算するのに有効である事が分かった。

図2-3に半古典計算により計算したHeの断面積と実験結果を衝突速度の関数として示した。図より明らかなように低速度領域（$<2.188\times10^8$cm/sec）で計算結果は実験結果に良く一致している。このように半古典計算は断面積の衝突速度依存性についてもよく説明できる。

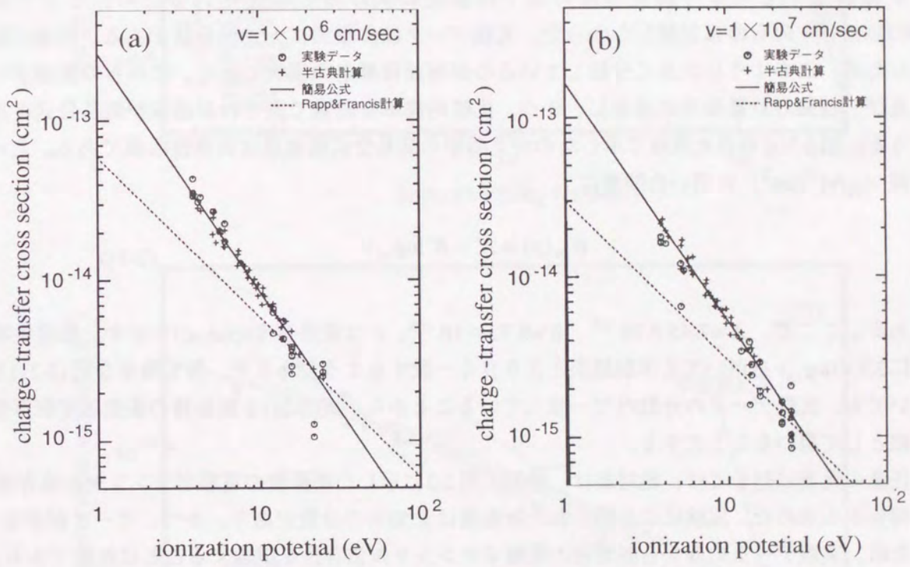


図2-2　今日までに測定されてきた元素の断面積と半古典原子基底緊密結合法により求めた断面積の比較

2.4　共鳴型電荷移行断面積簡易公式

1930年以降、電荷移行衝突断面積の多くの実験報告がなされてきた。なかでもヘリウムについては39件の報告があり、電荷移行断面積の衝突速度依存性が詳しく調べられている。また、2.3節で述べたように、単純元素の電荷移行断面積は電離ポテンシャルの関数になっている。この2つの点に着目し、断面積の衝突速度と電離ポテンシャルとの関係を見出し、公式化したものが任意の元素に適用できる共鳴型電荷移行断面積簡易公式[5]である。

図2-3に衝突速度（低速度領域）の関数としてHe原子の測定断面積を示す。Heは最も豊富に実験されてきた元素であるため、多くの実験データがある。しかし、一般には古い実験データは新しいものより測定精度の面で信頼度に欠けると考えられるため、ここでは1963以前 (注) のものは参照しなかった。実験データは典型的に±50%分散がある。実験が困難なため、このように大きく分散しているのが断面積測定の現状である。これらの実験データ及び、前節の計算結果に適合し、かつ、比較的簡単な関数で表される曲線が簡易公式となりうる。図2-3(a)中の太実線で示したのが共鳴型の簡易公式衝突速度依存性曲線である。この曲線 $\sigma_{He}(v)$（cm^2）に用いた関数は

$$\sigma_{He}(v) = A' - B' \log_{10} v \tag{2-21}$$

である。ここで、A'=7.45×10^{-15}、B'=8.72×10^{-16}、v は衝突速度(cm/sec)を示す。依存性曲線に2次の$\log_{10}v$を用いても実験結果とより良く一致するようであるが、最も簡単な式(2-21)を用いても、実験データの分散内で一致していることから、式(2-21)を断面積の衝突速度依存性曲線として用いることにする。

任意の元素に対しては、絶対値は、前節の図2-2に示した断面積の電離ポテンシャル依存性の関係から求めた。実験により得られた断面積は±50%の分散があり、かつ、データが少ないため、実験データのみから断面積の電離ポテンシャル依存性を議論することは危険である。そこで、前節の計算結果も含めて、断面積の電離ポテンシャル依存性の関係を調べることにした。図2-2(a)、(b)より断面積と電離ポテンシャルは

$$\sigma \propto I^{-1.5} \tag{2-22}$$

の関係があることが分かった。図2-2(a)、(b)中に式(2-22)の関係を実線で示す。式(2-21)と(2-22)の関係から任意の単純元素の断面積は次式となる。

$$\sigma(v) = \left(A - B\log_{10} v\right)\left(\frac{I}{I_0}\right)^{-1.5} \tag{2-23}$$

これが「共鳴型簡易公式」である。ここでA=1.81×10^{-14}、B=2.12×10^{-15}、I_0 は水素の電離ポ

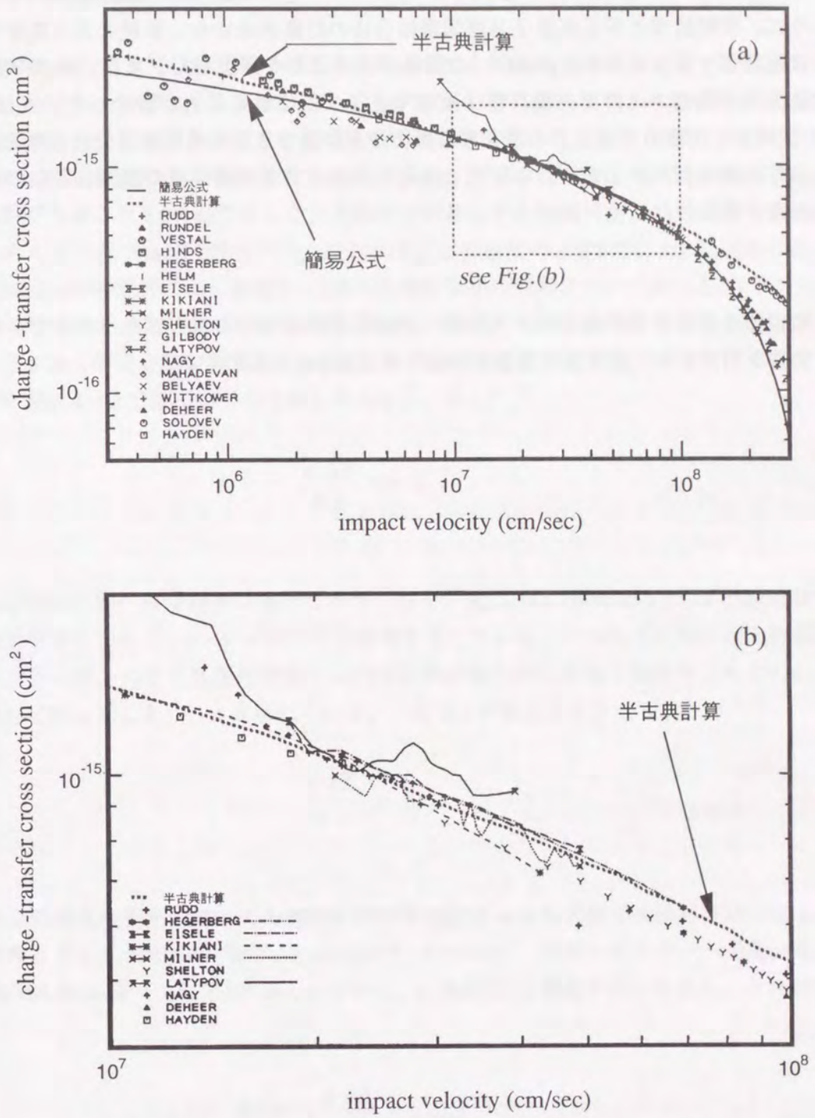


図2-3　He原子の共鳴型電荷移行断面衝突速度依存性

(a)実験結果は記号と細実線で示した。細破線が2準位近似計算結果、実線が簡易公式で用いた曲線を示す。(b)は(a)の一部を拡大したもの。(b)には曲線の密集を避けるため簡易公式曲線を示さなかった。

テンシャル13.6eV、Iは対象元素の電離ポテンシャル、$\sigma(v)$は電荷移行断面積(cm^2)である。このように、実験結果と半古典原子基底緊密結合法の計算結果から、単純元素の電荷移行断面積σは電離ポテンシャルIと$\sigma \propto I^{-1.5}$の関係があることを見出した。また、Heの実験データより断面積の衝突エネルギー依存性はA'-$B'\log_{10}v$で表されることが分かった。式(2-21)と(2-22)の関係から任意の単純元素の電荷移行断面積を評価できる共鳴型簡易公式を得ることができた。この共鳴型簡易公式を、本研究で測定する複雑元素の断面積の議論、考察のための参照用表式とする。

（注）

この年代には重要な意味はない。1934年～1985年の間に39件の報告があったにで、便宜上新しい19件を引用した。20件目の報告が1963年の発表されたものである。

2.5　2準位近似計算法の限界

2.3節で述べた計算では移行電子の波動関数として、基底状態の固有状態で展開したものを用いた。つまり、対象とする元素は第一励起状態が十分に基底状態から離れていると仮定し、基底状態のイオンと原子を衝突させれば衝突後も基底状態になるという2準位近似による計算であった。実験報告のある単純元素（$\Delta E \geqq 9034\text{cm}^{-1}$）については、この2準位近似計算で十分に説明できることを2.4節で示した。本研究で対象とする複雑元素は基底状態と第一励起状態のエネルギー差（ΔE）が小さい。ここでは、どの程度のΔEまで、2準位近似が適応できるかをMasseyの判別式により評価し、2準位近似計算法の限界について述べる。

衝突前の原子とイオンは共に基底状態にあり、低速度領域を取り扱うものとする。相互作用長さをa (m)、衝突の相対速度をv (m/sec)、第一励起状態と基底状態のエネルギー差をΔE(J)、プランク定数を2πで割ったものを$\hbar$とするとき、もし

$$\frac{a\,\Delta E}{\hbar\, v} \gg 1 \qquad (2\text{-}24)$$

であれば励起状態へ移る確率は極めて小さくなる。式(2-24)の意味は$\Delta E/\hbar$が励起状態の固有振動数を示しており、a/vが相互作用時間を示している。この相互作用時間と固有振動数の積が大きい時、つまり低速度衝突では内部状態が断熱的に変化し衝突後はもとの状態（基底状態）に戻ってしまうことを示している。一方ΔEが極めて小さく

$$\frac{a\,\Delta E}{\hbar\, v} \leq 1 \qquad (2\text{-}25)$$

となると低速度の衝突であっても内部状態が断熱的とはならず衝突後励起状態に移る。本研究で対象とする元素のGdの場合ΔE=215cm^{-1}～1719cm^{-1}、衝突エネルギー（速度）範囲は20～1000eV(4.96×10^5～3.51×10^{6}cm/sec)である。aは通常1Å程度が用いられる。これからGdの場合

$$0.116 < \frac{a\,\Delta E}{\hbar\, v} < 6.529$$

の範囲と計算される。この結果から、基底状態のGd原子とGdイオンを衝突させても、衝突後、基底状態に近接した励起状態へ移行する非共鳴型電荷移行過程も十分可能と考えられる。このため2準位近似計算は適用できない。また、断面積の計算に重要なのは波動関数であるが、断面積を決めるのは特に波動関数の裾の部分である。このような裾の部分の詳細については

今日まで、全く議論されておらず、複雑元素の断面積の計算には前節で用いた波動関数が妥当であるかどうかは明らかではない。

以上のような背景から、新型直交ビーム衝突装置を開発し、希土類元素の電荷移行断面積の測定を行うことにした。

2.6 まとめ

本章では単純元素の低速度領域での電荷移行断面積を2準位近似で計算し、今日までに測定されてきた元素の実験結果と計算結果との比較を行った。2準位近似による計算は断面積を評価するのに有効であることを示した。得られた結果をまとめると次のようになる。

（1）今日までに測定されてきた単純元素（$\Delta E \geqq 9034\mathrm{cm}^{-1}$）の対称型電荷移行断面積は2準位近似計算で良く説明できることが分かった。

（2）実験結果と半古典原子基底緊密結合法の計算結果から、単純元素の電荷移行断面積 σ は電離ポテンシャル I と $\sigma \propto I^{-1.5}$ の関係があることを見出した。また、Heの実験データより断面積の衝突エネルギー依存性は $A'\text{-}B'\log_{10}v$ で表されることが分かった。この2つの関係から任意の単純元素の電荷移行断面積を評価できる「簡易公式」を得ることができた。この共鳴型簡電荷移行断面の簡易公式を本研究で測定する複雑元素の断面積の議論、考察のための参照用表式とする。

（3）ΔE～数100cm^{-1}のような ΔE が小さい元素の電荷移行衝突はMasseyの判別式から、共鳴型電荷移行衝突のみとはならず、非共鳴型電荷移行衝突も可能となる。2準位近似計算を多準位系に拡張すれば ΔE の小さな元素の断面積を計算できるが、厳計算は現在のところ極めて困難である。また、実験報告もほとんどない。このとから ΔE～数100cm^{-1}のような小さい元素については実験的に断面積を測定する必要がある。

参考文献

[1] F. Herman and S. Skilman, Atomic Structure Calculations (Prentice-Hall, Engelwood Cliffs, NJ,1963)

[2] S. Sakabe and Y. Izawa, Phys. Rev. A, **45**, 252(1992)

[3] D. Rapp and W. E. Francis, J. Chem. Phys., **37**, 2631(1962)

[4] I. P. Iovitsu and N. I. Pallas, Sov. Phys. Tech. Phys., **4**, 781(1960)

[5] S. Sakabe and Y. Izawa, Phys. Rev. A, **45**, 2086(1992)

第３章　電荷移行断面積測定装置の開発

3.1 はじめに

２章までに述べたように、水素、アルカリ族、希ガスのような単純元素以外の元素については電荷移行衝突断面積を知るには、理論計算は困難であり、測定する必要がある。電荷移行衝突測定手法の原理は簡単である。つまり、標的となる原子を用意し、それに「銃弾」となるイオンを衝突させればよい。この反応の断面積測定のためには衝突により生成されたイオンと元のイオンを分離できなくてはならない。加えて、原子衝突の研究で興味があるのは、衝突断面積の衝突エネルギー依存性である。そのためには衝突させるイオンはエネルギーの揃ったものを用いる必要がある。

原子生成とイオン生成の難易の目安としては元素の融点と電離ポテンシャルを見るとよい。すべての元素について融点対電離ポテンシャルの関係を図3-1に示す。図より測定報告例の多い元素は比較的融点、電離ポテンシャルが低いことが分かる。希ガス族に関しては、電離ポテンシャルは高いが、通常気体なので放電によりイオンの生成ができ、比較的実験は容易であるので実験報告も多い。

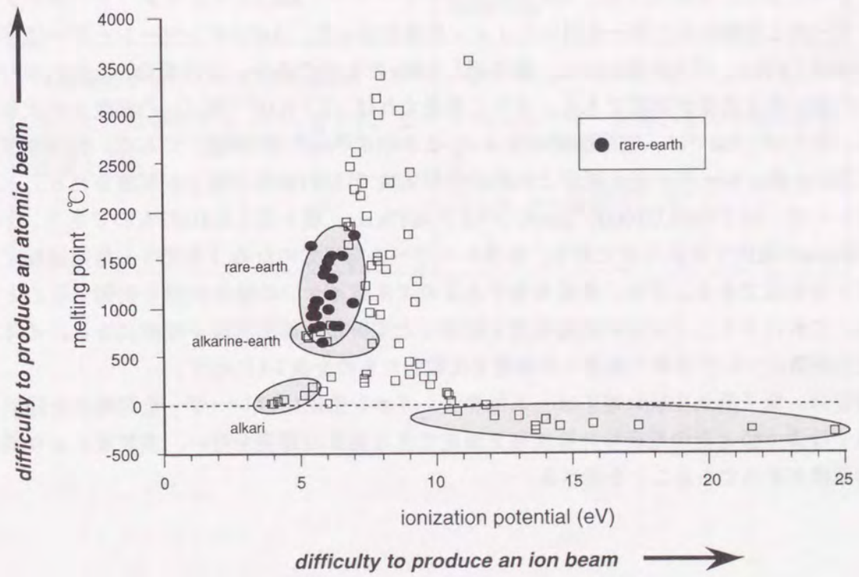


図3-1　原子、イオン生成の難易の目安となる元素の融点と電離ポテンシャル

本研究で対象とする希土類元素については融点、電離ポテンシャルの高い金属であるため、高密度のイオンを生成することが容易ではなかった。原子気体を作るには、金属の場合、融解して蒸気を作らなければならない。金属蒸気生成には、装置が比較的簡単な抵抗加熱法がよく用いられているが、抵抗加熱法では、Gd、U等のような高融点をもつ元素では、高精度測定ができるのに十分な密度の蒸気生成が困難である。そこで、1500℃程度の融点をもつ元素についても十分に加熱できる電子加熱法により、原子蒸気を生成する必要がある。

イオン生成はこれまで主に電子衝突電離、放電電離が用いられてきた。電子衝突電離では、電流を流したフィラメントから放出される熱電子を加熱し、標的原子に衝突させイオンを生成させる。この場合、電子密度は空間電荷効果により制限を受けるため、研究室レベルで十分に高い密度のイオンを作り出すことは困難である。一方、放電電離では、熱エネルギー付近の正イオンが作り出される。このイオンは、負の電位により放電プラズマから引き出される。出てきたイオン流は、質量の異なるイオンや時には電荷の異なるイオンが含まれており、エネルギー、方向もそろっていない。そこで必要な種類のイオンを質量分析器で選別し、その後イオンレンズ等で集束してからエネルギー分析器を通してエネルギーを均一化する。この方法は原理的には、どのような元素に対しても適用可能であるが装置が大型になり、最終的に選択されたイオンの量は、分析器、イオンレンズ等の装置の透過率によりわずかな量になる。

最近のレーザー技術の急速な進歩により、高出力、狭パルス幅、広発振波長域のレーザーが用いれるようになってきた。これにより、イオン生成法の一つとして光電離法が優れたものとなってきた。本研究では、ArFエキシマーレーザーとXeClエキシマレーザーポンプ色素レーザーの２種類のレーザーを用いてイオン生成を行った。ArFエキシマーレーザーは平均出力100mJ／pulse、パルス幅21nsec、繰り返し60Hzのものである。この場合、1.2×10^{14}(個／cm^3)の高い光子密度が実現できる。さらに集光すれば、2.7×10^{17}(個／cm^3)程度まで大きくできる。例えば、Gdでは、光電離断面積は$\sigma_p=2.7\times10^{-18}cm^2$（実験値）である。光子密度が十分に高いため、レーザー光と原子との相互作用領域でほぼ100％の原子が電離される。一方、色素レーザーは平均出力20mJ／pulse、パルス幅17nsec、繰り返し80Hzのものであり、312nm～1036nmの範囲で波長可変である。色素レーザーも高出力のため「多光子」電離過程によりイオンを生成できる。また、波長可変であるので生成イオンの励起状態を制御することができる。これにより、イオンの励起状態を制御した電荷移行衝突実験が可能になる。イオン生成法の特徴について従来の装置と本装置を比較したものを表3-1に示す。

著者は、原子蒸気生成に電子ビーム加熱法、イオン生成にはレーザー光電離法を採用した。本章では希土類元素の電荷移行断面積を測定できる装置の開発を行い、本装置により得られる断面積が妥当であることを述べる。

表3-1　従来の衝突装置と本研究で用いた装置の比較

従来の研究に用いられていた装置	本研究で用いた装置
（フィラメントによる電子電離方式） 多価イオンの除去、エネルギーの選別のためエネルギーアナライザーが必要	（レーザー光による光電離方式） エネルギー幅が小さいので、そのまま原子ビームに衝突させられる。 イオン源を衝突領域の近いところに置ける。 単色性がよいのでイオンの励起状態の制御可能
（機械的チョッパーによる変調） 原子ビーム中にチョッパーを入れ、変調をかけることにより衝突信号のS/N比を上げる	（パルスレーザーを用いた） パルスレーザーを用いるので衝突事象がパルス的に起こり、チョッパー不要 エネルギー集光度が高いので高密度イオン生成を可能にした

3.2　電荷移行断面積測定用直交ビーム衝突装置の開発

3.2.1　電荷移行断面積測定法

1930年以降多くの電荷移行衝突に関する実験報告がある。今日までの電荷移行断面積の測定方法を大別すると主に三つの方法になる。（a）直交ビーム法(crossed-beam method)、（b）減衰法(attenuation method)、（c）合流法(merging method)である。ここでは、それぞれの測定手法の特徴について述べ、希土類元素に適用できる測定法を考察する。

（a）直交ビーム法 [1]-[3]

原子とイオンを共にビーム状にし、90° の角度で衝突させる。衝突後、原子中に含まれている電荷移行イオン量と入射イオン量との比から電荷移行衝突断面積が得られる。この90°の角度は、直接弾性散乱したイオンの影響を受けにくい角度である。電荷移行衝突は非弾性衝突のため、電荷移行イオンは原子ビーム中に含まれる。一般に、このイオンは低い確率で生じるため、測定されたイオン信号のS／Nが問題となる。そこで、原子ビーム中からイオンレンズ等で引き出し、選択増幅器や位相敏感検波器を用いて測定される。この方法で、電荷移行衝突断面積の絶対値を知るには、イオン検出特性を知る必要がある。しかし、異なる衝突エネルギーでの相対的な値については、精度の良い測定が行える。

（b）減衰法 [4]-[7]

十分に高い圧力の原子気体中にイオンを入射すると電荷移行衝突によりイオン量が減衰して、イオンが抜けてくる。この入射イオンと減衰イオン量の比から電荷移行衝突断面積が測定できる。この方法で問題となるのは、入射イオンと減衰を受けたイオンを同時に測定できないため、測定の間で入射イオンを一定に保つことが必要である。また、この方法では、衝突長を長くするか圧力を高くすれば、減衰量を大きくでき、測定精度が良くなる。しかし、弾性衝突散乱、その他の衝突による影響を評価する必要がある。この問題が解決できれば、最も良い方法である。従来までは、気体元素や十分に高い密度の原子が生成できる元素に適用されてきた。

（c）合流法 [8]-[10]

10%程度の原子量を含んだ入射イオンを衝突領域で加速し、原子とイオンとの間に相対的な速度差を与え、電荷移行衝突させる。衝突後、エネルギー分析器で電荷移行イオンと入射イオンを分離し、その比から電荷移行衝突断面積が得られる。この方法では、入射イオンに数keVのエネルギーを持たせれば空間電荷広がりを抑えることができる。このため、熱速度付近かそれ以下の衝突エネルギーで有効な手段といえる。この10%の原子量は、中性原子気体

との電荷移行により生成させるため、一定量に保つのは困難である。また、電荷移行衝突断面積の絶対値を知るには、イオン検出特性を知る必要がある。

本研究の対象とする希土類元素は高融点金属である。このため均一な金属蒸気を容器に満たすことは技術的に困難である。つまり減衰法は不適当と考えられる。合流法は、熱速度付近かそれ以下の衝突エネルギーで有効な手段であるが、原子を気体中性原子との電荷移行衝突により生成しているため、高精度実験には向かない。このような、各法の特徴をふまえて希土類元素に対しては直交ビーム法が最適と判断した。

3.2.2　電荷移行イオン量測定法

電荷移行衝突実験を行うには、原子とイオンを用意する必要がある。原子は電子ビーム加熱法で生成し、イオンはレーザー光電離法により生成した。本装置の特徴はレーザー光電離によるイオン生成法にある。レーザー光は集光性がよいことから高密度のイオンを生成することができる。また波長可変の色素レーザーを用いることにより主イオンの励起状態を制御した実験が可能である。測定手法として本研究の対象元素に適用できる直交ビーム法を採用し、装置の開発を行った。開発に際し、次の点に注意を払った。

（1）対象とする衝突以外は極力排除する必要がある。対象外の衝突として残留気体分子とイオンの相互作用が考えられるので、測定は高い真空度下で行う必要がある。残留気体の密度が実験対象元素のものの1/100以下となる真空度（実験では3×10^{-8}Torr）で実験を行うことにした。本装置ではイオン生成にレーザー光電離法を採用した。この場合、レーザーの散乱光により原子蒸気中にイオンが生成され、電荷移行イオンとして測定される可能性がある。そこで、レーザー散乱光の防止を強化した。

（2）高精度測定をするためには、衝突により生成された電荷移行イオンを効率よくかつ安定に捕集し測定する必要がある。そこで、イオン生成領域、衝突領域、電荷移行イオン捕集領域に中空球電極を採用し、3領域をそれぞれ独立化し、各領域のポテンシャルが互いに影響しないように電磁遮蔽を完全なものにした。

電荷移行イオンが効率よく捕集される3つの領域の最適な配置を静電場分布計算により調べ

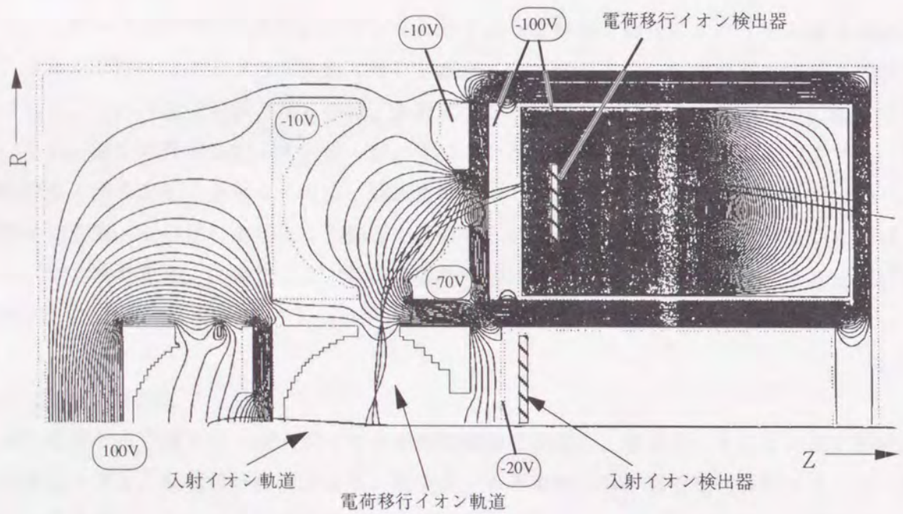


図3-2　電場分布計算

た。図3-2はその一例である。各電極に印加した電圧を図中に示した。等電場分布の間隔は5Vである。ビーム追跡により入射イオンと電荷移行イオンの軌道を計算し図に示した。図示した電極配置の場合、入射イオン及び電荷移行イオンが電極に衝突する事なく検出器まで導かれていることが分かる。入射イオン、電荷移行イオンが検出器により最も効率よく回収される電極配置と電極電圧が得られた。これを基に装置の製作を行った。

新型直交ビーム衝突装置を図3-3に示す。直交ビーム衝突装置は真空容器中に置かれている。真空容器は2台のターボ分子ポンプにより排気され、$\sim10^{-9}$Torr程度の真空度まで到達する。

電子ビーム加熱により金属蒸気を生成し、4mm×4mmmコリメーターを通過させ2本の蒸気ビームにする。一方の蒸気ビーム（B2）にパルスレーザーを照射しイオンを生成する。イオン生成領域の両端にある電極に電圧を印加し、生成イオンをイオンレンズにより90°偏向させ引き出す。8×2.5mmのコリメーターにより原子蒸気幅よりも狭い幅のイオンビームを作り、一方の原子蒸気ビーム（B1）に衝突させる。衝突後、通りぬけてきたイオンはイオンコレクターで測定され、電荷移行イオンは上部に設けた3極球状電極で集められ、検出器CEM(Ceramic Electron Multiplier; CERATRON EME2061B)に導かれ測定される。この二つの信号の電荷量の比から断面積が得られる。本装置ではイオン生成にパルス色素レーザーを用いた。このため、衝突事象はパルス的に起こり、1レーザーパルスの照射により、1つの断面積を得ることができる。また、電荷移行断面積の絶対値は、後述の較正実験により得ているので、他の実験データや物理定数を用いる必要は全くない。

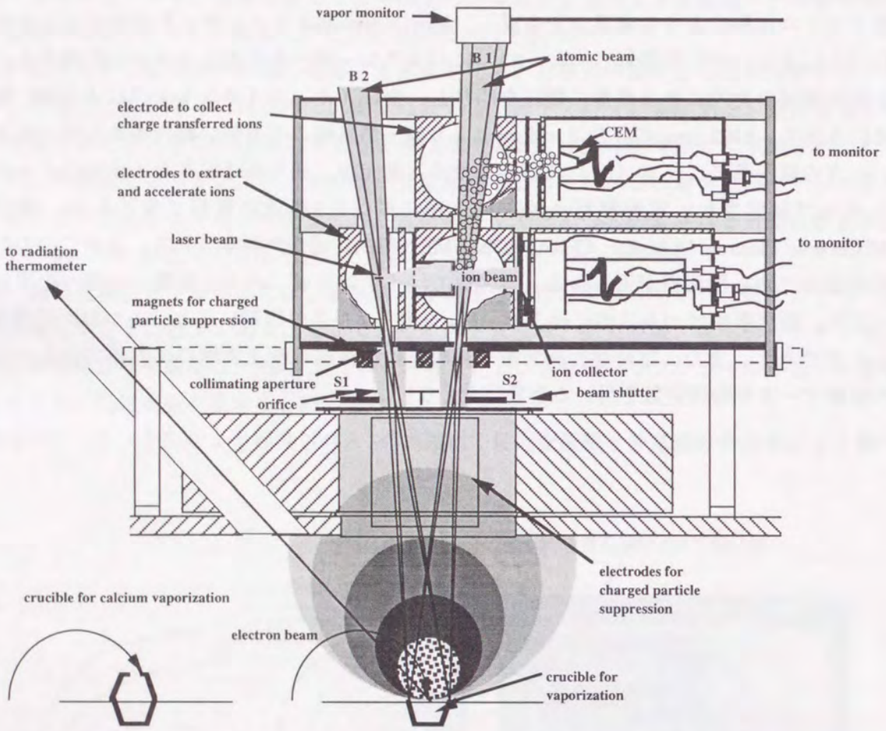


図3-3　新型直交ビーム衝突装置（電荷移行イオン捕集法）

Gd実験で得られた典型的な主イオン信号波形と電荷移行信号波形を図3-4に示す。電荷移行イオン信号波形が電荷移行衝突によるものか否かを確かめるために、蒸気ビームB1、B2中にシャッター（S1、S2）を設けた。このシャッターの開閉の組み合わせにより、信号が電荷移行衝突によるものであることを確認した。蒸気ビームB1とB2が共に存在する場合（図3-4(a)）、主イオンビーム信号と電荷移行信号が観測される。測定信号波形を図の下部に示す。信号波形の縦軸は電圧を示し、横軸は時間（200μsec/div）を示している。次に、シャッター2を閉じ衝突させる原子ビームをカットする（図3-4(b)）、主イオン信号は観測されるが、原子ビームB2がないため電荷移行信号は測定されなくなる。シャッター2の開閉により電荷移行信号と判断できた。シャッター2を閉じた時、わずかなイオン信号が観測されている。これは、次の2つ過程により生成されたものであると考えられる。

$$Gd + h\nu \rightarrow Gd^{+} \qquad (3\text{-}1)$$

$$Gd^{+} + N_2 \rightarrow Gd + N_2^{+} \qquad (3\text{-}2)$$

式(3-1)はイオン生成用レーザーの散乱光により生成されたイオン成分を示し、式(3-2)は真空チャンバー中の残留ガスとイオン間の電荷移行衝突により生成されたものを示している。電荷移行イオン信号量とシャッター2の閉時の背景イオン信号量をそれぞれS、Nとすると、S/N>100になる。背景イオン信号の測定断面積への影響は1％以下と無視できるほど小さいことが分かる。

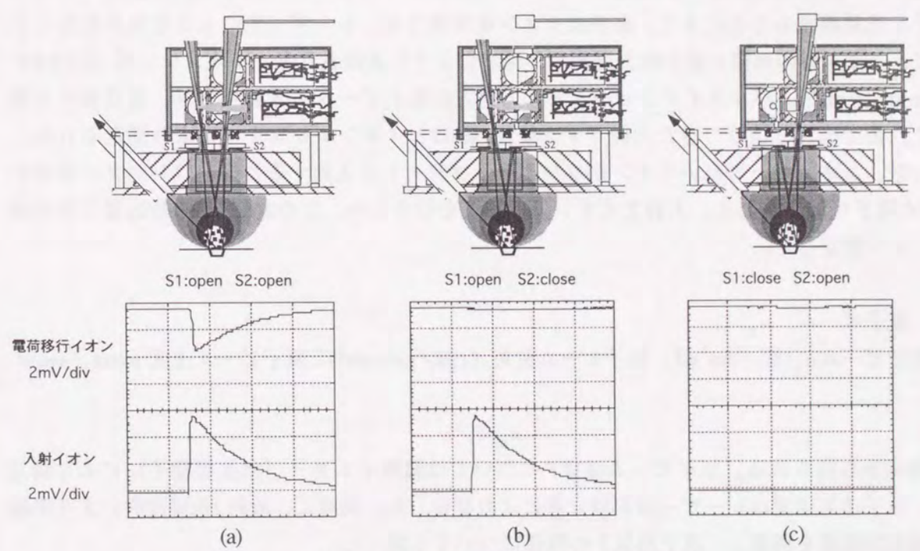
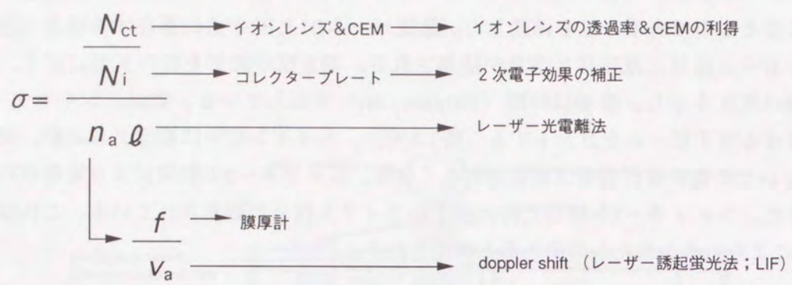


図3-4　Gd実験の典型的なイオン信号波形

電荷移行断面積 σ は次の４つの物理量より求められる。



① 電荷移行イオン量 N_{ct}

電荷移行により生成されるイオン量N_{ct}(個)は、非弾性衝突過程により生成されるため、原子ビームB1に含まれている。これを原子ビームB1の上部に設けた三極球状電極で原子ビームから分離し、二次電子増倍管で増幅し測定する。電荷移行断面積の絶対値を知るにはイオンレンズの捕集効率を含めた検出器CEMの増幅率を調べる必要がある。このイオンレンズの捕集効率を含めたCEMの増幅率は別に測定した。

② 入射イオン量 N_i

電子ビーム加熱により生成された蒸気流の上方に二つの穴のコリメーター板を置き、二本の原子ビームを作る。まず、原子ビームB2に垂直にパルスレーザー光を照射し、ビーム内の原子を光電離することにより、高密度イオンを生成する。レーザー光により生成されたイオンは、イオン源の両側に置かれた電極間の電場により引き出される。イオンレンズ（口径8×2.5mm）を通し、パルスイオンビームとして他方の原子ビームB1と衝突させ、電荷移行を起こす。衝突後通り抜けてきた入射イオン量N_i(個)は、イオンコレクターにより測定される。この際、エネルギーの高いイオンがコレクタープレートに入射するとき、コレクター表面から2次電子の放出がある。入射主イオン量の補正を行うため、この2次電子の放出量も別の実験により測定した。

③ 原子ビーム n_a

原子ビームn_a(個／cm^3)は、原子ビーム流束 f(個／sec・cm^2)と原子ビーム速度 v(cm／sec)より

$$n_a = f / v$$

の関係から得られる。原子ビーム流束fについては膜厚モニター（水晶振動子）により測定し、原子蒸気速度はレーザー誘起蛍光法により測定した。同時に、放射2色温度計により溶融金属表面温度を測定し、原子蒸気との関係についても調べた。

④ 衝突作用長 ℓ

衝突作用長はレーザー光電離生成イオンを用いて測定した。レーザー光を原子ビームB1に集光、照射しイオンを生成する。レーザー光をイオンの進行方向へ移動させ、移動距離の関数としてイオン量の変化を測定した。衝突長はこのイオン量の空間分布より評価した。

⑤ 衝突エネルギー制御

電荷移行衝突断面積の衝突エネルギー依存性を測定する際に、衝突エネルギーはパルスイオン源の両側の半球ー平板電極に印加する電圧により制御した。

3.2.3　原子ビームの生成と特性

原子ビームは、熱速度で流れる金属蒸気を4mm×4mmのコリメータを通すことにより生成した。金属蒸気生成には、高温加熱が可能で、るつぼの腐食を妨げることのできる電子銃加熱を用いた。蒸気流束 f(個／sec･cm^2)は、ビーム下流部に設けた水晶振動子型膜厚計で測定した。蒸気中の原子の平均速度 v (cm／sec)は、レーザー誘起蛍光法による蛍光のドップラーシフト量より実験的に測定した。加熱されている金属の表面温度は２色温度計を用いて測定した。るつぼの上方、240mmの位置（後述する原子-イオン相互作用領域）での原子蒸気密度と表面温度（原子の平均速度から計算したもの）との関係を図3-5に示す。図中の曲線は飽和蒸気圧曲線[11]-[13]より計算した相互作用領域での密度である。Gd、Y、Caいずれも曲線と良く一致する。安定した蒸気原子を長時間生成できるのは、いずれの元素も10^{10}cm^{-3}程度であった。

原子蒸気生成はGdの場合、2000Kに加熱して行う。この場合、原子は熱衝突励起により、基底状態に近接した励起状態へ分布すると考えられる。レーザー誘起蛍光法[14]により、その励起状態密度分布を測定した。Gdは前章で示したように、基底状態$^9D_2^o$に近接した4つの励起状態[$^9D_2^o$（215cm^{-1}）、$^9D_3^o$（533cm^{-1}）、$^9D_4^o$（999cm^{-1}）、$^9D_5^o$（1719cm^{-1}）]をもつ（図1-4参照）。パルス色素レーザーを用い下順位$^9D_2^o$、$^9D_3^o$、$^9D_4^o$から同じ上順位$^9F_3$（27042cm^{-1}）へ共鳴遷移させる。同様に下順位$^9D_4^o$、$^9D_5^o$、$^9D_6^o$についても同じ上順位$^7G_5$（27572cm^{-1}）へ共鳴遷移させる。共鳴後おのおのの上順位$^9F_3$、$^7G_5$から放出される蛍光量を測定し、その強度比、統計的重率、レーザー光偏向による遷移を考慮し状態密度分布を評価した。得られた状態密度分布はそれぞれ0cm^{-1}（18％）、215cm^{-1}（21％）、533cm^{-1}（25％）、999cm^{-1}（19％）、1719cm^{-1}（17％）であった。図3-6に測定結果をまとめた。図中の曲線は熱平衡状態を仮定して計算により得られたそれぞれの状態密度分布を示す。2000Kでの計算結果はそれぞれ0cm^{-1}（19％）、215cm^{-1}（22.8％）、533cm^{-1}（23.3％）、999cm^{-1}（20.4％）、1719cm^{-1}（14.4％）の状態に分布していた。実験結果は測定精度内(±5％）で計算結果と一致していることから、生成される蒸気原子の状態密度分布は熱平衡状態にあり、加熱されている金属の表面温度で決まることがわかった。

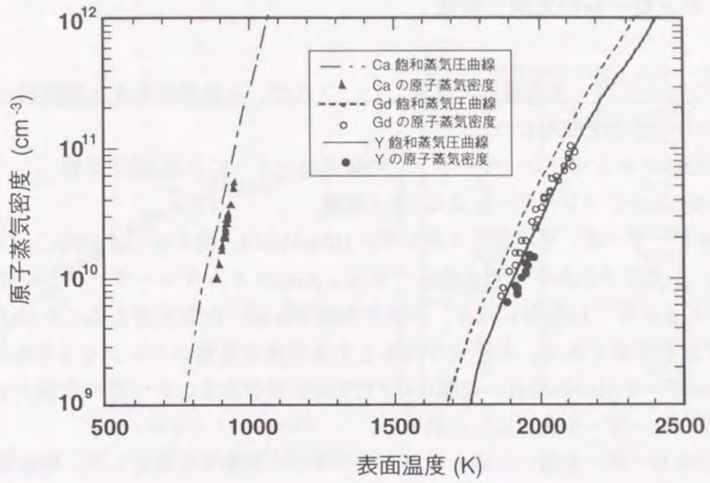


図3-5　原子密度とるつぼ内試料表面温度との関係

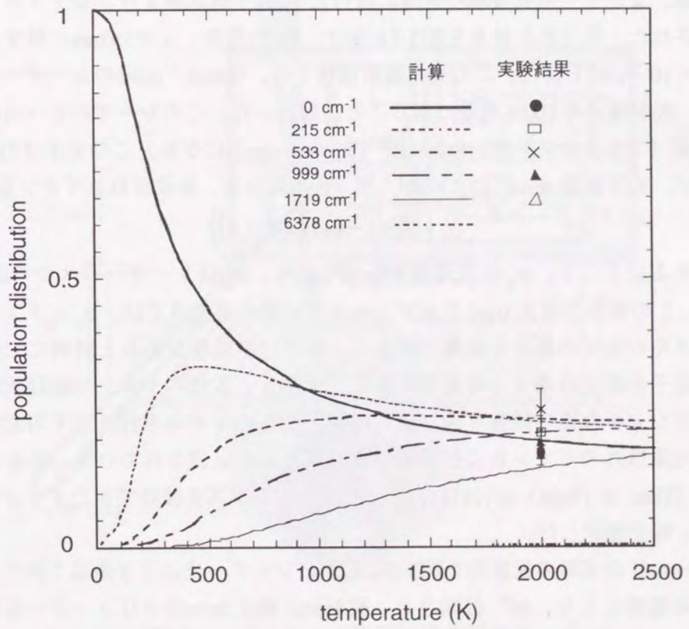


図3-6　Gdの加熱表面温度と状態密度分布の関係

3.2.4　イオンビームの生成と特性

金属イオンはレーザー光電離法で生成した。これが、本装置の大きな特徴の一つである。光電離には2つの方法を採用した。

［1］XeClエキシマーレーザーポンプの色素レーザーによる3光子電離

［2］ArFエキシマレーザーによる1光子電離

ArFエキシマレーザーは、平均出力エネルギー100mJ/pulse、繰り返し<80Hz、パルス幅21nsec、波長193nm、1光子エネルギーは6.42eVである。XeClエキシマレーザーポンプの色素レーザーは、出力エネルギーは色素に依存、パルス幅は17nsec、色素を変えることにより312nm～1036nmまで波長可変である。本研究で対象とする元素は電離ポテンシャルが6eV以上と高いので色素レーザーを用いた場合、電離には3光子が必要である。レーザー生成イオンの諸特性はArFエキシマレーザーを光源にして調べる。

ArFエキシマレーザーを用いた場合のガドリニウムの電離率を測定した。電離実験では、レーザー光を、F／12の石英レンズで約0.52×0.11mmの大きさに集光し、原子ビーム上に照射した。このときの光子密度は2.7×10^{17}(個／cm^3)である。原子ビーム密度を一定に保ち、レーザーパワーを、レーザーパス上に置いたビームスプリッターの角度を変化させ制御した。レーザーエネルギーは、パワーメーター（Scientech 364）により測定した。光電離により生成されるイオンは、レーザー照射領域の両端に設けた半球-平板電極よりコレクタープレートの方へ導き測定された。得られた結果を図3-7に示す。Gdの場合、λ＝193nmに対する光電離断面積$\sigma_p=2.7\times10^{-18}cm^2$を得た。この光電離断面積から、100mJ／pulseのレーザーエネルギーを集光すれば、照射原子を100%電離できることが分かった。このレーザービームの焦点付近では、光子流束（フラックス）が、8.1×10^{27}(個／sec·cm^2)になる。この光子は21nsecの幅で光速で走るので、光子密度n_pは、2.7×10^{17}(個／cm^3)になる。生成されるイオン量Ni(個)は

$$N_i = N_a\left\{1-\exp\left(-\sigma_p n_p \ell\right)\right\}$$

より評価される。ここで、σ_pは光電離断面積(cm^2)、N_aはレーザーパス中の原子数(個)、ℓはレーザーとの相互作用長(cm)を示す。レーザー光の集光点では、$\sigma_p n_p \ell >> 1$となり、レーザーパス中の全ての原子を電離できる。これだけの強度があると同時に二光子だけでなく複数個の光子と相互作用する可能性がある。つまり、多価のイオンや励起状態のイオン及び電離ポテンシャルの高い残留ガス（表3.2参照[15]）のイオンを作り出す可能性がある。そこで、標的元素以外のイオンおよび多価の標的イオンが生成されていないかを調べる必要がある。TOF（Time of Flight）法[16],[17]によりイオンレンズを抜けてきたイオンビームの成分とエネルギー幅を測定した。

イオンビーム特性実験の配置図を図3-8に示す。レーザー光により生成されたイオンは、その両端にある電極により、90°偏向され、縦8mm、横2.5mmのコリメーターを通り抜けた後、65mm離れた二次電子増倍管(Ceramic Electron Multiplier)で測定される。信号の到達時間より、生成されたイオンの元素と価数を分析し、信号の時間広がりよりイオンのエネルギー広がりを測定した。イオンのエネルギーは電極に印加する電圧により制御した。Gd^+イオンの場合

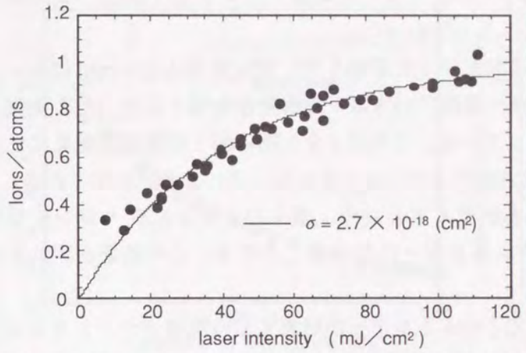


図3-7　λ=193nmレーザー光強度とGdの電離率の関係

表3.2　気体分子の第1イオン化エネルギー

気体分子	第一イオン化エネルギー (eV)
H_2	15.98
N_2	15.60
O_2	12.3
CO	14.01
CO_2	13.78
H_2O	12.62
研究対象原子	第一イオン化エネルギー (eV)
Gd	6.15
Y	6.5
Ca	6.113

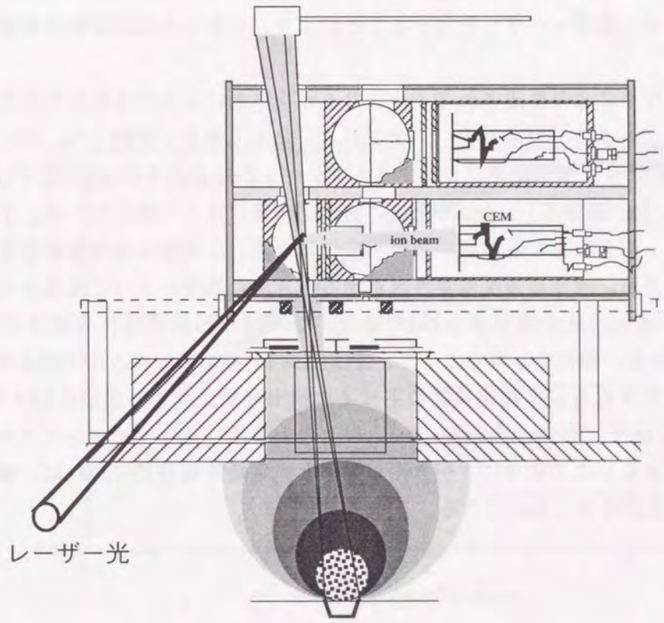


図3-8　イオンビーム特性実験の配置図

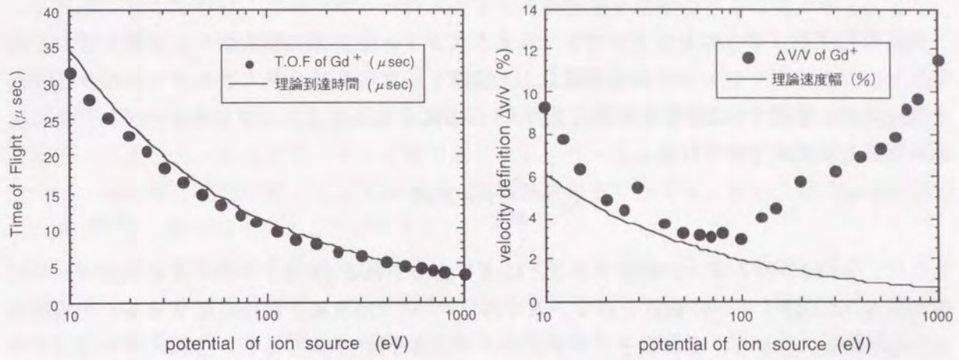
の到達時間の測定結果を図3-9(a)に示す。横軸は引き出し電圧、縦軸は到達時間である。実線は一粒子のGd^+イオンの到達時間の計算値を示す。結果は実験値と一致しており、生成されているのは、一価のGd^+イオンのみと分かった。イオンの運動エネルギー（速度）は半球-平板電極に印加した電圧により制御できることも分かった。

次に、測定信号の時間広がりから、速度広がりを評価した。測定結果を図3-9(b)に示す。Gdの場合、10～1000eVのイオンエネルギー範囲で12%以下の衝突速度幅と分かった。衝突エネルギー100eVで衝突速度幅が最小となっている。これはイオン間に働く空間電荷効果によるものと考えられる。レーザーにより生成されたイオンはイオンレンズにより引き出される。衝突エネルギーの増加に伴いイオンの量が増大するため、個々のイオンにクーロン反発力[18]-[20]（空間電荷効果）が働く。衝突エネルギーの高いところでは、この効果が現れるため速度幅が広がると考えている。

一方、色素レーザーを用いた場合、1光子のエネルギーが対象元素の電離ポテンシャルよりも低いが、1波長3光子電離によりイオンは生成された（詳しくは4章で述べる）。色素レーザーで生成されたイオンはArFレーザーを用いて生成したイオンと同じ特性を示していた。

以上のように、レーザー光電離法により生成されるイオンは、一価イオンのみであり、我々の対象としている速度範囲での衝突エネルギー幅も狭いことが確認された。イオンレンズとレーザーとの組み合わせにより安定した質の良いイオンビームをつくることができた。また、次章で述べるが、色素レーザーを用いることにより、イオンの励起状態を制御した実験も可能である。

次に、レーザーにより生成されるイオンのイオン電極による引き出し特性を調べた。検出器をCEMからコレクタープレート（ステンレス）に取り替えて実験した。Gd、Y、Caの測定結果を図3-10に示す。測定結果はコレクタープレートから放出される2次電子の効果を補正したものである（3.3節参照）。3つの元素の結果が非常に良く一致している。イオンの速度が大きくなると、引き出されるイオン量が一定値になる。この値は光電離断面積とイオン引き出し効率できまる。イオン速度依存性は電極の引き出し効率によって決まっている。光電離断面積と原子蒸気密度の関係からGdの場合、レーザー照射領域に生成されるイオン量は5.6×10^7個である。飽和する点でのイオン量は1.2×10^7個であった。この比より引き出し効率は21.4%と計算される。本測定装置の主イオン検出可能なイオン量は6.25×10^7個である。よって、Gdの場合、約5×10^5cm/sec(20eV)以上の引き出し電圧（イオンエネルギー）について測定可能である。このように、引き出し効率と光電離断面積が分かれば、測定可能なエネルギー範囲を見積もることができる。



(a)　(b)

図3-9　Gd^+のイオンコレクターへのTOFと速度広がりの加速電圧依存性

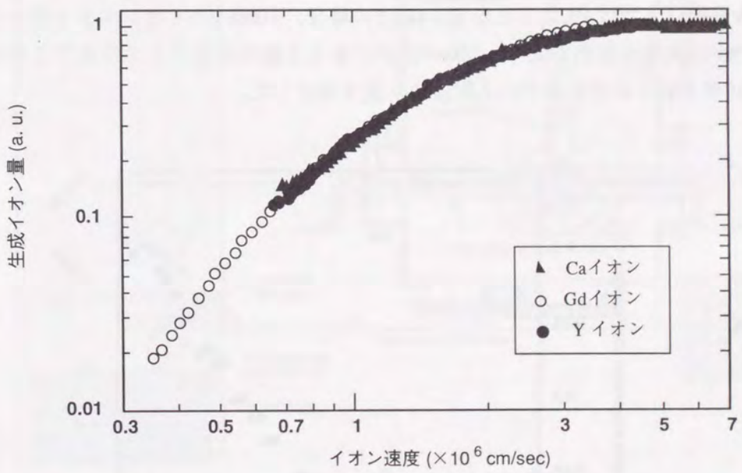


図3-10　光電離イオンの半球電極による引き出し特性

3.3　電荷移行断面積の測定

3.3.1　主イオン測定用コレクターからの２次電子放出

電荷移行実験では、コレクタープレートとしてステンレス製の板を用い、入射イオンを測定した。コレクタープレートの仕事関数（5.02eV）に比べてイオンエネルギーが10～1000eVと高いため、表面から2次電子が放出される。2次電子放出により、コレクタープレートに流れる電流I_{co}は次式で表される。

$$I_{co} = \frac{d}{dt}(\gamma + Z)N_i \tag{3-3}$$

ここで、γは1つのイオンが衝突することにより放出される2次電子の数、Zは入射イオンの電荷、Niは入射イオンの個数を示す。希ガスについては2次電子放出に関する多くの実験報告[21]がある。しかし、金属原子イオンについては報告例[22]が少ない。金属イオンはコレクタープレート上に蒸着されるため表面の状態が変わり、仕事関数も変わるので、実験条件により2次電子の放出量が異なってくる。対象としているイオンの2次電子の放出量を測ることにした。実験では、コレクタープレートとファラデーカップで測定されるイオン信号の比から2次電子の放出量を評価した。ファラデーカップの形状は口径20mm、深さ30mmで、材質はコレクタープレートと同じステンレス製のものを用いた。ファラデーカップを用いても2次電子は放出されるが、十分な深さがあるので2次電子は殆どがファラデーカップ内面に当たり再吸収される[22]。得られたCaの結果を図3-11に示す。図は衝突速度の関数として２次電子放出率を示した。結果より、コレクタープレート測定の場合、1000eVで20%の2次電子放出率があるが300eV近傍以下では1%以下となる。Gd,Yの場合、1000eVのイオンエネルギーでそれぞれ15%、24%の2次電子放出があり、300eV以下になると放出は殆どなくなることが分かった。この実験結果をもとに本実験での入射イオン量を補正した。

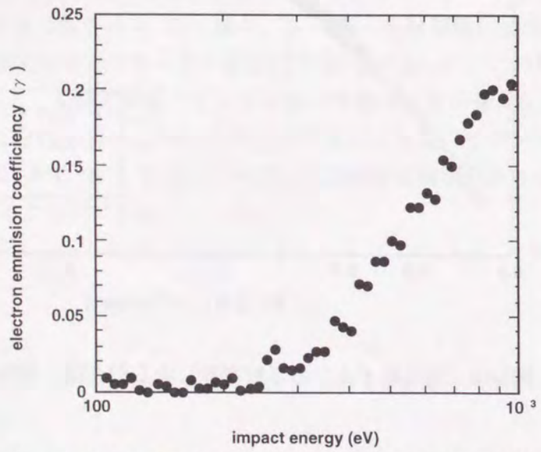


図3-11　Caイオンのコレクタープレートからの2次電子放出率

3.3.2　電荷移行イオン測定器の絶対値較正

本実験装置の特徴は、１レーザーパルスで１つの断面積を測定できることである。この方法では原子密度n_aや衝突長ℓの変動が１%であれば、その相対測定精度を３%以下に抑えることができる。しかし、断面積の絶対値を測定するには、電荷移行イオンの捕集効率を含めた増倍管(CEM)の利得を知る必要がある。図3-12に較正実験の配置を示す。衝突断面積測定実験を行った後、ビームスプリッターで取り出したレーザー光を用いて較正実験を行う。本装置では、電荷移行衝突実験と較正実験を同じ実験条件の下で行える。また、他の物理定数を用いることなく断面積を得ることができる。

図3-13に絶対値測定のための実験配置を示す。パルスレーザーを衝突領域に照射してイオンを生成し、これで電荷移行イオンを模擬する。模擬イオンの絶対量は、衝突領域の両側に設けた中空球電極の一方に電圧を印加し、他方の電極をイオンコレクターとして測定する。次に、印加電圧を切り、上部に流れる模擬イオンを上部にある球状電極で90°偏向し、ニッケルメシュ（透過率88%）を通し、二次電子増倍管(CEM)で検出し測定する。測定されたそれぞれのイオン量の比からイオンレンズの捕集効率を含めたCEMの増幅率を得る。CEMは電子なだれ効果を利用し増幅しているめ、その増幅率はCEM印加電圧に比例して大きくなる。

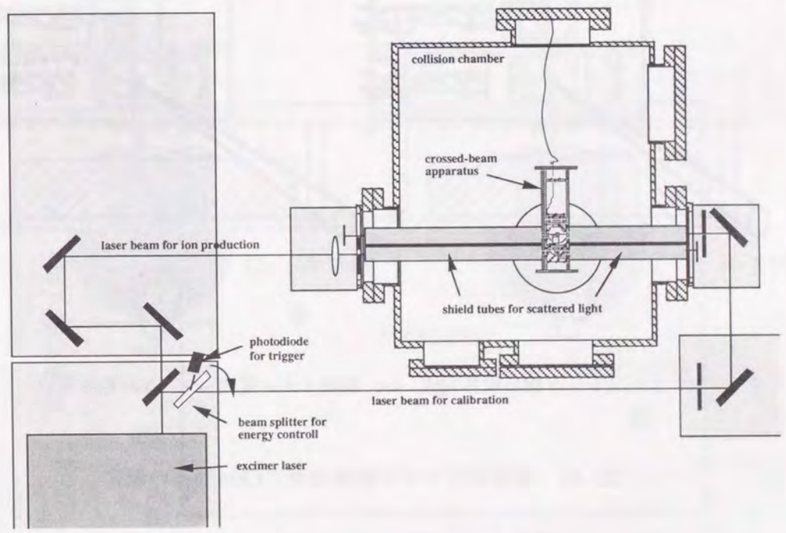
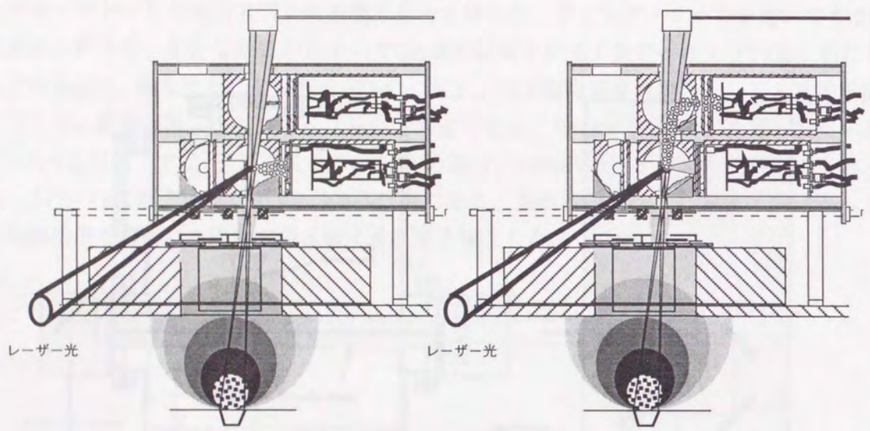


図3-12　　電荷移行衝突実験と較正実験の実験配置

電荷移行断面積測定実験では、CEMの印加電圧を-2400Vに設定して行った。-2400V印加時のCEMの典型的な増幅率[23]はカタログ値より7.3×10^4である。模擬イオン量は電荷移行イオンよりも10^4倍程度多いためCEMが飽和する。CEMの飽和を避けるため、印加電圧を -2400V から -1600V に下げ、較正実験を行った。また、生成されたイオンはイオンコレクターで測定可能な量でなければならない。コレクタープレートで検出可能、かつCEMの飽和を避けれるイオン量のイオン生成は、レーザーエネルギーを 10～280μJ まで減じることにより可能である。得られたCaの結果を図3-14に示す。図中の直線の傾きから、イオンレンズの捕集効率を含めた増幅率 118 が得られた。-2400V と -1600V のCEMの増幅率の比は、電荷移行イオンを用いて調べた。その増幅率比は 304.6 であった。3.595×10^4 が -2400V印加時のイオンレンズの捕集効率と増幅率の積となる。-2400V 印加時の典型的な増幅率と実験で得られた値とを比較すれば、イオンレンズの捕集効率を求めることができる。Caの場合、イオンレンズの捕集効率は 49.2%である。対象元素であるY、Gdの捕集効率を図3-15に示す。図より、質量数が大きくなると捕集効率が下がることが分かる。



コレクタープレート検出限界電流 << 模擬イオン電流 << CEM飽和電流

図3-13　電荷移行イオン捕集効率×CEM利得の測定

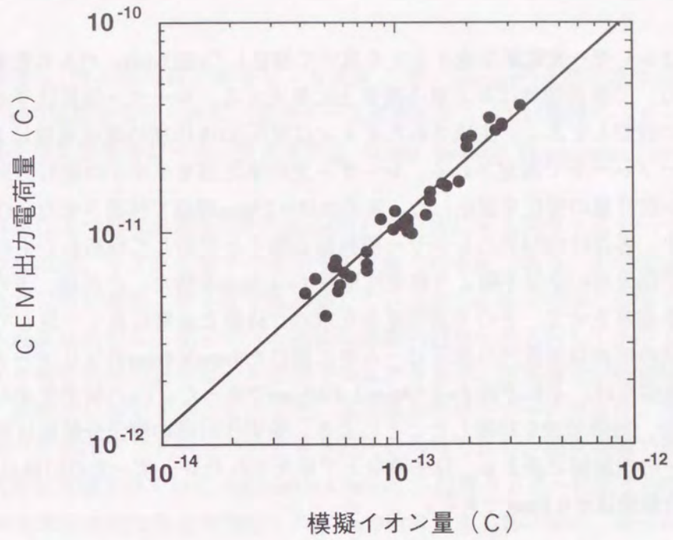


図3-14　電荷移行イオン捕集効率×CEM利得の測定実験結果

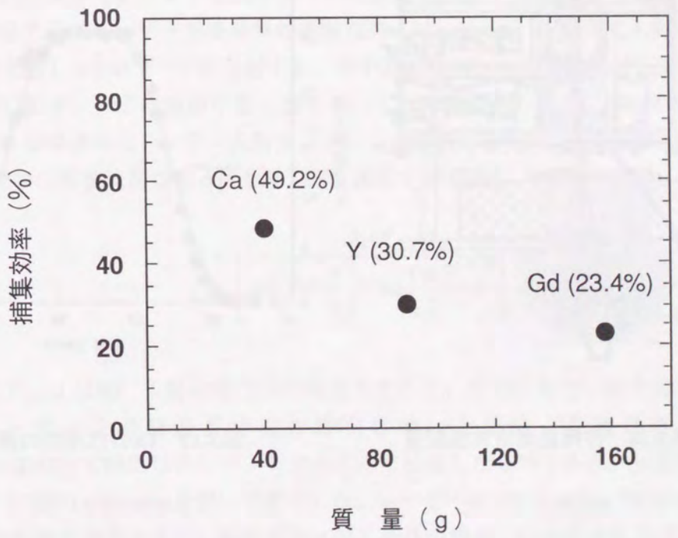


図3-15　電荷移行イオン捕集効率

3.3.3　衝突作用長

衝突作用長はレーザー光電離生成イオンを用いて測定した(図3-16)。パルス色素レーザー光をレンズ（F/12）で衝突領域にある原子蒸気上に集光する。レーザー波長は予めイオンが生成される波長に設定しておく。生成されたイオンは電圧200V印加の球状電極により90°偏向されコレクタープレートで測定される。レーザー光の集光点をイオンの進行方向に沿って移動させ、イオン信号量の変化を測定した。集光点は0.25mm間隔で移動させた。Caの測定結果を図3-17に示す。各点は1024回のレーザー照射時の信号を平均して得られたものである。得られたイオン空間分布の全値半幅より衝突作用長 ℓ=4.3mmを得た。これは、予めガラスプレート上に原子を蒸着させて、その不透明度より求めた結果と非常に良く一致していた。衝突領域の原子蒸気の形状は装置内の原子ビーム中に設けた4mm×4mmのコリメータにより決まる。GdとYの衝突長は、それぞれ ℓ=4.58mmと4.65mmであった。Caの衝突長がわずかに短いのは、Caの場合、加熱領域を制限したことによる。衝突作用長の測定分解能は原子蒸気上での集光レーザーの空間幅で決まる。原子蒸気上で集光されたレーザー光の口径は＜100μmであるので測定分解能は±0.1mmである。

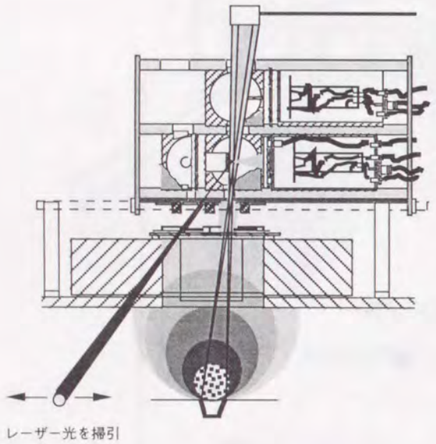


図3-16　作用長測定実験配置

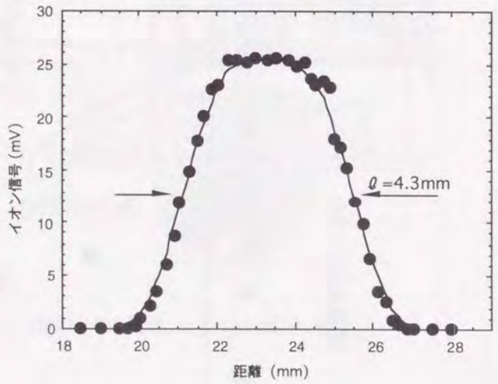


図3-17　Caの作用長の測定結果

3.3.4　原子密度の評価

原子蒸気密度 n_a(個／cm^3) は、原子ビーム流束 f(個／sec･cm^2)と原子蒸気速度 v (cm／sec) より、$n_a=f/v$ の関係から得られる。原子ビーム流束fについては膜厚モニター（水晶振動子）で測定し、原子蒸気速度はレーザー誘起蛍光法（Laser Induced Fluorescence method）[24]により測定した。

原子ビーム流束はるつぼ加熱表面から375mm離れた位置にある膜厚モニターで測定した。衝突実験に必要なのは、イオンと原子が衝突する位置での密度である。衝突領域は加熱表面から240mm離れた位置にある。原子は等温膨張しているために衝突領域と膜厚モニター位置での原子ビーム流束は異なる。原子ビーム流束は距離の自乗に逆比例して小さくなるので幾何学的な比により衝突領域の蒸気ビーム流束を換算できるが、密度測定が断面積の絶対値を左右するため、実験的に測定することにした。衝突領域の原子ビーム流束は、衝突領域の原子ビームの大きさと膜厚モニター上での大きさの比から得られる。衝突領域での原子蒸気の大きさは既に衝突長実験で得ている（4.3mm×4.3mm）。膜厚モニター位置での原子ビームの大きさは、衝突長測定と同じ手法で測定した。Caの結果を図3-18に示す。得られた原子ビームの形状はガウシアン分布をしていた。膜厚モニター位置では原子蒸気は加熱表面（11mm ϕ 円状）の形状が反映しているため円形状になる。実験データにガウシアン曲線を合わせ、原子ビームの大きさ半値幅10.4mmを得た。Caの場合、モニター位置から衝突領域への流束換算比は4.6であった。GdとYはそれぞれ6.4、6.8である。

原子蒸気速度はレーザー誘起蛍光法 (Laser Induced Fluorescence method)により測定した。実験配置を図3-19(a)に示す。リング色素レーザーの波長をCa原子の0cm^{-1}から1521.067cm^{-1}の共鳴ラインに設定する。レーザー光を蒸気の速度方向に対し θ=96°の角度で入射する、通過後、光はミラーで反射し α=83.7°で再入射する。原子蒸気は96°の入射光に対して速度のsin6°成分だけ対向に動き、原子は波長を短く感じる。ミラーで反射した光に対してはその逆になる。この結果、共鳴波長はレーザー入射角（θ、α）で異なるため、2つの共鳴蛍光ピークがあらわれる。2つの共鳴波長の差 ΔF と原子蒸気速度 V_a の関係は

$$V_a = \frac{\lambda \Delta F}{\left[sin\left(\theta - \frac{\pi}{2}\right) + sin\left(\frac{\pi}{2} - \alpha\right) \right]} \qquad (3\text{-}4)$$

となる。ここで、λは90°入射の場合の共鳴波長を示す。測定結果の一例を図3-18(b)に示す。これは、レーザーを共鳴波長付近で掃引させ、上準位より放出される蛍光をPhotomultiplier (R928) で検出しチャートレコーダーで記録したものである。蛍光信号と背景ノイズを分離するためLockinampを用いて測定した。レーザーは15210.067cm^{-1}の共鳴波長付近を±0.018cm^{-1}の範囲で掃引させた。衝突実験と同じ条件の場合、Caの原子蒸気速度は755m/secあった。Gd、Yの原子蒸気速度実験では表面温度も2色温度計を用いて測定した。Gd、Yの原子蒸気速度は、表面温度より計算した速度と±2%の範囲内で一致する。Caの場合、安定した

原子蒸気を生成するため、るつぼに改良を加えた。このため、表面温度が測れなかったが、Caの表面温度は原子蒸気速度より逆算した値と一致すると考えられる。

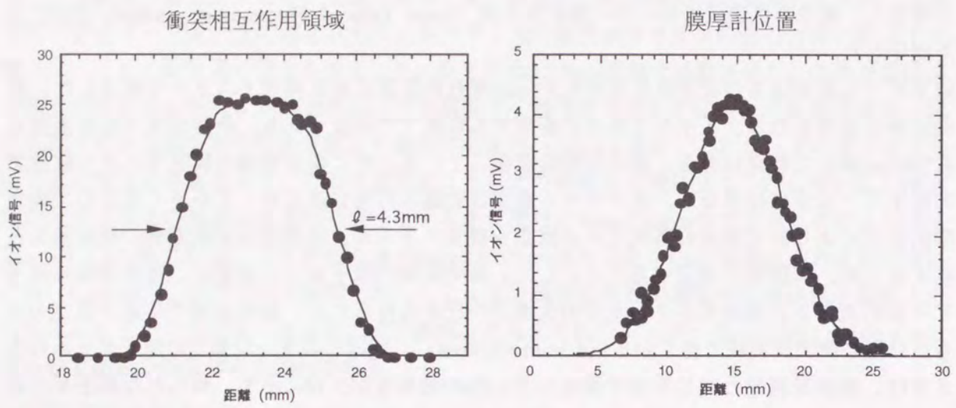


図3-18　原子蒸気幅測定結果

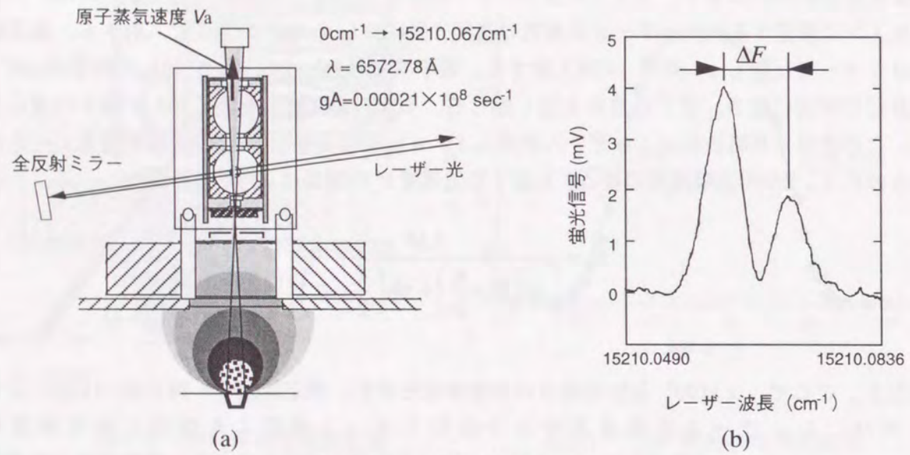


図3-19　原子蒸気速度測定

3.3.5　高速データ収集装置

本装置では、原子蒸気は10 ccの試料に電子ビームを照射し加熱して作っている。当然、るつぼの中の試料が少なくなると、原子蒸気密度に時間的な変化が生じる。7～8ccのガドリニウムを、電子銃加熱520Wのパワーで一定加熱(2000K)した場合、15分後に原子密度が2%程度増加する。密度変化により生じる測定精度の悪化を防ぐために、データの収集、処理を高速化し短時間にデータを得る必要がある。

図3-20に著者が開発した高速データ収集処理システムの構成を示す。電子ビームの発生部に流れる電流は、商用交流をサイリスタを介して直流化したものであるので、商用周波数の微少変動がある。よって、蒸気密度も同じ周波数で変動すると考えられる。この影響を緩和するために、60Hzの商用周波数でパルスレーザーをトリガーしレーザーと同調させ、イオンを生成した。生成イオンは半球電極と板電極に電圧（V1,V2）を印加し引き出されるため、イオンの衝突エネルギーはこの電極に印加する電圧で決まる（3.2.4参照）。プログラマブル電源に指令を送り電極に印加する電圧(V1,V2)を制御した。イオンコレクターにより測定される入射イオン信号 N_i とCEMにより得られた電荷移行信号 N_{ct} はDigital-strage-scope（DS9121 IWATSU）により、128レーザーショット分の信号平均化のあと、デジタル化される。デジタル化された情報のピーク電圧と半値幅の値をPC-9801に取り込む。原子密度 n_a (個／cm^3)はPC-9801に取り込んだ膜厚計の読み f (個／sec・cm^2)と原子蒸気速度 v (cm/sec)から計算される。

図3-21にデータ収集のフローチャートを示す。まず、トリガー信号でレーザーを発振させる。そして、V1／V2=1の比に保ち、入射イオンエネルギー（図では40eV）をプログラマブル電源で制御し、レーザーパルス128回分の入射イオン量 N_i (個)と電荷移行イオン N_{ct} (個)を測定する。そして、次の入射イオンエネルギーに変える。1000eVの入射エネルギーになると終了するシステムである。このシステムは、一つの衝突エネルギーの測定を9秒で行えるため、10～1000eVの範囲で50個の衝突エネルギーをわずか6分で測定できる。密度の変動による断面積への影響を極力さけるため、衝突エネルギーを順方向（10eV→1000eV）へ変化させて一連の測定をした後、逆方向（1000eV→10eV）についても測定を行った。順方向と逆方向の測定は交互に4回づつ行った。最終的にこの8回の結果を平均処理したものを測定結果としたので、1衝突エネルギーについて得られる断面積は1024回の平均操作をして得られたものとなる。

高速処理システムにより、一衝突エネルギー当たり1024回分の主イオン量と電荷移行イオン量の平均操作を可能にした。平均操作により測定される断面積の相対測定精度は＜５%である。

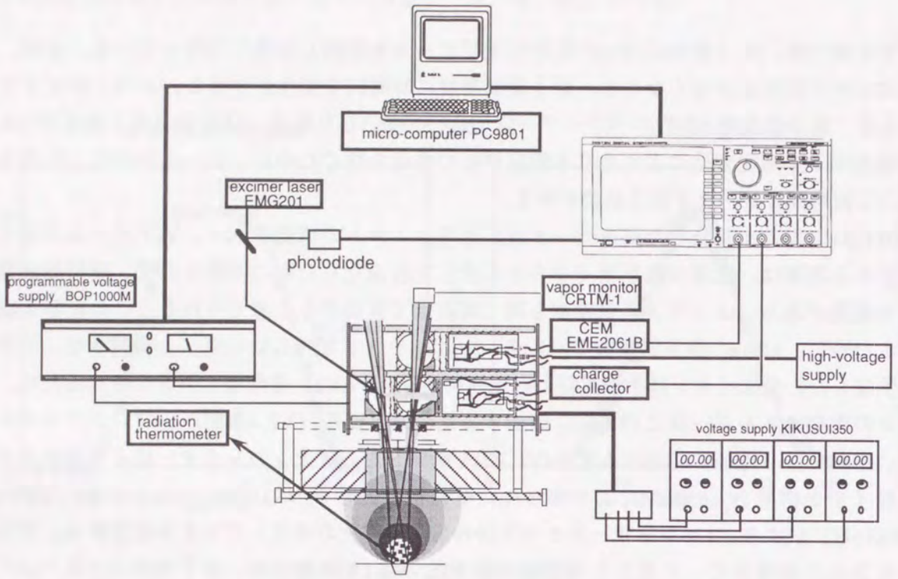


図3-20　高速データ収集処理装置

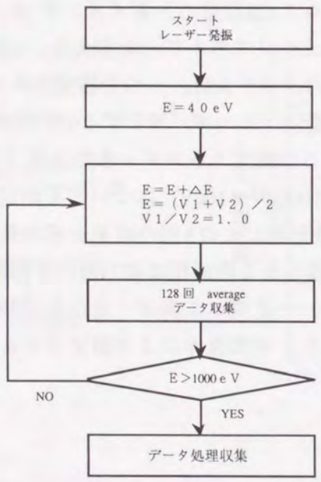


図3-21　高速データ収集処理システムの動作フローチャート

本装置では衝突実験と較正実験により断面積を得るため、その測定精度は、相対精度と絶対値の測定精度の和となる。相対精度については、断面積を得る式(3-5)から導かれる。

$$\sigma(\varepsilon) = -\frac{1}{n_a \ell}\ln\frac{N_i}{N_{ct}+N_i} = -\frac{1}{n_a \ell}\ln\frac{N_i}{N_0} \qquad (3\text{-}5)$$

ここで、σ は電荷移行断面積(cm^2)、ε は衝突エネルギー(eV)、n_a は密度(cm^{-3})、ℓ は作用長、N_iは入射イオン量(C)、N_{ct} は電荷移行イオン量(C)、N_0 は $N_i + N_{ct}$ を示す。式(3-3) を変形し導出された相対精度｜$\Delta\sigma/\sigma$｜は次式となる。

$$\left|\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right| \le \left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta\ell}{\ell}\right| + \left|\frac{\Delta(N_{ct}+N)}{N_{ct}/N}\right| = 2\left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta\ell}{\ell}\right| \qquad (3\text{-}6)$$

ここで、｜$\Delta n_a/n_a$｜は密度変動、｜$\Delta\ell/\ell$｜は作用長の変動を示す。式(3-6)より、相対精度は密度変動と作用長の変動で表される。測定精度を上げるため、高速データ収集処理装置により測定信号をディジタル化し平均処理を行ったので量子化誤差も含まれる。平均処理後の相対精度は量子化誤差を考慮すると次式となる。

$$\left|\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right| \le \left\{\left[2\left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta\ell}{\ell}\right|\right]\frac{1}{\sqrt{N}} + \left(\frac{\Delta q_{N_{ct}}}{N_{ct}} + \frac{\Delta q_{N_i}}{N_i}\right)\right\}\frac{1}{\sqrt{R}} \qquad (3\text{-}7)$$

ここで、N は 1 衝突エネルギーでの平均回数、R は一連の実験を何回行ったかを示し、$\Delta q_{Nct}/N_{ct}$ は電荷移行信号をディジタルデータとしてオシロスコープへ取り込んだ時に生じる量子化誤差、$\Delta q_{Ni}/N_i$ はイオン信号の量子化誤差を示す。Δq_{Nct}、Δq_{Ni} はそれぞれディジタルストレージスコープの量子分解能を示す（付録B1参照）。式(3-7)より一衝突エネルギーの平均回数Nを上げるよりも、平均回数Nを少なくし一連の実験回数Rを数多くすれば測定精度は向上することがわかる。実験ではNを128 回、R を8 回として平均操作し、測定を行った。実験では密度変動｜$\Delta n_a/n_a$｜=30%、作用長の変動｜$\Delta\ell/\ell$｜＜1 %であり、測定の量子化誤差は平均として$\Delta q_{Ni}/N_i$< 4%、$\Delta q_{Nct}/N_{ct}$ < 4%であったので、相対測定精度｜$\Delta\sigma/\sigma$｜<4.7%と評価できる。この測定精度を確かめるため、実験結果をもとに測定頻度の最も高い断面積を中心としてその統計分布を調べた。得られた結果を図3-22に示す。断面積の測定頻度分布は統計分布計算（実線）のものと一致し、その半値幅は4.1%である。これは評価値と良く一致している。絶対値の測定精度は(1)絶対値較正実験、(2)密度評価実験、(3)蒸気速度測定実験時の測定精度から得られる。それぞれの実験でも測定精度を高めるため、平均回数 N と R を増やして行った。較正実験、密度評価実験、蒸気速度測定実験の測定精度はそれぞれ<4.70%、<4.25%、<3.25%であるので、全体として<12.2%となる。

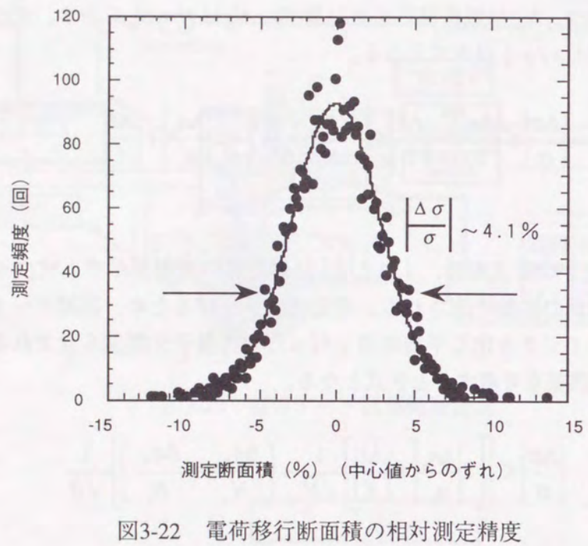


図3-22　電荷移行断面積の相対測定精度

3.4　測定装置の性能確認

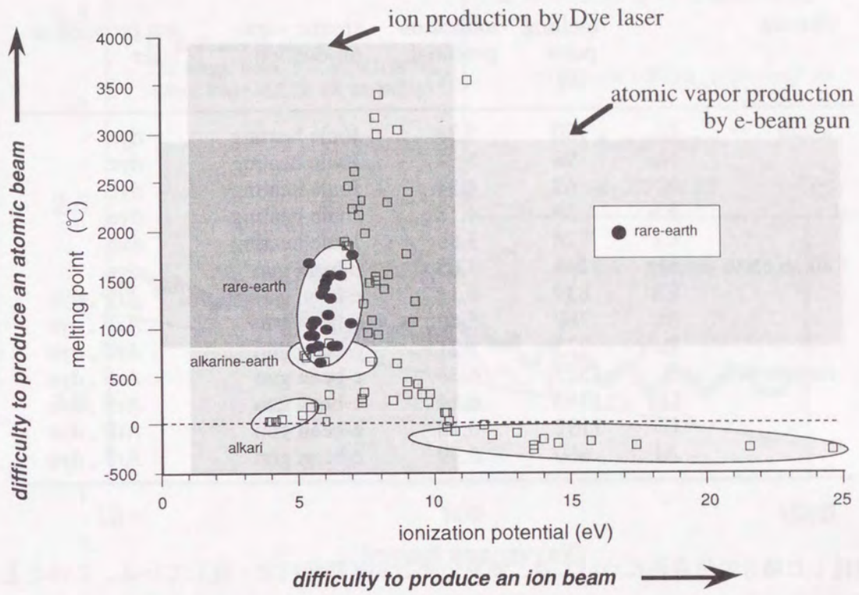


図3-23　元素の融点と電離ポテンシャル

本研究で開発した直交ビーム衝突装置で得られる断面積の妥当性を確かめるために、測定報告のある元素について断面積を測定した。本研究で開発した装置では、電子銃加熱により原子ビームを生成し、レーザー光電離法を用いイオンを生成した。適用可能な元素は、この生成法により決まる。図3-23にすべての元素について、電離ポテンシャルと融点との相関を示す。この図から光電離法は、色素レーザーを用いることにより、ほぼすべての元素に適用できる。また、電子ビーム加熱で安定した原子密度を生成できる元素は、800℃～3000℃までの融点のものと考えられる。本装置で、適用可能な元素を表3.3に示す。アルカリ元素は報告件数が多いが、融点が低いので安定した原子蒸気を電子ビーム加熱法で生成することは困難である。本装置の妥当性を確認するため、比較的融点の高いアルカリ土類のCaを選び電荷移行衝突断面積を測定することにした。Caについては2件の実験報告[25],[26]がある。2件のうちPanev *et al.*の実験結果が共鳴型電荷移行簡易公式に一致することから、参照データとして採用した。

図3-24に10eV～1000eVの衝突エネルギー範囲で得られたCaの測定結果を示す。本研究の結果はPanev *et al.*と同様の振動を示しており、振動周期がほぼ一致している。また、振動項

表3.3　本直交ビーム衝突装置に適応可能な報告例のある元素

element		melting point (c)	ionization potential (eV)	atomic vapar production	ion production laser
alkali	Li	180	5.39	Joule heating	dye
	Na	98	5.31	Joule heating	dye
	K	63	4.34	Joule heating	dye
	Rb	39	4.18	Joule heating	dye
	Cs	28	3.89	Joule heating	dye
alkali earth	Mg	1244	7.65	e-bean gun	dye
	Ca	839	6.11	e-bean gun	ArF , dye
	Sr	769	5.695	e-bean gun	ArF , dye
	Ba	725	5.212	e-bean gun	ArF , dye
rare earth	Y	1522	6.38	e-bean gun	ArF , dye
	Gd	1313	6.14	e-bean gun	ArF , dye
	U	1132	6.18	e-bean gun	ArF , dye
	Al	660	5.99	e-bean gun	ArF , dye

を無視した場合の依存性については、簡易公式と20%程度内で一致している。このことから本装置で得られる断面積は妥当なものと考えられる。Caに見られる振動構造については、イオンと原子は波であるため、この波同士の干渉効果により現れたものである。Mgを除く、アルカリ元素[27]-[30]、アルカリ土類元素[25]の荷移行断面積について実験的に振動構造が確認されており、理論的にも説明されている[31]-[36]。振動構造の現れる概念を図3-25に示す。原子とイオンが衝突係数 b、速度 v で電荷移行衝突する際、原子軌道を結合した状態または分子軌道状態を形成し、その後、電子が移行する。衝突後、それぞれの状態を経たイオン間には位相差が生じる。ある衝突係数bに対して1回の衝突で電荷移行衝突が起こる確率 $P(b,v)$ を計算し、b について0～∞まで積分すれば断面積と位相差の情報を得る。2経路により生成されたイオンは波であり、位相差があるため干渉する。速度 v が変われば位相差も変わるため、断面積に振動構造が現れる。断面積の振動構造は

$$\sigma = \sigma_{mon} - cv^{\alpha}\cos\left(\beta v^{-1} - \delta\right) \tag{3-8}$$

で表される。ここで、σ_{mon} は断面積の単調変化成分（$A'-B'\log_{10}v$）、c と α は定数、v は入射イオン速度、β は振動周期、δ は位相差を示している。本研究の結果はPanev *et al.* と同様の振動周期であるため $\beta=1.57\times10^{-8}$cm/sec、$\delta=-1.51$ とした場合に一致する。

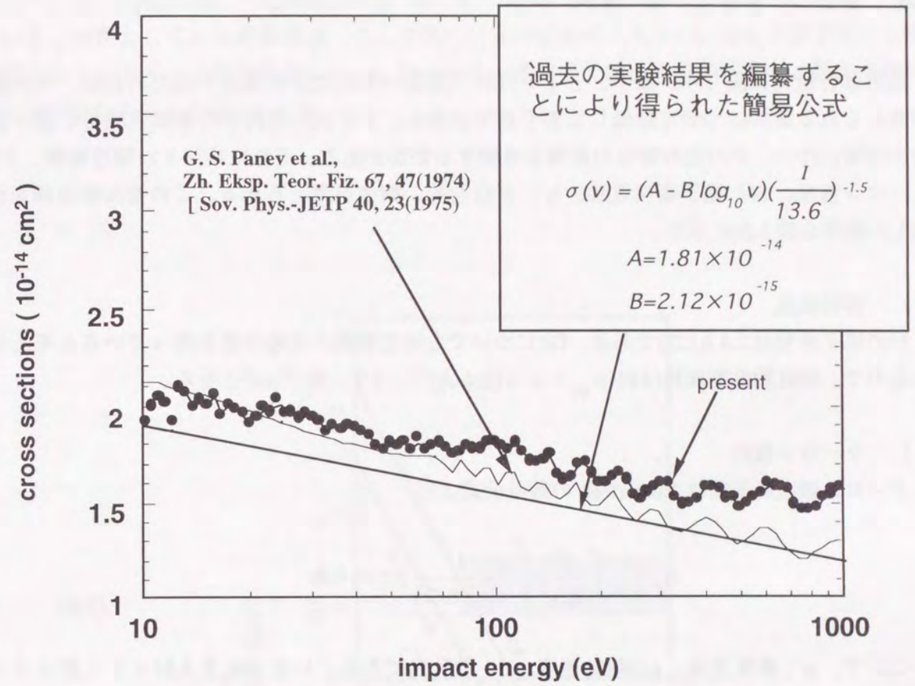


図3-24　Caの対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性

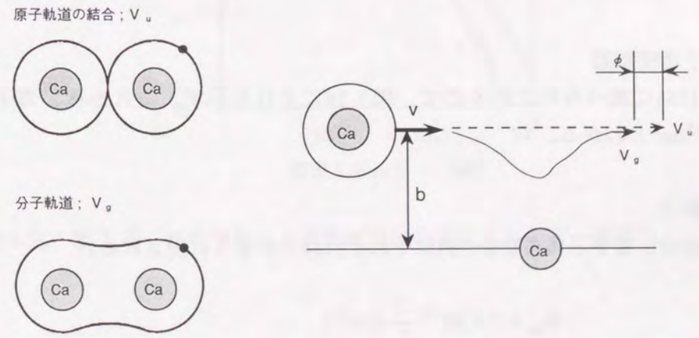


図3-25　Caの振動構造の概念図

3.5　原子ビーム中での他の衝突

電荷移行衝突に限らず、原子、分子の分野で特定の衝突のみを測定するためには、その他の考えられる衝突について評価しておく必要がある。本研究の電荷移行衝突実験でも原子密度の増加に伴い、その他の衝突の影響を考察する必要がある。それには、ｉ）弾性衝突、ii）クーロン散乱、iii）電子衝突電離、iv）再結合等の衝突が考えられる。この衝突断面積を評価した結果を図3-26に示す。

ｉ）　弾性散乱

Uの原子半径は2.4 Å[37]である。Gdについても同じ程度の有効半径を持っていると考えられるので、弾性散乱断面積は約 $\sigma_{\theta 1} \sim \pi \times (2.4\ \text{Å})^2 \sim 1.9 \times 10^{-15}\,\text{cm}^2$ となる。

ii）　クーロン散乱

クーロン散乱断面積は Rutherford の散乱公式より、

$$\sigma_c = \int_{\theta_0}^{\pi} \left(\frac{e^2}{2\mu v^2} \right)^2 \frac{1}{sin^4(\theta/2)} 2\pi sin\theta d\theta \tag{3-9}$$

ここで、μ：換算質量、vは相対速度、θ：散乱角である。いま、θ_0を入射イオンがイオンコレクターから外れる角度とすると、$\theta_0 \sim \pi/8$ となり、E_{ev}を衝突エネルギーとするとその断面積 σ_cは以下のように概算評価できる。

$$\sigma_c = \begin{cases} 3.8 \times 10^{-12} E_{ev}^{-2} \left(\text{Gd}^+ + \text{Gd}^+ \right) \\ 9.4 \times 10^{-12} E_{ev}^{-2} \left(\text{Gd}^+ + \text{e} \right) \end{cases} \tag{3-10}$$

iii）　電子衝突電離

実験的[38]に調べられているので、図3-26にそれを示す。これから、電子衝突断面積は $\sigma_\theta \leqq 10^{-15}\,\text{cm}^2$ とわかる。

iv）　再結合

光子再結合、電子三体再結合[39]はそれぞれ以下のように表される。

$$\sigma_{ph} \approx 3 \times 10^{-22} \frac{1}{T_{ev}} \left(\text{cm}^2 \right) \tag{3-11}$$

$$\sigma_{tb} \approx 3 \times 10^{-22} \frac{1}{N_e} \left(\text{cm}^2 \right) \tag{3-12}$$

ここで、T_{ev}は電子温度、N_eは電子密度（cm^{-3}）である。

いま、対象としている断面積は、ここで述べたものに比べて大きい。加えて原子ビーム中に含まれているイオン密度は少ない。したがって、本装置では、電荷移行衝突に関する衝突のみを測定していると考えられる。

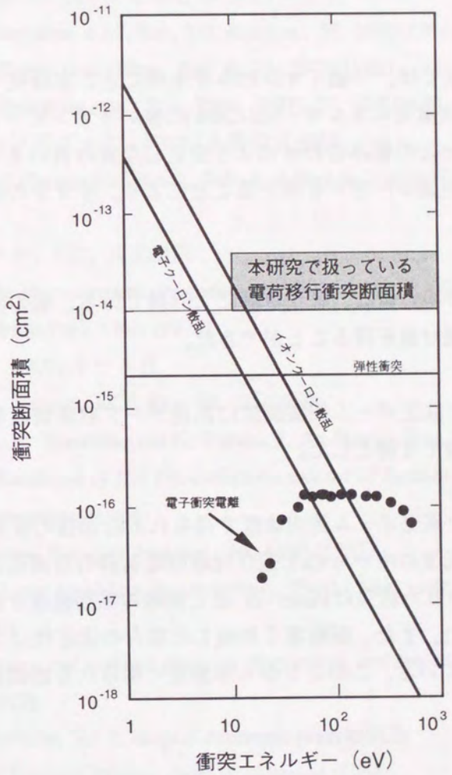


図3-26　原子ビーム中で起こる衝突断面積の衝突エネルギー依存性

3.6 まとめ

本章では希土類元素の電荷移行断面積測定用の直交ビーム衝突装置の開発を行い、報告例のある元素について本装置により測定した断面積が妥当なものであることが確認された。
本章をまとめると、

（1）本装置では原子蒸気生成に電子ビーム加熱法、イオン生成にレーザー光電離法を採用し、従来まで困難とされてきた希土類元素の対称型電荷移行断面積を調べることを可能にした。

（2）レーザー光電離法では、一価イオンのみを生成でき、本研究で対象としている衝突エネルギー範囲では衝突エネルギー幅(<20%)の狭いイオンビームが生成できた。イオンレンズとレーザーとの組み合わせにより安定した質の良いイオンビームをつくることができた。また色素レーザーを用いることにより、イオンの励起状態を制御した実験を可能にした。

（3）電荷移行断面積の絶対値は、較正実験により得ている。他の実験データや物理定数を用いることなく絶対値を得ることができた。

（4）本研究で開発した直交ビーム衝突装置に高速データ収集装置を併用することにより測定精度の高い実験を可能とした。

（5）本研究で開発した直交ビーム衝突装置で得られる断面積の妥当性を確かめるために、測定報告のある元素の中からCaを選び対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を測定した。得られた結果はPanev *et al.*と同様の振動構造を示しており、振動周期がほぼ一致していた。また、振動項を無視した場合の依存性については、簡易公式と<20%内で一致している。このことから本装置で得られる断面積は妥当であると確信できる。

参考文献

[1] G. S. Panev, A. N. Zavilopolo *et al*, Sov. Phys. JETP, **40**, 23(1975)

[2] G. Conforti, F Del Giallo *et al.*, VACUUM(GB), **34**, 778(1984)

[3] J. A. Rutheford, R. F. Mathis *et al.*, J.Chem.Phys.,**55**, 3785(1971)

[4] S. Sakabe, Y. Izawa *et al.*, Physcal Review A, **45**, No.1, 252(1992)

[5] E. A. Hinds and R. Novick J. Phys. B Atom molec.phys, **11**, 2201(1978)

[6] F. L. Eiseie, S. W. Nagy J.Chem.Phys, **65**, 752(1976)

[7] R. D. Runel, D. E. Nitz *et al.*, Phys.Rev.A, **19**, 33(1979)

[8] S. M. Trujillo, R. H. Neynaber *et al.*, Rev. Sci. Instrum., **37**, 1655(1966)

[9] J. H. Newman, J. D. Cogan *et al.*, Phys. Rev. A, **25**, 2976(1982)

[10] V. A. Belyaev, B. G. Brezhnev *et al.*, Sov. Phys. JETP, **27**, 924(1968)

[11] コンパクト物理学ハンドブック、P309, 丸善株式会社
(Americam Institute of Physics Handbook, 3rd ed., edited by Dwing E. Gray [McGraw-Hill, New York 1972])

[12] 薄膜製作ハンドブック、P32, 共立出版
(Selected Values of the Termodynamic Properties of the Elements, R. Hultgren et al. American society for Metals, Metals Park, Ohio (1973)

[13] 薄膜ハンドブック、P909, オーム社
R. E. Honig and D. A. Kramer, RCA Rev. **30**, 285(1969)

[14] .M.Tooma, R.Nishio, K. Tsuchida, and K. Suzuki, J. At. Energy Soc. Jpn. **35**, 438(1993)

[15] K. Kimura et al., in *Handbook of HeI Photoelectron spectra of Fundamental Organic Molecules*（Jpn.Sci.soc.press,Tokyo）

[16] W.C.Wiley,I.H.McLaren, Rev. Sci. Instrum., **26**, 1150 (1955)

[17] David M.Lubman, in Laser and Mass Spectrometory, P490 (New york, Oxford, Oxfor university, Press(1990)

[18] The effect of space charge and residual gases on thermoionic currents in high vacuums., Phys. Rev., **2**, 450(1913)

[19] Focusing of charge Particles Vol.2, chapt.3 Academic press (1967)

[20] Theory and Design of Electron Beams, chapt.9, Nostrand (1954)

[21] Atomic and ionic impact phenomena on metal surfaces, M. Kaminsky.,Springer-Verlag(1965)

[22] J. S. Pearlman, Rev. Sci. Instrum., **48**, 1064(1977)

[23] セラトロン-Eカタログ, 村田製作所, Cat. No. 0301

[24] A. Nishimura, T,Arisawa *et al.*, J. Vac. Soc. Jpn, **35**, 305(1992)

[25] G.S. Panev, A. N. Zavilopolo *et al*, Sov. Phys. JETP, **40**, 23(1975)

[26] J. A. Rutheford,R. F. Mathis *et al.*, J.Chem.Phys.,**55**, 3087(1972).

[27] D. C. Lorents, G. Black *et al.*, Phys. Rev., **137**,A1049(1965)

[28] J. Perel, R. H. Vernon *et al.*, Phys. Rev., **138**, A937(1965)

[29] L. L. Marino, Phys. Rev., **152**, 46(1966)
[30] H. L. Daley and J. Perel,, Proc. 6th ICPEAC, 1969, Cambridge p.1051
[31] F. J. Smith, Phys. Letters **20**, 271(1966)
[32] J. Perel, H. L. Daley and F. J. Smith, Phys. Rev. A, **1**, 1626(1970)
[33] J. Perel, Phys. Rev. A, **1**, 369(1970)
[34] R. E. Olson, Phys. Rev., **187**, 153(1969)
[35] R. E. Olson, Phys. Rev. A, **2**, 121(1970)
[36] J. Perel, H. L. Delay *et al.*, Phys. Rev. letters, **23**, 677(1969)
[37] R. C. Stern and N. C. Lang, J.Chem.Phys, Vol.**70**, 1082(1979)
[38] J. C. Hall *et al*., Phys. Rev. A, Vol.**23**, 1708(1981)
[39] Zel'douich Raizer, Physics of shock Wave and High-temparature Hydrodynamic phenomina. Aademic Press

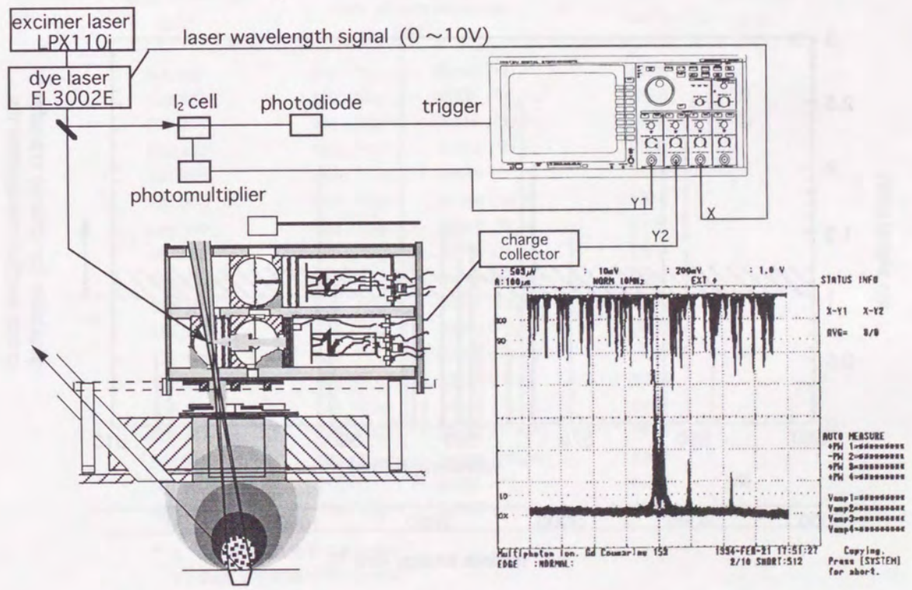
第４章　Gdの電荷移行断面積

4.1　はじめに

3章では希土類元素の電荷移行断面積を測定するための直交ビーム衝突装置の開発を行い、この装置により得られる断面積が妥当であることを報告例のあるCaを測定することにより確かめた。本章では、希土類元素の中でも、特に同位体分離の研究において注目されている元素の一つであるGdについて、電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を測定する。得られた結果を共鳴型電荷移行簡易公式と比較し、衝突過程について考察する。

4.2　主イオン生成（内部エネルギー状態の制御）

Gdの電荷移行衝突断面積を測定するには、電荷移行イオンを検出に足る十分な主イオンを準備する必要がある。主イオンは色素レーザーを用い１波長3段階の光電離により生成した。レーザー波長とイオン生成量との相関を調べる実験配置を図4-1(a)に示す。XeClエキシマーレーザーポンプの色素レーザー光をF/12のレンズで集光し、Gd原子蒸気ビームに照射する。原



(a)　(b)

図4-1　レーザー波長とイオン生成量との相関を調べる実験配置

子蒸気密度を一定に保ちながらレーザーの波長を掃引させた。光電離により生成されたイオンは、レーザー照射領域の両端に設けた半球ー平板電極に電圧を印加することにより90°方向に偏向させ、コレクタープレートで測定した。同時に、レーザー光の絶対波長を調べるため、レーザー光の一部をヨウ素セルに入射し、その蛍光をモニターした。レーザー波長を17809.4 cm^{-1} (561.5 nm) から17825.3cm^{-1} (561.0 nm) まで掃引させた場合の測定結果を図4-1(b)に示す。図中の横軸はレーザー波長、縦軸は信号強度を示す。図の上部にあるスペクトルがヨウ素セルからの蛍光、下部がイオン信号を示している。ヨウ素の蛍光スペクトルはS. Gerstenkorn[1]らにより詳しく調べられている。彼らのデータと実験の蛍光スペクトル結果を比較することにより、イオンを生成したレーザー光の波長の同定を行った。また、Gd^+イオンが生成されたレーザー光の波長と原子準位データからも絶対波長を確かめた。レーザー波長と生成イオンとの関係を図4-2に示す。電荷移行衝突装置で断面積測定が可能な主イオン量は1mV以上である。図より断面積測定に足る十分な主イオンは、18本のレーザー波長で生成されることが分かった。レーザー波長とGd原子のエネルギー準位[2]を比較することにより光電離イオン生成過程を詳しく調べた。この電離過程を表4-1、図4-3(a)に示す。18本のレーザー波長で生成されたイオンはいずれも2光子目の共鳴状態を経て電離していることが分かった。3光子目近辺のエネルギー準位については情報が十分ないため、仮想のエネルギー準位として破線で示した。図4-3(a)右上にはGd^+イオンのエネルギー準位も示した。

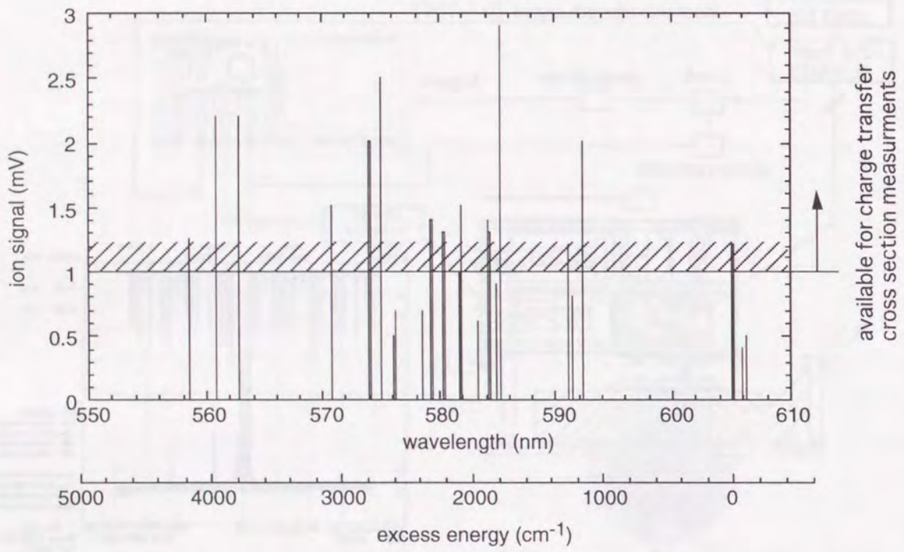


図4-2　1波長3光子電離により生成されたGd^+イオン量のレーザー光波長依存性

λ =606.425 nmのレーザー波長（図の一番左）をイオン生成に用いた場合、その3光子目の仮想準位がGd^+イオンの第一励起状態 5d6s $^{10}D_{7/2}$（261 cm^{-1}）以下のため、基底状態のGd^+イオンのみを生成することができる。他のレーザー波長で生成されたイオンも同様に3光子目の仮想エネルギー準位以下の状態に分布すると考えられる。ここで、レーザーの3光子エネルギーから電離ポテンシャルを差し引いたものを「余剰エネルギー」と定義する。この場合、0 cm^{-1} の余剰エネルギーがGdの電離ポテンシャルに相当する。イオン生成に色素レーザーを用いた場合、82～4620cm^{-1} の余剰エネルギー範囲で異なるイオンの励起状態のイオンを生成できることが分かった。

このように、イオン生成に色素レーザーを用いた場合、測定に足る十分なイオンを1波長3段階光電離過程で生成でき、イオンの励起状態を制御できることが分かった。また、レーザー波長とGd原子のエネルギー準位を比較することにより、イオンは2光子目の共鳴状態を経て電離生成されていることも分かった。

表4-1　電荷移行断面積測定に足る十分なGd^+イオンが生成されたレーザー波長

laser wavelength (nm)	transition for two-photon resonance (cm^{-1})	$3\varepsilon - I^*$ (cm^{-1})	図4-5中の記号
606.425	215 ($^9D_3^o$) → 33195 ($^9D_3^o$)	82.66	×
606.028	533 ($^9D_4^o$) → 33535 ($^9D_4^o$)	432.8	●
605.231	999 ($^9D_5^o$) → 34044 ($^9D_5^o$)	964.2	○
592.490	999 ($^9D_5^o$) → 34754 ($^9D_6^o$)	2030	
591.494	999 ($^9D_5^o$) → 34812 ($^9S_6^o$)	2115	
591.205	215 ($^9D_3^o$) → 34044 ($^9D_5^o$)	1356	
585.390	533 ($^9D_4^o$) → 34698 ($^7F_4^o$)	2178	
585.032	533 ($^9D_4^o$) → 34719 ($^9S_4^o$)	2209	
584.419	533 ($^9D_4^o$) → 34754 ($^9D_6^o$)	2263	
583.451	533 ($^9D_4^o$) → 34811 ($^9S_6^o$)	2348	
580.523	533 ($^9D_4^o$) → 34984 ($^7S_3^o$)	2607	
579.496	533 ($^9D_4^o$) → 35045 ($^7S_3^o$)	2699	△
578.667	999 ($^9D_5^o$) → 35561 ($^{11}P_4^o$)	3239	
575.218	215 ($^9D_3^o$) → 34985 ($^7S_3^o$)	2767	
570.967	533 ($^9D_4^o$) → 35561 ($^{11}P_4^o$)	3472	
562.950	533 ($^9D_4^o$) → 36060 ($^9D_4^o$)	4220	
561.081	215 ($^9D_3^o$) → 35860 ($^9D_4^o$)	4080	■
558.758	533 ($^9D_4^o$) → 36326 ($^7D_4^o$)	4621	

* ε ;レーザーの1光子エネルギー
I ; Gd原子の電離ポテンシャル

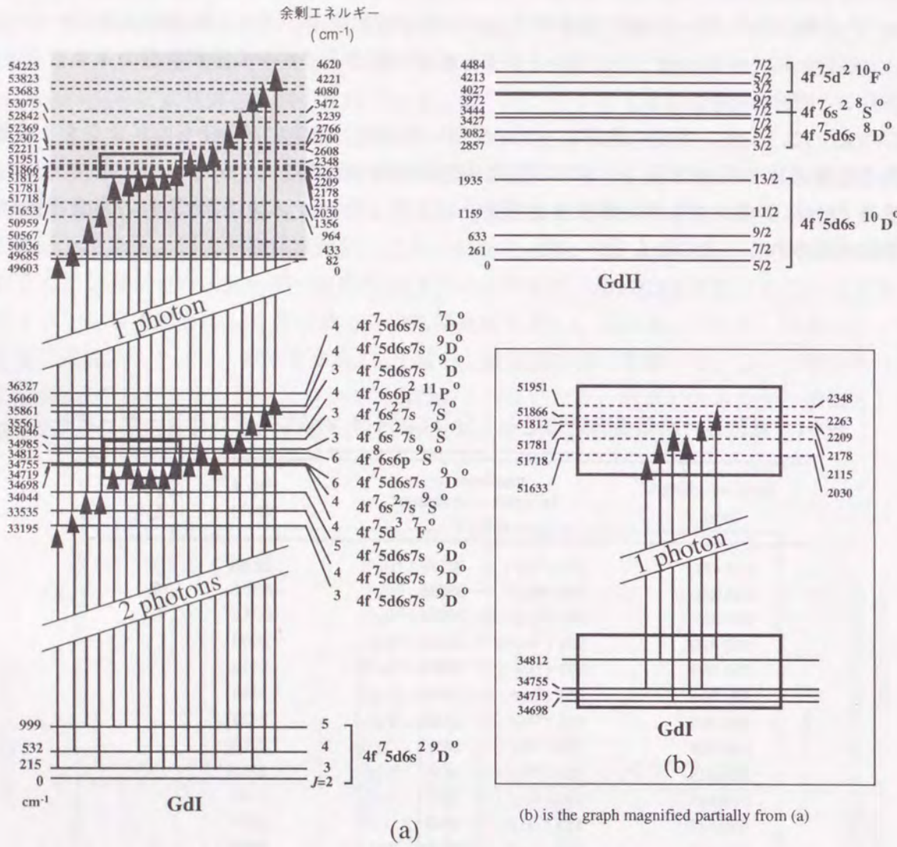


図4-3　色素レーザーによる１波長3段階光電離イオン生成過程

4.3　電荷移行断面積の主イオン生成光子エネルギー依存性

色素レーザーの18本のレーザー波長で生成されたイオンを用い、衝突エネルギー 50eVと100 eVにおいて断面積の測定を行った。得られた断面積を余剰エネルギーの関数として図4-4に示す。図より、衝突エネルギーが50 eVのものより100 eVのほうが断面積が大きいことがわかる。余剰エネルギーが大きくなると断面積が大きくなる傾向を示した。余剰エネルギー2200 cm^{-1}を境に断面積が1.6 ～ 2倍違うことが分かった。

断面積の余剰エネルギー依存性を更に詳しく調べるために、図4-4に矢印で示した5 レーザー波長で生成されたイオンを用いて電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を調べた。測定結果を図4-5に示す。図中の実線は簡易公式により求めた断面積を示し、また、測定断面積を示す記号の横にはイオン生成に用いたレーザー波長（余剰エネルギー）を示した。得られた断面積は1000 eV の衝突エネルギーでいずれもイオンの余剰エネルギーに関係することなく$3.2\times10^{-14}cm^2$を示し、簡易公式に比べ2倍大きいことが分かった。断面積の衝突エネルギー依存性は余剰エネルギーにより異なる傾向を示してる。また、断面積は簡易公式とは異なり、最大値をもち、衝突エネルギーの減少と伴に小さくなることも分かった。

606.425 nm のレーザー波長を用いた場合、その余剰エネルギーがGd^+イオンの第一励起状態 5d6s $^{10}D_{7/2}$（261 cm^{-1}）以下のため、基底状態のGd^+イオンのみを生成できる。この場合、Gd^+イオンは基底状態にあるにもかかわらず断面積の衝突エネルギー依存性が共鳴型電荷移行簡易公式のものとは異なっている。この理由の一つとして、原子が励起状態に分布していることが考えられる。Gd 原子蒸気は2000 Kに加熱され生成されているため、それぞれ0cm^{-1}、215 cm^{-1}、533 cm^{-1}、999 cm^{-1}、1719 cm^{-1} のエネルギー準位に熱的に18%、21%、25%、19%、17%の割合で分布している。このため、観測している衝突は始状態が基底状態イオンと基底状態原子の衝突のみではない。また、2章でも述べたようにGdは基底状態に近接した励起状態を4つ持つ。このため、基底状態のGd 原子とGd^+イオンを衝突させても、衝突後、基底状態に近接した励起状態へ移行する非共鳴型電荷移行過程も十分可能と考えられる。

このように、基底状態イオンを用意し原子に衝突させても、原子が基底状態のみでないため衝突が複雑になり、また、衝突後も近接した励起状態へ移行する非共鳴型電荷移行も可能となるため衝突過程を更に複雑にしている。余剰エネルギーの高いレーザー波長で生成されたイオンは多くの高い励起状態に分布するため、原子との電荷移行衝突過程の数が増え複雑になる。実験は原子蒸気密度を一定にして行った。このため、Gd 原子の励起状態の分布は一定である。測定結果は余剰エネルギーが大きくなると、断面積が大きくなる傾向を示している。このことから、Gdの断面積が余剰エネルギーにより異なるのはイオンの励起状態によるものである。

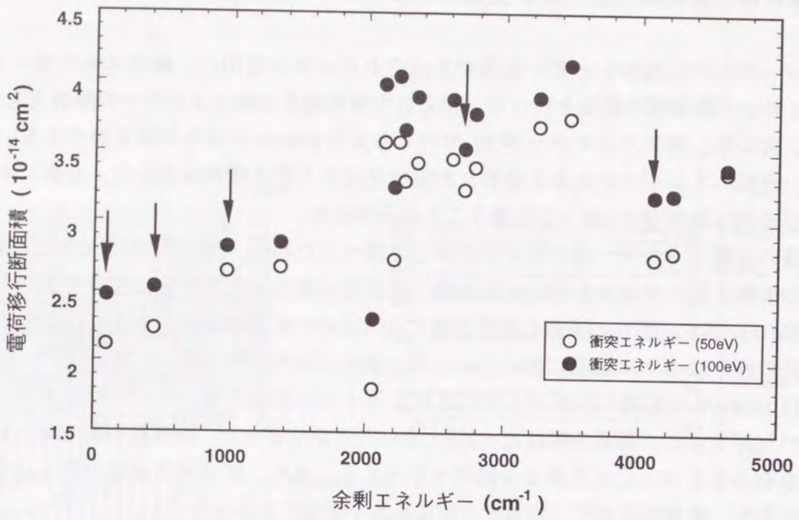


図4-4　Gdの電荷移行断面積の余剰エネルギー依存性
（矢印のデータについては、図4-5に衝突エネルギー依存性を示す）

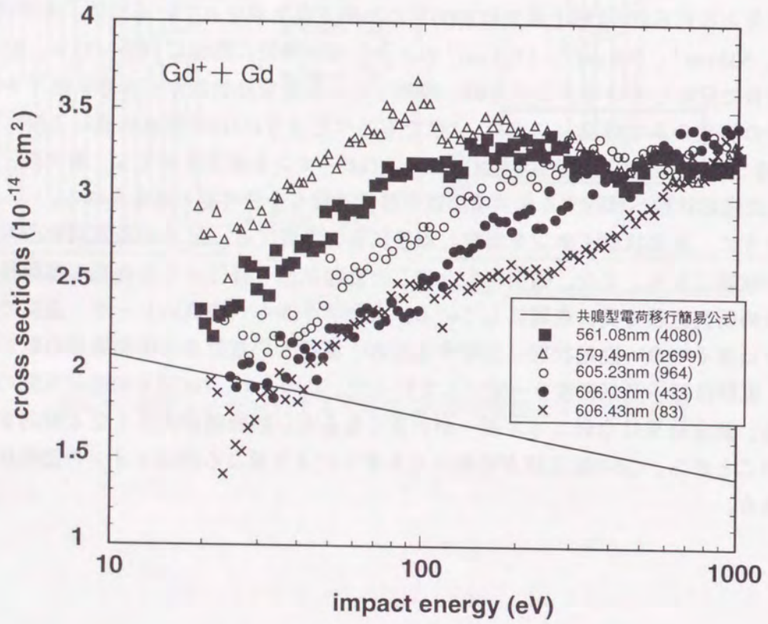


図4-5　Gdの電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性

4.4　主イオンの励起状態密度分布

4.3節ではGdの電荷移行断面積がイオンの励起状態の違いにより異なることが分かった。イオンの始状態が断面積にどのように関係するかを明らかにするため、606.43 nm（82 cm^{-1}）、606.03 nm（433 cm^{-1}）、606.23 nm（964 cm^{-1}）のレーザー波長（余剰エネルギー）で生成されたイオンの励起状態密度分布を調べた。

Gd$^+$イオンは4.2節（図4-3参照）で示したように、基底状態$^{10}D_{5/2}^{o}$に近接した4つの励起状態$^{10}D_{7/2}^{o}$（262cm^{-1}）、$^{10}D_{9/2}^{o}$（633cm^{-1}）、$^{10}D_{11/2}^{o}$（1159cm^{-1}）、$^{10}D_{13/2}^{o}$（1935cm^{-1}）をもつ。レーザー誘起蛍光法[3]により、イオンの励起状態密度分布を測定した。1台目のパルス色素レーザーによりイオンを生成し、1μsec後、2台目のパルスレーザーをプローブ光として入射する。2台目のパルス色素レーザーの波長を[$^{10}D_{5/2}^{o}$、$^{10}D_{7/2}^{o}$ → $^{10}F_{5/2}$]、[$^{10}D_{7/2}^{o}$、$^{10}D_{9/2}^{o}$、$^{10}D_{11/2}^{o}$ → $^{10}F_{9/2}$]、[$^{10}D_{11/2}^{o}$、$^{10}D_{13/2}^{o}$ → $^{10}F_{11/2}$]の共鳴遷移付近で掃引する。上順位$^{10}F_{5/2}$（26212 cm^{-1}）、$^{10}F_{9/2}$（27162 cm^{-1}）、$^{10}F_{11/2}$（27864 cm^{-1}）から放出される蛍光量を光電子増倍管で検出しBoxcar averagerを通しチャートレコーダーで記録した。測定された蛍光信号は1台目のレーザー光照射の有無によりイオンによるものと確認した。得られた蛍光のピーク強度比、統計的重率、レーザー光偏向による遷移を考慮して状態密度分布を評価した。なお、レーザーのエネルギーは上準位の状態密度を飽和させるのに十分な程強くした。表4-2に測定結果をまとめた。表には余剰エネルギー（$3\varepsilon-I$）も記載した。ここで、εはレーザーの1光子のエネルギー、IはGd原子の電離ポテンシャルを示す。表より、イオンは余剰エネルギー以下のエネルギー状態に分布することが分かった。

表 4-2　各レーザー波長の主イオンの状態密度分布

laser wavelength (nm)	transition for two-photon resonance (cm^{-1})	$3\varepsilon - I$ * (cm^{-1})	density population(%) of Gd ion in the states of				
			0 cm^{-1}	262 cm^{-1}	633 cm^{-1}	1159 cm^{-1}	1935 cm^{-1}
606.425	215 → 33195 ($^9D_3^o$) ($^9D_3^o$)	82.66	100	0	0	0	0
606.028	533 → 33535 ($^9D_4^o$) ($^9D_4^o$)	432.8	38	62	0	0	0
605.231	999 → 34044 ($^9D_5^o$) ($^9D_5^o$)	964.2	42	15	43	0	0

* ε ；レーザー1光子のエネルギー
I ；Gd原子の電離ポテンシャル

4.5　基底イオンと原子、及び励起イオンと原子間の電荷移行断面積

4.4節では、606.43 nm（82 cm^{-1}）、606.03 nm（433 cm^{-1}）、606.23 nm（964 cm^{-1}）のレーザー波長（余剰エネルギー）で生成されたイオンの励起状態密度分布を示した。また、それぞれのイオンと原子間の電荷移行断面積については、4.3節で測定した。
606.43 nm、606.03 nm、606.23 nmの波長のレーザー光で生成されたイオンの励起状態密度分布を得たので、基底状態と原子間及び励起状態イオン（262 cm^{-1}、633 cm^{-1}）と原子間の断面積を次式により得ることができる。

$$\begin{pmatrix}\sigma_1\\ \sigma_2\\ \sigma_3\end{pmatrix}=\begin{pmatrix}1 & 0 & 0\\ 0.38 & 0.62 & 0\\ 0.42 & 0.15 & 0.43\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\sigma_0\\ \sigma_{262}\\ \sigma_{633}\end{pmatrix} \qquad (4\text{-}1)$$

ここで、σ_n (n=1,2,3) は606.43 nm、606.03 nm、606.23 nmのレーザー波長で生成されたイオンと原子間の電荷移行断面積を示す（図4-6）。σ_0、σ_{262}、σ_{633} は 0 cm^{-1}、262 cm^{-1}、633 cm^{-1} のエネルギー状態にあるイオンと原子間の電荷移行断面積を示す。実験により得られた断面積 σ_n(n=1,2,3)を式(4-1)を代入すれば σ_0、σ_{262}、σ_{633} を計算により得ることができる。

Gd^+（0cm^{-1}）　+　Gd、
Gd^+（262cm^{-1}）+　Gd、
Gd^+（633cm^{-1}）+　Gd

の衝突断面積を衝突エネルギーの関数として図4-7に示す。実線は共鳴型電荷移行簡易公式を示す。断面積 σ_0、σ_{262}、σ_{633} の相対精度はそれぞれ＜3.6%、＜7.2%、＜11% である。得られた断面積はいずれも衝突エネルギー1000 eVで簡易公式に比べ2倍大きく、衝突エネルギーの減少に伴って断面積が小さくなり簡易公式に漸近的に近づく傾向を示している。また、Gd^+（262 cm^{-1}）+Gd、Gd^+（633 cm^{-1}）+Gdの断面積は衝突エネルギー500 eVと200 eVに最大値を示しており、イオンの励起状態が高くなると最大値を示す衝突エネルギーが低エネルギー側にシフトすることが分かった。

Gdの測定結果が共鳴型電荷移行簡易公式とは異なる衝突エネルギー依存性を示していることから、共鳴型と非共鳴型が混在しているものと考えられる。Gd原子は基底状態に近接した励起状態を4つ持つ。このため、基底状態のGd原子とGd^+イオンを衝突させても、衝突後、基底状態に近接した励起状態へ移行する非共鳴型電荷移行過程も可能であるので、ΔEの大きな元素を良く説明する共鳴型の理論計算をGdに適用することはできない。

Gdの結果と比較するためにΔEの大きな元素としてCaの測定結果を図4-7(d)に示す。実線は共鳴型電荷移行簡易公式を示す。Caの測定に関しては3章で詳しく述べた。Caの原子蒸気温度を900Kに保ち衝突実験を行った。Ca原子は第一励起状態15158 cm^{-1}が基底状態に比べ十分離れているため、原子のほとんどが基底状態にある。Ca^+イオンはArFエキシマーレーザー

（λ = 193 nm）を用い生成した。ArFレーザーをイオン生成に用いた場合、その余剰エネルギーは2508 cm^{-1}である。Ca^+イオンの第一励起状態は余剰エネルギーよりも11142 cm^{-1}高いので、ArFレーザー生成によるCa^+イオンはそのほとんどが基底状態になる。ゆえに、イオンと原子は共に基底状態のものを用い衝突実験を行えた。Ca原子の第一励起状態と基底状態のエネルギー差ΔEは15158 cm^{-1}であるので（$a\Delta E/\hbar v$=4.12～41.2）、衝突エネルギー範囲（10～1000 eV）においてCaの電荷移行衝突は2章でも述べたように対称型共鳴型となる。このため実験結果と共鳴型電荷移行簡易公式の一致が見られた。

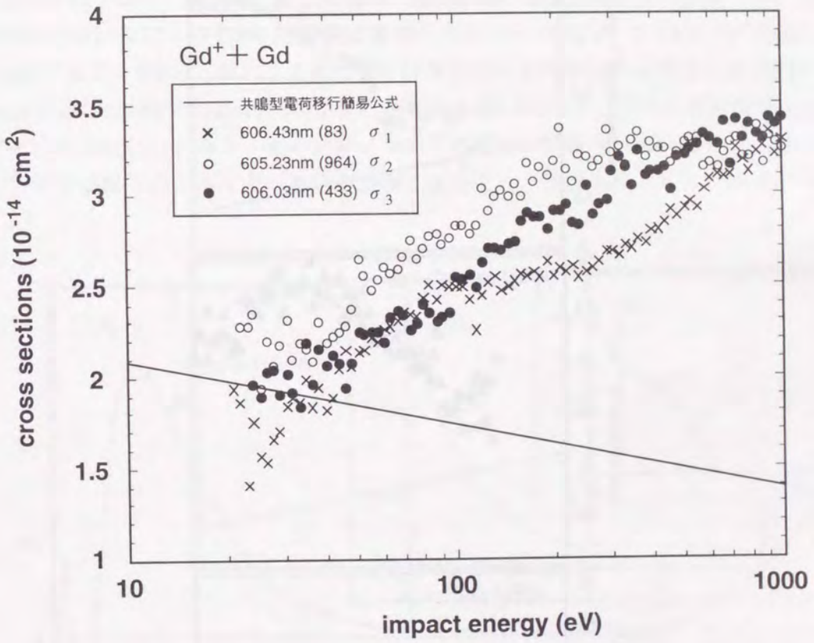


図4-6　Gdの電荷移行衝突断面積の衝突エネルギー依存性

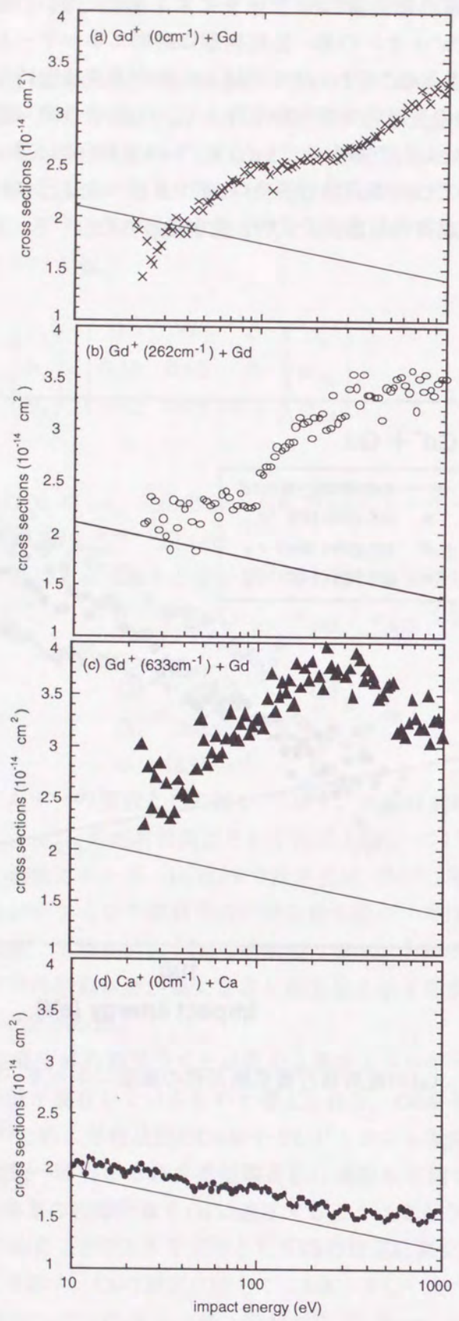


図4-7　電荷移行衝突断面積のイオンの初期状態依存性

4.6　Gdの電荷移行断面積の考察

Gdの断面積は1000eVの衝突エネルギーで3.2×10^{-14} cm^{2}と共鳴型電荷移行簡易公式に比べ2倍大きく、衝突エネルギー依存性も異なることが明らかとなった。多準位をもつ複雑元素の衝突を取り扱った計算がないためGdの結果を定量的、理論的に説明することはできないが、本章では、断面積が2倍大きくなる可能性と依存性が異なる可能性について定性的に考察してみる。

（a）絶対値

Gdの電荷移行断面積はイオンの励起状態に依存することなく衝突エネルギー1000eVで同じ値（3.2×10^{-14} cm^2）を示した。この値は、約20bohrの相互作用半径に相当する。これに対し、2準位近似計算によるGdの断面積は衝突エネルギー1000 eVで1.4×10^{-14} cm^{2}なので約13 Bohrになる。2準位近似による断面積の計算に用いられるGdの6s電子の波動関数についてHartree-Fock-Slator法でHermanら[4]が求めたものを図4-8に示す。図中の波動関数は22bohr半径の付近から急激に0になり、裾の部分については厳密に計算されていない。一般に、原子物理の分野では原子のエネルギー準位が厳密に議論され、理論もエネルギー準位が精密に再

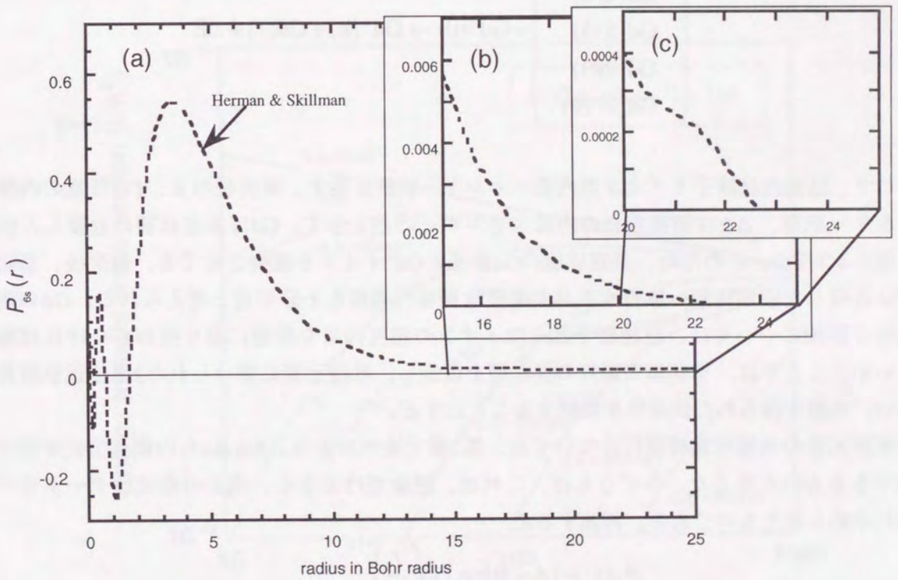


図4-8　Gdの6s電子の波動関数

(b)、(c)は(a)の一部を拡大したもの（Hartree - Fock - Slator 法）

現できれば、その理論は正しいと考えられてきた。エネルギー準位は波動関数の裾の形状にあまり影響されないので、波動関数の裾を厳密に取り扱う必要はなかった。著者はGdの電荷移行断面積の測定結果が従来の計算結果より約2倍大きいのは、Gdの6s電子の波動関数の裾の部分が計算のものよりも延びているからであろうと推測する。理論的に波動関数の裾を厳密に計算することは必ずしも困難とは言えないが、今日まで、波動関数の裾の効果が表れるような実験が全く無かったので、理論的研究が行われなかったといえる。本研究の結果は波動関数の裾の部分を間接的に測定してることになる。Gdの電荷移行断面積が計算値よりも2倍大きいことから、Gdの6s電子の波動関数は今までの理論計算で得られたものよりも裾の部分が延びていることを示唆していると考える。

（b）依存性

Gd原子蒸気源は2000 Kに加熱されているため、原子は0 cm^{-1}、215 cm^{-1}、533 cm^{-1}、999 cm^{-1}、1719 cm^{-1}のエネルギー準位に熱的にそれぞれ18%、21%、25%、19%、17%の割合で分布している。このため、観測している衝突は基底状態イオンと基底状態原子の衝突のみではない。

$$\begin{pmatrix} \mathrm{Gd}(0\mathrm{cm}^{-1}) \\ \mathrm{Gd}(215) \\ \mathrm{Gd}(533) \\ \mathrm{Gd}(999) \\ \mathrm{Gd}(1719) \end{pmatrix} + \mathrm{Gd}^{+}(0) \rightarrow \mathrm{Gd}^{+}(\mathrm{k}) + \mathrm{Gd}(\ell) + \Delta \mathrm{E} \tag{4-2}$$

ここで、括弧内は原子とイオンの内部エネルギー状態を表す。衝突後のk、ℓは任意の内部エネルギー状態、ΔEは衝突前後の内部エネルギーの差を示す。Gdは基底状態に近接した励起状態を4つ持つ。このため、基底状態のGd原子とGd^{+}イオンを衝突させても、衝突後、基底状態に近接した励起状態へ移行する非共鳴型電荷移行過程も十分可能と考えられる。Gdの衝突過程の詳細については、複雑原子とそのイオンの相互作用を厳密に取り扱われなければ解けないが、ここでは、単純衝突過程の混在型を仮定し、単純元素に用いられた2準位近似計算を用い、実験で得られた依存性を考察することにする。

単純元素の共鳴型電荷移行については、第2章で述べたようにSakabeらの簡易公式が最も信頼できるものと考えた。なぜならば、これは、理論だけでなく、過去の全実験データをベースに求められたものである。再述すると

$$\sigma_R(v) = \left(A - B\log_{10} v\right)\left(\frac{I}{I_0}\right)^{-1.5} \tag{4-3}$$

ここでA=1.81×10^{-14}、B=2.12×10^{-15}、vは衝突速度(cm/sec)、I_0は水素原子の電離ポテンシャル13.6eV、Iは対象原子の電離ポテンシャル、$\sigma(v)$は電荷移行断面積(cm^2)を示す。

単純元素の非共鳴型電荷移行については、原子とイオンに対する元素の組み合わせが多く、

実験データベースは公式を見い出せるほど十分ではない。そこで、取り扱いが比較的容易なRapp and Francisの計算[5]を用いる。彼らの計算では

$$\sigma_{NR}(v) = \frac{9(1.202)}{\pi}\frac{\gamma^2 v^4}{a_0 \omega^4} \tag{4-4}$$

となっている。ここで、$\gamma = (I/13.6)$、Iは対象原子の電離ポテンシャル、vは衝突速度、a_0はボーア半径、$\omega = \Delta E/\hbar$、ΔEは衝突前後の内部エネルギーの差（非共鳴の差）を示す。しかし、この計算結果は実験とのずれがある。つまり、これを共鳴型で用いると

$$\sigma_R \propto I^{-1} \tag{4-5}$$

となり、第2章で述べた$\sigma \propto I^{-1.5}$と異なる。加えて、彼らの論文に一部誤りがある。著者は、この点について注意し、式の一部の誤りに訂正、改良をして用いた。図4-9に、簡易公式（$\Delta E = 0$cm^{-1}の実線）、Rapp and Francis修正改良型（$\Delta E \neq 0$cm^{-1}の曲線）の2つのGdの断面積を示す。計算結果の絶対値は1000eVで実験結果と一致するようにを合わせた。図中のΔE

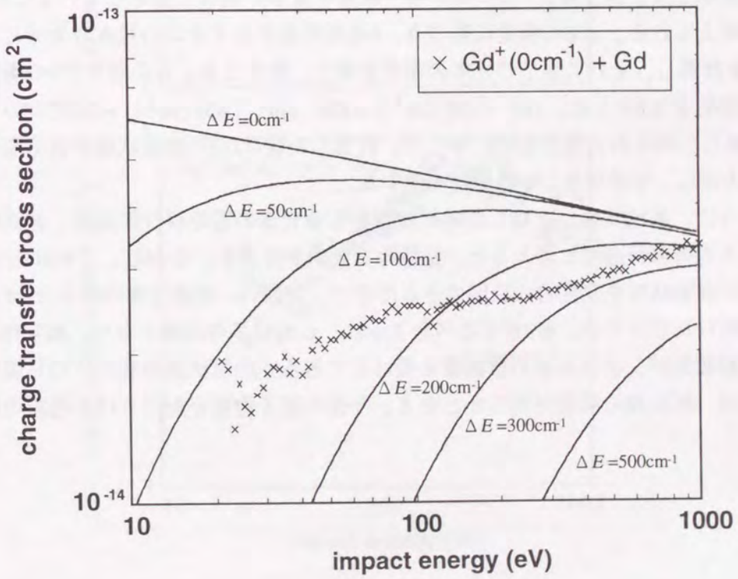


図4-10　Sakabeらの簡易公式による共鳴型断面積（ΔE =0cm^{-1}の実線）とRapp&Francis改良修正による非共鳴型断面積（$\Delta E \neq 0$cm^{-1}の曲線）の計算

は非共鳴過程の衝突前後の内部エネルギーの差を表している。図にはGd^+（0 cm^{-1}）+Gdの実験結果も示した。実験結果は30～1000 eVの衝突エネルギーで非共鳴型と似た依存性を示しているが、100～200 eVには棚構造（衝突エネルギーに依存しない部分）がみられる。また、30eV以下の衝突エネルギーで共鳴型電荷移行の計算結果に近づく傾向となっている。つまり、Gdの場合、共鳴型、非共鳴型の混在型の電荷移行過程となる。

共鳴、非共鳴が混在していると仮定し、1000eVでの実験結果と一致させた計算結果を図4-10に示す。共鳴型電荷移行と非共鳴型電荷移行の割合を36%と63%としてΔEを調整して計算すると

Gd^+（0cm^{-1}）+Gd、
Gd^+（262cm^{-1}）+Gd、
Gd^+（633cm^{-1}）+Gd

の実験結果とよく一致する。図4-10中には計算で用いた非共鳴の差ΔEを示した。衝突させるGd^+イオンの励起状態が大きくなるとΔEが小さくなる傾向を示している。これまで非共鳴の差ΔEは衝突前と衝突後の内部エネルギーの差と定義して議論を進めてきた。ここでΔEを衝突前のイオンと原子の内部エネルギーの差と仮定すれば、Gd^+イオンの励起状態が大きくなるとΔEが小さくなる傾向を定性的に説明できる。それぞれのイオンと原子の衝突過程を表4-3に示す。原子については、熱的に励起しているため、0～1719 cm^{-1}のエネルギー状態に分布する。測定により得られた原子の分布の割合も表中に数字で示した。Gd^+（0cm^{-1}）+Gdを例にとって説明する。原子は5つのエネルギー状態に表中の割合で分布しているため、5つの衝突過程が考えられる。ΔEの仮定に基づき、5過程の原子とイオンの組み合わせについてそれぞれΔEを計算し、それに原子の分布の割合を乗じ、和をとる。この値を5つの衝突過程を考慮した最終的なΔEとした。Gd^+（262 cm^{-1}）+Gd、Gd^+（633 cm^{-1}）+Gdについても同様にΔEを計算し、得られた値を表中に示した。計算した値はGdの励起状態が高くなると小さくなる傾向を示し、実験結果と定性的に一致する。

このように、基底状態に近接した励起状態をもつ元素の電荷移行衝突は、非共鳴と非共鳴が混在する電荷移行過程と考えると、定性的な説明が行える。しかし、これはあくまで、Gdについての実験結果を定性的に説明できるだけで、実際の、複雑元素の原子-イオン相互作用は、まだ明らかではない。第2章で述べたように、これは多体問題となり、相互作用を受ける電子の波動関数が、全（あるいは影響を受けるであろう励起状態の数だけの）固有関数で展開できた時、断面積の詳細が明らかとなる。今後の原子物理分野における理論の飛躍が望まれる。

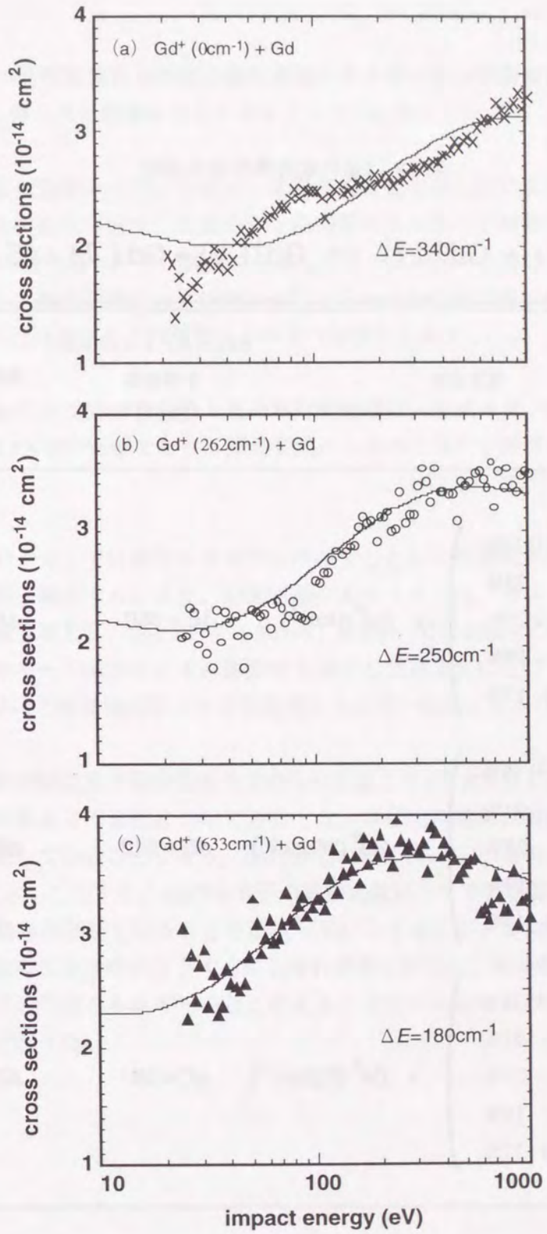


図4-10　Gdの電荷移行断面積衝突エネルギー依存性の共鳴、非共鳴混在型の計算と実験との比較
(a)、(b)、(c)中の実線は共鳴型を36%、非共鳴型を63%の割合で混在するとした場合の計算結果

表4-3　Gdの電荷移行衝突過程

$$Gd(i) + Gd^{+}(j) \rightarrow Gd^{+}(k) + Gd(\ell) + \Delta E$$

反応過程		$\Delta E = \lvert i-j \rvert$ とした場合の 計算結果 (cm-1)	実験結果 (cm-1)
Gd (0 cm-1) 18% Gd (215) 21% Gd (533) 25% Gd (999) 19% Gd (1719) 17%	+ Gd^{+}(0cm-1)	$\Delta E = 660$	$\Delta E = 340$
Gd (0 cm-1) 18% Gd (215) 21% Gd (533) 25% Gd (999) 19% Gd (1719) 17%	+ Gd^{+}(262cm-1)	$\Delta E = 512$	$\Delta E = 250$
Gd (0 cm-1) 18% Gd (215) 21% Gd (533) 25% Gd (999) 19% Gd (1719) 17%	+ Gd^{+}(633cm-1)	$\Delta E = 381$	$\Delta E = 180$

4.7　まとめ

本章では、Gdの対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を測定し、得られた結果について考察した。得られた結果をまとめると次のようになる。

（1）イオン生成に色素レーザーを用い、発振波長を変えることにより18本の色素レーザー波長でイオン生成可能で、生成イオンの内部エネルギーを制御することができた。このうち、3本の色素レーザー波長で生成したイオンの励起状態分布をレーザー誘起蛍光法で測定し、基底状態、および262cm^{-1}、633cm^{-1}の励起状態にあるイオンと中性原子との電荷移行断面積とその衝突エネルギー依存性を測定した。

（2）衝突エネルギー1000eVにおける電荷移行断面積は、生成イオンの内部エネルギーにかかわらず3.2×10^{-14}cm^{2}であり、簡易公式から求めた値の２倍程度大きいことが分かった。

（3）基底状態のイオンでは衝突エネルギーの減少とともに断面積が小さくなり～40eV付近で簡易公式に漸近する。また、励起状態にあるイオンは、衝突エネルギーの減少とともに断面積は増大し、262cm^{-1}では500eV、633cm^{-1}では200eVで最大値を示し、その後衝突エネルギーの減少とともに断面積も減少し簡易公式に近づく。高い励起状態にあるイオンはほど断面積の最大となる衝突エネルギーは低エネルギー側にシフトする。

（4）電荷移行衝突断面積が簡易公式で求められた値より2倍大きく、またその衝突エネルギー依存性が異なる可能性について考察した。本研究の結果は波動関数の裾の部分を間接的に測定していることになる。絶対値については、Gdの電荷移行断面積が計算値よりも2倍大きいことから、Gdの6s電子の波動関数は今までの理論計算で得られたものよりも裾の部分が延びていることを示唆していると考える。衝突エネルギー依存性については、共鳴と非共鳴が混在する電荷移行過程と仮定し、非共鳴の差ΔEを衝突前のイオンと原子の内部エネルギーの差と考えると定性的にGdの実験結果の傾向を説明できることが分かった。

参考文献

[1] S. Gerstenkorn et P. Lvc.: Atrus Du Spectre D'absorption De La Molecule D'iode(1978)

[2] W. C. Martin, R. Zalubas et al.; Atomic Energy Levels-The Rare Earth Elements, NSRDS-NBS 60(1978)

[3] M.Tooma, R.Nishio, K. Tsuchida, and K. Suzuki, J. At. Energy Soc. Jpn. **35**, 438(1993)

[4] F. Herman and S. Skilman, Atomic Structure Calculations (Prentice-Hall, Engelwood Cliffs, NJ,1963)

[5] D. Rapp and W. E. Francis, J. Chem. Phys., **37**, 2631(1962)

第５章　　ＹとGdの電荷移行断面積の比較

5.1　はじめに

Gdの電荷移行断面積は今までよく調べられてきた単純元素のものとは衝突エネルギー依存性、絶対値とも異ることが判明した。衝突エネルギー1000eVでの断面積は過去のデータをベースに得られた簡易公式の値の約2倍であった。断面積が電子配置によりどのように変わるかを調べるために、本章では、Gdと同じ希土類元素で、質量数の小さいYについて断面積の測定を行った。結果をGdの測定結果と合わせて衝突過程を考察する。

5.2　Ｙの電荷移行断面積

原子蒸気生成はYの場合、1920Kに加熱して行う。生成される蒸気原子は熱平衡状態にあり、状態密度分布は原子蒸気温度で決まる。Y原子は基底状態$^2D_{3/2}$に近接した励起状態$^2D_{5/2}$（530 cm^{-1}）をもつ。1920Kでの熱平衡状態を仮定した計算により得られる状態密度分布は50%（0 cm^{-1}）、50%（530 m^{-1}）である。

主イオンは原子ビームにXeClポンプ色素レーザー光を集光、照射し、1波長3段階光電離により生成した。レーザー波長を540 nm～570nmの範囲で掃引し、イオンが生成できる波長を調べた。断面積測定に足る十分な主イオンは、3本のレーザー波長で生成できることが分かった。Yはエネルギー準位がGdに比べ少ないため、イオンを生成できるレーザー波長が少ないと考えられる。レーザー波長とY原子のエネルギー準位を比較することにより光電離イオン生成過程を詳しく調べた。この電離過程を図5-1に示す。3本のレーザー波長で生成されたイオンはいずれも2光子目の共鳴状態を経て電離していることが分かった。3光子目近辺の準位については情報が十分ないため、仮想のエネルギー準位として破線で示した。図5-1右上にはY^+イオンのエネルギー準位も示した。生成されたイオンは、3光子励起仮想準位のエネルギー以下の励起状態にある。3本のレーザー波長の3光子目の仮想準位はいずれもY^+イオンの第4励起状態と第3励起状態の間にある。3つのレーザー波長により生成されるイオンは基底状態$^1S_0$と励起状態$^3D_1$（840cm^{-1}）、$^3D_2$（1045cm^{-1}）、$^3D_3$（1449cm^{-1}）に分布する。電荷移行実験では、最も多いイオンを生成できる、余剰エネルギー1731 cm^{-1}に対応するレーザー波長（(557.09 nm);図の一番左）を用いた。

Y原子とY^+イオン間の電荷移行衝突断面積の測定を行った。得られた結果（●）と共鳴型電荷移行簡易公式（実線）を図5-2に示す。衝突エネルギー1000eVで得られた断面積は$1.75\times10^{-14}cm^2$であり、簡易公式による断面積の約1.5倍である。また、衝突エネルギー依存性についても計算結果のものと異なっている。この衝突エネルギー依存性から、衝突過程はGdの場合に議論したのと同様に共鳴型と非共鳴型が混在しているものと考えられる。共鳴型、非共鳴型の混在型と仮定し、1000 eVでの実験結果と一致させ、共鳴、非共鳴の割合とΔEを調整して計算を行った。混在の比をそれぞれ50%、非共鳴の差$\Delta E = 205cm^{-1}$とした場合、計

算は定性的に実験結果と一致する（図5-2の破線）。

Yの測定結果を考察するため、Gdの実験結果の一部を図5-3に再掲する。Gdについては基底状態Gd^+イオンと原子間の衝突により得られた断面積である。1000eVの衝突エネルギーで断面積が共鳴型電荷移行簡易公式よりも大きく、依存性も異なっている点でGdとYの測定結果は類似している。実験を行った希土類元素はいずれも第一励起状態と基底状態のエネルギー差ΔEは小さく、GdはΔE=215cm^{-1}、YはΔE=530cm^{-1}である。実験結果より、$\Delta E \leqq 530$cm^{-1}の元素については、単純元素に適用した理論計算では説明できないことが明らかとなった。

Yの結果が示すもう一つの重要な特徴は1000eVでの断面積がGdのものよりも小さく簡易公式値に近い点である。衝突エネルギー1000eVでの断面積がGdの場合、簡易公式の2倍であったのに対し、Yでは約1.5倍となっている。

以上より、衝突エネルギー依存性に表れる構造は共鳴型と非共鳴型が混在していることによるものと考えられるが、断面積の大きさについては元素固有のものであると推測している。

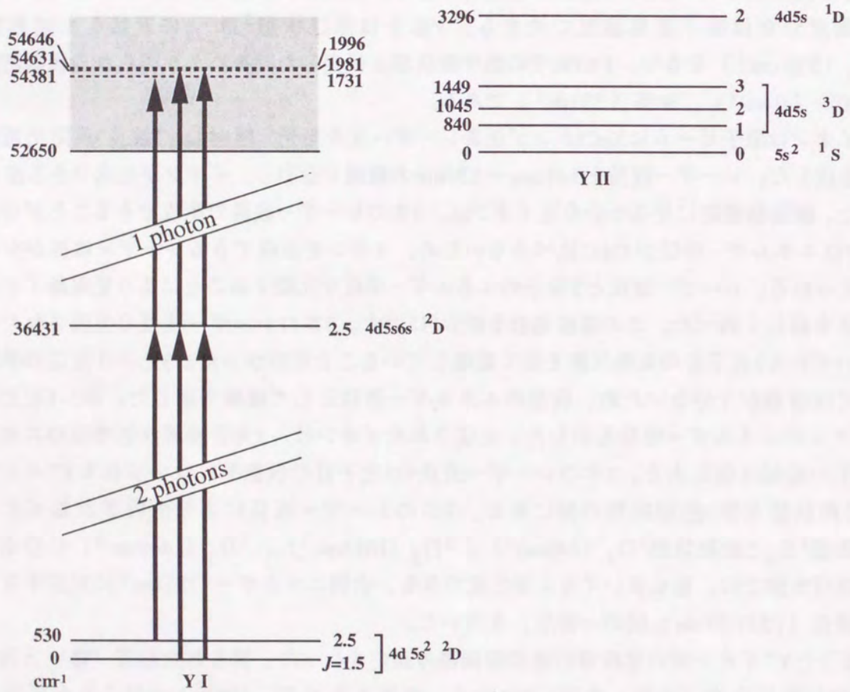


図5-1　色素レーザーによるYイオン生成過程

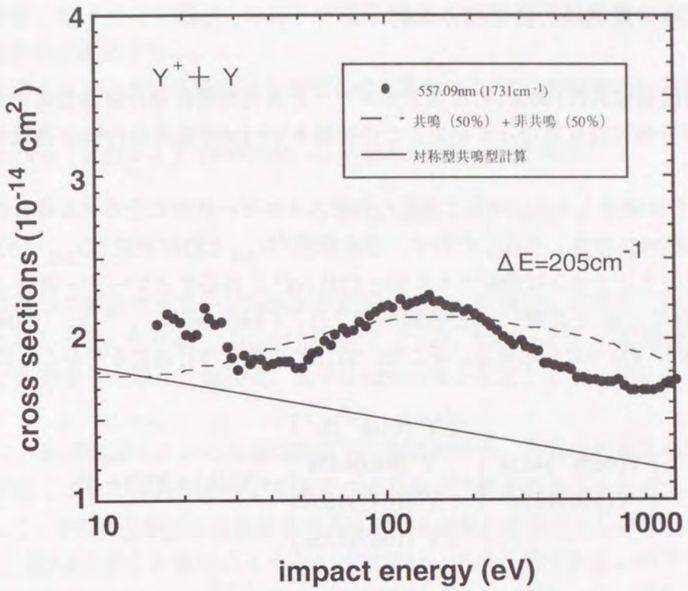


図5-2　Yの電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性

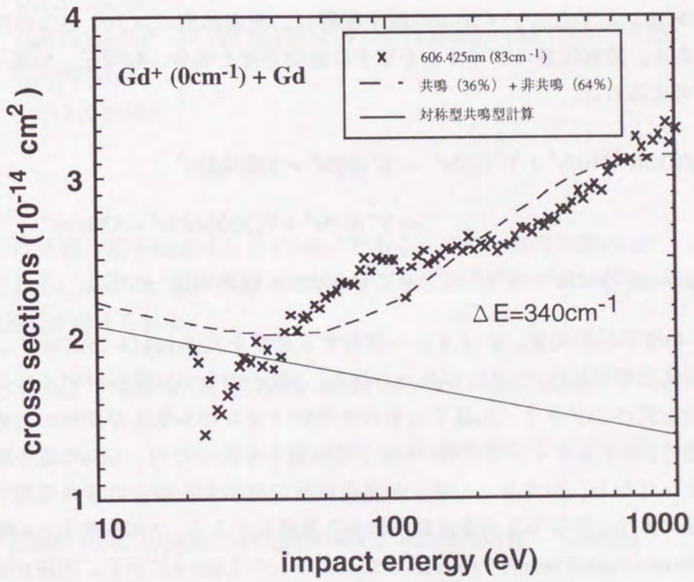


図5-3　Gdの電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性

5.3　YとGdの電荷移行断面積の比較

YとGdの断面積は共に1000eVの衝突エネルギーで共鳴型電荷移行簡易公式よりも大きく、衝突エネルギー依存性も異なっている。この特徴をYとGdの電荷移行衝突過程から調べ考察する。

Yの電荷移行は原子とイオンが共に複数の内部エネルギー状態に分布する場合の衝突であった。原子は1920Kに加熱し生成したので、基底状態$^2D_{3/2}$と励起状態$^2D_{5/2}$（530 cm^{-1}）の2つに分布している。イオンは余剰エネルギー1731 cm^{-1}に対応するレーザー波長（557.09 nm）で生成したので、基底状態$^1S_0$と励起状態$^3D_1$（840 cm^{-1}）、$^3D_2$（1045 cm^{-1}）、$^3D_3$（1449cm^{-1}）の4つに分布する。そこで、Yは8つの電荷移行過程を含むことになる。

$$\begin{pmatrix} Y(0cm^{-1})4d5s^2 \\ Y(530)4d5s^2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} Y^+(0cm^{-1})5s^2 \\ Y^+(840)4d5s \\ Y^+(1045)4d5s \\ Y^+(1449)4d5s \end{pmatrix} \rightarrow Y^+(k) + Y(\ell) + \Delta E$$

ここで、括弧内の数字はcm^{-1}を単位とした原子とイオンの内部エネルギー状態を示す。内部エネルギー状態の横には電子配置も示した。衝突後、原子とイオンの状態については明らかでないので、任意の内部エネルギー状態k、ℓで示した。Y原子の2つの状態の電子配置はともに$4d5s^2$である。しかし、Y^+イオンの電子配置は、基底状態では$5s^2$、3つの励起状態では4d5sの2種類ある。基底状態のY^+イオンを原子に衝突させた場合、4d電子、5s電子が移行する2つの過程が考えられる。

$$Y(0cm^{-1})4d5s^2 + Y^+(0)5s^2 \rightarrow Y^+(0)5s^2 + Y(0)4d5s^2 \qquad (5\text{-}1a)$$

$$\rightarrow Y^+(0)5s^2 + Y(530)4d5s^2 - 530cm^{-1} \qquad (5\text{-}1b)$$

$$Y(0cm^{-1})4d5s^2 + Y^+(0)5s^2 \rightarrow Y^+(k)4d5s + Y(0)4d5s^2 + \Delta E \qquad (5\text{-}2)$$

Y原子のもつ4d電子が衝突後、Y^+イオンへ移行する過程を式(5-1a),(5-1b)に示す。この場合、共鳴型と非共鳴型電荷移行の2過程が考えられる。Y原子のもつ5s電子がY^+イオンへ移行する電荷移行過程を式(5-2)に示す。5s電子は移行先のY^+イオンの5s軌道が閉核のため、4d軌道に入り基底状態のY原子となる。衝突後、Y原子は5s電子を放つため、4d5sの電子配置をもつ励起状態のイオンになる。つまり、5s電子が電荷移行に寄与する場合は非共鳴型である。どちらの電子が電荷移行に寄与するかを波動関数から推察してみる。Yの5s電子と4d電子の波動関数についてHartree-Fock-Slator法でHermanらが求めたものを図5-4に示す。実線が5s電子の波動関数、破線が4d電子の波動関数を示す。図より、5s電子は4d電子より核から離れた位置に存在する確率が高いことが分かるので、電荷移行過程には5s電子の寄与の方が大きいと推測さ

れる。基底状態のY^+イオンの場合、5s電子が電荷移行に寄与すると仮定すれば、式(5-2)に示す非共鳴型電荷移行衝突となる。

第一励起状態イオンと基底状態原子を衝突させた場合は次の2つの電荷移行過程が可能と考えられる。

$$Y(0cm^{-1})4d5s^2 + Y^+(840)4d5s \rightarrow Y^+(840)4d5s + Y(0)4d5s^2$$

$$\rightarrow Y^+(k)4d5s + Y(\ell)4d5s^2 + \Delta E \qquad (5\text{-}3)$$

ここで、電荷移行に寄与する電子は5s電子と仮定した。この場合、共鳴型、非共鳴型電荷移行の混在型となると考えられる。$^3D_2$（1045cm^{-1}）、$^3D_3$（1449cm^{-1}）の励起状態イオンを基底状態原子に衝突させた場合、衝突後、原子は4d5sの電子配置をもつイオンとなるので、混在型となる。

このように、基底状態イオンと基底状態原子の衝突の場合、非共鳴型電荷移行衝突となり、他方、励起状態イオンと基底状態原子を衝突させた場合、混在型となると考えられる。よって、全体として、Yの電荷移行は共鳴型と非共鳴型の混在型の衝突過程と考えられる。

Gdの場合、図5-3に示した衝突のイオンの初状態は、基底状態である。原子は基底状態と$^9D_2^o$と励起状態$^9D_2^o$（215cm^{-1}）、$^9D_3^o$（533cm^{-1}）、$^9D_4^o$（999cm^{-1}）、$^9D_5^o$（1719cm^{-1}）の5つに分布する。これより、5つの電荷移行過程が考えられる。

$$\begin{pmatrix} Gd(0cm^{-1})5d6s^2 \\ Gd(215)5d6s^2 \\ Gd(533)5d6s^2 \\ Gd(999)5d6s^2 \\ Gd(1719)5d6s^2 \end{pmatrix} + Gd^+(0)5d6s \rightarrow Gd^+(k)5d6s + Gd(\ell)5d6s^2 + \Delta E$$

Gd原子の4つの状態の電子配置はともに$5d6s^2$である。また、基底状態のGd^+イオンの電子配置は、5d6sである。よって、基底状態のGd^+イオンを原子に衝突させた場合、6s、5d電子が移行する2つの過程が考えられる。

$$Gd(0cm^{-1})5d6s^2 + Gd^+(0)5d6s \rightarrow Gd^+(0)5d6s + Gd(0)5d6s^2$$

$$\rightarrow Gd^+(k)5d6s + Gd(\ell)5d6s^2 + \Delta E \qquad (5\text{-}4)$$

$$Gd(0cm^{-1})5d6s^2 + Gd^+(0)5d6s \rightarrow Gd^+(3444)6s^2 + Gd(0)5d6s^2 - 3444cm^{-1}$$

$$\rightarrow Gd^+(3444)6s^2 + Gd(6378)5d^26s - 9822cm^{-1} \qquad (5\text{-}5)$$

式(5-4)に示すたように、Gd原子のもつ6s電子がGd^+イオンへ移行した場合、共鳴型または非共鳴型電荷移行になる。一方、式(5-5)に示す、Gd原子の5d電子がGd^+イオンへ移行する際、衝突後、Gd^+イオンは$6s^2$の電子配置となり、衝突は非共鳴型のみとなる。

どちらの電子（6ｓ、5d）が電荷移行に寄与するかをYの場合と同様、6sと5dの波動関数から推察してみる。Gdの6s電子と5d電子の波動関数についてHermanらが求めたものを図5-5に示す。実線が6s電子、破線が5d電子の波動関数を示す。図より、電荷移行過程には6s電子がより寄与すると推測され、Gdの電荷移行過程は式(5-4)に示す混在型となる。これは、実験結果の定性的説明を可能にしている。

このように、最外殻のs電子が電荷移行衝突に寄与していると仮定すると、GdとYの電荷移行が、共鳴型と非共鳴型の混在型となり、実験結果の断面積衝突エネルギー依存性を説明できる。

4.6節でも述べたように、電荷移行衝突断面積を決めるのは波動関数の裾の部分であるが、これは、今まで厳密に計算されていない。図でも分かるように、ｒ＞22Bohrでは波動関数は0になっている。このような理論でも、エネルギー準位構造の観点からは十分に満足されている。しかし、著者の行った実験結果は、Gdの波動関数の裾がYのものよりも、また、YはCa等のものよりも長いことを示唆している。このような観測を説明するためにも波動関数の厳密な解を必要とする。今後の理論モデルの発展が望まれる。

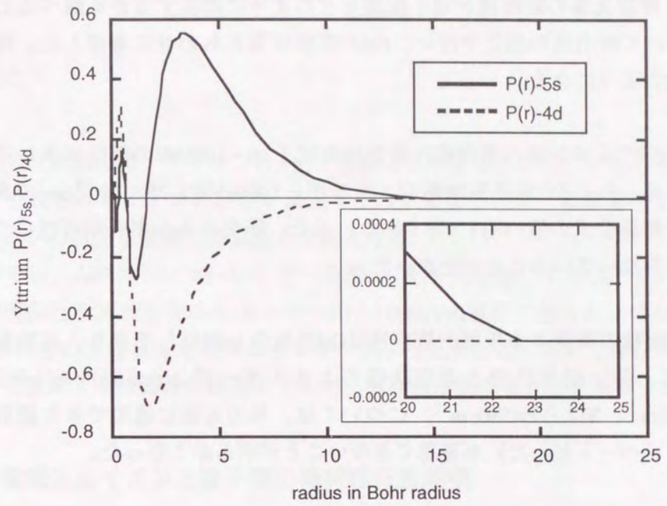


図5-4　Yの電子の波動関数（Hartree-Fock-Slator法）

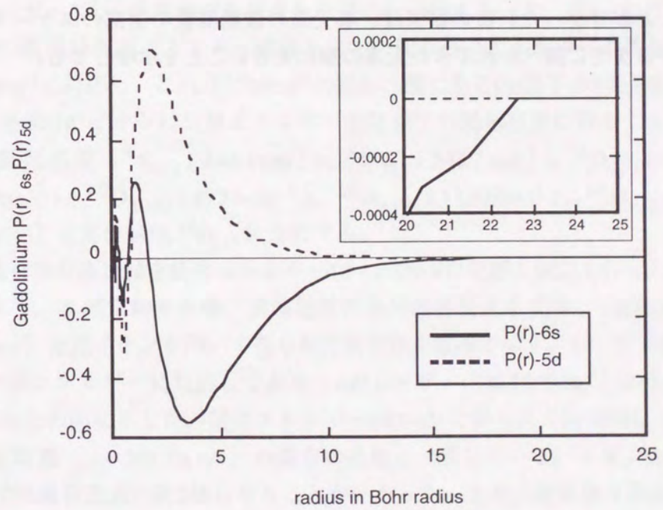


図5-5　Gdの電子の波動関数（Hartree-Fock-Slator法）

5.4　まとめ

本章では、複雑元素の断面積が電子配置とどのように関係するかを調べるために、希土類元素のYについて断面積の測定を行い、Gdの実験結果とあわせて考察した。得られた結果をまとめると次のようになる。

（1）Y原子とY^+イオン間の電荷移行衝突断面積を20～1000eVの衝突エネルギー範囲で測定した。得られたYの断面積は衝突エネルギー1000eVで$1.75\times10^{-14}cm^2$であり、共鳴型電荷移行簡易公式の値の約1.5倍である。また、衝突エネルギー依存性についても公式のものと異なっていることが分かった。

（2）Yの断面積の衝突エネルギー依存性はGdのものと類似しており、実験を行った元素に限れば、第一励起状態と基底状態のエネルギー差$\Delta E\leqq530cm^{-1}$の元素（GdはΔE=215cm^{-1}、YはΔE=530cm^{-1}）については、単純元素に適用できた簡易公式（過去のデータをベースとした）を適用できないことが明らかとなった。

（3）最外殻のs電子が電荷移行衝突に寄与している仮定すると、GdとYの電荷移行が、対称型共鳴型と対称型非共鳴型の混在型となり、実験結果を定性的に説明できた。

（4）本研究で調べた断面積と元素は衝突エネルギー1000eVで$\sigma_{Gd}>\sigma_{Y}>\sigma_{Ca}\sim\sigma_{簡易公式}$となることが分かった。この結果は、各元素の波動関数の裾部のスケール長がGd、Y、Ca、今日までに調べられてきた元素の順に大きいことを示唆してる。

第6章　1光子電離生成 Gd主イオンと原子との電荷移行断面積

6.1　はじめに

前章まで述べた実験では、主イオンは3光子電離により生成された。どのような電離過程を用いるかは、生成されるイオンの状態を決定するのに重要であり、電離過程を適切に選ぶことにより、イオンの状態を制御した実験も可能となる。
そこで、本章では、ArFエキシマーレーザーを用い1光子光電離によりGd^+イオンを生成して原子間との電荷移行断面積を衝突エネルギー10～1000eVの範囲で行った。得られた断面積は、4章で述べてきたものとは異なる衝突エネルギー依存性を示した。本章では、イオン生成に用いるレーザー波長により断面積の衝突エネルギー依存性が異なることを考察する。

6.2　1光子電離生成イオンと原子間の電荷移行断面積

ArFエキシマーレーザー（λ=193 nm）の1光子のエネルギーは6.42eVとGd原子の電離ポテンシャル6.15Vよりも高いため、Gd^+イオンを1光子吸収電離過程により生成できる。Gd^+イオンは、2000Kの原子ビームにArFエキシマーレーザー光を照射し生成された。生成されたイオン量は色素レーザー3光子光電離で生成された量の4～5倍であった。図6-1にイオン生成過程を示す。図中の破線は仮想エネルギー準位を示す。最も高いエネルギーの仮想準位は余剰エネルギー3929cm^{-1}に対応し、これは1719cm^{-1}の励起状態にあるGd原子が1光子吸収した場合のものである。生成Gd^+イオンは仮想エネルギー準位以下の励起状態に分布すると考えられるため、8つの励起状態［$^8S_{7/2}$（3444 cm^{-1}）、$^8D_{7/2}$（3427 cm^{-1}）、$^8D_{5/2}$（3082 cm^{-1}）、$^8D_{3/2}$（2857 cm^{-1}）、$^{10}D_{13/2}$（1935 cm^{-1}）、$^{10}D_{11/2}$（1159 cm^{-1}）、$^{10}D_{9/2}$（633 cm^{-1}）、$^{10}D_{7/2}$（262 cm^{-1}）］と基底状態$^{10}D_{5/2}$に分布する。

Gd^++Gdの電荷移行断面積を衝突エネルギー10～1000eVの範囲で測定を行った。得られた結果を図6-2に示す。本測定結果を●、共鳴型電荷移行簡易公式を実線、1波長3光子吸収電離（λ=561.08 nm）生成イオンを用いて得られた断面積を破線で示す。レーザー波長 561.08 nmは4080 cm^{-1} 余剰エネルギーに対応しており、ArFレーザー（≦3929cm^{-1}）のものに非常に近いので、比較のため図に示した。衝突エネルギー1000eVで得られた断面積は3.0×10^{-14} cm^2であり、3光子電離（λ=561.08 nm）の場合の結果と一致している。イオン生成過程に関係なく1000 eVでは簡易公式の約2倍になることが分かった。また、断面積は衝突エネルギーが減少すると断面積が大きくなる傾向を示し、3光子電離のものとは全く異ることが判明した。

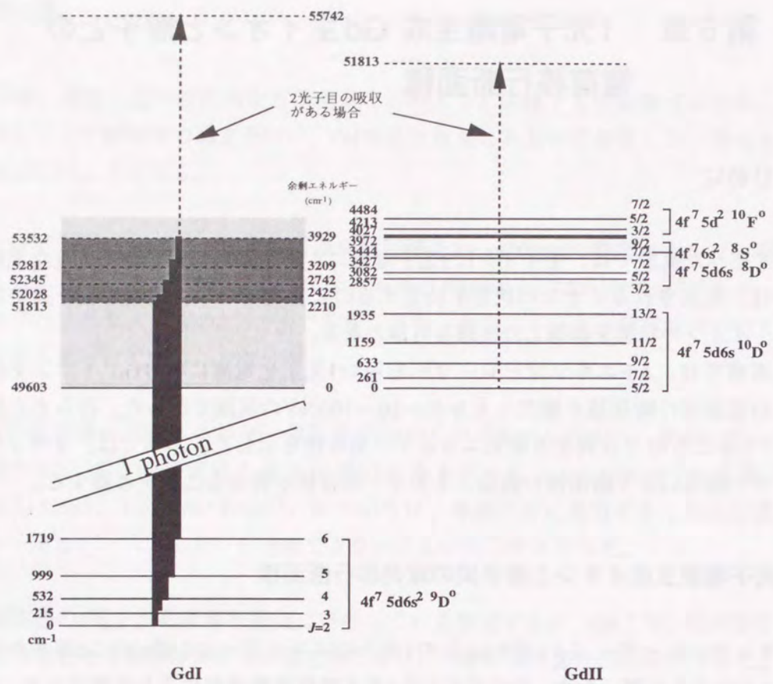


図6-1　ArFレーザーによるGdの1光子電離生成過程

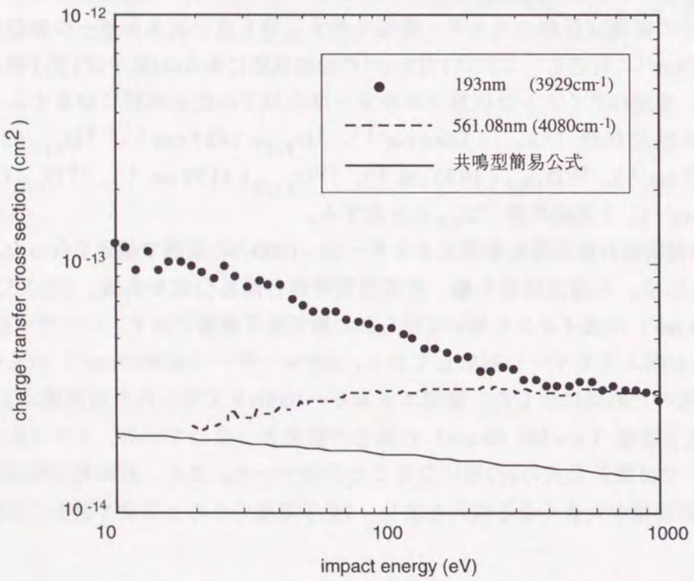


図6-2　1光子吸収電離生成Gd^+イオンとGd原子間の電荷移行断面積

6.3　考察

主イオンが1光子電離により、図6-1に示すような過程で生成されている限り、実験結果は3光子電離の場合と全く同じにならなければならない。断面積測定の結果を見る限り、主イオンの状態が3光子電離の場合と1光子電離の場合とでは異なっていると考えるのが妥当である。ArFレーザー光による1光子電離の場合の断面積が衝突エネルギーの増加と伴に減少している。この依存性は捕獲型にみられるものと似ている。Gdの断面積を速度の関数として表すと図6-3になる。低速度領域で断面積が速度に逆比例していることが分かる。捕獲型電荷移行断面 σ_L は[1],[2]、

$$\sigma_L = \frac{\pi\sqrt{2e^2\alpha}}{v} \tag{6-1}$$

と表される。ここで、eは素電荷、αは分極力、vは衝突速度である。一般にこの捕獲型電荷移行過程は

$$v = \frac{10^5}{\sqrt{\mu}}$$

以下の速度v(cm/sec)で支配的に起こる。ここで、μは換算質量(a.m.u)を示す。2×10^6cm/sec以下の速度で捕獲型過程の衝突が主に起こると仮定すると、衝突速度依存性を定性的に説明できるが、実験結果と一致させるには、分極力は$\alpha=2.9\times10^5$ Å^{3}となり、通常の原子[3]のものよりも　4～5桁大きい値となる。分極力に関する研究は、Gd等の複雑元素について詳細に調べられてるが、これほど大きくなる分極力をもつとは考えにくい。しかし、Gd原子が例えば、非常に大きい固有エネルギーを持ち、高エネルギー準位にあると、このような大きい分極力を持つことは考えられる。Fabreら[4]は、Na原子がRydberg状態にある場合のジャイアント分極率を測定している。以上のような推測が実際に起こるには原子は図6-1に示したような状態ではなく、高い準位になくてはならない。例えば、Gd^+イオンが多光子により生成されているか、1光子電離後、2番目の光子で励起され、この励起状態が原子に移乗し、電荷移行がおこれば考えられることである。すなわち、

$$Gd + Gd^{+*} \rightarrow Gd^* + Gd^+ \tag{6-2a}$$

$$\rightarrow Gd^+ + Gd^* \tag{6-2b}$$

である。しかしながら、これを定性的に証明することは今のところできない。励起移乗は電荷移行同様複雑な物理であり、今後の研究が必要である。

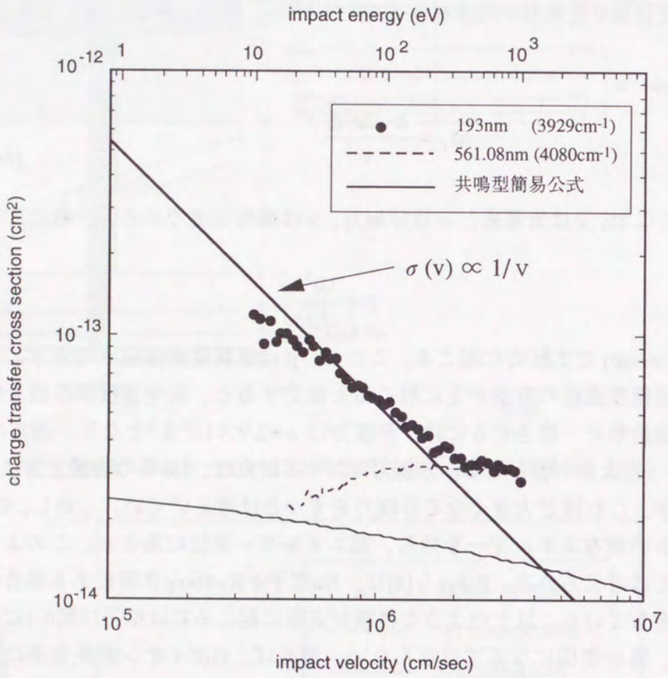


図6-3　Gdの電荷移行断面積衝突速度依存性

6.4　まとめ

本章で得られた結果をまとめると

（1）ArFレーザーを用いた1光子吸収電離により生成したGd^+イオンとGd原子間の電荷移行断面積の測定を衝突エネルギー10～1000eVの範囲で行った。衝突エネルギー1000eVで得られる断面積は約$3\times10^{-14}cm^2$で、簡易公式値の2倍であり、3光子電離の場合の実験と一致した。しかし、＜1000eVの範囲では、断面積は衝突速度に逆比例する依存性を示すことが分かった。

（2）低衝突速度で、電荷移行過程は主に捕獲型が起こると仮定し、Gdの分極力が$\alpha=2.9\times10^5$ Å^{3}とした場合のみ、定性的に測定結果を説明できる。この分極力の大きさは通常の原子のものよりも4～5桁大きい。この大きな分極力は原子が高い励起状態にないと説明できないので、主イオンが多光子電離により励起され、励起移乗を伴った電荷移行が起こらなければならない。

参考文献

[1] P. Langevin, Ann. Chem. Phys., **5**, 245(1905)

[2] F. A. Wolf and B. R. Turner, J. Chem. Phys., **48**, 4226(1968)

[3] G. S. Chandler and R. Glass, J. Phys. **B 20**, 1(1987)

[4] C. Fabre and S. Haroche, Opt. Comm., **15**, 254(1975)

第7章　結　論

本研究では希土類元素など比較的高い融点と電離ポテンシャルを有する重金属元素の対称型電荷移行断面積を測定することを目的として衝突実験装置を開発し、レーザー同位体分離等で注目されているGd元素を中心に断面積の測定を実施し、その衝突過程についての物理を考察した。以下に本論文により得られた成果を総括する。

第2章

1電子-モデルが適用できるアルカリ族や希ガスなどの単純元素を対象として、低速度領域での電荷移行断面積を2準位近似で計算し、今日までに測定されてきた元素の実験結果と計算結果との比較を行い、この近似が断面積を評価するのに有効な計算法であることを示した。

（1）今日までに測定されてきた単純元素（$\Delta E \geqq 9034\mathrm{cm}^{-1}$）の対称型電荷移行断面積は2準位近似計算で良く説明できることが分かった。

（2）実験結果と半古典原子基底緊密結合法の計算結果から、単純元素の電荷移行断面積σは電離ポテンシャルIと$\sigma \propto I^{-1.5}$の関係があることを見出した。また、Heの実験データより断面積の衝突エネルギー依存性は$A'-B'\log_{10}v$で表されることが分かった。この2つの関係から任意の単純元素の電荷移行断面積を評価できる「簡易公式」を得ることができた。この共鳴型簡電荷移行断面の簡易公式を本研究で測定する複雑元素の断面積の議論、考察のための参照用データとする。

（3）基底状態に近い低エネルギー域に準安定状態を有する希土類元素の電荷移行衝突はMasseyの判別式から、共鳴型電荷移行衝突のみとはならず、非共鳴型電荷移行衝突も可能となる。2準位近似計算を多準位系に拡張すれば、このような元素の断面積を計算できるが、厳密計算は現在のところ極めて困難である。また、実験報告もほとんどない。このとから～数100cm^{-1}付近に励起状態を有する元素については実験的に断面積を測定する必要がある。

第3章

希土類元素の電荷移行断面積測定用装置の開発を行い、本装置により得られた断面積の妥当性について調べた。

（1）原子蒸気の生成に電子ビーム加熱法、イオン生成にレーザー光電離法を採用した新しい直交ビーム衝突装置を開発し、従来まで困難とされてきた希土類元素の対称型電荷移行断面積を調べることを可能にした。また、高速データ収集装置を併用することにより衝突断面積の衝突エネルギー依存性を極めて短時間で、精度よく測定することが可能となった。

（2）レーザー光電離法を用いることにより、本研究で対象としているエネルギー範囲で衝突エネルギー幅(<20%)が狭い一価イオンのみを効率よく生成できた。また、色素レーザーを用いることにより、生成イオンの励起状態を制御した実験が可能となった。

（3）電荷移行断面積の絶対値は、較正実験により得ている。他の実験データや物理定数を用いることなく絶対値を得ることができた。

（4）開発した直交ビーム衝突装置で得られる衝突断面積の妥当性を確かめるために、Caを選び対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を測定した。得られた結果は公表されているデータと同様の振動構造を示し、振動周期もほぼ一致した。また、振動項を無視した場合の依存性については、共鳴型簡易公式と<20%内で一致している。このことから本装置で得られる断面積の妥当性が確認できた。

第4章

本研究の目的であるGd元素について対称型電荷移行断面積の衝突エネルギー依存性を測定し、得られた結果について考察をした。

（1）イオン生成に色素レーザーを用い、発振波長を変えることにより18本の色素レーザー波長でイオン生成可能で、生成イオンの内部エネルギーを制御することができた。このうち、3本の色素レーザー波長で生成したイオンの励起状態分布をレーザー誘起蛍光法で測定し、基底状態、および262cm^{-1}、633cm^{-1}の励起状態にあるイオンと中性原子との電荷移行断面積とその衝突エネルギー依存性を測定した。

（2）衝突エネルギー1000eVにおける電荷移行断面積は、生成イオンの内部エネルギーにかかわらず$3.2\times10^{-14}\mathrm{cm}^2$であり、簡易公式から求めた値の２倍程度大きいことが分かった。

（3）基底状態のイオンでは衝突エネルギーの減少とともに断面積が小さくなり～40eV付近で簡易公式に漸近する。また、励起状態にあるイオンは、衝突エネルギーの減少とともに断面積は増大し、262cm^{-1}では500eV、633cm^{-1}では200eVで最大値を示し、その後衝突エネルギーの減少とともに断面積も減少し簡易公式に近づく。高い励起状態にあるイオンはほど断面積の最大となる衝突エネルギーは低エネルギー側にシフトする。

（4）電荷移行衝突断面積が簡易公式で求められた値より2倍大きく、またその衝突エネルギー依存性が異なる可能性について考察した。本研究の結果は波動関数の裾の部分を間接的に測定していることになる。絶対値については、Gdの電荷移行断面積が計算値よりも2倍大きいことから、Gdの6s電子の波動関数は今までの理論計算で得られたものよりも裾の部分が延びていることを示唆していると考える。衝突エネルギー依存性については、共鳴と非共鳴が混在する電荷移行過程と仮定し、非共鳴の差ΔEを衝突前のイオンと原子の内部エネルギーの差と考えると定性的にGdの実験結果の傾向を説明できることが分かった。

第5章

複雑元素の断面積が電子配置によりどのように変わるかを調べるために、希土類元素のYについて断面積の測定を行い、Gdの実験結果とあわせて考察した。

（1）Y原子とY^+イオン間の電荷移行断面積を20～1000eVの衝突エネルギー範囲で測定した。得られた断面積は衝突エネルギー1000eVで$1.75\times10^{-14}cm^2$であり、共鳴型電荷移行簡易公式による値と比べて約1.5倍大きく、また衝突エネルギー依存性も異なっていることが分かった。

（2）Yの断面積の衝突エネルギー依存性はGdのものと類似しており、実験を行った元素に限れば、第一励起状態と基底状態のエネルギー差$\Delta E\leqq530cm^{-1}$の元素（Gdは$\Delta E=215cm^{-1}$、Yは$\Delta E=530cm^{-1}$）については、単純元素に適用できた過去のデータをベースとした簡易公式には適用できないことが明らかとなった。

（3）最外殻のs電子が電荷移行衝突に寄与している仮定すると、GdとYの電荷移行が、共鳴型と非共鳴型の混在型となり、実験結果を定性的に説明できた。

（4）本研究で調べた断面積と元素は衝突エネルギー1000eVで$\sigma_{Gd}>\sigma_Y>\sigma_{Ca}\sim\sigma_{簡易公式}$となることが分かった。この結果は、各元素の波動関数の裾部のスケール長がGd、Y、Ca、今日までに調べられてきた元素の順に大きいことを示唆してる。

第6章

「1光子光電離生成」Gd^+イオンと原子間との電荷移行断面積を測定した。得られた結果を「3光子電離生成」イオンを用いた場合のものと比較し、電荷移行衝突過程について考察した。

（1）ArFレーザーを用いた1光子吸収電離により生成したGd^+イオンとGd原子間の電荷移行断面積の測定を衝突エネルギー10～1000eVの範囲で行った。衝突エネルギー1000eVで得られる断面積は約$3\times10^{-14}cm^2$で、簡易公式値の2倍であり、3光子電離の場合の実験と一致した。しかし、＜1000eVの範囲では、断面積は衝突速度に逆比例する依存性を示すことが分かった。

（2）低衝突速度で、電荷移行過程は主に捕獲型が起こると仮定し、Gdの分極力が$\alpha=2.9\times10^5Å^3$とした場合のみ、定性的に測定結果を説明できる。この分極力の大きさは通常の原子のものよりも4～5桁大きい。この大きな分極力は原子が高い励起状態にないと説明できないので、主イオンが多光子電離により励起され、励起移乗を伴った電荷移行が起こらなければならない。

謝　辞

本研究の遂行に際し、終始懇篤なる御指導、御鞭撻を賜わりました井澤靖和教授に深厚なる謝意を表します。

さらに、本研究に一貫して直接御指導、御教授戴きました阪部周二講師に深く感謝致します。

また、本論文作成にあたり貴重な御指導と御助言を戴きました、三間圀興教授、岡田成文教授に深厚なる謝意を表します。あわせて、大学院在学中において、御指導、御教示を戴きました中井貞雄教授、西川雅弘教授、青木亮三教授、三宅正宣名誉教授、桂正弘教授、権田俊一教授、中塚正大教授、山中龍彦教授、加藤義章教授、西原功修教授、佐々木孝友教授に心より謝意を表します。

本研究の遂行にあたり御支援、御教示して戴きました山中千代衛名誉教授に深く感謝いたします。

本研究の課題である電荷移行衝突の物理機構に関して御討論、御教示して戴きました中島信昭助教授に謝意を表します。また、電荷移行衝突装置開発及び分光実験に関して御指導、御教授してい頂きました仁木秀明博士（福井大学助教授）に深く感謝致します。

本研究を通じて終始かわらぬ御指導、御助言を戴きました田中和夫助教授、北川米喜助教授、藤田尚徳助教授、乗松孝好助教授、宮永憲明助教授、高部英明助教授、山中正宣助教授、実野孝久助教授、西村博明助教授、畦地宏助教授、吉田國雄元助教授（大阪工業大学助教授）、宮本修治講師、大道博行講師、白神宏之講師、中井光男助手、金辺忠助手、児玉了祐助手、村上匡旦助手に心より謝意を表します。

大学院在学中において研究生活の苦楽を共にした能丸圭司君、上山宏樹君、久下智之君、中野元滋君、仲俊博氏（三菱重工業）、足立智博士（姫路工業大学）、出口博史氏（関西電力）、首藤智一氏（島津製作所）、Helmut Schillinger博士（ドイツイエナ大学）、Christopher J. Frantz氏、Bernard Souroque氏、桐山博光君、加道雅孝博士（フロリダ中央大学）、塚本雅裕博士（大阪大学）、村井健介博士（大阪工業技術研究所）、甲藤正人博士（近畿大学）、椿本孝治博士（レーザー総研）、本越伸二博士（レーザー総研）、近江雅人博士（大阪大学）、浅川誠博士（京都大学）、張鉄軍博士（山梨大学）、西紀昭氏（大阪大学）、仲前一男君、押鐘寧氏（大阪大学）、他レーザー核融合研究センターの皆様に心より感謝致します。

また、本研究の推進にあたり多大なる御支援、御協力を戴いた（財）レーザー技術総合研究所の関係者の皆様に感謝します。

国際会議での研究成果発表に際し、御援助いただいた、井上科学振興財団に感謝致します。

最後に、7年間の研究生活を支援してくださいました両親に深く感謝致します。また、多岐にわたりお世話になりました、兄弟姉妹、親戚一同、恩師に謝意を表します。

付録A1　Rapp and Francis による電荷移行断面積の計算

低衝突速度領域での電荷移行断面積を定量的に知るのに比較的取り扱いの簡単なRapp&Francisの手法が良く用いられてきた。本論文中でも実験値との比較に用いているのでその計算手法を紹介する。

原子AとイオンB^+の相対速度が原子の電子軌道速度に比べて十分小さいときには、電子状態は原子間距離Rを固定したときの固有状態に近いものと考えられる。Rが小さくなれば原子間での電子の往来もはげしくなり、どの電子がどちらの原子に属するか決められなくなる。ちょうど二原子分子の電子状態を考えているのと同じことである。もしこのような考えが正しいのならば衝突の途中の電子状態を表すには、孤立原子の波動関数を取り扱うよりは、上述の分子の波動関数（Perturbed Stationary State 法；PSS法）を用いた方が実際的であると思われる。Rapp&Francisは、このPSS法を用いて電荷移行確率$P(\mathbf{b},\mathbf{v})$を計算し、半古典法で断面積を計算してる。2.2節で紹介した半古典法により断面積 σ は

$$\sigma = \int P(\mathbf{b},\mathbf{v})\mathbf{b}\, d\mathbf{b} \tag{A1-1}$$

で与えられる。ここで、**b**は衝突係数、**v**は相対衝突速度、 t は衝突時間である。Pを求めるには時間を含んだ波動方程式

$$\mathrm{H}\Psi(\mathbf{R},\mathrm{t}) = i\hbar\frac{\partial\Psi(\mathbf{R},\mathrm{t})}{\partial \mathrm{t_R}} \tag{A1-2}$$

を解けばよい。ここで、**R**は核間距離を示し、$\mathbf{R}^2=\mathbf{x}^2+\mathbf{b}^2$で表される。$H$はハミルトニアンを示し、時間微分は**R**を一定として実行する。ハミルトニアンは原子AとBの摂動ポテンシャルを加えたもの

$$H(t) = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V_A + V_B \tag{A1-3}$$

を用いる。ここで、核同士のクーロン相互作用の項は無視した。波動関数はAB^+の分子状態として次式で表される（PSS法）。

$$\Psi \cong c^+\chi^+\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t}\varepsilon^+ dt\right) + c^-\chi^-\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t}\varepsilon^- dt\right) \tag{A1-4}$$

ここで、c^+、c^-は定数、χ^+とχ^-は共鳴状態と反共鳴状態の波動関数、ε^+とε^-はそれぞれの固有エネルギーを示す。χ^+とχ^-はAとBの2つの核のまわりの1s原子軌道を$\phi_0(r_A)$、$\phi_0(r_B)$とすると、R→∞で

$$\chi^{\pm} \to \frac{1}{\sqrt{2}}\{\phi_0(r_A) \pm \phi_0(r_B)\} \tag{A1-5}$$

である。ここで、衝突前に電子は原子Aに所有されているので、(A1-4)から係数c^+、c^-は

$$c^+ = c^- = \frac{1}{\sqrt{2}} \tag{A1-6}$$

となる。(A1-5)、(A1-6)を(A1-4)へ代入すると任意の時刻における波動関数は

$$\Psi = \exp\left(-\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ + \varepsilon^-)dt\right)\left[\frac{\chi^+ + \chi^-}{\sqrt{2}}\cos\left\{\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt\right\}\right]$$
$$-i\frac{\chi^+ - \chi^-}{\sqrt{2}}\sin\left\{\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt\right\} \tag{A1-7}$$

と表される。$(\chi^+ + \chi^-)/\sqrt{2}$、$(\chi^+ - \chi^-)/\sqrt{2}$はそれぞれ近似的に$\phi_0(r_A)$と$\phi_0(r_B)$を表し、(A1-7)の係数になっている。この係数の平方がA、Bに電子が存在する確率を表す。すなわち、

$$P_A(\mathbf{b},\mathbf{v}) = \cos^2\left\{\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt\right\} \tag{A-8a}$$

$$P_B(\mathbf{b},\mathbf{v}) = \sin^2\left\{\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt\right\} \tag{A-8b}$$

と表される。ここで、

$$\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt >> \pi$$

ならば、1回の衝突で電子は何回もA、Bの核間を往復することになる。衝突後、電子がBに移っている確率は

$$P(\mathbf{b},\mathbf{v}) = \sin^2\left\{\frac{i}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}(\varepsilon^+ - \varepsilon^-)dt\right\} \tag{A1-9}$$

で表される。個々の原子A、Bの波動関数は半経験的[1]な

$$\Psi(r)=\left(\pi a_0^3\right)^{-\frac{1}{2}}\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{3}{4}}\exp\left[-\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{r}{a_0}\right] \tag{A1-10}$$

を用いている。ここで、a_0はボーア半径(0.52×10^{-10}m)、Iは対象とする原子の電離ポテンシャル(eV)、rはA^+と電子の距離を示す。水素以外の元素に対して式(A1-10)は荒い近似である。特に、最外殻電子がs状態にない場合に一致がみられなくなる。$\mathbf{R}/a_0$>>1の場合、式(A1-11)から計算される分子状態AB^+の（$\varepsilon^+-\varepsilon^-$）は

$$\varepsilon^+-\varepsilon^-=2I\left(\frac{R}{a_0}\right)\exp\left[-\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{R}{a_0}\right] \tag{A1-11}$$

となる。水素の場合、式(A1-12)はLCAO（原子基底法）の結果と同じになり、27.2（R/a_0）exp（$-R/a_0$）eVと表される。従って、AB^+の特徴が原子Aの電離ポテンシャルで完全に記述される。式(A1-12)は、大きい電離ポテンシャルの原子について相互作用距離が短くなり、もっともらしい結果となっているが、式の導出にあたり必要以上の簡単化をしていることに注意しなければならい。IovitsuとPallas[2]は、式(A1-10)の指数関数中に経験的な調整係数を含めているが、Rapp&Francisは純粋な理論に基づく結果を望んでいたため、この係数を省略している。式(A1-10)を式(A1-1)、(A1-9)へ代入し、断面積σを得るためには、まず

$$P(\mathbf{b},\mathbf{v})=\sin^2\int_{-\infty}^{\infty}\left(\frac{I}{a_0\hbar v}\right)\sqrt{\left(x^2+b^2\right)}\exp\left[-\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{1}{2}}\sqrt{\left(x^2+b^2\right)}/a_0\right]dx \tag{A1-12}$$

式中の積分を評価しなければない。この積分はDalgarno[1]により評価されており、次式となる。

$$P(\mathbf{b},\mathbf{v})=\sin^2\left\{\frac{2Ib^2}{a_0\hbar v}\left[K_0\left(\gamma b/a_0\right)+\frac{K_1\left(\gamma b/a_0\right)}{\left(\gamma b/a_0\right)}\right]\right\} \tag{A1-13}$$

ここで、$\gamma=(I/13.6)^{1/2}$、K_0とK_1はそれぞれ0次と1次の第2種Bessel関数を示す。式(A1-10)は（$\gamma R/a_0$）>>1の場合にのみ理にかなった近似であるため、式(A1-13)は（$\gamma b/a_0$）>>1の範囲に限り、bessel関数の漸近式[2]を用いてもよい。すなわち、

$$P(\mathbf{b},\mathbf{v})=\sin^2\left\{\left(\frac{2\pi}{\gamma a_0}\right)^{\frac{1}{2}}\left(\frac{I}{\hbar v}\right)b^{\frac{3}{2}}\left(1+\frac{a_0}{\gamma b}\right)\exp\left(-\frac{\gamma b}{a_0}\right)\right\} \tag{A1-14}$$

となる。式(A1-14)のsin関数の中を$A(b,v)$とおき、図A1-1(a)に示す。また、電荷移行の確率$P(b,v)=\sin^2[A(b,v)]$を図A1-1(b)に示す。確率$P(b,v)$は、bが小さなところで0と1の間を激しく振動し、bが大きくなると0に減少する。確率計算は近似式(A1-14)から得られるが、ここで、b=0から$b=b_1$（P(b,v)=0.25となる点）までを一定の平均確率として$P(b,v)$=0.5とおく。この平均確率としたものを図A1-1(b)の破線で示す。この値の選択は幾分独断的であるが、確率の裾部と図A1-1(b)の斜線部の面積がだいたい等しくなる点とした。電荷移行衝突の断面積は簡単となり、

$$\sigma=\frac{1}{2}\pi b_1^2 \tag{A1-15}$$

と表される。b_1の値は次式から求めた

$$A(\mathbf{b},\mathbf{v})=\left[\left(\frac{2\pi}{\gamma a_0}\right)^{\frac{1}{2}}\left(\frac{I}{\hbar v}\right)b^{\frac{3}{2}}\left(1+\frac{a_0}{\gamma b_1}\right)\exp\left(-\frac{\gamma b_1}{a_0}\right)\right]=\frac{\pi}{6} \tag{A1-16}$$

（$\gamma b_1/a_0$）>>1の場合、式(A1-16)中のb_1に対する指数関数項exp（$-\gamma b_1/a_0$）の変化は疑似指数関数項[1+($a_0/\gamma b_1$)]の変化に比べて非常に大きい。限られた速度vの範囲内で、b_1の速度依存性を得るために、まず、疑似指数関数[1+($a_0/\gamma b_1$)]項のb_1を平均値のb_1に置き換えて、指数関数の変化のみをみてもよい。上述に従い、断面積は

$$\sigma^{\frac{1}{2}}=\left(\frac{1}{2}\pi\right)^{\frac{1}{2}}b_1=-\left(\frac{1}{2}\pi\right)^{\frac{1}{2}}\left(\frac{a_0}{\gamma}\right)\ln v+\left(\frac{1}{2}\pi\right)^{\frac{1}{2}}\left(\frac{a_0}{2\gamma}\right)\ln\left[\frac{72\bar{b}_1^3}{\pi\gamma a_0}\left(\frac{I^2}{\hbar^2}\right)\left(1+\frac{a_0}{\gamma\bar{b}_1}\right)^2\right] \tag{A1-17}$$

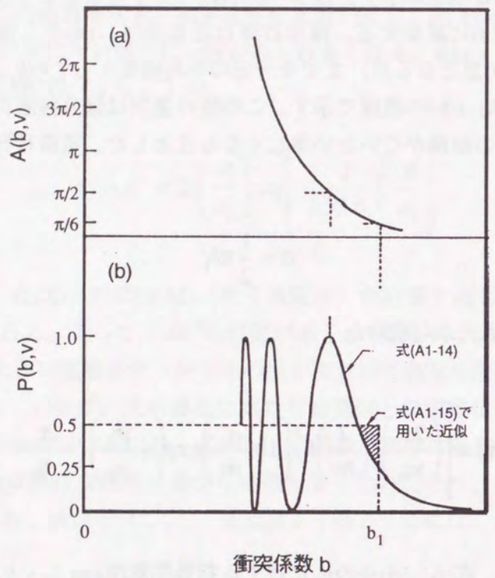
と表される。これはよく知られた式[1],[3]となり

$$\sigma^{\frac{1}{2}}=-k_1\ln v+k_2 \tag{A1-18}$$

となる。式(A1-18)は電荷移行衝突断面積の衝突速度依存性を外装するのに用いられてきたものである。

このように、Rapp&Francisの電荷移行断面積の計算は原子の電離ポテンシャルにより簡単に断面積の計算が行える。しかし、断面積計算に用いた波動関数は水素原子の波動関数を対

象原子の電離ポテンシャルで補正した形のものを用いている。最外殻電子がｓ電子以外の原子については、断面積の計算値は正確ではなくなることを彼らは指摘している。



図A1-1　(a)は式(A1-14)中の$A(b,v)$を示す。(b)は速度固定のもとでの衝突係数対電荷移行確率$P(b,v)=\sin^2[A(b,v)]$を示す。式(A1-15)式の近似は点線で示す。

参考文献

[1] A. Dalgarno, Phil. Trans. Roy. Soc. **A250**, 426(1958)

[2] I. P. Iovitsu and N. Ionescu-Pallas, Soviet. Phys. Tech. Phys. **4**, 781(1960)

[3] A. Erdely, W. Magnus et al., Higher TRanssecondental Functions, Batesman Manuscript Project((MacGraw-HIll Book Company, Inc., New York, 1954), Vol. I, 86

付録A2　Rapp and Francis の電荷移行衝突断面積の計算の誤りと訂正

付録A1中のRapp&Francisの計算には一部誤りがある。式(A1-11)は

$$\varepsilon^{+}-\varepsilon^{-}=\frac{8}{3}13.6\gamma^{2}\left(\frac{\mathbf{R}}{a_0}\right)\exp\left[-\gamma^{\frac{1}{2}}\frac{\mathbf{R}}{a_0}\right] \tag{A2-1}$$

でなければならない。それに伴い式(A1-12)～(A1-14)、(A1-16)中のIも$(4/3)13.6\gamma^2$で置き換えられなければならない。

付録A3　改良型 Rapp and Francis の断面積の計算

式(A1-16)より

$$v=\frac{6\sqrt{2}I_0}{\sqrt{\pi a_0}\hbar}\left(\frac{\gamma b_1}{a_0}\right)^{3/2}\left(1+\frac{a_0}{\gamma b_1}\right)\exp\left(-\frac{\gamma b_1}{a_0}\right)=F(\gamma b_1) \tag{A3-1}$$

$$\sigma=\frac{1}{2}\pi b_1^2=\frac{1}{2}\pi\left[\frac{F^{-1}(v)}{\gamma}\right]\propto I^{-1} \tag{A3-2}$$

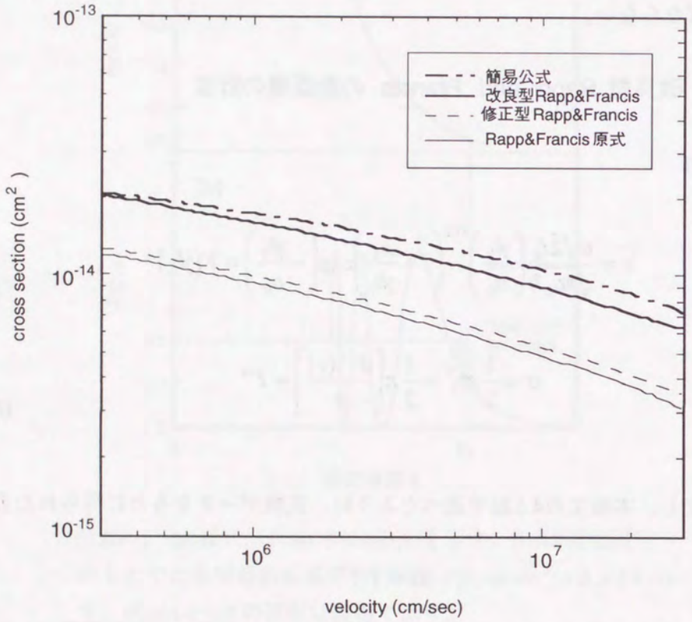
となる。しかし、本論文の4.6節で述べたように、実験データをもとに得られた公式は

$$\sigma\propto I^{-1.5} \tag{A3-3}$$

となる。このような関係になるためには、Rapp&Francisが用いた波動関数(A1-10)式は次のように改良されなければならない。

$$\Psi(r)=\left(\pi a_0^3\right)^{-\frac{1}{2}}\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{9}{8}}\exp\left[-\left(\frac{I}{13.6}\right)^{\frac{3}{4}}\frac{r}{a_0}\right] \tag{A3-4}$$

図A3.1にRapp&Francisの原式、訂正、改良型と簡易公式の断面積を示す。



図A3.1　断面積計算値の比較

付録B1　　測定誤差の評価

1．測定断面積の測定精度

測定断面積の相対精度については、断面積を得る式(3-3)から導かれる。

$$\sigma(\varepsilon) = -\frac{1}{n_a \ell}\ln\frac{N_i}{N_{ct}+N_i} = -\frac{1}{n_a \ell}\ln\frac{N_i}{N_0} \qquad \text{(B1-1)}$$

ここで、σは断面(cm^2)、εは衝突エネルギー(eV)、n_aは密度(cm^{-3})、ℓは作用長、N_iは入射イオン量(C)、N_{ct}は電荷移行イオン量(C)、N_0は$N_i + N_{ct}$を示す。導出された相対精度｜$\Delta\sigma/\sigma$｜は次式となる。

$$\left|\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right| \le \left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta\ell}{\ell}\right| + \left|\frac{\Delta(N_{ct}+N)}{N_{ct}/N}\right| = 2\left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta\ell}{\ell}\right| \qquad \text{(B1-2)}$$

$$\left|\frac{\Delta(N_{ct}+N)}{N_{ct}/N}\right| \to \left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| \qquad (\sigma n_a \ell << 1)$$

ここで、｜$\Delta n_a/n_a$｜は密度変動、｜$\Delta\ell/\ell$｜は作用長の変動を示す。式(B1-2)より、相対精度は密度変動と作用長の変動で表される。

2．Digital　oscillscopeの量子分解能　(quantizer　resolution)

Digital　oscillscopeでデータを取り込む場合、アナログからディジタルに変換されるため量子化された値となる。量子化の最小単位を量子分解能Δqとよぶ。

$$\Delta q = \frac{FSR}{2^n} \qquad \text{(B1-3)}$$

ここで、nはoscillscopeの垂直部のビット数、FSRは測定レンジのfull scaleを示す。データは量子分解能を単位とする整数倍となる。それ以下の値は切り捨てられるため、測定値が量子分解能程度まで小さくなると測定精度は悪くなる。

3．平均操作による測定精度の改善

実験では、同一条件のもとで繰り返し測定された波形を対象としているため積算平均化により測定精度を向上させた。ゆえに、得られる断面積の測定精度(B1-2)は統計的に測定精度がよくなる。しかし、ディジタル化しているため測定精度は次式となる。測定精度を上げるため、高速データ収集処理装置により測定信号の平均処理を行った。この平均処理後の相対精度は次式となる。

$$\left|\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right| \le \left[2\left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta \ell}{\ell}\right|\right]\frac{1}{\sqrt{N}} + \Delta q_{N_{ct},N_i} \qquad \text{(B1-4)}$$

Nは１衝突エネルギーでの積算平均回数、Δq_{Ni}、Δq_{Nct}はそれぞれディジタルストレージスコープの量子分解能を示す。平均回数を増やしたとしても、データはディジタル化されているため、量子化分解能以上の精度にはならない。このことから式(8-4)が成立することがわかる。

4．Δq_{Ni}、Δq_{Nct}の評価

断面積の測定精度は、測定されるの信号量と量子化分解能（Δq_{Ni}、Δq_{Nct}）の比によって決まる。この比（量子化誤差）は次式となる。

$$\sigma_{rel}(\varepsilon) = \frac{(N_{ct} + \Delta q_{N_{ct}})}{(N_i + \Delta q_{N_i})} = \frac{N_{ct}}{N_i}\left\{1 + \left(\frac{\Delta q_{N_{ct}}}{N_{ct}} + \frac{\Delta q_{N_i}}{N_i}\right)\right\} \qquad \text{(B1-5)}$$

ここで、σ_{rel}は相対断面積を示す。

5．測定誤差（量子化誤差）できまる測定精度

式(B1-4)と(B1-5)の関係からdigital oscilloscopeを使った測定による相対精度は

$$\left|\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right| \le \left\{\left[2\left|\frac{\Delta n_a}{n_a}\right| + \left|\frac{\Delta \ell}{\ell}\right|\right]\frac{1}{\sqrt{N}} + \left(\frac{\Delta q_{N_{ct}}}{N_{ct}} + \frac{\Delta q_{N_i}}{N_i}\right)\right\}\frac{1}{\sqrt{R}} \qquad \text{(B1-6)}$$

となる。ここで、Rは何回一連の測定を行ったかを示し、$\Delta q_{Nct}/N_{ct}$は電荷移行信号をディジタルデータとしてオシロスコープへ取り込んだ時に生じるの量子化誤差$\Delta q_{Ni}/N_i$はイオン信号の量子化誤差を示す。式(B1-6)より一衝突エネルギーの平均回数Nを上げるよりも、平均回数Nを少なくし一連の実験回数Rを数多くすれば測定精度は向上する。

付録B2　Gd原子の共鳴準位

369nm～400nmのレーザー波長範囲で測定されたGd原子の共鳴準位を表B2.1に示す。gA値はNBSより参照した値である。エネルギー準位の括弧内には電子配置を示した。

表B2.1　Gd原子の共鳴準位（369nm～400nmのレーザー波長範囲）

laser wavelength (nm)	Energy levels (cm^{-1})	gA* ($\times 10^8$ sec^{-1})
368.74890	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 27118.725 ($5d6s6p$ $^9F_2^o$)	
368.83290	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 28111.670 ($5d^26s$ $^{11}F_4^o$)	
369.79853	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 27041.752 ($5d6s6p$ $^9F_3^o$)	0.56
369.84033	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27571.672 ($4f^85d6s$ $^7G_5^o$)	
370.19894	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 28731.590 ($5d6s6p$ $^9F_6^o$)	
371.46314	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 27135.695 ($5d6s6p$ $^9F_3^o$)	12.0
371.69746	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 27118.725 ($5d6s6p$ $^9F_2^o$)	0.58
371.85411	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27425.244 ($5d6s6p$ $^9P_4^o$)	13.0
372.76396	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 27041.752 ($5d6s6p$ $^9F_3^o$)	0.51
373.33843	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 28504.436 ($5d6s6p$ $^9F_7^o$)	2.2
373.37376	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27315.791 ($5d6s6p$ $^9P_3^o$)	1.3
374.08237	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27731.201 ($5d6s6p$ $^{11}F_5^o$)	3.3
374.44988	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27704.965 ($4f^85d6s$ $^9D_4^o$)	
374.59022	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 28414.926 ($4f^85d6s$ $^7F_5^o$)	5.0
375.21677	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 26866.385 ($5d6s6p$ $^7F_4^o$)	0.54
375.90144	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27135.695 ($5d6s6p$ $^9F_3^o$)	5.9
376.10474	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 26588.338 ($5d6s6p$ $^9G_2^o$)	
376.32819	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27571.672 ($4f^85d6s$ $^7G_5^o$)	5.6
377.13551	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 26730.758 ($5d6s6p$ $^5F_3^o$)	
377.23358	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27041.752 ($5d6s6p$ $^9F_3^o$)	1.4
377.24619	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 27040.865 ($5d6s6p$ $^9F_4^o$)	
378.41343	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27425.244 ($5d6s6p$ $^9P_4^o$)	18.0
378.82253	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 26397.586 ($5d6s6p$ $^9F_2^o$)	
379.68276	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27336.898 ($5d6s6p$ $^9F_6^o$)	1.0
379.74576	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 26866.385 ($5d6s6p$ $^7F_4^o$)	
381.93507	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 26397.586 ($5d6s6p$ $^9F_2^o$)	
383.40518	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 26615.045 ($5d6s6p$ $^7F_5^o$)	1.0

* C. H. Corliss and W. R. Bozman, "Experimental transition probabilities for spectral lines of 70 elements ", N.BS, Washington D.C. (1962)

laser wavelength (nm)	Energy levels (cm^{-1})	gA* ($\times 10^8$ sec^{-1})
383.99886	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 27040.865 (5d6s6p $^9F_4^o$)	0.23
384.13543	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 26247.609 ($4f^85d6s$ $^9G_3^o$)	0.56
384.43626	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 27731.201 (5d6s6p $^{11}F_5^o$)	9.9
385.82021	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 26451.785 ($5d^26p$ $^9F_4^o$)	
386.58901	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 26866.385 (5d6s6p $^7F_4^o$)	0.67
386.80852	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 27571.672 ($4f^85d6s$ $^7G_5^o$)	10.
387.55659	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 26335.660 ($4f^85d6s$ $^9D_5^o$)	0.72
388.88365	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 26247.609 ($4f^85d6s$ $^9G_3^o$)	0.33
389.01781	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25920.889 (5d6s6p $^7P_4^o$)	
390.38217	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 26615.045 (5d6s6p $^7F_5^o$)	1.5
390.53962	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25820.721 ($4f^85d6s$ $^9G_4^o$)	0.93
390.67530	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 27315.791 (5d6s6p $^9F_5^o$)	2.7
393.59008	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 25940.121 ($5d^26p$ $^{11}G_5^o$)	4.8
393.65018	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 25403.266 ($5d^26p$ $^{11}G_3^o$)	0.75
394.29127	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 27081.049 ($4f^85d6s$ $^7G_6^o$)	2.5
394.37545	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25571.672 ($5d^26p$ $^{11}G_4^o$)	2.2
394.43523	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 25352.705 (5d6s6p $^7D_1^o$)	0.93
394.66943	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 26337.070 ($5d^26p$ $^{11}G_6^o$)	6.4
395.44849	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 25820.721 ($4f^85d6s$ $^9G_4^o$)	2.3
395.97942	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 25253.838 (5d6s6p $^7D_3^o$)	0.36
396.73978	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 26924.525 ($4f^85d6s$ $^7G_7^o$)	3.3
396.82740	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 25732.850 (5d6s6p $^7D_5^o$)	
397.01222	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25403.266 ($5d^26p$ $^{11}G_3^o$)	2.7
397.38298	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 25164.641 ($5d^26p$ $^{11}G_2^o$)	1.3
397.59367	1719.087 ($5d6s^2$ $^9D_6^o$) → 26870.393 ($5d^26p$ $^{11}G_7^o$)	1.6
398.04747	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25337.756 (5d6s6p $^7D_2^o$)	2.6
398.89618	0.000 ($5d6s^2$ $^9D_2^o$) → 25069.180 ($5d^26p$ $^{11}G_1^o$)	1.5
399.38184	532.977 ($5d6s^2$ $^9D_4^o$) → 25571.672 ($5d^26p$ $^{11}G_4^o$)	1.2
400.80937	215.124 ($5d6s^2$ $^9D_3^o$) → 25164.641 ($5d^26p$ $^{11}G_2^o$)	0.36
400.94623	999.121 ($5d6s^2$ $^9D_5^o$) → 25940.121 ($5d^26p$ $^{11}G_5^o$)	1.3

* C. H. Corliss and W. R. Bozman, "Experimental transition probabilities for spectral lines of 70 elements ", N.BS, Washington D.C. (1962)

付録B3　　Gd^+イオンの共鳴準位

369nm～400nmのレーザー波長範囲で測定されたGd^+イオンの共鳴準位を表B2.2に示す。gA値はNBSより参照した値である。エネルギー準位の括弧内には電子配置を示した。

表B2.1　Gd^+イオンの共鳴準位（369nm～400nmのレーザー波長範囲）

laser wavelength (nm)	Energy levels (cm^{-1})	gA* ($\times 10^8$ sec^{-1})
369.87856	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 27297.741 (5d6p $^{10}D_{5/2}^o$)	2.0
371.74192	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 27162.224 (5d6p $^{10}D_{9/2}^o$)	1.3
373.35195	633.273 (5d6s $^9D_{9/2}^o$) → 27417.652 ($4f^85d$ $^8P_{7/2}^o$)	0.23
374.45342	1158.943 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 27864.534 (5d6p $^{10}F_{11/2}^o$)	5.2
376.00739	0.000 (5d6s $^9D_{5/2}^o$) → 26595.222 (5d6p $^{10}F_{7/2}^o$)	0.66
376.40679	1935.310 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 28502.312 (6d6p $^{10}P_{11/2}^o$)	0.21
376.94668	633.273 (5d6s $^9D_{9/2}^o$) → 27162.224 (5d6p $^{10}D_{9/2}^o$)	8.3
379.74615	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 26595.222 (5d6p $^{10}F_{7/2}^o$)	4.2
381.50594	0.000 (5d6s $^9D_{5/2}^o$) → 26211.912 (5d6p $^{10}F_{5/2}^o$)	2.7
381.77257	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 26455.446 (6s6p $^{10}F_{9/2}^o$)	0.61
383.28970	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 26351.767 ($4f^86s$ $^6D_{9/2}^o$)	0.28
384.56686	1158.943 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 27162.224 (5d6p $^{10}D_{9/2}^o$)	1.4
385.17909	633.273 (5d6s $^9D_{9/2}^o$) → 26595.222 (5d6p $^{10}F_{7/2}^o$)	2.7
385.20693	0.000 (5d6s $^9D_{5/2}^o$) → 25960.073 (5d6p $^{10}F_{3/2}^o$)	3.5
385.35540	261.841 (5d6s $^9D_{7/2}^o$) → 26211.912 (5d6p $^{10}F_{5/2}^o$)	3.2
385.66522	1935.310 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 27864.534 (5d6p $^{10}F_{11/2}^o$)	0.53
387.26408	633.273 (5d6s $^9D_{9/2}^o$) → 26455.446 (6s6p $^{10}F_{9/2}^o$)	0.11
388.82526	633.273 (5d6s $^9D_{9/2}^o$) → 26351.767 ($4f^86s$ $^6D_{9/2}^o$)	0.056
389.57964	0.000 (5d6s $^9D_{5/2}^o$) → 25668.692 (6s6p $^{10}P_{7/2}^o$)	0.93
395.31156	1158.943 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 26455.446 (6s6p $^{10}F_{9/2}^o$)	0.23
396.93843	1158.943 (5d6s $^9D_{11/2}^o$) → 26351.767 ($4f^86s$ $^6D_{9/2}^o$)	0.45

* C. H. Corliss and W. R. Bozman, "Experimental transition probabilities for spectral lines of 70 elements ", N.BS, Washington D.C. (1962)

業績目録

論文発表

（1） " New cross-beam technique for charge transfer cross section measurment using a pulse ion beam producerd by laser photoionization "
S. Sakabe, Y. Izawa、M. Hashida, T.Naka, T.Sudo, T. Mochizuki, T. Yamanaka, S. Nakai and C. Yamanaka
Review of scientific Instruments, vol.61, No.12, p.3678-3685, December, 1990

（2） "Symmetric-charge transfer cross section for gadolinium in energy range 10～1000eV"
S. Sakabe, Y. Izawa, M. Hashida, T. Yamanaka, S. Nakai and C. Yamanaka
Physical Review A vol.45, No.1, p.252-258, January, 1992

（3） " Modified crossed-beam apparatus for charge-transfer cross section measurment "
M. Hashida, S. Sakabe, Y. Izawa, S. Nakai and C. Yamanaka
Review of scientific Instruments, vol.65, No.4, p.877-881, April, 1994

（4） " Cross sections of symmetric charge-transfer between Gd^* and Gd^+ in the energy range 30 - 1000 eV "
M. Hashida, S. Sakabe and Y. Izawa
Physical Review A. (to be published in December, 1995)

（5） " Cross sections of charge-transfer between a Gd atom and its singly charged positiveion in metastable states close to the ground state "
M. Hashida, S. Sakabe and Y. Izawa
submitted to Phys. Rev. A. (to be published)

（6） " Charge-transfer cross-sections of Gd and Gd^+ in metastable states close to the groundstate "
M. Hashida, S. Sakabe and Y. Izawa
submitted to Phys. Rev. A.

国内学会発表（登壇分のみ）

（1） 「レーザーを用いたイオン－原子ビーム直交衝突装置」
橋田昌樹、首藤智一、小坂学、多田昭史、阪部周二、井澤靖和、山中龍彦
中井貞雄、山中千代衛
レーザー学会、大阪国際交流センター、１９８９年1月２７日

（2） 「パルスレーザーを用いたイオン－原子ビーム直交衝突実験装置」
橋田昌樹、永本浩一、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
応用物理学会、岩手大学、１９９０年9月２６日

（3） 「Gd、Caの対称型電荷移行断面積の測定」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛

日本物理学会、北海道大学、１９９１年3月9日

（4） 「希土族元素の対称型電荷移行断面積の測定」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、東京大学、１９９２年9月２７日

（5） 「電荷移行断面積測定用直交ビーム装置」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、岡山大学、１９９３年１０月１３日

（6） 「Gdの対称型電荷移行断面積」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、福岡工業大学、１９９４年3月３０日

（7） 「Gdの対称型電荷移行断面積Ⅱ」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、静岡大学、１９９４年9月3日

（8） 「Gdの対称型電荷移行断面積Ⅲ」
橋田昌樹、香西宏隆、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、神奈川大学、１９９５年3月２８日

（9） 「Gdの対称型電荷移行断面積Ⅳ」
橋田昌樹、阪部周二、井澤靖和、中井貞雄、山中千代衛
日本物理学会、大阪府立大学、１９９５年9月３０日

国際会議発表（○は登壇分）

（1） " Charge transfer cross sections for rare-earth elements "
S. Sakabe, M. Hashida, Y. Izawa, T. Naka, S. Nakai, C. Yamanaka
International Symposium on Isotope Separation and Chemical Exchange Uranium Enrichment, October, 1990, Tokyo, Japan

（2） " Symmetric charge transfer cross sections for gadolinium in the energy range 10-1000eV "
S. Sakabe, Y. Izawa, M. Hashida, S. Nakai and C. Yamanaka
13th International Conference on Atomic Physics, Aug. 3-8, 1992 Munich.

（3） " Charge transfer cross sections for metallic elements for AVLIS "
C. Yamanaka, Y. Izawa, S. Sakabe and M. Hashida
7th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems
Sep. 20-24, 1993, Makuhari, Japan.

（4） ○" Cross sections of symmetric charge transfer between Gd and Gd^+ "
S. Sakabe, M. Hashida and Y. Izawa
19th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions
July 26- Aug. 24, 1995, Whistler, Canada.