

## 電子-H<sub>2</sub>O 分子衝突における二電子励起過程

(東工大院・理工<sup>1</sup>、上智大・理工<sup>2</sup>) ○谷内 一史<sup>1</sup>、小田切 丈<sup>2</sup>、  
土田 明代<sup>1</sup>、重村 圭亮<sup>1</sup>、穂坂 綱一<sup>1</sup>、北島 昌史<sup>1</sup>、河内 宣之<sup>1</sup>

### Double excitation in electron-H<sub>2</sub>O collisions

(Tokyo Inst. of Tech.<sup>1</sup>, Sophia Univ.<sup>2</sup>) ○Kazufumi Yachi<sup>1</sup>, Takeshi Odagiri<sup>2</sup>,  
Toshinori Tsuchida<sup>1</sup>, Keisuke Shigemura<sup>1</sup>, Kouichi Hosaka<sup>1</sup>,  
Masashi Kitajima<sup>1</sup>, and Noriyuki Kouchi<sup>1</sup>

【序】原子核と電子から成り、Coulomb力が支配する少数多体系である分子においてはBorn-Oppenheimer近似が、その基底電子状態及び低い励起状態の記述に絶大な力を発揮する。しかし、内部エネルギーがイオン化ポテンシャル以上である分子二電子励起状態のような共鳴状態においては、離散的電子状態と連続的電子状態との配置間相互作用によりBorn-Oppenheimer近似の帰結とは異なり、核の相対運動と電子運動が分離出来ない。そのため、分子二電子励起状態の生成と崩壊のダイナミクスは重要な研究対象である。その研究は二電子励起分子を観測することの困難さにより、散発的なものに限られていた。本研究グループでは、電子衝突における二電子励起状態を観測する強力な手法である角度分解Lyman- $\alpha$ 光子標識付き電子エネルギー損失分光法を開発した[1]。本研究では、この手法によりH<sub>2</sub>O分子のLyman- $\alpha$ 光子標識付き電子エネルギー損失スペクトル(CoEELS)を電子散乱角の関数として測定した。電子散乱角を大きくすることは、電子衝突を遠方衝突から近接衝突に変えることを意味する。このことは、電子衝突による二電子励起過程の原動力を明らかにする上で、重要である。さらに本研究では、一光子吸収による二電子励起過程(分子内の電子相関が原動力となり起こる)との対比によっても、電子衝突による二電子励起過程の本質を探る。

【実験】実験には、本研究グループが開発した角度分解Lyman- $\alpha$ 光子標識付き電子エネルギー損失分光法[1]を用いた。実験装置は電子エネルギー分光システム、真空紫外光検出器、および多次元同時計数系からなる。散乱角とエネルギーを選別した電子と、解離H(2p)原子が放出するLyman- $\alpha$ 光子とを同時計数することにより、CoEELSを電子散乱角の関数として得た。具体的には、標的分子をH<sub>2</sub>Oとし、入射電子エネルギー100eV、電子散乱角3°,15°,20°,30°において測定した。また、電子散乱角8°におけるTsuchida *et al.* による実験結果[2]も本研究と比較出来るように共通の縦軸スケールに乗せた。

【結果】図1.(b)-(e)に入射電子エネルギー100eVで得られたH<sub>2</sub>OのCoEELSを示す。図1.(a)には光励起によるH<sub>2</sub>OのLyman- $\alpha$ けい光放出断面積[3]から導かれた光学的極限におけるCoEELSを示した。光学的極限とは、入射電子エネルギー $+\infty$ 、電子散乱角0°における電子衝突をいう。Nakano *et al.*[3]は、入射光子エネルギー22-33eVにおけるLyman- $\alpha$ けい光放出断面積には、二電子励起D1, D2状態、及び'(2a<sub>1</sub>)<sup>-1</sup>(mo<sup>-1</sup>)'状態が寄与していると結論付けた。本研究で得られたCoEELSにおいて電子散乱角3°の31.5eV周辺(図1.(b)の青矢印)及び電子散乱角8°の27.5eV周辺(図1.(c)の赤矢印)に、光学的極限におけるCoEELSには現れない鋭い

ピークが観測された。他の電子散乱角にはこれらのピークが明確には観測されておらず、このピークが光学的禁制状態による可能性は小さい。一電子励起状態では、Franck-Condon 領域内での擬交差 [4] や振電相互作用 [5] が原因で一電子励起状態に由来するピーク形状が電子散乱角とともに変化することが知られている。本研究で観測した二電子励起状態では、離散のおよび連続的電子状態の相互作用により同様の現象が起き易くなっている可能性がある。

強度に注目すると、光学的極限から、入射電子エネルギー 100eV・電子散乱角 3°へ、また電子散乱角がさらに大きくなるに従い、一電子励起状態 (17.5eV 周辺) のピーク強度に対する二電子励起状態群 (22.0-33.0 eV) のピーク強度の比が大きくなるのがわかる。これは、光励起過程と比べて電子衝突過程の方が、一電子励起に対して二電子励起が起き易く、その傾向は電子散乱角が大きくなるに従い (すなわち、遠方衝突から近接衝突に移り変わるに従い)、より顕著になることを示している。光による分子の二電子励起過程では、分子内の電子相関が原動力となる。電子衝突による分子の二電子励起過程では、電子が分子の遠方を瞬間的に通り過ぎるときは光と同じであるが (光学的極限)、電子が分子の軌道電子付近まで入り込む事により、一電子励起に対して二電子励起が促進される様子が見てとれる。

#### 【参考文献】

- [1] K. Yachi *et al.* *J. Phys. B* **43**, 155208 (2010)  
 [2] T. Tsuchida *et al.* *J. Phys. B* **44**, 175207 (2011)  
 [3] M. Nakano *et al.* *J. Phys. B* **44**, 215206 (2010)  
 [4] M. Kimura *et al.* *Z. Phys. D* **38**, 165 (1996)  
 [5] N. Watanabe *et al.* *J. Chem. Phys.* **134**, 234309 (2011)

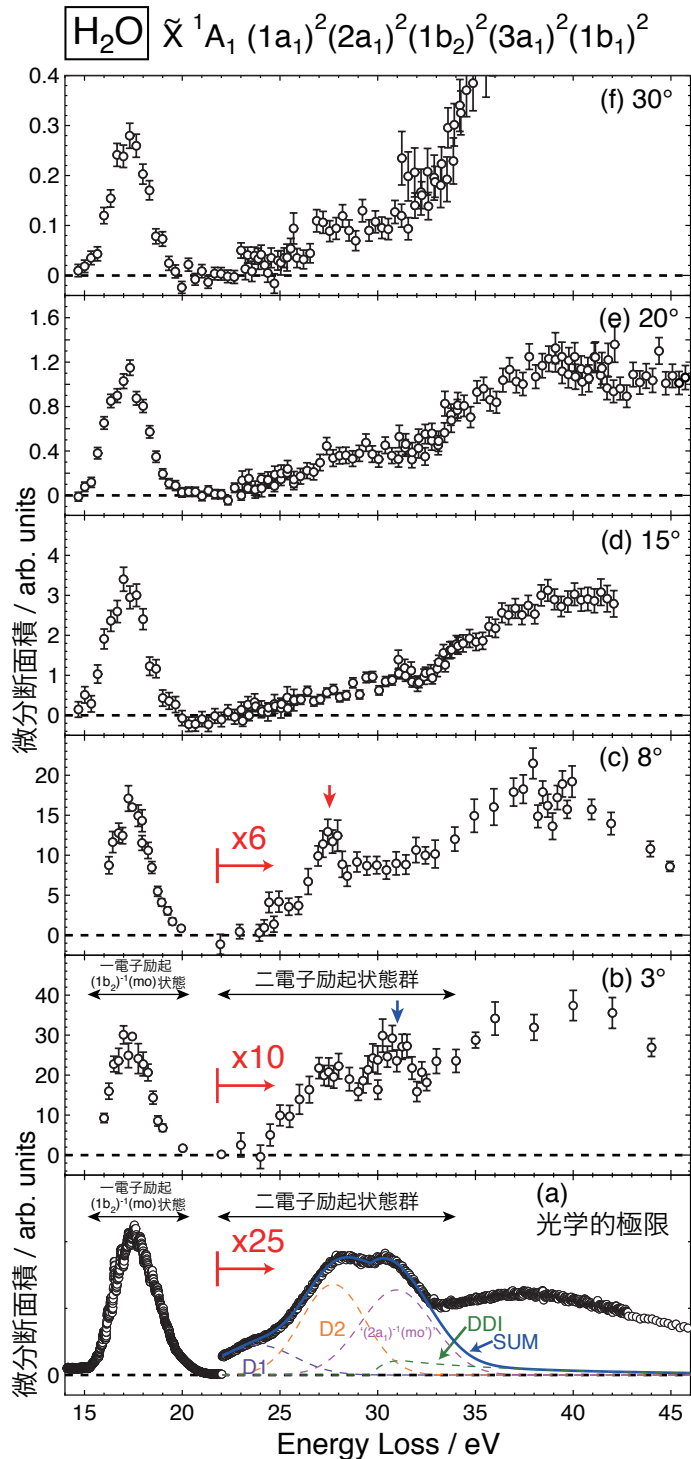


図 1. (a) 光学的極限 (入射電子エネルギー +∞、電子散乱角 0°)における CoEELS、(b)-(f) 入射電子エネルギー 100 eVにおける CoEELS。(b)-(f)を通して、縦軸スケールは共通である。電子散乱角は (b)3°, (c)8°, (d)15°, (e)20°, (f)30°である。(a)の破線は Nakano *et al.*[3]により得られた二電子励起状態に起因する構造、実線はそれらの寄与の和である。