

解離性2電子励起過程と1電子励起過程のどちらが起こりやすいか？ - 100eV電子-NH₃衝突における角度分解実験-

¹東工大理学院, ²上智大理工

○穂坂綱一¹, 南崎 開¹, 土田 明代¹, 谷内 一史¹, 小田切 丈², 前田 卓郎¹,
北島 昌史¹, 河内 宣之¹

Large enhancement of dissociative double-electron excitation over dissociative single-electron excitation in electron collisions with NH₃

○Kouichi Hosaka¹, Kai Minamizaki¹, Toshinori Tsuchida¹, Kazufumi Yachi¹,
Takeshi Odagiri², Takuro Maeda¹, Masashi Kitajima¹, and Noriyuki Kouchi¹

¹ *Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Japan*

² *Department of Materials and Life Sciences, Sophia University, Japan*

【Abstract】 It is of great significance to reveal the role of the electron correlation in a wide range of matter. In atoms and molecules, the transition from the ground state to the doubly excited state is a key issue in terms of the electron correlation since the multi-electron transition is in general much more unfavorable than the single-electron transition within the independent particle model. Double-electron excitations in electron collisions with NH₃ are investigated in the range of the outer valence and inner valence excitations by means of angle-resolved electron-photon coincidence measurements. It is found that the dissociative double excitation resulting in H(2p) formation becomes more dominant over the dissociative single excitation at 100 eV incident energy as the electron scattering angle increases just from 8° to 15°.

【序】 光励起による分子2電子励起は標的分子の電子相関により引き起こされる。では、電子衝突励起ではどうだろうか？ Born-Bethe 近似が成立する場合は、光励起と同じく、2電子励起の起源は標的分子の電子相関である。しかし、それが成立しない領域での電子衝突においては、疑問に対する答えは明確では無い。我々は最近、そのような領域の電子衝突による NH₃ の2電子励起について、興味深い実験結果を得た。すなわち、電子エネルギー100 eV 電子散乱角 8° の電子-NH₃ 衝突過程において、解離性2電子励起断面積が、解離性1電子励起断面積に対して、光励起の場合よりも、大きく促進されることを見出した[1]。100 eV 入射電子の運動量は、NH₃ 分子の価電子の運動量に比べ十分に大きいわけではなく[2]、Born-Bethe 近似の領域とは異なり、2電子励起の起源を NH₃ 分子の電子相関のみに求めることはできない。電子相関の文脈では、この実験結果は、入射電子の標的分子への接近により、[NH₃ 分子+入射電子]の電子相関が誘起され、それが2電子励起を促進するメカニズムを示唆する[2]。本研究では、この2電子励起メカニズムを検証するため、100 eV 電子とアンモニア分子の衝突による、解離性2電子励起過程と解離性1電子励起過程の微分断面積を電子散乱角の関数として測定する。電子散乱角を変えることにより、電子衝突過程を制御できる。

【実験】 実験には、角度分解電子-光子同時計測法を用いる。2 電子励起状態を観測するため、中性解離 H(2p)片から放出される Lyman- α 光子と散乱電子を同時計数測定し、中性解離を引き起こした散乱電子のみのエネルギー損失スペクトルを得る。同時計数測定により、直接イオン化の妨害を排除することが、2 電子励起状態の観測においては肝要である。実験装置図を図 1 に示す[3,4]。電子モノクロメータで単色化した電子ビームを、アンモニア分子を満たしたガスセルに導入する。特定の方向に散乱された電子は電子エネルギーアナライザでエネルギー分散され、時間分解位置敏感検出器(PSD)で検出される。エネルギー分散された電子と Lyman- α 光子との同時計数時間スペクトルはマルチパラメータシステムで記録する。Lyman- α 光子と同時計測された散乱電子のエネルギー損失スペクトル(coincident electron energy-loss spectra: coEELS)を、入射電子エネルギー 100 eV の下で、電子散乱角 8° と 15° 、エネルギー損失 14 - 43eV の範囲で測定した。

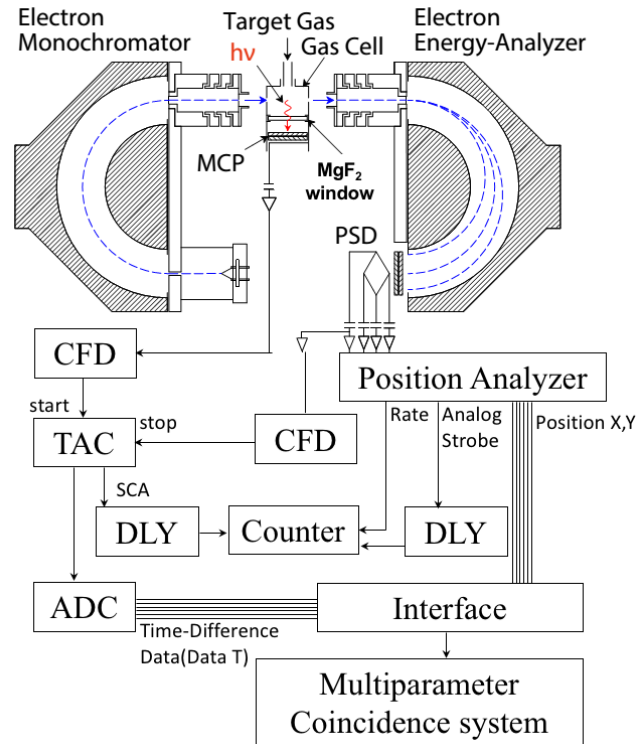


Fig.1 Schematic diagram of the apparatus

【結果・考察】 電子散乱角、 8° と 15° で計測した coEELS を、多次元鏡映近似、及び、解離ダイナミクスの半古典的な取り扱いに基づいたフィッティングによりピーク分離した[2]。光励起実験で観測された 4 つの超励起状態 (1 電子励起状態 1 つと 2 電子励起状態 3 つ) [1]のみで、実験結果をよく再現した。coEELS の各ピークをエネルギー損失に対し積分することで、各 1 電子励起、および 2 電子励起状態への解離性励起過程の微分断面積を得た。解離性 1 電子励起に対する、解離性 2 電子励起の微分断面積比は、電子散乱角 8° における 1.5 から、散乱角 15° では 5 まで増大した。この断面積比の顕著な増大は、我々の提案する“入射電子の標的分子への接近に誘起される電子相関”に由来する 2 電子励起メカニズムにより説明できる。電子散乱角が大きくなり、電子衝突が遠方衝突から近接衝突に変わるとつれて、入射電子により誘起される電子相関が強くなると考えられるからである。今回の実験結果は、“入射電子が標的分子の軌道電子に近接することで誘起される電子相関”が 2 電子励起を起こすという、我々の励起メカニズムを強く支持している。

【参考文献】

- [1] L. Ishikawa et al., J. Phys. B **41**, 195204 (2008).
- [2] K. Hosaka et al., Phys. Rev. A, **96**, 012706 (2017).
- [3] T. Nakazato et al., J. Phys. B **40**, 2459 (2007).
- [4] K. Yachi et al., J. Phys. B **43**, 155208 (2010).