

## 希ガス原子の電子運動量分光：平面波撃力近似の適用範囲の探索(II)

東北大学多元物質科学研究所  
○中島功雄, 山崎優一, 渡邊昇, 高橋正彦

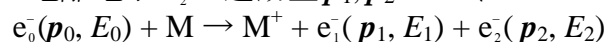
### An electron momentum spectroscopy study for elucidating the range of the validity of the plane wave impulse approximation (II)

○Isao Nakajima, Masakazu Yamazaki, Noboru Watanabe, Masahiko Takahashi  
*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Japan*

**【Abstract】** We have examined the range of the validity of the plane wave impulse approximation (PWIA) by conducting a series of electron momentum spectroscopy (EMS) experiments on Ne and Xe atoms, while greatly extending the earlier study on rare gases. The experimental EMS cross sections were thoroughly investigated in terms of both shape and intensity over a wider momentum range ( $< 7$  a.u.) at incident electron energies ( $E_0$ ) up to 4 keV. Comparisons between the theoretical and experimental EMS cross sections clearly show that PWIA reproduces the experimental results more closely in terms of not only shape but also intensity at higher  $E_0$ . This strongly indicates that EMS allows one to study spatial distributions of molecular orbitals more broadly and strategically, if higher  $E_0$  could be used for experiments on molecules.

**【序】** 電子運動量分光法 (Electron momentum spectroscopy; EMS) [1,2]は、電子線コンプトン散乱条件下で起こる電子衝撃イオン化の運動学的完全実験である。この散乱過程を記述するために、入射電子および散乱二電子を平面波で記述してそれらと標的イオンコアとの相互作用を無視する平面波撃力近似 (Plane Wave Impulse Approximation; PWIA) が最も広く用いられる。PWIAによれば、EMSの微分散乱断面積は運動量空間の分子軌道形状そのものを与える。したがって、EMSを用いた分子科学研究を広く展開するためには、PWIAの適用範囲についての理解が不可欠である。しかしながら、そうした理解を試みた研究は、数少ない。例えば、Miyakeらは、2 keVの入射電子線を用いて3.6 a.u.までの運動量範囲に対して希ガス原子のEMS実験を行い、PWIAの適用範囲が希ガスの種類や軌道に依存することを見いだした[3]。また、Renらは、1.6 keVまでの比較的低エネルギーの範囲で入射電子エネルギー $E_0$ を変えて、エチレンのEMS実験を行い、 $E_0$ が高いほどPWIAが微分散断面積の形状をより良く再現することを明らかにしている[4]。そこで本研究では、これらの研究を発展させ、より広い運動量範囲 ( $< 7$  a.u.) およびより高い入射電子エネルギー ( $< 4$  keV) のEMS実験を希ガス原子に対して行い、PWIAの適用範囲を微分散乱断面積の形状および強度の両面から系統的に調べた。

**【方法 (実験・理論)】** EMS実験では、高速入射電子 $e_0$ の電子衝撃イオン化で生成した非弾性散乱電子 $e_1$ と電離電子 $e_2$ の運動量 $p_1, p_2$ とエネルギー $E_1, E_2$ を同時計測する。



EMSが対象とする大きな移行運動量を伴うコンプトン散乱では、散乱過程は入射電子と標的電子の二体衝突として記述され、生成イオン $M^+$ は傍観者として振舞う。従って、散乱前後のエネルギー保存則と運動量保存則から、標的電子の束縛エネルギー $E_{\text{bind}}$ と衝突前の運動量 $p$ を決定できる。

$$E_{\text{bind}} = E_0 - E_1 - E_2, \quad \mathbf{p} = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_0$$

以上の原理により EMS を用いて、標的電子の軌道ごとの運動量分布を観測することができる。

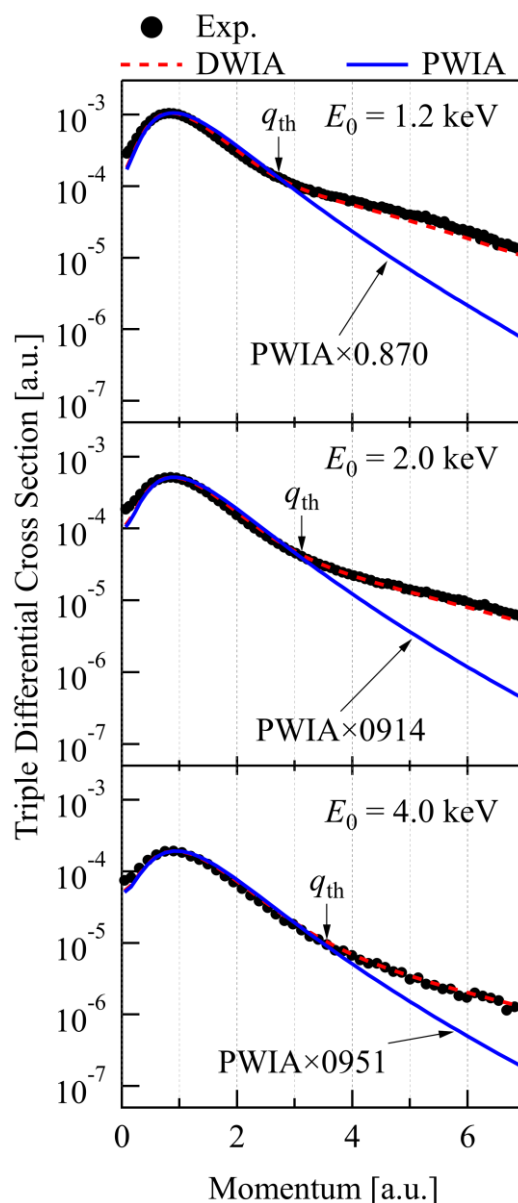
実験は、我々が開発した高感度  $2\pi$  型 EMS 装置[5]を用い、 $E_0 = 1.2\sim 4$  keV の条件下、symmetric non-coplanar 配置で行った。この配置では、電子衝撃イオン化で生成した非弾性散乱電子と電離電子の内、エネルギーが相等しくかつ入射電子に対し共に  $45^\circ$  方向に散乱されたもののみを同時計測する。このとき、標的電子の運動量の大きさ  $|\mathbf{p}|$  は、検出二電子間の方位角差  $\Delta\phi$  を用いて  $|\mathbf{p}| = \sqrt{(p_0 - \sqrt{2}p_1)^2 + (\sqrt{2}p_1 \sin(\Delta\phi/2))^2}$  で与えられる。

**【結果・考察】** 一例として Fig.1 に、 $E_0 = 1.2$ 、 $2.0$ 、および  $4.0$  keV における Ne 2p 軌道の EMS 散乱断面積の実験結果を理論計算結果と比較して示す。理論計算結果は、PWIA によるもの（青の実線）に加えて、入射電子および散乱二電子と標的の静電相互作用による歪曲波効果を考慮した、歪曲波撃力近似 (Distorted Wave Impulse Approximation; DWIA) による結果（赤の破線）も示す。実験結果および PWIA による計算結果はそれぞれ、DWIA による計算結果と断面積の最大値で規格化し、PWIA 計算結果に対する規格化定数を図中に示した。

PWIA 計算結果は、低運動量領域で実験結果を良く再現する一方で、高運動量領域では断面積を過小評価することが、図から見て取れる。PWIA 計算結果が実験結果と差異を生じ始める運動量の値を  $q_{\text{th}}$  とすると、入射電子エネルギーが高いほど  $q_{\text{th}}$  が高運動量側へシフトすることが分かった。また、PWIA 計算結果に対する規格化定数は、入射電子エネルギーが高くなるほど 1 に近づくことも分かる。以上の結果は、より高い入射電子エネルギーを用いれば、PWIA 計算は実験結果を形状のみならず強度までもより良く再現するようになり、したがって、より広い空間領域での分子軌道形状の研究が可能になることを強く示唆している。ポスター講演では、異なる希ガス間 (Ne と Xe) や軌道間 (価電子 p 軌道と s 軌道) の比較を行い、PWIA の適用範囲に関してさらに議論を行う予定である。

### 【参考文献】

- [1] E. Weigold and I. E. McCarthy, “*Electron Momentum Spectroscopy*”, (Kluwer, New York, 1999).
- [2] M. Takahashi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **82**, 751 (2009).
- [3] Y. Miyake, M. Takahashi, N. Watanabe, Y. Khajuria, Y. Udagawa, Y. Sakai and T. Mukoyama, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **8**, 3022 (2006).
- [4] X. G. Ren, C. G. Ning, J. K. Deng, S. F. Zhang, G. L. Su, F. Huang and G. Q. Li, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 163201 (2005).
- [5] M. Yamazaki, H. Satoh, M. Ueda, D. B. Jones, Y. Asano, N. Watanabe, A. Czasch, O. Jagutzki, and M. Takahashi, *Meas. Sci. Technol.* **22**, 075602 (2011).



**Fig. 1.** Experimental and theoretical TDCSs of the Ne 2p atomic orbital.