

低圧気体試料に対するミュオン転移現象の研究

Muon Transfer Processes for Low Pressure Gaseous Molecules

二宮和彦¹、稻垣誠¹、吉田剛¹、髭本亘²、伊藤孝²、ストラッサー・パトリック³、
河村成肇³、下村浩一郎³、三宅康博³、三浦太一⁴、久保謙哉⁵、篠原厚¹

1 阪大院理、2 JAEA-ASRC、3 KEK-ミュオン、4 KEK-放射線、
5 国際基督教大

負電荷ミュオンと水素原子核(陽子)との束縛状態はミュオン水素原子と呼ばれる。ミュオンは電子のおよそ 200 倍の質量を持つ粒子であり、その原子軌道半径は 1/200 と非常に小さい。つまりミュオン水素原子は非常に小さな原子系といえ、ミュオンが原子核の電荷を強く遮蔽するために、ミュオン水素原子は物質中では中性子のような振る舞いをする。このためミュオン水素原子は電子雲を通り抜け、より重い原子核の近傍に接近することができ、ミュオン転移過程と呼ばれる、ミュオンが重い原子のミュオン原子軌道に移動する反応を起こす。本研究では単純な気体分子に注目し、水素との混合気体にミュオン照射を行い、転移したミュオンの初期状態(それぞれの元素への転移確率、捕獲されたミュオンの初期の量子状態)について考察した。

実験は J-PARC/MLF、MUSE-D1 において行った。ガスチャンバーに 0.01 気圧程度の気体試料(CO , CO_2 , C_6H_6 , C_6H_{12})を充填し、これに水素ガスを加えておよそ 1 気圧とした。ミュオン照射により放出されるミュオン特性 X 線を高純度 Ge 半導体検出器により計測し、ミュオンビームのパルスシグナルとともに記録した。照射時間はそれぞれの試料においておよそ 12 時間程度であった。

得られたミュオン特性 X 線イベントについて、検出時間のビームパルスからの時間差スペクトルを図1に示す。ミュオンの転移過程は、ミュオン水素がまず生成し、その後に試料分子と衝突することにより起こるため、ミュオン転移過程由来のシグナルはビームパルスシグナルより遅れたところに得られる。本研究では時間成分の遅い領域(delay)に注目し、ミュオン特性 X 線のスペクトルを詳細に解析した。X 線の強度から、それぞれの元素に対する転移確率を導出したので、発表で詳細を報告する。

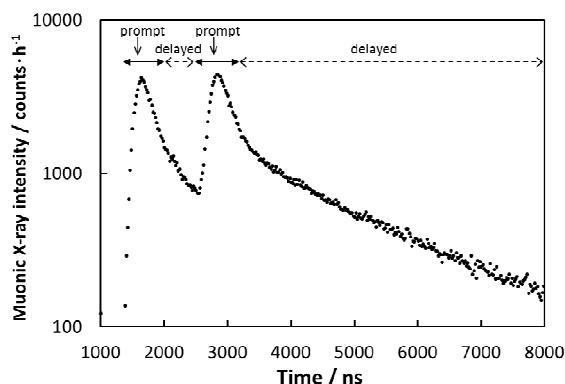


図1: H_2+CO 試料でのミュオン特性 X 線の時間スペクトル

水素分子(H_2 , HD , 及び D_2) の 光解離による $2p$ 原子ペア生成断面積

The isotope effect on the cross section of $2p$ pair formation in the photoexcitation of H_2 , D_2 , and HD

穂坂綱一, 鳥塚祐太郎, 谷内一史, Philipp Schmidt^A, Andre Knie^A, Kari Jankala^B, Arno Ehresmann^A, 小田切丈^C, 北島昌史, 河内宣之

東工大, Univ. Kassel^A, Univ. Oulu^B, 上智大^C

2電子励起分子からの自動イオン化と中性解離の競争は、その崩壊ダイナミクスを特付ける。本研究では水素分子の $Q_2 \ ^1\Pi_u(1)$ 状態に注目する。この状態は $2p$ 原子ペアの前駆状態であることがわかっている [1, 2]。本研究では既に測定した H_2 と D_2 に加え [2]、 HD に対しても光解離に由来する $2p$ 原子ペア生成断面積を入射光子エネルギーに対して測定した。

その結果を図 1 に示す。電子的自動イオン化の rate には同位体効果は現れない。一方、解離の相対速度には同位体効果があり、 D_2 における相対速度は H_2 におけるそれの $1/\sqrt{2}$ となる。さらに電子的励起の振動子強度にも同位体効果はほとんど現れない。したがって、 $H_2 \rightarrow HD \rightarrow D_2$ の順に $2p$ 原子ペア生成の振動子強度は減少することが期待される。一方、図 1 から得られる $2p$ 原子ペア生成の振動子強度比は $1 : 1.1 : 0.68 (H_2 : HD : D_2)$ である。 H_2 と D_2 の比は、上記の定性的な予想どおりであるが、 H_2 と HD の比は、それとは異なるように見える。2電子励起状態のダイナミクスを簡便に取り扱う方法として半古典的方法があるので、これに基づいて議論する。

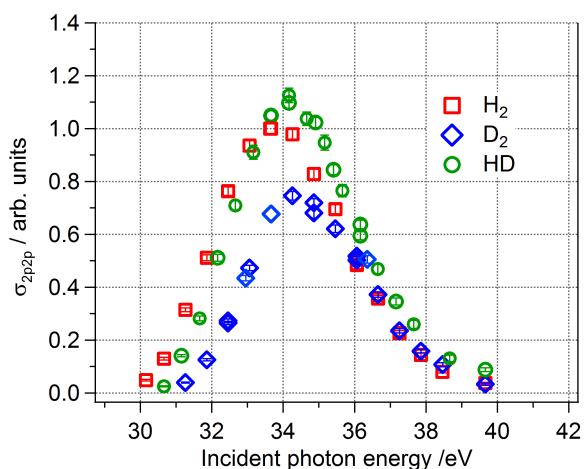


図 1 H_2 , HD , D_2 の $2p$ 原子ペア生成断面

[1] T. Odagiri, M. Murata, M. Kato, and N. Kouchi, *J. Phys. B* **37**, 3909 (2004).

[2] K. Hosaka et.al, to be submitted.

振動始状態を分離した CO₂ 分子の VUV 吸収断面積

VUV-absorption cross sections of vibrationally-resolved CO₂ molecules

星野正光¹、松井翠¹、望月有¹、小田切丈¹、重村圭亮²、近藤篤史²、
北島昌史²、渡邊昇³、足立純一⁴、田中大¹
¹ 上智大理工、² 東工大院理工、³ 東北大多元研、⁴ KEK-PF

振動始状態が励起した分子を標的とする光吸収実験では、対称性のよい振動基底状態と比べ、強い振電相互作用による吸収断面積の変化や光学的禁制状態への遷移など選択則に関する励起ダイナミクスに新たな知見を得ることが期待される。そこで本研究では、代表的な直線 3 原子分子である二酸化炭素(CO₂)分子の振動始状態分布を抵抗加熱により変化させることで、変角振動励起状態からの VUV 吸収断面積を測定したので報告する。

実験は、PF BL-20Aにおいて行われた。出入口のアパチャ一径 3φ、有効長 220 mm、周囲にシース線ヒーターが密に巻き付けられた分子加熱用光吸収セルを用い、一般的な Lambert-Beer の式に基づいて温度 T (300 – 720 K)における光吸収断面積を測定した。

CO₂ 分子の振動エネルギーとボルツマン分布の関係において、室温下では約 92%、800 K で約 47% が振動基底状態、それ以外は振動励起状態となる。そのため、高温における光吸収断面積の入射光エネルギー依存性 $\sigma(T)$ は、振動始状態分布の割合が測定温度に応じて異なることから、室温あるいはそれ以下の低温における依存性とは形状が異なることが予想される。そこで、以下の関係式を用い、いくつかの温度で測定された $\sigma(T)$ から標的分子の振動始状態を分離した吸収断面積 σ_v を導出した。

$$\sigma(T) = P_{000}(T)\sigma_{000} + P_{010}(T)\sigma_{010} + P_{100}(T)\sigma_{100} + P_{020}(T)\sigma_{020} + \dots$$

ここで、 $P_v(T)$ は温度 T における振動始状態 v のボルツマン分布係数を表す。

解析の結果、振動始状態が基底状態である吸収断面積 σ_{000} 、変角振動励起状態である σ_{010} 、および伸縮振動励起状態である $\sigma_{100/020}$ の分離に成功した。特に、光エネルギー 10.8 – 11.3 eV 近傍の 3pπ $^1\Sigma_u^+$ 状態への遷移において、 σ_{010} は σ_{000} に比べて約 1.3 倍程度大きく、ピークのエネルギーが約 40-60 meV 低エネルギー側へシフトすることがわかった。詳細な解析手法および振動励起分子の光励起ダイナミクスについては当日議論する。

大学院生のための新しい実習(BL20A):2015 年度の成果 Training of synchrotron radiation science for graduate students at BL20A: Achievement in FY 2015

河内宣之¹、穂坂綱一¹、北島昌史¹、足立純一²、高井良太²
東京工業大学化学専攻¹、KEK-PF²

東京工業大学化学専攻と放射光科学研究施設は、放射光科学の教育研究推進についての合意書および付隨する覚書を 2009 年 4 月に交わした。その下で BL20A に大学院教育を実施する目的で、大学等運営ステーションが設けられた。我々は、このような枠組みを出発点として、2011 年度の後学期から本学化学専攻および物質科学専攻(理系)の大学院生を対象とする実習「放射光科学実習」を発足させた。「放射光科学実習」は 2013 年度までに、予想以上に広い分野の学生が履修・参加し、参加した学生にも大変好評であった。2014 年度からは、選択必修科目とすることでより多くの学生を対象とした、「計測機器演習第一」に衣替えした。

本実習のコンセプトは、「放射光を使いこなせる人材を養成するためには、蛇口をひねれば出てくる水を使うような実習ではなく、ユーザーには見えない光源加速器の存在を意識できる実習が望まれる」、である。そのために放射光パルスと同期した時間分解光子計数を実習の根幹に置く。実習は BL20A で行った。PF リングからのパルス放射光(幅~200 ps、

繰り返し周期 2 ns)により、H₂から H(2p) 原子を瞬間に解離生成させる。放射光パルスと同期させて H(2p) 原子が放出する Lyman- α 光子を時間分解計数する。装置の概略を図 1 に示す。得られた時間スペクトルから放射光パルスの時間構造を実感し、さらにその解析から H(2p) 原子の寿命(理論値 1.6 ns)を求ることを中心とした課題とした。

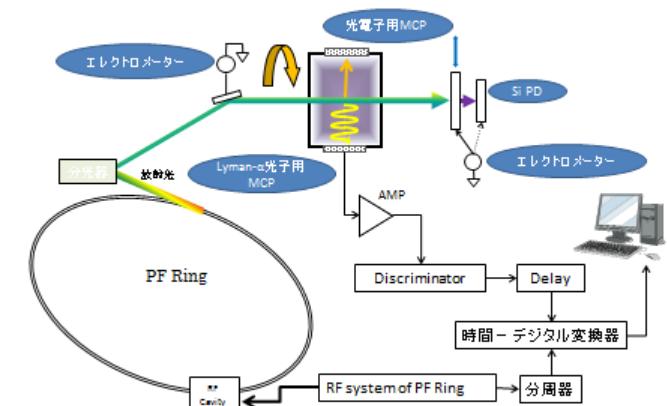


図 1 実習装置の概略

2015 年度の参加者は 18 名となり、これまで最多の参加学生数であった昨年度からさらに多くの学生が参加した。実習において得られる時間スペクトルからは、H(2p) 原子の寿命だけではなく、放射光パルスの繰り返し周期とフィルパターンが良くわかる。放射光パルスとの同期をとる計測により、光源加速器の存在を意識できる実習が実現した。

しきい光電子源を用いた 超低エネルギー電子-O₂衝突全断面積の測定

Measurements of the total cross sections for ultra low energy electron scattering from O₂ employing the threshold photoelectron source

小林尚正¹、重村圭亮¹、北島昌史¹、小田切丈²、星野正光²、田中大²
¹ 東工大院理工、² 上智大理工

本研究グループでは、放射光を用いて生成したしきい光電子を電子源とすることで、フィラメントを電子源とした従来の実験方法では困難であった超低エネルギー領域での電子衝突全断面積の測定を行ってきた[1,2,3]。本研究ではこの手法を用いて、超低エネルギー領域でのO₂の電子衝突全断面積を測定した。

Fig.1に本研究で測定したO₂の電子衝突全断面積と推奨値[4]を示す。電子-O₂衝突は大気科学・プラズマ科学の基礎として重要であり、様々な過程の電子衝突全断面積をまとめた推奨値が報告されている。電子-O₂衝突では衝突エネルギーがおよそ1 eV以下においてO₂が一時的に電子を捕えて生成する短寿命な負イオンであるO₂⁻2Π_g状態を経由する共鳴散乱が知られている。Fig.1に示す様に本研究ではO₂⁻の振動励起状態を経由する共鳴散乱由來の一観の形状を明らかにすることができた。これまで100 meV以下の超低エネルギー領域においてO₂の電子衝突全断面積を精密に測定した例はなく、特にO₂⁻(v'=4)を経由する共鳴散乱過程を含む全断面積を定量的に求めたのは本研究が初めてである。また、超低エネルギーにおいて推奨値は全断面積を大きく見積もっているということがわかった。

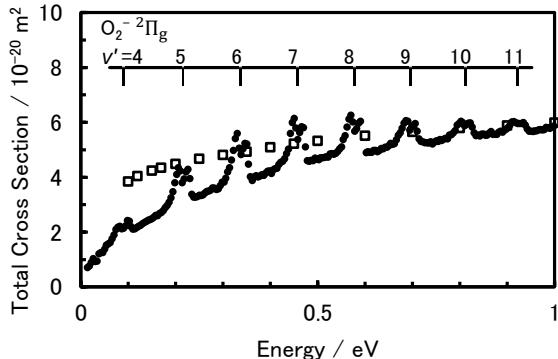


Fig.1 衝突エネルギー 1 eV におけるO₂の電子衝突全断面積。●:本研究、□:Itikawaによる推奨値[4]。

- [1] M. Kurokawa *et al.*, Phys. Rev. A **82**, 062707 (2010)
- [2] M. Kurokawa *et al.*, Phys. Rev. A **84**, 062717 (2011)
- [3] K. Shigemura *et al.*, Phys. Rev. A **89**, 022709 (2014)
- [4] Y. Itikawa, J. Phys. Chem. Ref. Data **38**, 1 (2009)

パラH₂分子2電子励起状態からのライマン α 光子放出

Emission of the Lyman- α photon from molecular doubly excited states of para-H₂

小田切丈¹⁾, 阿部悠太¹⁾, 谷内一史²⁾, 大類卓¹⁾, 白鳥貴久¹⁾,
海田正司¹⁾, 熊谷嘉晃²⁾, 穂坂綱一²⁾, 北島昌史²⁾, 河内宣之²⁾
¹⁾上智大理工, ²⁾東工大院化学

電子連続状態に埋もれた分子多電子励起状態の生成・崩壊は分子科学における興味深い研究対象である。最近、水素分子2電子励起状態の光解離において非断熱遷移が重要な役割を果たしている可能性が示唆された[1]。本研究では、このようなダイナミックスに対する詳細な知見を得る目的で、H₂分子の回転状態を制御し、その2電子励起状態の解離に由来するライマン α 光子放出断面積を測定した。

H₂分子の基底電子状態($^1\Sigma_g^+$)には、核スピンの相対配向の違いによって、偶数回転準位のみのパラH₂と奇数回転準位のみのオルソH₂が存在し、通常のH₂ガス(ノルマルH₂)は両者の1:3混合物である。ゼロ回転準位からの双極子遷移においては、選択則により生成可能な電子状態($^1\Sigma_g^+$, $^1\Pi_u^\pm$ 状態)のうち $^1\Pi_u^-$ 状態は生成しない。これらの状態は非断熱遷移のパートナーが異なるため、基底状態におけるゼロ回転準位の割合を積極的に変化させ、関与する電子状態に制限を与えることにより、非断熱遷移に対する理解が深まることが期待される。本研究では、液体ヘリウムを用いたオルソーパラ水素変換器を自作し、ほぼパラH₂のみの試料ガスを作成した。さらに、真空槽中のガスセルを液体窒素にて冷却することによりほぼゼロ回転準位のみのH₂ガスを用意した。

図1はH₂分子の光イオン収量スペクトルである。スペクトルを詳細に解析することにより、オルソーパラ変換、および、ガスセルの冷却がおおむねうまくいっていることが確認された。さらに、予備的ではあるが、回転準位 $J''=0$ または 2 のH₂分子から2電子励起状態を経てライマン α 光子放出に至る光解離断面積の測定に成功した。

[1] T. Odagiri et al., Phys. Rev. A 84, 053401 (2011)

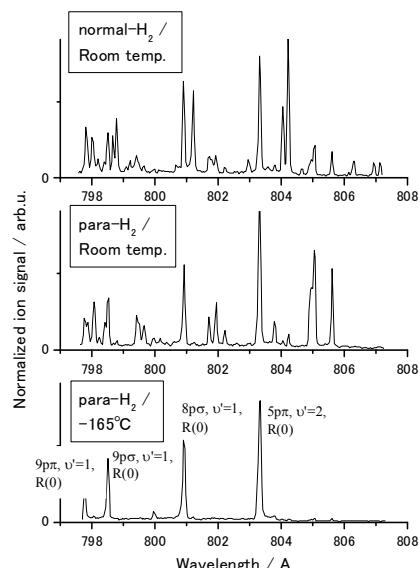


図1 H₂分子の光イオン化におけるイオン収量スペクトル；(a)室温のノルマルH₂, (b)室温のパラH₂, (c)−165°CのパラH₂.

KEK-PF BL-28B, UVSOR BL6U

光電子再捕獲における新しい知見 オージェ電子分光による研究

New findings in photoelectron recapture Study of Auger electron spectroscopy

小杉 聰¹、鈴木 紀裕¹、河合 将吾¹、栗山 洋介¹、剣持 港¹、熊谷 尚樹¹、

久保田 隆太郎¹、岩山 洋士²、繁政 英治²、小池 文博¹、東 善郎¹

¹上智大理工、²分子研 UVSOR

原子の光イオン化過程における衝突後相互作用(post collision interaction:PCI)は電子スペクトルのエネルギーshiftと変形(通常、光電子ピークが低エネルギー側に尾を引き、オージェ電子ピークが高エネルギー側に尾を引く)として顕著に表れる現象である。場合によっては光イオン化閾値にきわめて近いエネルギー領域で光電子が再捕獲されることが、光電子分光測定やイオン飛行時間分析による価数分解測定等の手法によって認識されている。光電子分光器の精度向上に伴いオージェ電子ピークに光電子再捕獲を示すリュドベリ列が観測可能になり存在自体は希ガス等の実験で示されている[1]。本研究では、Xe 4d イオン化に伴う光電子再捕獲を示すリュドベリ列を測定した。スペクトルの中に光電子とオージェ電子の間の角運動量の交換によるコンジュゲートピークが支配的に表れることが分かった。

実験は、KEK-PF の BL-28B 及び UVSOR の BL6U において行われた。Xe 4d 電子のイオン化閾値よりもわずかに高い Excess エネルギーにおいて測定を行った。Xe 原子から放出されたオージェ電子は光電子分光装置によってエネルギー分析される。 $N_5O_{23}O_{23}$ オージェ電子スペクトルの中に光電子再捕獲による Rydberg 構造を鮮明に観測した。結果として、Rydberg 構造の中に通常の $4d^1_{5/2} \rightarrow 5p^{-2}(^1S_0) mp$ 遷移以外に $4d^1_{5/2} \rightarrow 5p^{-2}(^1S_0) md$, $4d^1_{5/2} \rightarrow 5p^{-2}(^1S_0) ms$ 遷移を表すオージェ電子ピークを観測した。特に $4d^1_{5/2} \rightarrow 5p^{-2}(^1S_0) md$ 遷移が支配的に起こることがわかった。

[1] S. Kosugi, et al. *J. Phys. B* **48**, (2015), 115003

多電子同時計測によるダブルオージェ過程に起因した電子 再捕獲・再放出過程の研究

**Electron recapture and reemission processes
associated with double Auger decay studied with a
multi-electron coincidence method**

彦坂泰正¹、増子亮平²、小田切丈³、足立純一⁴、

田中宏和⁴、小菅隆⁴、伊藤健二⁴

1 富山大学、2 新潟大学、3 上智大学、4 KEK-PF

内殻イオン化しきい値近傍の光エネルギーを用いて内殻イオン化を起こした場合、Post-Collision Interaction(PCI)と呼ばれる複数の荷電粒子間に生じる特殊な多体効果が顕著となることが知られている。この PCI による光電子のエネルギー損失量が光電子の初期運動エネルギーを上回るときには、光電子はリュードベリ軌道に再捕獲され、リュードベリ励起したイオン状態が生成する。このイオン状態の内部エネルギーが十分であれば、引き続いて自動イオン化が起こり、リュードベリ軌道に捕らわれていた光電子が再放出されることがある。この PCI による電子再捕獲・再放出過程は、従来型の電子分光法によっても観測することは可能であるが、初期の電子再捕獲によって生成した励起状態を含む、プロセスの全体像を明らかにすることは容易ではない。

本研究では、磁気ボトル型電子エネルギー分析技術を利用した多電子同時計測[1,2]を行い、PCI の関与するアルゴン原子の電子再捕獲・再放出過程について、その全体像を明らかにすることを目指した。磁気ボトル型電子エネルギー分析では、電子エネルギーを飛行時間分析によって決定するため、イオン化光として十分な時間間隔を持つパルス光が必須である。本実験では、新規開発した同期型光チョッパーシステムを利用することにより、ハイブリッドモードの孤立バンチからの放射光のみを切り出して利用することに成功した。得られた同時計測データから、一光子吸収によって放出される複数の電子の運動エネルギーの相関を得ることができる。その解析によって、オージェ電子が一つ放出される通常のオージェ過程に起因する過程のみならず、ダブルオージェ過程に起因した電子再放出過程も見出した。詳細はポスターにて報告する。

- [1] Y. Hikosaka, T. Aoto, P. Lablanquie, F. Penent, E. Shigemasa and K. Ito, Physical Review Letters, 97, 053003 (2006).
- [2] Y. Hikosaka, T. Kaneyasu, P. Lablanquie, F. Penent, E. Shigemasa and K. Ito, Physical Review A, 92, 033413 (2015).

使用ステーション／BL-28B

シングルバンチ放射光を用いた希ガス原子の蛍光寿命測定

Fluorescence Lifetime Spectroscopy of Rare Gases with Synchrotron Radiation

鈴木紀裕¹ 小杉聰¹ ジェームス・R・ハリーズ² 小池文博¹ 東善郎¹

1 上智大学理工学研究科 2 JAEA

これまでの原子分子の光過程の研究においては、吸収測定や光電子測定などの手法が重視されており、蛍光測定はほとんど行われてこなかった。これは、この領域における多電子共鳴励起状態はそのほとんどが自動電離により崩壊し、蛍光による脱励起過程は発生しないという認識があつたためだと思われる。しかしながら、1990 年代末からヘリウムの $n=2$ 閾値付近での蛍光寿命測定を初めとしていくつかの研究が出てきた。^{[1][2]} このように、極めて微弱な共鳴状態においては蛍光放出による脱励起過程の方が強く表れる場合も多いということが認識され始めている。そこで本研究では Ne および Ar を対象として、放射光を利用して $nsnp^6$ 状態の内殻イオン化を行い、蛍光寿命を測定した。また、 Ne^+ および Ar^+ の蛍光寿命の違いから、これらの状態における配置間相互作用の違いを明らかにした。

実験は PF の BL-28B を使用して行った。ハイブリッド運転におけるシングルバンチ部分を利用し、放射光により対象原子がイオン化されてから、蛍光が検出されるまでの時間を計測し、得られたスペクトルをフィッティングすることにより蛍光寿命を求めた。この結果、 Ne^+ の $2s2p^6$ 状態と Ar^+ の $3s3p^6$ 状態では寿命が大きく異なることが分かった。また、GRASP92 および RATIP を使用して、これらの状態の蛍光寿命の計算を行い、実験結果と非常に良い一致をすることを確かめた。

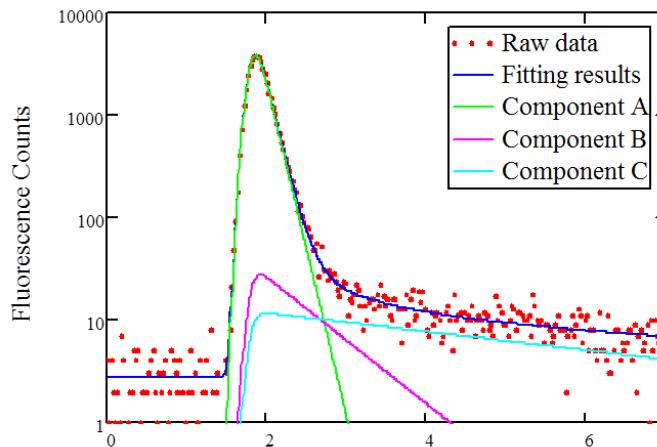


Figure 1 Ne の 48.5eV における蛍光寿命スペクトル。 $2s2p^6$ の寿命成分に加え、高次光による寿命成分を加え、フィッティングを行った。

[1] J R Harries et al: *J. phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36**, L319 (2003)

[2] S Lauer et al: *J. phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, 2015 (1999)