

原子衝突学会誌

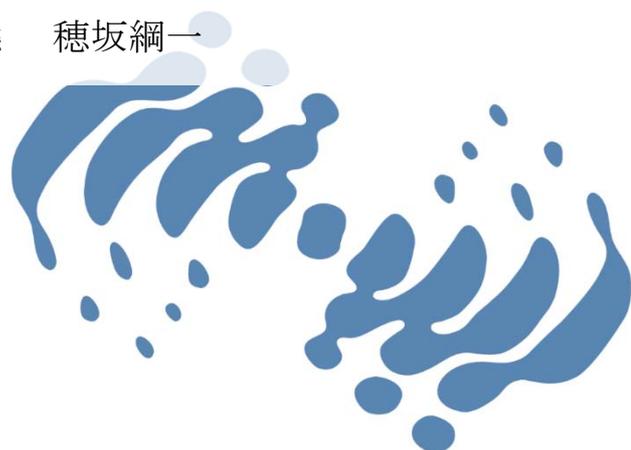
しょうとつ

第 13 巻
第 1 号
2016 年

シリーズ 「多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開」 第 3 回 重元素多価イオンプラズマと実験室サイズの極端紫外光源開発 大橋隼人, 東口武史

解説 (若手奨励賞受賞研究)
反水素原子ビームの研究 永田祐吾

キーワード 分子の 2 電子励起状態 穂坂綱一



**THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN**

原子衝突学会賛助会員（五十音順）

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド（IOP 英国物理学会出版局）

Institute *of* **Physics**

<http://journals.iop.org/>

アステック株式会社

ASTECH
CORPORATION

<http://www.astechcorp.co.jp/>

アドキャップバキュームテクノロジー株式会社

ADCAP

<http://www.adcap-vacuum.com>

有限会社イーオーアール



Electronics Optics Research Ltd.

<http://www.eor.jp/>

株式会社オプティマ

Optima Corp.

<http://www.optimacorp.co.jp/>

キャンベラジャパン株式会社

A
CANBERRA

<http://www.canberra.com/jp/>

クリムゾン インタラクティブ プライベート リミテッド

enago[™]

<http://www.enago.jp/>

<http://ulatus.jp/>

<http://www.voxtab.jp/>

株式会社サイエンス ラボラトリーズ



株式会社 サイエンス ラボラトリーズ

<http://www.scilab.co.jp/>

真空光学株式会社

真空光学株式会社 - Vacuum & Optical Instruments -

<http://www.shinku-kogaku.co.jp/>

スペクトラ・フィジックス株式会社

 Spectra-Physics®
A Newport Company

<http://www.spectra-physics.jp/>

ソーラボジャパン株式会社

 THORLABS

<http://www.thorlabs.jp/>

ツジ電子株式会社

 TSUJICON
ツジ電子株式会社

<http://www.tsujicon.jp/>

株式会社東京インスツルメンツ

 TOKYO INSTRUMENTS, INC.

<http://www.tokyoinst.co.jp/>

株式会社東和計測

 Touwa
Keisoku

<http://www.touwakeisoku.co.jp/>

株式会社トヤマ

 TOYAMA
サイエンスをかたちにするテクノロジー

<http://www.toyama-jp.com/>

株式会社ナバテック

真空機器の未来と歩む
Navatec

<http://www.navatec.co.jp/>

仁木工芸株式会社



<http://www.nikiglass.co.jp/>

伯東株式会社



<http://www.g5-hakuto.jp/>

株式会社パルスパワー技術研究所



<http://www.mypj.com>

丸菱実業株式会社

丸菱実業株式会社

MARUBISHI CORPORATION

<http://www.ec-marubishi.co.jp/>

株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション



<http://www.labo-eq.co.jp/>

しょうとつ

第 13 卷 第 1 号



THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN

目 次

シリーズ「多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開」 第3回 重元素多価イオンプラズマと実験室サイズの極端紫外光源開発	大橋隼人, 東口武史	...5
解説（若手奨励賞受賞研究）反水素原子ビームの研究	永田祐吾	...15
原子衝突のキーワード 分子の2電子励起状態	穂坂綱一	...26
第23回原子衝突セミナーのお知らせ	行事委員会委員長	...27
2016年度原子衝突学会役員選挙の結果	選挙管理委員会	...27
2015年度 第8回運営委員会(文書持回)報告	庶務委員会委員長	...28
2016年度国際会議発表奨励賞募集要項	顕彰委員会委員長	...28
学会協賛学会会合のご案内 ■第32回化学反応討論会	広報渉外委員会	...30
原子衝突若手の会第36回秋の学校 開催報告	森健汰	...30
「しょうとつ」原稿募集	編集委員会事務局	...32
ユーザー名とパスワード		...32

多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開 第3回 重元素多価イオンプラズマと実験室サイズの極端紫外光源開発

大橋隼人^{1*}, 東口武史^{2**}

¹ 富山大学大学院理工学研究部 (工学) 〒 930-8555 富山県富山市五福 3190

² 宇都宮大学大学院工学研究科 〒 321-8585 栃木県宇都宮市陽東 7-1-2

*ohashi@eng.u-toyama.ac.jp

**higashi@cc.utsunomiya-u.ac.jp

平成 27 年 11 月 15 日原稿受付

シリーズ第3回の今回は多価イオン単体についての物理というよりも、幅広い範囲の価数の多価イオンを含むプラズマを「光源」として応用する分野の視点から、重元素多価イオンがどのような役割を担っているのかをプラズマ光源開発の現状を交えて紹介する。

1. はじめに

「光源」という言葉を見聞きしたとき、頭の中に何をイメージするだろうか。本誌の読者であればおそらく自分の研究に関連したものとしてレーザー、放射光、プラズマなどを思い浮かべるであろう。家族など非研究者には、もしかしたら「光源」という言葉自体に馴染みがなく、「照明」や「光っているもの」として尋ねてみれば、蛍光灯やLEDライト、太陽などをイメージされるのではなかろうか。何れの場合も物質の持つエネルギーを光という形に変えて放出されているもので、どのようなメカニズムで「光源」として発光しているかは多種多様である。残念ながら「任意の波長」を「任意の強度」で発光することのできる光源は存在せず、目的や用途に応じて光源を選択もしくは開発することで、各研究分野や産業界は発展してきた。本稿ではシリーズテーマに則し、多価イオンの性質が重要な役割を果たす「プラズマ光源」についてご紹介させていただく。

今や日常生活に大きな利便性をもたらしている携帯電話、スマートフォン、パソコンなどの電気製品がここまで高性能化・小型化した背景には、産業界における半導体リソグラフィ技術

の向上が大きな役割を果たしてきたからだと考えるだろう。集積回路技術の発展について論じた経験則であるムーアの法則 [1] によれば「集積回路上のトランジスタ数は 24 ヶ月ごとに 2 倍になる」と推測されており、1965 年発表当初の「18 ヶ月ごとに 2 倍」から 1975 年に修正が加えられたものの、今日まで概ねその通りに集積密度が向上し続けていることは驚くべきことである。中でも半導体リソグラフィ用光源の開発は重要な位置を占めている。なぜなら、フォトリソグラフィ技術において形成パターンの分解能は光源の波長に比例しており、光源の短波長化がパターンの微細化、すなわち回路の高集積化に直接繋がるからである。この半導体リソグラフィ光源開発において、古くは水銀ランプの g 線 (波長 436 nm) から KrF エキシマレーザー (波長 248 nm) など特定の原子・分子の遷移に伴う発光が利用されてきたが、近年、新たに重元素多価イオンからの特徴的な発光が着目されており、その集合体である重元素多価イオンプラズマが次世代半導体リソグラフィ光源候補として有力視されている。

次節以降、産業界の次世代半導体リソグラフィ光源開発について、その光源プラズマ解析にお

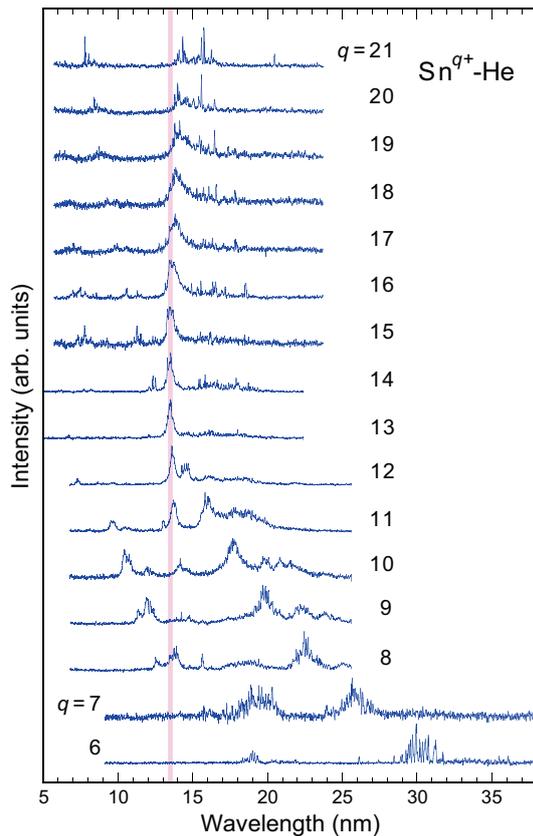


図 1: $\text{Sn}^{q+}\text{-He}$ 衝突 ($q = 7\text{-}21$) の電荷交換分光法による発光スペクトル。発光は主に反応後の $(q - 1)$ 価によるもので、ピンク線は 13.5 nm 帯を示している [5]。

ける多価イオン分光技術・装置や原子物理学が担う役割の重要性、また、その過程で見出された他分野への応用と展開について紹介する。

2. EUV 光源開発

現在の半導体フォトリソグラフィ技術は波長 193 nm の ArF エキシマレーザーが用いられるのが主流だが、次世代の光源として波長 13.5 nm、帯域幅 2% の極端紫外 (Extreme Ultra-Violet; EUV) 領域の光を用いる技術が開発中である。光源波長が 13.5 nm と定められているのは、光学系に用いる多層膜鏡が先に開発されており、その反射率が該当波長で極大値を持つためである。当初は光源候補として Li, Sn, Xe プラズマが挙げられていたが、Li プラズマでは Li^{2+} の $1s\text{-}2p$ 遷移のみが 13.5 nm の発光に寄与している一方、Sn および Xe プラズマでは重元素多価イオンに

おける状態数の多い準位間での遷移が狭い波長帯に数百数千の発光ラインが現れるため、重ね合わせによって発光強度が大きくなることから光源としてより高出力になることが期待される。後者の発光は物理的に分解できずに擬似的な連続スペクトルになることから、Unresolved Transition Array (UTA) と呼ばれている [2]。重元素プラズマは複数の価数の多価イオンで構成されているので、幾つもの価数にわたる多価イオンの UTA 発光が同一波長帯で起こるような条件があれば、プラズマ全体として高出力光源を実現できる可能性が高い。また、原子番号 $Z = 50$ の Sn 周辺の元素について最外殻が主量子数 $n = 4$ となる多価イオンのエネルギー状態を見てみると、例えば基底電子配置 $[\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^64d^3$ への外殻励起配置 $[\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^64d^24f$ からの $4d\text{-}4f$ 遷移と内殻励起配置 $[\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^54d^4$ からの $4p\text{-}4d$ 遷移はほぼ等しい遷移エネルギーとなり、両配置がパリティに関する同一の対称性をとるときに強い配置間相互作用がみられる [3, 4]。このような重元素多価イオンの励起状態は両励起配置の混合状態 ($[\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^64d^{N-1}4f^1 + [\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^54d^{N+1}4f^0$, $N = 1\text{-}9$ (整数)) となり、 $4d\text{-}4f$ 遷移の UTA は特異な構造を持つことが知られている。電荷交換分光法によって取得された多価 Sn および Xe イオンの価数分離発光スペクトル (図 1) [5] から各価数の発光波長領域や UTA の特性が実験的に明らかにされるなど様々な研究開発が行われてきており [6]、現在ではよりエネルギー変換効率の良いレーザー生成 Sn プラズマが主流となって EUV 光源技術開発が進められている。レーザーの周波数 ω_L 、電子の質量 m 、真空の誘電率 ϵ_0 、電気素量 e を用いてプラズマ臨界密度が $n_c = \epsilon_0 m \omega_L^2 / e^2$ で定義され、レーザー光はプラズマ中に形成される臨界密度面までしか侵入できない。Sn プラズマ自身の吸収が大きいため光学的に薄いプラズマを生成する必要があるが、レーザー波長が長いほどプラズマ臨界密度は低くなるので、波長 1.06 μm の Nd:YAG レーザーよりも長い波長 10.6 μm を用いる炭酸ガスレーザー生成プラズマのとき、臨

界密度が相対的に低くなり光学的厚みが薄くなることで、スペクトル純度が大きく向上することが示されている [7].

EUV 光源開発によってレーザー生成 Sn プラズマの物理の理解が進み、変換効率が 5% 近くになっていることを考えると [8], 他の特定波長領域でも UTA 発光が様々な価数で重なる条件のプラズマを生成することができれば, 重元素多価イオンプラズマは軟 X 線~EUV 領域における高出力光源になり得るのではないかと筆者らは考えてきた. 例えば, EUV リソグラフィの更に次世代を見越した Beyond EUV (BEUV) リソグラフィとして波長 $6.x$ nm (x は未定)[9], 軟 X 線顕微鏡として「水の窓」領域 (2.3–4.4 nm) とより長波長側の「炭素の窓」領域 [10] の光源となり得るのではないかと. では, どのようにして光源の波長を変化させることができるだろうか.

3. UTA ピーク波長の原子番号依存性 (擬似モーズリーの法則)

EUV 光源開発によって見出されたプラズマ光源は, 重元素多価イオンの主量子数 $n = 4$ 状態間の $4l-4l'$ 遷移 ($\Delta n = 0$, l, l' は方位量子数) である $4d-4f$ および $4p-4d$ 遷移による UTA 放射の重畳を利用したものであり, プラズマに用いる元素を変えればその遷移エネルギーが変わるので, UTA のピーク波長に原子番号依存性があることは容易に想像できる. 重元素多価イオンの UTA のピーク波長について検討した結果を図 2 に示す [11]. 原子番号 $Z = 49-92$ の各種元素について, Ru-, Rh-, Pd-および Ag-like イオンの $4l-4l'$ 遷移の各線強度スペクトルを Cowan コード [12] を用いて計算し, 重ね合わせたものである. 各遷移とも原子番号が大きくなることで短波長側にシフトしていることから, より重い元素をプラズマ源として用いることで, 光源の短波長化できることが窺える. 事実, EUV 光源開発で精力的に研究されていた $_{50}\text{Sn}$ および $_{54}\text{Xe}$ プラズマの重畳 UTA 放射ピー

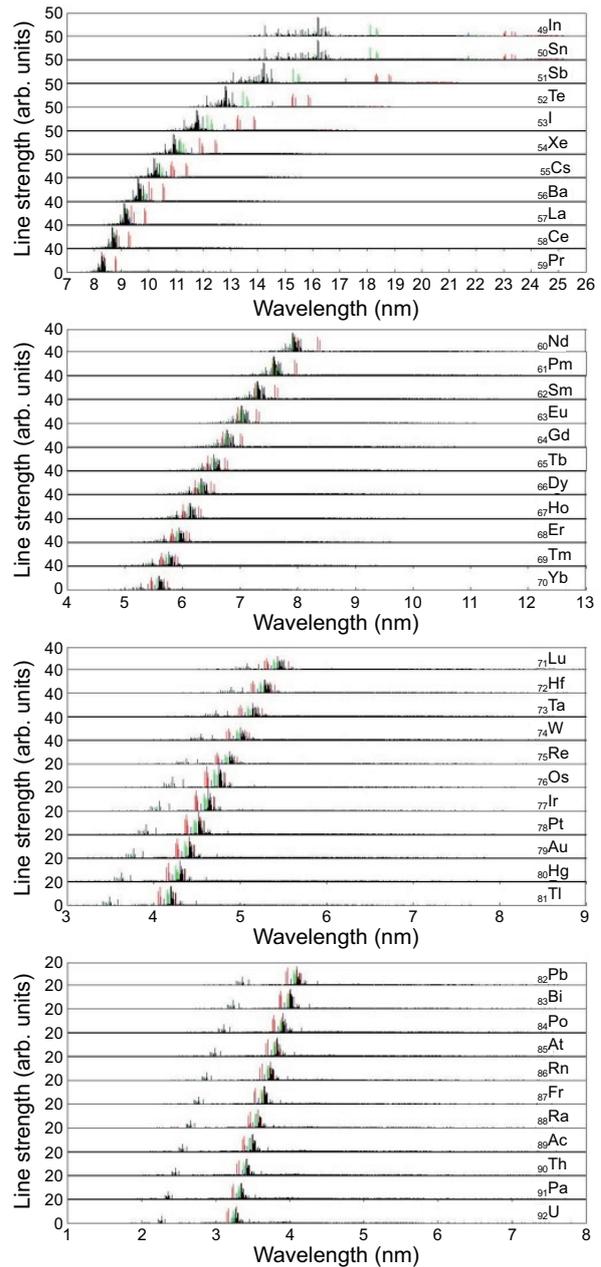


図 2: Cowan コードを用いて計算された $_{49}\text{In}-_{92}\text{U}$ の $4l-4l'$ 遷移放射スペクトル [11].

ク波長はそれぞれ 13.5 nm および 11 nm 付近であった [5, 13]. EUV 光源開発で利用されている $4d-4f$ 遷移および $4p-4d$ 遷移に着目してみると, 波長 $6.x$ nm の BEUV 光源には $_{64}\text{Gd}$ や $_{65}\text{Tb}$ が, 軟 X 線顕微鏡用光源では炭素の窓に $_{78}\text{Pt}$ や $_{79}\text{Au}$, 水の窓の 4 nm 付近では $_{82}\text{Pb}$ や $_{83}\text{Bi}$, 3 nm 付近では $_{92}\text{U}$ が適していると考えられる. 汎用性の高い実験室規模の軟 X 線光源を重元素 UTA プラズマ放射で実現すると, 短波長化の極限としては非放射性元素で最も重

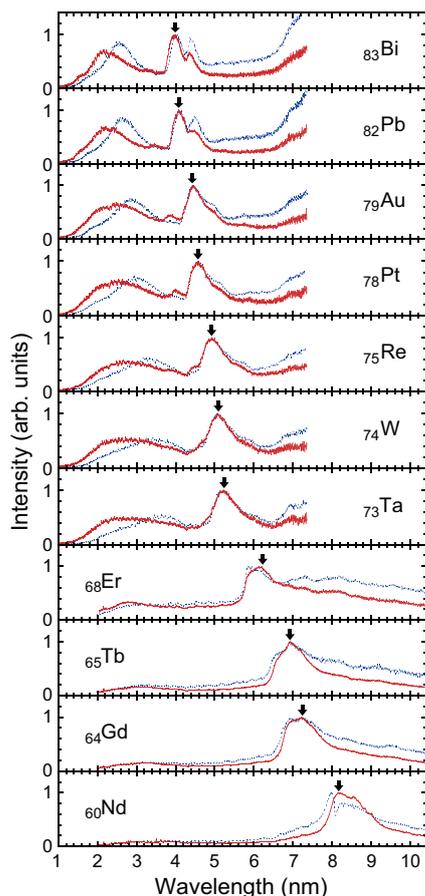


図 3: レーザー生成重元素プラズマからの発光スペクトル。赤線と青線はそれぞれパルス幅 150 ps および 10 ns の Nd:YAG レーザーによるもので、矢印は前者の UTA ピーク波長の位置を示している。(Reproduced with permission from [14]. Copyright 2014, AIP Publishing LLC.)

い ^{83}Bi になるであろう。実験によるレーザー生成重元素プラズマからの発光スペクトルの原子番号依存性を図 3 に示す [14]。高出力高効率化の最適なレーザー強度は各元素で異なるが、これらは $Z = 60-83$ の幾つかの元素について、パルス幅 150 ps と 10 ns の Nd:YAG レーザーを各々一定の強度 ($I_{150\text{ps}} = 2.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ および $I_{10\text{ns}} = 5.7 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$) で照射して生成されたプラズマからの発光である。理論計算で予測されていたように原子番号が増加するにつれ発光波長は短波長化し、両レーザーの依存性については、定性的には $4l-4l'$ 遷移の UTA ピーク波長はほぼ同じだが、より短波長側に現れる $4l-5l'$ 遷移による UTA 放射スペクトル構造に違

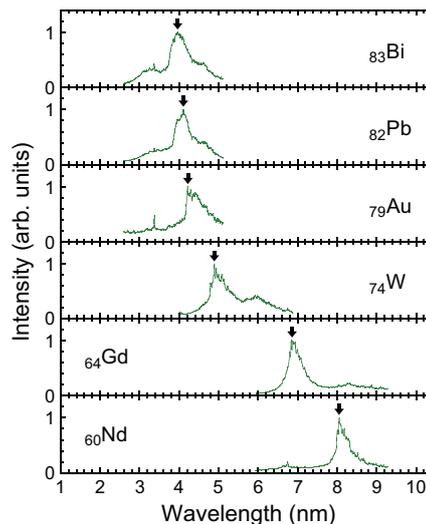


図 4: LHD による希薄プラズマから観測された発光スペクトル。矢印は UTA ピーク波長の位置を示している。(Reproduced with permission from [14]. Copyright 2014, AIP Publishing LLC.)

いが現れた。この原因については 4.1 節で言及する。一方、光学的に厚いレーザー生成プラズマと比較するために、核融合科学研究所の Large Helical Device (LHD)[15] を用いて測定された光学的に薄い放電生成プラズマによる UTA 放射スペクトルの原子番号依存性を図 4 に示す。ピーク波長は原子番号に対してレーザー生成プラズマと同様の振る舞いをしており、 $4l-4l'$ 遷移の UTA 放射ピーク波長については光学的厚みの影響が小さいようだ。

「遷移波長の原子番号依存性」を考える際に、参考になるのがモズリーの法則である [16]。特性 X 線の波長の逆数の平方根が、元素の原子核の電荷、すなわち原子番号の一次関数になるという法則で、特性 X 線の K_{α} 線の波長が重元素ほど短いことを意味する。 K_{α} 線以外の系列でも特性 X 線と原子番号の間には同様の関係がある。図 5 に $4l-4l'$ 遷移の UTA ピーク波長の原子番号依存性について、レーザー生成プラズマ、LHD プラズマおよび原子コード GRASP (General Purpose Relativistic Atomic Code)[17] による結果を示す。レーザー生成プラズマは生成から消滅の時間積分スペクトルであるのに対し、LHD は時間的に定常状態にあると考えられるプラズマから

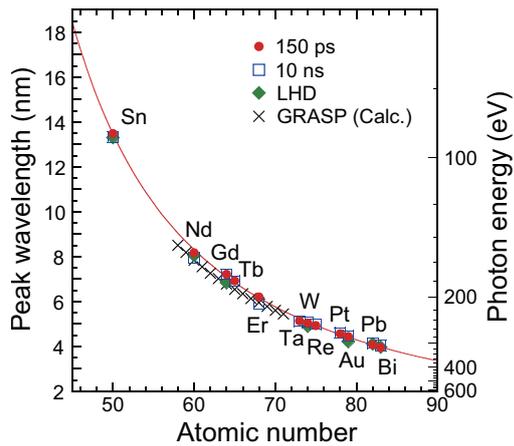


図 5: UTA ピーク波長の原子番号依存性. 赤丸と青四角はそれぞれピコ秒およびナノ秒レーザー生成プラズマ, 緑菱形は LHD プラズマ, クロスは原子コード GRASP により計算されたピーク波長, 実線は近似曲線である. (Reproduced with permission from [14]. Copyright 2014, AIP Publishing LLC.)

の発光スペクトルなので各々寄与する多価イオンの価数分布も異なるはずだが, UTA ピーク波長はほぼ同じ波長となった. また, GRASP 計算とは若干のずれがでているものの, いずれもほぼ 1 つの曲線に乗っている. パルス幅 150 ps のレーザー生成プラズマについての近似曲線は, 次式で表すことができる [14].

$$\lambda_{\text{UTA}} = \frac{a}{R_{\infty}}(Z - s)^{-b} \quad (1)$$

ここで係数は $a \approx 22 \pm 12$, $b \approx 1.5$, $s \approx 23$ で, R_{∞} はリュドベリ定数である. s は有効核遮蔽定数であり, $4d$ 電子に関するスレーター則 [18] によると $s = 36-39.2$ の範囲をとり本実験値とずれているが, UTA のピーク波長は主となる多価イオンの価数によっても少しずれるため, 式中の各係数は修正される余地が残されている. この (1) 式は $a = 4/3, b = 2, s = 1$ のときモーズリーの法則となることから, 疑似モーズリーの法則 (Quasi-Moseley's law) と呼ばれている. 経験則である疑似モーズリーの法則により, 波長 3.9–13.5 nm の範囲においてどの元素がどの波長の UTA 光源に適しているかを判断することができるようになった.

4. UTA のレーザー強度およびレーザー波長依存性

前節ではプラズマに用いる元素を変えることで UTA 放射ピーク波長を選択できることが示されたが, 本節では UTA のレーザー強度およびレーザー波長依存性について ${}_{64}\text{Gd}$ を例に挙げて説明する. EUV リソグラフィ光源開発が波長 13.5 nm で反射率極大値をとる Mo/Si 多層膜鏡に合わせたのと同様に, BEUV リソグラフィでは炭化ホウ素系の多層膜鏡のピーク反射率が 6.x nm にあるためにそれに合わせた光源開発が進められており, Gd プラズマはその光源候補である. 波長が “x” と未定にされているのは, 多層膜鏡が幾つか提案されていることや, 多層膜鏡の層厚の制御によりピーク波長がずれるなど, 多層膜鏡もまだ最適化されていないからである [19, 20]. したがって, 現段階では光源開発側と多層膜鏡側とで歩み寄りが可能な状況にあるが, BEUV 光源開発は EUV 光源が実現してから着手すべきという動きもあり, ここ数年は BEUV 光源とその周辺技術に関する研究はペースダウンを余儀なくされている. しかしながら, NIST のデータベースを見て分かるように ${}_{54}\text{Xe}$ より重い元素についての多価イオンの原子データはその多くが不足しているのが現状であり [21], 軟 X 線～EUV 領域の光源応用に必要な重元素多価イオンと UTA のデータベースを構築することは重要である. また, EUV 光源開発で培った光源技術の知見が, プラズマ構成粒子が多価 Sn イオンから多価 Gd イオンに変わることによってどのように異なるか, あるいは同じようになるのかを比較することも興味深いことである. 多価 Sn イオンプラズマ EUV 光源の知見を生かすと, UTA 放射を高出力・高効率化するためには電子密度が 10^{19} cm^{-3} 程度の低密度で, 電子温度が 100 eV 程度のプラズマであればよいことが予測される. 自己吸収を抑えるために低密度, すなわち光学的厚さが薄いことが求められるが, 実際に光学的厚さが測定されてい

るわけではないので、これは今後の課題である。波長 $6.x$ nm のプラズマ光源となるためには、多価 Gd イオンでは 18 価程度が必要であり、衝突放射 (Collisional Radiative: CR) モデルによればその最適電子温度は約 100 eV であった。一方、レーザー生成プラズマにおける電子温度は照射レーザー強度に依存するので、レーザー強度が異なれば価数分布の違いにより UTA 構造が変化すると考えられる。

4.1 UTA のレーザー強度依存性

パルス幅 150 ps の Nd:YAG レーザーを用いたレーザー生成 Gd プラズマからの UTA 発光スペクトルのレーザー強度依存性を図 6 に示す。UTA 構造に劇的な変化はないものの、UTA ピーク波長のレーザー強度依存性を見てみると、強度が増加するにつれてピーク波長が長波長側へシフトしていることが分かる。これはレーザー強度が増加したことでプラズマの電子温度が高くなり、プラズマ中の多価イオンの価数分布がより高価数側へとシフトしたこと起因していると考えられるが、レーザー生成プラズマの発

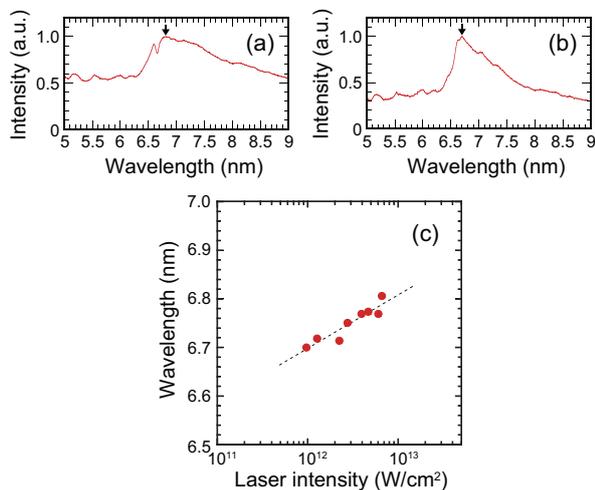


図 6: Nd:YAG レーザー生成多価 Gd イオンプラズマからの UTA 発光スペクトルのレーザー強度依存性。レーザー強度はそれぞれ (a) 6.6×10^{12} , (b) 9.7×10^{11} W/cm². (c) UTA ピーク波長のレーザー強度依存性。点線は近似直線に対応している。(Reproduced with permission from [25]. Copyright 2014, AIP Publishing LLC.)

光スペクトルはプラズマ生成から消滅までの時間積分スペクトルなので、中性 Gd から最高電離価数まで全ての Gd イオンからの発光を観測しているものであり、これ以上の実験的な解析は行うことができない。そこで、同等価数の多価 Gd イオンを生成することができ、価数制御されたプラズマからの発光スペクトル測定が可能な電子ビームイオントラップ (Electron Beam Ion Trap: EBIT)[22, 23] を用いて、レーザー生成 Gd プラズマの UTA を評価した。EBIT は電子衝突による逐次電離により多価イオンを生成し、電子ビームエネルギーを制御することによってプラズマ中のイオンの最高電離価数をコントロールすることが可能な多価イオン源である。各価数の電離エネルギーをまたぐように電子ビームエネルギーを変化させて発光スペクトル測定を行うことで、新たに生成可能となった価数の発光ラインを観測し価数同定することができる。図 7 に EBIT を用いた多価 Gd イオンからの発光スペクトル測定結果と Flexible Atomic Code (FAC)[24] による各最高価数イオンの $4l-4l'$ 遷移強度の比較を示す。FAC による $4d-4f$ 遷移の計算は波長がおよそ 0.2–0.3 nm ずれてしまうので絶対値の議論はできないが、波長 6.8 nm 領

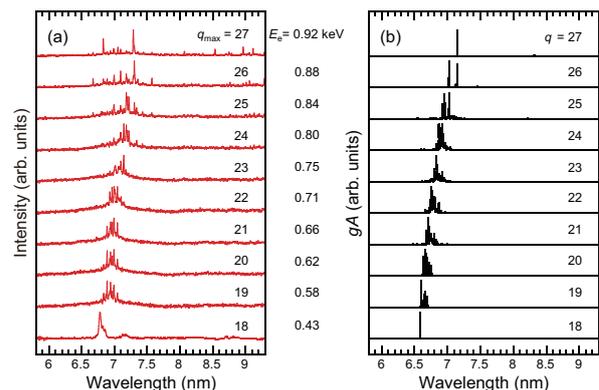


図 7: (a) 価数制御 EBIT プラズマからの多価 Gd イオン発光スペクトルと (b) FAC を用いて価数 q_{\max} について計算された gA 値。 E_e は電子ビームエネルギー、 q_{\max} は E_e で生成できるイオンの最高価数、 g は統計的重み、 A は自然放出係数である。(Reproduced with permission from [25]. Copyright 2014, AIP Publishing LLC.)

域の UTA 放射には Gd^{18+} が寄与していることに加えて、高価数になるほど UTA ピーク波長が長波長側にシフトしていくことが実証され、レーザー生成 Gd プラズマにおける UTA ピーク波長のレーザー強度依存性の解釈が裏付けられた [25]. 一般的に多価イオンの同系列の遷移は価数が高くなるにつれ短波長化するが、 $4d-4f$ 遷移では前述の $[Ar]3d^{10}4s^24p^64d^{N-1}4f^1$ 状態と $[Ar]3d^{10}4s^24p^54d^{N+1}4f^0$ 状態の強い配置混合により、Gd では高価数になるほど $4d$ と $4f$ のエネルギー差が小さくなり、UTA ピークを形成する該当遷移波長は長波長化する。

4.2 UTA のレーザー波長依存性

波長 13.5 nm の EUV 光源では Sn プラズマのオパシティ (プラズマの不透明性) が大きいいため、イオン密度を低下させて光学的に薄いプラズマを生成する必要がある。電子密度が 10^{19} cm^{-3} 程度で電子温度が約 30 eV のプラズマを生成して高効率の EUV 光源を実現させるためには、レーザー波長 10.6 μm の炭酸ガスレーザー生成プラズマ方式が最終的な解と理解されている [7]. 他の重元素プラズマ光源でも同様に高効率化のためには光学的に薄いプラズマの生成が必要があると考えられ、臨界密度が 10^{19} cm^{-3} 程度になる炭酸ガスレーザーが適していると予測される。そこで、Gd プラズマによる波長 $6.x \text{ nm}$ 放射について、炭酸ガスレーザー生成プラズマ実験を行った (図 8). 最適実験条件として波長 13.5 nm の Sn プラズマ EUV 光源と異なる点は、波長 $6.x \text{ nm}$ の Gd プラズマ BEUV 光源では最適電子温度が約 100 eV なので、炭酸ガスレーザー強度として $2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 程度と EUV 光源に求められるレーザー強度よりも一桁大きくなることである [26]. UTA 構造は波長 6.76 nm に鋭いピークを有しており、幅の大きい UTA ピークが観測された Nd:YAG レーザーを用いた場合 (図 6(a)(b)) に比べてスペクトル純度が大幅に改善でき、エネルギー変換効率も増加した [27]. 中心波長 $6.x \text{ nm}$ 、帯域幅 0.6%、立体角 $2\pi \text{ sr}$ としたときの Nd:YAG レーザー生成プラ

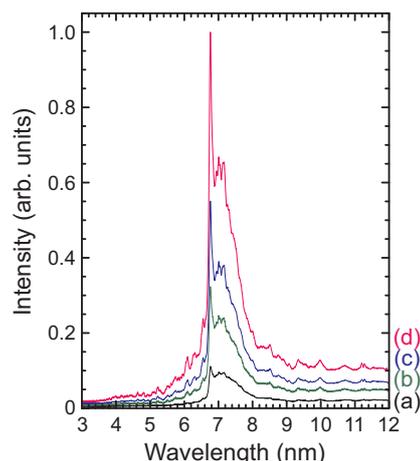


図 8: 炭酸ガスレーザー生成 Gd プラズマからの UTA 発光スペクトル. レーザー強度はそれぞれ (a) 5.5×10^{10} , (b) 8×10^{10} , (c) 9.8×10^{10} , (d) $1.3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ [27].

ズマでの変換効率は約 0.4% なのに対し、炭酸ガスレーザー生成プラズマでは約 0.7% であった。炭酸ガスレーザーは Nd:YAG レーザーよりも臨界密度が低く光学的に薄いプラズマを生成することができるため、プラズマの高密度領域からの共鳴線のサテライト線が抑制され、特徴的なスペクトルになったと考えられる。実際に LHD によって希薄なプラズマを生成した場合でも、光学的に薄いため、Nd:YAG レーザー生成プラズマよりも帯域幅の狭い発光スペクトルが観測されている [28]. 実験に用いた炭酸ガスレーザーの強度は最大で $1.3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ であり、最適レーザー強度に達していないことから、更なる高効率化も期待できる。

以上の結果は、重元素多価イオンプラズマによる UTA 構造を光学的厚さにより制御することができ、エネルギー変換効率を増加させることが可能であることを示している。中赤外レーザーやピコ秒程度の短パルスレーザーを用いて光学的に薄いプラズマを生成することによって、高効率光源を実現できることになる。最近では、一実験室では生成が難しい一次元 (球対称) プラズマを生成することによって、膨張損失を低減することで高効率化できることも報告されている [29]. また、波長 6.7 nm 放射の空間分布も評価されており、炭酸ガスレーザー生成プラズマの

臨界密度 (10^{19} cm^{-3}) 程度で最大になることも明らかになった [30]. これは炭酸ガスレーザーがレーザー生成プラズマ光源の駆動レーザーとして適していることを示している.

5. 重元素による軟 X 線顕微鏡用光源

最後に、擬似モーズリーの法則に基づいた重元素プラズマ光源が、どのような波長でどのような分野で応用される可能性があるかの実例として、軟 X 線顕微鏡用の光源開発について紹介する. 酸素と炭素の K 吸収端間の波長領域 2.3–4.4 nm は「水の窓」と呼ばれており、この波長帯の光はほとんど水に吸収されず透過し、生体を構成する炭素に強く吸収される性質を持っている [31]. この波長領域の軟 X 線を使うと、水分中で生きた細胞の内部構造をナノメートルレベルの分解能で観察することができるようになることから、軟 X 線顕微鏡を目指した研究が進められている. 生命科学における DNA やタンパク質の生命活動の発現がナノスケールであることから、水の窓軟 X 線顕微鏡は非常に魅力的なテーマであり、炭素の K 吸収端より長波長側の「炭素の窓」と呼ばれている領域での観察も検討されている [32]. 水の窓軟 X 線を用いた生体細胞のシングルショット撮影は小型の実験室規模では未だに実現できておらず、現在は 1 パルスあたりのエネルギーが小さいために多重ショットによる試料撮影で、所要時間も約 1 分程度となるため試料を氷結固定化するなどの工夫を施さなければならない. 水の窓軟 X 線顕微鏡用光源には、単一ショットでフラッシュ撮影できる明るさと照射時間を短くすることが求められている. 著者らは本稿で取り上げている重元素多価イオンプラズマによる UTA 光源が実験室規模の光源になり得ると考えており、光源開発に留まらず、図 9 に示すように軟 X 線顕微鏡と重元素レーザー生成プラズマ光源の接続試験を行っている. この進展についてはまだ実験的な検証を行っている段階なので別の機会に譲るとして、ここでは水の窓軟 X 線顕微鏡の UTA

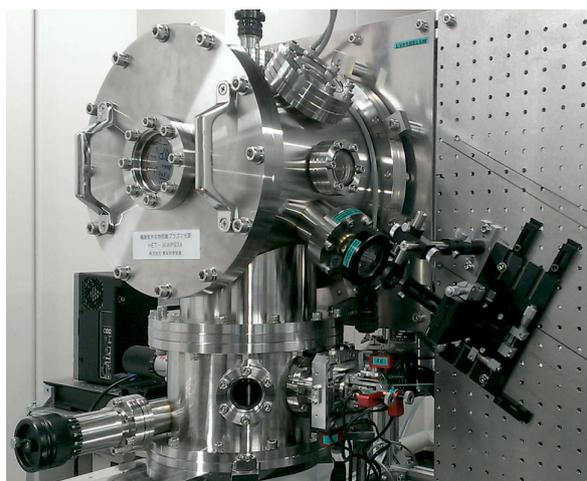


図 9: 宇都宮大学で開発中の水の窓軟 X 線顕微鏡の外観.

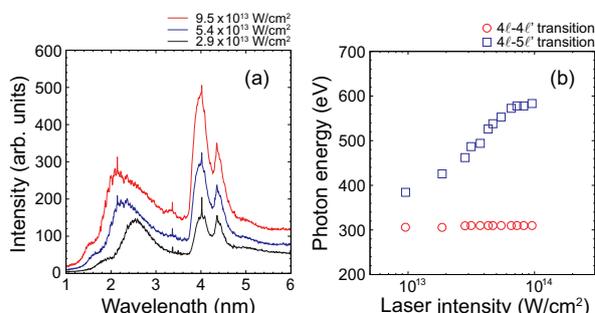


図 10: レーザー生成 Bi プラズマからの (a) UTA 発光スペクトルと (b) $4l-4l'$ 遷移および $4l-5l'$ 遷移の各 UTA ピーク波長 (光子エネルギー) のレーザー強度依存性. (Reproduced with permission from [33]. Copyright 2012, AIP Publishing LLC.)

光源候補の課題と放射特性について触れるに留めることにする.

水の窓における重元素レーザー生成プラズマ光源の元素としては擬似モーズリーの法則から ^{82}Pb や ^{83}Bi が適していると考えられるが、これまでの光源高効率化の実験結果を踏まえると、更に高強度の炭酸ガスレーザーが必要になる. これについては筆者らが独自にレーザーの開発を進めているが、まだ公表できる状況にない. 炭酸ガスレーザーを用いた本実験はまだできないが、先行して光源と軟 X 線顕微鏡の接続試験を行うため、Nd:YAG レーザー生成 Bi プラズマの UTA 放射特性について調査した. 図 10(a) に Bi プラズマからの発光スペクトルのレーザー

強度依存性を示す。4*l*-4*l'* 遷移に対応する波長 4 nm 付近の発光はレーザー強度の増加とともに発光強度が増加するが、波長および帯域幅はほとんど変化しない。一方、4*l*-5*l'* 遷移に対応する 2.0-2.5 nm 付近の発光はレーザー強度の増加とともに短波長側へ偏移し、発光強度も増加した。これらはレーザー強度が増加することでプラズマ内のイオン価数分布がより高価数側となり、前者は前述の通りほぼ同波長で発光するのに対し、後者はより短波長で発光する寄与が大きくなることによるものである [14]。図 10(b) には 4*l*-4*l'* 遷移および 4*l*-5*l'* 遷移それぞれの UTA ピーク波長についてのレーザー強度依存性が示されている。図から分かるように、ピーク波長がほとんど変わらない 4 nm 付近の 4*l*-4*l'* 遷移 UTA 放射を用いれば、より高い変換効率が望め、更には高出力光源として光学系を設計・製作しやすいことを意味している [33]。

6. おわりに

レーザー生成重元素多価イオンプラズマによる UTA 光源の有効性について、幾つかの実験を紹介した。UTA 放射はある特定の波長域における共鳴線の集合体であるが故に高出力になり、プラズマの状態をコントロールすることで効率化を図ることができる。また、疑似モーザーの法則から重元素多価イオンプラズマが様々な波長において光源となり得る可能性を、具体例として BEUV リソグラフィ光源や水の窓軟 X 線顕微鏡用光源への適用をあげて述べた。これまで 4*l*-4*l'* 遷移 UTA 放射が光源として利用できるとして紹介したが、最近は原子番号 $Z = 30-40$ 付近の元素による多価イオンプラズマも、3*l*-4*l'* 遷移 UTA 放射を用いた光源としての可能性があると言われている [34, 35]。重元素多価イオンプラズマの光源としての汎用性の高さがうかがえるが、重元素多価イオンの原子データベースは過去に重点的な研究対象になった元素を除き、不足しているのが現状である [21]。実験による直接測定のみならず、重元

素に対してもよく実験値を再現する原子モデルの構築や、シミュレーションによる輻射流体数値解析も進めていく必要がある。また、今後更にエネルギー変換効率を向上させるためには、プラズマの加熱効率を向上させつつ光学的に薄いプラズマをいかに生成するかが重要である。

著者らの現在の研究は、水の窓軟 X 線顕微鏡装置にかかる駆動するレーザー装置、UTA 光源、顕微鏡に至る一連の装置を手作りし、小型装置で細胞観察に至るまで到達したいということに尽きる。今後は、光源から放射された軟 X 線をトロイダル鏡や多層膜鏡の捕集鏡で集光して生物サンプルに照射することになるので、鏡の反射率と帯域幅が問題になるであろう。また、これまでの光源開発では特定波長帯への変換効率や輝度に注目しており、生物サンプルの透過・吸収率特性を考慮した研究は少ないのが現状である。大型研究施設で行われている生物サンプルの撮影実験ではこれらの波長依存性について報告がされ始めており、対象サンプルによって最適な波長帯はどこかなど、これから小型軟 X 線顕微鏡でフラッシュ撮影を実現させるために、そしてより高感度化するためには、光源のみならず生物サンプルについて多くの知見を集めたデータベースの構築が必要になると思われる。小型軟 X 線顕微鏡でのフラッシュ撮影が実現すれば、その実験の行いやすさから生命科学分野において大きなブレイクスルーをもたらすことになるであろう。本誌の読者で軟 X 線生体顕微鏡に興味を持たれた方、多価イオンの原子データ測定やモデリングを専門とされている方、また、UTA 光源自体に興味を持たれた方は是非気軽にお声掛けいただき、原子衝突という基礎物理分野から応用分野への大きな貢献話に花を咲かせたい。

最後に、本稿で取り上げた実験結果は、研究室の学生や多くの共同研究者の協力により得られてきたものです。特に、東北大学多元物質科学研究所の江島丈雄氏の援助のもと、軟 X 線顕微鏡の研究を進められています。また、科学研究費補助金、キャノン財団、東電記念財団の助

成を受けて行われました。また、本研究の一部は、核融合科学研究所共同研究、宇都宮大学特別経費「バイオイメージング技術の総合的推進事業」、個性化プロジェクト、オプティクス教育研究センター公募研究、ギガフォトン(株)の助成もを受けて行われたものです。この場を借りて、皆様に感謝申し上げます。

参考文献

- [1] G. E. Moore, SPIE, **2438**, (1995) [doi:10.1117/12.210341].
- [2] G. O'Sullivan and P. K. Carroll, J. Opt. Soc. Am., **71**, 227 (1981).
- [3] F. Koike and S. Fritzsche, Radiat. Phys. Chem., **76**, 404 (2007).
- [4] G. O'Sullivan and R. Faulkner, Opt. Eng., **33**, 3978 (1994).
- [5] H. Ohashi, S. Suda, H. Tanuma, S. Fujioka, H. Nishimura, A. Sasaki and K. Nishihara, 'EUV emission spectra in collisions of multiply charged Sn ions with He and Xe', J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **43**, 065204, 3 March (2010).
- [6] K. Nishihara *et al.*, Phys. Plasmas, **15**, 056708 (2008).
- [7] H. Tanaka *et al.*, Appl. Phys. Lett., **87**, 041503 (2005).
- [8] 東口武史 他, レーザー研究, **42**, 14 (2014).
- [9] H. Meiling *et al.*, Proc. SPIE, **8322**, 83221G (2012).
- [10] I. A. Artyukov *et al.*, Quantum Electronics, **34**, 691 (2004).
- [11] T. Higashiguchi, T. Otsuka, N. Yugami, W. Jiang, A. Endo, P. Dunne, B. Li and G. O'Sullivan, 'Shorter-wavelength extreme-UV sources below 10 nm', 7 October, SPIE Newsroom (2011) [doi:10.1117/2.1201109.003765].
- [12] R. D. Cowan, 'The Theory of Atomic Structure and Spectra', (University of California Press, Berkeley, CA) 1981.
- [13] H. Tanuma *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, **235**, 331 (2005).
- [14] H. Ohashi *et al.*, Appl. Phys. Lett., **104**, 234107 (2014); Appl. Phys. Lett., **106**, 169903 (2015).
- [15] C. Suzuki *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **43**, 074027 (2010).
- [16] H. G. J. Moseley, 'The High Frequency Spectra of the Elements', (Philosophical Magazine) 1913, p1024.
- [17] P. Jönsson *et al.*, Comput. Phys. Commun., **177**, 597 (2007).
- [18] J. C. Slater, Phys. Rev., **36**, 57 (1930).
- [19] Y. Platonov *et al.*, Proc. 2011 International Workshop on EUV Lithography (EUV Litho Inc., Maui, Hawaii, 2011).
- [20] E. Louis *et al.*, Proc. International Workshop on EUV and Soft X-ray Sources (EUV Litho Inc., Dublin, Ireland, 2011).
- [21] http://physics.nist.gov/cgi-bin/ASD/lines_pt.pl
- [22] H. Watanabe *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., **66**, 3795 (1997).
- [23] N. Nakamura *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 063104 (2008).
- [24] M. F. Gu, Astrophys. J., **582**, 1241 (2003).
- [25] H. Ohashi *et al.*, J. Appl. Phys., **115**, 033302 (2014).
- [26] B. Li *et al.*, Appl. Phys. Lett., **99**, 231502 (2011).
- [27] T. Higashiguchi, B. Li, Y. Suzuki, M. Kawasaki, H. Ohashi, S. Torii, D. Nakamura, A. Takahashi, T. Okada, W. Jiang, T. Miura, A. Endo, P. Dunne, G. O'Sullivan and T. Makimura, 'Characteristics of extreme ultraviolet emission from mid-infrared laser-produced rare-earth Gd plasmas', Opt. Express, **21**, 31837, 16 December (2013).
- [28] C. Suzuki *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **45**, 135002 (2012).
- [29] K. Yoshida *et al.*, Appl. Phys. Express, **7**, 086202 (2014).
- [30] K. Yoshida *et al.*, Appl. Phys. Lett., **106**, 121109 (2015).
- [31] P. A. C. Takman *et al.*, J. Microsc., **226**, 175 (2007).
- [32] I. A. Artyukov *et al.*, Micron, **41**, 722 (2007).
- [33] T. Higashiguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett., **100**, 014103 (2012).
- [34] B. Li *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **45**, 245004 (2012).
- [35] B. Li *et al.*, Appl. Phys. Lett., **102**, 041117 (2013).

反水素原子ビームの研究

永田祐吾^{1,2}

¹ 東京農工大学工学部物理システム工学科 〒184-8588 東京都小金井市中町 2-24-16

² 理化学研究所原子物理特別研究ユニット 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

ynagata@cc.tuat.ac.jp

平成 27 年 9 月 15 日原稿受付

基底状態の反水素原子の超微細構造周波数測定実験に向けた、反水素原子ビームの開発が進んでいる。ASACUSA における反水素原子ビームの生成原理、2012 年に成功した反水素ビーム生成実験を中心に解説する。

1. 研究の目的

反水素原子とは、陽子の反粒子の反陽子 1 個と、電子の反粒子の陽電子 1 個で構成される水素原子に対する反物質 (反原子) である。反水素原子を研究する理由の一つに CPT 対称性の検証がある。素粒子物理学における標準模型である局所的場の量子論では、CPT 対称性が保存されることが知られている。この枠組みでは、物質と反物質は完全に対称であり、例えば反水素原子の分光学的性質は水素原子のものと全く同一となる。一方で、超弦理論や超重力理論などの他の理論では CPT 対称性は必ずしも成り立つ必要がないと考えられており、さらにニュートリノ振動の発見によって、標準模型に修正が必要なことも明らかになっている。最近、反水素原子の 1S-2S の遷移周波数や超微細構造周波数は CPT 対称性の破れや Lorentz 不変性の破れに敏感である可能性が理論的に指摘されており [1, 2]、反水素を用いた研究は注目を集めている。

最初の反水素原子の合成は、1995 年、スイスにある CERN 研究所の低速反陽子施設 LEAR (Low Energy Antiproton Ring) において確認された。1.9 GeV/c の反陽子を Xe 標的に照射し、対生成で発生した陽電子を捕獲した反陽子、つまり反水素原子が 11 個確認されている [3]。こ

れらの反水素原子は高速で運動しているため、上記のような反水素原子の基礎物理実験には適していない。これを可能にする低温 (低運動エネルギー) の反水素原子の大量生成は 2002 年、同じく CERN 研究所において達成された [4, 5]。現在、CERN 研究所の反陽子減速器 AD (Antiproton Decelerator) では、複数の国際研究グループが反水素原子を用いた CPT 対称性の検証実験 [6, 7, 8] や、反水素原子の重力加速度測定実験 [9, 10] に向けて進んでいる。

私が所属する ASACUSA 国際共同実験グループは、基底状態の反水素原子ビームを用いて反水素原子のマイクロ波分光をすることで超微細構造周波数を高精度測定し、水素原子の値と詳細に比較することで、CPT 対称性の検証実験をすることを目的として進めている。図 1 は反水素原子分光実験の概略図である。装置はカスプトラップ、マイクロ波共振器、六極磁石と反水素ビーム検出器で構成される。カスプトラップはカスプ磁石 (超伝導アンチヘルムホルツコイル) と多重リング電極 (Multiring electrodes: MRE) で構成された反水素合成装置である (4.2 節参照)。

反水素原子はカスプトラップ内で反陽子と陽電子を混合することで合成される。その後、反水素原子はカスプ磁場を受けながら、ビームとして

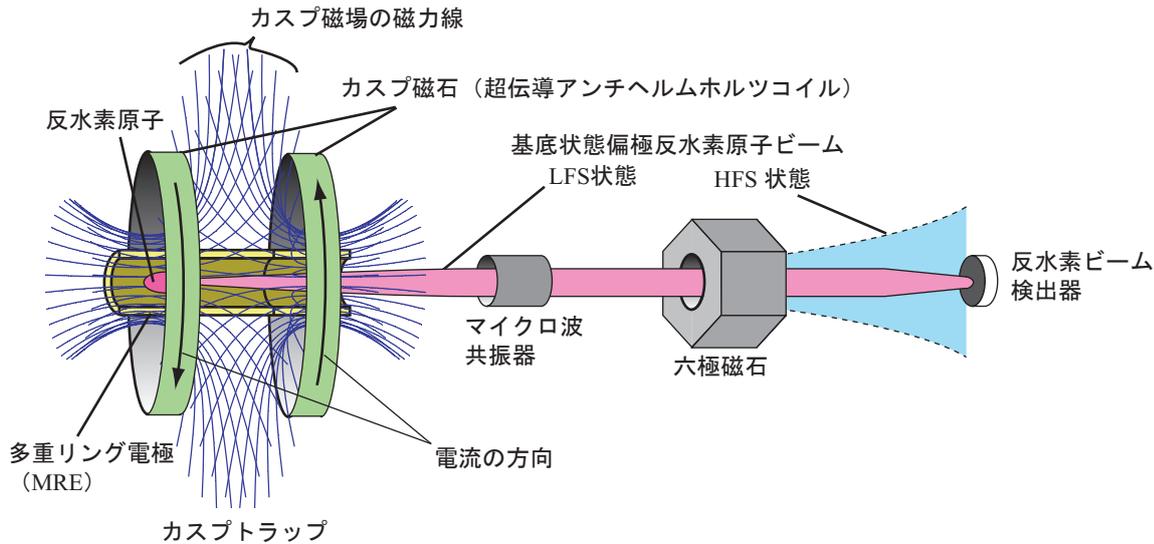


図 1: マイクロ波分光実験の概念図

引き出される。反水素原子は磁場に対する磁気モーメントの向きに従って Low Field Seeking (LFS) 状態と High Field Seeking (HFS) 状態に分類される(次節参照)。このとき反水素原子のビームとして収束される成分は LFS 状態に偏極することが軌道計算から分かっている [11]。LFS 偏極ビームはマイクロ波共振器を通り、六極磁石で収束され、反水素ビーム検出器で検出される。ここで、共振器のマイクロ波周波数が超微細構造周波数に一致するとき、LFS 反水素原子はスピン反転によって HFS 状態に遷移し、六極磁石で発散させられ、検出器には到達しない。よって反水素原子の到達数を周波数の関数として測定することで、超微細構造周波数を高精度で決定することができる。ASACUSA では 10^{-7} の精度で超微細構造を決定することを目指している [12, 13]。また、この方式では実験結果のみで CPT 対称性の検証、つまり反水素原子と水素原子の詳細な比較が可能であり、理論に依存しないのも利点である。

この実験で特に重要な開発項目は、反水素原子ビームの生成である。以下の節では、ASACUSA における偏極反水素原子ビームの生成原理、予想される特性、ビーム生成実験の結果、最近の装置開発について述べる。

2. 偏極反水素原子ビームの生成原理

カスプトラップを構成するカスプ磁石が生成する磁場 B はカスプ磁場と呼ばれている。両コイル間の中心では、磁場が互いに打ち消しあい、 $B = 0$ となる。中心付近の磁場は、中心からの距離に比例して磁場強度が強くなるような勾配を持ち、四重極磁場として知られている。

図 2 は基底状態の反水素原子のエネルギー準位の磁場依存性を表している。分光実験では、 $B = 0$ での 2 つの準位 ($F = 0$ と $F = 1$) の超微細構造周波数(約 1.4 GHz)の測定を行う。磁場中では縮退が解け、4 つの準位に分裂する。

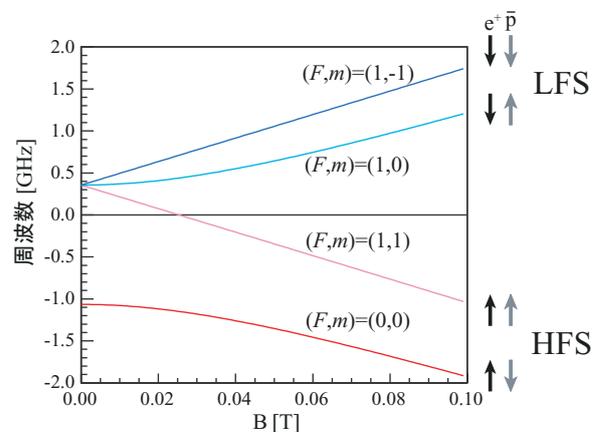


図 2: 1S 反水素原子のエネルギー準位の磁場依存性

反水素原子は電氣的に中性であるが、磁気モーメント μ を持つため、磁場勾配があると力 F を受ける。力はエネルギーの勾配の逆符号で表されるため、図 2 の中で、磁場の増加に対しエネルギー (周波数 \times プランク定数) が上昇する反水素原子は磁場の弱い方向に力を受け、Low Field Seeking (LFS) 状態にあると呼ばれている。逆に下降する成分は磁場の強い方向に力を受けるため High Field Seeking (HFS) 状態にある。式から考えると、磁場との相互作用エネルギー $\phi = -\mu \cdot B$ から、反水素原子が磁場から受ける力は、 $F = -\nabla\phi = \nabla(\mu \cdot B)$ と表される。 μ の B 方向成分 μ を、図 2 中のエネルギーの B による微分と考えると (つまりグラフの傾き)、 μ はカusp磁場のような非一様磁場中では一定とは限らない。しかし基底状態の場合、強磁場中 (カusp磁石の軸上最大磁場は 2.7 T) では一定と考えてよいので、 $F = \mu\nabla|B|$ となる。 μ_0 をボーア磁子とすると、 $\mu = -\mu_0$ の場合 (μ と B が反平行) は LFS, $\mu = \mu_0$ の場合 (μ と B が平行) は HFS である。

反水素原子が上記のような力を受けて運動をする場合の軌道計算結果を図 3 に示す。(a) は軸上のカusp磁場を表している。(b) と (c) はそれぞれ LFS と HFS 状態にある基底状態反水素原子の軌道である。初期運動エネルギーは 10 K の単色エネルギーで -0.14 m の位置 (図中の白点、反水素原子合成場所を想定) より等方射出している。ここで運動エネルギーは温度 K を単位としており、運動エネルギーを Boltzmann 定数

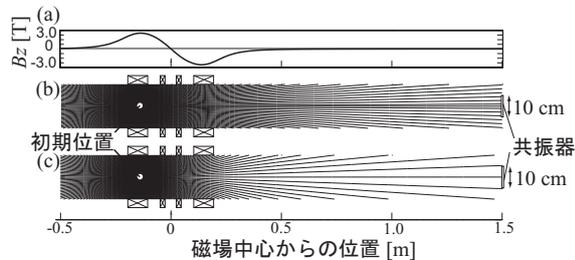


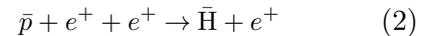
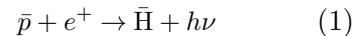
図 3: (a) 軸上カusp磁場, (b) LFS 反水素原子の軌道計算結果, (c) HFS 反水素原子の軌道計算結果 [14].

で割ったものとして定義した。LFS と HFS の軌道の様子を見ると、1.5 m の位置にある共振器入口 (直径 100 mm) に到達する反水素原子は LFS 状態のものが明らかに多い。従って、カusp磁場は LFS 原子のみを自動的に選別し、偏極ビームを生成することが分かる。

3. 反水素ビームの予想される性質

3.1 高励起反水素原子の非一様静磁場中での自動冷却

冷たい反水素原子合成の主要な物理過程として、



が知られている。式 (1) は放射性再結合である。反応率は陽電子の密度 ρ と温度 T に対して $\rho T^{-1/2}$ に比例する。一方、式 (2) は三体再結合過程である。2 個の陽電子のうちの 1 個がエネルギーを持ち去り、もう 1 個の陽電子が反陽子に束縛される。実験での反陽子の密度は低いいため、2 個の反陽子と 1 個の陽電子による三対再結合過程は考えなくても良い。式 (2) の反応率は $\rho^2 T^{-9/2}$ に比例し [15]、放射性再結合に比べて、密度と温度に強く依存する。この過程は AD で行われている低温の陽電子プラズマと反陽子の混合による反水素原子合成の際の主要な過程になっていると考えられている。

三体再結合過程では、生成した反水素原子の多くが高励起状態にあると考えられる。磁場中での高励起反水素原子の力学的エネルギー E は次のように表される。

$$E = K + m\mu_0 B \quad (3)$$

ここで、 K は運動エネルギー、 m は磁気量子数である。もし脱励起により磁気量子数が 1 下がるならば、 E は、

$$E = K + (m-1)\mu_0 B \quad (4)$$

となる。つまり、 E が $\mu_0 B$ だけ減少することになる。光子放出による反跳が十分小さいと考えられるエネルギー領域であれば、反水素原子が冷却されたことになる [16]。この理論を用いて、

4 T のカスプ型の磁気トラップ中に捕獲された高励起反水素原子が、どのように脱励起しながら冷却されていくかを計算すると、初期条件が主量子数 $n = 44$, 磁気量子数 $m = 43$, 15 K の Maxwell 速度分布の反水素原子が、脱励起後の基底状態では 0.4 K まで冷却されることが分かった。

これを反水素原子ビームに適用すると、高励起状態にある反水素原子が脱励起を伴って、冷却しながら流れ出てくることが結論された [17].

3.2 カスプ磁場の磁気光学的性質

カスプ磁場強度 $|\mathbf{B}|$ は、

$$|\mathbf{B}| \propto \sqrt{r^2 + 4z^2} \quad (5)$$

の位置依存性がある。ここで、 z と r はそれぞれ磁場中心 $B = 0$ からの軸方向位置、径方向位置を表し、 $|\mathbf{B}|$ は磁場中心からの距離に比例する。反水素の軌道の収束力は径方向に働く力であるため、径方向の勾配を取ってみると、

$$\frac{\partial |\mathbf{B}|}{\partial r} \propto \frac{r}{\sqrt{r^2 + 4z^2}} \quad (6)$$

となる。 $z = 0$ のとき、 $\partial |\mathbf{B}|/\partial r$ は定数であるが、 $z > r$ であるならば、 $\partial |\mathbf{B}|/\partial r \propto r$, つまり r に対し線形となる。この場合、径方向の運動が単振動となることを意味するので、等時性を考えると、軸上のある一点から出射した様々な速度を持つ反水素原子は同じ時間経過後に軸上に戻る。もし各反水素原子の z 方向の速度が同じならば、軸上の一点に収束し、磁気レンズとして機能することになる。この性質は原子ビームのレンズとして使われる六極磁石と同じである。

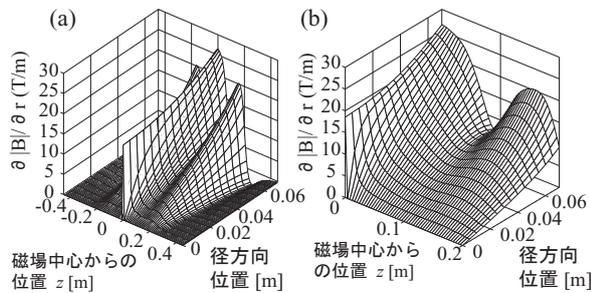


図 4: (a) カスプ磁場の径方向の勾配 $\partial |\mathbf{B}|/\partial r$ と (b) その拡大図 [14]

磁場の形状をより詳細に調べるため $\partial |\mathbf{B}|/\partial r$ をカスプ磁石の内側全体にわたってプロットしたものが、図 4(a) である。図 4(b) は (a) の拡大図である。 $z = 0$ を除くと $\partial |\mathbf{B}|/\partial r$ は r に対して概ね線型である。カスプ磁場は反水素原子ビームの優れた収束作用を持つことが予想される。

このことを調べるため、図 3 の軌道を含めた様々な条件の軌道に対し、カスプ磁場を光学レンズとしてみなしてレンズ公式 ($\frac{1}{a} + \frac{1}{b} = \frac{1}{f}$) を適用すると、ASACUSA のカスプ磁場が持つ焦点距離 l は、反水素原子の運動エネルギー K , 軸上の最大磁場強度 B をパラメータとして、近似的に次式のように表すことができる [14].

$$l[\text{m}] = \pm 0.085 \frac{K[\text{K}] \pm 1.1B[\text{T}]}{B[\text{T}]} \quad (7)$$

ここで式中の上の符号は LFS の焦点距離を表し、下の符号は HFS の焦点距離を表す。ここでレンズ位置は磁場中心より下流 0.05 m としている。

この式を用いると、カスプトラップからの反水素原子ビームの性質を数値計算せずとも容易に知ることができる。一例として、LFS 反水素原子ビーム強度が軸上のどの場所で反水素原子を合成すれば増えるかを調べた。図 5 はその結果を表している。(a) は軸上の軸上カスプ磁場を表す。(b) は反水素原子がマイクロ波共振器に到達する割合 f_{LFS} の合成位置依存性である。

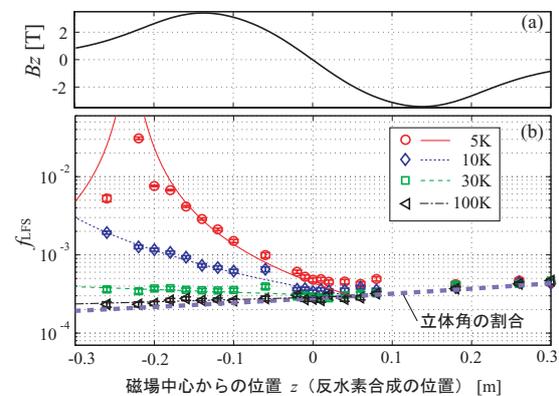


図 5: (a) 軸上磁場, (b) 反水素ビーム強度の合成位置依存性のシミュレーション結果 [14]

る。異なる記号は基底状態反水素原子の温度依存性の数値計算結果を表す。紫の点線は合成位置から見たマイクロ波共振器入口 (図 3 参照) の立体角の割合である。反水素原子の温度が高くなるか、反水素合成の位置が正 (マイクロ波共振器に近づく方向) の場合、計算値は紫の点線に近づいており、カスプ磁場の収束効果が弱くなるのがわかる。一方、合成位置が負 (マイクロ波共振器から離れる方向) の場合、5 K や 10 K ではビーム強度が増加していくのが確認できる。これは磁場からの収束力を長く受けることができるためである。これらの結果は、反水素原子合成をカスプ磁場中心よりも上流側の磁場の強い領域で行なえば良いことを示している [14]。図 5 の各線は、各記号に対応した条件で焦点距離の式 (7) とレンズ公式を用いて収束点を求め、そこから幾何学的に計算した結果であり、数値計算の結果と非常に良く合っている。焦点距離の式からは、カスプトラップから放出されるビーム強度の各種パラメータ依存性、つまり合成位置や運動エネルギー、磁場強度の依存性、またカスプ磁場から引き出された後の運動方向などの情報を取り出すことができる。さらに、焦点距離の式は反水素原子が磁場から受け取る径方向の運動量輸送 (5 節参照) から概算することも可能で、式 (7) と概ね良く一致することも明らかになった。このことは、カスプ磁場のビーム収束能力が、運動量輸送から評価できることを意味しており、後述のダブルカスプ磁石の設計に良く活かされた。

4. 反水素原子ビーム生成実験

4.1 実験装置

ASACUSA の反水素原子ビーム生成の装置概観を図 6 に示す。反陽子を蓄積、冷却する MUSASHI トラップ、 ^{22}Na 線源からの陽電子を捕獲する陽電子蓄積装置、カスプトラップ、六極磁石、反水素ビーム検出器が配置されている。また、カスプトラップの両脇にプラスチックシンチレータを使用したパイ中間子飛跡検出器が

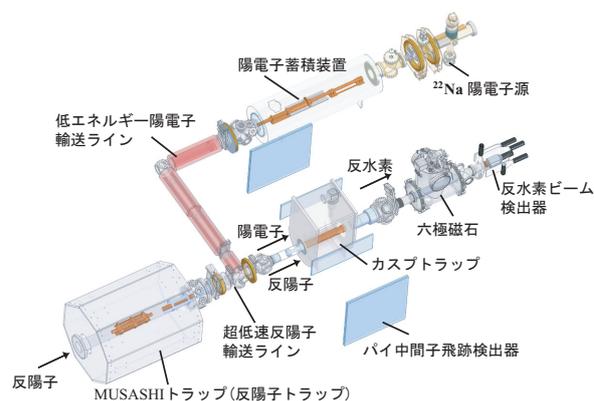


図 6: 装置全体の概観 [6]

設置されている。

反陽子は核子との対消滅によって平均約 3 個の荷電パイ中間子と平均約 2 個の中性パイ中間子に崩壊する。それらの運動量は約 $200 \text{ MeV}/c$ と比較的大きい [18]。従って、荷電パイ中間子はカスプトラップの構造物を容易に貫通し、パイ中間子飛跡検出器で測定される。中性パイ中間子の寿命は非常に短く ($8.4 \times 10^{-17} \text{ s}$)、ただちに 2 個のガンマ線に崩壊する。プラスチックシンチレータはガンマ線に対し感度がないので、パイ中間子飛跡検出器で測定されない。

4.2 反水素原子の合成

反水素原子はカスプトラップ中で高密度にした陽電子プラズマに、MUSASHI トラップからの反陽子パルスビームを相対エネルギーをなるべく小さくして直接打ち込み、混ぜ合わせることで合成している [19]。

図 7 にカスプトラップの断面図を示す。中心に多重リング電極 (MRE) が設置され、その周りに冷凍機によって約 6 K まで冷却されたコールドボア、カスプ磁石が配置されている。また、熱輻射によるコールドボア内部への熱流入を防ぐため、左手 (上流) にはアパーチャー型の輻射シールド、右手 (下流) には開閉式の輻射シールドが設置されており、温度上昇による真空度の悪化を防いでいる。

図 8 は (a) カスプトラップの MRE の断面図、(b) 軸上のカスプ磁場 (c) MRE による軸上の静電ポテンシャルを表す。反水素の合成方法は、

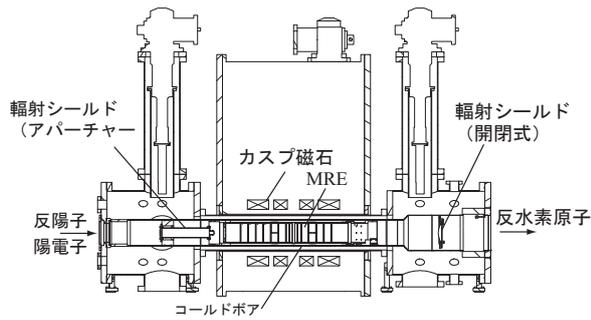


図 7: カスプトラップの断面図

まず陽電子蓄積装置からの 100 eV の陽電子のバンチを, 図 8(c) のカスプトラップの MRE の静電ポテンシャル ϕ_1 へ入射する. 陽電子が ϕ_1 のポテンシャル壁によって反射して MRE から飛び出す前に ϕ_2 のように変化させて捕獲する. この付近の磁場は 2.7 T と非常に強く, 陽電子は (後述の反陽子も) サイクロトロン運動するため径方向に束縛され, MRE 内の軸上付近に局所的に閉じ込められる. 軸方向の運動は静電ポテンシャルによって束縛される. さらに陽電子はサイクロトロン運動による電磁放射によって自然に冷却され, 軸上付近のポテンシャルの底に保持される. 次に再度ポテンシャルを ϕ_1 に変化させ, 二発目の陽電子を入射する. このとき, 一発目の陽電子はポテンシャルの底にあるため, ϕ_1 に変化させてもこぼれない. そして ϕ_2 に変化させて二発目の陽電子を閉じ込める. この操作を繰り返すことで, 3×10^7 個を溜め込む. このような荷電粒子の集合が磁場中で静電調和ポテンシャル中にある場合, 回転楕円体になることが知られている. MRE の陽電子閉じ込め領域の電極の一つは, 径方向に 4 分割され, それぞれに $\pi/2$ ずつずらした高周波 (回転高周波) を印加することができる. この高周波を用いて回転楕円体にトルクを与えると, 回転速度が上昇し, 径が圧縮されることが知られている. このようにして径方向への拡散を抑えて陽電子を高密度に保つことができる. 次に陽電子がこぼれないように滑らかに ϕ_3 に変化させる. このポテンシャルは入れ子型ポテンシャル (nested trap) と呼ばれ, 陽電子を中央のポテンシャル井戸に保持しつつ, 同時に反陽子を逆向きのポテ

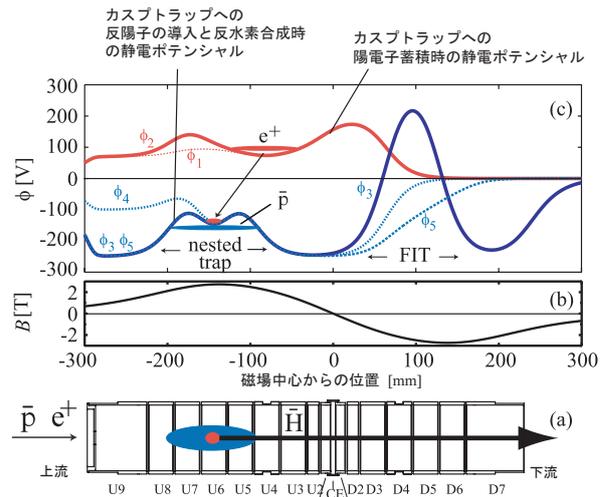


図 8: カスプトラップの (a)MRE, (b) 軸上磁場, (c) 静電ポテンシャル [19]

ンシャル井戸で捕獲して, 互いに混合させることを可能にする. 次に MUSASHI トラップから 3×10^5 個の 150 eV 反陽子が MRE 内に打ち込まれる. 陽電子と同様に, ϕ_3 から ϕ_4 に一瞬変化させて反陽子のバンチを取り込む. 反陽子は ϕ_3 の nested trap の領域を往復する. このとき陽電子と反陽子のエネルギーは一致していない, つまり, 相対エネルギーが大きい状況にある. しかし, 互いに軸上付近で運動しているので, クーロン衝突し合い, 相対エネルギーが減少し, さらに陽電子の電磁放射のため, 全体として冷却されていく. 最終的に反陽子は陽電子を捕獲して中性の反水素原子が合成される.

これら反水素原子は中性であるので電磁力は働かず, nested trap 領域から飛び出して拡がっていく. 反水素原子の合成を確認するため, 一部の反水素原子が高励起状態にあることを利用する. 高励起の反水素原子は強い電場によってイオン化し, 反陽子と陽電子に分離することができる. そこで図 8(c) 中の右手 (下流) に強い電場を持つ静電ポテンシャル (フィールドイオン化 (FI) 領域) を用意する (ϕ_3). そして nested trap から飛び出した高励起反水素原子の一部はこの領域に入り, イオン化され, 後に残った反陽子は FI ポテンシャル井戸 (FIT) に捕獲される. 一定の時間, 反陽子を溜め込んだ後, ϕ_5 の

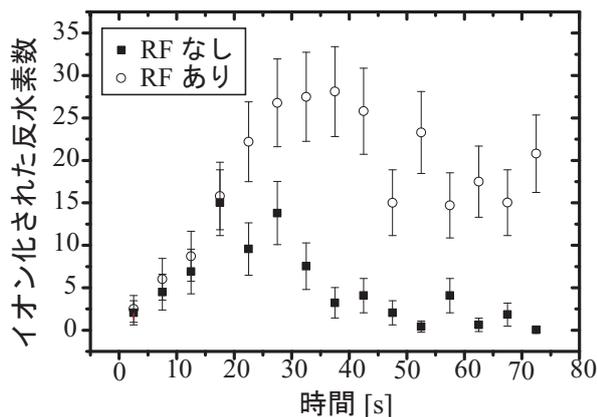


図 9: パイ中間子飛跡検出器による反水素原子カウント数 [6]

ようにポテンシャルを素早く変化させて反陽子を排出し、カスプトラップの内壁面に衝突させ、対消滅させる。このとき生成した荷電パイ中間子を、パイ中間子飛跡検出器で検出する。反陽子を溜めて短時間で排出するのは、合成中に常に検出される nested trap に閉じ込められた反陽子の残留ガスとの対消滅によるパイ中間子や宇宙線等のバックグラウンドノイズに対し、反陽子検出の S/N を高くするためである。この操作で検出されたパイ中間子は FIT に溜め込まれていた反陽子由来であるため、高励起状態の反水素原子の合成を確認したことになる。

図 9 に高励起反水素原子合成数の時間依存性を示す。これは FIT に溜まった反陽子を 5 秒毎に排出することで得られる。黒の四角は反陽子を陽電子プラズマに入射後、そのまま nested trap に保持し続けたときに得られた結果である。混合から 25 秒程度で合成数は最大となるが、その後、反応は減少する。この原因として、パイ中間子飛跡検出器の測定結果から nested trap 内の反陽子消滅位置分布を求めると、反陽子が陽電子閉じ込め領域の両脇にある 2 つのポテンシャル井戸に分離して、陽電子から離れてしまうことが示唆されている。この場合、反陽子は両脇のポテンシャル井戸で、それぞれでそのポテンシャルに沿った往復運動をしていることになる。そこで、振動の周期に合わせた RF を外部から MRE に印加してその周期運動を励起し

て、反陽子のエネルギーを増加させ、再び陽電子閉じ込め領域に入射、混合できるようにした結果、反水素合成数を 3.5 倍改善させることに成功した (図 9 の丸) [6]。

4.3 反水素ビームの生成

反水素原子の超微細構造測定のためには、反水素原子ビームの検出は大変に重要なステップである。しかし、反水素原子を生成しただけでは、それをビームとして確認することは難しい。生成後の反水素原子の温度はまだ高いと予想され、カスプ磁場による反水素ビーム強度の増加はまだ期待できない。生成点から見た立体角 $/4\pi$ は 8×10^{-5} であり、最下流の反水素ビーム検出器に到達すると予想される反水素原子数は数個ほどである。これは宇宙線のバックグラウンドに対して遥かに少なく、反水素ビームの確認を極めて困難にさせる。これには、高感度のビーム検出器が必須の開発項目であった。

このような中で、2012 年の実験で ASACUSA は世界で初めて反水素原子ビームの検出に成功した。まず、どのように反水素原子ビームを検出するかを述べ、反水素原子ビーム生成実験の結果を解説する。

4.3.1 反水素ビーム検出器

反水素原子が反水素ビーム検出器に到達する個数は、100 秒につき数個である。一方、反水素原子検出の際のバックグラウンドノイズは主に次の三種類が挙げられる。(1) 宇宙線、(2) nested trap 領域の大量の反陽子と残留ガスとの消滅による荷電パイ中間子、(3) 反水素ビーム検出器にまで到達しなかった反水素原子の対消滅による荷電パイ中間子である。例えば (1) の場合、検出器に毎秒 1 個の宇宙線が飛来すると考えると、100 秒につき 100 個のバックグラウンドが予想される。さらに (2) と (3) のバックグラウンドが存在するので、反水素原子の個数と比較して膨大な数となる。従って反水素原子を検出、同定するためには、反水素原子に対する検出効率を維持しつつ、バックグラウンドノイズを 99% 以上の確率で排除しなければならない。反水素

原子はランダムで検出器に到達するので、タイミングを取ることもできず、効果的な方策を考える必要がある。

これらの要求を満たすように、図 10 のような、無機シンチレータの BGO ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$) 結晶と、その周りに 5 枚のプラスチックシンチレータを配置した検出器を開発した。直径 100 mm、厚さ 5 mm の BGO 結晶を超高真空ダクト内に配置した。高速荷電粒子の BGO 通過による蛍光はビューポートを介して口径 5 inch の光電子増倍管で検出、イベント毎に波形データが取得される。この波形データを積分することで、荷電粒子が BGO 結晶に付与したエネルギーを計算することができるため、BGO 結晶はカロリメータとして使用される。

5 枚のプラスチックシンチレータは BGO が設置された真空ダクトの周りに配置され、BGO の中心に対して約 50% の領域を見込むようになっており、高速荷電粒子を検出する。BGO 結晶の直前には円筒電極が配置され、負電圧を印加することで、電極を通過する高励起反水素原子の n の最大値を選択し、且つ反陽子は検出器に到達しないように配慮される。

バックグラウンドノイズを排除する方法は次のように定性的に説明できる。反水素原子が BGO 結晶に衝突した場合、反陽子の対消滅によって約 3 個の荷電パイ中間子が発生する。その一部が BGO 結晶を貫通し、斜めに進む場合は BGO 内での通過距離も長くなり、BGO 結

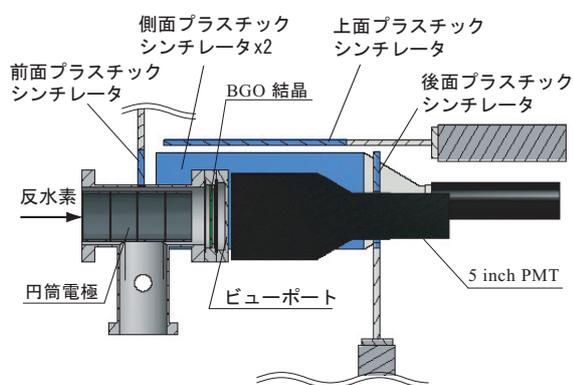


図 10: 反水素ビーム検出器

晶に大きなエネルギーを付与すると考えられる。それに対して (2) のパイ中間子は発生位置が検出器から遠いため、BGO 結晶を垂直に貫き、付与されるエネルギーは上記の場合よりも小さくなる。従って、BGO カロリメータに付与されるエネルギーの閾値を、宇宙線による付与エネルギーより高く設定することによって、バックグラウンドを有効に抑制することが可能であり、且つ反水素原子の検出効率はそれほど損なわれない。陽電子由来のバックグラウンドノイズは、511 keV のガンマ線が考えられるが、後述のようにエネルギーの閾値は 40 MeV であるので、十分無視できる。また、反陽子対消滅時の約 3 つの荷電パイ中間子を、プラスチックシンチレータ 5 枚のうち 2 枚以上で検出することは容易であるが、(1) の主成分であるミュオンや、(2) や (3) のパイ中間子が 2 枚通過し、かつ BGO を貫通する可能性は高くない。以上の 2 つの条件を適切に課すことで反水素原子とバックグラウンドを有効に選別することができる。

4.3.2 反水素ビームの検出

2012 年の CERN のビームタイムで反水素原子ビームの検出を試みた。図 11 の太線のヒストグラムはカスプトラップ中で反陽子と陽電子の混合時に反水素ビーム検出器の BGO 結晶で測定されたエネルギースペクトルを示している。ただし、条件として BGO とプラスチックシン

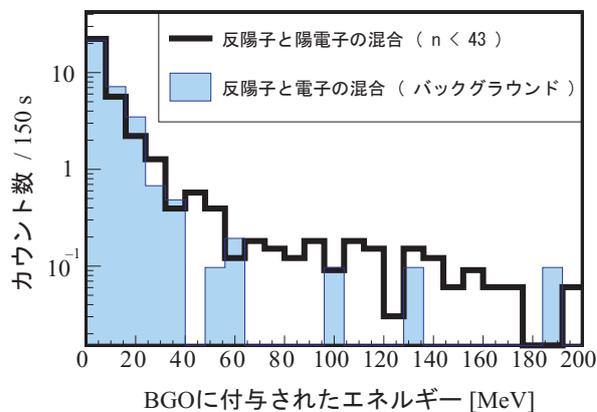


図 11: 反水素原子ビーム検出器で得られたエネルギースペクトル [6]

表 1: 反陽子と陽電子混合時と、バックグラウンドの反水素ビーム検出器での測定結果 [6]

	A	B	バックグラウンド
総計測時間 [s]	4950	2100	1550
N_t	1149	487	352
$N_{>40}$	99	29	6
Profile likelihood ratio (σ)	5.0	3.2	–
Z-value (σ)	4.8	3.0	–
1 時間当りの \bar{H}	25 ± 3	16 ± 2	–

チレータ 2 枚以上との同時測定を課している。このスペクトル中に BGO 結晶まで到達した反水素原子が含まれるが、同時に宇宙線や、カスプトラップからの荷電パイ中間子等のバックグラウンドも含まれていると考えられる。次に、反陽子と“電子”を混合した場合のエネルギースペクトルも測定し、図 11 の青く色付けされたヒストグラムで示した。このスペクトル中には宇宙線やカスプトラップからの荷電パイ中間子は含まれるが、反水素原子は含まれない。従って、太線と青のヒストグラムの差を取ることで、検出器に到達した反水素原子の個数を決定することができる。図 11 を見ると、BGO に付与されたエネルギーが 40 MeV 程度以上になると、バックグラウンドは強く抑制されるが、反陽子と陽電子の混合時のスペクトルは依然として残っている。よって、次の解析に用いるエネルギー閾値を 40 MeV とした。

表 1 に 2 つの実験条件 A と B とバックグラウンド測定の結果をまとめた。 N_t は BGO と 2 つ以上のプラスチックシンチレータが同時に鳴ったイベントの数を示し、そのうち 40 MeV 以上のエネルギー付与のあったイベント数を $N_{>40}$ で表わしている。実験条件 A では、反水素ビーム検出器の直前の電極に 94 V cm^{-1} の電場をかけることで主量子数 $n \lesssim 43$ の反水素原子が BGO 結晶まで到達できるようにしている。実験条件 B ではより強い電場 (452 V cm^{-1}) をかけて $n \lesssim 29$ のものだけが届くようになっている。バックグラウンド測定で得られたものは右の欄に示してある。このバックグラウンドに対して条件 A と B で検出された数を 2 種類の検

定方法で評価したものが 4 段目と 5 段目に示されており [20, 21], 反水素原子の個数はバックグラウンドに対し統計的に有意であることを示している。この結果は 6 段目にあるように、1 時間あたり約 25 個の反水素原子が到達していることを示している [6]。また、そのうち無視できない数が $n \lesssim 29$ にあることを示唆している。

5. 最近の装置開発

反水素原子分光実験の実現にはまだ課題が残っている。低温かつ基底状態の反水素原子ビームの生成、ビーム強度の増強、より高効率のビーム検出器が挙げられる。2014 年の実験に向けていくつか新たな装置を開発した。まず、反水素原子ビーム強度を増加させるため、新しい超伝導磁石の開発を行った。さらに磁石ボアの内側に 3 次元トラック [22] を配置した。反陽子や反水素原子の消滅位置等の詳細な情報が分かれば、質の良い反水素原子ビーム生成につながる考えられる。そして、ビームの二次元情報と、さらなる高効率の検出を求め、新しい反水素ビーム検出器を開発した。

5.1 超伝導ダブルカスプ磁石

図 12 (a) はダブルカスプ磁石の概念図を示しており、2 つのアンチヘルムホルツコイルを並べた構造となっている。中央の 2 コイルの電流は同じ向きを持つ (1 つのコイルとして扱われる)。両側のコイルの電流方向は中心のコイルに対し逆向きとなっている。図 12 (b) で示されるように軸上磁場が最大となる正のピークが 1 箇所、その両側に負のピークが 2 箇所、そして 2

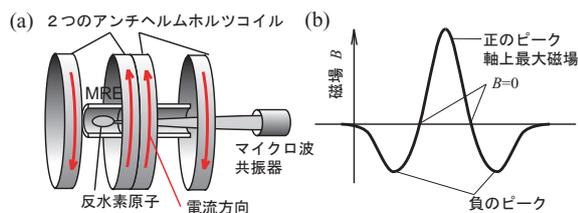


図 12: (a) ダブルカusp磁石の概念図 (b) ダブルカusp磁場

箇所 $B=0$ が存在する。従って、磁場勾配が単一のアンチヘルムホルツコイルより強力になり、ビーム収束能力も上がる。

磁石の設計を行うため、磁石の各種パラメータ、コイル長、コイル間距離、コイル厚さに対し、ビーム収束能力を評価する必要がある。3.2 節で示したように、反水素が磁石を通過する際の、磁場から反水素原子への運動量輸送を計算した。反水素原子は径方向の力 $F_r = \partial_r |\mathbf{B}|$ によって収束作用を受け、径方向の運動量輸送 $\Delta p = \int F_r dt$ を受け取る。もし反水素の速度がそれほど遅くないならば、収束能力はこの Δp によって特徴づけられる。もし反水素の速度が一定で、運動がビーム軸に平行と近似出来るなら、 Δp は積分することによって、

$$\Delta p = \int_{-\infty}^{\infty} F_r \frac{dt}{dz} dz = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{F_r}{v_z} dz, \quad (8)$$

と表される。この量を、上記各種パラメータに対し最適化することで、仕様を決定した。2014 年の実験に導入し、安定に動作している。

5.2 反水素ビーム二次元検出器

これまで反水素ビームの像を測定することはできなかった。二次元位置情報の取得のため、直径 90 mm の BGO 結晶とマルチアノード光電子増倍管を利用して、二次元反水素ビーム検出器を開発した。BGO 結晶表面に炭素成膜し、超高真空中に設置、炭素膜に荷電粒子通過時の蛍光の余分な光を吸収させ、裏面からビューポートを通して光を取り出し、マルチアノード光電子増倍管で測定した。結果、荷電粒子の衝突位置あるいは軌道の二次元位置情報を取得できるようになった。

6. まとめ

反水素原子ビームに関連した研究を中心に解説を行った。詳細な計算から反水素ビームの収束と高励起反水素原子の自動冷却が明らかになった。実験では、高感度の反水素ビーム検出器を開発し、反水素原子ビームの生成に成功した。さらに最近の装置開発について解説した。今後は、その開発した新たな装置を用いて、大強度の基底状態の偏極反水素原子ビームを生成し、反水素原子の超微細構造周波数の測定を目指す。

7. 謝辞

本研究は、理化学研究所の山崎泰規上席研究員のもとで行われました。研究を進めるにあたり、多くのご指導をいただきました。心より感謝を申し上げます。これらの成果は金井保之専任研究員、黒田直史助教をはじめ、非常に多くの方々の協力によって得られたものです。ここに深く感謝したいと思います。

参考文献

- [1] A. Kostelecký, R. Potting, Nucl. Phys. B, **359**, 545 (1991).
- [2] R. Bluhm, A.V Kostelecký and N. Russel, Phys. Rev. Lett., **82**, 2254 (1999).
- [3] G. Baur, et al., Phys. Lett. B, **368**, 251 (1996).
- [4] M. Amoretti, et al., Nature, **419**, 456 (2002).
- [5] G. Gabrielse, et al., Phys. Rev. Lett., **89**, 213401 (2002).
- [6] N. Kuroda, S. Ulmer, D.J. Murtagh, S. Van Gorp, Y. Nagata, et al., Nature Communications, **5**, 3089 (2014).
- [7] G.B. Andresen, et al., Nature, **468**, 673 (2010).
- [8] G. Gabrielse, et al., Phys. Rev. Lett., **108**, 113002 (2012).

- [9] S. Aghion, et al., Nature Communications, **5**, 4538 (2014).
- [10] P. Perez and Y. Sacquin, Class. Quantum Grav., **29**, 184008 (2012).
- [11] A. Mohri and Y. Yamazaki, Europhys. Lett., **63**, 207 (2003).
- [12] B. Juhasz and E. Widmann, **193**, 305 (2009).
- [13] Y. Yamazaki and S. Ulmer, Ann. der Physik, **525**, 493 (2013).
- [14] Y. Nagata and Y. Yamazaki, New J. Phys., **16**, 083026 (2014).
- [15] F. Robicheaux, Phys. Rev. A, **73**, 033401 (2006).
- [16] T. Pohl, H. R. Sadeghpour, Y. Nagata and Y. Yamazaki, Phys. Rev. Lett., **97**, 213001 (2006).
- [17] R. Lundmark, C. Malbrunot and Y. Nagata, et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **48**, 184001 (2015).
- [18] M. Hori, et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **496**, 102 (2003).
- [19] Y. Enomoto, et al., Phys. Rev. Lett., **105**, 243401 (2010).
- [20] G. Cowan, et al., Eur. Phys. J. C **71**, 1554 (2011).
- [21] R. Cousins, et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **595**, 480 (2008).
- [22] B. Radics, et al., Rev. Sci. Instrum. **86**, 083304 (2015).

「原子衝突のキーワード」

分子の2電子励起状態

(Doubly excited states of molecules)

水素原子から多電子原子への拡張同様に、分子の状態も、1電子軌道関数である分子軌道に基づいて記述される。最も単純な分子 H_2 を例にとると、その基底状態は1電子系である H_2^+ の波動関数、 $1s\sigma_g$, $2p\sigma_u$, $2p\pi_u$, ... を用いて、 $(1s\sigma_g)^2(2p\sigma_u)^0(2p\pi_u)^0...$ と記述される。基底電子配置から2電子が励起した状態が2電子励起状態である。原子分子過程における2電子励起状態の重要性は島村 [1] や中村ら [2] の解説に詳しいが、分子の場合には H_2 [3, 4] すら帰属の定まらない状態が存在する [5]。

2電子励起状態の一例として H_2 と H_2^+ のポテンシャルエネルギー曲線のうちの何本かを図1に示す。2電子励起状態は [励起イオン+電子]

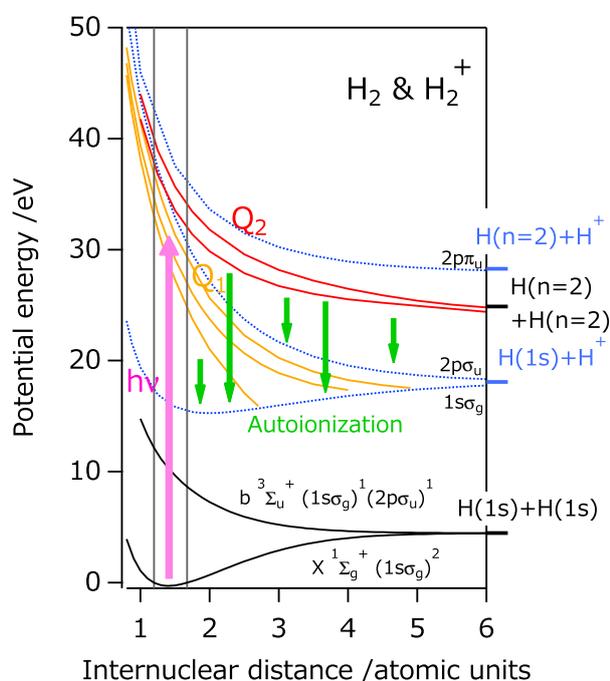


図 1: H_2 (実線) と H_2^+ (点線) のポテンシャルエネルギー曲線の一例 [3, 6], 及びそのダイナミクスの模式図. エネルギーの原点は H_2 の基底状態. 図中の縦線は Franck-Condon 領域.

の系でもあり、 H_2^+ の第一励起状態 ($2p\sigma_u$) に電子が付与した状態を Q_1 状態 (オレンジ), 第二励起状態 ($2p\pi_u$) に電子が付与した状態を Q_2 状態 (赤)... のように分類される. これらの状態は Rydberg 状態であり、 H_2^+ の励起状態に収斂する無限個の状態が存在する. また、内部エネルギーが H_2^+ の $1s\sigma_g$ 状態よりも高いため、ほとんどの場合、 $H_2^+ + e^-$ へ自動イオン化 (autoionization) する. この時間スケール ($\sim 10^{-15}$ sec) は分子解離と同程度であり両者は競合する. 自動イオン化先が解離性の $2p\sigma_u$ 状態であれば、更に $H^+ + H$ へと解離する. 電子と原子核の運動が複雑に絡み合っている点が難しい点でもあり、興味深い点でもある [5]。

2電子励起状態は図1に示した光励起以外に、正イオンが電子を捕獲しても生成する. 電子が正イオンを衝突励起し、自らは捕獲される過程は "Feshbach 共鳴" であり [1], この共鳴を経た解離過程は解離性再結合である. このように2電子励起状態は様々な過程に共通の中間状態であり高層大気や放射線化学など様々な分野で興味を持たれてきた [2]. 最近では、解離生成する励起原子ペアの量子的な相関 [7] など、新しい観点からも再注目されている.

(東京工業大学 穂坂綱一)

参考文献

- [1] 島村勲, しょうとつ **2**, **3** (2005).
- [2] 中村宏樹, 高木秀一, 日本物理学会誌 **45**, 87 (1990).
- [3] I. Sánchez and F. Martín, J. Chem. Phys. **106**, 7720 (1997); **110**, 6702 (1999).
- [4] A. Igarashi, and Y. Kuwayama, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 054302 (2014).
- [5] 小田切丈, 河内宣之 日本物理学会誌 **61**, 671 (2006).
- [6] T. E. Sharp, Atomic Data and Nuclear Data Tables **2**, 119 (1970).
- [7] Y. Nakanishi *et.al.*, Phys. Rev. A **90**, 043405 (2014).

2015 年度 役員・委員会

会長

高橋正彦 (東北大学)

幹事

城丸春夫 (首都大学東京) [副会長]

加藤太治 (核融合科学研究所)

中井陽一 (理化学研究所)

渡邊 昇 (東北大学)

運営委員

市村 淳 (宇宙科学研究所)

鵜飼正敏 (東京農工大学)

加藤太治 (核融合科学研究所)

北島昌史 (東京工業大学)

田沼 肇 (首都大学東京)

長嶋泰之 (東京理科大学)

中井陽一 (理化学研究所)

渡邊 昇 (東北大学)

石井邦和 (奈良女子大学)

金井保之 (理化学研究所)

木野康志 (東北大学)

高口博志 (広島大学)

河内宣之 (東京工業大学)

酒井康弘 (東邦大学)

城丸春夫 (首都大学東京)

常置委員会

庶務委員会

委員長：渡邊 昇 (東北大学)

編集委員会

委員長：中井陽一 (理化学研究所)

行事委員会

委員長：加藤太治 (核融合科学研究所)

広報渉外委員会

委員長：城丸春夫 (首都大学東京)

顕彰委員会

委員長：鵜飼正敏 (東京農工大学)

編集委員 岸本直樹, 北島昌史, 富田成夫, 中井陽一,
彦坂泰正, 日高宏, 間嶋拓也, 森林健悟



しょうとつ 第13巻 第1号 (通巻68号)

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2016

<http://www.atomiccollision.jp/>

発行: 2016年1月15日

配信: 原子衝突学会事務局 <acr-post@bunken.co.jp>