

った。しかし、X線回折学上、重要な問題であるといえる。本研究では、CTR散乱を絶対強度（入射X線強度に対する比）で測定することにより、この2つの取扱いの妥当性を検討した。

絶対強度測定は、イメージングプレートを用いてCTR散乱とTDS (Thermal Diffuse Scattering) を同時測定することにより行った⁴⁾。TDSは原子の熱振動に起因する散乱であり、弾性定数がわかっている場合には絶対強度を求めることができる。つまり、TDSの散乱強度からこのとき入射したX線の強度を見積もることができ、CTR散乱の強度を絶対値化できる。図1にSi(111)ウエハの111ブラッグ点周りのCTR散乱の測定結果を示す。○が測定値を表している。また、点線がRobinson、実線がVlieg等による取扱いに対する計算結果を示している。計算はどちらの場合も理想的に平らな結晶に対する散乱強度である。したがって、ブラッグ点から遠く離れたところで、両方の計算値とも測定値と大きくくずれているのは、実際の試料の表面が理想的な表面とは違っているためであ

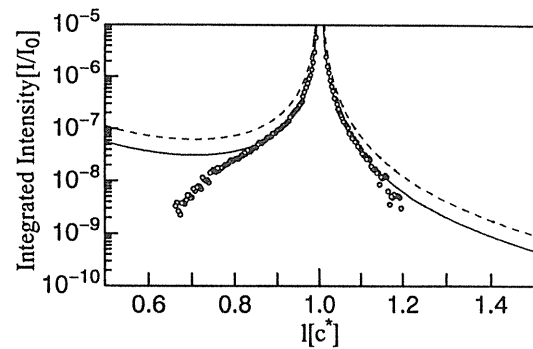


図1 Si(111)ウエハの111ブラッグ点周りのCTR散乱の絶対強度分布

ると考えられる。ブラッグ点近傍で計算値と実測値を比較すると、Vlieg等の取扱いに対する計算値が実測値と見事に一致していることが分かる。

References

- 1) J. Harada: Acta Cryst. **A48**, 764 (1992).
- 2) I. K. Robinson: Phys. Rev. **B33**, 3830 (1986).
- 3) E. Vlieg et al.: Surface Sci. **210**, 301 (1989).
- 4) T. Shimura and J. Harada: J. Appl. Cryst. **26**, 151 (1993).

(受付番号 94012)

新博士紹介

1. 氏名 寺澤昇久 (現: 京都工芸繊維大学
工芸学部 物質工学科)
2. 論文提出大学 東京工業大学
3. 学位の種類 博士 (理学)
4. 取得年月 1993年9月
5. 題名 放射光パルス特性を用いた
励起水素原子の衝突脱励起過程に関する研究

6. アブストラクト

励起水素原子の水素分子による衝突脱励起過程は、原子・分子衝突過程の最も単純なものであり、化学反応における最も重要な素過程の一つとして興味深い。励起水素原子の主量子数が互いに等し

く軌道角運動量子数が互いに異なる状態は、エネルギー的にほとんど縮退している。また、実験室で容易に生成することができる励起水素原子は、H(2s)原子を除くとその自然寿命がきわめて短い(約ナノ秒)。したがってH(2s)原子を除くと特定の励起状態にある水素原子のビームを生成することはきわめて困難であり、励起水素原子の衝突過程に関する研究例はきわめて限られてくる。しかし、最も簡単な原子であって、しかもわずかなエネルギー差で縮退している励起水素原子の衝突脱励起過程について、その原子の電子状態に依存した断面積を調べることは反応物理化学の基本的課題として重要である。そこで、本研究では放射光のパルス特性を利用して、このような衝突脱

励起過程を調べる新しい方法を確立し、H(2p) およびH(n=3) 原子の水素分子による衝突脱励起断面積の測定に始めて成功した。

単色化した放射光を用い水素分子の解離を通して、並進速度のそろったH(2s) およびH(2p) 原子を生成させる。それらと水素分子との衝突によりさまざまな過程が起きる。その様子をH(2p) 原子から放出されるLyman- α 発光強度を時間分解測定することによって直接観測した。実験で得られた発光減衰速度の試料ガス圧依存性から、H(2s) およびH(2p) 原子の水素分子による衝突脱励起断面積が求められる。同様にBalmer- α 発光強度の時間分解測定の結果から、H(n=3) 原子の衝突脱励起断面積が求められる。なお、衝突における相対速度は放射光の光子エネルギーとそれぞれの励起水素原子を生成する解離極限のエネルギーから決定できる。すなわち、本研究においては、衝突速度を指定した実験を行っていることも大きな特徴である。

H(2s) 原子の衝突脱励起断面積の衝突速度依存性の結果を本研究とは異なる方法で測定された既報の断面積と比較し、本研究で用いた測定方法の正確さについて述べ、従来の測定方法の問題点を指摘した。一方、本研究によって初めて測定されたH(2p) 原子の衝突脱励起断面積は、H(2s) 原子のそれより明らかに大きいことがわかった。これは、H(n=2) 原子とH₂分子がつくる相互作用ポテンシャルエネルギー曲線によって説明される。すなわち、H(2p) 原子では核間距離の大きい遠方からその曲線がポテンシャル障壁を持たずなだらかに極小へと向かうのに対し、H(2s) 原子では交換相互作用によるポテンシャル障壁が存在する。このことが、衝突脱励起断面積の大小を決定していると考えられる。

励起水素原子の衝突脱励起は二つの過程に分類できる。一つは、励起原子の励起エネルギーをほ

とんど変化させることなく、すなわち主量子数を変化させず角運動量量子数を変化させる角運動量移行過程である。もう一つは、それ以外の過程すべてを含む非角運動量移行脱励起過程である。この過程には、結合性イオン化過程、衝突誘起解離過程などがある。本研究において、H(2s) 原子の衝突脱励起断面積については二つの過程それぞれについて断面積値が得られた。角運動量移行過程は相対速度の増加とともにその断面積が減少する傾向を示し、励起水素原子の角運動量が水素分子の回転の角運動量へと移行するモデルに基づいた理論計算値とよく一致した。また、非角運動量移行脱励起過程の断面積は、角運動量移行過程の断面積より明らかに小さく、相対速度にあまり依存しないことがわかった。これらの値の比較からH(2s) 原子の衝突脱励起過程は、ほとんど角運動量移行過程であることがわかった。H(2p) 原子の衝突脱励起過程については二つの過程としてそれぞれの断面積を求めることができなかった。しかし、その衝突脱励起過程はH(2s) 原子の脱励起過程と同様に角運動量移行過程である可能性が高いと考えられる。

H(n=3) 原子の衝突脱励起には、H(n=2) 原子の場合と同様に角運動量移行過程と非角運動量移行脱励起過程の二つがあることがわかった。H(n=2) とH(n=3) 原子の衝突脱励起断面積を比較すると、その衝突速度に対する依存性は角運動量量子数によって大きく異なり、主量子数によってはそれほど影響されないこと、およびその値は角運動量量子数が互いに等しい場合には主量子数が大きくなると大きな値を示すことを見いだした。以上、脱励起断面積の絶対値およびその衝突速度依存性が、水素原子の電子状態(主量子数および軌道角運動量量子数)のの違いに大きく依存することがわかった。

(受付番号 94013)