

シリーズ 原子衝突実験の歩み
—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

序 文

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成17年11月17日原稿受付

研究者の多くは年をとると歴史に興味をもつようになる。筆者もその一人である。ただそれだけではなく、世界物理年などさまざまな理由から最近原子衝突実験の歴史を調べてきた。その一部をさきに研究協会研究会で話したところ複数の人からは是非「しょうとつ」誌に執筆するよう依頼があった。折角なので原稿を書くことにしたが、いきなり妙な記事を読まされても困ると思うので、少し前書きをつけることにする。(これは、最近の家電製品のマニュアルと同じで、後で訴えられる(?)と困るのでつけた言い訳でもある。)

副題にある「独断と偏見」というのは、本稿が、主として「電子衝突」を専門としてきた一理論家の見た歴史であるという意味である。もちろん電子衝突のみでなくできるだけ広く主題を選ぶつもりであるが、どうしても自分の知っていることが話の中心になる。また格好をつけて「大実験」としたが、どのような実験を選ぶかはひとえに筆者の「好み」による。ただ一応次のような基準のどれか(あるいは複数)をみたすよう心がける。

- 新しい時代(分野)の開拓
- 新しい概念の創出
- 新しい効果の発見
- 原理・法則の検証
- 新しい原理(技術・道具)を用いてそれまで困難だった実験を可能にした

もの

- 研究対象の拡大

内容は、実験の詳細ではなく、原理や結果の意義を上記に照らして述べたものとなる予定である。(実験の詳細については、引用する論文を読んでもらう方が間違いがない。)長さや体裁は一律でなく筆者の書きたいように書くつもりである。実験家ではないので、実験手法や得られた結果の解釈について誤ったことを書くかもしれない。その際は、是非専門の方からのご指摘をいただきたい。後日訂正文を掲載することにする。

連続して10回掲載する積もりであるが、筆者の体調その他の都合で途中で打ち切りになるかもしれないことをお断りしておく。

シリーズ 原子衝突実験の歩み
—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

第1回 ラザフォード散乱公式の実験的検証

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成17年12月7日原稿受付

§1. はじめに

本シリーズの第1回目にとりあげるのは、Geiger と Marsden が行ったラザフォード散乱公式を検証する実験である[1]。アルファ粒子の金属箔による散乱の実験結果を説明するために Rutherford はいわゆるラザフォード散乱公式(すなわち、クーロン散乱に対する微分断面積)を導いた。さらにそれに基づいて、原子内における核の存在を示唆した。これらのことが述べられている Rutherford の論文[2]は大変有名であるが、その公式を実験的に確かめたこの Geiger と Marsden の論文はそれほど知られていない。後で述べるように、この実験は現在のビームを用いた原子衝突実験の先駆けをなすものであり、本シリーズの第1回としてとりあげるのにふさわしいものである。

§2. ラザフォード散乱公式の導出まで

1907年カナダからマンチェスター大学に移った Rutherford は、放射線の研究を精力的に進めていた(彼はその研究で1908年にノーベル化学賞を受賞する)[3]。とくに、当時研究室の助手であった Hans Geiger と学部学生であった Ernest Marsden は放射線を金属箔に当ててその散乱をみる実験を行い、結果を1909年に発表した[4]。

図1に彼らが用いた実験装置を示す。ABは

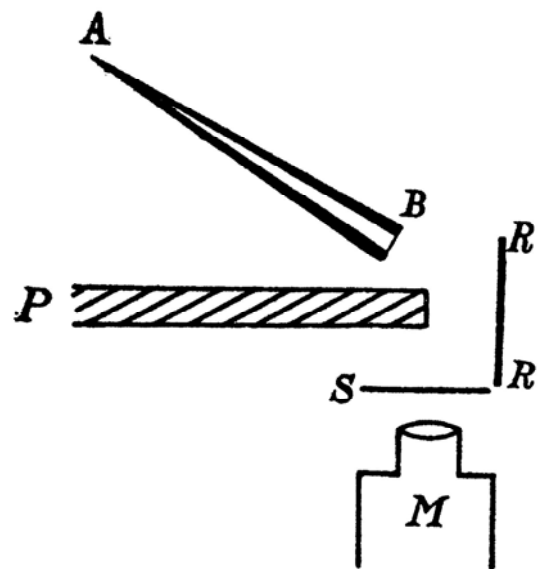


図1 金属箔によるアルファ粒子の散乱を測った実験装置(文献[4]より)。

ガラス管で中にラジウムの崩壊生成物(ラジウムエマナチオン)を封入してある。そこから放射されるアルファ粒子を入射粒子として金属箔(R)に当てる。反射してきたアルファ粒子は硫化亜鉛のスクリーン(S)に当たってシンチレーション光を発する。この光を望遠鏡(M)で観測して散乱粒子の数を数える。Pは線源からのアルファ粒子が直接スクリーンに当たらないようにするための遮蔽板である。いくつかの実験結果を報告しているが、主なものは以下の二点である。

- (1) 確率は小さい(1/8000の程度)が、反射してくる(すなわち散乱角 θ が90度以上になる)ものがある。

(2) 箔の厚さを変えて実験したところ、厚さがあまり大きくないときには反射粒子の数は箔の厚さに比例した。このことから、反射は表面で起こっているのではなく金属箔内の原子によるものであり、しかも1回衝突の結果であることがわかる。

当時、高速の放射線粒子が原子により散乱される際にはそのほとんどは前方散乱であり、散乱角が大きくなるのは多重衝突により小角散乱が重ね合わさった結果であると考えられていた。Rutherford は、しかしそれでは大角散乱の確率が小さくなりすぎることで、また実験の結果からも1回散乱でなければならないことに気がついた。彼はこの実験結果の解釈に2年を費やし、到達した結論を1911年に発表した[2]。彼は問題の散乱を、原子内の電荷（点電荷と仮定する）によるアルファ粒子のクーロン散乱とし、その散乱微分断面積を導いた。もちろんまだ量子力学はできていないので、古典論を使った。その結果は

$$q(\theta) = \left(\frac{Zke^2}{2mv^2} \right) \left(\sin \frac{\theta}{2} \right)^{-4} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 ke はアルファ粒子の電荷、 Ze は散乱標的の電荷、 m はアルファ粒子の質量、 v はその速度である。（Rutherford の論文に与えられている式は微分断面積ではなく、直接実験で観測される散乱粒子の数なのでこの表式とは少し異なる。）

この式によれば、大角散乱の確率は小さいけれども決して無視できるほどではない。ここでとくに重要なことは、大角散乱が起こるときは入射粒子が標的のごく近くまでこなくてはならないことである。たとえば Z と k が同符号、すなわちクーロン斥力の場合、 $\theta = 180^\circ$ のときの最近接距離 (r_0) は次のことから簡単に求められる。すなわちこのときは衝突径数がゼロ

であり、 $r = r_0$ のところでは運動エネルギーはすべて位置のエネルギーに置き換わっている。したがって

$$r_0 = \frac{Zke^2}{\frac{1}{2}mv^2}$$

が得られる。いまアルファ粒子のエネルギーを 5 MeV とし、 $k=2, Z=79$ （金の場合）とすると、 $r_0 = 4.6 \times 10^{-12} \text{ cm}$ となる。すなわち散乱を起こす原子内電荷の大きさはこれ以下でなければならない。実験では $\theta = 180^\circ$ のものは観測されていないが、 $\theta = 90^\circ$ としても r_0 の値はそれほど変わらない。このことから Rutherford は、原子の中には電荷が点状に集中した部分があり（彼は決して「原子核」という言葉は使っていない）、アルファ粒子の散乱はその電荷によるのであろう、と結論した。なお公式(1) は Z の符号によらない。このことから Rutherford は、この実験では中心電荷の符号は決められないと述べている。

Rutherford は彼の解釈について、必ずしも十分に自信があったわけではないらしく、その妥当性をさまざまな角度から検討している。また当時出されていた原子モデルによって説明できるかどうかについても吟味を行っている。長岡半太郎の土星型モデルについても言及している。

§ 3. ラザフォード散乱公式の実験的検証

Geiger と Marsden は散乱公式(1) を実験的に確かめ、その結果を1913年に発表した[1]。その論文が本解説の主題である。この実験では次のことを調べた。

- (i) 散乱角依存性
- (ii) 散乱源である金属箔の厚さ依存性
- (iii) 散乱標的の原子量依存性

- (iv) 入射アルファ粒子の速度依存性
- (v) ある方向に散乱されるアルファ粒子の絶対量（これは散乱中心にある電荷の値を決めるのが目的）

ここでは主として (i) と (iv) の結果を紹介する。

まず散乱角依存性であるが、その測定に用いた装置を図2に示す。散乱角をきちんと決めるためには、入射粒子を細いビームにして衝突させる必要がある。そのために、線源(R)を直径1mmのガラス管に入れ、さらにその前に絞り(D)を置いてビームが箔(F)に直角に当たるようにした。散乱粒子の検出装置（硫化亜鉛のスクリーン(S)と望遠鏡(M)）は回転する台(A)に載せてあり、観測する角度を変えられるようにしてある。散乱公式から分かるように、角度の小さいときと大きいときとでは散乱されてくる粒子の数が大幅に異なる。そこで、角度の小さい領域と大きい領域とを分けて測定した。実際に測定されたシンチレーションのカウンタ数は数個から十数万個の範囲である。これがどれくらいの時間範囲での測定であるかは明らかでないが、1分間に90個以上になるか、5個以下になると測定が困難になると書いてある。角度は5°から150°の範囲で変え、金と

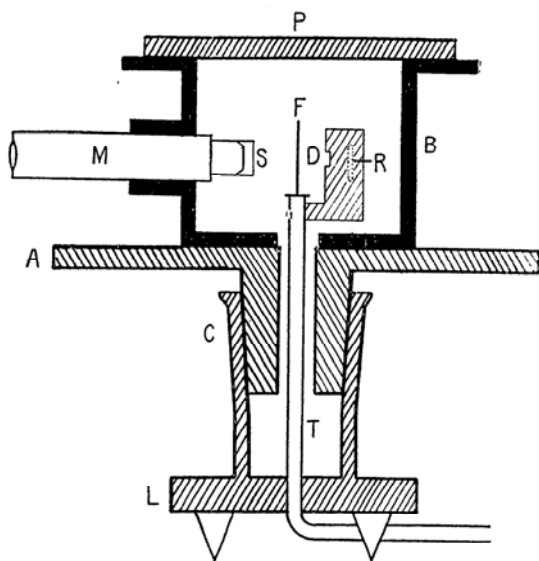


図2 散乱角分布を測定した装置（文献[1]より）。

銀の箔について測定が行われた

結果は表として与えられているが、見やすいようにグラフにしたものを図3に示す。これは標的が銀の場合である。相対的な関係しか意味がないので、グラフにはまず $(\sin \frac{1}{2}\theta)^{-4}$ の線を引き、測定値は大角領域（○印）では60°、小角領域（×印）では15°のところその線にのるように規格化して図示した。実験は散乱公式が示す角度依存性をよく再現している。実測値は5桁もの範囲にわたっている。それだけ広い範囲のデータをこれだけの精度で測定できたということは、見事としか言いようがない。ましてやエレクトロニクスもコンピュータも使わず、まったくの人手による測定であることを考えると、驚くばかりである。

次に、速度依存性の実験をみてみよう。速度依存性を測るためには、まず入射アルファ粒子の速度を変えることができないとなければならない。次にその速度の（少なくとも相対的な）大きさを定量的に知る必要がある。速度を変えるために、Geiger と Marsden は線源の前にマイカを置き、それによる減速を利用した。マイカの厚さを変えることで、アルファ粒子の速度を変えることができる。ビームの速度を定量的に決めるには、そのビームの飛程（range）を測定した。アルファ粒子の速度 v と 飛程 R の間に

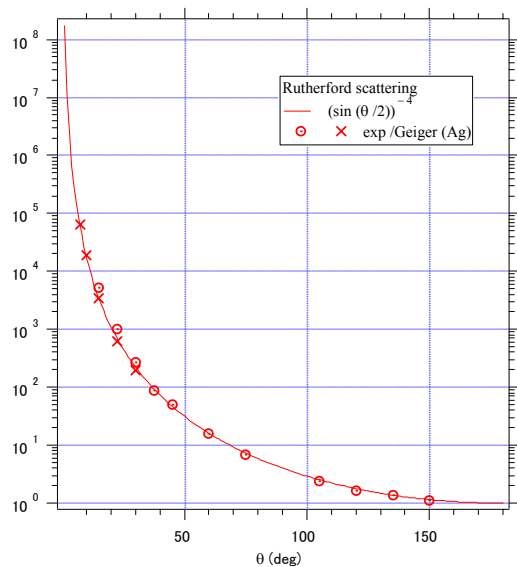


図3 散乱角分布の実測値と公式(1)の比較。

は

$$R = av^3$$

の関係があることがすでに知られていた[5].
そこで速度 v の代わりに $R^{1/3}$ を使う. 実験結果はやはり表で与えられているが, 図にしたものを図 4 に示す. 横軸は $R^{1/3}$ を目盛ったものであるが, これはアルファ粒子の入射速度の相対値を表す. 縦軸には反射粒子によるシンチレーションの数をとる. ここでも相対的な関係のみが意味があるので, まず v^4 の線を引き, 測定された v の最大のところでこの線に合うように, シンチレーションの測定値を規格化して示した. この実験では速度の大きさを高々2倍程度しか変えられなかった. それでも4乗すると一桁くらいの違いになる. その範囲での実験であるが, 実験値の速度依存性は散乱公式のそれと良く一致している.

最後にその他の実験結果について簡単に触れておこう. まず, 金属箔の厚さを変えた実験から, アルファ粒子の反射は1回衝突によることを確かめている. 次に, 散乱標的の電荷がどれだけかを知りたい. ボーアの原子模型はまだないので, 原子の中心にどれだけの電荷があるかは分かっていない. 原子について分かっているのはその質量 (A) のみである. そこで箔の材料を変えて, 散乱粒子の数が A とどのよう

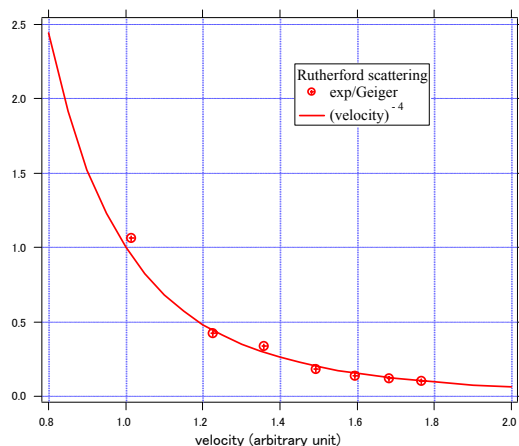


図 4 速度依存性の実測値と公式(1) の比較.

な関係にあるかを調べてみた. その結果, 標的原子 1 個あたりの散乱強度はほぼ A^2 に比例して変わることが分かった. 次に散乱確率の絶対値を求める試みがなされた. これは確率そのものが極めて小さいので困難であったが, Z が現在「質量数」として知られている量のほぼ半分であることをつきとめた. ただし, これはアルミより重い原子について成り立つとしている.

このようにして Rutherford の導いた散乱公式(1) はほぼ完全に実験で証明された. むろん細かいことをいえば, さまざまな問題がある. 測定されたビームの速度範囲は大変狭いものであり, そのビームの質も決して良いものではない. そもそも入射粒子も標的も完全な点電荷ではないので, 厳密にはクーロン散乱の公式には従わずそれからはずれがあるはずである. いずれにしろ, Geiger と Marsden のこの実験はビームを用いる現在の原子衝突実験の原型をなすものといえる. ビーム実験に必須の要素はすべてここにみることができる. その意味で, 原子衝突実験に携わる人は一度はこの論文を読んでみる価値があるのではないだろうか.

参考文献

- [1] H. Geiger and E. Marsden, *Phil. Mag.*, **25**, 604 (1913).
- [2] E. Rutherford, *Phil. Mag.*, **21**, 669 (1911).
- [3] Rutherford の伝記としては, たとえば, John Campbell, “Rutherford: Scientist Supreme” (AAS Publishers, 1999).
- [4] H. Geiger and E. Marsden, *Proc. Roy. Soc. A*, **82**, 495 (1909).
- [5] H. Geiger, *Proc. Roy. Soc. A*, **83**, 505 (1910).

シリーズ 原子衝突実験の歩み

—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

第2回 フランク - ヘルツの実験

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成18年2月6日原稿受付

§ 1. はじめに

今回とりあげるのは James Franck と Gustav Hertz による、いわゆる「フランク - ヘルツの実験」である [1]. 物理学を学んだことのある人なら、おそらく誰でもこの実験のことは知っているに違いない. 最近のことは知らないが、かつては高等学校の物理の教科書にも載っていたくらいである. Franck と Hertz はこの実験により 1925 年度ノーベル物理学賞を受賞した. その受賞理由は「原子と電子の衝突を支配する法則の発見」となっている. すなわち、文字通り原子衝突の研究でノーベル賞をもらったのであり、本シリーズに欠かすことはできない.

この実験が行われた当時、Franck はベルリン大学の助教授であり、Hertz はその助手であった. Franck はその後ゲッチンゲン大学に移り、理論家の Max Born とともに同大学の物理教室を盛り立て、多くの弟子を育てた. しかしナチスの支配を嫌って米国に渡り、その後長くシカゴ大学で活躍した. 一方、Hertz はベルリン大

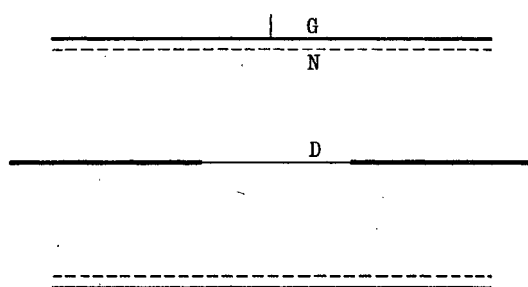


図1 フランク - ヘルツの実験の装置(文献[1]より).

学やいくつかの民間会社の研究所で働いた後、戦後はソ連や東独で活躍した. なお彼は、周波数の単位に名を残す Heinrich Hertz の甥である.

§ 2. フランク - ヘルツの実験とその(世の中に認められている)解釈

図1は論文に描かれている実験装置の図である. Dは白金線でできたフィラメント兼用の陰極である. Nは白金でできたメッシュ状のグリッドで、Gは陽極としての白金箔でガラス管に貼り付けてある. DN間の距離は4 cm, NG間の隙間は1-2 mmである. ガラス管の中に水銀蒸気を満たしてあるが、装置全体をパラフィン浴に浸して温度を制御することにより、水銀の蒸気圧を一定に保つ. 実験は110-115 °Cで行った.

フィラメントから放出された電子は DN 間にかけた電圧 (V) で加速する. 一方、NG 間には逆の電圧をかけて、電子の一部を追い返す. いま追い返し電圧を一定 (0.5 ボルト程度) に保ったまま、V を変えたときに陽極 G に流れる電流 (I) の変化を測定する. その結果が図2である. この結果について広く認められている(教科書などに載っている)解釈は次のようなものである. (後で述べるように論文の中で著者たちが述べている解釈はこれとは異なる.)

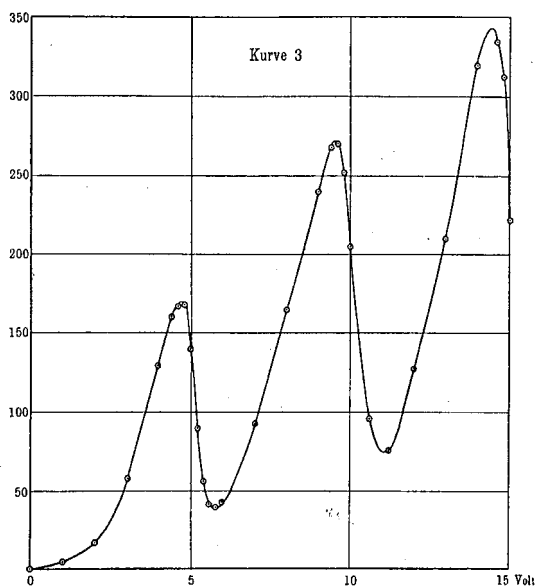


図 2 フランク - ヘルツの実験の水銀についての結果. 横軸は電子の加速電圧, 縦軸は陽極に流れ込む電流 (文献[1]より).

電圧 V とともに電子は加速され, 電流 I は増加する. 電子のエネルギーが水銀原子を励起できる最低の値 (ΔE とする) を超えると, 励起が起こる. すると電子のエネルギーは ΔE だけ減り, 追いつき電圧を超えられなくなって, 陽極には到達できない. さらに V が増加すると, やがて電流は増えるが, $2\Delta E$ のところで再び励起が起こり, また I は減少する. すなわち V の関数としての I は ΔE の間隔で極大を繰り返す. このようなことが起こるのは原子のエネルギー準位がとびとびである (ΔE が離散的な値をもつ) からであり, この実験はボーアの原子模型の証明 (の一つ) となる.

§ 3. フランク - ヘルツ自身による解釈

Franck と Hertz は, ボーアの原子模型を知っていてその検証のためにこの実験を行った, のではない. そもそも彼らの論文のタイトル (原文はドイツ語) は

「電子と水銀蒸気分子の間の衝突, およびその分子のイオン化ポテンシャル」
というものである. (分子 (molecule) という

言葉の意味は「1 個の独立の粒子として行動する原子の結合体」(岩波理化学辞典) であり, かつてはその定義が厳密に守られていた. すなわち, ここでいう「水銀分子」とはいわゆる水銀原子のことである) 当時, 原子分子のイオン化ポテンシャルはそれら原子分子に固有の物理量であり, それを正しく知ることは原子分子の構造の理解にとって大変重要であると考えられていた. (もちろん, 今でもそうである) Franck と Hertz はすでに種々の気体原子についてイオン化ポテンシャルを決める実験を行っており, 同様の手法を金属蒸気原子に応用してみようと考えたのである.

彼らは前節で述べた一般的な解釈と同様な解釈をしたが, 励起ではなく水銀のイオン化が起こる (ΔE はイオン化ポテンシャルに相当する) と考えた. 論文の最後に結論が述べられているが, 「本実験により水銀のイオン化ポテンシャルが 4.9 eV であることがわかった」と明記している. つまり, 今から見れば間違った結論が彼らの論文には書かれているわけである.

(なお現在の知識によれば, 水銀のイオン化ポテンシャルは 10.4 eV である)

ところで, Franck と Hertz はボーアの理論を知らなかったのだろうか. ボーアが彼の原子模型を発表したのは 1913 年であり, フランク - ヘルツの実験が発表されたのはその後 (1914 年) である. 仮に論文は読んでいなくても当時のベルリンは物理学研究の中心であり, 大きな話題になっていたに違いない. しかし Franck は実験当時ボーアの模型のことはまったく知らなかったと, 後で述べているそうである. 彼が言うには, ボーアにより解決された原子のスペクトル線の謎について, 誰もそう簡単に解けるとは思っていなかったもので, 誰かがそれを解決したといっても, 信じる人はいなかった. おそらく Franck と Hertz も話は聞いていたであろうが, まったく無視していたのであろう. 彼らは後にボーアの論文を読んで, 彼らの実験がイオン化ポテンシャルではなく, 励起エネルギーを決めたことになっているのに気づいた.

(ボーア自身からもそのようなコメントをもらったそうである)そこでそのことを実験的に証明する(たとえば,最初のピークのところでは正イオンが発生しないことを確かめる)ことを企てたが,第1次大戦などの理由で実現しなかった。

いずれにしても,結論の間違った論文を書いてノーベル賞をとったというのは,大変珍しいことではないだろうか。

§ 4. 本当は何が起きているのだろうか

筆者だけの個人的な感想かもしれないが,フランク-ヘルツの実験(以下FH実験と略す)はよく考えると不思議な実験である。原子の励起状態を調べるのに現在用いられる手法として電子のエネルギー損失スペクトルを測る方法がある。それと比べるとFH実験の不思議さがよくわかる。

- (1) エネルギー損失スペクトル法では,エネルギー一定の電子ビームが衝突領域で1回衝突してエネルギーを失い,その後はエネルギーを変えずに測定器に入る。FH実験では,全空間にわたって電場がかかっており電子は連続的に加速または減速される。
- (2) 図2の解釈に従えば,励起を起こす衝突は複数回繰り返される(1回衝突ではない)。
- (3) 衝突としては,励起のほかに弾性衝突があるはずである。特に水銀の場合,低エネルギーでは弾性衝突断面積が極めて大きい(図4参照)。この影響はどうなるのだろうか。
- (4) 以上のことを考慮すると,電子のエネルギーは単色ではなく分布をもっている。しかもそのエネルギー分布は場所によって異なる。
- (5) そもそも水銀の励起状態は一つではない。
- (6) 電子のエネルギーが高くなるとイオン化

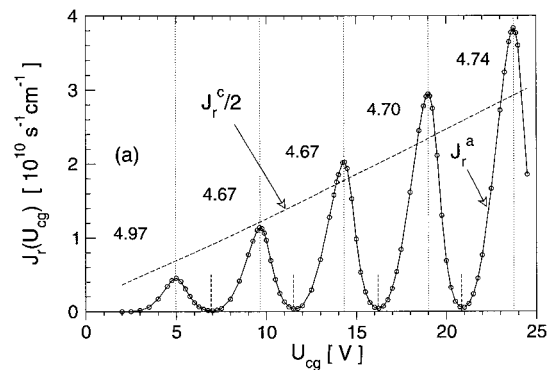


図3 Sigenger らによるモデル計算の結果[3]. 横軸は電子の加速電圧, 縦軸は軸方向単位長さあたりの電子フラックス(動径方向)である。 J_r^a は陽極のところ, J_r^c は陰極を出たところ, のフラックスであり, 前者が陽極に流れ込む電流をあらわす。

も可能になる。なお,イオン化によるエネルギー損失はしきい値の上では連続的である。

これらのことから, FH 実験はいわゆるスウォーム実験 [2]と同じであることがわかる。陰極から出た電子は,外からかけられた電場による加速を受けながら水銀原子との衝突を繰り返し,定常的な速度(エネルギー)分布をもって流れていく。ただ単純なスウォーム実験と異なるのは,電場が空間的に一様でなくグリッドの左右で向きが反転していることである。もっと正確に言うと,グリッド周辺に電子にとってのトラップが形成されており,エネルギーの小さい電子は一定の割合でグリッドに吸収される。

スウォーム実験における電子の速度分布を理論的に求める手法は確立されており,それを使えば FH 実験の詳細がわかるはずである。そのような試みが最近なされたので,以下その結果を紹介しよう。詳細は省略するが, FH 実験に似た装置を考え Sigenger ら [3]はその中で電子の速度分布を,ボルツマン方程式を解くことにより計算した。得られた速度分布は場所の関数であり,陽極の位置における速度分布からそこへ流れ込む電流を求めた。追い返し電圧を 1.5 ボルトに固定し加速電圧を変えたときの陽極電流の変化を図3に示す。水銀原子の密

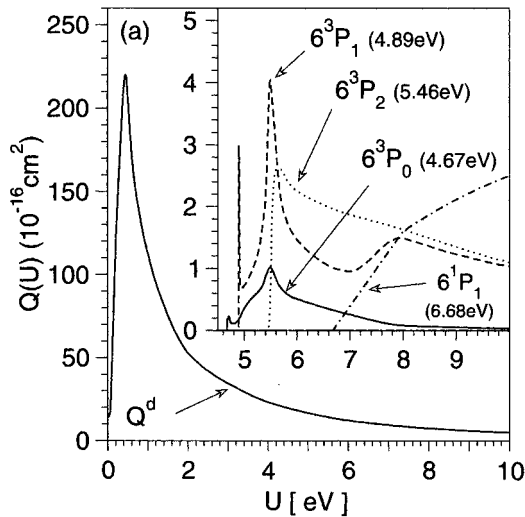


図4 電子と水銀原子の衝突に対する断面積。 Q^d は弾性散乱運動量移行断面積。挿入されている図は、水銀原子の下から4個の電子状態についての励起断面積、括弧の中にそれぞれの励起エネルギーを示す。横軸は電子の衝突エネルギー。(文献[3]より)

度は $1.84 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (180 °C の蒸気圧に相当)とした。水銀密度を変えた計算も行ったが、似たような結果が得られている。なお電子と水銀原子の衝突としては、弾性散乱と励起を考え、イオン化は(しきい値が高いので)無視した。計算で用いられた断面積を図4に示す。計算の結果はFH実験の場合(図2)と同様に、一定の間隔で電流が極大を繰り返す。しかもその間隔は、水銀原子の最低励起エネルギー 4.67 eVに近い。

さてこの計算結果の解釈は実はそう簡単ではない。文献[3]ではさまざまな物理量が同時に計算されているので、それらを参考にして、筆者なりに簡単にまとめると次のようになる。陰極を出た電子は加速され、励起可能なエネルギーに達すると水銀を励起してエネルギーを失う。しかし、やがてまた加速され、励起が可能となる。すなわち、励起が盛んに起こる空間領域とほとんど励起が起こらない領域とが交互に縞模様のように陰極—グリッド間に存在する。加速電圧が小さいと縞は一つしかできないが、電圧があがるにつれて縞の数は増える。いま、励起領域のピークがトラップ領域の陰極

側の端にかかっていると、励起を起こした後の電子の多くがトラップされて陽極まで届かない(すなわち電流は極小になる)。電圧が上がると、励起領域は陰極方向に移動しトラップ領域からはずれ、それとともに陽極電流は増加に転ずる。一方、次の励起領域がグリッド近くに形成されはじめそのピークが最大になったとき(すなわち、グリッド直前で励起が大量に起こり始めたとき)電流はふたたび減少を始める。さらに電圧の増加とともに励起領域は陰極方向に移動するが、トラップの陰極側の端まで来たときまた電流は極小になる。かくして陽極電流は極大・極小を繰り返すことになる。その原因は励起の起こる領域が空間的にとびとびにできることであり、もとをただせば原子の励起状態が離散的であることによる。ただし図3の最も左側のピークの生成機構は単純ではなく、弾性衝突と励起衝突の兼ね合いで形成される。実際、そのピークの位置は2番目以降のピーク間隔とは少し異なる。またその値は水銀の密度に依存することが計算で明らかにされている。密度が高いと、弾性衝突の効果が増して励起の効果が現れにくくなり、加速電圧がかなり大きくなると電流がピークにならない。なお、水銀の励起状態は複数個あり計算でもそれが考慮されているが、電流のピーク間隔からはそれが一つしかないかのごとくに見える。これについては詳しい吟味がなされていないので、その原因はよく分からない。

以下は筆者の推測である。FH実験がうまくいって物理学的に大変意義のある結果をもたらしたのは、ひとえに水銀を標的として使ったからであろう。水銀の励起状態は5-7 eVの辺りに励起の起こりやすい状態が集中しており、一方イオン化ポテンシャルはそれよりはるかに高い10.4 eVである。また低エネルギーでの弾性散乱断面積が非常に大きくそれに対する平均自由行程はきわめて短い、励起に対するそれは装置のサイズとそれほど変わらない。また水銀の蒸気圧は容易に高くすることができ、不純物の影響を相対的に小さくすることが

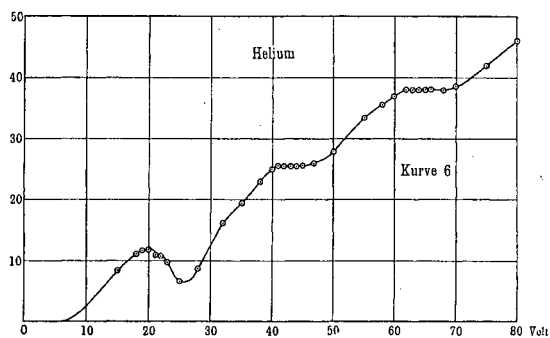


図 5 フランク - ヘルツの実験のヘリウムについての結果. 横軸は電子の加速電圧, 縦軸は陽極に流れ込む電流 (文献[1]より).

できる. これらのことが重なって, 水銀の場合にははっきりした繰り返しピークが出現したのであろう.

このように考えると, すぐに思いつくことは他の原子で実験したらどうなるかということである. 実は Franck と Hertz の論文にはヘリウムについての同様の実験の結果が報告されている. 図 5 にそれを示す. これをみると, 約 20 ボルトおきにピークが見られるが, その繰り返しははっきりしない. Franck と Hertz はその原因として, ヘリウムのイオン化ポテンシャルが高く, それ以下でイオン化してしまう原子 (や分子) がいろいろあり, それらが不純物として混ざった結果であろうとしている. 筆者の推測では, ヘリウムの励起状態はイオン化のしきい値の比較的近くにあり, また弾性散乱の断面積がそれほど大きくはなくて励起断面積とあまり変わらないことなどが, ヘリウムの場合に電流のピークがはっきり見えない原因ではないだろうか.

Franck と Hertz は, 幸いなことにたまたまとりあげた水銀の実験で見事な結果を得た (あるいは, いろいろ試してみて最もきれいな結果が得られた水銀についてのみ論文を書いたのかもしれないが). もしもヘリウムのデータのみだったら, ノーベル賞は難しかったかもしれない.

参考文献

- [1] J. Franck and G. Hertz, Verhand. Deut. Physik. Ges., **16**, 457 (1914).
- [2] R. W. Crompton, Adv. At. Mol. Opt. Phys., **33**, 97 (1994).
- [3] F. Sigenege, R. Winkler, and R. E. Robson, Contrib. Plasma Phys., **43**, 178 (2003).

シリーズ 原子衝突実験の歩み
—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

第3回 ラムザウアー効果

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成 18 年 5 月 5 日原稿受付

§ 1. はじめに

量子力学が出来上がる前に、粒子が波動性をもつと仮定しないと理解できない結果が原子衝突の実験で得られていた。いわゆる「ラムザウアー効果」を発見した Carl Ramsauer の実験がそれで、今回はこの実験を取り上げる [1]。Ramsauer はドイツのオルデンプルクで生まれ、キール大学で学位をとった後、ハイデルベルク大学放射線研究所の Philipp Lenard の下で電子衝突の研究を開始した。やがて、AEG (ドイツの総合電気メーカー) の研究所設立に加わり、物理部門のリーダーとなった。第二次大戦中は AEG を通じて軍事研究に従事し、1941年にはドイツ物理学会の会長に就任した。戦後は物理教育と科学史の研究で過ごしたそうである。

§ 2. ラムザウアーの実験

衝突断面積を求める方法にビーム透過法を用いて全散乱断面積を測るものがある。図1にあるように標的気体を詰めた箱にエネルギー一定の粒子ビームを入射し、その気体を透過することによるビーム強度の減衰を測る。気体透過前後のビーム強度をそれぞれ、 I_0 、 I_1 とするとその比は

$$\frac{I_1}{I_0} = \exp(-nQL) \quad (1)$$

で与えられる。ここで n は気体の密度、 L は箱

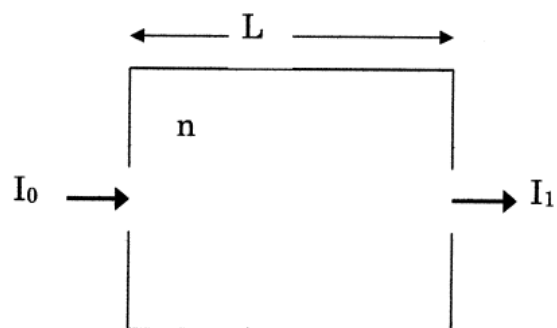


図 1. ビーム透過法のご概念図.

の長さ、 Q は全散乱断面積 (すなわち、あらゆる散乱過程の断面積の和) である。(1)式を用いれば I_0 、 I_1 の測定から断面積 Q が求まる。この方法は簡単なので、衝突断面積を実験的に求める (しかも絶対値が得られる) 方法として、古くから

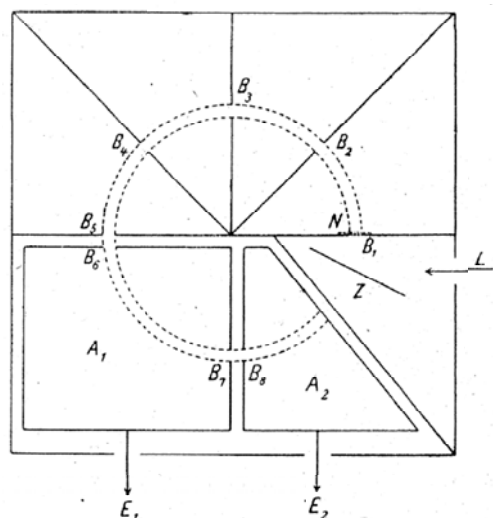


図 2. Ramsauer がビーム透過法で断面積を求めた装置 [1].

使われてきた。

Ramsauer はいくつかの希ガス気体と電子の衝突についてこの方法を適用した [1]。彼の用いた装置を図2に示す。この装置には紙面に垂直に磁場がかかっている。亜鉛板 Z に光を当てて発生させた電子を、スリット B₁ のところにあるメッシュ電極 N と Z の間に電圧をかけて加速する。電子は円軌道を描くが、磁場の強さによって決まるあるエネルギーをもつものだけが次々とスリットを通り抜けて、衝突箱 A₁ に入る。衝突せずに残った電子は A₂ に入るが、A₁ A₂ に流れ込む電流をそれぞれ E₁ E₂ とすると、E₁ + E₂ および E₂ が (1) 式の I₀ I₁ に相当する。電子の中には衝突後もビームから外れずに外に出てくるものがある (前方散乱の寄与)。Ramsauer の装置はエネルギー分析器も兼ねているので、非弾性衝突による前方散乱は除くことができる。弾性衝突による前方散乱はこの場合にはあまり大きな寄与をしない。

実験の結果を図3に示す。図の縦軸は Q であるが、「衝突確率 P_c。」というもので表してあり、両者は $Q = P_c \times 0.2828 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ の関係にある [2]。また横軸には電子の速度を目盛ってある。この図から、Ar の場合には電子エネルギーの減少とともに断面積が減少し、測定された最小のエネルギー (約 1 eV) のところで最小値をとることが分かる。

実は当時すでにビーム透過法による断面積の

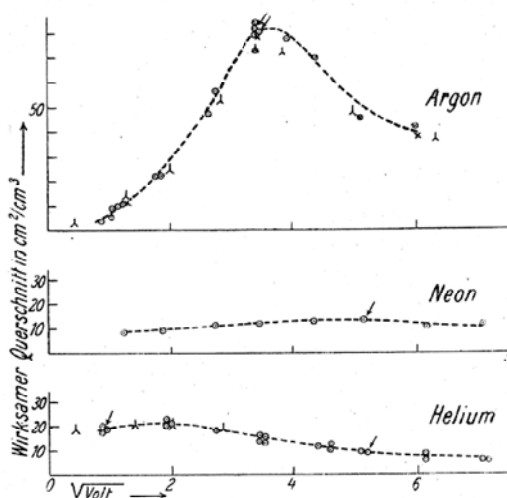


図3. Ramsauer の実験. He, Ne, Ar の結果 [1]

測定がいくつか報告されていた。それによると、電子エネルギーを 100 eV の辺りから下げていくと断面積は次第に大きくなり、エネルギーゼロの極限で一定値に近づくと言われていた。ただ実験によっては、断面積がピークをもち、エネルギーを下げて断面積が小さくなるものもあると報告していた。Ramsauer はこれらのことをよりいい実験で確かめようとしたのである。その結果、少なくとも Ar ではエネルギー低下とともに断面積が減少し、1 eV 付近ではきわめて小さい値をもつことが確定した。

§3. 実験の反響と解釈

断面積が小さいということは、電子があたかも衝突がないかのごとく気体中をすり抜けることを意味する。古典的な衝突概念しかなかった当時の人はこれを聞いて大変びっくりした。たとえば、ドイツ物理学会の会場で Ramsauer の講演を聴いた James Franck (フランク-ヘルツの実験のフランク) はそのおどろきを Niels Bohr に次のように書いている [3]

In Jena I was particularly interested in a paper of Ramsauer that I am not able to believe, though I cannot show any mistake in the experiment. Ramsauer obtained the result that in argon the free path lengths are tremendously large at very low velocity of electrons...If this result is right, it seems to me fundamental.

この手紙を読んだ Bohr はさすがに何かあると直感し、大変興味があるのでさらに何か分かたらずに教えてほしいと書いている。一方、Franck の同僚の理論家 Max Born は、こんな馬鹿げた話はない、何かの間違いだろうから実験で確かめた方が良く、と言ったという。しかしやがて Gustav Hertz (フランク-ヘルツの実験のヘルツ) が再実験をして、Ramsauer の結果は間違いのないことを確かめてしまった。また Ramsauer らはさらに実験を行い、Ar だけでなく Kr や Xe でも同じことが起こること、電子エネルギーを低くするとあるところで断面積が極小になること、などを発

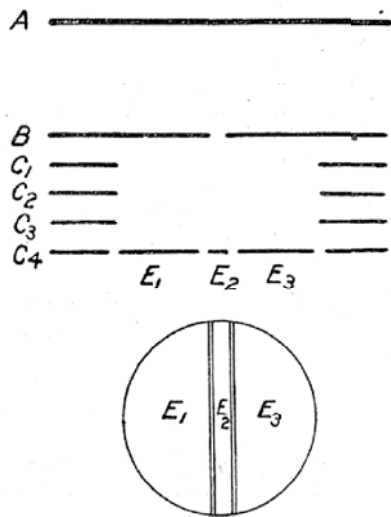


図4. Townsend のスウォーム実験の装置 (文献 [7] より)

見した. 現在では, この「ラムザウアー効果」は粒子の波動性によるとして理解されている [4]. そのことを理論的に初めて証明したのはノルウェーの理論家 Holtsmark [5] で, 彼は部分波展開の方法を使って断面積を計算し, 電子が原子の近くに来たときに原子を分極する効果を考慮すると Ramsauer 効果が Ar の場合に現れることを示した. ちなみに, de Broglie が粒子の波動性を提唱したのは1924年である.

§4. タウンゼントの実験

Ramsauer の実験が行われていたのとまったく同じ頃に, イギリスはオックスフォード大学の John S. Townsend らは以下に述べるようなスウォーム実験を行っていた [6]. 彼らの実験装置を図4に示す [7]. 金属板 A に紫外線を当てて電子を放出させる. B に開けたスリットを通してその電子を電極 E へ向けて流す. BE 間には一様な電場がかかっている. 電極 E は3分割してあり, それぞれに流れ込む量を測る. 電子は気体原子と衝突しながら全体としては電場方向に流れていく (ドリフト) が, 同時に電場と垂直な方向に広がる (拡散). そこで, 電子のドリフト速度や拡散係数を測れば, それらから電子・原子衝突に関する情報が得られるはずである. これがスウォーム実験の

原理である [8]. 実際には電子の速度分布を決めなければならないなど複雑な手続きが必要なので, 断面積を求めることはそれほど簡単ではない (現在ではある程度ルーチン化されている). Townsend らは, 近似理論を使ってドリフト速度や拡散係数を平均自由行程 λ で表す式を導き, 断面積ではなく λ (実際には電子の速度分布で平均したもの) を求めた. 彼らのアルゴン, 窒素, 水素についての実験結果を次表に示す.

$\langle E \rangle$ (eV)	λp (10^{-2} cm Torr)		
	Ar	N ₂	H ₂
5.57	10.8	2.85	4.35
4.09	16.8	2.86	3.32
2.84	26.9	2.71	2.52
2.05	36.3	2.68	2.25

ここで $\langle E \rangle$ は電子の平均エネルギーであり, また λ は圧力 p に逆比例するので, λ に p を掛けたものを示してある. この結果によると, Ar の場合には電子のエネルギーが下がると平均自由行程が大きくなる. すなわち, 電子は衝突しなくなる. これは Ramsauer が得た結果と同じことである. ただしこの表にはないが, もっとエネルギーを下げると, 窒素でも水素でも平均自由行程が伸びると論文には書いてある. Townsend らの論文には, すでに彼らは Ramsauer の実験を知っており, Ar については同じ結果が得られたが, 他の気体でも同様な結果が得られたのでその点で異なる, と明記している.

このように, 多少問題はあるものの Townsend らも Ramsauer と同じ効果を見つけていたわけである. したがって, 正しくは「ラムザウアー・タウンゼント効果」と呼ぶべきだと云う人もいる. 特に英国系の人には必ずそのように呼んでいる. しかし, 文献 [3] の著者によれば, 同じようなことを見つけた人は他にも居り, それをいうなら Åkesson - Ramsauer - Mayer - Townsend effect とするべきだそうである.

§ 5. おわりに

AEG に移った Ramsauer はその後も精力的に原子衝突の実験を続けた. さまざまな原子分子について全散乱断面積の測定を行い, その多くについて「ラムザウアー効果」を見出した. さらには弾性散乱の微分断面積の測定も行った [9]. これはおそらく世界ではじめて微分断面積そのものを測った実験であろう. 図5にその測定装置を示す. 実際の装置はこの図を $x-x$ を軸として回転した形になっている. 左から加速されて入ってきた電子は S で気体原子と衝突し, 散乱されたものを 11 分割した電極で測定する. すなわち 11 の散乱角における微分断面積を同時に測ることができる. 1-10 eV 程度の電子を用いて, He, Ne, Ar, H₂, CO, CO₂ についての微分断面積を求めた. そのうち, Ar の結果の一部を図6に示す. ここでは最近の交差ビーム法を使った実験結果 [10]と比較してある. Ramsauer らの実験は相対測定なので, 図では 90 度のところで規格化したものを示してある. 前方および後方の散乱を除けば, 一致はそれほど悪くない. 散乱角の小さいところおよび大きいところでは衝突領域の評価にあいまいさがつきまとうので, 誤差が大きくなるのであろう.

1930年代前半は Ramsauer のほかにもいろいろなグループが実験を行い, 原子衝突研究のひとつの頂点を迎えた感がある(ちなみに Mott & Massey の有名な衝突理論の教科書の初版が発行されたのは1933年であった). その後, 戦争の影響や, 物理学者の目が新たな研究対象となっ

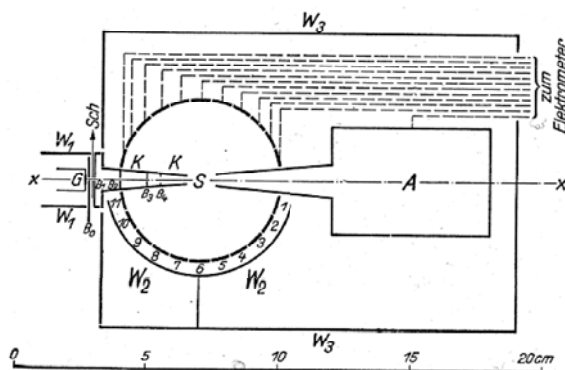


図 5. Ramsauer が微分断面積の測定に用いた装置 [9]

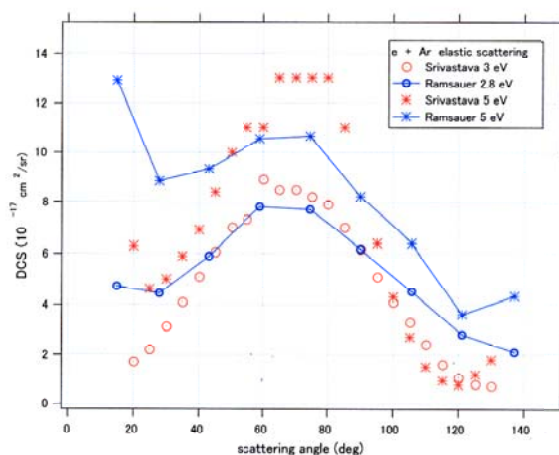


図 6. Ramsauer が求めた Ar の弾性散乱微分断面積 [9]. Srivastava ら [10] の交差ビーム法による結果と比較してある.

た原子核に向けたため, 原子衝突の研究はやや下火になる. それが再び盛んになるのは Schulz が共鳴現象を原子衝突にも見つけた1960年代初めである. これについては, 本シリーズでもいずれ取り上げることになる.

参考文献

- [1] C. Ramsauer, Ann. d. Phys. 66, 546 (1921).
- [2] 高柳和夫, 電子・原子・分子の衝突 [改訂版] (培風館 1996) p. 4.
- [3] G.S. Im, Hist. Stud. Phys. Biol. Sci. 25, 269 (1995).
- この論文は, ラムザウアー効果が発見され確かめられていく過程を詳しく調べ, その科学的意義を論じたものである. 本稿の執筆に当たって大変参考になった.
- [4] 文献 [2] p. 42.
- [5] J. Holtsmark, Z. f. Phys. 55, 437 (1929).
- [6] J.S. Townsend and V.A. Bailey, Phil. Mag. 43, 593 (1922).
- [7] J.S. Townsend and V.A. Bailey, Phil. Mag. 42, 873 (1921).
- [8] R. W. Crompton, Adv. At. Mol. Opt. Phys. 33, 97 (1994).
- [9] C. Ramsauer and R. Kollath, Ann. d. Phys. 12, 529 (1932).
- [10] S.K. Srivastava, H. Tanaka, A. Chutjian, and S. Trajmar, Phys. Rev. A 23, 2156 (1981).

シリーズ 原子衝突実験の歩み

—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

第4回 「化学反応の微細構造に関する研究」

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成18年6月6日原稿受付

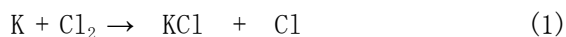
§1. はじめに

気相中の化学反応は原子衝突の一種である。化学反応を原子衝突として微細に観察し、その機構を理解しようと考えた化学者が戦前の京都大学にいた。そのことを目的として分子線の実験を行った佐々木申二である [1]。今回は彼の研究を紹介する。佐々木申二は終戦直前の1944年に学士院賞をもらったが、そのときの受賞題目が表題に掲げた「化学反応の微細構造に関する研究」である。

今回は原論文も参照するが主として佐々木による解説 [2] に基づいて本稿を執筆する。これは彼が学士院賞受賞の際に京都大学で行った講演である。原子衝突の研究をする理由、その原理などが、一般向けに大変分かりやすく書かれている。文章は古風であるが内容は決して古くない。若い人やその教育に当たる先生方には是非読んでもらいたい。幸い現在では web で見るができる。

§2. 分子線の実験

ここでは反応の起こりやすいアルカリとハロゲンの反応



を原子衝突として調べる。そのためにはまずカリウム原子のビーム(分子線)を作る必要がある。これは、カリウムを炉で熱して小穴から噴出させれば得られる。このビームを Cl_2 を詰めた箱に入射し一定距離走らせてその強度の減衰を測る。すなわち、本シリーズ第3回で紹介したビーム透過法を用いて断面積を決める。このようにして求まるのは全散乱断面積であるが、上記の反応は起こりやすいので衝突のほとんどは反応(1)であろうと考えた。ビーム透過法を適用するにはビーム強度を定量的に知る必要がある。幸いにして、アルカリ原子は熱した金属に当たると容易にイオン化することが知られていた。そこで熱したタングステン線にカリウムビームを当てて出来たイオンを電流として測定すれば強度が分かる。ビーム透過法の良いところは、強度の絶対値を知る必要はなく、どれだけ減衰したかの割合(相対値)が分かればよいことである。

実験で得られた断面積の値を次の表に示す。

表1. カリウムとの衝突断面積(単位は 10^{-16} cm^2)

Ar	H ₂	N ₂	O ₂	Cl ₂
452	191	468	460	573

比較のために反応が起こらないと考えられる水素、窒素、酸素、アルゴンについても結果を示してあ

る. 実は論文 [1] には塩素との衝突についてはデータが与えられていないが, ここでは解説 [2] に掲載されている表からデータをもってきた. また, 佐々木は実験値として衝突半径を与えているが, 分かりやすいように断面積に直してここには示してある. さらに, 原論文では前方散乱に対する補正がなされているが, ここではそれは無視した.

§ 3. 結果の解釈

結果を見ると, 反応が起こって断面積が大きくなると予想された塩素についても, 他の原子分子と同程度の値しか得られなかった. 佐々木はこのことについて事実を述べるだけで, 特に何も考察していない.

さて現在の知識に基づいてこの結果をどのように解釈したらよいのだろうか. 筆者はこの方面についてはあまり詳しくないので, 正しい答えを与える自信はないが, とりあえず次のように考えてみた. まず実験の信頼度を確かめるために最も単純な系である $K + Ar$ をとりあげてみよう. この系については当時すでに他にも実験があり, 似たような結果が得られていると論文 [1] にも述べられている. 1959年に Rothe と Bernstein [3] は多数の原子分子と K (および Cs) についてビーム透過法の実験を行った. その際, 測定の基準として $K + Ar$ をとりあげ, それとの比で他のデータを与えている. $K + Ar$ については断面積の絶対値を理論的, 実験的に求めている. 理論は, ファンデルワールス力を仮定して, 半古典論を適用した. 結果は $461 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ で, 佐々木の実験値と良く一致している. ただし, どういうわけか, Rothe と Bernstein の実験値はそれよりかなり大きい.

ところで反応 (1) の断面積は現在では分かっている. たとえば, Levine と Bernstein の教科書 [4] ではその値は $154 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ で表1の値よりかなり小さい. そこで考えられることは, $K + Cl_2$ でも衝突の大部分は弾性散乱で, 反応はそれに比べて少ないので, 全散乱断面積には現れてこない. これでよいのかどうか, 是非専門の方のご意見を伺いたい. [5]

§ 4. 電子衝突の実験

佐々木は電子衝突の実験も行っている [6, 7]. 水素分子に電子ビームを当てて解離性イオン化



を起こす. このとき原子イオン (H^+) はどの方向に飛び出すだろうか. (なお, 以下方向はすべて入射電子ビームの方向に相対的に測る.) 気体中の水素分子は勝手な方向を向いている. そこで, H^+ の飛び出す方向も等方的ではないかと一見考えられる. 佐々木は, 今でいうところの交差ビーム法に相当する実験を行いこのことを調べた. 図1はその結果である. このときの電子のエネルギーは 105 eV であった. 図からわかるように, H^+ の飛び出す方向は等方的ではなく, 電子ビームの方向へ出てくるものが多い. この研究は, 解離性イオン化の際に生成されるイオンの方向分布に興味を持ち, 実際に測った実験としてはおそらく世界ではじめてのものであろう. なお, H^+ の飛び出す際の運動エネルギーは測っていない.

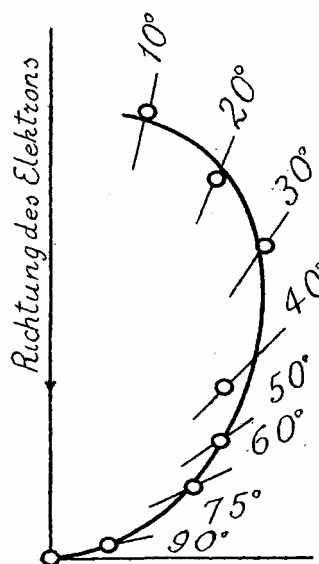


Abb. 1.

図1. 水素分子に電子が衝突して放出される水素原子イオンの方向分布. 原点から白丸までの距離がイオンの強度を表す. ここでは電子ビームの方向は $-Z$ 軸となっているが Z 軸でも同じ. (文献 [7] より)

この結果を佐々木は次のように解釈した。分子の解離は瞬間的に行われるので、衝突の際に分子軸が向いていた方向に H^+ は飛び出してくる。 H^+ の飛び出してくる方向に違いがあるということは、(2)の過程が起こる確率が分子の向きによって異なることを示す。すなわち、電子が分子軸に平行な方向から当たるほうが、垂直に当たるよりも解離性イオン化を起こしやすいということである。佐々木は文献 [2] の中でこう述べている:「水素分子を分解しようと思うと成るべく分子軸に近い方から電子攻撃をした方がよい。直角の方から攻撃すると如何にも分解し易い様に思われますが実際はそうではないのであります。例えば城を一つ落とすにしても色々攻め入る方角によって難易がありますように、水素の分子一つを分解致しますにも適当な方向から電子を打ち込むと非常に楽であると云うことが是で分ります。」(仮名遣いはあらためた)

この実験からほぼ30年後、Dunn と Kieffer [8] はまったく同様の実験を行った。彼らは佐々木の結果を再現したのみでなく、 H^+ の方向分布が入射電子のエネルギーにより変化することを見出した。またその分布は、分子のはじめと終わりの電子状態の対称性で決まることを明らかにした。

解離によって放出されるイオンの方向が衝突の際の分子の向きに関する情報をもっていることは、現在ではさまざまなかたちで利用されている。佐々木の実験はその出発点に当たるもので、きわめて貴重である。なお本シリーズの前回で紹介した、Ramsauer による初めての微分断面積測定は1932年であった。佐々木の実験は1935年で、ほぼ同時期である。その意味でも佐々木の実験は画期的なことであった。

参考文献

- [1] N. Sasaki and K. Kodera, Proc. Imp. Acad. Japan **17**, 70 (1941).
[2] 佐々木申二, 物理化学の進歩 **18**, 53 (1944).

http://kuchem.kyoto-u.ac.jp/bukka/member/yosuke/rpcjpn/rpcjpn_redit.htm

- [3] E. W. Rothe and R. B. Bernstein, J. Chem. Phys. **31**, 1619 (1959).
[4] R. D. Levine and R. B. Bernstein, Molecular Reaction Dynamics (Oxford Univ. Press, 1974) p. 72.
[5] 査読者のおひとりから、この解釈で良いのではというコメントを頂いた。
[6] N. Sasaki and T. Nakao, Proc. Imp. Acad. Japan **11**, 138 (1935).
[7] N. Sasaki and T. Nakao, Proc. Imp. Acad. Japan **17**, 75 (1941).
[8] G. H. Dunn and L. J. Kieffer, Phys. Rev. **132**, 2109 (1963).

シリーズ 原子衝突実験の歩み

—独断と偏見で選んだ10大(?) 実験—

第5回 電子衝突における共鳴効果

(Schulz の実験)

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成18年8月7日原稿受付

1. はじめに

本誌の読者の多くは図1をどこかで見たことがあるに違いない. George J. Schulz が原子衝突における共鳴現象を初めてはっきりと実験的に示した図である. 今回は共鳴効果を主題とする Schulz の二つの論文を取り上げる [1, 2]. 「共鳴」は現在でも原子衝突研究の大きなテーマであるが, その研究は Schulz に始まったといっても言い過ぎではないであろう [3].

George J. Schulz は1925年にモラビア(現在のチェコ)のブルノで生まれた. 戦争中は大変な苦勞をしたようであるが, 戦後アメリカに渡り, 1954年にマサチューセッツ工科大学で学位を得た. 博士論文は放電プラズマの診断に関するものである. その後ウェスチングスハウスの研究所へ移り, 電離真空計の開発などに携わる傍ら, 原子衝突の実験をはじめた. 今回紹介する共鳴の実験がなされたのはその時代である. やがてエール大学に移り, 共鳴を中心とした原子衝突の実験を精力的に行った. しかし残念なことに, 1976年51歳の若さでこの世を去ってしまった. 彼が1973年に発表した二つの総説[4, 5] は共鳴について研究する人が必ずお世話になるバイブルのような存在である.

2. 電子とヘリウムの衝突

図1はヘリウムによる電子の弾性散乱断面積である [1]. 散乱角72度における微分断面積の衝突エネルギーによる変化を表す. 測定に用いた装置は図2のようなものである. 127度形の静電

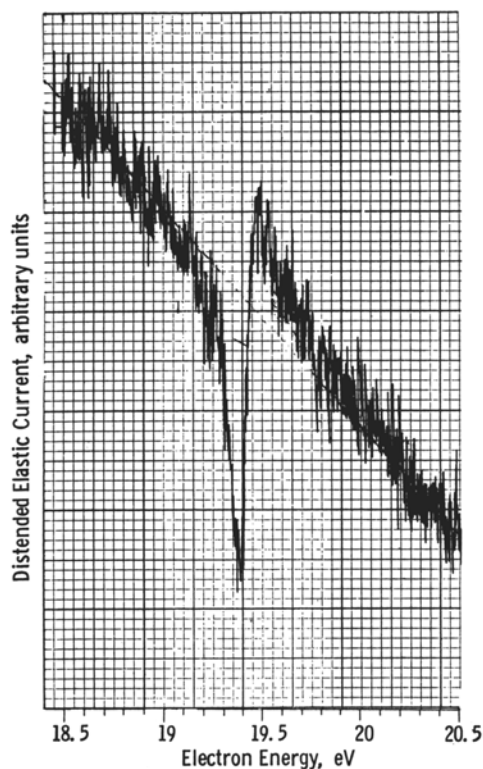
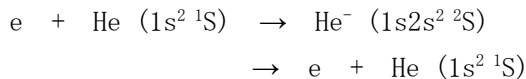


図1. ヘリウムによる電子の弾性散乱の微分断面積(散乱角72度). (文献 [1]より)

型エネルギー分析器2台をそれぞれ、入射ビーム用と散乱電子検出用に用いている。このようにすることで電子のエネルギー分解能を当時としては格段に上げることができ、そのおかげで共鳴効果の発見に成功した。得られた分解能は 60 meV であったが、それでも本当は十分ではなく、図にある凹みの幅は装置の分解能で決まってしまう。後年の研究によると、真の幅は 8 meV とのことである。

散乱における共鳴効果はすでに原子核の研究では良く知られたことであった。しかし、原子衝突でも起こるかどうかにについては自明のことではなく、起こらないと考える人もいたそうである。(このことについては後述する。) やがて理論家が共鳴の存在を具体的に示す計算を発表しだした。たとえば、Burke らは最も簡単な系である電子と水素原子の衝突について詳しい計算を行い、共鳴が現れることを示した。Schulz はそれらの研究に刺激されて実験を始めたのである。

図1の断面積に見られる構造は現在では Feshbach 共鳴 [3] として知られているもので、ヘリウムの負イオンが一時的にできる過程を経由する



によって生じることが分かっている。このことは Schulz の実験後 Fano らによって直ちに証明された。

実は、原子衝突にも共鳴があるのではないかと

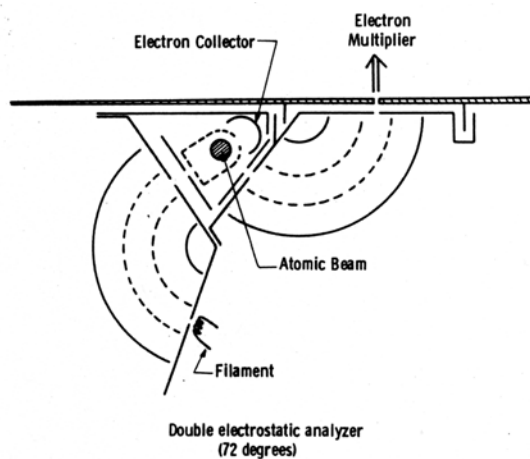


図 2. Schulz の電子衝突実験装置 [1]

気がついた人はいろいろいるようである。ここでは興味ある話を一つだけ紹介する。Schulz は図1の実験より6年ほど前に、He の準安定状態の励起断面積を測定した [6]。これは、電子衝突により生成された準安定ヘリウムが容器の壁に当たって2次電子を放出することを利用したものである。その結果として、しきい値のすぐ上にピークをもつ断面積が得られた。Schulz が居たウェスチングハウスの研究所はピッツバーグにあるが、ピッツバーグ大学に、もともと原子核理論の研究者であるが、原子衝突の分野でも活躍した Ed Gerjuoy が居た(今でも健在である!)。彼は Schulz 達の相談相手をしていたが、この He の準安定状態励起断面積を見て直ちに共鳴励起の際の Breit-Wigner 公式(BW公式)で説明できると気がついた。同僚で同じく核物理の研究者である Elizabeth Baranger といっしょにその旨の論文を書いた。当時、原子核で共鳴が起こるには核力の作用範囲が有限であることが重要であると考えられていた。しかし Gerjuoy は、遠距離力(クーロン力)が支配的ではあるが原子衝突でも共鳴が起こって悪いことはないのではないかと考えた。彼は悪い理由を一生懸命考えたが思いつかなかったといっている。それでも自信がなかったので、Wigner 本人に意見を聞いてみた。Wigner はほんのちよつと考えて、悪いことはないんじゃないのと言ったそうである。そこで Gerjuoy は論文を投稿した [7]。つまり、原子衝突にも共鳴があり、BW公式が適用できることを(筆者の知る限りでは)始めて指摘したのは Baranger と Gerjuoy なのである。

3. 電子と窒素分子の衝突

図1とならんで、共鳴の話が出ると必ず引き合いに出されるのが図3である。これは電子衝突による窒素分子の振動励起断面積である [2]。やはり散乱角72度での微分断面積であるが、振動量子数(v)が1から8までの振動状態を励起する過程の断面積をならべて示してある。これも図2の装置で測定された。実は、彼は2年前にも同様の結果

を発表している [8]. ただしそれは散乱角0度での測定であった. その場合には入射ビームの内で散乱されないものも弾性散乱ピークに混じるためそのピークの幅が広がってしまい, $v=1$ への励起に相当するピークが隠されてしまった. すなわち, $v=1$ の断面積を得ることができなかったのである. 共鳴のことを書いた教科書には図3の代わりに $v=1$ のピークが欠けているものが載っていることがあるが, それがそうである.

さて言うまでもないが, 図3は窒素分子に電子が

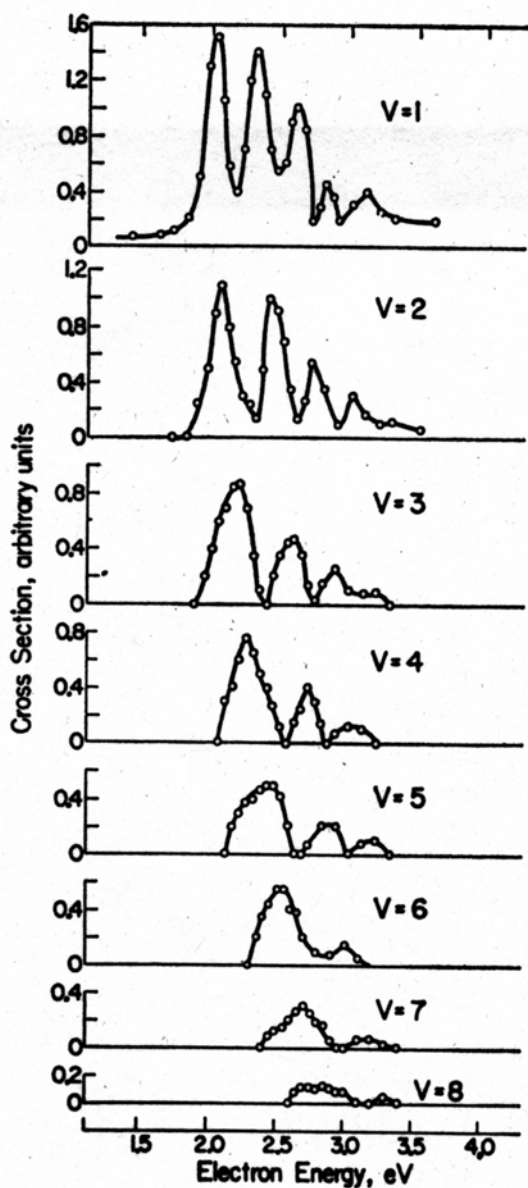


図 3. 電子衝突による窒素分子の振動励起 [2]. 散乱角72度に対する微分断面積. v は励起後の振動状態を表す.

一時的につかまることで起こるいわゆる「形状共鳴」である. そもそも窒素分子による電子の散乱断面積が 2 eV のあたりにピークを持つことは1930年代から知られていた. 本シリーズ第3回に紹介したビーム透過法による全散乱断面積の測定は窒素分子についても行われており, このようなピークがはっきりと認められていた. ただ Schulz の実験の画期的なことは, 電子のエネルギー分解能を上げるとそのピークがいくつもの細いピークに分かれることを見つけたことである. 図3のもう一つの特徴は, 共鳴効果によりかなり高い振動状態まで励起が起こることである. これらのことを理解するには, 電子の運動と原子核の運動の相関を正しく理解する必要があり, 理論家に対して大変魅力的な問題を提供した.

Schulz の論文 [2] は断面積の絶対値についてははっきりしたことを書いていない. また微分断面積ではなく積分断面積(応用上はこちらの方が重要である)ではどうなるのかも不明である. 実は, 図3のピーク的位置や高さは散乱角によってかなり変化するので, これらの問題に答えを出すことはそれほど容易ではない. 図4に現在のベストな答えを示す. これは積分断面積の絶対値を示しているが, 最新のビーム実験の結果も踏まえてスウォーム法で決めたものである. 詳細は文献 [9] を見てほしい.

4. 蛇足

図3(あるいは図4)から分かることの一つは, 共鳴励起の起こる範囲をはずれると断面積が急激に小さくなることである. たとえば, 1 eV での $v=0-1$ 励起の断面積は共鳴励起のピークに比べて100分の1以下である. このことから Schulz は共鳴に依らなければ振動励起は事実上起こらないと考えた. 電子衝突による分子の振動励起については古くから研究がある [10]. それによれば, 赤外活性の振動モードは電子衝突によって比較的容易に励起されると考えられてきた. 赤外光を強く吸収することは外から加えた電磁場と分子の振動運動が強く結びつくことが可能であると

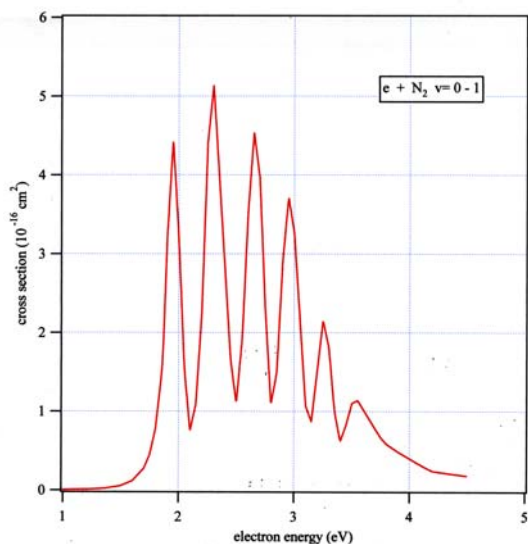


図 4. 電子衝突による窒素分子の振動励起 $v=0-1$ の断面積. 散乱角について積分したもの. (本文参照)

いうことである. 電子衝突も外から電場をかけることに相当するので, 赤外活性のモードは励起し易いと思われる. 筆者はこのことを示すために CO_2 について電子衝突による振動励起の断面積を計算してみた [11]. その結果, 共鳴を仮定しなくても比較的大きな励起断面積が得られることが分かった. Schulz もやがてこのことに気がつき, 1976年に彼が書いた振動励起についての総説では, 直接励起についても節を設けて述べている.

筆者は残念ながら Schulz に会ったことがない. 当時筆者は共鳴についてはあまり興味がなかった. そもそも共鳴が何かの役にたつとは思えなかった. N_2 の場合は別として, He の場合は, ごく狭い範囲のエネルギーで起こり, しかも断面積の変化はわずか(図1では10%程度)である. 物理としては面白いが計算は大変で, 実験を定量的に説明するのは至難の技と思われた. そこで機会がなかったわけではないが, 是非 Schulz に会ってみたいとは思わなかった. しかし彼は優れた実験家であるとともに, 理論についても深い理解を示す人であったようである. いろいろ話を聞いておけばよかったと今となっては思われる.

終わりに, 本稿を書くに当たって井口道生氏および Ed Gerjuoy 氏にお世話になったことを記しておく.

参考文献

- [1] G. J. Schulz, Phys. Rev. Lett. **10**, 104 (1963).
- [2] G. J. Schulz, Phys. Rev. **135**, A988 (1964).
- [3] 共鳴については, 例えば, 島村 勲, しょうとつ **2**, 3 (2005).
- [4] G. J. Schulz, Rev. Mod. Phys. **45**, 378 (1973).
- [5] G. J. Schulz, Rev. Mod. Phys. **45**, 423 (1973).
- [6] G. J. Schulz and R. E. Fox, Phys. Rev. **106**, 1179 (1957).
- [7] E. Baranger and E. Gerjuoy, Phys. Rev. **106**, 1182 (1957).
- [8] G. J. Schulz, Phys. Rev. **125**, 229 (1962).
- [9] Y. Itikawa, J. Phys. Chem. Ref. Data **35**, 31 (2006).
- [10] Y. Itikawa, J. Phys. B **37**, R1 (2004).
- [11] Y. Itikawa, Phys. Rev. A **3**, 831 (1971).

シリーズ 原子衝突実験の歩み
—独断と偏見で選んだ10大(?)実験—

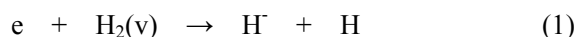
第6回 振動励起状態にある分子と電子の衝突

市川行和
yukitikawa@nifty.com

平成 18 年 10 月 5 日原稿受付

1. はじめに

電子衝突実験の多くは基底状態にある原子分子を標的としている。これは、励起状態にある原子分子との衝突が面白くないからというわけではなく、単に実験が困難だからである。現実の世界には励起状態にある原子分子が多数存在する。特に外からエネルギーをつぎ込むことによりプラズマ状態になっている気体では、励起状態にある原子分子が絶えず生成されていて、それらと、たとえば、電子との衝突が重要な役割を果たしている(はずである)。今回取り上げるのは、振動励起した分子と電子の衝突について興味ある結果を発見した Allan と Wong の実験である [1]。主題となる衝突過程は水素分子に電子が衝突して水素原子の負イオンが生成される、解離性電子付着(以下、DAと略す)



である。ただし標的分子は振動励起している。

著者の二人は前回紹介した Schulz の弟子で、特に Michael Allan は現在でも電子衝突実験の第一人者としてスイスで活躍している。

2. 水素分子の解離性付着

DAの研究は古くからなされてきたが、1960年代後半には負イオンの収量が分子気体の温度に依存することが知られていた。その原因が振動励起した分子にあることが示唆され、酸素分子については理論的にも確かめられていた。しかしDAの断面積が個々の分子の振動状態にどのように依存するかは定量的に分かっておらず、Allan と Wong はそれを H_2 (および D_2) について実験的に確かめようとしたのである。彼らは次のような実験を行った。

まず断面積のエネルギー依存性が振動状態によって微妙に変わる可能性があるので、エネルギー分解能の高い電子ビームを作る。そのためにはトロコイダル型エネルギー分析器を用いた(分解能は 50 meV)。イリジウム製の衝突箱を用意し、気体の温度が空間的に一様になるようにした。負イオンを高感度で検出するために、四重極型質量分析器を取り付けた。300 – 1600 K の範囲で温度を変えて実験したが、図1に 300 K と 1400 K の場合の負イオン収量を示す。300 K では一つだったピークが、1400 K ではいくつかのピークが重なった複雑な構造を示している。励起した分子に対しては、その内部エネルギー分だけDAのしきい値が下がる。しきい値の下がり具合から見て、

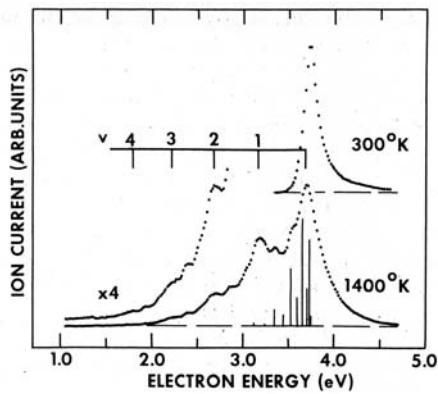


図1. 水素気体に電子ビームを入射したときの水素負イオンの収量。横軸は電子のエネルギー。気体温度が 300 K と 1400 K の場合を示す(文献 [1] より)。

1400 K のときには $v=4$ までの寄与があることが分かる。

各温度における負イオン収量を、その温度において存在する振動状態に対するDA断面積の重ね合わせでフィットする。分子の振動状態はボルツマン分布をしているとし、断面積のエネルギー依存性は基底状態(300 K の場合)と同じと仮定した。すなわち断面積のピーク(しきい値のところにある)の値のみを調節した。得られたピーク値を図2に示す。H₂ の場合、 $v=4$ に対する断面積は $v=0$ のそれより約40000倍も大きい。実は回転励起もDAの増加をもたらすが、その影響は振動励起に比べるとかなり小さい(図2参照)。この論文と同時に Wadehra と Bardsley による理論計算も発表され [2], 振動励起によるDA断面積の増加の割合については実験と良く一致する結果を出した。図2にはその理論計算の結果も示してある。ただし、これはある種のモデル計算であり、 $v=0$ の結果が実験と合うようにモデルを構築している。(1)の過程は、前回の本稿で述べたものと同様に、水素分子負イオンの励起状態を経由して起こる共鳴過程として理解されている。しかし解離が起こるために原子核の運動が絡んでくるので、断面積の正確な計算は容易ではない。

3. 水素負イオン源

核融合を目指すプラズマでは1億度以上の温度を実現する必要がある。そのための加熱法として有力なのが中性ビーム入射加熱(NBI)である。これは高エネルギーの中性水素原子ビームをプラズマに打ち込み、そのエネルギーをプラズマに与えて加熱するものである。水素原子を使うのは核融合の燃料と同じであるからであり、中性原子ビームにするのはプラズマ中の電磁場に邪魔されずに中まで入っていけるからである。

ところで高速の H ビームを作るには、通常 H⁺ (水素の正イオン)を加速して気体(水素分子)中を通すことにより電荷交換衝突で H にする。しかし、電荷交換衝突の断面積は衝突エネルギーが高くなると低下する。核融合に必要な 100 keV – 1 MeV では H⁺ → H はほとんど起こらない。そこで考えられたのが、負イオンを作って加速し、何らかの方法(たとえば、気体水素を通過させる)で電子を剥ぎ取ることにより高速の H ビームを作る方法である。これはビームの速度にあまりよらない。

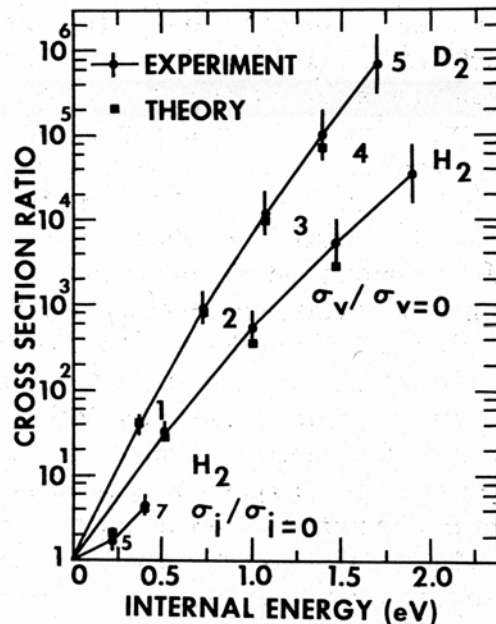
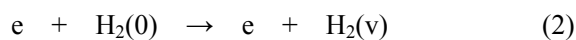


図 2. 水素分子の解離性付着断面積(極大値)の振動・回転状態依存性。横軸は内部状態そのエネルギーであらわしたもの。縦軸には基底状態の場合との比が目盛ってある(文献 [1] より)。

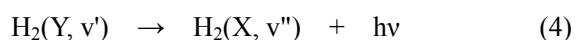
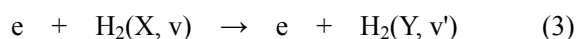
ただし、この方法を使うためには大量の負イオンが要る。前節で述べた電子衝突によるDAを用いれば、 H^- を大量に効率よく生成することが出来るであろう。

水素プラズマ中に H^- がどれだけできているかを調べる研究は、DA素過程の研究とは独立に古くから行われてきた。Allan と Wong の論文が出る少し前に、Bacal らは水素プラズマ中の H^- の生成量がその当時知られていた素過程の知識に基づいて推定される量よりかなり多いことに気がついた。モデル計算と比べると実験で測定された H^- の量は100倍も多いことが分かった [3]。その理由として Bacal らは、振動励起した水素分子ではDA断面積が大きくそれが影響しているのではないかと述べている。実は Allan と Wong はこの話を知っていて、彼らのビーム実験の結果は Bacal らの推論を支持するものであると結論した。その意味で、振動励起した水素分子によるDAの増大を始めて見つけたのは Bacal らであるという人たちもいる。

そこで条件の良い水素プラズマを作れば、自然と大量の H^- が得られる可能性があることになる。前節の研究から分かることは、効率良く H^- を生成するにはできるだけ高い(あるモデル計算によれば $v=4-12$) 振動状態にある水素分子を作る必要がある。しかし電子衝突でいきなり基底状態にある水素分子を高い励起状態に上げる



の過程の断面積は小さい。しかし、いったん電子的励起状態を作るとそれが光を出して基底状態に戻る際にかなり高い振動状態に移ることが知られている



Y としては $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u$ 状態が有効である。ただし(3)が起こるためには電子エネルギーがか

なり高く(20 eV 以上)なければならない。前節の結果からDAが起こるには、電子エネルギーは 5 eV 程度以下でなければならず、(3)の過程とは両立しない。そこで考えられたのは、水素気体の容器を二つに分け、一方で振動励起した分子を作り、他方でそれから負イオンを生成する方法である。この方法はうまくゆき、現在ではかなり効率良く H^- ビームを作ることができる [4]。

4. 振動励起した分子と電子の衝突

前節で述べた水素負イオン源であるが、いくつかの理由で実際に使える高速・大強度ビーム(たとえば、ITER(国際熱核融合炉)のためには 1 MeV で 40 A (電流密度で 2 A cm^{-2} が必要))を実現させるにはいたっていない。なお大型加速器でも H^- ビームが必要とされており、現在わが国で建設中のJ-PARCでは前節で述べた2段階式の H^- 生成法が採用される予定である。

さてこのような水素負イオン源を作るにはその最適な条件を決めるためにモデル計算が行われる。その際、振動励起した水素分子と電子や他の粒子との衝突断面積が必要になる。たとえば、過程(1)の断面積がさまざまな振動状態について必要であるが、今のところ、 $v=0$ 以外では、実験データは存在しない。一方理論であるが、正しい答えを得るには電子の運動と核の運動の相関をきちんと考慮しなければならず、これもなかなかむずかしい。どれだけむずかしいかは、Allan と Wong の論文が発表されて30年近くたつというのにいまだに毎年新しい計算が発表されることでもわかる。図3に Horacek ら [5] による最近の計算の一例を示す。彼らによれば、回転励起もかなりの効果があり、振動・回転の効果を合わせると図1の結果をほぼ説明できるとのことである。ただ、図1との比較は間接的で問題もあり、決定的なことはまだ言えないのが現状である。

振動励起した分子が重要な役割を演ずるのは、 N_2 でも同じである。低温の窒素プラズマではかなりの数の振動励起分子が存在して、電子の輸送現象などに大きな影響を及ぼしている [6]。この

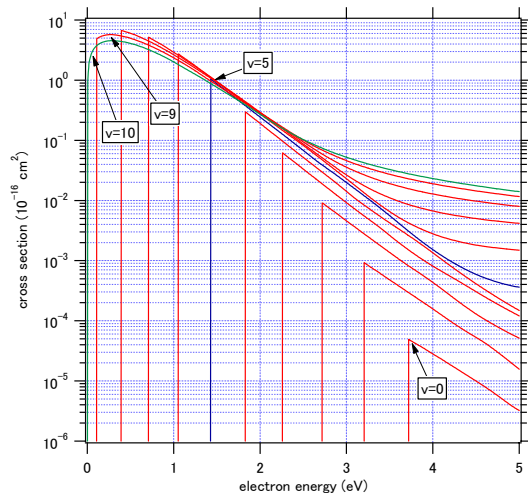


図 3. 水素分子の解離性付着断面積の計算値。
Horacek 氏提供による数値をもとに作成したも
の。計算の詳細は文献 [5] を参照のこと。

場合も多数のモデル計算がなされているが、いず
れも振動励起した分子の関与する衝突過程につ
いては理論的に求めた断面積が使われる。何と
かして、振動励起した分子 (H_2 でも N_2 でもよ
い) と電子(あるいは他の粒子)との衝突について
実験的な情報が得られないものであろうか。Allan
と Wong の論文は、現在でも未解決の重要な問
題を提起した画期的な論文なのである。

本稿の執筆に当たっては、J. Horacek 氏に協力
していただいた。

参考文献

- [1] M. Allan and S.F. Wong, Phys. Rev. Lett. **41**,1791 (1978).
- [2] J.M. Wadehra and J.N. Bardsley, Phys. Rev. Lett. **41**, 1795 (1978).
- [3] E. Nicolopoulou, M. Bacal, and H.J. Doucet, J. Physique **38**, 1399 (1977).
- [4] 詳細は次の総説参照 M. Bacal, A. Hatakeyama, and J. Peters, IEEE Trans. Plasma Sci. **33**, 1845 (2005).
- [5] J. Horacek, M. Cizek, K. Houfek, P. Kolorenc, and W. Dömcke, Phys. Rev. A **70**, 052712 (2004).
- [6] たとえば, V. Guerra, P.A. Sa, and J. Loureiro, Eur. Phys. J. Appl. Phys. **28**, 125 (2004).

第7回 多価イオン

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

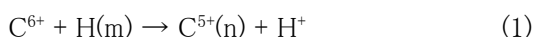
平成18年12月7日原稿受付

1. はじめに

世の中に多価イオンというものがあって、原子物理学の新しい研究対象として大変興味深く、また応用上も重要な役割を果たす、ということは読者の皆さんはすでにご存知のことであろう [1,2,3]. 「多価イオン科学」の発展にはわが国の研究者の寄与が大変大きい。それを示す証拠の一つが今回紹介する実験である [4]. この論文が発表されて今年(2007年)で25年である。多価イオンの研究がいつ始まったかは定かではないが、原子物理学の一部としてその地位を確立したのは、現在も続いている「多価イオン物理学国際会議」(HC I)が始まったときとしてもよいであろう。これも25年前である。多価イオン科学は立派に一人前になったのである。

2. 電子捕獲

多価イオンはその性質上、周囲から電子を引きつけ易い。電子捕獲の確率が高いだけでなく、捕獲の仕方にも特徴がある。例として、炭素の裸イオン(C^{6+})が水素原子(H)に衝突して電子を一個捕獲することを考えよう。



衝突による内部エネルギーの減少は

$$\Delta E = \left(\frac{36}{n^2} - \frac{1}{m^2} \right) \times 13.6 \text{ eV} \quad (2)$$

この分だけ衝突後の運動エネルギー(重心系)が増える。基底状態にある水素原子と衝突する場合、 $n < 6$ ならば発熱反応になる。 n はどのように分布するだろうか。その答えを示したのが図1である。これは 6 keV の C^{6+} ビームをヘリウムに当てたときの電子捕獲後のエネルギー(実験室系)の増加を示す [4]. 標的が水素ではなくヘリウムであるが、本質的なところは(1)と同じである(彼らは、後に水素についても実験している [5]). これから、 C^{6+} が基底状態のヘリウムと衝突すると、電子は C^{5+} の $n=3$ の状態に捕まり、他の状態には行かないことがわかる(ちなみに、水素の場合は $n=4$ のみに捕まる)。

このように、多価イオンが電子を捕獲する際は、いろいろな軌道に電子が入るのではなく、ある特定の軌道に捕獲される。それも最もエネルギーを得する基底状態へではなく、かなり高い励起状態へ捕まる。実はこのことは比較的簡単な理論で理解できるが、その理論の開発にも日本の研究者が大きな役割を果たした [6]. なお、電子が捕獲される軌道は衝突エネルギーが低い間はほとんどエネルギーによらない。しかし、衝突エネルギー

が高くなると次第に複数個の状態に捕獲されるようになる。

3. 実験装置の開発

多価イオンの実験をするには多価イオンを作る装置(イオン源)が必要になる。多価イオンらしさを調べるには裸に近い(せいぜい数個しか束縛電子が残っていない)イオンを使うのが望ましい。また、普通の実験室で実験を行えるように、あまり大型でないものがほしい。そのようなイオン源として、図1の実験にはEBIS (Electron Beam Ion Source) が用いられた。これは原理は簡単で、強い磁場の中で細く絞られ電流密度が高くなった電子ビームを用いて原子をイオン化する。出来たイオンは電子ビームの作るポテンシャルの中に閉じ込められ、次々とやってくる電子により束縛電子を剥ぎ取られ多価イオンとなる。なお、ビームを囲む電極により軸方向に井戸型ポテンシャルを形成し、イオンが端から逃げないようにしてある。EBISはもともと

原子核実験のための加速器に使うイオン源としてロシアで開発された。1970年代後半、核融合プラズマの研究に関連して多価イオンの研究をするために、当時の名古屋大学プラズマ研究所に共同研究グループが組織された。裸のイオンを作るという意気込みでNICE (Naked Ion Collision Experiment) グループと自称した研究者たちは、目的とする多価イオンの研究に相応しいイオン源としてEBISを選んだ。世界的にみても、EBISを原子衝突に使うことはほとんどなされていなかった時代に、あえて目的達成のために最適の装置を作ることに挑戦したのである。

1977年に装置を作り始め、いくつかの予備的研究を経たのち、1980年には裸のイオンを手にすることができるようになった。途中たとえば、イオンが残留ガスと衝突して中性化されないように高度の真空が必要となるときか、また、強い磁場の中に電子ビームを通すためには両者の軸が完全に一致していなければならないとか、さまざまな問題を一つずつ解決していった。EBIS完成後は、そ

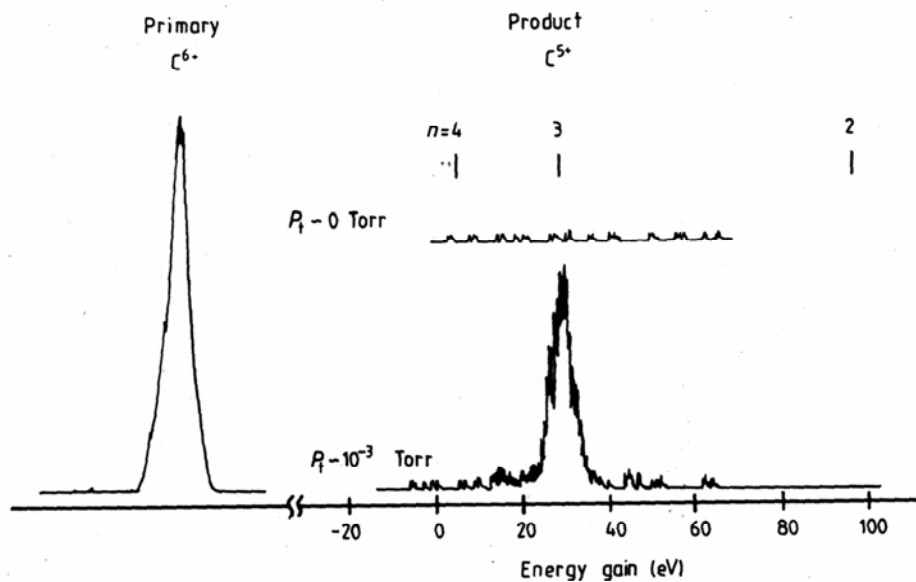


図1 6 keV の C^{6+} ビームが He との衝突で電子捕獲を起こした後のビームエネルギーの増加。 C^{5+} の状態 (n) に対応したエネルギー増加の位置を図の上部に示してある(文献 [4] より)。

れを用いて主として多価イオンによる電荷移行衝突の研究を系統的に行い、その方面では世界の研究をリードした。全く新しい研究対象を扱うにはそれにふさわしい実験手法があるはずである。しかし、技術的困難などから必ずしもそのような手法が用いられない場合が多い。NICEグループはその困難を乗り越えて多価イオン研究に最適の手法を開発し、見事な成果を収めた。彼らは数多くの研究成果を報告しており [7]、代表例としてはここで紹介したものよりももっとふさわしいものがあるかもしれない。しかし筆者は、多価イオンらしさをはっきりと分かりやすく実験で示したこの論文が最も気に入っている。

4. 電磁波の放出

多価イオンが電子を捕獲すると、高い励起状態が生成される。励起状態にある電子は直ちに電磁波(この場合は、波長の短い紫外線やX線)を放出して低い状態へ移る。このような電子捕獲に伴う電磁波を検出することでも、特定の励起軌道に選択的に電子が捕まることが確かめられる(たとえば [8])。

電子捕獲により多価イオンが放出する電磁波は、核融合プラズマの診断に用いられている。水素原子などの中性原子ビームをプラズマ中に注入し、プラズマ中の多価イオンがその原子と衝突して電子捕獲する際に発生する電磁波を測る。そのスペクトルからイオンの温度やプラズマの回転速度などが求められる。この方法によれば、中性ビームの通ったところの(局所的な)情報が得られる。

ところで、(1)で生成された C^{5+} は電磁波を出しながら低い状態へ移り、最後は $n=2-1$ に伴う放射(Lyman α 線)を出す。この光(もっと一般に C, N, O などの多価イオンからの放射)が意外なところから出ているのが見つかって大きな話題となっている。1996年、X線を観測する人工衛星 ROSATが彗星 Hyakutake からX線(厳密には極端紫外線あるいは軟X線)が出ているのを見つけた [9]。彗星は氷でできており、その大気は太陽からの光で氷が蒸発して出来たもので、とてもX線

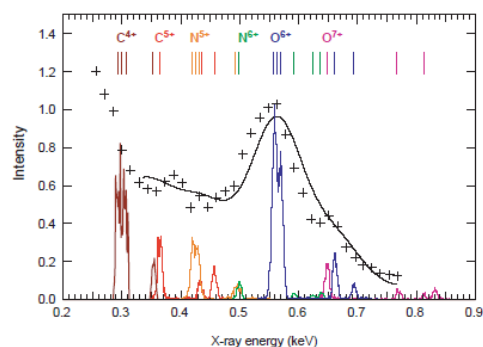


図 2 Linear 彗星からのX線のスペクトル(+印)と多価イオンの電子捕獲に伴って放出されるX線のスペクトルに基づくモデル(実線)との比較(文献 [11] より)。

を出すほど高温ではない。その後、他の彗星からもX線が出ているのが観測された。その起源としては、いろいろ考えられたが、太陽風の中の多価イオンが彗星大気中の分子に当たって、電子捕獲を起こし、上記の過程でX線を出しているものとして理解されている [10]。衝突する相手は H_2O や CO_2 などであるが、高い励起状態へ捕獲されることには変わらない。現実に行われている衝突過程を対象とした実験や計算が行われ、その結果に基づくモデル計算が多数試みられた。その結果の一例を図2に示す。これは人工衛星 Chandra により観測された彗星 Linear からのX線強度とモデルとの比較である [11]。原子衝突実験の結果に基づく放出X線のスペクトルを観測装置の装置関数をかけてならしたもの(実線)が観測値(+印)と比べてある。イオンの組成を調節して一致が良くなるようにしてあるが、結果は太陽風中の組成とあまり違わない。

5. おわりに

多価イオンの本格的研究が始まって四分の一世紀が経った。多価イオンについてさまざまなことが分かり、思いがけない発見もあった。まだ分からないこともあるが、そろそろ研究の方向を見直した方がよいかもしれない。今後の研究としてはまだまだ面白いピックスがあるかもしれないが、やはり系統的な研究を行って基礎となるデータベースを

築くことが重要である。ただこれまでのように、核融合のためとか、天体のためとかいうのではなくて、原子(イオン)のもつ固有の基本データとして、データベースを確立することが重要である。そのようなデータベースがあれば、意外な発見にもすぐに対処できるし、応用を考えるにも大いに役に立つ。聞くところによれば、次回の「多価イオン物理学国際会議」は、2008年に東京(調布)で開催される。それに向けてわが国の研究が一段と盛んになることを期待したい。

Chen, S.M. Kahn, R.L. Kelley, M. May, R.E. Olson, F.S. Porter, C.K. Stahle, and W.A. Tillotson, *Science* **300**, 1558 (2003).

参考文献

- [1] 大谷俊介, 応用物理 **57**, 190 (1988).
- [2] 市川行和, 真空 **33**, 1 (1990).
- [3] 最近の解説としては, 真空 **48**, No.8 (2005) 小特集「低速多価イオンの物理とその応用」.
- [4] S. Ohtani, Y. Kaneko, M. Kimura, N. Kobayashi, T. Iwai, A. Matsumoto, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara, and S. Tsurubuchi, *J. Phys. B* **15**, L533 (1982).
- [5] S. Ohtani, M. Kimura, N. Kobayashi, and H. Tawara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **56**, 1271 (1987).
- [6] H. Ryufuku, K. Sasaki, and T. Watanabe, *Phys. Rev. A* **21**, 745 (1980).
- [7] H. Tawara, Ed. “The Collected Papers of Nice Project/IPP, Nagoya”, *Inst. Plasma Physics Report IPPJ-AM-43* (Inst. Plasma Phys. Nagoya Univ., 1985).
- [8] D. Dijkkamp, Yu.S. Gordeev, A. Brazuk, A.G. Drentje, and F.J. de Heer, *J. Phys. B* **18**, 737 (1985).
- [9] C.M. Lisse, K. Dennerl, J. Englhauser, M. Harden, F.E. Marshall, M.J. Mumma, R. Petre, J.P. Pye, M.J. Ricketts, J. Schmitt, J. Trümper, and R.G. West, *Science* **274**, 205 (1996).
- [10] V.A. Krasnopolsky, J.B. Greenwood, and P.C. Stancil, *Space Sci. Rev.* **113**, 271 (2004).
- [11] P. Beiersdorfer, K.R. Boyce, G.V. Brown, H.

第8回 イオン蓄積リング

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成19年2月6日原稿受付

1. はじめに

何か実験をするときは、まずテーマがあり、次にその研究に最も適した実験装置を考案し、それを用いて実際に実験を行う、というのが普通である。しかし、まず装置があり、その後にそれにふさわしいテーマがあることに気づいて実験をしてみる、という例もある。今回紹介するイオン蓄積リングを用いた分子イオンの研究 [1] はそのような例である。イオン蓄積リングというのは、原子核実験のために良質のイオンビームを得る目的で開発された。高真空中で磁場を用いてイオンを周回させ、長時間貯めておくものである。周回の途中で冷たい電子ビームと衝突させることで、イオンの熱運動を減らす、電子冷却装置がついている。このようなイオン蓄積リングを原子物理の研究に使う試みが1980年代半ばに盛んになった [2]。エネルギーのそろったイオンビームが得られるだけでなく、それが周回していることから、原子衝突の標的として使えば、実効的な標的密度を格段に増やすことができる。さらに冷却に用いる電子ビームを使えば、電子・イオン衝突の実験ができる。

電子・イオン衝突の実験は古くから興味をもたれてきたが、十分な数のイオン標的を用意するのが困難なため、なかなか進まなかった。その困難を克服するために、イオンと電子のビームを重ね

て平行に走らせる、いわゆる「合流ビーム型実験」が考案された [3]。イオン蓄積リングは合流ビーム型実験を行うのに最適である。しかもイオン蓄積リングではイオンは周回しているので何度も使うことができる。合流ビーム型実験の大きな特徴は、イオンの速度 v_{ion} と電子の速度 v_e を近づけることで、相対速度の大きさ $v_{\text{rel}} = |v_e - v_{\text{ion}}|$ をいくらでも小さくできることである。すなわち、衝突エネルギーの小さい(原理的には、ゼロでも)ところでの実験をすることができる。電子とイオンの再結合は一般に衝突エネルギーの小さいところで大きな断面積をもつ。そこで、電子・イオンの再結合過程の研究はイオン蓄積リングを用いた実験にうってつけのものであることがわかり、まず原子イオン(特に、多価イオン)の再結合が調べられた。続いて分子イオンの解離性再結合の研究が始められ、1993年に三つのグループから初の結果が同時に発表された。今回紹介する論文はその一つである。

2. 分子イオンの解離性再結合

分子イオンが電子を捕まえて中性に戻る際の主要な過程は、解離を伴う再結合(以下 DR と略す)



である。これは分子を含むプラズマでは重要な過程の一つであるが、原子のプラズマでもイオンが中性化する際の主要なプロセスである。たとえば He プラズマにおいては、 He^+ が電子との衝突で直接中性化するのではなく、いったん He_2^+ ができて、それが DR によって中性になるのが普通である。

田辺らは、当時の原子核研究所において加速器技術の開発のためにイオン蓄積リング TARN II を作って研究をしていた。これは原子核研究の将来計画である NUMATRON 計画の一部であり、TARN というのは Test Accumulation Ring for the Numatron Accelerator Facility の略である。当初の目的がほぼ達成されたとき、田辺らはこれを何か他の物理学的研究に使えないかと考えた [4]。いくつかの試み(その中には原子イオンの再結合も含む)の後、分子イオンの DR を研究することになった。当時物理学的に興味ある対象でありながら、定量的データに乏しかった HeH^+ をとり

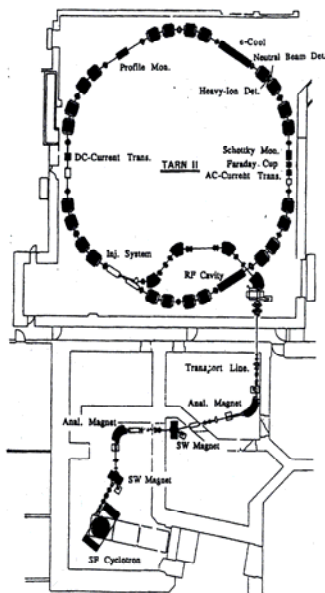


図1. TARNIIのレイアウト. 右上に電子冷却の装置(e-Cool)がある(文献 [4] より).

あげることにした。まったく同時にヨーロッパの二つのイオン蓄積リングでも、対象は違うが分子イオンの DR を研究していた。1993年1月25日号の Phys. Rev. Lett. には、世界最初のイオン蓄積リングによる分子イオンの DR の実験として、3編の論文が同時に掲載された [1,5,6]。

TARN II の概念図を図1に、それを用いて求められた HeH^+ の再結合断面積を図2に示す [1]。周長 78 m のリングに 9.5 MeV のイオンを入射して周回させる。電子ビームと衝突させた後、生成された中性粒子を半導体固体検出器(SSD)で検出する。合流ビーム法のもう一つの利点は、生成された中性粒子は入射イオンとほぼ同じ高速で走っており、検出が容易なことである。当初イオンビームの寿命が短く、電子冷却が十分に働かないのでエネルギー分解能が悪く絶対値を決めることはなされていない。図2のエネルギーゼロの周辺のピークについては、従来のデータを超越するようなものは得られなかった。一方、ためしに衝突エネルギーを上げてみたところ、20-40 eV のあたりにこれまで予想されたことのない大きなピークが現れた。これは、 HeH^+ の励起状態を経由して起こる再結合過程として解釈され、新しい発見となった。その後、田辺らは、断熱膨張を利用した高度の電子冷却法を開発し、また真空度を高めてイオンビームの寿命を長くするなどして、衝突エネルギーについて高分解能(1 meV に達する)の実験を実現させた [7]。

田辺らは原子核実験が専門であり、原子衝突についてはほとんど何も知らない状態でこの研究

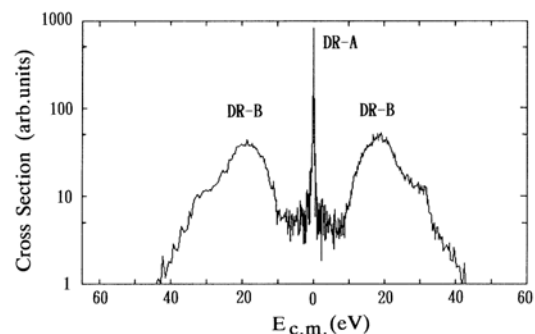


図2. HeH^+ の解離性電子付着の断面積(相対値)。相対エネルギーが0のところと20 eV付近にピークがある(文献 [1] より)。

をスタートさせ、原子物理にとって貴重な成果を挙げた(研究開始当時の事情などは文献 [4] に詳しい)。その間、原子衝突の研究者はほんの一部の人を除いてこの研究に関心を寄せなかった。というより、ほとんど知らなかった。気がついて何か協力できないかということになったときには、核研が高エ研に吸収されることになって、それと共に TARN II はシャットダウンされることになってしまったのである。装置が装置だけに、TARN II はどこかの大学の実験室へ移して実験を続けることなどできなかった。

原子衝突の実験に加速器を用いることは古くから行われていた。しかし、そのほとんどは高速の衝突粒子を得るためや、放射光の光源として使われた。イオン蓄積リングの実験は、それらと違ってリングを衝突実験装置そのものとして使うものである。このような発想は原子物理屋からはなかなかでてこないものであろう。本実験はそのような観点でもユニークであり、さらには MeV のビームを使って衝突エネルギーが meV の実験をするところもおどろきである。

イオン蓄積リングを用いた DR の研究は、その後もヨーロッパのグループによって続けられ、イオンの内部状態依存性や、生成物の詳細な研究など、さまざまな成果が挙げられている。それらについては、最近相次いで出版された二つの総合報告に詳しい [8,9]。

3. 静電型イオン蓄積リング

イオン蓄積リングによる分子イオンの研究は、その後生体分子イオンを念頭に置いた大きな(重い)分子イオンの研究に発展しつつある。DNA やたんぱく質の分子と電子の衝突の研究が現在盛んに行われつつあるが、それと同時に生体分子イオンと電子の衝突にも興味もたれている。従来の磁場を用いるイオン蓄積リングでは、イオンが重くなるとそれに応じて磁場も強くしないといけないので、回せるイオンの重さに限界がある。ところが、静電場を使ってイオンを周回させる静電型イ

オン蓄積リングでは、原理的にどのように重いイオンでもまわすことができる。また装置もコンパクトになり、普通の実験室でも扱える。

つくばに移った田辺はこのことに気づいて小型の静電リングを作り研究を始めた [10]。これはデンマークにあるものに次いで世界で二番目のものである。これを用いて電子衝突によるたんぱく質分子イオンの解離過程が調べられた [11]。これは現在盛んに研究されている生体分子の解離による負イオンの生成実験と相補的になるもので、生体に対する放射線の作用の研究に貴重な情報を提供する。なおこのつくばでの研究に続いて、首都大学東京でも静電型イオン蓄積リングが建設され、研究が開始された [12]。イオン蓄積リングを用いた原子物理学の研究という世界的にみてもユニークな研究が、引き続きわが国で活発になされることは大変喜ばしいことである。

参考文献

- [1] T. Tanabe, I. Katayama, N. Inoue, K. Chida, Y. Arakaki, T. Watanabe, M. Yoshizawa, S. Ohtani, and K. Noda, Phys. Rev. Lett. 70, 422 (1993).
- [2] S. Datz, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 24/25, 3 (1987).
- [3] R.A. Phaneuf, C.C. Havener, G.H. Dunn, and A. Müller, Rep. Prog. Phys. 62, 1143 (1999).
- [4] 田辺徹美 原子核研究 50, 101 (2006).
- [5] P. Forck, M. Grieser, D. Habs, A. Lampert, R. Repnow, D. Schwalm, A. Wolf, and D. Zajfman, Phys. Rev. Lett. 70, 426 (1993).
- [6] M. Larsson, H. Danared, J.R. Mowat, P. Sigray, G. Sundström, L. Broström, A. Filevich, A. Källberg, S. Mannervik, K.G. Rensfelt, and S. Datz, Phys. Rev. Lett. 70, 430 (1993).
- [7] T. Tanabe, I. Katayama, S. Ono, K. Chida, T. Watanabe, Y. Arakaki, Y. Haruyama, M. Saito, T. Odagiri, K. Hosono, K. Noda, T. Honma, and H. Takagi, J. Phys. B 31, L297

- (1998).
- [8] A.I. Florescu-Mitchell and J.B.A. Mitchell,
Phys. Rep. 430, 277 (2006).
- [9] N.G. Adams, V. Poterya, and L.M. Babcock,
Mass Spectrom. Rev. 25, 798 (2006).
- [10] 田辺 徹美 日本物理学会誌 60, 632
(2005).
- [11] T. Tanabe, K. Noda, M. Saito, S. Lee, Y. Ito,
and H. Takagi, Phys. Rev. Lett. 90, 193201
(2003).
- [12] 東 俊行, 田沼 肇, 城丸春夫 放射線化学
81, 8 (2006).

第9回 COLTRIMS

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成19年4月3日原稿受付

1. はじめに

COLTRIMSというのは、今から15年ほど前に原子衝突実験の分野に登場した実験技術の一つであり、Cold-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy (冷却標的的反跳イオン運動量分光法)の略である。はじめはその名の通り反跳イオンの運動量を精密に測る手法として開発された。その後、それにより反応衝突の起こる現場を詳細に見ることが出来るという意味で、reaction microscope として発展している。見ることのできる過程には制限があるが、衝突の詳細を知ることのできる新しい道具として現在では広く用いられている。筆者がこの手法について初めて話しを聞いたときは、なんとなくまい方法だろうと感心した記憶がある。今回は、その初期の頃の論文のいくつか [1,2] と、最近の応用例 [3] を一つ紹介する [4]。

2. 反跳イオン運動量分光

入射粒子Aが、止まっている粒子Bに衝突する場合を考える。衝突後のAの運動量(すなわち、散乱角とエネルギー)を測定すると、衝突前後のAの運動量の変化から粒子の内部エネルギーの

変化がわかり、どのような状態が励起されたかがわかる。これがいわゆる並進運動分光法(電子衝突の場合のエネルギー損失分光法はその一種)である。イオン化や解離が起こらない場合には(すなわち、二体系が保たれている場合には)Aの代わりにBの運動量を測っても全く同じ情報が得られる。これが反跳運動量分光法である。入射粒子のエネルギーが大きいときには運動量のわずかな差を測るのは困難であり、並進運動分光法には限界がある。一方、反跳粒子の運動量は入射粒子のエネルギーには無関係に測定することができる。衝突後の粒子Bがイオンの場合、反跳イオン運動量分光法(RIMS)として、古くから利用されてきた。COLTRIMSは、このRIMSを高性能化する目的で開発された。

COLTRIMSの原理は次の通りである。図1は4章で紹介する実験に用いられているものである。

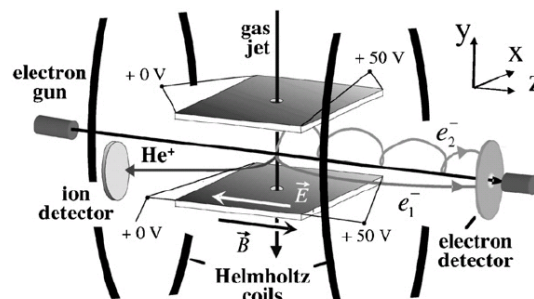
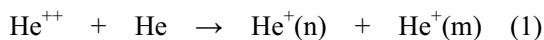


図1. COLTRIMS の一例。電子衝突によるヘリウムのイオン化の実験に用いたもの(文献 [3] より)。

パルス状の入射粒子(この場合は電子)を標的粒子に当てイオン化する. 入射電子の方向をz軸とし, 其の反対方向に一様な電場をかける. 発生した(反跳)イオンはその電場に導かれて, $-z$ 方向に進み, 図の左方にある二次元検出器に達する. 到達したイオンの検出器面上での位置(x, y)と飛行時間を測定すれば, それからイオンが生成された直後の運動量がわかる. 地上で石を投げるとき, 石の落下地点の座標と落ちるまでにかかった時間を計れば, ニュートン方程式から石の初期運動量を求めることが出来るのと全く同じ原理である. さらに, 右方向にも検出器を置けば, イオンと同時に電子も測ることができる. ただし, 電子の速度は早いので, z方向に磁場をかけて, 電子を螺旋運動させて検出器にゆっくり到達するようにする. ここで最も肝心なことは, 標的粒子が最初止まっている(あるいは少なくとも, その運動が既知である)必要があることである. COLTRIMSは超音速ガスジェットなどを使って, 標的粒子の熱運動を極力小さくしている. これがCOLTRIMSにCOLTが付いている理由であり, ここに一つの大きな特徴がある. もう一つの特徴は飛行時間法と二次元検出器を併用したことで, これにより生成荷電粒子の運動量ベクトル情報が正確に得られる.

COLTRIMSの名が最初に現れた論文の一つは



の実験である [1]. 電子を剥ぎ取られてできた He^+ の運動量の測定から (n,m) 分布を求めた. 入射 He^{++} のエネルギー E_p は 0.25 – 1 MeV である. 内部エネルギーの変化を Q とすると

$$Q/E_p \sim 10^{-5}$$

の分解能が得られた. これは従来の並進運動分光法と比べると一桁ほど小さい.

3. reaction microscope

COLTRIMSを使えば, イオン化衝突において生成されるすべてのイオンおよび電子の運動量を同時に測定できる. このことから, 衝突過程の現場を見るという意味で reaction microscope という言葉が使われるようになった.

この方向の研究の初めての論文は 3.6 MeV/u の Ni^{24+} による He のイオン化である [2]. 衝突後の He^+ および電子の運動量を測った. 一つの興味ある結果は図2である. これは反跳イオンと電子の入射イオン方向の運動量を示したものである. これから He^+ と電子はほぼ反対方向に飛び出すことがわかる. それらの運動量に比べて, 図には示していないが, 入射イオンの運動量変化はかなり小さい. これは光イオン化の場合に似ている. つまり, 入射イオンは標的に電場を及ぼすだけで, 運動量は与えない. なお, He^+ も電子もその運動量分布は非対称であり, これは衝突後の Ni^{24+} との相互作用の結果である. すなわち, 電子は Ni^{24+} の方向へ引っ張られ, 反跳イオンはその反対である. その後, 3.6 MeV/u の Se^{28+} を用いた同様の実験が行われ, 衝突後の 3 粒子の運動量分布が詳細に解析された [5].

この装置を用いて, これまでに電子・イオン・光衝突による原子・分子のイオン化過程が広い範囲にわたって調べられた. 衝突後に生成される粒子

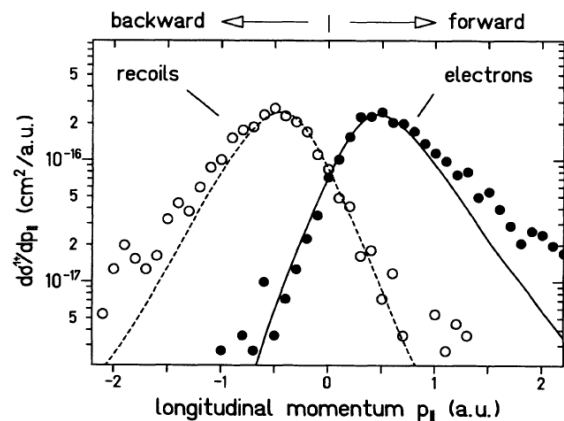


図 2. Ni^{24+} (3.6 MeV/u) によるヘリウムのイオン化の際の, 反跳イオン He^+ および電子の入射イオン方向の運動量分布 (文献 [2] より).

わち (A) のグループの電子はあまり「散乱平面」の外には出てこないであろう。一方, (B) のグループは独立な 2 回の衝突で出てくるので, 「散乱平面」の外へやってくるものは決して少なくはないと思われる。これまで「散乱平面」外へ出てくる電子を測った例はかなり存在する。しかし, 通常の方法では装置が複雑になり, 特別な条件のもとでの測定に限られていた。COLTRIMSは衝突後の電子(およびイオン)の運動量を, それがどの方向を向いていても完全に測定できるので, このような実験に最適である。最近発表された結果を紹介しよう [3]。

図 4 は, $E_0 = 102 \text{ eV}$ の電子によるイオン化で, 散乱電子が $\theta_1 = 8\text{-}20^\circ$ の方向へ飛び出す際に, $E_2 = 10 \text{ eV}$ の二次電子が飛んでゆく方向の分布を測定したものである。左側のパネルが「散乱平面」内の二次電子の分布, 右側はz軸を含んでそれと垂直な平面(以下「垂直平面」という)の中での分布である。横軸はいずれも二次電子の飛行方向とz軸とのなす角である [8]。

まず「散乱平面」内の分布は図3と本質的に同じである。すなわち, 30° 付近に **binary peak** が, また 210° 付近に **recoil peak** の分布がある。後者の分布は広がっており, 180° 付近にもデータがある。(ただし, ちょうど 180° のところは装置の関係で測定できない。)次に, 「垂直平面」内での二次電子の分布は, 基本的に 180° 付近の一つのピークからなっている。これはその性質から **recoil peak** に属することがわかる。なぜなら「散乱平面」内の図から, **recoil peak** のグループは 180° 付近にも値をもつからである。(図4の右側と左側で 0° と 180° の所は共通である。) **binary peak** に相当するものは「垂直平面」には現れていない。このことは最初の予想と一致する。なお, 運動量移行が大きくなると, 70° と 290° の付近に小さなピークが現れる。これは多体相互作用による高次の効果であろう。

この実験では二次電子の運動量の 3 次元分布が得られており, ここに示したのはそれを二つの平面で切ってあらわしたものである。平面のとり方は無数にあり, 見方を変えればさらに新しい知見

が得られるかもしれない。また E_0, E_1, θ_1 は固定してある。これらのパラメータもさまざまに取り得る。イオン化の詳細を知るためには, さらに一層の研究が必要である。

5. 終わりに

図4の線は理論計算である。ここでは, 最近開発された三つの方法による結果が示してある(詳しくは, 文献 [3] を参照)。一部一致の悪いところもあるが, 全体として理論は実験値をよく再現している。断面積の角度依存性のみでなく, 絶対値も良く合う。(ただし, 実験の絶対値はこの実験で得られたのではなく, 「散乱平面」での以前のデータを用いて規格化してある。)今から 10 年ほど前までは, イオン化断面積を理論で正しく求めることはきわめて困難なこととみなされていた。イオンの作るクーロン場の中で, 互いに相互作用しながら自由に飛んでゆく 2 個の電子の波動関数をどのようにして作るかがわかっていなかったのである。筆

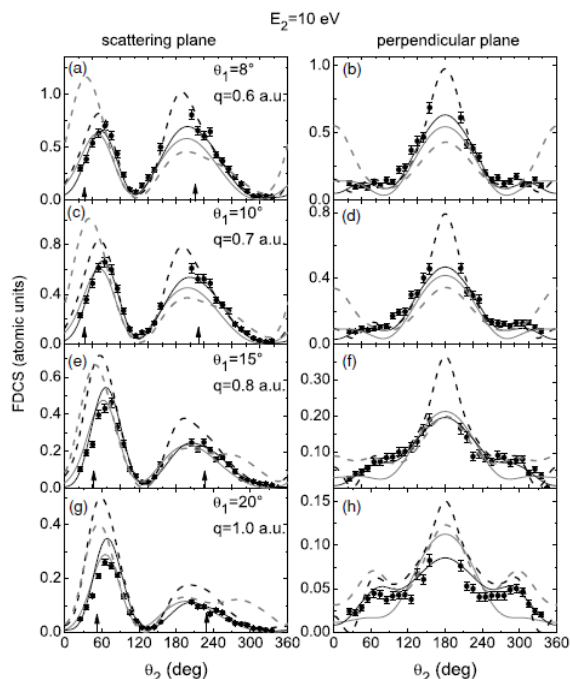


図 4. 102 eV の電子によるヘリウムのイオン化における二次電子 (10 eV) の方向分布。 θ_1 は散乱電子の方向, \mathbf{q} は運動量移行を表す。左側の図は散乱平面内の分布, 右側は垂直平面内の分布を表す。黒点が実測値, 線は理論計算の結果を示す。(文献 [3] より)

者も講義の中で、イオン化断面積の計算の話になると説明に苦勞するのが常であった。しかし今やこの程度のことは可能になった。もちろん、実験条件によっては、うまく理論で再現できないものもある。しかし研究は着実に進歩している。研究者たるもの決してあきらめてはいけない。

参考文献

- [1] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C.L. Cocke, R.E. Olson, M. Schulz, U. Buck, E. Zanger, W. Theisinger, M. Isser, S. Geis, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 74, 2200 (1995).
- [2] R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Unverzagt, W. Schmidt, P. Jardin, R.E. Olson, R. Mann, R. Dörner, V. Mergel, U. Buck, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 73, 3371 (1994).
- [3] M. Dürr, C. Dimopoulou, A. Dorn, B. Najjari, I. Bray, D.V. Fursa, Z. Chen, D.H. Madison, K. Bartschat, J. Ullrich, J. Phys. B 39, 4097 (2006).
- [4] COLTRIMSについての解説は多数あるが、比較的初期のものは
R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rep. 330, 95 (2000).
- [5] R. Moshhammer, J. Ullrich, H. Kollmus, W. Schmitt, M. Unverzagt, H. Schmidt-Böcking, C.J. Wood, R.E. Olson, Phys. Rev. A 56, 1351 (1997)
- [6] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L.Ph.H. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, Rep. Prog. Phys. 66, 1463 (2003).
- [7] H. Ehrhardt, M. Schulz, T. Tekaats, K. Willmann, Phys. Rev. Lett. 22, 89 (1969).
- [8] ちなみに、図3と図4は同じ情報を異なる表示方で示したものである。これが同じだということが直感的に分かるということが、自然科学の研究者が身につける最低限の能力の一つではないだろうか。

第10回 電子とDNAの衝突

市川 行和

yukitikawa@nifty.com

平成19年5月10日原稿受付

1. はじめに

最近原子衝突の世界に登場し、その活躍がはなばなしいのが生体関連の大きな分子(たとえば、DNAやそれを構成する核酸塩基や糖など)である。特に生体分子を標的とする電子衝突の研究が、ヨーロッパを中心に数多く報告されている。そのきっかけとなった論文が、今回紹介するカナダの Léon Sanche のグループによる、低速電子によるDNA損傷の実験である [1]。この論文はその発表後、生体分子を扱っている論文にはもちろんのこと、電子・分子衝突の重要性を述べる総説などでは必ず引用される存在になっている。この研究のリーダーであり、このあとも生体関連の原子衝突研究で世界の先頭に立っている Sanche は、本シリーズ第5回でとりあげた、George Schulz の弟子である。彼は凝縮相中の原子衝突の研究を長年てがけてきた。なおこの分野の解説としては Sanche によるものが多数あるが(たとえば、[2])、日本語で書かれたもの [3] が便利である。

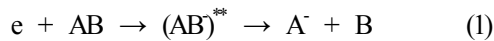
2. 低エネルギー電子によるDNAの損傷

放射線が生体に当たると、イオン化が起こり自由電子(2次電子と呼ばれる)が生成される。その

数はぼう大なもので、たとえば 1 MeV の放射線粒子(イオンや電子)1個が生体内で止まるまでに生成する2次電子の数は約1万個とされている。さらにこれらの2次電子のエネルギーはほとんど 10 eV 程度以下である。イオン化直後の電子にはエネルギーの高いものもあるが、生体内で直ちに減速され、最終的に低エネルギーの電子が大量に生成されることとなる。つまり、放射線作用を知るためには、これら低エネルギーの電子と生体内分子の衝突過程を研究することが不可欠である。このことは以前から知られていたが、Sanche らはDNAに直接低エネルギー(3 – 20 eV)電子を衝突させてその損傷の程度を定量的に測定した [1]。

標的となるDNAは、大腸菌細胞から抽出したものを水に浸し、液体窒素温度に冷やしたタンタル板に載せて瞬間的に真空凍結乾燥した。すなわちDNA(と周囲の水)の“氷”を作ったわけである。これにエネルギーのそろった電子ビームを当てる。その後、DNAを取り出し、その損傷の割合を測った。DNAの2本の鎖のうち、1本が切れることを single strand break (SSB)、2本ともが切断されることを double strand break (DSB)、と呼ぶ。DNAは鎖が切れるとその形が変わるので、そのことから損傷の割合を決めることができる。図1に実験結果を示す。図の縦軸は入射電子1個当たりに

規格化した損傷の量である。この図を見て、原子衝突の研究者がすぐに思いつくことは何か共鳴過程が起こっているに違いないということである。DNAの鎖が切れるということは、広い意味で分子の解離が起こっていることである。共鳴的な解離現象といえば、電子衝突による電子付着に伴う解離(dissociative electron attachment, DEA)



である。すなわち、図1の結果はDNAの損傷にDEAが深く関わっていることを示唆している。

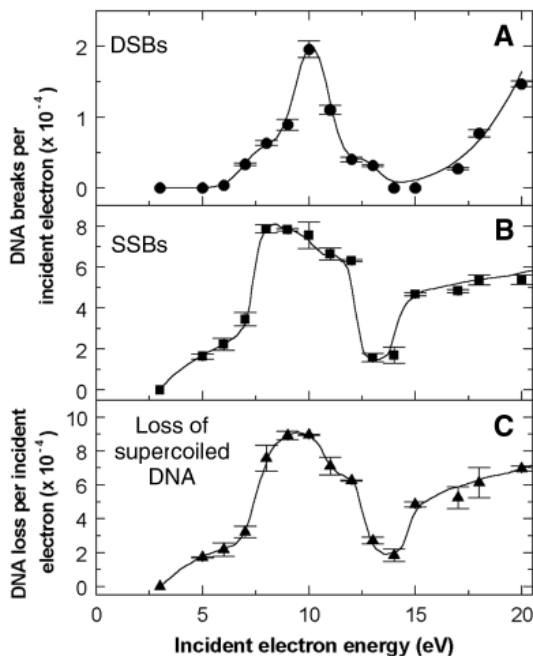
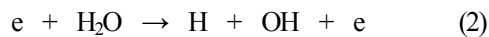


図1. DNAに電子(3-20 eV)を衝突させたときの損傷の程度。パネルA, Bはそれぞれ、2本鎖切断(DSB), 1本鎖切断(SSB)したDNAの量であり, Cは元のDNAの減少を示す。(文献 [1]より)

3. 生体分子の解離性付着

電子衝突による分子の解離機構はいろいろ考えられる。H₂O を例にあげると、主なものは



である。(2)は狭い意味の解離である。(3)は束縛電子を剥ぎ取られて壊れる、解離イオン化であり、(4)が問題のDEAである。図2にこれら3種類の解離過程について断面積の違いを示す。

DEA(1)が可能となる最低のエネルギーは

$$\Delta E = D(AB \rightarrow A+B) - EA(A) \quad (5)$$

で与えられる。ここで D は分子 AB の解離エネルギー、EA は生成物 A の電子親和力である。EA が大きければ解離エネルギーよりかなり小さいエネルギーでも分子 AB は壊れ得る。ただ実際にはDEAは共鳴過程であり、ある特定のエネルギーでないと起こらないのが普通である。また、エネルギー依存性は複雑な構造をもつことが多い。その断面積はあまり大きくはなく、通常は 10⁻¹⁸ cm² 以下である。(図2の H₂O は例外的に大きな断面積をもつ。)

さて図1がDEAに起因することを確かめるために、DNAを構成するさまざまな分子についてDEAの実験が行われた。図3は核酸塩基のうち、チミン(T)とアデニン(A) (いずれも気相)のDEAによるH⁻の収量を示す[4]。いずれも5-10 eVのところいくつかの共鳴的ピークをもつ。図にはまた、DNAのミニモデルとしてGCATオリゴマー(膜)についての実験結果も示してある。周囲の環境によって共鳴の様子が変わることがわかる。壊れてできるものはもちろんH⁻だけではない。さまざまな生成物が負イオンとして観測される。それらの種類、エネルギー依存性、収量などが詳しく調

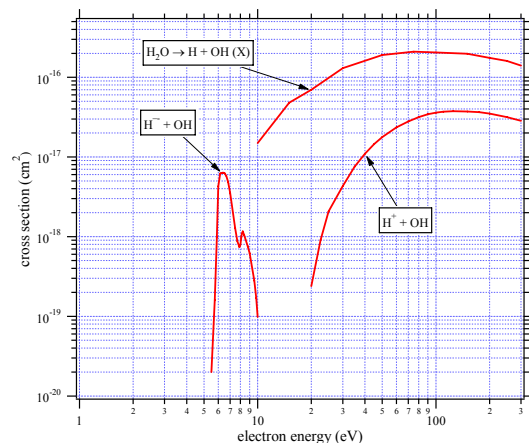


図2. 電子衝突による、水分子(気相)の解離過程の比較。(各断面積は文献 [9] から引用。)

べられた。その結果これまでのところ、次のようなシナリオが考えられている。低エネルギーの電子がDNAに当たると、それを構成している分子の共鳴状態につかまる。この共鳴状態が崩壊する際にどこかのボンドが切れる。この解離がDNAの鎖の切断に直接関係しているのか、あるいは生成された負イオンやラジカルがさらにDNAと反応して鎖の切断にいたるのかは、まだ必ずしも明確になっていない。たとえば、核酸塩基の共鳴状態につかまった電子がDNA鎖の幹を構成しているリン酸や糖に移動し、リン酸と糖をつないでいるボンドを切断するというシナリオがある。また、解離生成物である OH がDNAと二次反応を起こすのが、2本鎖を同時に切断するDSBの原因と予想されている。(なお、このようにDNA構成分子の気相における衝突実験の結果を生体内のDNAで起こることに直接結びつけるのは単純過ぎるという指摘もあることに注意。)

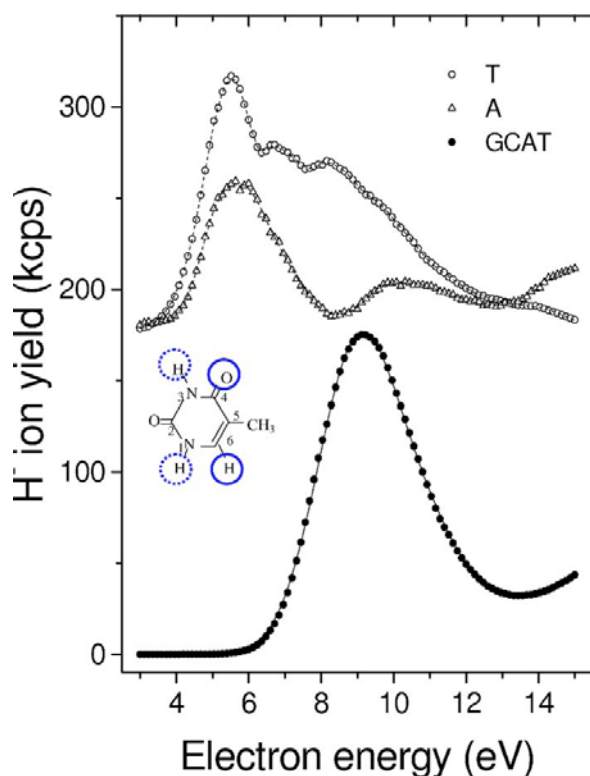


図 3. 電子衝突により、チミン(T)およびアデニン(A) (いずれも気相)から生成される H⁻ の収量。比較のためにGCATオリゴマー(膜)の場合も示す。(文献 [4] より)

4. さらに低いエネルギーの電子ではどうなるか

図 1 の実験は 3-20 eV の電子ビームを用いて行われた。電子のエネルギーをさらに下げるとどうなるかは、興味があるところであり、いくつかの実験がなされている。

図 3 は、生体分子 M の DEA として H⁻ が生成されるもの、すなわち



であった。ここで N は M から H を除いたものを表す。一般に N が負イオンになることも可能であり、



も起こる。分子が大きいと電子親和力も大きい可能性があり、(7)の方が(6)よりも低いエネルギーで起こり易い。実際、M が核酸塩基の場合の(7)

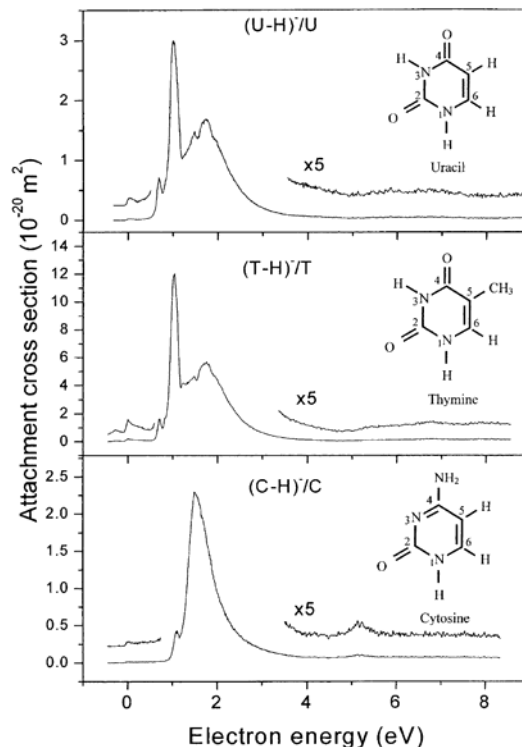


図 4. ウラシル(U), チミン(T), シトシン(C) (いずれも気相)の解離性付着断面積。生成されるイオンが、親分子から水素原子を除いたものの場合。(文献 [5] より)

の過程が実験で調べられ、図 4 にいくつかの例が示されている(図では、N の代わりに M-H と書いてある)[5]。図からわかるように 1 eV 程度の電子でもDEAが起こる。図 4 の縦軸はDEA断面積の絶対値を示す。現在では、これは大きすぎると考えられている。文献 [6,7] によると、図4の実験では分子 M の密度を測る際に容器の壁へ吸着される効果を正しく評価していなかったために密度が過小評価されている。したがってその分、断面積が大きくなっていると思われる。別の方法で測ったところによると、真のDEA断面積は、図 4 に示されている 10^{-16} cm^2 ではなくて 10^{-19} cm^2 の程度であろうとのことである。これは小さな分子のDEA断面積と同程度であり、もっともらしい。

さてそれではDNAの損傷はどうなるであろうか。図 5 に Sanche らによる最近の実験結果[8]を示す。図 4 のDEAに対応して、DNAのSSBも 1 eV のあたりで大きくなっている。なお、このような低エネルギーでは、DSBは観測されない。この実験では、電子ビーム一定のときの損傷DNAの時間変化からその断面積の絶対値を求めた。それが図 5 の縦軸である。これはかなり大きな値であるが、標的のDNAは約3000個の塩基対(もっと正確には約6000個のヌクレオチド)からなっていることを考慮すると、塩基分子 1 個あたりの断面積は 10^{-18} cm^2 程度となり、図 4 の断面積に上記の修正をほどこしたものと矛盾しない。(一般に、DNA中の分子の断面積は気相中のそれに比べて大き

くなる傾向にある。)

もう一つ興味深いことは、図 5 の実験では 0.1 eV まで電子のエネルギーを下げても損傷が見られたことである。(5)式に関連して述べたように、DEAはほとんどゼロのエネルギーでも起こりうる。このことは放射線作用の理解に重要な意味をもつかもしれない。

参考文献

- [1] B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M.A. Huels, L. Sanche, *Science* **287**, 1658 (2000).
- [2] L. Sanche, *Eur. Phys. J. D* **35**, 367 (2005).
- [3] 田中 大, 星野正光, C. Makochekanwa, *放射線化学* **81**, 40 (2006).
- [4] S. Ptasinska, L. Sanche, *J. Chem. Phys.* **125**, 144713 (2006).
- [5] S. Denifl, S. Ptasinska, M. Cingel, S. Matejcik, P. Scheier, T.D. Märk, *Chem. Phys. Lett.* **377**, 74 (2003).
- [6] K. Aflatooni, A.M. Scheer, P.D. Burrow, *Chem. Phys. Lett.* **408**, 426 (2005).
- [7] K. Aflatooni, A.M. Scheer, P.D. Burrow, *J. Chem. Phys.* **125**, 054301 (2006).
- [8] R. Panajotovic, F. Martin, P. Cloutier, D. Hunting, L. Sanche, *Rad. Res.* **165**, 452 (2006).
- [9] Y. Itikawa, N. Mason, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **34**, 1 (2005).

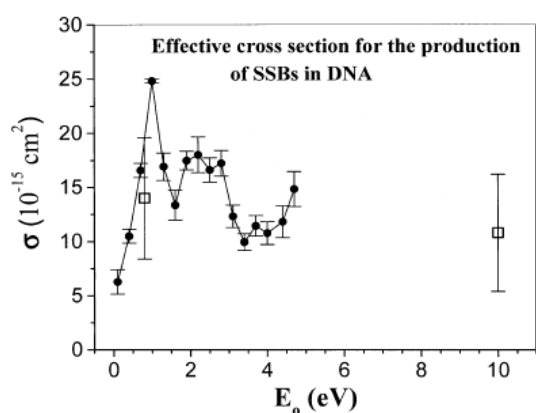


図5. DNAに電子(0.1 - 4.7 eV および 10 eV)を衝突させたときのSSB生成断面積。黒丸と四角は異なる方法で決めたもの。(文献 [8] より)

原子衝突実験の歩み シリーズを終えるに当たって

市川行和

予定していた 10 回を無事終えることができた。拙い文章に付き合ってくくださった読者の皆さんに感謝する。これがきっかけとなって、また別の角度から見た歴史が書かれるのを期待したい。本シリーズのもとになったのは、上智大学大学院での講義であった。講義をする機会を与えてくださり、また何かと助けてくださった、同大学 田中 大氏に深く感謝する。本シリーズ執筆のためには、さまざまな文献や資料が必要であった。それらを集めるのには国内外の多くの方々にお世話になった。いちいち名前を挙げないが、この機会にお礼を申し上げる。最後に、「しょうとつ」誌の歴代の編集委員長および編集部の方に感謝したい。技術的なことなどで大変お世話になった。本誌の今後の発展を祈念して、私の連載を終えることにする。