

気相分子の内殻光電子放出における 光電子波の干渉と散乱

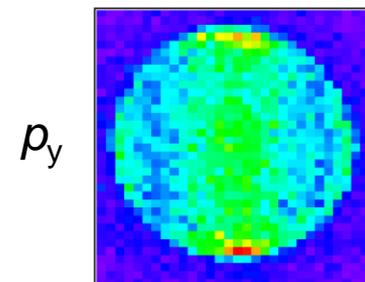
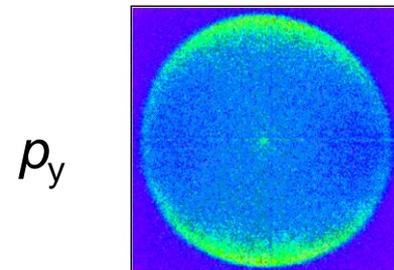
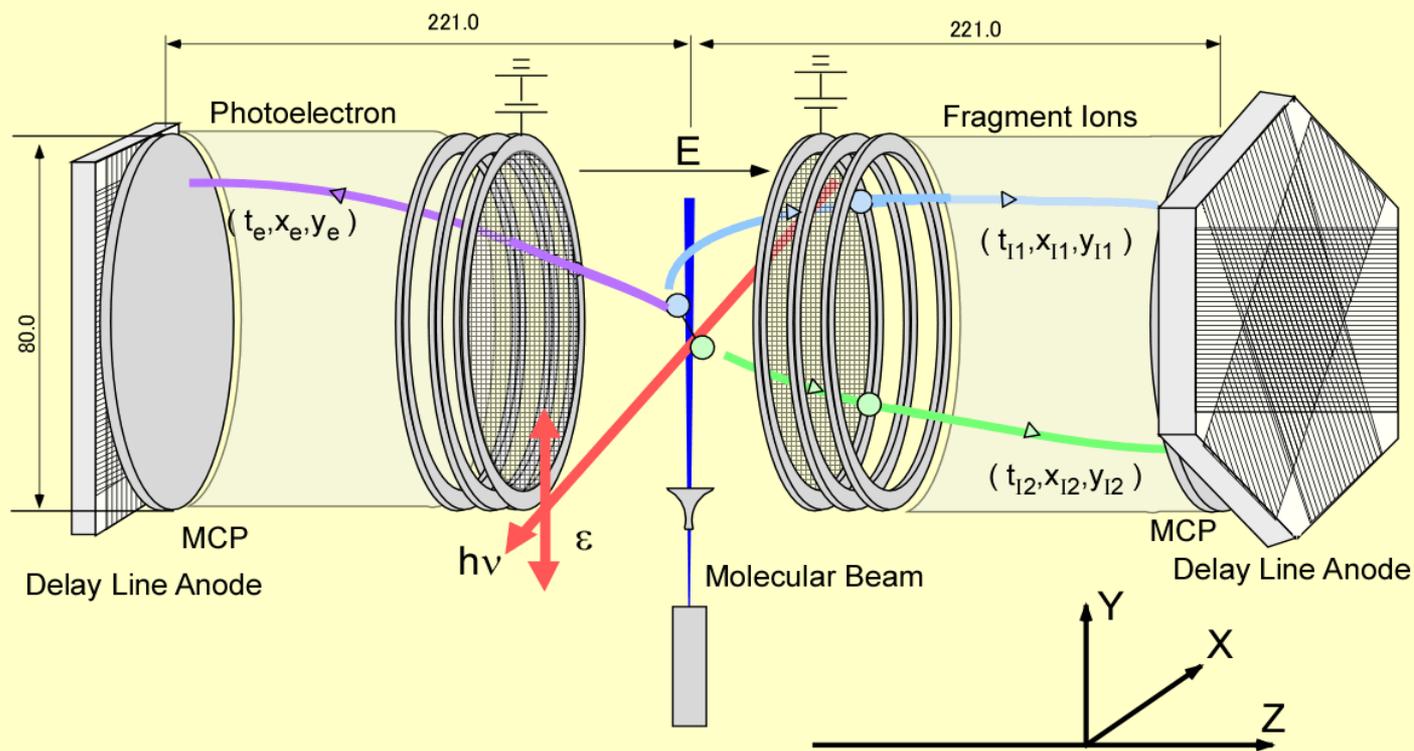
高エネ機構 物構研 PF 足立 純一

内殻光電離過程のこれまでの理解とこれから

- 形状共鳴
 - 連続状態に埋もれた空軌道への遷移
 - 散乱理論による説明との接続？
- 光電離ダイナミクス (微分断面積の変化)
 - MFPAD 測定により詳細な実験的記述
 - 本質は多中心であり、1 中心的な記述が詳細になっても解釈は困難
- 現在・これから
 - 直観的な描像の可能性？ \Leftarrow 光電子波の干渉・散乱
 - 分子ポテンシャルに鋭敏な領域を避ける [$100 \text{ eV} \leq KE$]
 - 同じ素過程を利用している他の手法との関係
 - 時分割低速光電子回折法の基礎

コインシデンス運動量画像装置 (CO-VIS)の概念図

- 飛行時間型質量分析器 (TOF-Mass)
+ 位置敏感検出器 (PSD)



p_x

運動量

$$p_z \propto (t - t_0)$$

$$p_x \propto x$$

$$p_y \propto y$$

穂坂綱一ら, *Jpn. J. App. Phys.* **45**, 1841 (2006).
寺本高啓, 博士論文 (東京大学, 2006/12).

CO 分子の炭素 1s および 酸素 1s MFPAD (平行配置)

後方散乱 ← → 前方散乱

KE = 50 eV

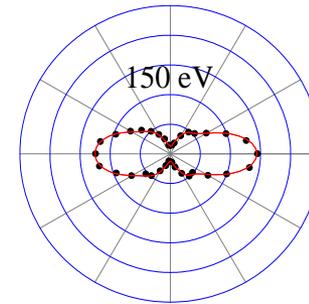
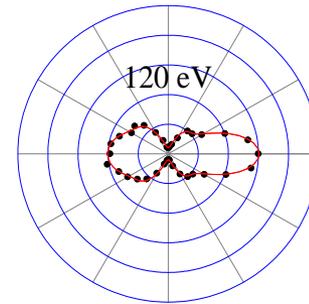
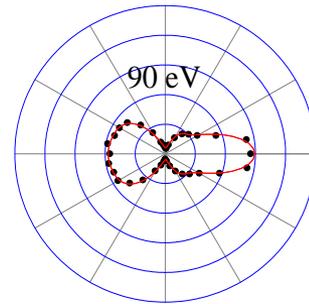
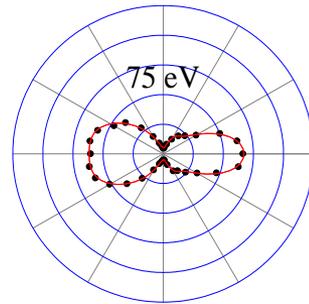
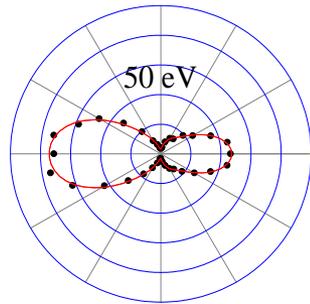
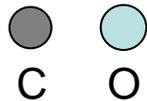
75 eV

90 eV

120 eV

150 eV

C 1s



KE = 45 eV

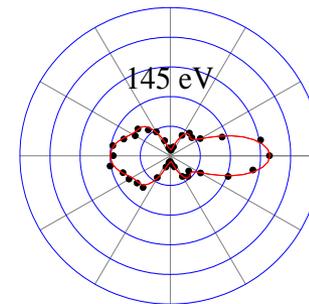
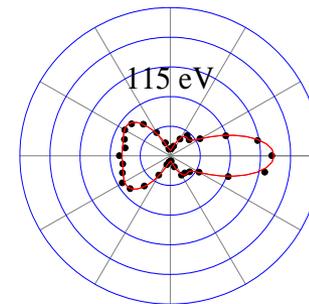
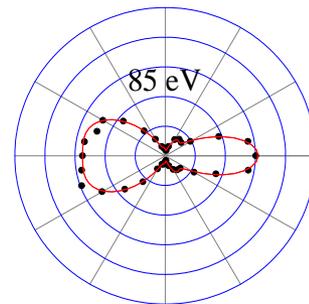
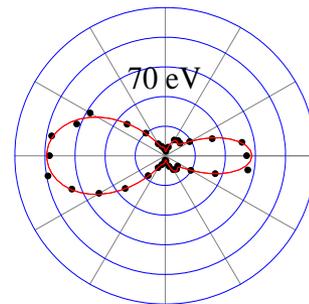
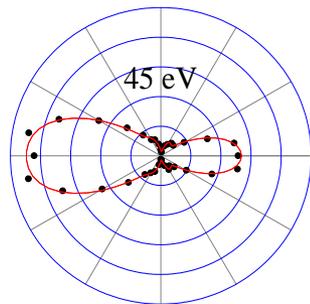
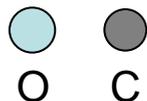
70 eV

85 eV

115 eV

145 eV

O 1s



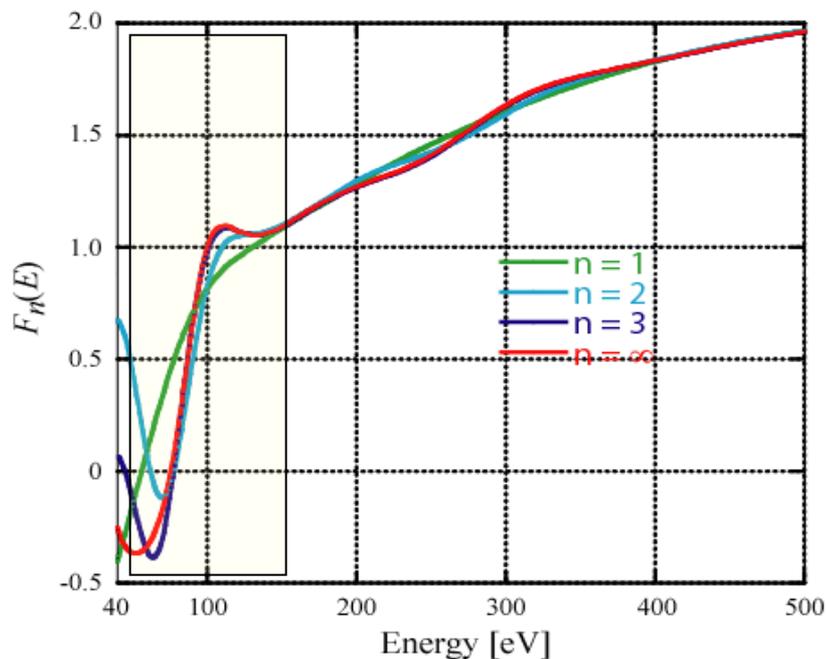
1.130 Å

前方散乱: 増加して 100 eV 近傍でほぼ一定値

後方散乱: 50 eV から減少し、150 eV 近傍で再び増加

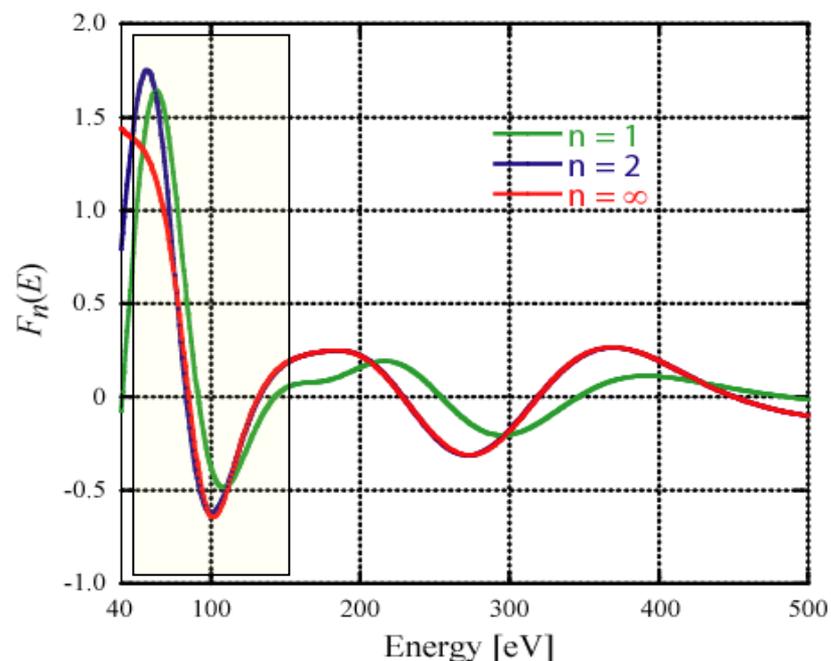
多重散乱理論による計算結果 CO 分子 C 1s 光電離 MFPAD

前方散乱



100 eV を超えると緩やかな増加
少なくとも 2 回散乱が必要
 $n = 3$ でほぼ収斂

後方散乱

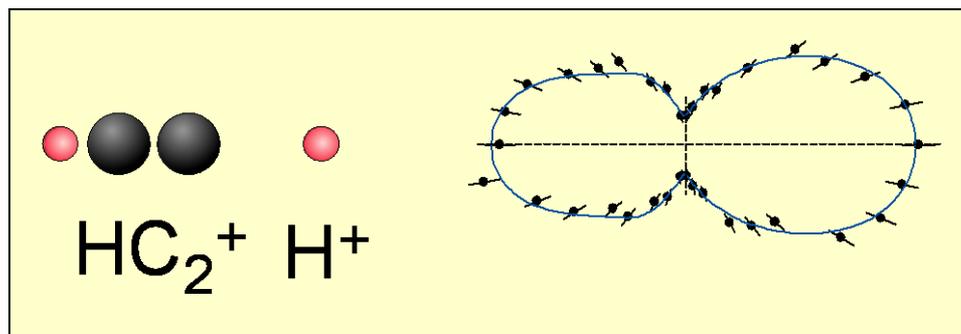


大きく変動 \Rightarrow EXAFS 変動の起源
 $n = 2$ でほぼ収斂

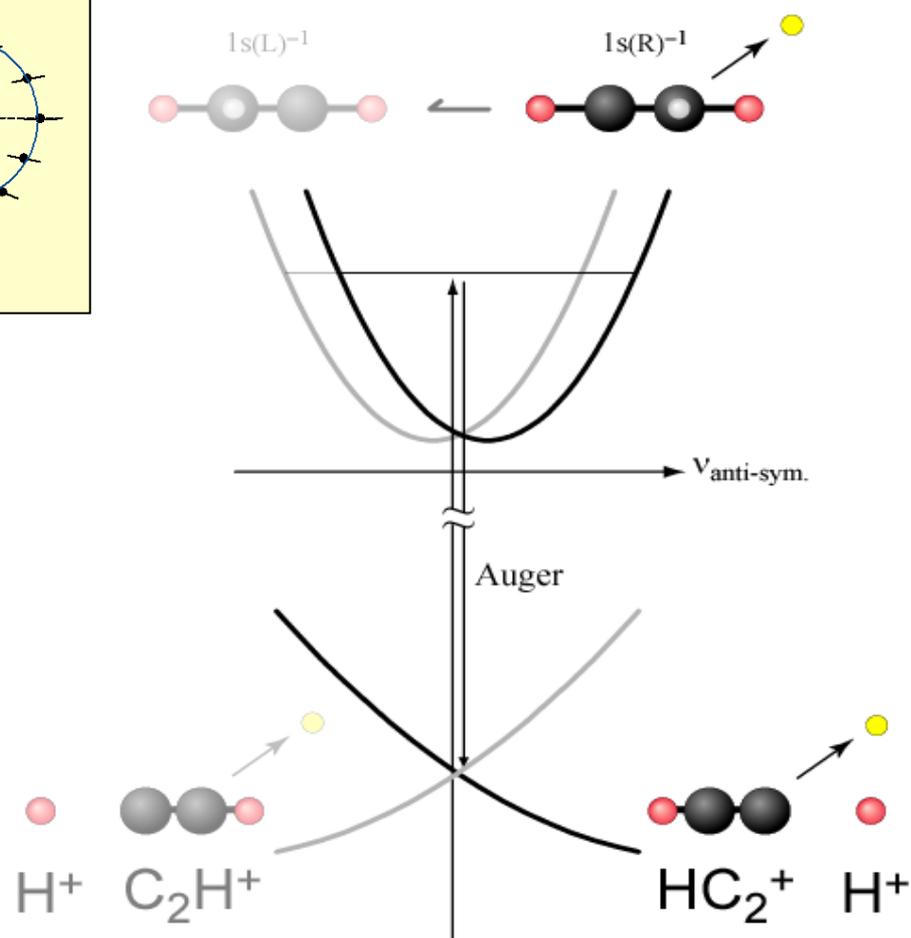
まとめ 1

- $50 \text{ eV} \leq \text{運動エネルギー} \leq 150 \text{ eV}$ での MFPAD
 - CO 分子の炭素および酸素 1s 電子について測定
 - EXAFS および XPD の計算モデルの検証用データ
- CO 分子の C1s MFPAD について計算機実験
 - 1 回散乱; $1s \rightarrow kp$ 直接波 + s, p 散乱波
 - ⇒ f 波的な形状が現れる: 干渉が重要
 - 散乱回数 $n \sim 2, 3$; $l_{\max} \sim 2$ (d 波), 3 (f 波)
- 今後の課題
 - より高い運動エネルギー・より高い分解能での測定
 - 時分割光電子回折実験への応用

非対称解離チャンネルに関する説明

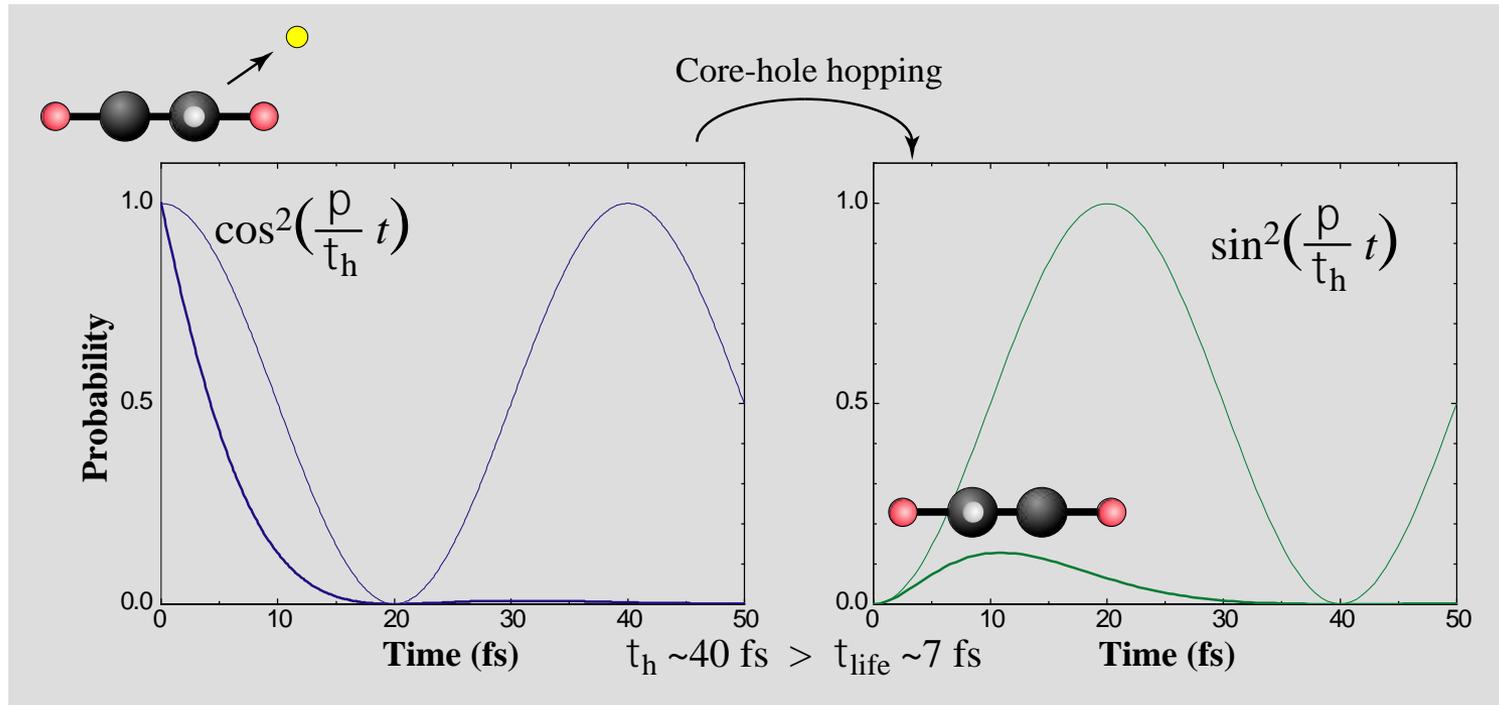


- 光電子は非対称な分子ポテンシャルを感じている
- 内殻寿命 ~ ホール移動
- ホール位置と切断される結合に相関
- RF-PAD は非対称



C₂H₂ 分子の炭素 1s 空孔の移動

$$|\Psi_{1s^{-1}}(t)|^2 = |\psi^R|^2 \cos^2\left(\frac{\pi}{\tau_h} t\right) + |\psi^L|^2 \sin^2\left(\frac{\pi}{\tau_h} t\right)$$



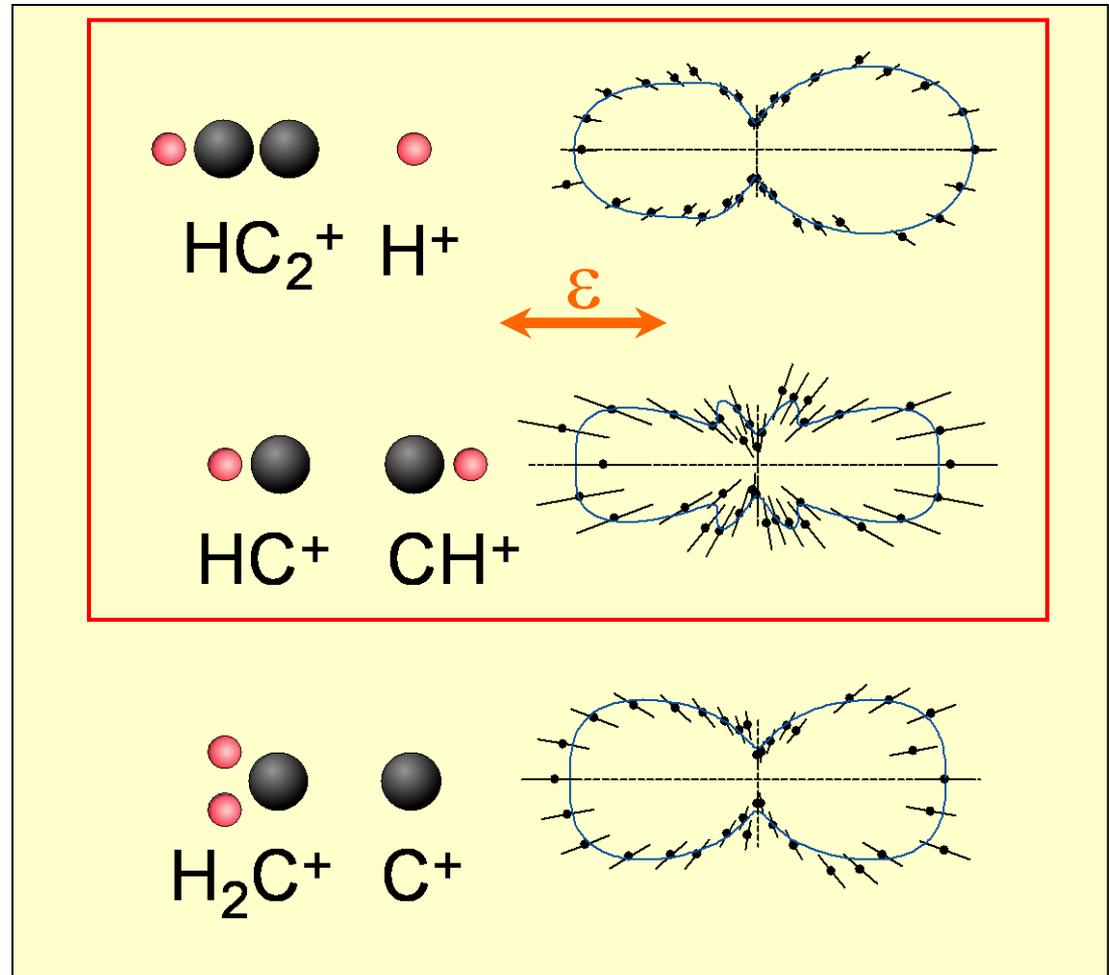
- 2つの準位の差 $\Delta E = 105 \text{ meV}$
- ホールホッピング ($\tau_h \sim 40 \text{ fs}$) > 内殻寿命 ($\tau_{\text{life}} \sim 7 \text{ fs}$)

2 体解離の RF-PAD の再比較

- 非対称解離
– 非対称

- 対称解離
– 対称

- プロトン移動
– ほぼ対称



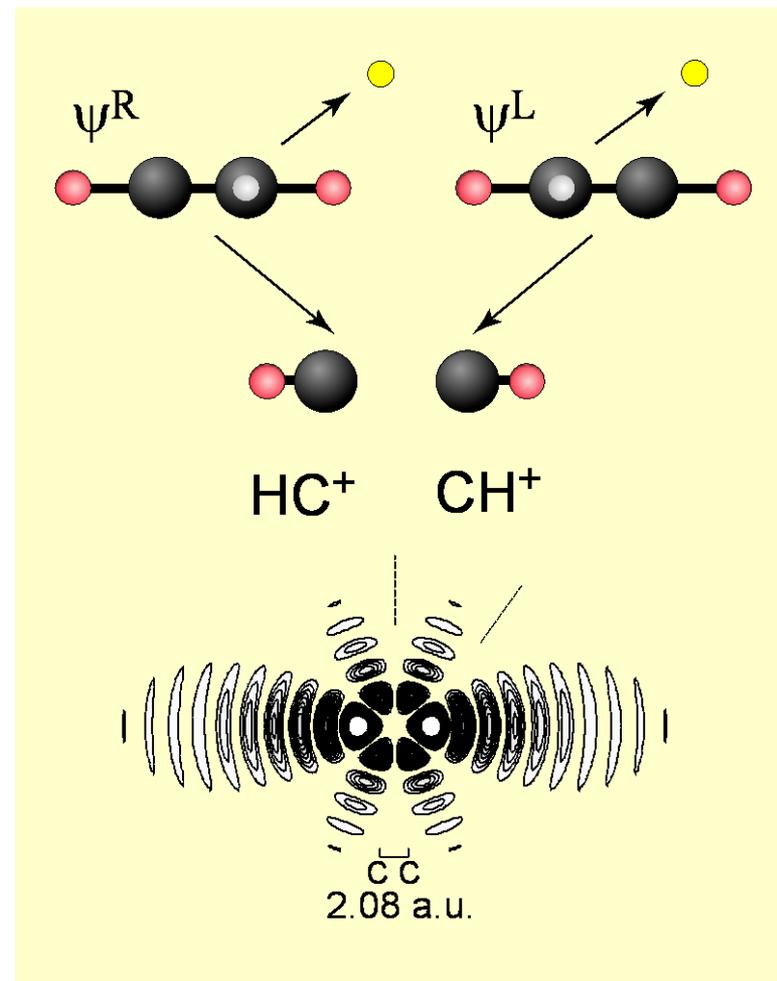
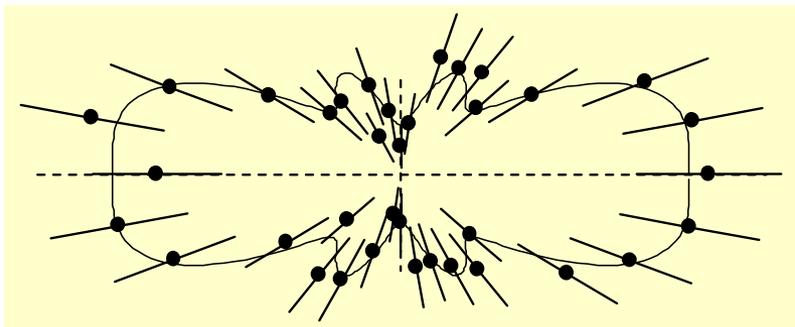
足立純一ら, *J. Phys. B* **40**, (2007) F285.
穂坂綱一, 博士論文 (東京大学, 2005)

自由粒子 p 部分波干渉モデルによる 対称チャンネル PAD の説明

- 2つのホール状態は識別できない
- 局所的な $1s \rightarrow kp$ 電離過程

$$I_{co} = |j_1(kr_A)P_1(\cos \theta_A) + j_1(kr_B)P_1(\cos \theta_B)|^2$$

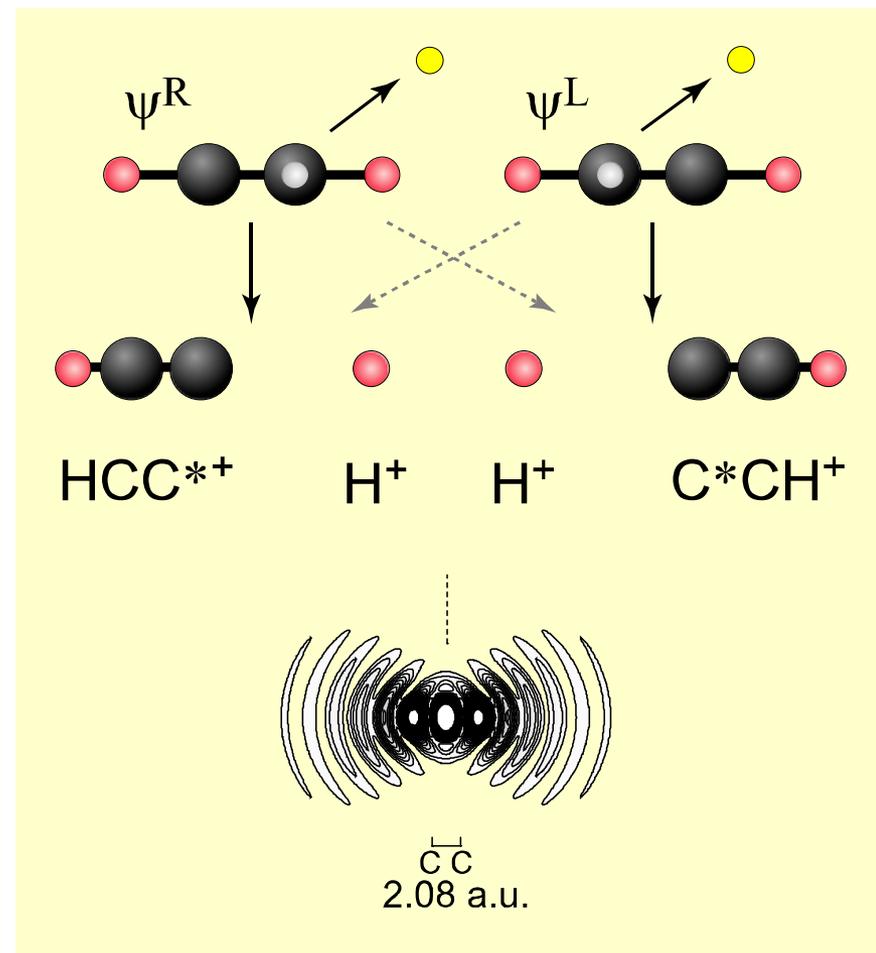
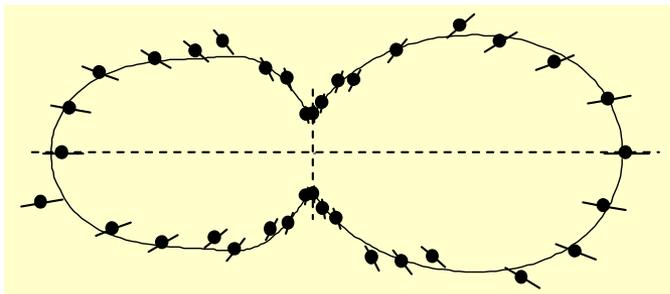
- ノード構造が再現される
 - $\varepsilon = 55$ eV (実際には 20 eV)



自由粒子 p 部分波モデルによる 非対称チャンネル PAD の説明

$$I_{\text{in}} = |j_1(kr_A)P_1(\cos \theta_A)|^2 + |j_1(kr_B)P_1(\cos \theta_B)|^2$$

- 局所的な $1s \rightarrow kp$ 電離過程
- 選択的解離のため
ホール状態が区別される
- 似た形状が再現される
 - $\varepsilon = 55 \text{ eV}$ 同じ値を適用
(実際には 20 eV)



まとめ 2

- CO-VIS による内殻光電離ダイナミクスの研究
- PAD 形状の説明には内殻ホール局在化描像
 - 非対称伸縮振動の励起が本質ではない
 - ある瞬間に局在したホールが生成し、すぐに崩壊
 - そのホールと切断される結合に相関があることが重要
- C_2H_2 分子の $C1s$ 光電離過程
 - CH^+-CH^+ (対称 2 体解離): 対称 干渉
 - $H^+-C_2H^+$ (非対称 2 体解離): 非対称 非干渉
 - $C^+-CH_2^+$ (異性化 2 体解離): ほぼ対称