

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 Interference and scattering of photoelectron waves in core-level photoionizations for simple linear molecules

足立純一
ADACHI Jun-ichi

Photon Factory, Institute of Material Structural Science, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan.

*e-mail: jun-ichi.adachi@kek.jp

[はじめに] 分子の光電離過程は、有限多体系である物質と光との相互作用による束縛-連続遷移の典型例としてだけではなく、速い運動の電子と遅い運動の原子核という階層構造を持っているという観点から、量子系の理解を深めるため重要である。また、遷移先の連続状態が離散状態と相互作用する可能性もあり、非常に多彩な挙動を示す。光電離過程についての動的挙動の研究はいまだ少なく、素過程として興味深い問題が多く残されている。これは、気相分子について、通常の光電子分光実験を行ったとしても、分子の熱的な回転運動のため、通常は回転平均化された情報しか得られず、詳細な考察が困難であったためである。

近年では、分子の内殻過程の性質を活用した同時計測法により、分子座標系光電子角度分布 (MFPAD) の測定^[1,2]が可能になり、回転運動による平均化を乗り越えることができている。私たちは、SRを利用した内殻準位 MFPAD の測定を行い、分子の光電離ダイナミクスについて研究を行ってきている^[1]。それらの知見はまだ充分とは言えず、MFPAD 形状が、どのような効果により支配的な影響を受けているのか統一的に説明できておらず、さらに実験・理論的な研究を進める必要がある。

内殻光電離過程の別の側面での重要性は、物質科学における分光手法の素過程であることである。放射光の分野では内殻光電離過程は、分光手法に幅広く利用されている。電子的構造のエネルギー準位を調べるだけでなく、放出される光電子が周囲の局所的な環境の影響を受けることを用いた EXAFS 法^[3] や光電子回折

法^[4] などとしても活用されている。つまり、内殻軌道からの光電子は、局所構造のプローブとして利用できる。これまであまり活用されていない特性として注目している点は、光電離過程は非常に短時間で進行するため、時間分解測定により短時間のスナップショット情報が得られる可能性があることである。したがって、物質構造の情報を得るための手法と、基礎的な光電離ダイナミクスとの関係を明確にすることも重要である。

ここでは、 N_2 ^[5] および CO 分子^[6] の内殻 1s 準位を対象とし、MFPAD を測定することにより、その電離ダイナミクスについて考察したことを紹介する。また、 C_2H_2 分子の炭素 1s 光電離過程について、観測される光電子角度分布が観測する後続過程に依存する例^[7,8] を示す。

[実験] 軟 X 線領域での高輝度の直線偏光が得られる Photon Factory のアンジュレータビームライン BL2C^[9] にて実験を行った。測定には、運動量画像同時計測装置 CO-VIS^[10,11] を用いた。この装置は、2 つの位置敏感型検出器を備え、運動量画像条件を作る静電レンズ系を持つ。内殻電離により放出される光電子と光イオンについて、それらの時間相関とそれぞれの検出器上での位置から、分子解離軸に対する光電子の角度分布を得た。

[結果および考察]

図には、CO 分子の酸素 1s および炭素 1s 光電離過程について得られた、MFPAD を示している。励起光の電気ベクトル (ϵ) と分子軸とが平行である配置についての結果であり、 $\Sigma \leftarrow \Sigma$ 遷移の

MFPAD に対応している^[1]。光電子の放出側が左側、散乱体となる原子が右側になるように示している。このような配置において、右水平方向が前方散乱、左方向が後方散乱となる。

内殻光電離は局所的な $1s \rightarrow kp$ 遷移により説明可能である^[5-7]。図に示されているように、50 eV 以上の運動エネルギーにおいても、MFPAD は完全な p 波的形状を示さないことが観測された。このような MFPAD 測定は、1 つの原子の内殻から放出された電子が、隣接原子により散乱されている様子を観測していると見なすことができる。示した結果の範囲では、前方散乱強度 (右方向) は少し増加し、その後ほぼ一定となっているのに対し、後方散乱強度 (左方向) は大きく減少し、再び少し増加している。このような MFPAD の変化挙動^[6,12] は、光電子の運動エネルギーが 90 eV 以上の領域では、前方散乱強度がほぼ一定となり、後方散乱強度が変動していると説明できる。また、MFPAD の全体の形状を決める要因について、計算機実験による解析^[6] を紹介する。

また、 N_2 分子^[5,13] と C_2H_2 分子^[7,8] の内殻光電離に関するの測定結果につい

て、光電子波の干渉^[14]・非干渉の考え方による説明を紹介する。

[参考文献および註]

- [1] A. Yagishita, K. Hosaka and J. Adachi, *J. Electron Spectrosc.* **142**, 295 (2005) およびその参考文献.
- [2] J. Ullrich, *et al.*, *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1463 (2003); K. Ueda, *J. Phys.* **B 36**, R1 (2003) など.
- [3] “NEXAFS Spectroscopy”, J. Stöhr (Springer-Verlag, Berlin, 1992).
- [4] C.S. Fadley, *Surf. Sci. Rep.* **19**, 231 (1993).
- [5] 足立純一ら, 第 1 回分子科学討論会, 4C03 (2007).
- [6] 足立純一ら, 第 2 回分子科学討論会, 4C15 (2008).
- [7] J. Adachi, *et al.*, *J. Phys.* **B 40**, F285 (2007).
- [8] T. Osipov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 233002 (2003).
- [9] M. Watanabe *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **467-468**, 512 (2001) およびその参考文献.
- [10] K. Hosaka *et al.*, *Jpn. J. App. Phys.* **45**, 1841 (2006).
- [11] 穂坂綱一, 博士論文 (東京大学, 2005).
- [12] 特定の配置についての観測は、U. Becker, *AIP Conf. Proc.* **508**, 205 (2000) に報告されている. その結果の解釈が、B. Zimmermann *et al.*, *Nature Phys.* **4**, 649 (2008) に発表されている.
- [13] X.-J. Liu *et al.*, *J. Phys.* **B 39**, 4801 (2006); D. Rolles *et al.*, *Nature* **437**, 711 (2005)
- [14] H.D. Cohen and U. Fano, *Phys. Rev.* **150**, 30 (1966).

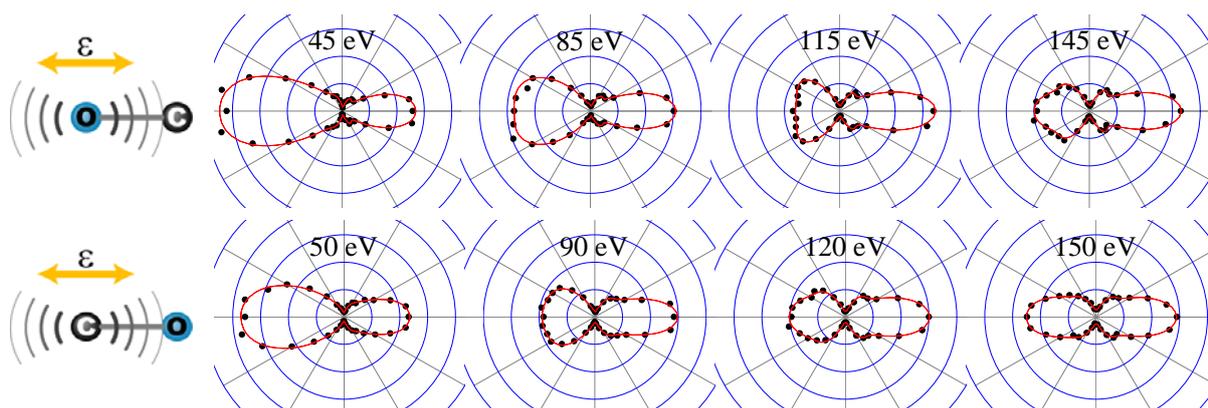


図 CO 分子の $1s$ 光電離の MFPAD. 平行遷移について、上段に酸素 $1s$ 光電離、下段に炭素 $1s$ 光電離の光電子強度を極座標により示している。それぞれの測定条件における光電子の運動エネルギーの値は、図中に示している。点は実験データ、実線は 10 次までの Legendre 多項式を用いてフィッティングした曲線^[1]である。フィッティングにおける A_0 係数が等しくなるように結果を規格化、つまり、 $\Sigma \leftarrow \Sigma$ の遷移強度を一定として表示している。