

# 分子の内殻光電離ダイナミクスの研究

穂坂綱一<sup>1</sup>, 足立純一<sup>1,2</sup>, 寺本高啓<sup>1</sup>, 高橋正彦<sup>3</sup>, 渡辺昇<sup>3</sup>, A.V.Golovin<sup>4</sup>, 柳下明<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>東大院理, <sup>2</sup>高工機構物構研, <sup>3</sup>自然機構分子研, <sup>4</sup>サンクトペテルスブルグ国立大学

(<http://molecule.kek.jp/>)

## Outline

原子や分子はその系が単純であるために、微視的な世界を支配する量子力学の最適な研究対象になっている。しかしながら、最も基本的な問題である原子分子と光との相互作用に関する理解は今のところ十分とは言えず、21世紀になっても、重要な課題が未解決のままである。特に、独立粒子モデルから逸脱した現象は、研究者の挑戦を待っている。また、核の運動と電子の運動の結合が光励起あるいは電離過程にどのように現れるのか、分子構造と電子遷移を統一的に扱うべく新しい課題も興味をそそる。

本研究室では、これらの課題を第一原理から完全に理解するために、極紫外・軟X線放射光を利用して原子分子の光励起および電離過程の種々の実験を行っている。

### 〈主な研究テーマ〉

#### 分子の内殻光電離ダイナミクスの解明

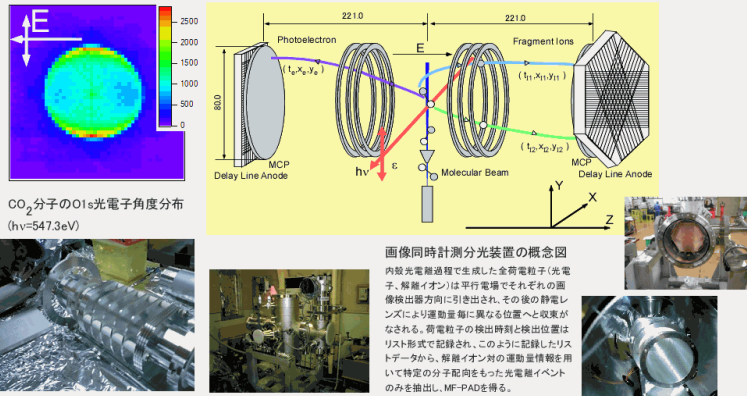
分子の内殻電子をイオン化すると、不安定な内殻ホール状態を解消するためにフェムト秒( $10^{-15}$  sec)でオージェ崩壊が起こり、多価イオンが生成し、解離する。この解離過程は分子の回転周期に比べて十分に短いため、解離イオンの放出方向は、光吸収時の分子軸の配向が反映される。この解離イオンと光電子を同時計測することによって配向した分子からの光電子の角度分布(MF-PAD)が観測できる。このMF-PADをもちいて、光電離における光電子-電子、光電子-原子核の様々な相互作用を解明する。

#### 強光子場中分子のダイナミクスの解明

レーザー光源技術の進展により、レーザー光を集光することにより $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>以上の光子場を作ることができるようになってきた。強光子場中では分子が偏光方向に配列し、さらに強い光子場ではドレスト(Dressed)状態と呼ばれる光の衣をまとった状態になる。このような強光子場中での分子の動的挙動(電子軌道)の振動的構造およびその時間変化度、シフトドロン放射を用いて明らかにするための研究を始めた。強光子場を作るナノ秒( $10^{-9}$ 秒)パルスレーザーを分子に照射し、同時にフレイブレーザー光としての放射光( $10^{-16}$ 秒程度の幅のパルス)を当て、放出される光電子・光イオンを観測するシステムの開発を進めている。

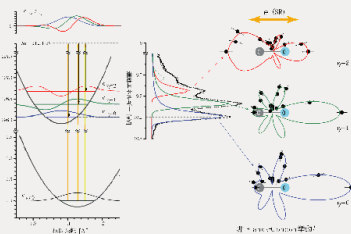
## Apparatus Coincident Velocity-map Imaging Spectrometer

光電離で生成する全荷電粒子のベクトル情報をリストとして記録し、光電離研究で使用される任意の物理量(全断面積、部分断面積、実験室系光電子角度分布、分子座標系光電子角度分布 etc.)を必要に応じて再構築する。



## 最近の主な研究

### 振動状態を分離したCO C1s光電離ダイナミクス



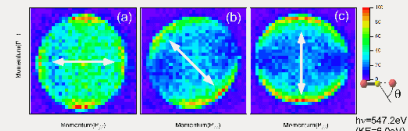
CO分子の炭素1s光電離過程について、振動単位を分離した分子座標系光電子角度分布(VR-MFPAD)測定に成功した。下図は、励起光エネルギー310.1eVにて測定したVR-MFPADを示している。イオン化された状態での振動単位がそれぞれ $v=0$ および $1, 2$ の状態のVR-MFPADを示している。励起光エネルギー310.1eVは、内殻励起スペクトルに吸収の極大が見られる「形状共鳴」近傍のエネルギーである。振動単位が異なる、VR-MFPADの形状も異なる。これは、「MFPADに観測される非Franck-Condon挙動」といえるものである。このような挙動は、それぞれの振動終状態への遷移はある核間距離近傍において強く起こり、そのような核間距離が振動単位に応じて広がっていることにより説明できる。

Shape-Resonance-Enhanced Vibrational Effects in the Angular Distributions of C 1s Photoelectrons from Fixed-in-Space CO Molecules, Phys. Rev. Lett. 91, 163001 (2003).

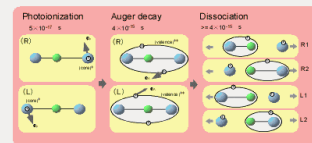
### 内殻ホール生成による分子の対称性低下

基底状態のCO<sub>2</sub>分子はD<sub>∞h</sub>の対称性をもつが、O1s電子をイオン化することによって、核間距離が極小ポテンシャル上で反対称伸縮振動を始め、2つの酸素原子は等価ではなくなる。この現象は1970年代に予測され、光電子スペクトルには反対称伸縮振動の振動励起が観測されているが、この分子ポテンシャルの対称性低下が光電子の運動に及ぼす影響については議論がない。もし光電子の角度分布が対称性の崩れた分子ポテンシャルの影響により反転対称性を失うのであれば、光電子の放出角を観測することによって、CO<sub>2</sub>分子の左右等価な酸素のどちらの酸素にホールが生成したかをそれぞれの電離イベントで区別することが可能になる。この効果を確認するために解離イオン-解離イオン-光電子の3重同時計測による配向CO<sub>2</sub>分子のO1s光電子角度分布測定を行った。

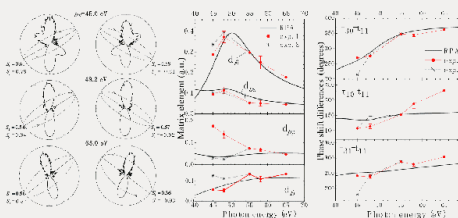
下図に配向CO<sub>2</sub>分子のO1s光電子角度分布(hν=547.3eV)を示す。特に分子軸と電気ベクトルが45°をなす(b)において、左上のカウントが右下のカウントと比べ少ない。このように光電子の角度分布に対称性の低下が見えているという事は同時に、オージェ崩壊過程においてホール生成位置が解離パスの分岐比に影響を及ぼしているということを示している。



解離イオン対を用いて分子配向を識別した光電子の運動量射影像。x軸は分子軸に平行な運動量 $P_x$ 、y軸は分子軸に平行な運動量 $P_y$  ( $P_x^2 + P_y^2 = 2m_e v_{rel}^2$ ,  $v_{rel} < 6$  eV)。中心からの距離が面内の運動量の絶対値、角度 $\theta$ は分子軸からみた光電子の放出方向に相当する。



### N<sub>2</sub>分子の2σ<sub>g</sub>光電離の完全実験



N<sub>2</sub>分子の解離性2σ<sub>g</sub>-1状態への光電離過程について、真空紫外領域の円偏光を用い、MF-PADを測定することにより研究を行った。Photon FactoryのBL28Iに設置された円偏光アンジュレータ装置からの楕円偏光を利用した。右回りおよび左回りの楕円偏光によるMF-PADを下図に示している。また、直線偏光によるMF-PADも測定した。それらの実験データから、光電離を記述する動的パラメータをすべて決定することができた。

Direct probe of the shape resonance mechanism in 2σ<sub>g</sub> photoionization of the N<sub>2</sub> molecule, Phys. Rev. Lett., 88, 063003-1(2002).