

1B05

多電子同時計測による原子・分子の多重イオン化の研究

○ 彦坂泰正¹, 金安達夫¹, 繁政英治¹, P. Lablanquie², F. Penent², 伊藤健二³

(¹分子研, ²LCPMR, ³物構研)

【序】原子や分子から内殻電子を光イオン化する際に、価電子は核電荷の急激な変化を感じる。これにより、内殻イオン化に付随して価電子の放出が引き起こされることがある[1]。このような光二重イオン化の結果、内殻軌道と価電子軌道にそれぞれ空孔を持つ特異な二価イオン状態が生成する。この内殻-価電子二重イオン化過程の直接的な観測は、放出された2つの光電子の運動エネルギーを同時計測測定することによって実現される。しかしながら、この極端に断面積の小さい光二重イオン化過程の観測は、従来の同時計測手法の検出効率では不可能であった。我々は、磁気ボトル型電子エネルギー分析器を用いた高効率の多電子同時計測手法を導入することにより、NeやCOの内殻-価電子二重イオン化の観測に成功した[2, 3]。

【実験】実験は、物質構造科学研究所の放射光施設において、ストレージリングの単バンチ運転を利用して行われた。図1に我々が製作した磁気ボトル型電子エネルギー分析器の概念図を示す。光イオン化によって放出された電子は、永久磁石とソレノイドコイルによって形成される磁場勾配により捕獲され、飛行管に導かれる。磁気ボトル型電子エネルギー分析では、電子の運動エネルギーを飛行時間により決定する。そのため、エネルギー分解能は主として飛行管の長さによって制約される。我々の装置では、2.5mの飛行管を設けることにより、エネルギー分解能 $E/\Delta E=80$ を達成している。磁場による電子の捕集効率はほぼ100%であるため、同時計測の効率は非常に高く、これまでにXeの段階的4重イオン化における全て

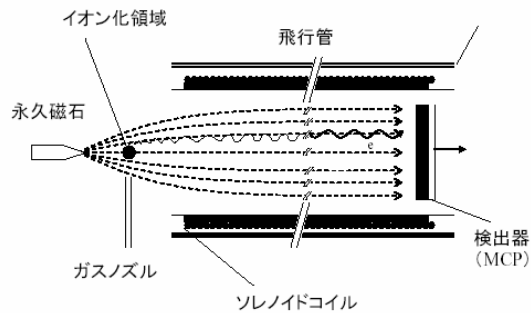


図1 磁気ボトル型電子エネルギー分析器の概念図

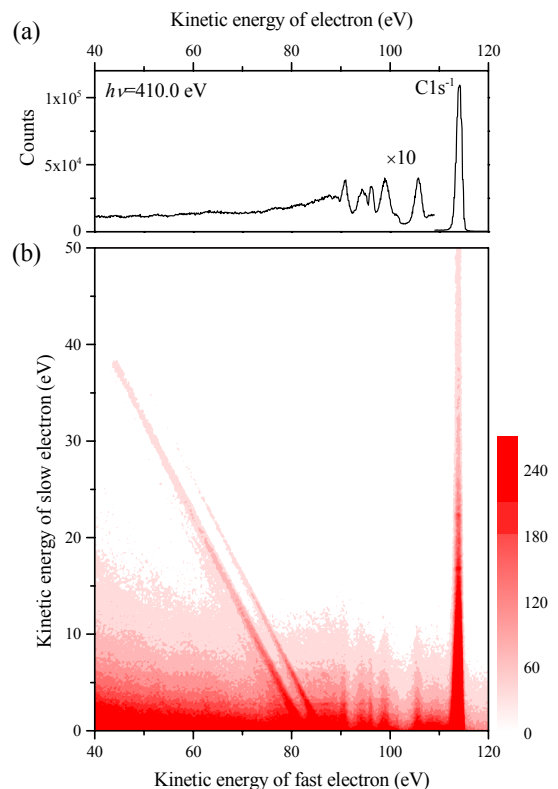


図2 (a) COのC1s光電子スペクトル、(b)2つの光電子の運動エネルギー相関図

の電子の同時計測にも成功している[4、5]。

【結果と考察】 図2(a)に、410.0eVのイオン化光で観測したCOのC1s光電子スペクトルを示す。C1sピークの低運動エネルギー側には、C1sのイオン化に伴って価電子が空軌道に励起した光イオン化サテライト構造が見られる。これらの構造のさらに低運動エネルギー側の電子収量の大部分は、内殻価電子二重イオン化過程によるものである。しかしながら、このような通常の光電子分光では、二重イオン化過程によって生成した二価イオン状態を明示することはできない。これは、光二重イオン化で放出される2つの光電子は連続的な運動エネルギーを持っているためである。図2(b)に、同じ光エネルギーで放出された2つの電子の運動エネルギー相関を示す。ここで、横軸は図2(a)と共通の運動エネルギー領域に設定しており、縦軸は0-50eVの運動エネルギー領域とした。光二重イオン化では、光エネルギーと生成する二価イオン状態のイオン化エネルギーの差が、放出される2つの光電子に配分される。したがって、図2(b)上では、(速い光電子のエネルギー)+(遅い光電子のエネルギー)=(光エネルギー)-(二価イオン状態のイオン化エネルギー)で規定される斜めの構造として、光二重イオン化が現れることになる。実際に2次元図上には、光二重イオン化で放出された2つの光電子の同時計測による斜めの構造を見出すことができる。生成した二価イオン状態を明らかにするため、同時計測された2つの光電子の運動エネルギーの和を図3にプロットした。このスペクトルに見られる構造は、 $\text{CO}^{2+}(\text{C}1\text{s}^{-1}\text{valence}^{-1})$ 状態のイオン化エネルギーの計算値[6]と良い対応をしており、それらの二価イオン状態に帰属できる。観測された各二価イオン状態の一重項-三重項分裂やピーク強度は、価電子軌道の局在性に基づいて解釈できる[3]。

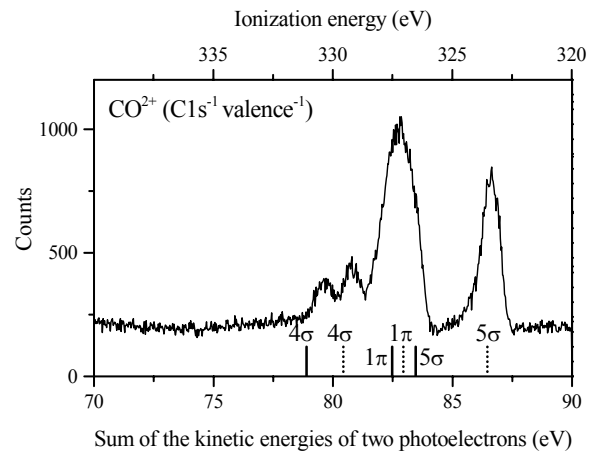


図3 二電子同時計測によって得られた $\text{CO}^{2+}(\text{C}1\text{s}^{-1}\text{valence}^{-1})$ 状態のスペクトルとそのイオン化エネルギーの計算値[6]。

References

- [1] T. Åberg, Phys. Rev. 156 (1967) 35.
- [2] Y. Hikosaka et al., Phys. Rev. Lett., 97 (2006) 053003.
- [3] Y. Hikosaka et al., J. Chem. Phys., in press.
- [4] Y. Hikosaka et al., Phys. Rev. Lett., 98 (2007) 183002.
- [5] Y. Hikosaka et al., Phys. Rev. A, in press.
- [6] H.D. Schulte et al., J. Chem. Phys., 105 (1996) 11108.