

H₂O 分子からの O 1s 光電子と解離イオンのベクトル相関(高エネ機構・物構研¹, 東大院理²) ○山崎優一¹, 足立純一^{1,2}, 寺本高啓², 柳下明^{1,2}

【序】 分子の配向が平均化された情報に比べて、分子座標系での物理量の観測からは系の立体ダイナミクスに関してはるかに詳細な理解が得られる。光イオン化過程についても、角度分解光電子・光イオン同時計測法により、分子座標系における光電子角度分布 (Molecular-Frame Photoelectron Angular Distribution: MF-PAD) 測定が可能となり、これまで直線分子の光イオン化ダイナミクスの詳細が明らかにされてきた[1]。一方、非直線分子の MF-PAD については、表面吸着分子の光イオン化過程などの観点から理論計算[2]がいくつか行われているが、実験的には実現されていない。光イオンの運動量ベクトルから非直線分子の分子配向を定める際には、複数の解離イオンの運動量ベクトル情報が必要となる。そこで本研究では、H₂O 分子の O 1s 光イオン化によって生成する光電子と複数の解離イオンの運動量ベクトル相関を、多重同時計測運動量画像分光法[3]によって効率よく調べ、H₂O の MF-PAD を得ることを試みた。

【実験】 高輝度の直線偏光軟 X 線が得られる Photon Factory の BL2C にて、同時計測運動量画像分光装置 (Coincidence Velocity-map Imaging Spectrometer: CO-VIS [3]) を用いて実験を行った。CO-VIS の概念図を図 1 に示す。分子線として導入した H₂O に放射光を照射することで分子を内殻イオン化した。イオン化で生成した O 1s 光電子 (運動エネルギー-K.E. = 14 eV) と Auger 崩壊を経た解離イオン (OH⁺, H⁺, O⁺など) は、イオン化領域にかけられた平行均一静電場によって互いに反対方向へと引き出し、ディレイライン型二次元検出器によって検出した。放出電子と

解離イオンの時間相関を記録し、記録されたイベントの中から O 1s 光電子 (e^-) と 3 つの解離イオンの組 (O⁺と 2 つの H⁺) に対して、(e^- , O⁺, H⁺, H⁺) の 4 重コインシデンス信号を解析することで、MF-PAD を求めた。

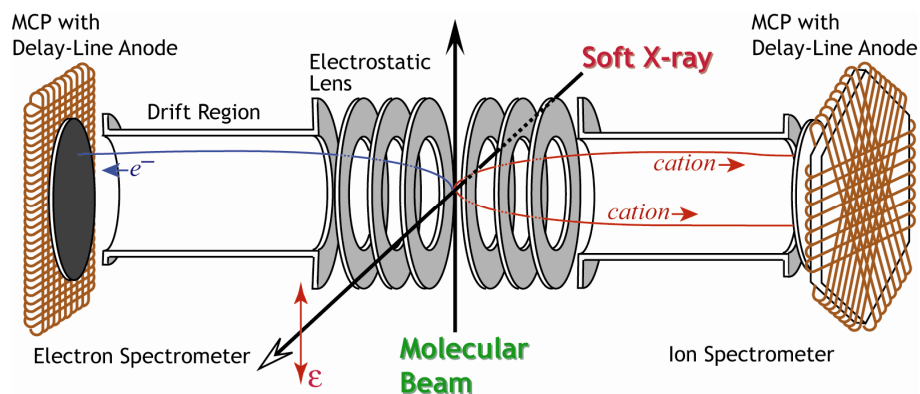


図 1 同時計測運動量画像分光装置 (CO-VIS) の概略図

【結果と考察】 図 2 に、OH⁺と H⁺を生成する 2 体解離チャンネルに関して、イオンの反跳軸を規定した O 1s 光電子角度分布 (Recoil-Frame Photoelectron Angular Distribution: RF-PAD)

を示す。H₂O 分子の屈曲構造を反映して RF-PAD に左右の非対称性が現れているものの、解離軸に対する OH⁺の配向が平均化されているため分子座標系での情報が失われている。

一方、O⁺と2つの H⁺を同時に生成する3体解離チャンネルにおいては、3つの解離イオンの運動量ベクトル(p_x, p_y, p_z)を解析することでイオン化時の分子配向を決定し、かつ遷移の対称性ごとに MF-PAD を得ることが可能となる。図3は H₂O 分子の配向を定めた O 1s 光電子角度分布 (MF-PAD) を遷移の対称性ごとに示している。図2の RF-PAD に比べ、MF-PAD は異方性が高く、また、遷移の対称性によって大きく変化する様子が見てとれる。図3から、二つの H 原子の存在が MF-PAD に大きく影響することが分かった。偏光ベクトルが分子面内 (B_2) の場合と面外 (B_1) の場合とでは光電子放出に対する H 原子の影響が異なるため、MF-PAD の形状がわずかに変化していると考えられる。また、いずれの遷移に関しても MF-PAD は C_2 対称性を有する結果が得られた。

以上のように、多重同時計測運動量画像分光法は非直線分子の MF-PAD を得るのに有力な手法の一つであり、今後は非直線分子に関しても内殻光イオン化立体ダイナミクス (形状共鳴など) の詳細な理解が得られると期待される。

【参考文献】

[1] A. Yagishita, K. Hosaka, and J. Adachi, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **142** (2005) 295.

[2] V. V. Kuznetsov, N. A. Cherepkov, G. H. Fecher, and G. Schönhense, *J. Chem. Phys.* **117** (2002) 7180.

[3] K. Hosaka, J. Adachi, A. V. Golovin, M. Takahashi, N. Watanabe, and A. Yagishita, *Japan. J. Appl. Phys.* **45** (2006) 1841.

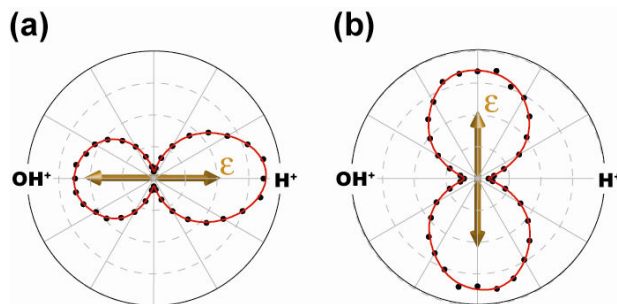


図2 OH⁺ + H⁺の解離軸を規定した O 1s 光電子角度分布。(a)解離軸と偏光ベクトル (ϵ) が平行な場合と(b)垂直な場合。

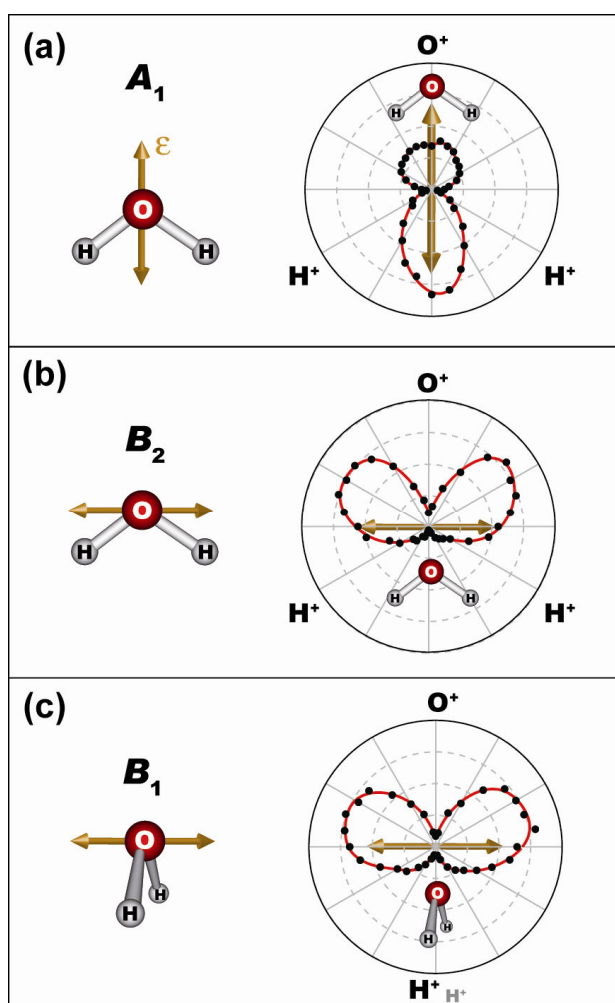


図3 H₂O 分子の O 1s MF-PAD。(a), (b)および(c)はそれぞれ A_1 , B_2 および B_1 遷移に対応する。