

電子-イオン多重同時計測によるOCS²⁺の解離ダイナミクス

(分子研*, 新潟大自然**)伊藤 雅大***, 金安 達夫*, 彦坂 泰正*, 繁政 英治*

【序】軟 X 線領域の光を用いると、軽元素の内殻電子を励起または電離することができる。内殻イオン化された分子は、主にオージェ電子を放出して崩壊する。これにより生成する二価分子イオンは、その2つの正電荷のクーロン反発によって、もっぱらイオン性解離を起こす。オージェ電子と解離イオンの同時計測測定は、この二価分子イオンの解離ダイナミクスの研究に有用である。しかしながら、従来の半球型や円筒鏡型等の電子分析器を用いた同時計測手法では、運動エネルギーの大きなオージェ電子を含む同時計測を、高分解能かつ高効率で遂行することは困難である。そのため、従来の同時計測手法のオージェ終状態の解離ダイナミクスへの適用では、非常に限られた成果しか得られていない[1]。我々は、電子-イオン多重同時計測装置を新たに開発した[2,3]。この多重同時計測装置には、オージェ電子を高分解能かつ高効率で観測可能なダブルトロイダル型電子分析器(DTA)[4,5]を導入した。この装置の性能と、それを用いた OCS の二価イオン状態の解離ダイナミクスの研究について発表する。

【実験】我々が開発した多重同時計測装置(図 1)は、電子を分析するDTAとイオンを分析するイオン運動量分析器から構成されている[2,3]。DTAは、Delay Line

Anode型の位置敏感型検出器(PSD)を備えており、電子の運動エネルギーと放出角度をPSDへの到達位置から決定する。このDTAは、観測立体角 $0.05 \times 4\pi$ sr、エネルギー分解能 $E_{\text{pass}}/\Delta E=100$ で設計された。実際に、Ne 2s光電子を $E_{\text{pass}}=200\text{eV}$ で観測することにより、パスエネルギーの 7%に相当するエネルギー幅内の光電子に対して $E_{\text{pass}}/\Delta E=100$ が達成できていることを確認した。

オージェ電子の検出に応じてイオン化領域にパルス電場を印加する。このパルス電場により、オージェ崩壊後に生成したイオンをイオン運動量分析器に引き込み、その運動量観測を行なう。イオン運動量分析器も同じPSDにより終端されており、飛行時間からz軸方向の運動量、到達位置からxy平面内の運動量が決定される。このPSDは、同時に生成した複数のイオンをマルチヒット検出できる。イオン観測の運動量分解能は、COのC1sオージェ電子とC⁺イオン- O⁺イオンの多重同時計測測定から $\Delta P_x=11\text{au}$, $\Delta P_y=17\text{au}$, $\Delta P_z=38\text{au}$ と見積もられた。

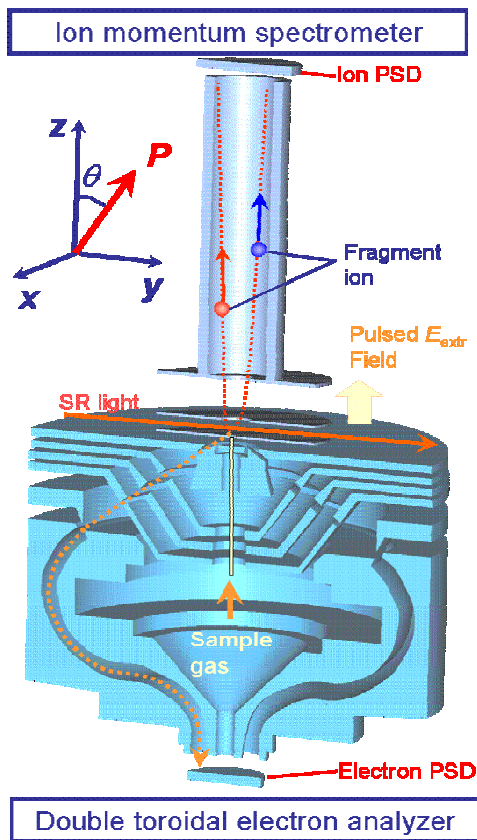


図1 電子-イオン多重同時計測装置の概念図

この多重同時計測装置を使用し、放射光施設UVSORのビームラインBL4Bで実験を行った。ここでは、基底状態のOCS:(core)¹⁴(6σ)²(7σ)²(8σ)²(9σ)²(2π)²(3π)² 2Σ⁺ を内殻イオン化し、オーজে崩壊で放出されたオーজে電子と後続する解離過程で生成されるイオンとを多重同時計測した。

【結果と考察】DTAで観測したOCS のS2pオージェスペクトルを図2(a)に示す。主として三つのバンド構造が見られるが、これらはBinding Energyの小さい方から順にOCS²⁺(3π⁻²)、OCS²⁺(9σ⁻¹3π⁻¹/8σ⁻¹3π⁻¹)、OCS²⁺(9σ⁻²)と帰属される[6]。図2(b)-(d)は、同時計測されたイオン(または、イオン対)で選択したオージェスペクトルである。OCS²⁺(3π⁻²)状態は、OCS²⁺との同時計測スペクトルには観測されるが、解離フラグメントとの同時計測スペクトルでは殆ど消失している。すなわち、3π軌道に2つの空孔を持つこの状態は、μsオーダーでは安定であり解離を起こしていないことが分かる。このことは、この状態のポテンシャル曲面がFranck-Condon領域で深い極小を持っていることを示唆する。OCS²⁺(9σ⁻¹3π⁻¹/8σ⁻¹3π⁻¹)では、OC⁺+S⁺への解離が顕著となっている。さらに、OCS²⁺(9σ⁻²)では、二つの結合が共に切れる三体解離のチャンネルが大きく開けていることを見出すことができる。OC⁺+S⁺解離チャンネルについての、各Binding Energyでの運動量エネルギー放出を図3に示す。図中の点線は、最初の4つの解離極限へ解離関連した場合に期待される運動量エネルギー放出をプロットしたものである。ここで、CO⁺の振動回転励起は考慮していない。観測された運動量エネルギー放出は、いずれのBinding EnergyでもKERは数eVにわたる分布をしている。このことは、生成したCO⁺が振動/回転励起していることを示唆している。

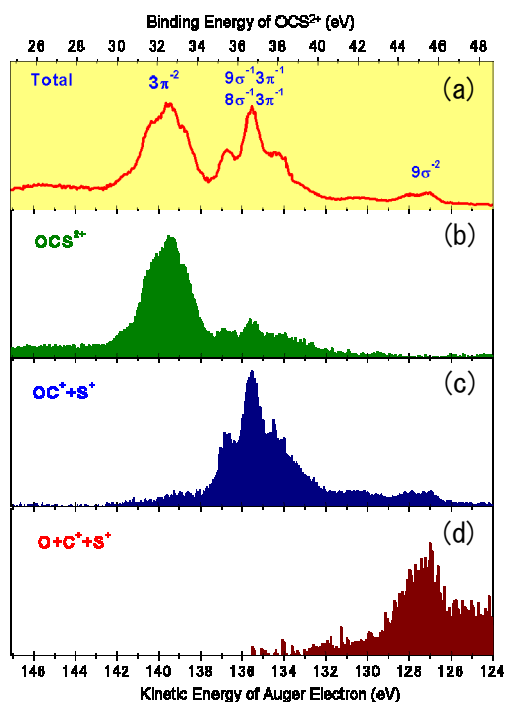


図2 (a) OCS の S2p オージェスペクトル。(b-d)イオン(またはイオン対)を選択したオージェスペクトル

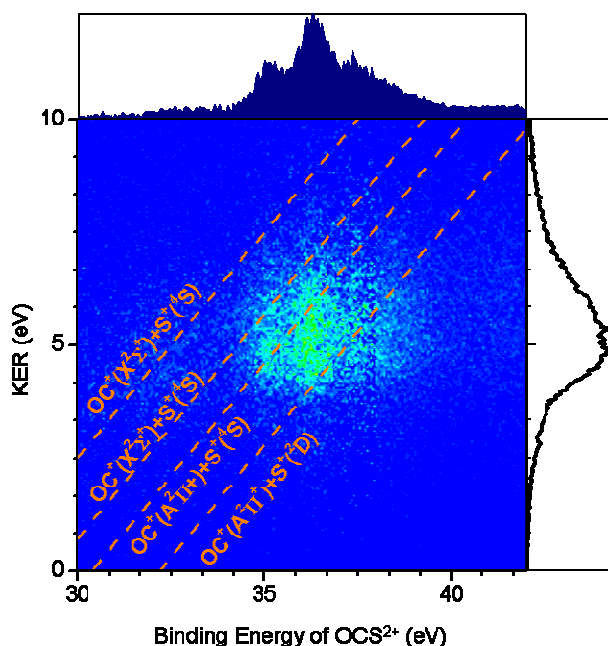


図3 OC⁺+S⁺解離における運動量エネルギー放出(KER)

[1] W. Eberhardt, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987) 207.
 [2] T. Kaneyasu *et al.*, *J. Electron Spectrosc. Relat Phenom.* **156**, 279 (2007).
 [3] T. Kaneyasu *et al.*, *AIP Conf. Proc.* **879**, 1793 (2007).
 [4] C. Miron *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.*, **68** (1997) 3728.
 [5] D. Céolin *et al.*, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **141**, 171 (2004).
 [6] T. X. Carroll *et al.*, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenim.* **51**, 471 (1990).