

電子運動量分光を用いた Xe と Kr の内殻イオン化の研究

(東北大・多元研¹, 東邦大・理², 関西外大³) ○渡辺 昇¹, 浅野 佑策¹, 渋谷 昌弘¹,
酒井 康弘², 向山 毅³, 高橋 正彦¹

【序】 電子線コンプトン散乱の動力的完全実験である電子運動量分光(binary ($e,2e$)分光)は、標的原子分子の電子状態を調べる上で強力な実験手法であり、価電子軌道を対象とした研究が数多く報告されている。しかし、内殻軌道については散乱断面積が価電子イオン化の場合に比べ格段に小さく測定が困難であることから、その研究例は極めて少ない。我々は本分光の内殻軌道への定量的適用を目指し、単純系である希ガス原子を対象とした研究を行ってきた。その結果、Xe 4d 電子イオン化領域において巨大共鳴が重要な役割を果たすイオン化メカニズムを見出す[1]など、新しい知見を得ている。本研究では、対象をXe 4d, 4p, 4s 電子およびKr 3d 電子のイオン化領域に広げ、内殻電子のイオン化を伴う($e,2e$)過程について調べたので報告する。

【実験】 電子運動量分光実験では高速電子衝撃イオン化で生成する非弾性散乱電子と電離電子のエネルギー E_1, E_2 と運動量 p_1, p_2 を同時計測法により測定する。

$$e_0(E_0, p_0) + A \rightarrow e_1(E_1, p_1) + e_2(E_2, p_2) + A^+$$

入射電子のエネルギー E_0 と運動量 p_0 は既知なので、散乱前後のエネルギー保存則と運動量保存則からイオン化エネルギー E_{bind} と生成イオンの反跳運動量 q を同時に決定できる。

$$E_{\text{bind}} = E_0 - E_1 - E_2, \quad q = p_0 - p_1 - p_2$$

実験は我々が開発した画像観測型電子運動量分光装置[2]を用いて $E_0 = 2\text{keV}$ で行った。

【理論計算】 Hartree-Fock (HF) 波動関数を用い、平面波撃力近似 (PWIA) 及び歪曲波ボルン近似 (DWBA) による($e,2e$)散乱断面積を計算した。更にXeに対しては、相対論の効果調べるためDirac-Fock (DF) 軌道を用いた計算も併せて行った。

【結果と考察】 実験より得られたXeの束縛エネルギースペクトルを図1に示す。5p, 5s 価電子軌道からの主遷移ピークと、それらに伴う多電子励起に起因したサテライトバンドの高エネルギー側に4d, 4p及び4s内殻軌道からの主遷移ピークを見て取ることができる。

各主遷移ピークの強度を運動量 q の関数としてプロットすることで、軌道毎の($e,2e$)散乱断面積の運動量依存性、即ち運動量分布を求めた。図2に5p, 4d

及び4p軌道の実験的運動量分布を示す。本実験からは散乱断面積の絶対値を得ることはできないが、軌道毎の相対的なイオン化強度比は保たれている。そこで、DWBAが良く成り立つことが既に分っている5p 価電子軌道について、理論計算と強度が合うように実験値を定数倍し、そこで得られたスケール因子を他の遷移に対しても適用することで実験値を規格化した。実験結果と比較する

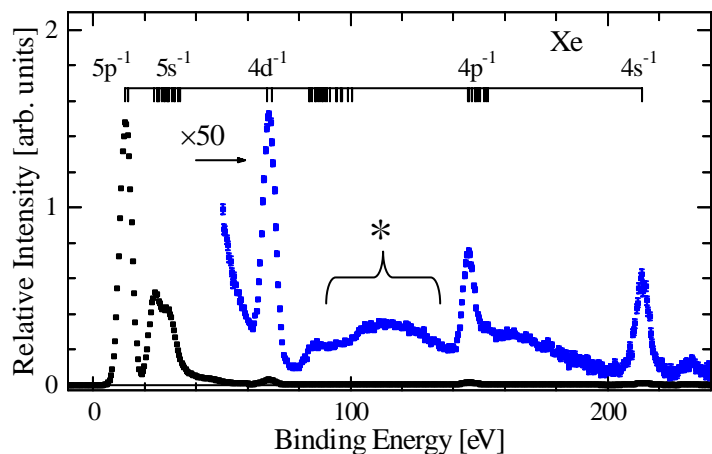


図1: Xeの束縛エネルギースペクトル

ため、図には HF 軌道を用いた DWBA 計算の結果(DWBA/HF)を併せて示している。DWBA/HF は強度、形状共に実験値を定性的に再現していることがわかる。しかし、5p 軌道に関しては定量的にも実験と良い一致が得られているのに対し、内殻軌道については実験と理論計算との間で有意な差異が見られた。特に 4d 軌道においてその差は顕著であり、 $q \sim 1.5 \text{ a.u.}$ 近傍で実験値は DWBA/HF に比べ 30~40%ほど大きな強度を与えている。DWBA/HF からの相違の要因としては、電子相関や相対論の効果など、標的原子の電子状態に由来したものと、電子-原子衝突ダイナミクスに起因したものが考えられ、現在検討を行っている。

Xe の束縛エネルギースペクトルをみると、4d, 4p 軌道からの主遷移ピークの高エネルギー側に、多電子励起によるサテライトバンドがそれぞれ現れていることがわかる(図1)。特に興味深いのが、図中に*印で示した $E_{\text{bind}} \sim 115 \text{ eV}$ に最大値をもつブロードな構造である。この構造が持つ大きな強度は、4d 電子のイオン化に伴う急激なポテンシャルの変化によりもう一電子が励起またはイオン化する、いわゆる shake-up, shake-off 遷移では説明できない。事実、光電子分光実験[3]では類似のブロードな構造がないことが報告されている。我々はこの構造が、入射電子が標的中の 4d 電子と価電子とに順次衝突することで二重イオン化が起こる、いわゆる two-step (TS) メカニズムに起因したものであることを明らかにした[1]。4d 電子イオン化における巨大共鳴により TS メカニズムが促進され、大きな(e,2e)断面積が得られている。

更なる考察のため、Kr 3d 電子イオン化領域に対しても測定を行った。図3に示す結果から、Kr についても 3d 電子のイオン化による主遷移ピークの高エネルギー側にブロードな構造が現れていることがわかる。しかし、Xe の場合と比べ主遷移ピークに対する相対強度はずっと弱く、分布の形状も平坦である。この結果は、TS メカニズムに含まれる内殻 d 電子イオン化過程の断面積が、顕著な巨大共鳴を示す Xe の場合と比べ、Kr ではかなり小さいことを考えると理解することができる。

講演では、主遷移とサテライトバンドに関して、標的原子の電子状態と電子衝突ダイナミクスの双方の観点から考察を行い、内殻電子イオン化を伴う(e,2e)過程について詳細に議論する。

【参考文献】

- [1] M. Takahashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 013201 (2007).
- [2] M. Takahashi *et al.*, J. Electron. Spectrosc. Relat. Phen. **141**, 83 (2004).
- [3] S. Svensson *et al.*, J. Electron Spectrosc. Relat. Phen. **47**, 327 (1988).

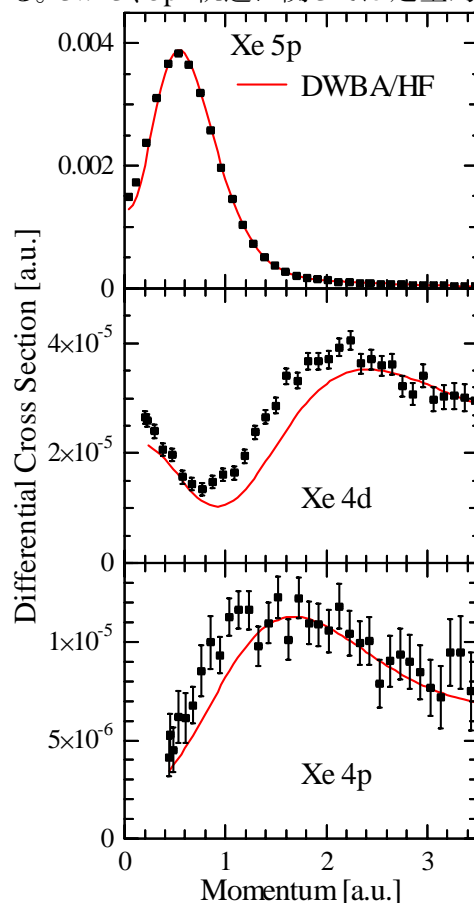


図 2 : Xe の軌道毎の運動量分布

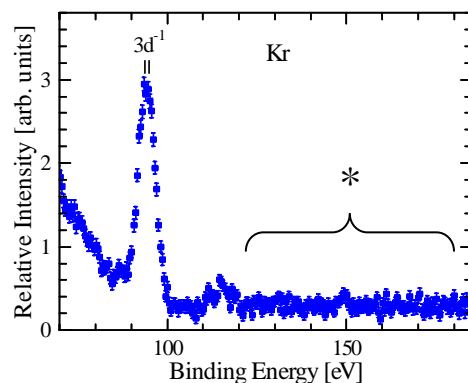


図 3 : Kr の束縛エネルギースペクトル