

時間分解ケイ光測定による 内殻励起アルゴンクラスター崩壊過程の研究

(兵庫県立大、JASRI¹)

○下條竜夫、伊勢田満弘、國分美希、本間健二、J. Harries¹、為則雄祐¹

【序論】一般に、光照射、電子衝突などで原子や分子を励起状態へと励起した場合、電子放出、蛍光放出、内部転換、系間交差などの緩和過程をへて再び基底状態に戻る。また、分子やクラスターなどの集合体である場合は解離などが起こり、その後、緩和過程をへて基底状態へと戻る場合もある。

可視および紫外線領域の光を分子に照射した場合、これらの緩和過程によって励起光の寿命が大きく変化することはすでに知られている。例えば、基底状態に内部転換する場合、純粋な蛍光寿命より内部転換への無輻射遷移が早ければ、内部転換への速度が蛍光寿命として記録される。

軟X線で励起した場合、オージェ過程が早いために、ケイ光寿命は主にこのオージェ過程の崩壊速度が支配的であると考えられてきた。我々は、アルゴンクラスターを試料として実験することにより、クラスターの崩壊過程においては、原子間クーロン相互作用などにより、比較的寿命の長いケイ光成分が存在することを発見した。

前回の実験では、1)クラスター条件と単原子の条件では蛍光寿命に大きな変化があること。2)その変化は Ar の2p電子のイオン化しきい値付近で特に顕著であること。の2つを報告した。今回は、ケイ光とイオンの飛行時間を同時測定することにより、初めて時間分解ケイ光-イオンコインシデンススペクトルの測定に成功したので報告する。

【実験】実験は SPring-8、BL27SUで行った。

実験装置は、真空チャンバー、ノズル部、検出部から構成される。背圧3気圧程度のアルゴンを液体窒素で冷却しながら真空内に噴出させ、サイズ80程度の比較的大きなクラスターを生成した。噴射したクラスターは、スキマーで中心部のみが選択され、その後単色化された軟X線の照射により速やかに高励起内殻正孔状態に励起される。クラスターから放出されるケイ光は検出器に飛び込み、下部のMCPで検出される。この時、生成した電子は、検出部入り口のメッシュに負の高電圧をかけることで除去される。一方、上部には飛行時間型質量分析器があり、これにより生成したイオンの質量を分別できる。

今回はケイ光信号をスタート信号、バンチ信号とイオン検出信号をストップ信号としてコインシデンス(同期)スペクトル測定を行った。これにより、どのケイ光寿命成分からどのようなイオンが生成しているかの測定が可能となった。

【結果と考察】図1に、246.95 eV の光で励起したときの、アルゴンクラスターの時間分解ケイ光-イオンコインシデンススペクトルを示す。このエネルギーは、アルゴンクラスターの2p電子のイオン化しきい値のわずかに下に相当する。縦軸にそって見えている縞が、SPring-8 のバンチ構造であり、ここからの減衰成分により、時間分解したケイ光を測定することができる。一方、横軸は飛行時間であり、 Ar^{3+} と Ar^{2+} などのイオン種が質量選別されている。このような時間分解ケイ光とイオンのコインシデンススペクトルが測定された例は我々の知るかぎり、はじめてである。

図2に Ar^{3+} と Ar^{2+} と同時に生成された時間分解ケイ光スペクトルを示す。図2から、時間分解ケイ光には、ピーク付近の寿命の短い成分と、寿命の長い成分の2つの成分が見られることがわかる。実際に2つの exponential 関数によるフィッティングにより、長い方の寿命を計算してみると、 Ar^{2+} が生成するときを観測されるケイ光の長寿命成分の寿命が 21 ns、また Ar^{3+} が生成するときの寿命が 8.5 ns であることがわかった。また別の測定により、ケイ光は主に Ar^{2+} と多くコインシデンスすることがわかっており、クラスターから生成する長寿命のケイ光は特に Ar^{2+} を同時に生成する崩壊過程であると考えられる。

これらから、前回の実験結果を考え合わせ、アルゴンクラスター内でおきているケイ光放出する崩壊過程は、1) Ar の内殻励起およびその内殻励起された原子がオージェ崩壊をへて2価イオン化となる、2) イオン化された Ar の2価イオンが励起状態にあり、まわりの中性原子とクーロン相互作用を行う、3) 中性原子が励起状態に励起され解離する。その後ケイ光を放出する、という主に3つの過程でおこっていると予想される。

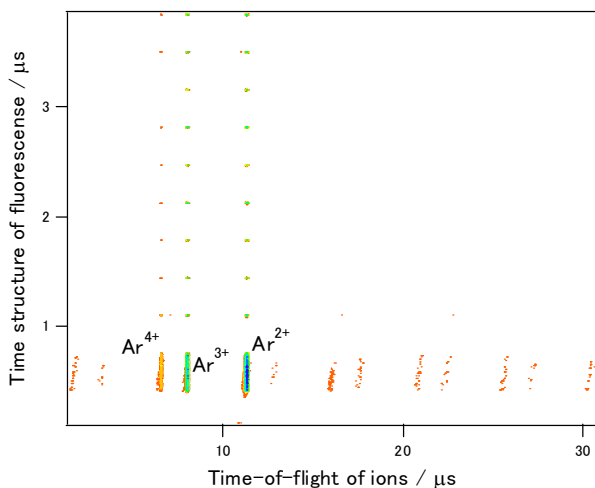


図1: アルゴンクラスターの時間分解ケイ光-イオンコインシデンススペクトル。
(励起エネルギー = 246.95 eV)

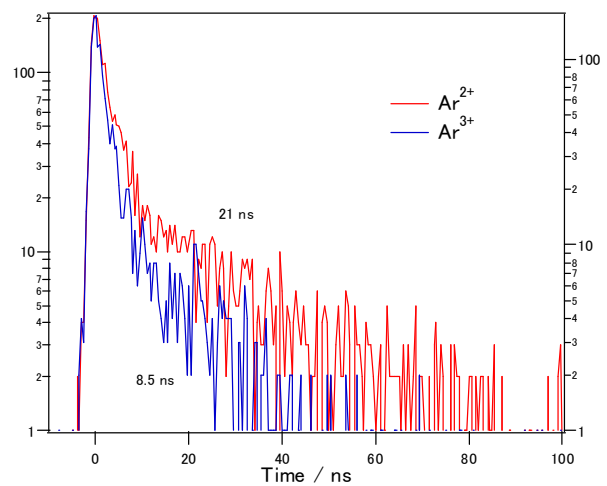


図2: Ar^{2+} and Ar^{3+} を生成した時に放出されるケイ光の時間分解構造。
(励起エネルギー = 246.95 eV)