

## 4C02 画像観測法によるフラーレンの解離性光イオン化機構の解明

(<sup>1</sup>分子研・<sup>2</sup>総研大・<sup>3</sup>法政大) ○片柳英樹<sup>1,2</sup>、Huang Chaoqun<sup>1</sup>、Prodhan Md. Serajul Islam<sup>2</sup>、八木創<sup>1</sup>、Kafle Bhim Prasad<sup>1</sup>、中島弘一<sup>3</sup>、見附孝一郎<sup>1,2</sup>

**【序】** フラーレン類 ( $C_{60}$ ,  $C_{70}$ , etc.) は放射光による解離性光イオン化で種々のフラグメントイオン ( $C_{58}^+$ ,  $C_{56}^+$ , ...) を生成する[1-3]。本研究は、フラグメントの三次元速度分布を二次元の画像として撮影する「画像観測装置」を開発し、これを用いてフラーレンの光解離動力学を明らかにすることを目的としている。この装置を用いて、まず、反応始源系である $C_{60}$ 分子線の速度分布を求めた。フラグメントの速度分布には、この分子線の速度分布が畳み込まれているので、事前に正確に求めておく必要がある。実験では、まずHeを用いて装置の校正を行い、その後 $C_{60}$ 分子線の観測を行った。

**【実験】** 測定は分子研の放射光施設 (UVSOR) のビームライン 2Bで行った。フラーレン試料を円筒形の石英セルに充填し、真空中で約 785 Kに加熱して昇華させた。発生したフラーレン蒸気は二つのオリフィスにより角度を制限され、分子線としてイオン投影 (撮像) 電極中に導入される。分子線は撮像電極の中で放射光と直角に交わり、光イオン化により電場中にフラーレンイオンが生成される。イオンは電場で加速されて、約 375 mm離れて設置された位置敏感型検出器 (PSD) に投影される。PSDの面は、分子線および放射光の張る平面に平行である。なお、気体試料を用いる場合は、真空槽底面に取り付けた 1/4 インチの管から室温の試料を導入し、圧力が  $2 \times 10^{-6}$  Torr程度になるように流量を調整した。

本研究では、撮像電極としてEppinkらの velocity map imaging (VMI) レンズ[4]を採用した。文献[4]の基本設計を、我々の実験における要件 (高温の分子線・放射光励起による大きなイオン化領域・低速なフラグメント) に合致するように改良して用いた[5]。この装置で得られる画像はイオンの三次元速度分布の二次元投影像である。速度分布が円筒対称性を持ち、対称軸が像面に平行である場合、この投影像に逆 Abel 変換 (IAT) [6]を適用すれば速度分布の断層像を求めることができる。この断層像の各画素の強度を角度について積分すれば、半径方向の強度分布が得られる。ここで得た距離の分布と、試料がイオン化されてから PSD に到着するまでの時間 (TOF) から、速度分布を求めた。

**【結果と考察】** 室温のHeの熱運動を画像観測したものを図 1aおよびbに示す。aの画像はVMI レンズに隣接する $C_{60}$ 分子線源を取り外した状態、bは分子線源を取り付けた状態で観測している。イオン化のための放射光は画像のy軸に平行に入射している。光のエネルギーは 35 eVなので、観測されているイオンは $He^+$ である。この画像にIATを適用し、速度分布を求めたものを図 1cに示す。Heの飛行時間は、Wiley-McLaren (WM) の式[7]を用いて推定した。積分角度 (図 2b参照) の範囲は  $-45 \leq \theta \leq 45$  である。赤い実線は 300 KのMaxwell-Boltzmann (MB) 分布であり、分子線源なしの観測結果 (白丸) と良く一致している。一方、分子線源を取り付けた観測結果 (黒丸) は、VMIレンズの電場が歪むため、赤い実線からややずれている。従って分子線源を用いる場合WMの式で飛行時間を推定する方法は不正確である。そこで $C_{60}$ 分子線の観測では、分子線源を取り付けた状態で観測したHeの速度分布が、300 Kの熱運動を

表していると考え、装置を校正した。この際、質量が異なっても、電荷が同じであれば、同じ並進エネルギーを持つイオンは同じ半径に投影されることを用いた[8]。

フラーレン分子線に、70 eVの放射光を照射することで生成したイオンの投影像を図 2a に示す。分子線は画像のx軸に添って下から上に向かって導入されている。画像のほぼ中央に、縦長の、強度の高い成分 (A) が観測された。この成分Aの強度が分子線の強度と共に増大すること、および試料を入れずにセルを加熱しても成分Aは見られないことから、この成分Aが C<sub>60</sub>分子線の像であると考えた。一方成分Bは、真空槽に残留する水や空気がイオン化されたものと考えられる。C<sub>60</sub>の速度分布を分子線の進行方向について円筒対称であるとみなし、IATを適用して、三次元速度分布のxy平面上の断層像を得た。その結果を図 2bに示す。この図の中心 (×印) を速度ゼロとして、角度範囲 $-15 \leq \theta \leq 15$  について積分し、まず距離の分布を求めた。次にTOFが必要であるが、この測定では質量選別を行っていないので、イオンを1価 (白丸) または2価 (黒丸) と仮定してTOFを求め、速度分布を計算した。これらを図 2cに示す。石英セルの温度である 785 KのMB分布を図 2cに赤い実線で示す。2価イオンと考えた場合 (黒丸) に分子線の速度分布が石英セルの温度のMB分布とほぼ同様になった。分子線はeffusiveの条件で生成しているため、これは妥当な結果であるといえる。なお、70 eVの放射光によるイオン化では、1価イオンに対する2価イオンの生成比は約 0.6 であるが[9]、PSDの2価イオンについての感度が1価イオンの感度より高いため、2価イオンが優先的に計数され、2価イオンのTOFを用いた場合に正しい速度分布が得られたと考えられる。

以上の結果から、この装置でC<sub>60</sub>分子線の画像観測が可能であり、生成された分子線はほぼ石英セルの温度で表される速度分布を持つことがわかった。現在この分子線を始源系として用いて、フラグメントの画像観測を行う準備を進めている。

**【参考文献】** [1] A. Reinköster et al. *J. Phys. B* **37** (2004) 2135. [2] J. Kou et al. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **7** (2005) 119. [3] P. N. Juranic et al. *Phys. Rev. A* **73** (2006) 042701. [4] A. T. J. B. Eppink and D. H. Parker, *Rev. Sci. Instrum.* **68** (1997) 3477. [5] B. P. Kafle et al. *AIP Conf. Proc.* **879** (2007) 1809. [6] S. M. Candel et al. *Comput. Phys. Commun.* **23** (1981) 343. [7] W. C. Wiley and I. H. McLaren *Rev. Sci. Instrum.* **26** (1955) 1150. [8] H. Katayanagi et al. in preparation. [9] K. Mitsuke et al. *J. Phys. Chem. A* **111** (2007) 8336.

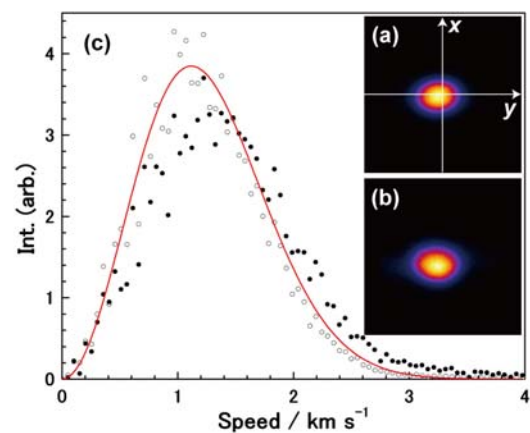


図1 (a)分子線源を取り外して測定した、室温のHeの熱運動の投影像。(b)分子線源を取り付けた状態での投影像。いずれも画像の一边は28.7 mmに相当する。(c)画像aおよびbから得た室温のHeの速度分布。白丸(○)は分子線源なし、黒丸(●)は分子線源ありの場合。赤い実線は室温(300 K)のMB分布。

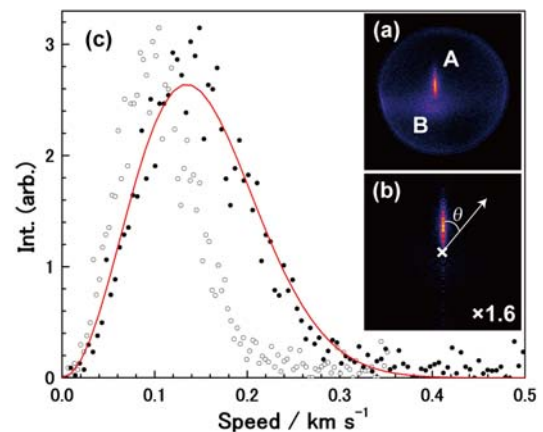


図2 (a)C<sub>60</sub>分子線の投影像。(b)IATを用いて得た、C<sub>60</sub>分子線の断層像。(c)断層像から得た速度分布。白丸(○)はイオンを1価と仮定した場合、黒丸(●)は2価と仮定した場合。赤い実線は石英セルの温度(785 K)のMB分布。