

NeAr ヘテロダイマーにおけるオーজে緩和後の ICD 過程

○坂井 健太郎¹, 大内 孝雄¹, 樋口 格², 福澤 宏宣¹, Liu XiaoJing¹, 奥西 みさき¹,
上田 潔¹, 岩山 洋士³, 永谷 清信³, 八尾 誠³, Zhang Dongdong⁴, Ding Dajun⁴,
Schoeffler Markus⁵, Mazza Tommaso⁶, 為則 雄祐², 齋藤 則生⁷

¹東北大・多元研, ²JASRI, ³京大院・理, ⁴Jilin Univ., ⁵LBNL, ⁶Milan Univ., ⁷産総研・計測標準

原子に軟 X 線を照射して内殻光イオン化させるとオーজে緩和が起き、2 価のイオンが生成される。この時このイオンが電子放出による脱励起がエネルギー的に不可能な励起状態にあり、かつ周囲に原子が存在していた場合、隣接原子から電子が放出されて電子緩和する「原子間クーロン脱励起 (Interatomic Coulombic decay, ICD)」が起きることがある[1]。我々は希ガスクラスタにおけるこれら一連の過程を研究している。本研究では NeAr ヘテロダイマーに焦点を当てた。

実験は SPring-8 の軟 X 線光化学ビームライン BL27SU で行われた。用いた直線偏光軟 X 線の光子エネルギーは、Ar 2p イオン化ポテンシャルおよび Ne 1s イオン化ポテンシャルよりも約 19 eV 高い 268 eV および 889 eV とした。NeAr ヘテロダイマーは超音速分子線として、約 100 K まで冷やした孔径 80 μm のピンホールを持つノズルにより生成・導入され、軟 X 線と垂直に交わる。放出される電子およびイオンの 3 次元運動量を、2 次元検出器を備えた 2 台の飛行時間型運動量分光計により測定した。電場と磁場により全立体角に放出される電子とイオンを検出することが可能である。電子とイオンの検出位置と検出時間から、それぞれの 3 次元運動量が求まる。電子とイオンのエネルギー、およびそれらの相関から、内殻光イオン化された NeAr ヘテロダイマーが電子緩和で辿った反応経路を特定した。

図 1 に光子エネルギー $h\nu = 889 \text{ eV}$ での $\text{Ne}^{2+}\text{-Ar}^+$ イオン対生成における電子エネルギーとイオンの運動エネルギーの和 (Kinetic Energy Release; KER) の相関図を示す。図中の傾き -1 の直線は、Demekhin らにより理論的に予測された KLL オーজে緩和後の ICD 過程に対応する[2]。(a) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}3P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}3P)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 、(b) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}1P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}1D)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 、(c) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}1P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}1S)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 。それぞれのチャンネルを図 2 のエネルギーレベルダイアグラムで示した。図 3 に $h\nu = 268 \text{ eV}$ における $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ イオン対生成に対する KER 分布を示す。KER 分布と $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ のポテンシャルエネルギーから、関与する Ar 2p オーজে終状態を予測し、これらの生成比[3]を用いてフィッティングを行った (青線)。結果は測定された KER 分布を良く再現できる。観測された 4 つのチャンネルを同定し、図 4 のエネルギーダイアグラムで示した。(1) $\text{Ar}^{2+}(3p^{-3}2D)4d^3D,3P\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(2) $\text{Ar}^{2+}(3s^{-2})\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(3) $\text{Ar}^{2+}(3p^{-3}2P)3d^1P\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(4) $\text{Ar}^{2+}(3s^{-2})\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}1D)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 。チャンネル(2)と(4)には 3 つの電子が関与しており、このような 3 電子 ICD 過程は本研究により初めて観測されたものである。

参考文献

- [1] R. Santra and L. S. Cederbaum, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 153401 (2003).
[2] Ph. V. Demekhin, *et al.*, *J. Chem. Phys.* **131**, 104303 (2009).
[3] H. Pulkkinen *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 3033 (1996).

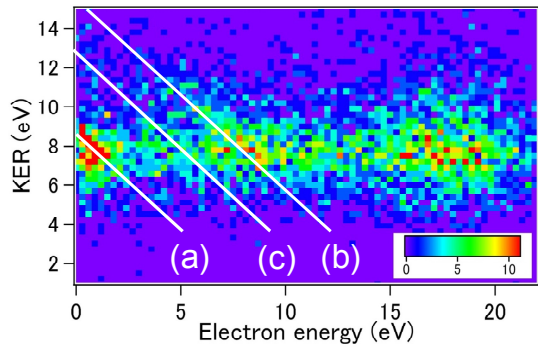


図 1

NeAr を Ne 1s 内殻光イオン化させ $\text{Ne}^{2+}\text{-Ar}^+$ が生成された時に放出された電子のエネルギーと放出されたイオンの運動エネルギーの和 (KER) の相関図

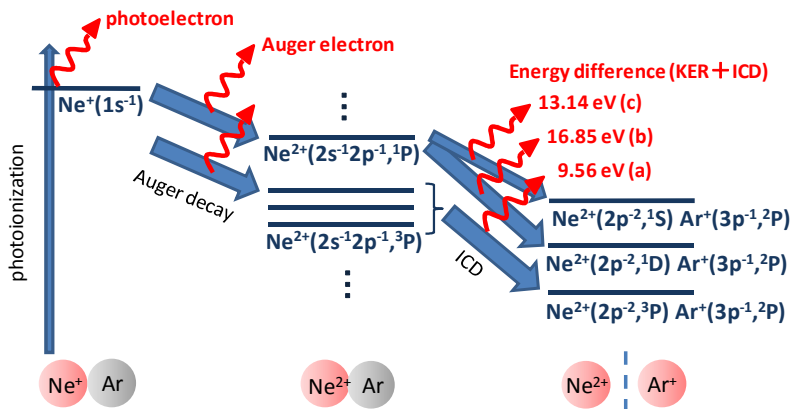


図 2

Ne 1s 内殻光イオン化およびその後の緩和過程に参与した NeAr のエネルギーレベルダイアグラム

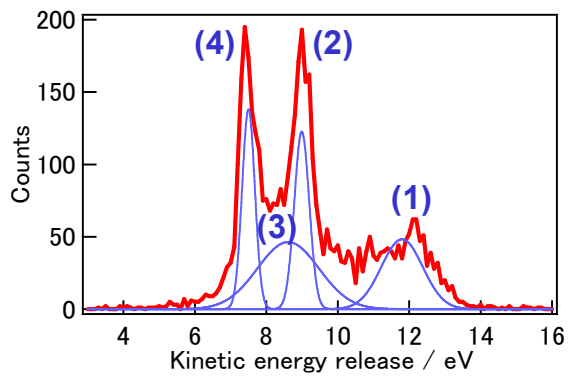


図 3

NeAr を Ar 2p 内殻光イオン化させ $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ が生成された時の KER 分布

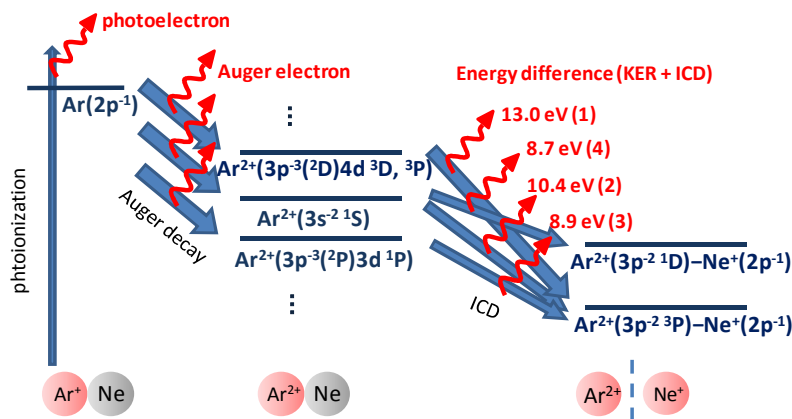


図 4

Ar 2p 内殻光イオン化およびその後の緩和過程に参与した NeAr のエネルギーレベルダイアグラム