

3P015

SiCl₄分子のSi K殻オーグジュ電子放出に続くSi L殻カスケードオーグジュ電子放出
(愛媛大院理工¹・東北大多元研²・JASRI³・産総研⁴)

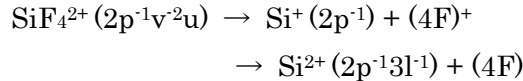
○坂東宥奎¹・望月系¹・長岡伸一¹・福澤宏宣²・高梨司²・立花徹也²
山田周平²・上田潔²・為則雄祐³・鈴木功⁴

Cascade Auger decays following Si KL₂₃L₂₃ Auger transitions in SiCl₄
(Ehime Univ.¹, Tohoku Univ.², JASRI³, AIST⁴)

○Yuki Bando¹, Tsunagu Motizuki¹, Shin-ichi Nagaoka¹, Hironobu Fukuzawa²,
Tsukasa Takanashi², Tetsuya Tachibana², Syuhei Yamada², Kiyoshi Ueda²,
Yusuke Tamenori³, Isao H. Suzuki⁴

1. 序論

分子の内殻軌道電子の励起で生成する空孔が、外側にある電子によって埋められるとき、蛍光X線放射あるいはオーグジュ電子放出が発生する。1 keV近傍で主に発生するオーグジュ過程では、電子の運動エネルギーが、空孔生成に続く緩和過程に関与した電子軌道のエネルギーを直接反映するので、電子状態についての知見が得られる。我々は、SiF₄ 気相分子のSi 1s励起後のKLL→LVVカスケードオーグジュ電子スペクトルを測定し、Si 原子由来の鋭いピークの検出によって、次のような超高速の分子解離が生じることを見出した[1]。



ここでvは価電子軌道、3lは3s, 3p軌道を示す。分子内の電子緩和前に結合解離が起こり、生成したSi⁺あるいはSi²⁺がオーグジュ電子を放出し、その信号をスペクトル中に検出した。

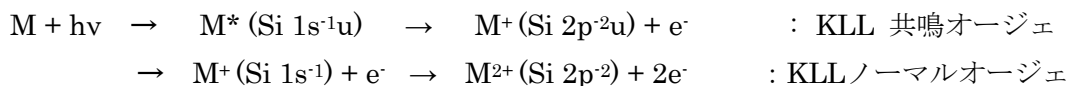
本研究では、SiCl₄ 気相分子の1s励起に続くKLL→LVVカスケードオーグジュスペクトルを測定することで、同様の超高速解離が生じるかどうかを検討した。ClはFより重いので解離する時間が長くかかること、SiCl₄のオーグジュ過程ではSiF₄よりも低エネルギーの2価イオン状態へ多く遷移するため[2]、上記の解離の収率は小さくなると予想される。

2. 実験

実験は放射光施設SPring-8のBL27SUcブランチで行い、オーグジュ電子の検出には静電半球型電子エネルギー分析装置(SES2002)を使用した[1,3]。光エネルギーの分解能は多くの場合0.92 eV、電子検出の分光器の分解能は0.47 eVとした。

3. 結果と考察

Si含有分子(M)のSi 1s電子が非占有軌道(u軌道)へ励起されると、共鳴オーグジュ過程が生じて、分子は一価イオンの高励起状態になる[3]。主要な過程をイオン化の場合(ノーマルオーグジュ過程)も含めて以下に記す。



これら2p軌道での2個の空孔がどのように埋められるかが、本研究の主要なテーマである。

図1に光エネルギー1857.7 eV (a), 1846.2 eV (b)でのSi 1s励起に続くKLL→LVVカスケードオージェ電子スペクトルの測定結果(実線)とオージェカスケード過程のシミュレーションスペクトル(破線)を示す。(a)はSi 1sイオン化、(b)は非占有分子軌道である9t₂への共鳴励起の場合のスペクトルである。図1において、(a)の縦棒のNA-1はノーマルオージェ過程で放出された電子によるもので、(b)のV-1は参与型オージェ過程、V-2は傍観型オージェ過程での放出電子によるピーク(あるいはショルダー)である。シミュレーションスペクトルとの比較から、A-1, A-2などの分子由来でない鋭いピークもいくつか観測され、SiCl₄でも超高速解離が起こっていると考えられる。しかし、SiF₄の場合ほどSi原子由来ピークは顕著ではないことから、SiCl₄ではSiF₄ほど分子解離は早くは進行しないと推測される。Oulu大グループのSi原子のオージェ電子の精密計測の研究を踏まえて[4]、図1 (a), (b)のカスケードオージェスペクトルでの主なピークの帰属は以下のように表せる。

NA-1: M ²⁺ (Si 2p ²) → M ³⁺ (Si 2p ¹ v ²)	: 分子性ノーマルオージェ
V-1: M ⁺ (Si 2p ² u) → M ²⁺ (Si 2p ¹ v ¹)	: 分子性参与型オージェ
V-2: M ⁺ (Si 2p ² u) → M ²⁺ (Si 2p ¹ v ² u)	: 分子性傍観型オージェ
R-1: M ⁺ (Si 2p ² R) → M ²⁺ (Si 2p ¹ v ² u)	: 分子性シェイク型オージェ
A-1: Si ⁺ (2p ¹) → Si ²⁺ (3p ²)	: 原子性ノーマルオージェ
A-3: Si ⁺ (2p ¹) → Si ²⁺ (3s ¹ 3p ¹)	: 原子性ノーマルオージェ
A-5: Si ⁺ (2p ¹) → Si ²⁺ (3s ²)	: 原子性ノーマルオージェ
A-7: Si ⁺ (2p ¹) → Si ²⁺ (3s ² 3p ¹ 3d)	: 原子性シェイク型オージェ

Si KLLオージェ過程に続く一段目のカスケードオージェを経た後に、分子イオンは解離し、生成したSi原子の一価(あるいは二価)イオンが二段目のカスケードオージェ過程を起こし、その電子で生じるピークが観測されたと考えられる。

- [1] I.H. Suzuki, et al., J. Chem. Phys., 138, 024302 (2013)
 [2] S. Aksela, et al., Phys. Rev. A 37, 2934 (1988)
 [3] I.H. Suzuki, et al., J. Phys. B, 46, 075101 (2013).
 [4] K. Jankala, et al., Phys. Rev. A, 77, 062504 (2008).

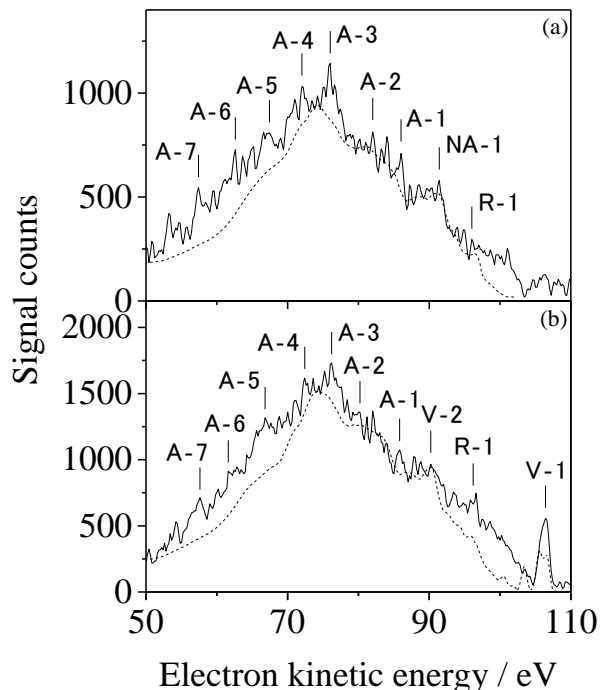


図1. SiCl₄ のKLL→LVV カスケードオージェ電子スペクトルの実験データ(実線)とそのシミュレーションスペクトル(破線)。(a) イオン化(光子エネルギー: 1857.7 eV)、(b) 励起: 1846.2 eV。