

## 解離イオン同時計測EELSを用いたO<sub>2</sub>のinner-valenceイオン化の研究

東北大多元研

○渡邊 昇, 山田 聡, 高橋 正彦

### Electron-induced dissociative ionization of O<sub>2</sub> studied by electron-ion coincidence spectroscopy

○Noboru Watanabe, So Yamada, and Masahiko Takahashi  
IMRAM, Tohoku University, Japan

**【Abstract】** We report an ( $e, e^+$ ion) spectroscopy study on electron induced dissociative ionization of O<sub>2</sub>. Vector correlation between the scattered electron and the fragment O<sup>+</sup> ion has been measured at incident electron energy of 1.4 keV for the inner-valence ionization of O<sub>2</sub>. By analyzing the data, fragment-ion yield spectra have been obtained for transitions to the B <sup>2</sup>Σ<sub>g</sub><sup>-</sup> and c <sup>4</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup> ion states, allowing us to examine the state-specific momentum transfer dependence of dissociative ionization. The angular distributions of O<sup>+</sup> have subsequently been examined for the c <sup>4</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup> ionization in order to explore momentum-transfer-dependent stereodynamics in electron-O<sub>2</sub> collision processes.

**【序】** 電子衝突で誘起される O<sub>2</sub> の解離性イオン化反応は、惑星大気中やプラズマ中の反応を牽引する主要な過程の一つであり、その重要性から多くの研究者の興味を集めてきた。我々は、分子の電子衝撃解離性イオン化の詳細な理解を目的に、非弾性散乱電子と解離イオン間の運動量ベクトル相関を測定する、解離イオン同時計測電子エネルギー損失分光の開発を進めてきた[1-3]。( $e, e^+$ ion)分光とも呼ばれる本手法によれば、入射電子から標的分子へ移行する運動量の大きさに応じたイオン化ダイナミクスの変化をとらえることができる。また、分子の回転に比べて十分速く解離が起こる axial recoil 条件下では、解離イオンの飛行方向が電子衝突時における分子軸方向と一致するため、( $e, e^+$ ion)実験により分子軸方向を規定した電子散乱断面積を測定でき、既存の電子エネルギー損失分光 (EELS) では窺い知ることのできなかつた電子-分子立体衝突の詳細についても調べることが可能となる。本研究ではこの新しい測定法を用い、O<sub>2</sub> の inner-valence 領域における解離性イオン化過程を調べたので、報告する。

**【実験】** 実験装置[1]の模式図を Fig. 1 に示す。繰り返し周期 62.5 kHz のパルス電子線を試料ガスと交差させ、角度  $\theta$  方向に非弾性散乱された電子を半球型電子分析器でエネルギー分析した後、位置敏感型検出器 (PSD) で計測する。電子検出後、直ちにパルス電圧を反応領域へ印加し、解離イオンを画像観測型イオン分析器へ引き込む。イオンの飛行時間と検出器上の到達位置から解離時の反跳運動量を決定できる。入射電子エネルギー 1.4 keV を用い、異なる三つの散乱角  $\theta$  ( $= 2.2, 4.2, 8.2^\circ$ ) において測定を行うことで、イオン化断面積の移行運動量依存性を調べた。

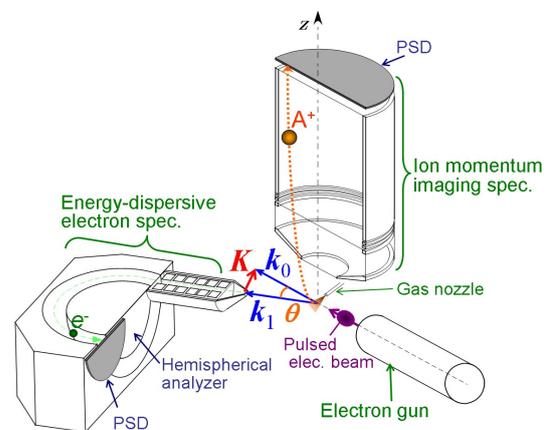


Fig. 1. Experimental set up.

**【結果・考察】** 散乱電子と  $O^+$  の同時計測数を励起エネルギー  $E$  の関数としてプロットすることで、イオン収量スペクトルを求めた (Fig. 2(a)). 測定した  $E$  領域には複数のイオン化閾値が含まれており、得られたスペクトルはそれら閾値に立ち上がりをもつ連続バンドの足し合わせとなっている. 更なる解析のため、生成した  $O_2^+$  状態に応じて  $O^+$  が異なる運動エネルギー分布を示す性質を利用し、イオン化遷移の分離を試みた. 結果を Figs. 2(b), (c) に示す.  $B^2\Sigma_g^-$  および  $c^4\Sigma_u^-$  イオン化の寄与がそれぞれ支配的となるよう、 $0.46 \sim 1.15$  eV と  $1.8 \sim 2.5$  eV の運動エネルギー (KE) をもつ  $O^+$  が検出された事象を抽出し、スペクトルを求めた. どちらの遷移においても  $\theta$  の増加に伴いスペクトル形状が大きく変化しており、イオン化ダイナミクスが移行運動量に強く依存していることが分かる.

次に  $O^+$  イオンの放出角度分布について考察する. Fig. 3 は、 $c^4\Sigma_u^-$  イオン化に対する結果であり、 $E = 27\text{--}29$  eV の領域におけるイオン化強度を  $O^+$  の反跳運動量と移行運動量ベクトル  $\mathbf{K}$  とが成す角  $\phi_K$  の関数として極座標表示することで求めた.  $c^4\Sigma_u^-$  状態は前期解離性であり、有限の解離寿命に伴う分子回転の効果を見捨てることはできないが、実験結果は明確な  $\phi_K$  依存性を示している. このことは、分子回転の影響にもかかわらず、電子-分子立体衝突の情報が角度分布の異方性として保持されていることを強く示唆している. 双極子遷移の寄与が大きな低散乱角において、角度分布は  $\phi_K = 0^\circ$  と  $180^\circ$  で最大値をもち、分子軸方向と  $\mathbf{K}$  とが平行な時に  $c^4\Sigma_u^-$  イオン化が促進されることが分かる. この結果は、光イオン角度分布の測定結果とも矛盾がない. 一方、 $\theta = 8^\circ$  になると分布形状が大きく変化し、 $\phi_K \sim 45^\circ$  と  $135^\circ$  で最大値をもち. 得られた角度分布は、 $\theta = 8^\circ$  のイオン収量スペクトル中にブロードなピークとしてに観測された  $E \sim 28$  eV の  $2\sigma_g \rightarrow 1\pi_g$  励起を考えると理解できる. この双極子遷移禁制な一電子励起で生成する中性励起状態は、短時間で自動電離した後解離することで  $O^+$  を生じる. 詳細な解析により、角度分布で見られた  $\phi_K \sim 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$  の極小は励起先である  $1\pi_g$  軌道の節を反映していることが明らかとなり、(e, e+ion) 実験より電子遷移に関与する空軌道の形状についての情報が抽出できることが示された.

**【参考文献】** [1] N. Watanabe *et al*, *Rev. Sci. Instrum.* **89**, 043105 (2018).

[2] N. Watanabe, S. Yamada, and M. Takahashi, *Phys. Rev. A* **95**, 060702(R) (2017).

[3] N. Watanabe, S. Yamada, and M. Takahashi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20**, 1063 (2018).

[4] J. A. R. Samson *et al*, *J. Chem. Phys.* **76**, 393 (1982).

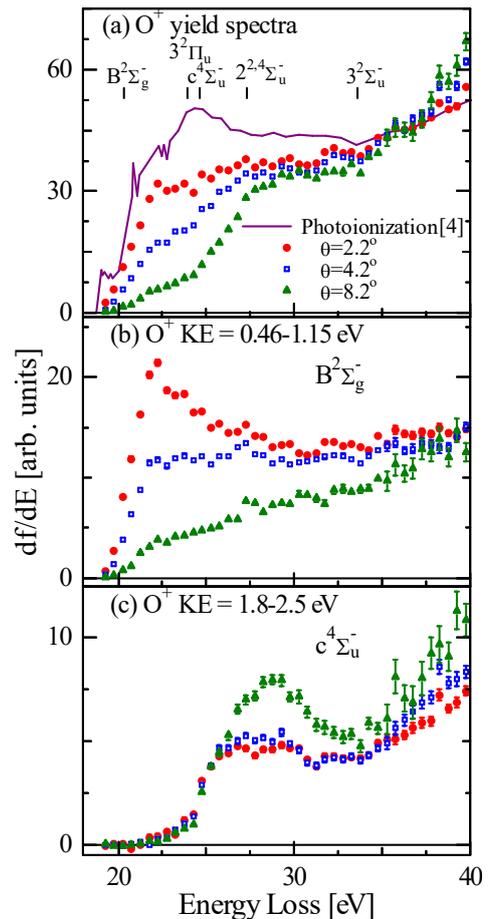


Fig. 2:  $O^+$  yield spectra of  $O_2$ .

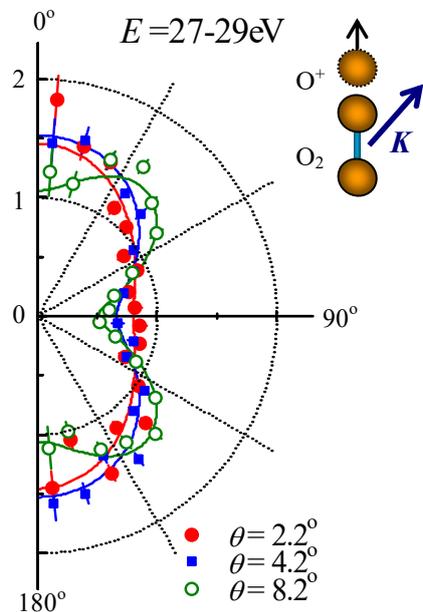


Fig. 3: Angular distributions of  $O^+$  emission for the  $c^4\Sigma_u^+$  ionization.