

角度分解しきい電子分光法および角度分解中性フラグメント分光法による二電子励起状態スペクトルの測定

(兵庫県立大、分子研¹、JASRI¹)

下條竜夫、田村 孝、本間健二、彦坂 泰正¹、繁政英治¹、為則雄祐²

【序論】シンクロトロン放射光に関連する分光技術の進歩により、現在では簡単な分子の内殻電離しきい値近傍において詳細なスペクトル分光が可能となってきた。例えばリュードベルク状態では振動準位が明確に分離され、*ab initio*計算により正確な帰属が行われている。また従来の一電子近似としてのスペクトル構造のみならず、多電子励起状態の微細構造の観測が可能である。

多電子励起状態とは、一個の光子の吸収で多数の電子が励起される多電子過程の一種であり、電子相関などの多体効果が重要な役割を演ずる。分子の内殻電離しきい値近傍は、離散状態と連続状態の相互作用が顕著な領域であり、この多電子励起状態を研究する最も興味深い領域と言える。

窒素のK-edge付近の吸収スペクトルには、415 eV付近に二電子励起によるスペクトル構造が存在する(図1A)。しかしながら、その構造が振動によるものか、リュードベリ構造によるものかはわかっていなかった。本研究では新たに角度分解しきい電子分光法および中性フラグメント分光法という2つの分光法を用いることにより、このスペクトル構造の由来がほぼ振動構造によるものであることを明らかにしたので報告する。

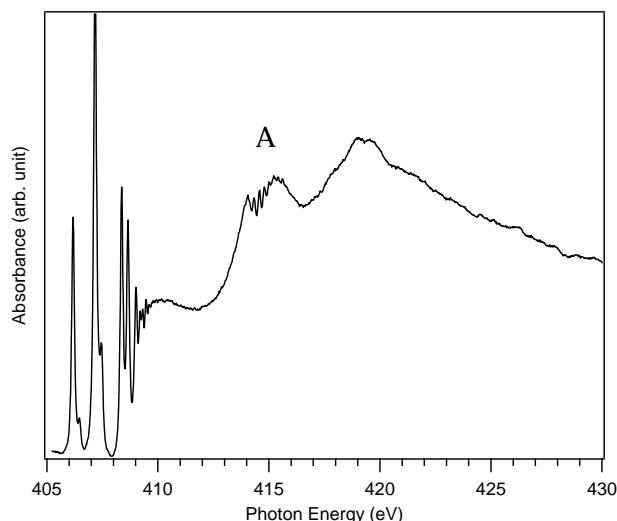


図1: 窒素の K-edge 付近の吸収スペクトル

【実験】図2に示したのは、角度分解しきい電子分光測定装置(図2A)および角度分解中性フラグメント分光測定装置(図2B)である。ノズルから真空チャンバー中に試料をフローさせた後、シンクロトロン放射光によって光イオン化解離させる。角度分解しきい電子分光測定装置(図2A)では、生成した電子のうち、しきい電子のみをしみだし電場により引き込み、エネルギーアナライザーにより検出した。また同時に生成したイオンをイオン検出器で測定することにより、偏光方向に対して および の対称性を分離した。

一方、角度分解中性フラグメント分光測定装置(図2B)では検出部入り口のメッシュに +100Vを、MCP前部に -2000Vをかけることよりイオンおよび電子のシグナルを排除した。また同時に測定されるX線などの蛍光は、蛍光寿命が短いことを利用して放射光ストレージリングのバンチシグナルとのアンチコインシデンスシグナルをとることにより取り除いた。測定は両方共に、SPring8、BL27SUで行った。

【結果】図3に得られた角度分解しきい電子しきい光電子スペクトルおよび角度分解中性フラグメントスペクトルを示す。過去の論文[1]を参考にすると、一番左の振動プログレッションバンド(414.0 eV)は $1_{g}1_{g} - 1_{g}1_{g}$ の二電子励起状態への遷移に、またその隣(415.6 eV)は $1_{g}2_{u} - 1_{g}1_{g}$ の遷移状態に帰属することができる。ちなみに415.2 eVにも $1_{g}1_{g} - 1_{g}1_{g}$ の二電子励起状態があらわれるはずであるが、振動のプログレッションは得られなかった。

[1]E. Shigemasa, T. Gejo, M. Nagasono, T. Hatsui, and N. Kosugi, *Phys. Rev. A* 66 (2002) art. no. 022508

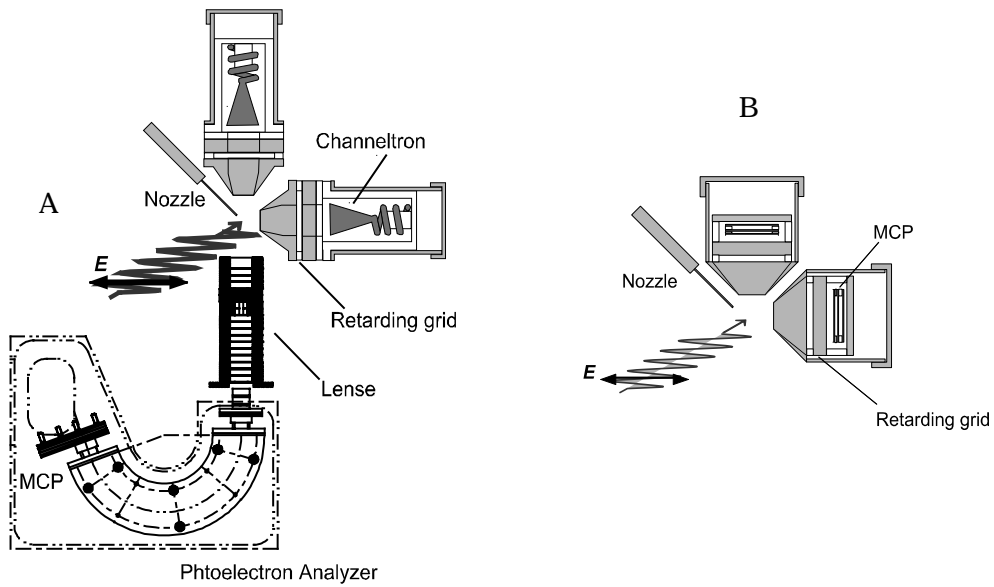


図2 : A) 角度分解しきい電子分光測定装置、B) 角度分解中性フラグメント分光測定装置

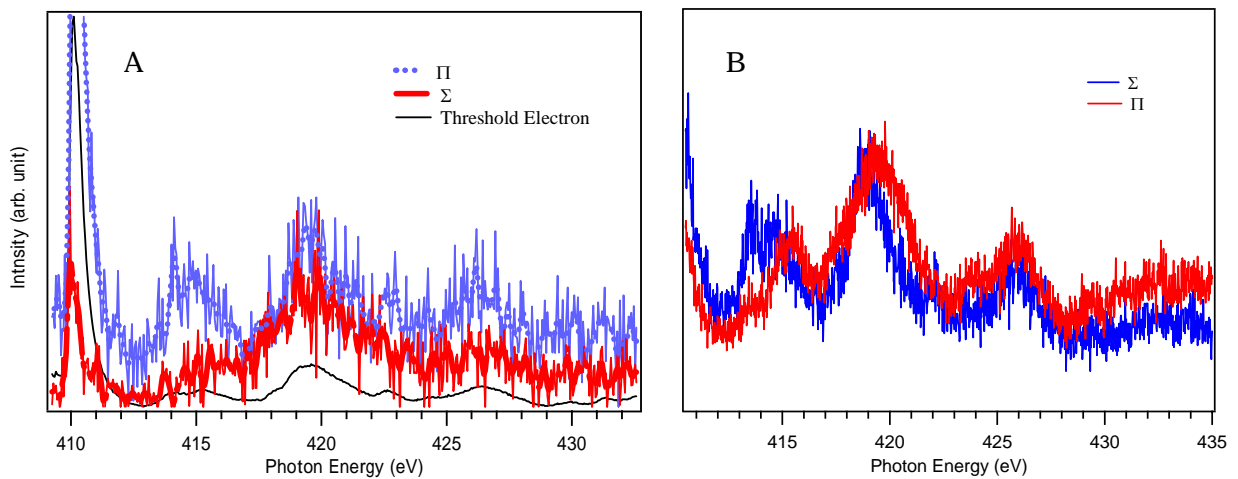


図3 : a) 角度分解しきい電子しきい光電子スペクトルおよび b) 角度分解中性フラグメントスペクトル