

CO₂およびC₂H₂分子の内殻光電離と解離過程

(高エネ機構 物構研・放射光¹、自然機構 分子研²、東大院・理・化³、東北大 多元研⁴)

○足立純一¹、穂坂綱一²、寺本高啓³、渡邊昇⁴、高橋正彦⁴、柳下明^{1,3}

[序] 気体分子から放出される光電子の角度分布を通常の方法により測定したとき、分子の配向に関して積分した情報が得られることになる。このため、気体分子の光電離ダイナミクスに関する詳細な知見を実験から得ることは困難であった。近年、実験技術の進展により分子座標系における光電子角度分布 (MFPAD) の測定が行われるようになってきた[1,2]。我々は分子の内殻電子に関する MFPAD の測定を行い、内殻光電離ダイナミクスの研究を行ってきた[2]。そして、内殻電子の MFPAD を効率よく測定する目的で、運動量画像同時計測装置 (Coincidence Velocity-map Imaging Spectrometer: CO-VIS) を開発した[3]。CO-VIS を用いた内殻電子 MFPAD により、従来と同様な測定を高効率で行うことができるようになっただけでなく、光電離後の断片化チャンネルを選択した MFPAD (FS-MFPAD) が測定できるようになった。

[実験手法] 高輝度の直線偏光が得られる Photon Factory のアンジュレータ軟X線ビームライン BL2C にて実験を行った。コインシデンス測定には CO-VIS を用いた。図 1 に CO-VIS の概念図を示す。この CO-VIS では、運動量画像のためのイオン光学系に Lebech らの提案したイオン光学系 [4] を採用している。また、検出器には RoentDek 社の遅延時間型アノードを用いている[5]。分子線にて試料を導入し、アンジュレータ光を照射することにより、放出される光電子・光イオンの運動量画像と相関時間を記録した。記録された内殻光電離過程とその後の解離イオン放出に

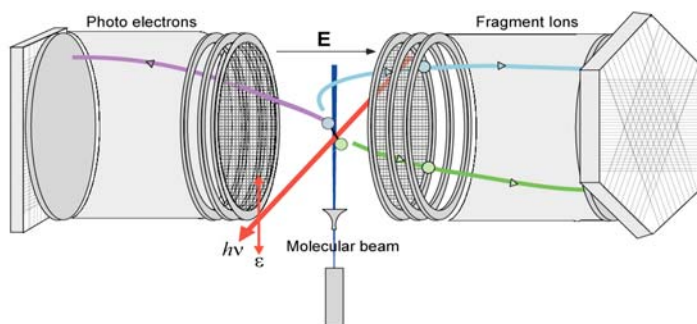


図 1 CO-VIS の概念図. 衝突領域に平行均一静電場が掛けられており、図の左に電子が、右にイオンが引き出されるような構造を持つ。そして、それぞれの引出電極の下流に置いた 2 枚の電極により、運動量画像条件を達成している[*]。イオン検出器側にはマルチヒット耐性の高い HEX

ついて、 e^- - ion_1^+ - ion_2^+ (- ion_3^+) の 3 (4) 重コインシデンス信号を解析した。

[結果および議論] 図 2 に CO₂ 分子の酸素 1s および炭素 1s 電子に関して得られた FS-MFPAD を示している。従来の MFPAD [6] とは異なり、 e^- - O^+ - CO^+ の 3 重コインシデンス信号を計測することにより、 O^+ と CO^+ の放出方向により規定される分子の向きを識別した MFPAD となっている。CO₂ 分子の O1s 光電子 (Σ チャンネル) について解析した FS-MFPAD

では、反転対称性を持たない結果が得られた。同様な測定を C1s 電子に行ったところ、反転対称性を持った形状を示している。これらの結果は、一方の酸素に内殻ホールができた状態の分子ポテンシャルの影響を受けて放出され、ホールの位置と切

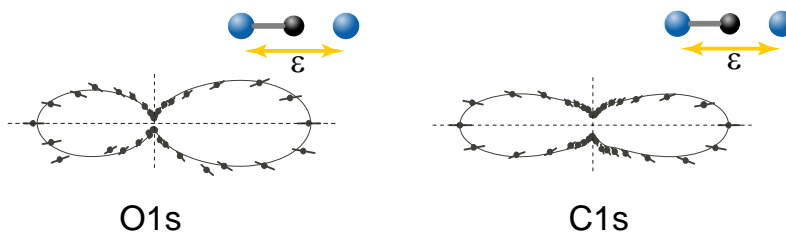


図 2 CO₂ 分子からの内殻光電子の FS-MFPAD. 分子軸と励起光の電気ベクトルが平行な Σ チャンネルに関して、運動エネルギー 50 eV の光電子を測定した結果. 図の左に CO⁺、右に O⁺ を観測している.

断される結合とに相関があると説明できる。炭素の内殻光電離では、そのような機構は働かない。

同様に、C₂H₂ 分子の C1s 光電離過程について、CO-VIS を用いたコインシデンス計測を行った。向きを考慮した FS-MFPAD の対称性の低下は、

断片化チャンネルに依存する結果が得られた。図 3 には 2 体断片化チャンネルについての結果を示している。対称チャンネル (HC⁺-CH⁺) では、反転対称を保った結果が得られている。非対称チャンネル (HC₂⁺-H⁺) では、反転対称性の低下を示している。この対称性の低下は、CO₂ 分子の O1s 光電離の場合と同様、一方の炭素に内殻ホールができた状態の分子ポテンシャルの影響を受けて放出され、ホールの位置と切断される結合とに相関があると説明できる。プロトン移動チャンネル (H₂C⁺-H⁺) は、ほぼ反転対称性を保っている。このことは、終状態においてプロトン移動が起き、内殻ホール位置の記憶を失ってしまっているためと考えられる。この励起・断片化のチャンネルについて、Osipov らにより、プロトン移動の時間スケールは 60 fs であると報告されている[7]。

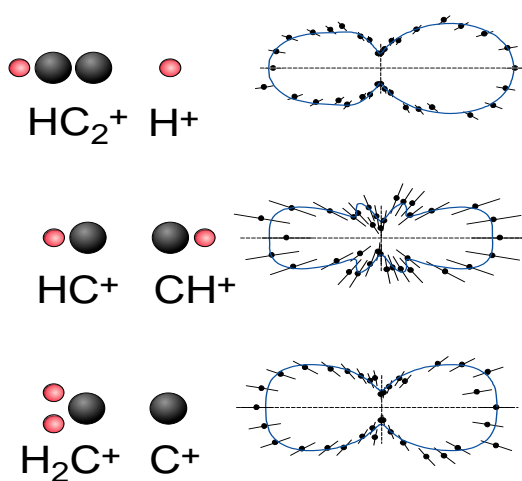


図 3 C₂H₂ 分子からの炭素 1s 電子の FS-MFPAD. 分子軸と励起光の電気ベクトルが平行な S チャンネルに関して、運動エネルギー 20 eV の光電子を測定した結果.

[参考文献]

1. レーザー励起による研究では K. L. Reid, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **54**, 397 (2003). など
2. 放射光励起による研究では A. Yagishita, K. Hosaka, and J. Adachi, *J. Electron Spectrosc.* **142**, 295 (2005); T. Jahnke *et al.*, *J. Electron Spectrosc.* **141**, 229 (2004); D. Dowek *et al.*, *J. Electron Spectrosc.* **141**, 211 (2004); K. Ueda, *J. Phys.* **B 36**, R1 (2003) など
3. K. Hosaka, J. Adachi, N. Watanabe, M. Takahashi, and A. Yagishita, submitted (2005).
4. M. Lebeck, J. C. Houver and D. Dowek, *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 1866 (2002).
5. <http://www.roentdek.com/>
6. J. Adachi, S. Motoki, N. A. Cherepkov, and A. Yagishita, *J. Phys.* **B 35**, 5023 (2002).
7. T. Osipov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 233002 (2003).