

変角振動励起状態の N₂O 分子の角度分解イオン収量スペクトルの測定(上智大理工¹・九州大科学²・東工大化学³・東北大多元研⁴・JASRI⁵)○田中隆宏¹, 星野正光¹, C. Makochekanwa^{1,2}, 北島昌史³, G. Pruemper⁴,X. J. Liu⁴, 為則雄祐⁵, J. R. Harries⁵, 田中大¹, 上田潔⁴

[序] 直線分子の屈曲による縮重状態のエネルギーの低下を Renner-Teller 効果といい、足立ら^[1]や村松ら^[2]によって様々な精密な分光技術を用いて議論されている。本研究では加熱により変角振動励起状態の N₂O 分子を生成し、角度分解イオン収量(ARIY)スペクトルの測定を行った。この方法により、基底状態とは異なるフランクコンドン領域で 1s→π*内殻共鳴状態(Renner-Teller 効果によって A₁(屈曲)と B₁(直線)状態の2つに分裂)のポテンシャルをプローブすることが可能となり、振電相互作用の強調などの効果が期待される。

[実験] 実験は SPring-8 の軟 X 線光化学ビームライン BL27SU において行った^[3,4]。励起光には Figure-8 アンジュレーター^[5,6]からの直線偏光の単色軟 X 線を用い、N₂O 分子の ARIY スペクトルを室温(300K)及び 700K で測定した。ARIY スペクトルの測定には、偏光ベクトルに対して 0°, 90° 方向に設置した 2 台の阻止電場型イオン検出器(共に阻止電圧+6V)を用いた。また、標的分子の加熱には抵抗加熱法を用い、各 K-edge での π*内殻共鳴領域を、分解能、約 50meV で測定を行った。さらに K 殻イオン化閾値以上の σ*形状共鳴にも注目し、同様の測定を行った。

[結果及び考察] ボルツマン分布から 300K 及び 700K での振動基底状態(0,0,0)にある分子の割合は、約 93.7% (300K)、約 65.8% (700K) と推定される。700K においても伸縮系の振動励起状態の割合は非常に低いため、加熱により誘起される振動は変角振動のみであると近似できる。そこで、300K 及び 700K で測定した ARIY スペクトルから始状態が振動基底状態(0,0,0)のものと変角振動励起状態(0,1,0)のものに分離した。図 1 に上記の方法で始状態を分離した N₂O 分子の Nt1s→π*内殻共鳴領域における ARIY スペクトルを示す。始状態が振動基底状態の 0° と 90° の両方の ARIY スペクトル(図 1 中の青円)においてピークが観測さ

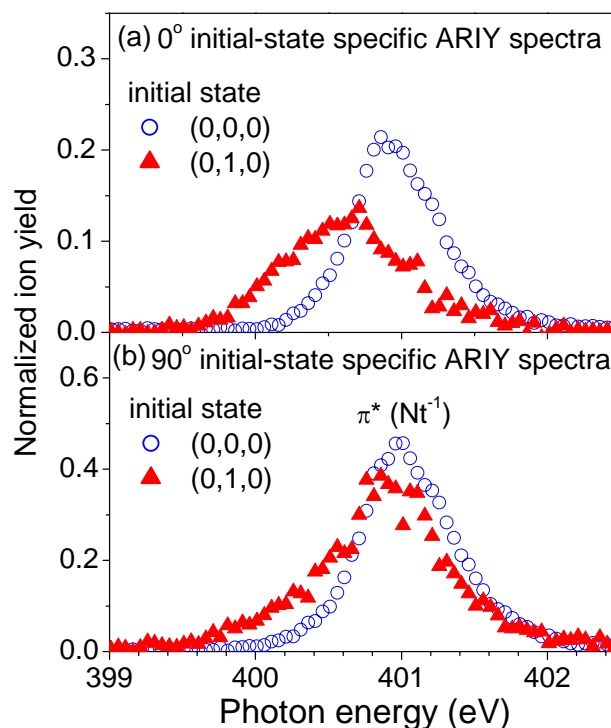


図 1: 始状態を振動基底状態と変角振動励起状態とに分離した N₂O 分子の Nt1s→π*内殻共鳴領域における ARIY スペクトル

れた。この 0° スペクトルにおけるピークは、屈曲した A_1 状態よる axial-recoil 近似の破れに起因している。つまり、 $Nt1s \pi^*$ 内殻共鳴状態においては変角振動モードが強く励起され、光吸収時に N_2O 分子は分子軸に直交する方向に運動量を有していることを意味している。

この 0° スペクトルのピークが、始状態が変角振動励起状態のARIYスペクトル(図1中の赤三角)では、幅が拡がり、位置が低エネルギー側にシフトしていることが分かる。これは、始状態が変角振動励起状態の場合、フランクコンドン領域が 180° 近傍から外れ、Renner-Teller pairのうち屈曲した A_1 状態の内殻共鳴状態の低振動数側が強調されることに起因する。つまり、始状態が変角振動励起状態の場合、 0° 方向のARIYスペクトルは屈曲した A_1 状態の内殻励起状態のポテンシャルを反映していると考えられる。同様のARIYスペクトルの変化の傾向は CO_2 分子の $C1s \pi^*$ 内殻共鳴状態においても観測された^[7]。これら2つに共通した変化が観測された理由の1つとして、同じ等価内殻近似種 NO_2 であることが考えられる。ポスター発表当日は、このようなスペクトルの変化に関する定性的な議論を変角座標についての1次元ポテンシャルを用いて行う。

図3に前述した方法で始状態を分離した N_2O 分子の $N1s \rightarrow \sigma^*$ 形状共鳴領域におけるARIYスペクトル(0° 方向のみ)を示す。 $N1s$ のイオン化閾値以上の425eV近傍の幅の広い形状共鳴のピークの強度が、始状態が変角振動励起状態のARIYスペクトル(図2中の赤三角)において、変化していることが観測された。同様の傾向は弱いながらも $O1s \rightarrow \sigma^*$ 形状共鳴領域においても観測された。当日はこれらの結果も併せて発表する予定である。

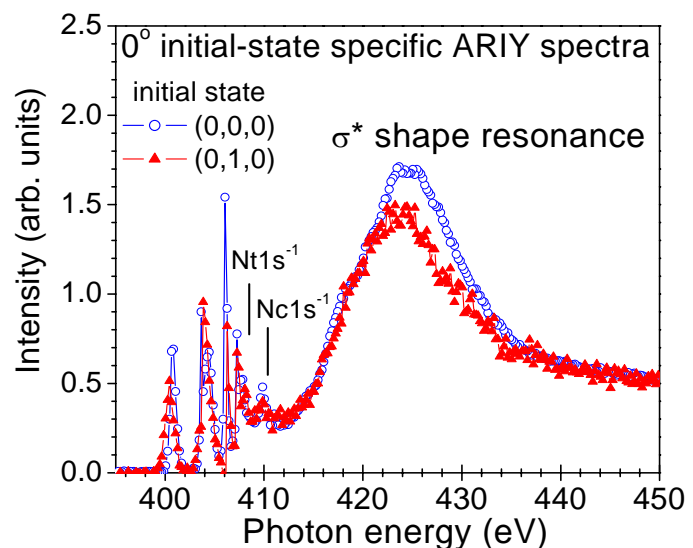


図 2: 始状態を振動基底状態と変角振動励起状態とに分離した N_2O 分子の $N1s$ 内殻イオン化領域におけるARIYスペクトル(0° 方向のみ)

[参考文献]

- [1] J. Adachi *et al.*, J. Phys. B. **38** (2005) R127.
- [2] Y. Muramatsu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 133002.
- [3] H. Ohashi *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. A **467-468** (2001) 529.
- [4] H. Ohashi *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. A **467-468** (2001) 533.
- [5] T. Tanaka, H. Kitamura, Nucl. Instrum. Meth. A **364** (1995) 368.
- [6] T. Tanaka, H. Kitamura, J. Synchrotron Radiat. **3** (1996) 47.
- [7] T. Tanaka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 203002.