

繁 政 英 治 (助 教 授)

A-1) 専門領域：軟X線分子分光、光化学反応動力学

A-2) 研究課題：

- a) 内殻励起分子の光解離ダイナミクスの研究
- b) 内殻電離しきい値近傍における多電子効果の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 内殻励起分子の解離ダイナミクスの詳細を解明するためには、振動分光が可能な高性能分光器が必要不可欠である。90～600 eVのエネルギー範囲で、分解能5000以上を達成する事を目指して、不等刻線平面回折格子を用いた斜入射分光器をBL4Bに建設した。この分光器を用いて、簡単な分子の内殻電離しきい値近傍における多電子励起状態の探索に関係した実験装置の開発研究、新しい同時計測分光法の試みなどを行っている。今年度は三件の国際共同研究をBL4Bで実施した。特に、HCl分子の塩素2p励起後に生ずる励起水素原子からのパルマーα発光と解離イオンであるCl⁺との同時計測法の開発では、同時計測信号の観測には至らなかったが、パルマーα放出に想定外の強い異方性が観測されることが判明した。
- b) 内殻励起分子の崩壊ダイナミクスを理解するためには、先ず後続過程の出発点となる内殻励起状態を正しく理解することが不可欠であるという立場から、光吸収スペクトルをその対称性について分離して観測することが出来る、いわゆる対称性分離光吸収分光法を簡単な分子に適用し、内殻励起状態の同定を行ってきた。UVSORのBL4Bで行った窒素分子の高分解能測定では、形状共鳴による断面積の増大に埋もれたΠ対称性を持つ「三電子励起状態」の存在を明らかにし、その後の電子分光法による脱励起過程の研究の端緒を開いた。しかし対称性分離分光法は、多電子励起状態の検出に特に敏感な方法という訳ではない。分子の内殻電離しきい値近傍における多電子励起状態を探索し、その崩壊過程の研究へと展開して行くためには新しい実験手法の開発が必要である。多電子励起状態をより高感度に観測できる可能性として、真空紫外から極端紫外の発光(EUV発光)に注目した。分子の多電子励起状態は複数の励起電子を有しているので、通常の内殻正孔状態とは異なった崩壊過程を示す可能性がある。プローブとしての有用性を調べるため、UVSORのBL4Bにおいてテスト実験を行った。窒素分子のK殻励起領域における全EUV発光収量を測定した結果、丁度しきい値の位置にブロードなピークが観測された。その後実施した角度分解測定や時分割測定などの結果から、このピークはEUV発光によるものではなく、高励起状態にある原子フラグメントに起因する可能性が高いことが明らかになってきた。

B-1) 学術論文

Y. HIKOSAKA and J. H. D. ELAND, "Dissociative Double Photoionisation of CO below the CO⁺⁺ Threshold," *Chem. Phys.* **299**, 147–154 (2004).

T. AOTO, Y. HIKOSAKA, R. I. HALL, K. ITO, J. FERNÁNDEZ and F. MARTÍN, "Dissociative Photoionization of H₂ at High Photon Energies: Uncovering New Series of Doubly Excited States," *Chem. Phys. Lett.* **389**, 145–149 (2004).

Y. HIKOSAKA, P. LABLANQUIE, F. PENENT, J. G. LAMBOURNE, R. I. HALL, T. AOTO and K. ITO, “Sub-Natural Linewidth Auger Electron Spectroscopy of the 2s Hole Decay in H₂S,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **137-140**, 287–291 (2004).

Y. HIKOSAKA, T. AOTO, E. SHIGEMASA and K. ITO, “Autoionization Selectivity of Ne⁺ Rydberg States Converging to Ne²⁺(¹S^e),” *J. Phys. B* **37**, 2823–2828 (2004).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

M. HOSAKA, M. KATOH, A. MOCHIIHASHI, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI, Y. TAKASHIMA, T. GEJO, E. SHIGEMASA and E. NAKAMURA, “Status and Prospects of User Applications of the UVSOR Storage Ring Free Electron Laser,” *AIP Conf. Proc.* **705**, 61–64 (2004).

Y. NONOGAKI, M. KATOH, E. SHIGEMASA, K. MATSUSHITA, M. SUZUI and T. URISU, “Design and Performance of Undulator Beamline (BL7U) for In-Situ Observation of Synchrotron Radiation Stimulated Etching by STM,” *AIP Conf. Proc.* **705**, 368–371 (2004).

T. HATSUI, E. SHIGEMASA and N. KOSUGI, “Design of a Transmission Grating Spectrometer and an Undulator Beamline for Soft X-Ray Emission Studies,” *AIP Conf. Proc.* **705**, 921–924 (2004).

E. SHIGEMASA, E. NAKAMURA and T. GEJO, “New Molecular Inner-Shell Spectroscopy for Probing Multiple Excitations,” *AIP Conf. Proc.* **705**, 1118–1121 (2004).

B-4) 招待講演

E. SHIGEMASA, “Spectroscopy and dynamics of inner-shell excited molecules,” 8th East Asian Workshop on Chemical Reactions, Okazaki, March 2004.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

第14回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム組織委員 (1999-2001).

学会誌編集委員

Synchrotron Radiation News, Correspondent (2001.10-).

B-8) 他大学での講義、客員

新潟大学大学院自然科学研究科, 自然環境科学集中講義, 「放射光を用いた分子の内殻励起における異方性と解離ダイナミクス」, 2004年7月21日-23日.

C) 研究活動の課題と展望

近年の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 軟X線領域の分子科学には急速な展開が見られつつある。そこでの興味深い対象の一つは、多電子励起状態である。多電子励起は分子場中を運動する電子間の相関に基づくものであり、多電子励起状態の理解は我々が「分子」というものを正しく描写するために必要な根本的な情報の一つとして重要であると考えている。内殻電子の励起では、価電子に対する核電荷の遮蔽が大きく変化し、多電子励起がより顕著に観測さ

れ得ると考えられる。一般に分子の多電子励起状態は、圧倒的に大きな断面積をもつ内殻イオン化連続状態に埋もれており、観測は容易でない。しかし、内殻イオン化によって生成する内殻空孔状態の崩壊過程においては、オーグメント終状態からのイオン性解離が支配的であり、負イオンフラグメントを放出する過程が起こるとは考え難いので、多電子励起状態の崩壊で特徴的に生成される負イオンフラグメントを積極的に検出すれば、多電子励起状態を高感度に検出できる可能性がある。我々は、先述したEUV発光や中性種の検出と共に、この負イオンフラグメントの検出に着目している。負イオンフラグメントは、通常、飛行時間型質量分析器で観測されるが、現在開発中の画像観測の技術を導入することによってこれを格段に高度化し、より高分解能な負イオン生成スペクトルを観測することを目指している。また、観測された画像から負イオンフラグメントの持つ運動量を決定することによって、多電子励起状態の対称性についての直接的な情報を得ることも併せて計画している。これらにより、分子の内殻電子の励起に伴う多電子励起状態に関する理解が飛躍的に深まることが期待される。予備的な実験はBL4Bで集中的に実施するが、更なる高分解能化には、アンジュレータービームラインを利用した実験が望ましい。来年度以降、JVSORの高度化に合わせて新設されたBL3Uでの実験を本格的に開始する予定である。これにより、内殻電離しきい値近傍に潜む電子相関に起因するスペクトル構造の詳細の解明が可能になると期待される。また、将来的には正イオンの画像観測と組み合わせて、研究課題a)の光解離ダイナミクスの研究へと展開して行きたい。