

## 論文の内容の要旨

### 論文題目

# Spectroscopic Study of Electron Transfer Processes in Transmission of Highly Charged Ions through Microcapillaries

マイクロキャピラリーを通過する多価イオンへの電子移行に関する分光研究

氏名 森下 雄一郎

多価イオンはそのまわりに強い電場を形成しており、金属表面に近づくと短時間のうちに多数の電子を捕獲し中性化される。この際、電子捕獲はイオンの高リユードベリ状態から始まり、多数の電子が励起状態にあり、低い励起状態は空のままの原子(イオン)が表面上空で形成されると考えられている。このような通常には存在しない原子(イオン)は中空原子と呼ばれており、その性質、電子状態、形成位置などに関する研究が近年盛んに行われている。

多くの場合、中空原子は固体電子のフェルミ速度に比べ低速な多価イオンを平板状の表面に入射することで作られる。しかしこの手法では、入射イオンは表面上に誘起される自身の鏡像電荷により不可避免的に表面方向に加速されるため、入射速度をいくら低速にしても、中空原子が表面上に存在できる時間は $10^{-13} - 10^{-14}$ 秒程度とごく短時間に限られる。従って、それより遅い遷移は原理的に観測不可能であり、観測されるのはそれよりも速い遷移であり、主に固体に突入した後の中空原子の崩壊過程が研究されてきた(一部の例外を除く)。

我々は、マイクロキャピラリーと呼ばれる薄膜( $\sim 1 \mu\text{m}$ )で、細い貫通孔( $\sim 100 \text{ nm}$ )を無数にもつフォイルを標的とした。この場合、貫通孔に平行に入射された多価イオンの一部は、出口付近で表面に接近し、表面との距離に応じた数の電子を捕獲し真空中に出射すると考えられる。すなわち、様々な形成段階にある中空原子が真空中に脱出しており、真空中で固有の寿命で脱励起することができる。今研究では、可視域での分光を行うことで、形成過程の初期段階を調べる事を目的とした(可視域の遷移レートは概ね $10^9 \text{ sec}^{-1}$ であり、平板標的では観測できない)。

まず、スペクトルの大まかな特徴を知るために、様々な価数の  $\text{Ar}^{Q_{in}+}$  イオン ( $6 \leq Q_{in} \leq 10$ ) を  $2.0 \text{ keV/amu}$  でマイクロキャピラリーに入射した (図 1)。すべての入射イオンで入射電価に固有なラインが観測され、イオンのエネルギーレベルを水素様と仮定することで、遷移の始状態の主量子数 ( $n_i$ ) が  $Q_{in} \leq n_i \leq Q_{in} + 3$  に分布していることがわかった。またすべての入射価数でライン強度は  $n_i = Q_{in}$  で最大で、 $n_i = Q_{in} + 3$  に向かって強度は単調に小さくなっていった (強度は  $Q_{in}$  でスケールされている)。またある入射価数で測定された光は、それより高価数のスペクトルでも観測された。これはキャピラリー内で入射イオンが複数個の電子を捕獲し、高励起状態に 1 つ電子を残したまま、他の電子がカスケードしてコアの空孔を埋めていることを示している。

次に  $Q_{in} = 7, 8$  に対して、遷移の始状態の角運動量子数 ( $l_i$ ) を決定するために高分解能の実験をした。 $Q_{in} = 8$  ( $2p^6nl_i^1$ ) スペクトルでは、コアはエネルギー的に安定な閉殻になっており、観測されたスペクトルは単純であり (図 2 A)、捕獲された電子の電場によるコアの分極を考慮した半経験的公式により、 $4 \leq l_i \leq n_i - 1$  の状態からの遷移であることが分かった ( $6 \leq l_i \leq n_i - 1$  からの遷移は分極率が小さいため 1 本のラインとして観測されている)。一方、 $Q_{in} = 7$  ( $3s^1nl_i^1$ ) スペクトル (図 2 B) は  $Q_{in} = 8$  に比べ複雑な構造であり、分極公式では同定できなかった。これは、観測された遷移に関わる状態 ( $3s^1nl_i^1; n = 7-10$ ) のエネルギーが、 $3p5l_i^1$  のエネルギーとほぼ等しいことから生じる配置間相互作用のためで、 $3l3l' + 3snl (n = 4-11) + 3pnl (n = 4-6) + 3dnl (n = 4-5)$  の電子配置を考慮した Multi-configurational Hartree-Fock 法により遷移エネルギーを計算した。計算波長と計測波長のずれは  $\sim 1\%$  程度であるものの、1) 各  $l_i$  遷移の相対的位置関係、2)  $l \cdot s$  相互作用による  $l_i$  遷移の分裂幅、3)  $Q_{in} = 6$  スペクトルとの比較、により合理的に遷移の  $l_i$  を  $5 \leq l_i \leq n_i - 1$  と同定できた。

次に、同定された遷移の強度をレート方程式の解を使って解析することによりキャピラリーの出口での移行電子の  $(n, l)$  初期分布を求めた (図 3)。分布の強度及び  $n$  に関する分布の幅  $\delta n \sim 2$  は 2 つの入射価数  $Q_{in} = 7, 8$  でほぼ同じであるが、分布全体が  $n$  の大きな方向に約 1 シフトすることが初めて分かった。分布の  $n$  に関する平均値は  $\sim 8.5$  ( $Q_{in} = 7$ )、 $\sim 9.5$  ( $Q_{in} = 8$ ) であり、それらは Classical Over Barrier (COB) model の予言

$$n_c(Q_{in}) \sim \frac{Q_{in}}{\sqrt{2W}} \left( \frac{1}{1 + \frac{Q_{in}-0.5}{\sqrt{8Q_{in}}}} \right)^{1/2} \sim Q_{in} + 1 \quad (W: \text{仕事関数})$$

と非常に良く一致した (図 1 で遷移の始状態を  $Q_{in}$  で分類するとライン強度の変化が各入射価数で同様になるのはこれが理由である)。また、 $(n, l)$  初期分布はイオンの速度を変えて測定されたデータからも見積もった。その結果は図 3 (A) と同様であり、速度依存性がないことが示された。これはイオン自身の鏡像電荷による電場 ( $F = \frac{W^2}{8}$ ) による Stark 効果で、表面上空に形成されるイオンの固有状態が異なる  $l$  の固有状態の重ねあわせになっているためであり、さらに電場の強さは  $n = Q_{in} + 1$  と  $n = Q_{in} + 2$  の固有状態をも混ぜるのに十分な事も分かった。

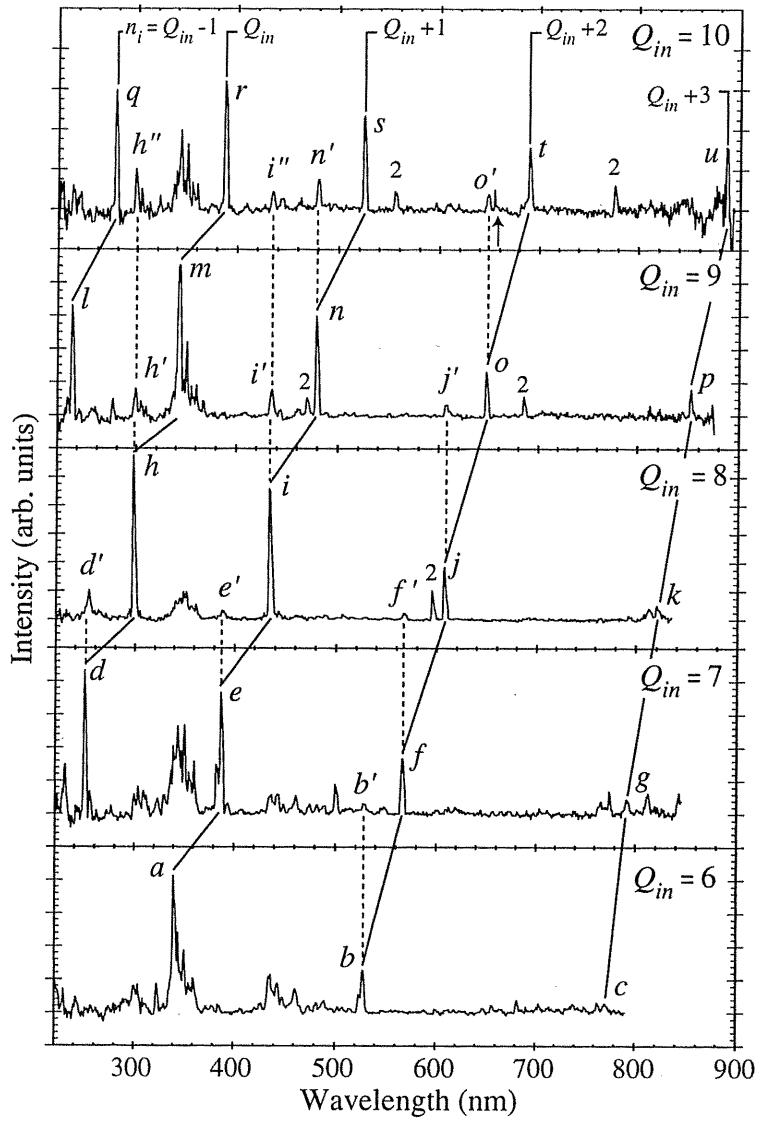


図 1: 2.0 keV/amu の  $\text{Ar}^{Q_{in}+}$  ( $6 \leq Q_{in} \leq 10$ ) イオンを入射したときのスペクトル。すべての入射価数について、 $n_i = Q_{in}$  からの遷移がもっとも強度が強く、それより大きな  $n_i$  からの遷移強度は同じように弱くなっている。

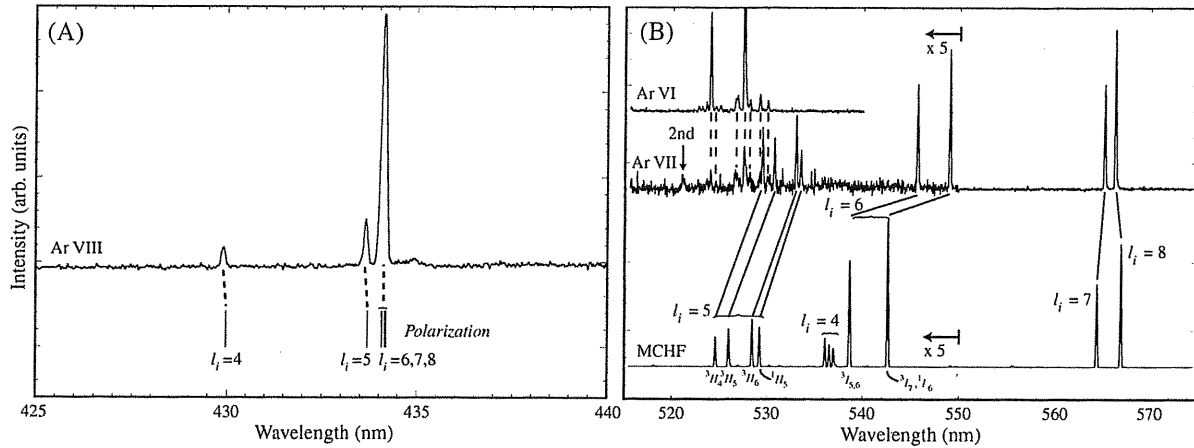


図 2: (A)  $Q_{in} = 8$  の  $n_i = 9$  からのスペクトル。遷移は殻分極法により同定した。(B)  $Q_{in} = 7$  の  $n_i = 9$  からのスペクトル (中段)。MCHF 法による計算結果 (下段) と  $Q_{in} = 6$  スペクトル (上段) を比較する事により合理的に同定できる。

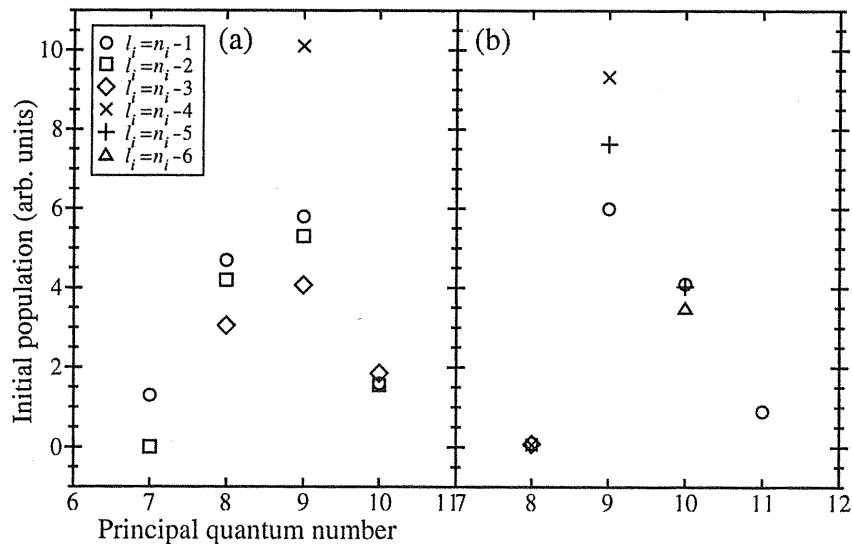


図 3: (A)  $Q_{in} = 7$  (B)  $Q_{in} = 8$  に対する移行電子の  $(n_i, l_i)$  初期分布。入射価数を 7 から 8 にすることで、分布の主量子数に関する平均値は 8.5 から 9.5 に変化する。