

# 論文審査の結果の要旨

氏名 穂坂 綱一

本論文は9章からなる。第1章は序論であり、分子の光電離ダイナミクスの研究の背景および本研究の目的が述べられている。第2章は光電子放出の理論の簡潔なレビューにあてられている。第3章は光電子・解離イオン同時計測運動量画像分光実験装置の設計・製作およびデータ解析の詳細が記述されている。第4章は光電子の角度分布における電気双極子近似の妥当性について述べられている。内殻電離閾値から 100eV 以下の領域において、 $\text{N}_2$  分子および  $\text{CO}$  分子の 1s 光電子の角度分布が電気双極子近似から大きなズレを示すことが発見され物議を起こしていた。本研究では、その実験結果の真偽を検証するために高精度で光電子の角度分布測定をおこなった。そして、以前の実験結果を完全に否定し、電離閾値から 100eV 以下の領域においては、電気双極子近似が良い近似で適用できることを初めて明らかにした。第5章は N1s 光電離部分断面積測定による、 $\text{NO}$  分子の形状共鳴におけるスピン交換相互作用の効果について述べられている。スピン多重度を分離して、 $^3\Pi$  および  $^1\Pi$  イオン化状態の部分断面積を測定し、両者の形状共鳴プロファイルを初めて明らかにした。そして、それぞれの形状共鳴のピーク位置と相対強度について理論解析をおこない、形状共鳴においては光電子と分子内電子との交換相互作用が重要な役割をしていることを明らかにした。第6章は配向  $\text{NO}$  分子からの N1s 光電子の角度分布測定による、形状共鳴ダイナミクスにおけるスピン交換相互作用の効果について述べられている。実験データの解析から、遷移行列要素を決定し形状共鳴ダイナミクスを明らかにした。すなわち、形状共鳴領域において、光電子と分子内電子との交換相互作用と光電子の軌道角運動量の混成との関係を初めて解明した。第7章は O1s 光電子・解離イオン ( $\text{O}^+$  および  $\text{CO}^+$ ) の三重同時計測による、配向  $\text{CO}_2$  分子からの O1s 光電子の角度分布について述べられている。 $\text{CO}_2$  分子は対称性の高い分子であるにもかかわらず、三重同時計測による配向  $\text{CO}_2$  分子からの O1s 光電子の角度分布のパターンは、反転対称性を示さないことを発見した。O1s 光電離では、振電相互作用により分子イオンの反対称伸縮振動が誘起され、伸長した結合側の O 原子に内殻ホールが局在していることは、軟 X 線発光分光や光電子分光で明らかにされていた。しかしながら、これらのシング

ルの分光では、内殻ホールが右の O 原子に生成されたのか左の O 原子に生成されたのか区別をすることはできなかった。本研究では、内殻ホールのオージェ崩壊後の解離イオン対 ( $O^+$ および  $CO^+$ ) を捉えることによって、内殻ホール位置を特定した O1s 光電子の角度分布測定を可能にした。すなわち、O1s 光電子の角度分布の反転対称性の破れたパターンから、伸びた結合の O 原子の内殻ホールがオージェ崩壊し、伸びた結合が  $O^+-CO^+$ に解離する確率は、反対側の縮んだ結合が  $O^+-CO^+$ に解離する確率に比べて支配的であるとの結論を導いている。本研究成果は、多重同時計測画像分光法により、内殻光電離で誘起された分子構造の変化をオージェ崩壊の時間スケール ( $\sim 10\text{fs}$ ) で初めて観測したものであり、極めて高く評価できる。新たな研究分野を開拓したと言っても過言ではない。第 8 章は C1s 光電子・解離イオン・解離イオンの三重同時計測による、解離チャンネルを特定した配向  $C_2H_2$  分子からの C1s 光電子の角度分布について述べられている。三重同時計測による配向  $C_2H_2$  分子からの C1s 光電子の角度分布のパターンは、解離イオン対が対称でない場合は反転対称性を示さないことを発見した。C1s 光電離では、振電相互作用が弱く反対称伸縮振動は誘起されない。しかし、内殻ホールの移動が起る前にオージェ崩壊 ( $\sim 10\text{fs}$ ) が起ると、分子の対称性の低下は解離イオン対に反映されることになる。その結果、解離イオン対が対称でない場合の C1s 光電子の角度分布のパターンに対称性の低下が観測されたものとの解釈を与えている。本研究成果も第 7 章の成果と同様で、内殻光電離の後  $\sim 10\text{fs}$  の間に起る分子構造の変化を捉えたもので、内殻光電離ダイナミクスの今後の指針を与えるものであり、高く評価できる。第 9 章はまとめであり、本論文の要約と本研究の展望が述べられている。

なお、本論文の第 5 章は、足立純一・高橋正彦・柳下明との共同研究であり、第 6 章は、足立純一・高橋正彦・柳下明・P. Lin・R. R. Lucchese との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験および解析をおこなったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士 (理学) の学位を授与できると認める。