

論文審査の結果の要旨

氏名 寺本 高啓

本論文は6章からなり、寺本高啓の博士課程における内殻光電離の研究の成果をまとめたものである。

第1章は序論であり、分子の内殻光電離ダイナミクスの研究の歴史および本研究の位置付けが述べられている。従来の実験室系での光電離の実験は、光電離部分断面積測定、ランダム配向分子からの光電子の角度分布測定、解離イオンの角度分布測定に限られており、これらの測定では分子の光電離過程を電気双極子近似で記述する遷移行列要素と位相差（ダイナミカルパラメータ）を個々に決定することができない。近年の実験技術の進歩により分子座標系における光電子の角度分布測定（MFPAD）が行われるようになり、円偏光および直線偏光によるMFPADからダイナミカルパラメータを実験により決定する試み（完全実験）が行われるようになった。しかしこの手法では偏光状態を変え、同じ励起エネルギーで測定を行う必要があるため時間がかかってしまうという欠点があった。本研究では直線偏光による実験データのみ（光電子の角度分布、解離イオンの角度分布、MFPAD）を用いた新しい完全実験のアプローチを開発した。そしてこのアプローチをCO₂およびCS₂分子のCl_s光電離に適用し、Cl_s光電離ダイナミクスを第一原理から理解することを目的としている。

第2章では分子の内殻光電離の記述式が述べられている。ランダム配向分子からの光電子角度分布と解離イオンの角度分布はLegendreの2次式で表され、それぞれの非対称パラメータ β_e 、 β_{ion} はダイナミカルパラメーターを用いて記述される。直線偏光軟X線で偏光面内のMFPADはLegendreの多項式とLegendreの陪関数で表され、それぞれの係数はダイナミカルパラメーターを用いて記述される。

第3章では本論文で用いた光電子・光イオン多重同時計測運動量画像法(COVIS)の測定原理と本研究で行った装置の改良点について述べてある。軟X線による内殻光電離過程で生成した荷電粒子（光電子、光イオン）は遅延時間型位置敏感検出器で検出される。荷電粒子の検出器面内での位置(X,Y)の情報と光電離イベントから検出器に到達するまでの時間(Z)の情報から、荷電粒子の運動量を求める。この手法がCO-VISと呼ばれている。本研究での装置の改良点はソースチャンバーと衝突領域の

距離の短縮化であり、衝突領域のガス濃度を従来の約 10 倍に増強することに成功した。また平行電場の乱れを防ぐため補償電極を従来の 6 枚から 10 枚に変更した。この結果、平行電場の乱れの影響は光電子の真円度公差で 0.2mm 以内に抑えることに成功した。

第 4 章は CO₂ の C1s 光電離の完全実験について述べてある。本研究の主題である完全実験の新しいアプローチを励起エネルギー 316.6eV のときの CO₂ の C1s 光電離の実験データを用いて説明した。新しいアプローチではランダム配向分子からの光電子の角度分布、ランダム配向分子からの解離イオンの角度分布、MFPAD のデータを用いることによりダイナミカルパラメータの決定に成功した。また他の励起エネルギーでも同様の解析を行うことにより、ダイナミカルパラメータの励起エネルギー依存性を決定することに成功した。この結果、CO₂ の C1s 光電離過程に特徴的な形状共鳴は p σ 部分波が支配的に形成し、共鳴しているということが明らかとなった。また f σ 部分波、h σ 部分波も協奏的に共鳴していることが明らかとなった。一方 $\sigma \rightarrow \pi$ 遷移の部分波は全て励起エネルギーに対しほぼ一定であり、共鳴しないことが明らかとなった。これらの実験結果を Relaxed Core Hartree-Fock 計算および Time Dependent Density Functional Theory 計算と比較すると、理論計算はともに実験結果を過大評価しており、実験結果を再現するためには核振動と電子緩和を考慮する必要があるということが明らかとなった。

第 5 章では CS₂ 分子の C1s 光電離の完全実験について述べてある。ここでは第 4 章で導入した完全実験の手法を CS₂ の C1s 光電離に適用した。その結果、CS₂ の C1s 光電離の形状共鳴では f 部分波が支配的であり、他の部分波は共鳴を起こさないことが明らかとなった。CS₂ の C1s 光電離の部分断面積測定では形状共鳴はわずかな吸収増大しか見られないが、それは f 部分波が共鳴増大するが他の部分波の部分断面積の総和により埋もれていることが本研究により明らかとなった。

以上のように、本論文で開発した新しい完全実験のアプローチから、ダイナミカルパラメータを決定することが可能となり、分子の内殻光電離過程を第一原理から解明することを可能にした。

よって、本論文が博士(理学)を授与するのにふさわしい研究であることを審査員は全員一致で認めた。