

氏名	おおはしひろふみ 大橋浩史
学位(専攻分野)	博士(理学)
学位記番号	理博第3107号
学位授与の日付	平成19年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	理学研究科物理学・宇宙物理学専攻
学位論文題目	多重空孔状態に起因する金の $L\beta_2$ サテライト線

論文調査委員 (主査) 助教授 伊藤嘉昭 教授 八尾誠 教授 山本潤

論文内容の要旨

$L\beta_2$ サテライト線は $L\beta_2(L_3-N_5)$ スペクトルの高エネルギー側に観測され、重元素ではダイヤグラムラインとのエネルギー差が比較的大きい。そのためその存在は良く知られており、ダイヤグラムラインからの分離が容易なため visible satellites と呼ばれている。このサテライト線は M 殻に spectator hole が存在する二重空孔状態、 L_3M_1 からの $L_3M_1-N_5M_1$ 遷移と解釈されており、その発生機構に関する研究が進められてきた。この二重空孔状態を生成する過程としては L_3 電子の電離時に M_1 電子が励起される shake 過程、及び L_1 (または L_2) 電子の電離後の緩和過程における $L_1(L_2)-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移が考えられる。このうち、Coster-Kronig 遷移にはその発生の可否に原子番号依存性があり、閾値が存在する。Coster-Kronig 遷移が起こりうる組み合わせの数は Coster-Kronig 収率を変化させ、電子軌道の準位幅に影響を与える。このため閾値付近の元素は特に興味をもたれてきた。さらに shake 過程では spectator hole が外殻に生成する過程ほど確率が高いのに対し、Coster-Kronig 遷移はむしろ発生する条件を満たす限り、内殻電子の電離確率が高い。しかし重元素では系全体の持つ電子数が多く計算が複雑になることもあり、理論、実験双方からの研究が不可欠である。

本研究では、 $L_1-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移が発生する閾値となる元素ではなく、また、観測されるサテライト線の強度が二本とも極端に弱いものでもない、Coster-Kronig 遷移確率の理論値の信頼性の高い元素である金 ($Z=79$) を対象とした。Chen らの計算結果によれば、金に関しては $L_1-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移は $i=4, 5$ で起き、 $L_2-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移は起きないとされている。これは金の $L\beta_2$ スペクトルの高エネルギー側に $L\beta_2'$ と $L\beta_2''$ との 2 本の visible satellites が観測できるのに対応する。これらのサテライトでは $L\beta_2'$ が M_5 に spectator hole を持つ $L_3M_5-N_5M_5$ 遷移、 $L\beta_2''$ が M_4 に spectator hole を持つ $L_3M_4-N_5M_4$ 遷移と位置づけられている。それぞれの始状態となる $L_3M_{4,5}$ 二重空孔状態の生成過程は、 $L_3M_{4,5}$ shake 過程と $L_1-L_3M_{4,5}$ Coster-Kronig 遷移が考えられるが、両過程の寄与に関してははっきりとした結論は得られていない。 $L_3M_{4,5}$ shake 過程によるものならば、その発生の閾値となる励起エネルギーは、 $Z+1$ 近似における $[2p3d]$ の電離の閾値となる。

一方、 $L_1-L_3M_{4,5}$ Coster-Kronig 遷移によるものならば励起エネルギーの閾値は L_1 吸収端と一致する。このように両過程の励起エネルギー依存性が異なるため、選択励起による測定を行うことにより、二つの過程それぞれの寄与を独立に評価し、サテライト線の発生機構を明らかにすることができた。すなわち、shake 過程と Coster-Kronig 遷移の両方の過程が要因として考えられるサテライト線の励起エネルギー依存性を観測し、その相対強度を求め、さらに二種の過程によるサテライト線の強度をそれぞれ計算式により予測し、測定値と計算値を比較することでサテライト線への各過程の寄与の大きさを確かめることができる。重元素のサテライト線を対象とした、放射光施設での選択励起による測定は今まで殆ど例がなく、サテライト線の発生機構についての決定的な知見が得られる。

申請者は、実験室での X 線スペクトル測定で、 $L\beta_2$ 線、 $L\beta_3$ 線、 $L\beta_2$ サテライト線の強度を求め、 $L\beta_2$ 線に対する $L\beta_2$ サテライト線と $L\beta_3$ 線の相対強度を求めた。その結果 $L\beta_2$ サテライト線の主線に対する相対強度は励起電圧 20~40kV で

は単調に増加し、それより高い励起電圧ではほぼ一定になった。また $L\beta_3$ 線の $L\beta_2$ 線に対する相対強度も似た傾向を示した。計算式との比較によりこれらの X 線の相対強度の変化は L_1 殻と L_3 殻の電離断面積の比 σ_1/σ_3 が主に寄与していることを明かにした。なお、二本の $L\beta_2$ サテライト線について、励起エネルギーを変化させてスペクトルを測定し、得られたスペクトルを hidden satellites の影響を考慮するためマルチプレットを用いたフィッティングにより主線である $L\beta_2$ 線に対する相対強度の変化を解析した。

また、放射光施設 SPring-8 での実験では $L\beta_2$ サテライト線は $Z+1$ 近似により予測された shake 過程発生の閾値となる励起エネルギー付近では観測されず、 L_1 吸収端付近ではじめて観測された。またその相対強度変化は、励起エネルギーの変化に対して L_1 吸収端近傍の狭いエネルギー範囲で急激に増加するという結果が得られた。この励起エネルギー依存性は L_1 吸収スペクトルに似た傾向であった。さらに、 L_1 吸収端以上の励起エネルギーでは相対強度は緩やかに増加した。これらのことから、 $L\beta_2$ サテライト線発生の始状態が L_1 空孔状態であることを明かにした。

サテライト線の主線に対する相対強度の計算値と実測値の比較では、 L_1 吸収端近傍の領域では shake 過程の寄与を無視したにもかかわらず、両者は良い一致を示した。また、計算値においても L_1 吸収端以上の励起エネルギーでの相対強度の緩やかな増加は再現できており、この領域での相対強度の励起エネルギー依存性が shake 過程の寄与によるものではなく、 L_1 殻と L_3 殻の電離断面積の比 σ_1/σ_3 によることを指摘した。

これらの結果から $L\beta_2$ サテライト線の発生機構は、 L_1 電子の電離により生じた L_1 殻空孔が $L_1-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移により L_3M_1 二重空孔状態となり、 $L_3M_1-N_5M_1$ 遷移 ($i=4, 5$) による蛍光 X 線放射が主であることを確認し、また L_1-L_3X Coster-Kronig 遷移に起因するサテライト線の強度が L_1 吸収端近傍で発生しかつ急激に増加することを利用して、通常では主線からの分離が困難な hidden satellites の構造を求めることも可能であることを示した。

一方で計算値から予測される shake 過程の寄与は非常に小さいものであり、その量を見積もるだけでも非常に高精度の測定が要求される。さらに shake 過程の確率の励起エネルギーに対する変化を visible satellites の相対強度より求めるためには、 $L-LM$ Coster-Kronig 遷移が起きない元素を対象に測定することを提案した。

論文審査の結果の要旨

$L\beta_2$ サテライト線は $L\beta_2(L_3-N_5)$ スペクトルの高エネルギー側に観測され、重元素ではダイヤグラムラインとのエネルギー差が比較的大きい。このサテライト線は M 殻に spectator hole が存在する二重空孔状態、 L_3M_1 からの $L_3M_1-N_5M_1$ 遷移と解釈されており、その発生機構に関する研究が進められてきた。この二重空孔状態を生成する過程としては L_3 電子の電離時に M_1 電子が励起される shake 過程、及び L_1 (または L_2) 電子の電離後の緩和過程における $L_1(L_2)-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移が考えられる。このうち、Coster-Kronig 遷移にはその発生の可否に原子番号依存性があり、閾値が存在する。Coster-Kronig 遷移が起こりうる組み合わせの数は Coster-Kronig 収率を変化させ、電子軌道の準位幅に影響を与える。このため閾値付近の元素は特に興味をもたれてきた。さらに shake 過程では spectator hole が外殻に生成する過程ほど確率が高いのに対し、Coster-Kronig 遷移はむしろ発生する条件を満たす限り、内殻電子の電離確率が高い。重元素のサテライト線を対象とした、放射光施設での選択励起による測定は今まで殆ど例が無く、サテライト線の発生機構についての決定的な知見を得るためには、理論、実験双方からの研究が不可欠である。

本申請論文では、 $L_1-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移が発生する閾値となる元素ではなく、観測されるサテライト線が Coster-Kronig 遷移確率の理論値の信頼性の高い元素である金 ($Z=79$) を対象としている。また、このような内殻電離に伴う多重電離現象に起因するサテライトの物理的な解明には、第 3 世代の高輝度挿入光源を用いた X 線スペクトル計測が非常に有効な手段であり、そのため精密な X 線スペクトル測定には非常に分解能の高い波長分散型の分光装置が用いている。

すなわち、それぞれの始状態となる $L_3M_{4,5}$ 二重空孔状態の生成過程は、 $L_3M_{4,5}$ shake 過程と $L_1-L_3M_{4,5}$ Coster-Kronig 遷移が考えられるが、両過程の寄与に関してははっきりとした結論はこれまで得られていなかった。両過程の励起エネルギー依存性が異なるため、選択励起による測定を行うことにより、二つの過程それぞれの寄与を独立に評価し、サテライト線の発生機構を明らかにしている。すなわち、shake 過程と Coster-Kronig 遷移の両方の過程が要因として考えられるサテライト線の励起エネルギー依存性を観測し、その相対強度を求め、さらに二種の過程によるサテライト線の強度をそれ

ぞれ計算式により予測し、測定値と計算値を比較することでサテライト線への各過程の寄与の大きさを確かめている。

実験室での高分解能一結晶分光器を用いた X 線スペクトル測定では、 $L\beta_2$ 線、 $L\beta_3$ 線、 $L\beta_2$ サテライト線の強度を求め、 $L\beta_2$ 線に対する $L\beta_2$ サテライト線と $L\beta_3$ 線の相対強度を求めた。その結果 $L\beta_2$ サテライト線の主線に対する相対強度は励起電圧 20~40kV では単調に増加し、それより高い励起電圧ではほぼ一定になった。また $L\beta_3$ 線の $L\beta_2$ 線に対する相対強度も似た傾向を示した。計算式との比較によりこれらの X 線の相対強度の変化は L_1 殻と L_3 殻の電離断面積の比 σ_1/σ_3 が主に寄与していることを指摘している。

なお、二本の $L\beta_2$ サテライト線について、励起エネルギーを変化させてスペクトルを測定し、得られたスペクトルを hidden satellites の影響を考慮するためマルチプレットを用いたフィッティングにより主線である $L\beta_2$ 線に対する相対強度の変化を考慮に入れた解析を行っている。

また、放射光施設 SPring-8 での集中分光型高分解能一結晶分光器を用いた X 線スペクトル実験では $L\beta_2$ サテライト線は $Z+1$ 近似により予測された shake 過程発生の閾値となる励起エネルギー付近では観測されず、 L_1 吸収端付近ではじめて観測された。またその相対強度変化は、励起エネルギーの変化に対して L_1 吸収端近傍の狭いエネルギー範囲で急激に増加するという結果が得られた。この励起エネルギー依存性は L_1 吸収スペクトルに似た傾向であり、 L_1 吸収端以上の励起エネルギーでは相対強度は極緩やかに増加した。これらのことから、 $L\beta_2$ サテライト線発生の始状態が L_1 空孔状態であることを明かにしている。

サテライト線の主線に対する相対強度の計算値と実測値の比較では、 L_1 吸収端近傍の領域では shake 過程の寄与を無視したにもかかわらず、両者は良い一致を示した。また、計算値においても L_1 吸収端以上の励起エネルギーでの相対強度の緩やかな増加は再現できており、この領域での相対強度の励起エネルギー依存性が shake 過程の寄与によるものではなく、 L_1 殻と L_3 殻の電離断面積の比 σ_1/σ_3 によることを詳細に明かにしている。

以上、申請論文は $L\beta_2$ サテライト線の発生機構は、 L_1 電子の電離により生じた L_1 殻空孔が $L_1-L_3M_1$ Coster-Kronig 遷移により L_3M_1 二重空孔状態となり、 $L_3M_1-N_5M_1$ 遷移 ($i=4, 5$) による蛍光 X 線輻射が主であることを確認し、また L_1-L_3X Coster-Kronig 遷移に起因するサテライト線の強度が L_1 吸収端近傍で発生しかつ急激に増加することを利用して、通常では主線からの分離が困難な hidden satellites の構造を定性的であるが明らかにしている。

本研究は、高分解能一結晶分光装置で測定した多重空孔状態に起因する金の $L\beta_2$ サテライト線の励起エネルギー依存性が L_1 殻と L_3 殻の電離断面積の比 σ_1/σ_3 によることを示し、これらのサテライトの発生機構についても新しい知見を得ており、原子物理学や X 線分光学の分野に重要な貢献を与えるものである。よって本申請論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認めた。また主論文および参考論文に報告されている研究業績を中心にして、これに関連した研究分野について口頭試問した結果、合格と認めた。