

氏 名	ブライク アウレル ミハイ Vlaicu Aurel Mihai
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 2155 号
学位授与の日付	平成 12 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	X-ray spectroscopic research of ^{74}W L emission spectra and satellites (タングステン L 放射線スペクトルとその衛星線の X 線分光学的研究)

論文調査委員	(主 査) 教 授 向 山 毅 教 授 石 黒 武 彦 助教授 伊 藤 嘉 昭
--------	--

論 文 内 容 の 要 旨

軌道電子のエネルギー準位や特性 X 線のエネルギーは準位の寿命に対応して、ハイゼンベルグの不確定性原理によって決まる幅を持つ。これが自然幅であり、元素ごと準位ごとに固有の値をもつ。実験的には特性 X 線の自然幅については X 線スペクトルの半値幅、準位幅については光電子スペクトルの半値幅を測定することによって求められる。このとき測定の障害となるのは装置によるスペクトルの広がりである。この広がり原理的には装置の改良による分解能の向上や、データの補正方法の改良によって取り去られ本来のスペクトルの値に近い幅が得ることができる。

特性 X 線の自然幅に関する実験的研究に関しては K 線に対しては多くの研究例があるが、重元素の L 線についてはあまり報告例が多くなく今なお、研究の対象になっている。これまで報告されているものに、 $74 < Z < 83$ の元素の L 系列 X 線に関しては 1934 年に Williams, $73 < Z < 79$ の元素の L 線に関しては、1944 年に Cooper, $58 < Z < 74$ の元素の L 線に関しては、1974 年に Salem と Lee によるものがある。1976 年に Salem と Lee は、これらの実験値をまとめ、横軸に原子番号、縦軸に自然幅をとり最小二乗フィットを行いそれぞれの元素についての自然幅を求めた。しかしまだ L 系列の自然幅はデータが不足しているし、このように特性 X 線の自然幅に関して分光装置やスペクトルの補正の改良による測定が行われてきているが、信頼できる実験データは少なく、それらの定量的評価から自然幅に関してまだ十分な理解を得るまでには至っていない。

申請者は超強力回転型対陰極 X 線発生装置と 100 mm 間隔で 10 と 20 μm の分光スリットを併用した高分解能一結晶分光装置を製作し、W (タングステン) L 系列 X 線放射スペクトルの自然幅の測定を行った。その結果、主線の高エネルギー側に非対称な肩をもつスペクトルを観測した。これらを多重空孔状態によるサテライトと考え解釈を試みた。この多重空孔状態における高エネルギー側のサテライトは Wentzel-Druyvesteyn 理論によって説明される。それによるとこのサテライトは軌道に二つ以上の空孔が生じたとき、空孔が一つだけの時より軌道のエネルギー準位が高エネルギー側にシフトすることに起因する。多重空孔状態が生成される原因としては、shake-off (内殻電子の電離に伴う急激なポテンシャル変化に追従出来ない軌道電子が殻外に飛び出すこと) のような直接的な電離過程と、Auger 遷移 (内殻 A に空孔が出来たときに外殻 B の電子がその殻に落ち X 線を放出する代わりに殻 C の電子を放出する遷移) や Coster-Kronig 遷移 (Auger 遷移で殻 A, B が同一であるが異なった副殻にあるときの遷移) のような間接的な電離過程が考えられる。W のような重元素の L 系列 X 線サテライトについては、LLX ($X=M, N, \dots$) Coster-Kronig 遷移によって生じた LX 二重空孔状態によるものが支配的と考えられる。この仮定に基づいて、W の主線とサテライトの理論的強度比を求め、測定スペクトルを今回開発した Voigt 関数による多重項スペクトル fitting モデルにより解析し、主線が関与する自然幅、エネルギー値、強度比を精確に求め、Coster-Kronig 遷移による多重空孔状態におけるサテライトの生成を物理的に解明した。また、こうして得られた自然幅を過去の文献値や理論的に導出した値と比較した結果、M 殻電子の関係する遷移では理論値と実験値がよく一致しているが、N 殻が関与する L 線の自然幅では大きく異なっていることを明らかにした。これは M 殻の準位幅については相対論的な計算が

行われているが、N 殻に対しては非相対論による計算値を用いたことによるものであると結論し、相対論的な理論計算を行うことの必要性を指摘している。以上の結果、従来の自然幅の実験値に比べて非常に信頼性の高い値を得ることができた。

また励起電子線のエネルギーを変化させて LX 線の相対強度比を測定することにより、電子衝撃による L 副殻電離断面積の相対比を入射エネルギーの関数として測定する方法を考案し、相対断面積の測定を行っている。

さらに、 $L\beta_2$ 線スペクトルで主線の高エネルギー側にサテライト線を観測した。これは L_3 殻以外に M 殻電子が電離された状態によるものと考えられた。しかし最も可能性の高い原因である $L_1L_3M_5$ Coster-Kronig 遷移は理論計算によると $50 < Z < 74$ の元素でエネルギー的に禁止されている。申請者はこのサテライトの原因を調べるために、入射電子のエネルギーを変えてサテライト線と $L\beta_2$ 線との相対強度比を測定した。もしこの比がステップ関数的に変化していれば Coster-Kronig 遷移によるものと考えられたが、測定結果からはそのような構造の存在は断定できなかった。またもう一つの原因と考えられる shake-off 過程について、その確率を理論計算によって求め、この過程が無視できることを示している。このサテライトを発生させる多重空孔状態の生成機構を物理的に解明するためには、原子番号 $Z = 74$ の前後および $70 < Z < 83$ の元素について第三世代放射光源 SPring-8 で選択励起光を用いた実験を行う必要があることを指摘している。

論文審査の結果の要旨

内殻電子の遷移や原子分子間の配位状態を研究する上で、X 線発光スペクトルを測定することは非常に有効な手段である。この X 線スペクトルを得るため様々な形式の X 線分光装置が開発されてきた。一般に精密なスペクトル測定には分解能の良い波長分散型の分光装置が用いられる。申請論文では、超強力回転型対陰極 X 線発生装置と 100 mm 間隔のスリットとを併用し、ターゲットによる吸収の影響を考慮し、かつ、走査方向は光源の広がり方向が含まれるようにした分光器を有する新しいタイプの高分解能一結晶 X 線分光装置を製作している。この波長分散型の X 線分光装置の検出器には X 線計測中に Si 単結晶から出てくる光電子除去のため磁石を検出器の前面に取り付ける等の測定精度を上げる工夫が見られる。

理論的には、特性 X 線スペクトルの振動数分布は Lorentzian によって表される。これは軌道電子のエネルギー準位や特性 X 線のエネルギーは準位の寿命に対応して Heisenberg の不確定性原理によって決まる幅を持つためである。この自然幅は元素ごと準位ごとに固有の値を持っている。実験的には特性 X 線の自然幅については X 線スペクトルの半値幅、準位幅については光電子スペクトルの半値幅を測定することにより求められる。実際に観測されるスペクトルはこの Lorentzian と装置関数との convolution となるので、装置の広がりや測定精度の障害となる。この広がりや、原理的には装置の改良による分解能の向上や、データの補正方法の改良によって取り去られ本来のスペクトルに近いものが得られる。

本申請論文では、各 X 線輻射スペクトルで各々のピークを Lorentzian, Lorentzian と Gaussian の convolution である Voigt 関数、そしてサテライトを考慮に入れた Voigt 関数によって解析した各場合に対して実験値を基にして、窓関数の理論的考察を行っている。特性 X 線の自然幅に関する実験的研究に関しては K 線については多くの研究例があるが、重元素の L 線に関してはあまり報告例がなく今なお、非常に興味のある問題である。これまで特性 X 線の自然幅に関して分光装置やスペクトルの補正の改良が試みられているか、信頼できる実験データは少なく、定量的な評価はまだ十分に行われていない。そのため既存の理論計算と比較する精度での実験は非常に少なかった。本申請論文では、超強力回転型対陰極 X 線発生装置と 100 mm 間隔の分光用スリットを併用した高分解能一結晶分光装置を用いて得られたデータを Voigt 関数によって解析することにより、既存の理論と比較する精度を有する実験データの観測に成功している。

W (タングステン) L 系列 X 線輻射スペクトルの自然幅の測定では、主線の高エネルギー側に非対称な肩をもつスペクトルが観測された。これらを多重空孔状態によるサテライトと考え解釈を試みている。多重空孔状態が生成される原因としては、shake-off (内殻電子の電離に伴う急激なポテンシャル変化に追従出来ない軌道電子が殻外に飛び出すこと) のような直接的な電離過程と、Auger 遷移 (内殻 A に空孔が出来たときに外殻 B の電子がその殻に落ち X 線を放出する代わりに殻 C の電子を放出する遷移) や Coster-Kronig 遷移 (Auger 遷移で殻 A, B が同一の殻の異なった副殻であるときの遷移) のような間接的な電離過程が考えられる。W のような重元素の L 系列 X 線サテライトについては、LLX ($X = M, N, \dots$) Coster-Kronig 遷移によって生じた LX 二重空孔状態によるものが支配的と考えられる。この仮定に基づいて、W の主線とサテライトの相対エネルギー差と強度比を理論的に求め、これを用いて測定スペクトルを今回開発した Voigt 関数による多重項スペクトル fitting モデルにより解析して、主線の自然幅、エネルギー値、強度比を精度よく求めるのに成功した。こうして得

られた自然幅を過去の文献値や理論的に導出した値と比較した結果、M 殻電子による LX 線の自然幅の実験値は理論計算とよく一致しているが、N 殻が関与する L 線の場合には大きく異なることを明らかにした。これは N 殻の準位の幅が非相対論による計算値しか存在していないため、相対論による理論計算を行う必要があることを指摘している。また励起電子線のエネルギーを変化させて LX 線スペクトルを測定し、X 線強度比の変化より電子衝撃による L 副殻電離断面積の相対比を求める方法を提案し、相対断面積のエネルギー依存性を観測している。

さらに、 $L\beta_2$ 線スペクトルで高エネルギー側にサテライト線が観測されているが、従来の理論計算では $50 < Z < 74$ の元素での $L_1L_3M_5$ Coster-Kronig 遷移による L_3M_5 二重空孔生成はエネルギー的に禁止されている。このサテライトの出現機構を物理的に解明するため、主線に対する相対強度の電子線励起での励起電圧依存性をしらべているが、Coster-Kronig 遷移によるものであるとの決定的な証拠を得るには至っていない。もう一つの原因である shake-off 過程については、その確率を理論的に計算して無視できるとの結論を得ている。このサテライトの原因である多重空孔状態の生成機構を物理的に解明するためには、原子番号 $Z = 74$ の前後、さらには、 $70 < Z < 83$ の元素について第三世代放射光源 SPring-8 で選択励起光を用いた実験を行う必要があることを提案している。

本研究は高分解能一結晶 X 線分光装置で測定した LX 線スペクトルをサテライト線の存在を考慮に入れたデータ解析法を適用することにより従来の実験値に比べて非常に信頼性の高い自然幅の値が得られることを示し、またサテライト線の生成機構についても新しい知見を得ており、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。