

## トピックス

## 希ガス原子の多重イオン化を用いた軟 X 線絶対測定

鈴木 功, 齋藤 則生

電子技術総合研究所量子放射部\*

Absolute Measurements of Soft X-rays  
using Multiple Ionization of Rare Gas Atoms

Isao H. SUZUKI and Norio SAITO

Quantum Radiation Division, Electrotechnical Laboratory

Several techniques have been investigated as methods for the measurement of absolute intensities of soft X-rays in the region of 50 eV to 1,100 eV. Among them the technique using a double ion chamber has been adopted here, which needs an index constant on multiple photoionization of rare gas atoms. This constant, called  $\gamma$ -value, indicates the average number of electrons emitted from an atom having absorbed a photon. The  $\gamma$ -values were measured using monochromatized synchrotron radiation and a time-of-flight mass spectrometer. The detail of multiple photoionization phenomena of rare gas atoms has been partly pursued using partial ion yield spectra and coincidence spectra consisting of an energy-selected electron and a charge-specified ion. The double ion chamber has been made, which is cylindrical and 1.3 m long. The monochromatized synchrotron radiation enters the chamber at a position off the central axis and the produced ions are collected with electrodes on the opposite side to the photon entrance. The performance tests showed ion saturation curves with high quality. In order to suppress higher order radiation, the electron storage ring was operated at energies lower than the normal operation. The obtained photon intensity ranges from  $10^7$  photons  $s^{-1}$  to  $10^{10}$  photons  $s^{-1}$  at the aperture of  $1\text{ mm}\phi$  with the ring current of 100 mA. The estimated uncertainty is about 4.5%–10% depending on the intensity and the spectral purity.

## 1. はじめに

通産省電子技術総合研究所の任務の一つが電氣量をはじめとするいくつかの物理量の計量標準の研究, 確立, 維持であり, そのうちの放射線標準は, 量子放射部が担当している。既に確立した標準は国際度量衡委員会の放射線諮問委員会を通した国際比較により, 世界的斉一性を確認しており, 国内的には計量法トレーサビリティ制度の指定校正機関や運営審査会分科会委員を勤めることなどにより, 放射線関連量の計測器目盛の信頼性の向上を図っている<sup>1)</sup>。未確立である線種あるいはエネルギー領域については, 必要な基盤技術の開発およびそれらによる標準設定の研究に取り組んでいる。X 線と紫外線間の光子エネルギー領域は, 軟 X 線, 真空紫外線等と呼ばれ, 近年の各種光源の発達により先端的研究開発が盛んになってきている分野である<sup>2,3)</sup>。

軟 X 線を正しく計測することは, プラズマ診断や宇宙科学の分野では古くから重要な点であり, 不純物多価イオンのスペクトル, 天体からの放射スペクトル等の観測からその濃度, 温度, 構造などに関する情報を引き出している<sup>4)</sup>。シンクロトロン放射 (放射光) は, 広い波長範囲に亘り安定で, 高い輝度の連続光源であり, 多くの学問分野, 医療, 産業への応用を目指した研究, 開発が活発化しているが, 従来はあまり多くなかった軟 X 線分光器あるいは, それらに関連する光学素子が, 物性物理, 微細加工技術, 微量分析技術, 材料評価技術等の分野でしばしば用いられるようになってきている<sup>2,3)</sup>。軟 X 線の照射効果の正確な見積もりには, 軟 X 線強度の絶対値測定法や光学素子特性の信頼できる評価法が不可欠であり, 環境問題でのエアロゾル分析, 高性能電子材料の不純物分析でも, 蛍光軟 X 線の測定は有力な手法である。種々の分野で軟 X

\* 電子技術総合研究所量子放射部 〒305-8568 つくば市梅園 1-1-4  
TEL 0298-54-5663 FAX 0298-54-5673 e-mail isuzuki@etl.go.jp  
注:平成12年1月24日より, 電話, FAX の市内局番が 54 から 61 に変更になります。

線の絶対強度測定が必要になっているが<sup>5,6)</sup>、多様な事例に適用しうる正確な手法が確立され、その手法をいつも実現できる装置が整備されているわけではない。米国 NIST ではいち早く放射光 (SURF II) を紫外線、真空紫外線の標準光源として、およびその波長領域における安定した光源として光学素子、光学機器の校正に用いることをスタートさせ、多くの検出器の校正を行い、また上層大気中での紫外、真空紫外線スペクトル測定用の分光装置の感度校正を行った<sup>7,8)</sup>。ドイツの PTB では、軟 X 線までの短波長領域で使用しうる放射光 (BESSY) を用いて、真空紫外線用レーザープラズマ光源の輝度の値付け、半導体フォトダイオードの真空紫外線、軟 X 線領域での検出感度の校正を行った<sup>9-13)</sup>。また電子蓄積リングを低電流モードで運転することにより、X 線用 Si(Li) 検出器の軟 X 線領域における絶対効率を決定した。分子科学研究所 (UV-SOR) には光学素子評価用ビームラインが建設され、3 nm~700 nm の領域に亘って、多層膜の反射効率や実用検出器の効率の測定が行われている<sup>14)</sup>。ここでは、数100 eV 領域 (数 nm 領域) の軟 X 線強度の絶対測定法とそれを実現するための希ガス原子の多重イオン化過程の研究につき、電総研での研究を中心に概説する。

## 2. 軟 X 線絶対測定法の比較

X 線、 $\gamma$  線領域の光子束の基準としては、古くから照射線量という単位が用いられている。標準空気に照射した際、種々の過程によって単位質量当たりが生じるイオンの数 (C/kg) が基本的な線量の基準である<sup>1,15,16)</sup>。しかし X 線もエネルギーが低くなり、1 keV 程度、あるいはそれ以下の軟 X 線になると、空気の吸収能が非常に大きくなって、空気中で軟 X 線ビームを走らせることができず、空気層の初めの部分で大部分吸収されてしまう。このような光子束に対しては、照射線量を適用してその値を正確に得ることは不可能である。このような軟 X 線の特徴を考慮して、光子フルエンスが光子束強度の基準として用いられてきた。翻って考えれば、空気との相互作用係数が掛かった照射線量よりもそのもの自身の量であるフルエンス (単位面積を通過する光子の数) を用いる方が自然であるとも言える。

軟 X 線強度の絶対値 (フルエンスあるいはフルエンス率) を測定する方法としては、以下に述べるようないくつかの方法が考えられるが、ある一種の方法で実現した値が、真の値と云いえるかどうか、それを標準として用い得るかどうかを確かめるには、異なる方法によって独立に得られた値を比較するのが最良である。この比較を 1 機関で行う場合もあるが、多くは複数の機関の間での国際比較を通して、最も信頼できる値を見出して行く。

### 2.1 比例計数管法

比例計数管は、Fig. 1 のような構造をしており、気体

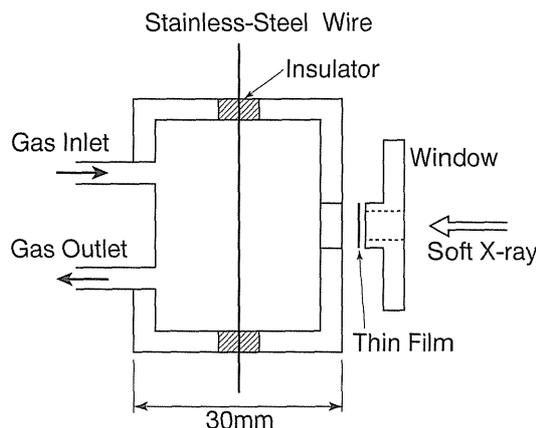


Figure 1. Schematic diagram of a proportional counter for soft X-rays.

(メタンと希ガスの混合物等) を数10 Torr から数100 Torr の圧力範囲で内部に導入する<sup>17)</sup>。軟 X 線は比例計数管の前面に設置してある薄膜窓から入射する。内部に導入してある気体が軟 X 線を吸収し、電子を放出する。中央の細い芯線には正の高電圧 (1 kV 程度) が掛けられており、放出された電子は芯線に向かって加速され、周りの気体に衝突して、更に電子を生成させる。衝突を多数回繰り返すことにより電子雪崩が起き、生じた電子は全て芯線に集められる。芯線に集められた電子は、電気パルスとして検出される。つまり、入射光子一個に対してパルスが一個生じるので、窓の透過率を補正すれば、パルスを数えることによって入射軟 X 線の強度を知ることができる。この測定方法は、電子雪崩によるパルスを数えるので、雪崩の消滅速度によって決まる不感時間が測定系の限界を支配しており、 $10^4$  (光子数/s) 程度以下の強度の低い軟 X 線にだけ適用できる。

### 2.2 気体希薄充填型イオンチェンバー法

Somson が、真空紫外線の絶対強度を測定するために考案した型の二重電極型イオンチェンバーに、希ガスを非常に薄く (0.01 Torr 程度以下) 導入する (Fig. 2)<sup>18,19)</sup>。薄膜窓から入射した軟 X 線は希ガスによって一部分吸収されて、イオンが生じる。生じたイオンは、弱い電界によってイオン収集電極に集められて、高感度電流計によって測定される。イオン電極は長さの等しい二つの電極に分かれており、それぞれの電流を測定することにより、光吸収断面積を用いずに、入射軟 X 線の強度 (光子数/s) を次式から計算できる。

$$I = (i_1)^2 / \gamma e (i_1 - i_2) \quad (1)$$

ここで  $i_1, i_2$  はイオン電極 1 及び 2 からの電流、 $e$  は素電荷、 $\gamma$  は  $\gamma$  値 (1 光子吸収において生ずるイオンの平均荷

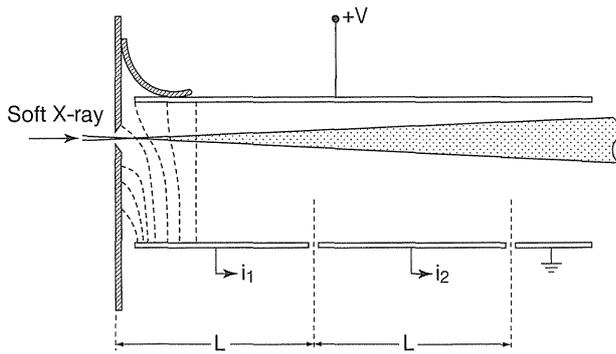


Figure 2. Schematic diagram of a double ion chamber.

電数)である。真空紫外線領域では、2価イオンは通常生じないので $\gamma=1$ である。軟X線領域では多価イオンが生じるので、1より大きい。我々の研究のスタートの時点では、一部のエネルギー領域を除いて $\gamma$ 値の実測データがなかったため、その値を測定する必要があった(3.希ガスの平均荷電数を参照)。

### 2.3 気体近常圧充填型イオンチェンバー法

この方法では、イオンチェンバーは一つのイオン収集電極での電流を測定すればよい。気体を数 Torr 程度導入して入射軟X線をすべて吸収させ、生じたイオンをすべて集めて測定する。軟X線のエネルギーをEとすると、入射光強度Iは、次式で表される。

$$I = iW/eE \quad (2)$$

ここで、iは測定されるイオン電流、WはW値である<sup>20)</sup>。W値とは、軟X線を吸収した原子が電子を放出し、その電子が周囲の別の原子に衝突し、その原子から電子を放出させる(2次電離)などして、多数のイオン・電子対を生成するとき、一つのイオン・電子対を生成するのに必要な平均のエネルギーである。WはX線・ $\gamma$ 線等の高エネルギー放射線に対しては、信頼できるデータが蓄積されており、また低エネルギー電子についての測定は報告されているが、軟X線に対してはほとんどない<sup>21-23)</sup>。

### 2.4 電子・イオン同時計数法

近年のパルス計数法の進展により、イオンや電子のような荷電粒子を一個一個数えることは容易に行えるようになっている。そこで軟X線を吸収した気体から放出される光電子あるいはAuger電子、および生成されるイオンをパルス計数することが考えられる<sup>17)</sup>。電子とイオンは必ず同一のイベントから生じてくるので、それらを同時計数することも可能なはずである。希ガスビームに軟X線を照射し、生ずる電子を単位時間に計数する数をNe、イオンを計数する数をNi、電子とイオンを同時に計数する数

をNcとすると、これらは以下の式で書き表せる。

$$\begin{aligned} N_e &= \eta_e \cdot n \cdot \sigma \cdot L \cdot I \\ N_i &= \eta_i \cdot n \cdot \sigma \cdot L \cdot I \\ N_c &= \eta_e \cdot \eta_i \cdot n \cdot \sigma \cdot L \cdot I \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 $\eta_e, \eta_i$ は電子あるいはイオンの検出効率、nは希ガス原子の数密度、 $\sigma$ は軟X線吸収断面積、Lは相互作用領域の長さ、Iは軟X線フルエンス率である。これらの式より

$$I = N_e \cdot N_i / n \cdot \sigma \cdot L \cdot N_c \quad (4)$$

が導かれ、電子、イオンの検出効率に依存せずに、軟X線強度の絶対値が求まる。実際の測定においては、 $\sigma$ は全光吸収断面積を用いるよりも、部分断面積を用い、電子のエネルギー、イオン種を限定して計測する方が、偶然コインシデンスを減少させたり、バックグラウンドの正確な評価がしやすいので、精度が上がると期待される。しかし、信頼できる部分断面積のデータはあまり報告されていない<sup>24)</sup>。また、nおよびLを正確に求めることは、技術的には相当困難であり、主要な誤差要因になると考えられる。

### 2.5 半導体フォトダイオード法

可視光領域において有用である自己校正型フォトダイオードを軟X線領域においても適用しようとするものである。軟X線の一部はフォトダイオードの表面で反射され、一部は表面不感層で吸収されるが、多くは有感領域で吸収され、内部光電流となって信号出力として検出される<sup>9,10)</sup>。可視光領域では、半導体のバンドギャップより高いエネルギーの光子は、一個の光子が一個の電子・正孔対を作って出力に寄与するが、軟X線領域では、数10個以上の電子・正孔対を生成させうる(量子効率が数10以上)。またこの領域では、表面反射は無視できるので、不感層での吸収分を評価でき、量子効率が解かれれば、絶対強度を計測しうる検出器になる。分光応答度S(単位:A/W)は、以下のように書き表せる。

$$S = e \cdot \exp(-\mu_d t_d) \{1 - \exp(-\mu_s t_s)\} / w \quad (5)$$

wは電子・正孔を一对作るのに必要な平均エネルギー、 $\mu_d, \mu_s$ は不感層、有感層の構成物質の軟X線吸収係数、 $t_d, t_s$ はそれぞれの厚さを表す。厚さは、入射角度を変化させた時の応答度の変動を調べることで評価できる。また、wは放射光の標準性を使い<sup>5,7,9,25)</sup>、軟X線エネルギーには依存しないと仮定することにより、直接に放射光でフォトダイオードを照射した時の光電流より評価可能である。

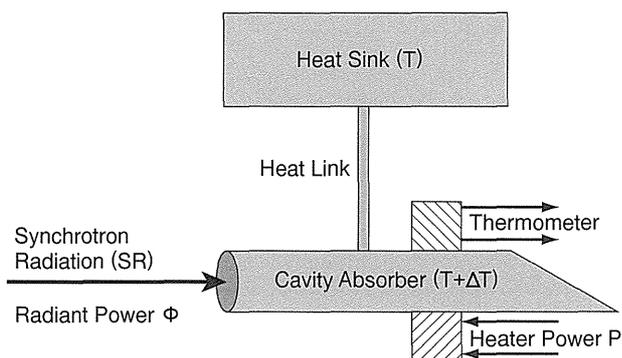


Figure 3. Illustration of a cryogenic electrical substitution radiometer.

## 2.6 クライオカロリメータ法

光子ビームのエネルギーを薄片素子に全吸収させ、その温度上昇よりビームのパワー ( $W$ :ワット) を求める計測手法が、可視光レーザーの強度評価によく用いられている。素子を低温にしておけば、周囲からの背景電磁波によって生じる雑音を低減化できるので、それほど強力ではないビームに対しても適用可能である。ドイツ PTB では、そのようなクライオカロリメータに改良を加えて軟 X 線の絶対強度 ( $W$ ) の測定器を開発した<sup>11-13</sup>)。Fig. 3 にその原理の要点を示す。放射光軟 X 線は左側より入射して、キャビティ吸収体に吸収される。そこで100%吸収されるように材料が選ばれ、また表面処理が施されている。キャビティは、約4.2 K の一定温度の熱吸収体 (ヒートシンク) に接続されている。初めにビームシャッターで放射光を遮断し、キャビティ温度をヒーターで少量加熱することにより若干増加させる。その後、放射光を照射し、ヒーターパワーを減少させて、キャビティ温度を元の温度に保つ。ヒーターパワーの減少分が、放射光パワーに等しくなるので、それによって放射光強度を見積もるという原理である。背景の熱的放射を低減させ、温度センサー、ヒーターリードの超伝導性を得るため、ビームラインの接続部、検出器回りの全てが、He クライオスタットによって極低温に保持される構造になっている。最良の条件下では、パワー測定の不確かさは、0.2%にまで小さく抑えられている。この一次標準絶対測定器によって、PTB では、半導体フォトダイオード、光子計数検出器、フォトカソードなどの実用検出器の校正を行っている。

## 3. 希ガスの平均荷電数

軟 X 線の絶対強度の測定法としては種々考えられるが、広い強度範囲で適用でき、予想される誤差が小さく、且つ、絶対測定に必要な定数がそろっている、或いは困難なく測定できるものがよい訳である。また装置構成が簡単で、運転が容易であることも重要な条件である。希薄気体を用いるイオンチェンバー法は、真空紫外線領域での使用

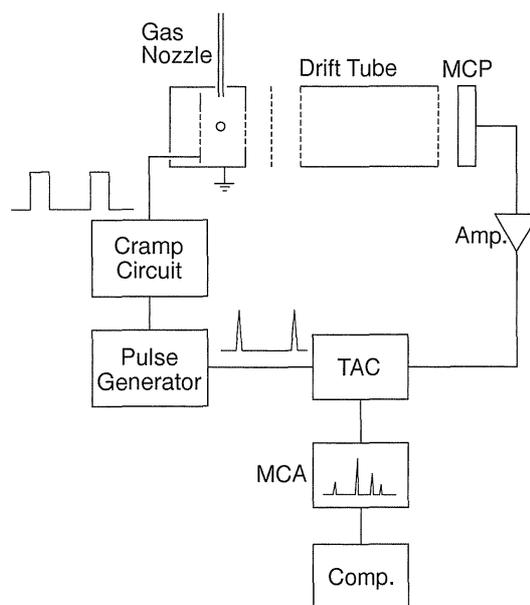


Figure 4. Schematic diagram of the measurement system for yields of multi-charged ions. See text about MCP, TAC, MCA, and Comp.

実績も多くあり、必要な定数の  $\gamma$  値 (平均荷電数) も困難なく測定できそうなので、この本法をまず試みることにした。 $\gamma$  値を求めるためには、軟 X 線を吸収した希ガス原子の種々の荷電状態イオンの生成分岐比を求めればよいので、飛行時間型質量分析計を用いて分岐比を測定した<sup>16,17,26</sup>)。

## 3.1 計測法

希ガスの多重イオン化における生成イオンの荷電数を測定するための装置の概要を Fig. 4 に示す<sup>26-29</sup>)。飛行時間型質量分析計の衝突領域に、ノズルから希ガスを噴出させる。電総研 TERAS からの放射光をグラスホッパー型分光器により分光して単色軟 X 線を得、それをガスノズル、分析計と直角に衝突領域に入射させる。パルス発生器からの幅数マイクロ秒、周期数十マイクロ秒の短形状の電圧 100 V を波形整形回路を通して、衝突領域に印加する。この電界によって、軟 X 線を吸収して生じたイオンを、右側のドリフトチューブに押しやる。長さ140 mm のドリフトチューブは無電界にしておき、イオンを数マイクロ秒飛行させる。ドリフトチューブを通り抜けたイオンは、マイクロチャンネルプレート (MCP) で検出される。衝突領域への印加電圧と同期したパルス、時間差波高変換器 (TAC) のスタート信号にし、イオン検出器からの信号を増幅して TAC のストップ信号にする。TAC の出力をマルチチャンネル分析器 (MCA) でデジタル化し、一定時間のデータ取得後に、それをコンピュータ (Comp.) に送る。その一例、飛行時間スペクトルを Fig. 5 に示す。このスペクトルは、Xe を試料とし、145 eV の単色軟 X 線

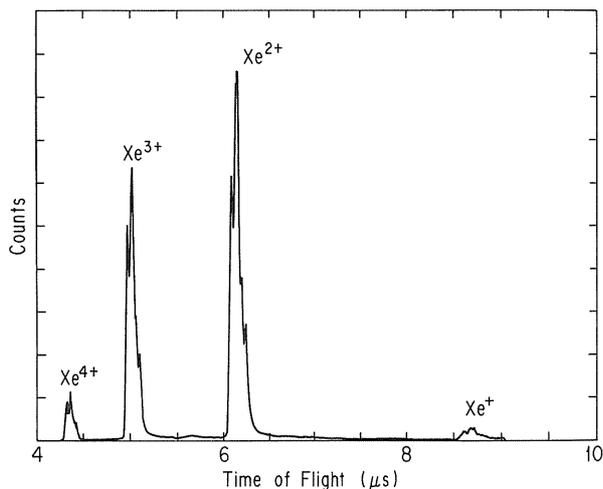


Figure 5. An example of time-of-flight spectra of Xe ions. Photon energy is 145 eV.

を照射した時のもので、一価から四価のイオンが生じているのが解る。それぞれのピークにある構造は、Xeの安定同位体によって生じている。

### 3.2 平均荷電数の軟X線エネルギー依存性

各エネルギーの軟X線について、飛行時間スペクトルより、多価イオンの生成比を求め、 $\gamma$ 値を得た<sup>17)</sup>。これらの測定は、Ne, Ar, Xeについて50 eV–1.2 keVで行った。Fig. 6にXeの $\gamma$ 値の軟X線エネルギーへの依存性を示す。予期していたように、内殻のイオン化エネルギーで $\gamma$ 値のジャンプが起こり、4d領域では2.0を越え、3d領域では4.5近傍の値になっている。○印で示したHollandらのデータから求めた $\gamma$ 値は150 eV以下では本研究の値とよく一致するが、200 eV以上で本研究のものより小さくなってしま<sup>30)</sup>。このような傾向は、他の希ガス原子についても同様にみられ、後述するように、入射軟X線の純度に難点があったのであろうと思われる。

飛行時間スペクトルの測定では、パルス引出型計測を行ったが、イオンの捕集効率は、衝突領域における浮遊電界のために、イオンの荷電状態に依存する恐れがある。また引き出しパルス幅も捕集効率の違いに影響する恐れがあり、残留ガスとの衝突による損失も効いてくる可能性がある。それらが無視できる程度に小さい実験条件を見出すため、イオン分岐比のガス圧依存性、パルス幅依存性、パルス周期依存性を調べて、最適条件を見出した<sup>26)</sup>。Xeの場合、ガス圧（主チャンバーでのもの）で、 $1.5 \times 10^{-5}$  Torr以下、パルス周期は、80マイクロ秒、パルス幅は10マイクロ秒であり、この際には、数10 eV領域での他グループの分岐比データとよい一致が得られた。広帯域連続光から分光器によって単色光を得る放射光ビームラインでは、必要な一次光より長波長の散乱光と短波長の二次光が必ず混入してくる。散乱光については、薄膜金属フィルタ

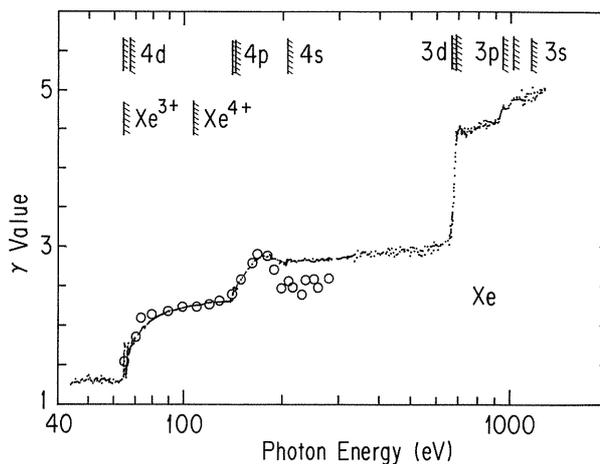


Figure 6.  $\gamma$ -value (average charge state) of Xe over the photon energy range from 44 eV to 1200 eV. Bars with hatching indicate threshold energies for the inner-shell ionization or the multi-charged ion production.

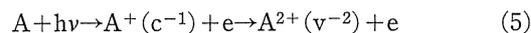
—(Al, In等)によって除去するとともに、高次光成分は、電子蓄積リングの低電子エネルギー運転を行って低減化を図った。750 MeVのTERASの臨界光子エネルギーは200 eV近傍であり、それを300–500 MeVにすることにより、数100 eV領域の高次光を数桁減少させることが出来た。これらの実験的検討を経て、数100 eV領域において精度の良い希ガス原子の $\gamma$ 値が求めたが、絶対測定において利用するのに都合良い原子を選ぶには、以下の事項を考慮しておくことが重要である<sup>17)</sup>。

(1) $\gamma$ 値のエネルギー依存性が小さい。(2)光吸収断面積のエネルギー依存性が小さい。(3)光吸収断面積が大きい。(4) $\gamma$ 値データの精度がよい。

以上のことを考えると、Xeは高価ではあるが、断面積が大きいので内殻イオン化しきい値近傍を除いて広いエネルギー範囲で用いる原子であり、Arは、L殻しきい値近傍のエネルギーを除いて広く用いるものである。

### 4. 希ガス原子の多重イオン化

軟X線を吸収した原子は、内殻電子軌道がイオン化されており、多くの場合、蛍光放出による脱励起の確率は小さいので、Auger電子を放出して多価イオンになっていく。



ここで、 $c$ は内殻電子軌道、 $v$ は価電子軌道を表す。初期段階でイオン化される内殻軌道が深い場合には、Auger遷移後の状態は、浅い内殻軌道に空孔をもつ場合が多くなるので、さらに第二段目のAuger遷移が起こり、3価あるいはそれ以上の多価イオンへと変わって行く。これらが軟X線吸収による原子の多価イオン化の主要経路ではあ

るが、Fig. 6を注意してみると、これら以外の過程による多価イオン化の経路がありそうである。例えば、Xe4dしきい値以下のエネルギーでは、 $\gamma$ 値が1.0以上になっており、価電子の単一イオン化だけでなく、二重イオン化が起こっていると考えられ、4dしきい値の上では $\gamma$ 値は2.0より大きく、二重 Auger 遷移が発生していると考えられる。

#### 4.1 部分イオン化断面積

前節の希ガス原子のイオン生成の分岐比の測定において、各荷電状態イオンの収量スペクトルを光子エネルギー、50 eV-1.2 keVの領域で求めた。これらスペクトルの間の比を計算し、プロットした曲線の飽和領域より、価電子のみのイオン化における多重イオン化の割合を評価した<sup>29)</sup>。これは、暗に飽和領域においては、一価イオン化、多重イオン化の光子エネルギーへの依存性は同じであり、出口チャンネル間の干渉効果は生じていないことを仮定している。また、内殻イオン化しきい値以上において、価電子イオン化の断面積は、一定であると仮定して、部分収量スペクトルからその寄与分は差し引き、その後それらスペクトル間の比をとって飽和する領域での値より、二重 Auger 遷移の割合を求めた。

これらの割合を Ne, Ar, Kr, Xe につき、他のグループの値とともに Table 1 に示す<sup>29-41)</sup>。価電子の二重イオン化について、Ne, Ar の我々のデータは、ほぼ同様の手法で測定した他グループのデータとほぼ一致し、多体摂動法での計算結果とも一致した<sup>36,37)</sup>。Kr 価電子二重イオン化の割合は、El-Sherbini らの光子衝撃シミュレーション実験の結果と一致するが<sup>32)</sup>、Holland らの放射光実験でのものとは相当ずれている<sup>30)</sup>。Xe の価電子二重イオン化は、Adam の放射光実験の値と一致し、El-Sherbini らのものとは異なった。Carlson らの瞬間近似による計算結果は、いづれの原子に対しても数%以下の小さい値しか導出できず、二個の電子が遷移する過程の記述の困難性を表してい

る<sup>38)</sup>。希ガス原子の主量子数への依存性をみると、量子数が大きくなるに従って、二重イオン化の確率は増加している。量子数の増大によって、価電子軌道は浅くなるので、光イオン化の衝撃が他の電子に及んで、それらも一緒に振り落とされて二重イオン化が発生しやすくなってくる考えられる。割合の増加の程度では、Kr の値が Ar のものと同じ値であるのが若干奇異な感じを受けるが、大きさの順序が逆転している訳ではない。ここで注意しておきたいのは、測定している粒子がイオンなので、二重イオン化が一ステップなのか、二ステップなのかは明確ではないことである。多くが一ステップであろうが、最初に内側の価電子のイオン化と外側価電子の shake-up が起こり、その後さらに電子放出が生じて二価イオンの生成になる場合も考えられる。

二重 Auger 遷移の方に眼を転じると、我々のデータは他の実験グループの値が報告されている Kr, Xe では、ほぼ一致している。Ne, Ar では Xe より小さい値になっており、原子番号の順に逆転はない。Ne の多体摂動法による計算結果は、実験データに相当近い値を与えている<sup>41)</sup>。しかし、Kr の二重 Auger 遷移の割合は他の希ガス原子のものより相当大きいことがみてとれる。価電子二重イオン化と同様に、この Auger 遷移でも放出される電子は価電子2個なので、Kr だけ他の希ガス原子から異常にずれてしまっている感を与えている。価電子二重イオン化では初期状態が中性、終状態が二価イオン状態であるのに対し、二重 Auger 過程では、初期状態は一価イオン状態、終状態は三価イオン状態である。二価、三価のイオン化しきい値は、希ガス原子間で特に片寄った傾向は見出されていないので、二価、三価状態の Kr イオンの波動関数に、他の希ガス原子に現れない振る舞いが生じているのであろうか？あるいは、Xe の二重 Auger 確率が小さすぎて Kr のものが見かけ上大きく見えるのであろうか？現在のところ、理論サイドからのアプローチが少なく定量的な議論をしづらい状況であるので、電子・電子相互作用を考慮

Table 1. Probability ratios of double valence ionization to the single valence ionization and of double Auger transition to the normal Auger transition in rare gas atoms

Atom	Transition	ETL group	Exp.					Calc.				
			a	b	c	d	e	f	g	h	i	j
Ne	valence	0.16	0.09	0.15	—	—	—	0.15	0.13	0.044	—	—
	Auger	0.06	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.04
Ar	valence	0.21	0.18	0.19	—	—	—	0.19	—	0.035	—	—
	Auger	0.11	—	—	—	—	—	—	—	—	0.008	—
Kr	valence	0.22	0.55	0.19	—	0.59	—	—	—	0.033	—	—
	Auger	0.38	—	0.36	—	0.34	0.33	—	—	—	0.012	—
Xe	valence	0.44	—	0.60	0.46	—	—	—	—	0.031	—	—
	Auger	0.25	—	0.22	—	—	0.21	—	—	—	0.003	—

a: Holland et al. [Ref. 30] b: van der Wiel et al. [Refs. 31, 32] c: Adam [Ref. 33] d: Murakami et al. [Ref. 34]  
 e: Becker et al. [Ref. 35] f: Carter et al. [Ref. 36] g: Chang et al. [Ref. 37] h: Carlson et al. [Ref. 38]  
 i: Kochur et al. [Refs. 39, 40] j: Amusia et al. [Ref. 41].

した理論的研究の発展が望まれる。また実験データの処理については、価電子イオン化確率の一定性を仮定したので、より詳細な実験法によって、二重 Auger 確率を求める必要がある。

#### 4.2 コインシデンス測定

原子の多価イオン化については、生成されたイオンを計測することより、知見を得ることが多くあり、Auger 電子スペクトルと関係付けて生成機構の推定がなされてきた。二重 Auger 過程では、二個の電子が放出され、電子・電子間の相互作用が重要な役割を演ずるが、理論的な取り組みの困難さと、二個の電子の計測の難しさのため研究はあまり進展していないのが現状である。しかし、前節で求めた希ガス原子の二重 Auger 遷移の比が、実験データ処理上の曖昧さを含んでいるので、まずこの点を解決することが必要である。そのためには、内殻イオン化を起こした原子イオンの状態を特定でき、それから生ずる二価、三価イオンを計測出来ればよいと考えられる。このために球面ミラー型電子エネルギー分析器と飛行時間型質量分析計を組み合わせたコインシデンス装置を製作した (Fig. 7 参照)<sup>42-44</sup>。

ガスノズルからの希ガス原子は、紙面に垂直方向からの軟 X 線ビームによって光イオン化され、放出電子は相互作用領域が無電界なのであらゆる方向へと広がっていく。左側の  $2\pi$  近い角度方向の電子は、グリッド G4 で減速され、注目するエネルギー以上の電子だけが通過できる。最外半球 G1 に注目エネルギー分だけの電位を印加して、電子をグリッド G<sub>MCP</sub> へと収束させる。この時、より高いエネルギーの電子は、G1 に衝突する或いは、G<sub>MCP</sub> より外側の電極に到達する。G4 がハイパスフィルターとして作用し、G1 がローパスフィルターとして作用することにより、エネルギー分析器として働かせることができる。この

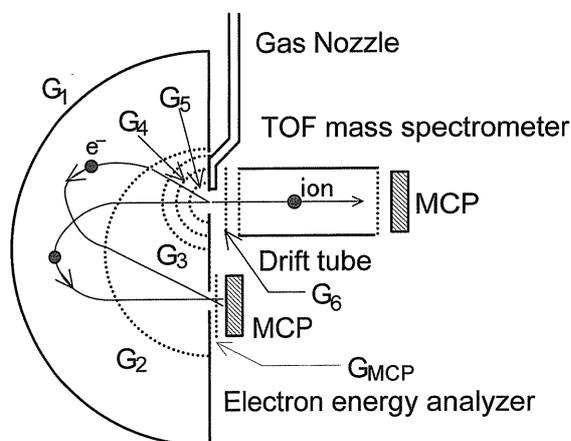


Figure 7. Coincidence apparatus using a spherical mirror electron analyzer and a time-of-flight mass spectrometer. G<sub>2</sub> to G<sub>6</sub> and G<sub>MCP</sub> denote electrodes of mesh.

分析器は固体表面からの光電子角度分布測定用に開発されたものを、気相実験用に改良を加えたものである。分解能は、Xe4d の光電子で 0.6 eV 程度まで向上させることが出来た<sup>44</sup>。所定のエネルギーの電子の検出後、相互作用領域にパルス電場を印加して生成イオンを飛行時間型質量分析計で測定する。コインシデンススペクトルの例を、Xe を試料とし、軟 X 線エネルギー 109.5 eV の場合に示す (Fig. 8)。図の (a) に Xe4d<sub>5/2</sub> 光電子と同期する Xe イオンの荷数分布が、(b) に 4d<sub>3/2</sub> 光電子と同期するもの、(c) に NOO Auger 電子と同期するものが示してある。(c) の Auger 電子との同期では、二価イオンだけが生成し、装置が設計通り動作していることを示している。つまり、Xe4d 光イオン化後に Auger 電子放出をすると、Xe イオンは二価状態になるが、そのエネルギー準位は、三価イオンの基底状態より下なので、三価イオンにはなり得ない。(a), (b) では Xe 二価イオン以外に Xe 三価イオンが相当の強度で生成している。これは、4d 空孔一価イオン状態より、二重 Auger 遷移により三価イオンになったものである。二段階のプロセスによって三価イオンになることも起こりうるが、三価イオン状態より高い準位の二価イオン状態への Auger 遷移は、Auger Shake-up 型 (一電子が空孔を埋め、他の一電子が放出され、もう一つの電子が励起される三電子遷移型) でないといけないので、確率は非常

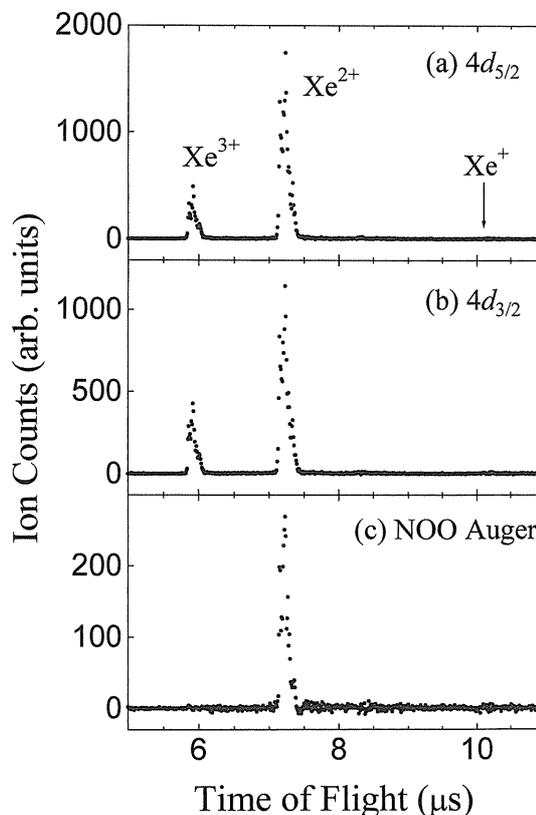


Figure 8. Coincidence spectra of Xe ions at a photon energy of 109.5 eV. (a) 4d<sub>5/2</sub> photoelectron is specified. (b) 4d<sub>3/2</sub> photoelectron is specified. (c) NOO Auger electrons are specified.

Table 2. Probability ratios of double Auger transitions to the normal Auger transitions in rare gas atoms

Atom	Initial hole state	Present work	Previous work					
			a	b	c	d	e	f
Xe	4d <sub>5/2</sub>	0.22	0.21					
	4d <sub>3/2</sub>	0.32	0.28					
	4d	0.26	0.25	0.21	0.22	0.003		
Kr	3d <sub>5/2</sub>	0.35						
	3d <sub>3/2</sub>	0.37						
	3d	0.36	0.38	0.33	0.36	0.34	0.012	
Ar	2p <sub>3/2</sub>	0.11						
	2p <sub>1/2</sub>	0.10						
	2p	0.11	0.11			0.008		

a: Kämmerling et al. [Ref. 45]

b: Saito and Suzuki. [Ref. 29]

c: Becker et al. [Ref. 35]

d: El-Sherbini and van der Wiel. [Ref. 32]

e: Murakami et al. [Ref. 34]

f: Kochur et al. [Refs. 39, 40]

に小さく無視できる程度である。一価イオンは蛍光放出によって生じうるが、この過程も予想通り非常に小さいことを Fig. 8 の(a), (b)は示している。イオンをパルス的に引き出して計測し、且つ相互作用領域が無電界なので、前のイベント(4d 光電子を生じた光イオン化より前の光イオン化)によって生じたイオンもコインシデンス計測の信号になる可能性もある。このような偶然コインシデンス信号は、イベント頻度を少なくして行けば減少させることができるので、光電子の計数率を約10 c.p.s., イオンの計数率を200 c.p.s.程度に落として、データ採取を行った。このような実験条件では、熱的運動エネルギーのXeのイオンも相互作用領域から離れられる時間があり、またXe<sup>3+</sup>とXe<sup>2+</sup>のコインシデンス信号の比も一定値になっていた<sup>43)</sup>。

Table 2 に Ar2p, Kr3d, Xe4d の内殻空孔状態からの二重 Auger 遷移の確率比を示す<sup>29,43,45)</sup>。今回のコインシデンス測定により、Auger 遷移の初期状態を正確に指定できたので、入射光に混入している散乱光、二次光からの雑音に妨害されることなく、またイオン収量スペクトルだけから推定したデータよりも、高品質の精密なデータが得られた。スピン軌道分裂によって生じた二つの初期状態を分けて値を求められたが、それらを平均したものは、以前の我々のイオン収量スペクトルだけからの推定値と一致し、以前の評価が正しかったことを確認できた。Kr3d 空孔状態からの方が、Xe4d より大きな二重 Auger 遷移確率である。またXeについては、Schmidtらのデータが報告されていたが、それらと実験誤差内で一致した<sup>45)</sup>。Kr, Arでは二つの初期状態からの二重 Auger 確率はほとんど等しい値であるが、Xeでは、4d<sub>3/2</sub> 空孔状態からの方が大分大きくなっている。この原因は、二重 Auger 遷移に使用で

きるエネルギーの大小にあると考えられる。Xe 三価イオンの基底状態(4s<sub>3/2</sub>)は、4d<sub>3/2</sub> 空孔状態より5.4 eV, 4d<sub>5/2</sub> 状態より3.4 eV というわずかだけ下に位置している。このため、4d 空孔一価イオン状態からエネルギー的に遷移できる三価イオン状態の数の違いが出てしまい、それによって4d<sub>5/2</sub> 状態からの遷移は4d<sub>3/2</sub> 状態より小さくなったと考えられる。また利用できるエネルギーの大小自身が直接的に二電子放出過程の確率に影響を与える。これは電子・原子衝突による原子のイオン化の断面積がしきいエネルギー近傍では近似的に余剰エネルギーに比例すること、原子の二重光イオン化においても近似的比例関係が成り立つことが報告されている。終状態で二個の電子が標のより離れていく衝突系においては、余剰エネルギーが生成系の状態密度に比例することが、近似的比例関係に効いてきている。二重 Auger 過程においても二個の電子が放出してくるので、類似の現象が起こりうる。それによると、三価イオンの基底状態だけが終状態だと仮定すると、二重 Auger 確率の比(4d<sub>5/2</sub>:4d<sub>3/2</sub>)は、0.61になり、実験値0.75よりも違いが大きくなってしまふ。ここでの考察は詳細な実験データが不足しているために、定性的なものでしかないが、今後のデータの蓄積によって、より定量的なものへと高めうると思われる。一方、Kr3d 空孔状態、Ar2p 空孔状態では、三価イオン状態とのエネルギー差は、約20 eV, 165 eV であり、二重項準位間の差に比べてずっと大きい。従って、Xe4d 空孔状態からの二重 Auger 確率の違いの場合と異なり、二重項準位からの二重 Auger 確率の違いは生じなかったと考えられる<sup>43)</sup>。

## 5. 多段型イオンチェンバー

### 5.1 チェンバーの動作特性

Samson 型のダブルイオンチェンバーを軟 X 線の絶対強度測定に用いていくために必要な平均荷電数  $\gamma$  値を一応計測出来たので、円筒型多段型イオンチェンバーを製作した<sup>46-48)</sup>。Fig. 9 に示すものは、円筒の軸はずし位置から軟 X 線を入射させ、生じたイオンは、おおよそ対称の位置に設置した棒状電極で捕集する。このような電極配置をとるのは、光イオン化領域にかかる電界をなるべく小さくし、放出電子が電界によって得る運動エネルギーを小さく抑え込むためである<sup>19,49)</sup>。電極は Fig. 9 の説明欄に示してあるように、6つに分割されていて、軟 X 線光路のそれぞれの領域で生じたイオンを検出できるようになっている。最上流と最下流のものは端効果で電場が歪むのを抑えるために付加した。第二、第三の電極或いは第四、第五の電極でのイオン量から軟 X 線強度(フルエンス率)を求めることができる((1)式参照)。ガス圧の測定には、隔膜型真空計を用い、その安定化には自動制御器を使っている。光子モニターは Ni メッシュに金蒸着したものを使用し、イオンチェンバー窓には、VYNS 薄膜を設置し、散乱光除去には、適宜金属薄膜フィルターを光路に入れて

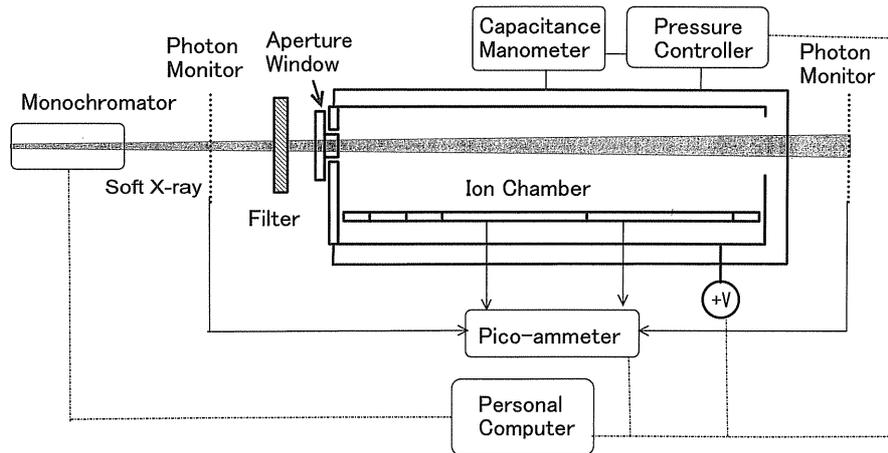


Figure 9. Illustration of the measurement system using the multi-electrode ion chamber. The diameter of the chamber is 65 mm $\phi$ , and lengths of electrodes are 50 mm, 100 mm, 100 mm, 500 mm, 500 mm, 50 mm from the upstream to the downstream.

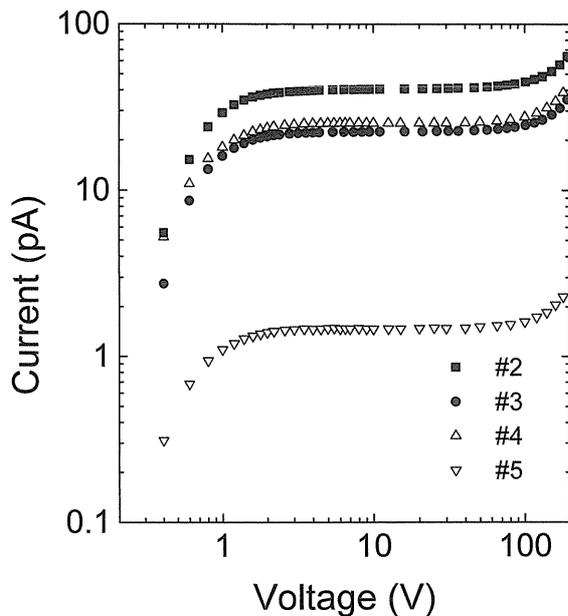


Figure 10. Photoion currents as a function of the voltage applied to the electrodes in the ion chamber. Data marks of solid squares, solid circles, open up-triangles, and open down-triangles indicate the currents at the electrodes of the second, the third, the fourth, and the fifth, respectively.

いる。

このイオンチェンバーの動作テストとして、印加電圧を変えた時の収集イオン電流の変動を調べた。Fig. 10に光子エネルギー72 eV, Ne ガス圧0.4 Torr の時の結果を示す<sup>46)</sup>。第二～第五電極に収集されるイオン電流は、印加電圧の増加につれて大きくなり、3 V 付近で飽和値に達する。電流は70 V 付近より再び少しづつ上昇し、100 V 以上で急激に増大する。高電圧での上昇は電場によって加速

され電子が付加的にイオンを生成してくるためである。光子によるイオン量は、10～60 V で一定値になっている部分で読み取る。どの電極でのイオン電流曲線も同じ形状になっていることから、このイオンチェンバーが正常に動作していることが解る。またそれぞれの電流量の違いは、電極の長さ、並べてある順序、軟 X 線エネルギー、Ne の光吸収断面積を考えると合理的な値になっている。

イオンチェンバーに印加する電圧を約30 V に固定し、各電極に収集されるイオン電流を、ガス圧の関数としてプロットしたものを Fig. 11 に示す。用いたガスは Ar で、光子エネルギーは600 eV である。低ガス圧の領域では、ほぼガス濃度に比例してイオン量は増加するが、1 Pa 以上では勾配は1 より少し大きくなり、光イオン化で生じた放出電子によるイオン化の効果が現れてくる。50 Pa 近傍より、光子吸収によって下流側まで到達する光子数が減少し、電極で収集されるイオン量は少なくなり始める。下流側電極ほど、低ガス濃度で最大のイオン電流を与えている。また最下流電極#5では、400 Pa 近傍で肩が現れている。これは二次光の影響と考えられ、光吸収されにくい二次光についての極大値が高ガス濃度側にシフトしていることに帰因している。図では示していないが、このような構造は、電極#3, #4 でも10 Torr 以上で見出された。尚、これは二次光の影響がチェンバーの動作にどのように効いてくるかを調べるため、二次光成分を完全にはおとしきらずに測定したものであり、後述の見かけの光子強度対ガス濃度の曲線に異常となって現れてくる。二次光の割合は高々2.5%程度であった (5.2節参照)。

## 5.2 単色軟 X 線の絶対測定

電極 4, 5 に収集されるイオン電流を用い、(1)式から計算される見かけの光子強度のガス圧依存性を Fig. 12 に示

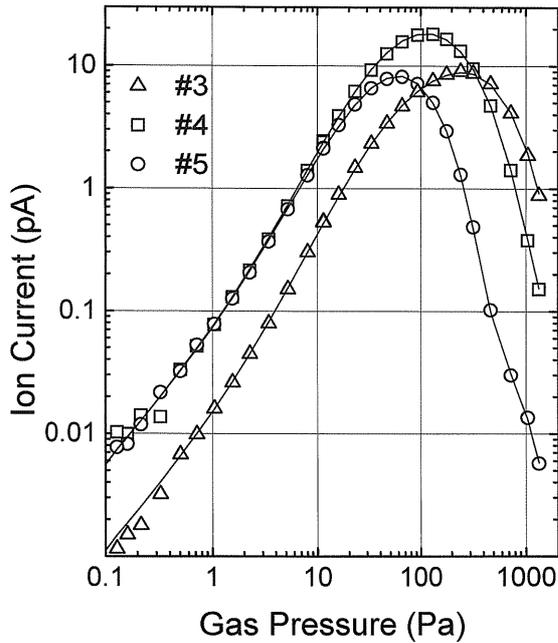


Figure 11. Photoion currents of the electrodes as a function of Ar gas pressure. Data marks of open triangles, open squares, and open circles denote the currents at the electrodes of the third, the fourth, and the fifth, respectively.

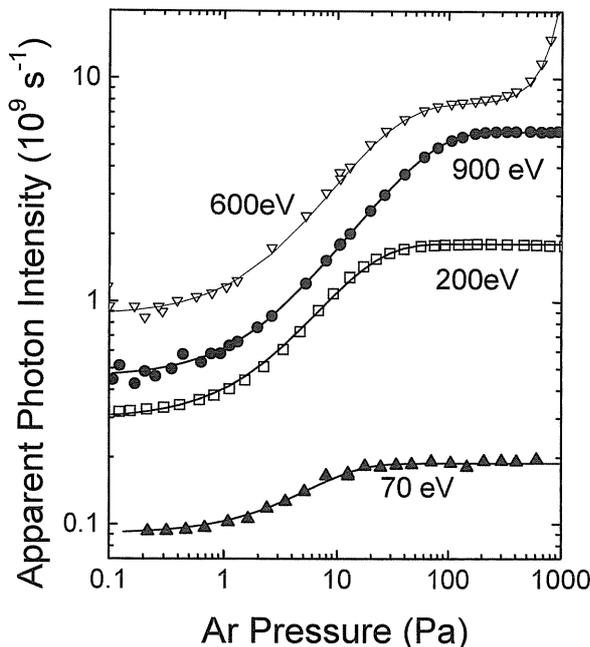


Figure 12. Apparent photon intensity as a function of the Ar gas pressure. Data marks of solid circles, open triangles, open squares, and solid triangles denote the results at photon energies of 900 eV, 600 eV, 200 eV, and 70 eV, respectively.

す<sup>48)</sup>。光子ビームの大きさは、チェンバー上流のアップチャーで1 mm $\phi$ にし、リングビーム電流は100 mAに規格化してある。(1)式においては、放出された電子が周囲

の原子をさらにイオン化することによって、イオン量が増加する効果は考慮していない。つまり、Fig. 12の曲線の低圧極限が真の光子強度（フルエンス率）になる。光子エネルギーが70, 200, 900 eVの曲線は、低圧ではほぼ一定値であり、1–100 Paのガス圧領域で増加し、それ以上でまた一定値になっている。見かけの光子強度の増大している領域では、一部の放出電子による周囲原子のイオン化が生じており、高圧の飽和領域では、放出電子のイオン化能力のすべてが、イオン生成に効いてきている。つまり、軟X線のArに対するW値が飽和値から読み取れる。600 eVの軟X線の場合には、500 Pa以上で急激に曲線が上昇しているが、これは前述したように、混入している二次光による影響である。

低圧極限での真の値の読み取りであるが、より正確を期するため、全体の曲線のシミュレーションフィッティングを行った。放出電子によるイオン量の増分は以下の式で表せると仮定する。

$$\delta(p) = \delta_0 \{1 - \exp(-\alpha p)\} \quad (6)$$

ここで、 $p$ はガス濃度、 $\delta_0$ は高圧極限で生成する電子数、 $\alpha$ は平均自由行程（或いは飛程）に対応するような定数である。フィッティング結果は、Fig. 12に実線で示しており、実験データと良い一致を示している。 $\delta_0$ から計算できるW値は、低エネルギー電子によるW値に近い値になり、(6)式での近似が妥当なものであることを示している<sup>21)</sup>。また $\alpha$ の光子エネルギーへの依存性も合理的な結果となった。600 eVの曲線では、二次光成分が2.5%混入していると仮定するとFig. 12の実線のように、実験データをよく再現できた。

リング運転条件を種々修正して光子ビームの純度を向上させ、見かけの光子強度のガス圧依存性を求めることより、50 eV–1.1 keVのエネルギー範囲での軟X線フルエンス率を得た (Fig. 13)<sup>48)</sup>。実験データに付加してある値は、リングの電子エネルギーと追加フィルターの有無である。用いたガスはArであり、リング電流100 mAに規格化してある。100 eV以下では、二次光低減化のためにリングの低エネルギー運転を余儀なくされたために、小さな軟X線強度になってしまったが、200 eV近傍と800 eV以上では、かなりの強度のビームが得られた。絶対強度の信頼性のチェックとして、Neガスを用いた絶対測定も100 eV近傍の数点の軟X線エネルギーで行った。結果はよい一致を示し、ガスの種類による特異性は無いことが解った。また軟X線フォトダイオード（同類のものに付き、PTBが校正値を報告している。）の試行的校正を行い、予想値と大きなズレはないことを確認した。個々の測定での誤差評価は、まだ行っていないが、誤差要因としてはイオン電流の揺らぎが一番大きく、次にガス濃度の安定性が効いてくる。電極の長さ等の幾何学的要因や、二次光成分の

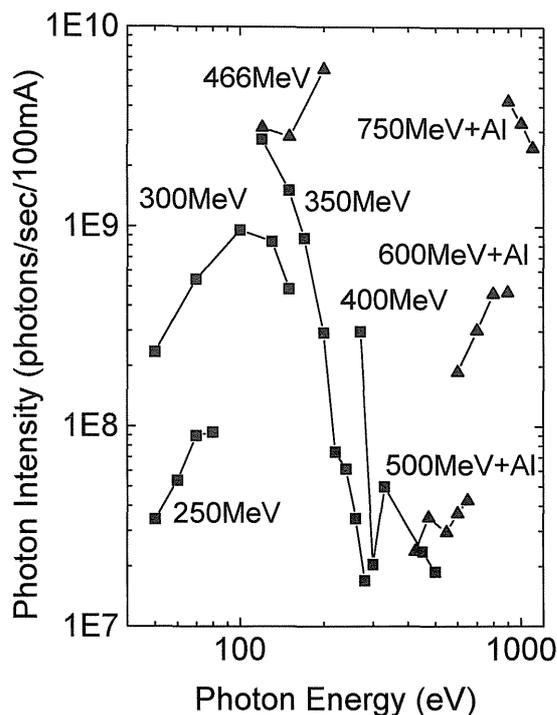


Figure 13. Absolute fluence rates of monochromatic soft X-rays as a function of soft X-ray energy. The digits and symbols added to data marks denote electron energies of the storage ring and the material of used filters. The ring electron current is normalized to 100 mA.

妨害からくるものは、さほど大きくはない。また Ar の  $\gamma$  値は、光子エネルギーによってはあまり正確でない領域もあるので、それぞれのエネルギーで最適である希ガス原子を使う必要もある。Fig. 13に示した結果の全不確かさは、4.5%–10%と推定される。

## 6. 今後の課題と発展

多段階イオンチェンバーと Ar の  $\gamma$  値を用い、リングの低エネルギー運転を行って放射光単色軟 X 線のフルエンス率の絶対値を求めた。50 eV–1.1 keV で 1 mm 径で  $10^7$ – $10^{10}$ /s (100 mA) が得られた。イオンチェンバーは複数のイオン収集電極を持っているので、軟 X 線吸収断面積を精度よく測定することが可能である。Ne, Ar について、50 eV–1.2 keV の領域で測定を行って文献データと比較を行ってみた。今まで報告されたデータには大分バラツキがあるが、最近の Henke らの推奨データとは大部分のエネルギーでよく一致している。また、見かけの光子強度のガス圧依存性の高圧極限から見積もった Ar の軟 X 線領域での W 値は、ArL 殻でジャンプが起こり、我々が以前炭化水素分子の CK 殻で見出した変動と同様の現象が確認された<sup>23,51,52</sup>。これは、内殻吸収端領域での多重イオン化の変動と結びついたものであるが、低エネルギー電子の W 値の実験データを用いると、軟 X 線 W 値のエネルギー変

動を簡単なモデル計算で再現することが出来る。現状では W 値の精度はあまり高くはないが、これを正確に求めておくと、単一電極イオンチェンバーで絶対測定をすることが可能になるとともに、実用検出器の値付けを行う際に、一点のガス圧でのイオン電流測定で絶対値が見積もれるので、標準の供給という観点から大変重要である。

現在までの流れにおいては、ダブルイオンチェンバーでの絶対測定法の確立という方向で研究を進めてきて、正確な誤差評価に関する労力は若干省略してしまってきた。今後はこの点を中心に検討を進めて行くが、一番大きな誤差要因であるイオン電流測定での揺らぎの低減化には、軟 X 線強度の増大が最も有効であるので、光学系の改善を検討するとともに、より高強度のビームラインでの測定を行って、本法の有効性を確認する必要がある。また PTB グループで用いているクライオカロリメータでは、10 nW 程度の揺らぎに抑え込むことができ、 $\mu$ W オーダーの単色軟 X 線で 1% より良い精度の絶対測定を実現している<sup>11–13</sup>。 $10^9$  光子数/s の軟 X 線パワーは 10 nW のオーダーであるので、高強度軟 X 線ビームの実現は、別の原理による絶対測定を行う際にも不可欠のものである。異なった手法による絶対値の比較によって、真の値を確認することができるので、我々もクライオカロリメータの利用を検討しているところである。PTB, NIST 等との国際比較によって世界的同一性を確立することは重要であり、数年後には取り組む予定であるが、海外との比較では、可搬型の仲介器を用いざるを得ないので、値の移し替えでの不確かさの増加のために、総合的不確かさはある程度大きくなってしまおうおそれもある。

## 謝辞

本稿の中心的内容は電総研電子蓄積リングからの放射光を用いた研究であり、その運転、管理に尽力されている電総研加速器グループの方々に感謝いたします。また実験装置の製作につき、特殊仕様の内容を快く引き受けて頂きました真空光学株式会社に御礼申し上げます。

## 参考文献

- 1) 鈴木 功: フィルムバッチニュース, No 255, 1 (1998).
- 2) 阿刀田伸史: シンクロトロン放射技術 (工業調査会), 1990年, p. 337.
- 3) H. Saisho and Y. Gohshi: Analytical Spectroscopy Library (Elsevier Science), Vol. 7 (1996).
- 4) 加藤隆子: 核融合研究 **65**, 346 (1991).
- 5) I. H. Suzuki and N. Saito: Jpn. J. Appl. Phys. **25**, 130 (1986).
- 6) I. H. Suzuki and N. Saito: Appl. Opt. **24**, 4432 (1985).
- 7) R. P. Madden, D. L. Ederer and A. C. Parr: Nucl. Instr. Meth. **B10**, 289 (1985).
- 8) J. Geist, E. F. Zalewski and A. R. Schaefer: Appl. Opt. **19**, 3780 (1980).
- 9) E. Tegeler: Phys. Scripta **T31**, 215 (1990).
- 10) M. Krumerey and E. Tegeler: Rev. Sci. Instr. **63**, 797 (1992).
- 11) H. Rabus, V. Persch and G. Ulm: Appl. Opt. **36**, 5421 (1997).

- 12) F. Scholze, H. Henneken, P. Kuschnerus, H. Rabus, M. Richter and G. Ulm: J. Synchrotron Rad. **5**, 866 (1998).
- 13) M. Richter and G. Ulm: J. Electron Spectrosc. Retat. Phenom. **101-103**, 1013 (1999).
- 14) M. Sakurai, S. Morita, J. Fujita, H. Yonezu, K. Fukui, K. Sakai, E. Nakamura, M. Watanabe, E. Ishiguro and K. Yamashita: Rev. Sci. Instr. **60**, 2089 (1989).
- 15) 鈴木 功: 計測と制御 **31**, 703 (1992).
- 16) 鈴木 功, 齋藤則生: 電総研彙報 **57**, 34 (1993).
- 17) 鈴木 功, 齋藤則生: 電総研彙報 **56**, 688 (1992).
- 18) J. A. R. Samson: Techniques of Vacuum Ultraviolet Spectroscopy (Wiley Interscience), 1967.
- 19) 齋藤輝文: 電総研研究報告, 960 (1994).
- 20) H. O. Wyckoff: ICRU Report, 31 (1979).
- 21) D. Combecher: Rad. Res. **84**, 189 (1980).
- 22) E. Waibel and Grosswendt: Nucl. Instr. Meth. **211**, 487 (1983).
- 23) I. H. Suzuki and N. Saito: Bull. Chem. Soc. Jpn. **60**, 2989 (1987).
- 24) J. B. West and J. Morton: Atom. Data Nucl. Data Tables **22**, 103 (1978).
- 25) J. Schwinger: Phys. Rev. **75**, 1912 (1949).
- 26) N. Saito and I. H. Suzuki: Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes **115**, 157 (1992).
- 27) N. Saito and I. H. Suzuki: J. Phys. **B25**, 1785 (1992).
- 28) N. Saito and I. H. Suzuki: Physica Scripta **45**, 253 (1992).
- 29) N. Saito and I. H. Suzuki: Physica Scripta **49**, 80 (1994).
- 30) D. M. P. Holland, K. Codling, J. B. West and G. V. Marr: J. Phys. **B12**, 2485 (1979).
- 31) G. R. Wight and M. J. van der Wiel: J. Phys. **B9**, 1319 (1976).
- 32) Th. M. El-Sherbini and M. J. van der Wiel: Physica **62**, 119 (1972).
- 33) M. Y. Adam: Ph.D. Thesis, Universite de Paris-Sud, 1978.
- 34) E. Murakami, T. Hayaishi, A. Yagishita and Y. Morioka: Physica Scripta **41**, 468 (1990).
- 35) U. Becker, D. Szostak, H. G. Kerckhoff, M. Kupsch, B. Langer, R. Wehlitz, A. Yagishita and T. Hayaishi: Phys. Rev. **A39**, 3902 (1989).
- 36) S. L. Carter and H. P. Kelly: Phys. Rev. **A16**, 1525 (1977).
- 37) T. N. Chang and R. T. Poe: Phys. Rev. **A12**, 1432 (1975).
- 38) T. A. Carlson and C. W. Nestor Jr.: Phys. Rev. **A8**, 2887 (1973).
- 39) A. G. Kochur, A. I. Dudenko, V. L. Sukhorukov and I. D. Petrov: J. Phys. **B27**, 1709 (1994).
- 40) A. G. Kochur, V. L. Sukhorukov, A. I. Dudenko and Ph. V. Demekhin: J. Phys. **B28**, 387 (1995).
- 41) M. Ya Amusia, I. S. Lee and V. A. Kilin: Phys. Rev. **A45**, 4576 (1992).
- 42) N. Saito and I. H. Suzuki: Physica Scripta **T73**, 96 (1997).
- 43) N. Saito and I. H. Suzuki: J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1979 (1997).
- 44) N. Saito and I. H. Suzuki: J. Electron Spectrosc. Retat. Phenom. **88-91**, 65 (1998).
- 45) B. Kämmerling, B. Krässig and V. Schmidt: J. Phys. **B25**, 3621 (1992).
- 46) N. Saito and I. H. Suzuki: J. Synchrotron Rad. **5**, 869 (1998).
- 47) N. Saito and I. H. Suzuki: KEK Proc., 98-4 "Rad. Detectors & Their Uses", 1 (1998).
- 48) N. Saito and I. H. Suzuki: J. Electron Spectrosc. Retat. Phenom. **101-103**, 33 (1999).
- 49) N. Saito and I. H. Suzuki: Atom. Coll. Res. Jpn. **14**, 119 (1988).
- 50) B. L. Henke, E. M. Gullikson and J. C. Davis: Atom. Data Nucl. Data Tables **54**, 200 (1993).
- 51) N. Saito and I. H. Suzuki: Chem. Phys. **108**, 327 (1986).
- 52) N. Saito and I. H. Suzuki: Abstracts 21-th ICPEAC (Sendai) **1**, 21 (1999).

## きいワード

### 1. ダブルイオンチェンバー

真空紫外線の強度を求めるために, Samson が考案した測定器で, 気体 (通常は希ガス) の光電離過程によって一光子が一個の一価イオンを生成させること, および長さの等しい二個の電極でイオンを収集することより, 光吸収断面積の値を必要とせずに, 光子数の絶対値が求められる。実用上は, 電場の歪みを抑える, ダイナミックレンジを広くするなどの理由で, 多電極型である。また, 軟 X 線用には, 多重光イオン化が発生するので, イオンの平均荷電数 ( $\gamma$  値) が必要となる。

### 2. 平均荷電数 ( $\gamma$ 値)

軟 X 線を吸収した原子は, 電子放出や発光などの過程を経て, 種々の荷電状態のイオンになってゆが, 孤立系において一光子を吸収した原子が平均何価のイオンになるかを示す定数を, 本稿では  $\gamma$  値と呼ぶ。呼称については, まだ定着

していない。 $\gamma$  値は, 軟 X 線エネルギー, 原子種によって相当変化する。

### 3. 二重 Auger 遷移

内殻電子のイオン化によって生じた空孔は, 軟 X 線領域においては, 多くの場合, Auger 遷移によって埋められ, 余剰のエネルギーは一個の電子の放出に費やされる。しかし, 電子二個が放出される場合も相当あり, 原子の荷電状態としては, 三価になる。これを二重 Auger 遷移と言い, 二個の電子放出が, 同時に起きる場合, 段階的に中間状態を経て生ずる場合がありうるが, 希ガス原子の浅い内殻では, 中間状態への遷移は小さいと考えられるので, 同時に二個の電子が放出してくると考えられる。定性的には, 内側の電子軌道の大きな変化によって, 浅い価電子が振り落とされるとか, 放出しようとしている電子が, 衝突によって価電子を弾き出すなどと理解される。