

The Window Resonances in the Subvalence s-shell Photoionization Spectra of the Metal Atoms

電子物性工学専攻 大谷研究室 小出美知

2003年 3月

単色化された放射光と金属蒸気を用いて、真空紫外領域での金属原子 (K, Rb, Cs, および Ca) の内殻光共鳴励起状態を観測し、共通する特徴についての系統的研究を行った。

原子による光の吸収実験の歴史は古く、1930年代から現在にいたるまで多くの研究者によって実験理論双方の論文が書かれている。その中でも $Z=3$ 以上の原子の内殻光吸収は多電子系の電子相関や配置間相互作用の研究にもっとも適した素材であり、加えて大型放射光施設やレーザーなどの高輝度光源の開発や計算機の進歩によってより精密に調べることが可能になってきているため、近年ますます盛んになっている分野である。分解能の向上に伴い、今まで知られていなかった電子相関による多電子励起の共鳴状態が数多く存在することも解かってきた。原子のイオン化しきい値よりもエネルギーの高い領域に存在する共鳴状態の場合、連続状態と離散状態の結合が強くなるため、量子状態は両者の一次結合によって記述されなければならない。このような状態の物理的取扱いは、過去 U.Fano によって詳しく検討されており Beutler-Fano プロファイルの名で広く知られている。Fano は、連続状態への直接励起と離散状態を経て連続状態へと間接的に励起する二つの過程が干渉を起こし、その位相のずれによってスペクトルの形状が決まるとした。この位相差は q で表わされ、プロファイルインデックスと呼ばれている (式 1)。

$$\sigma(E) = \sigma_T \left[\rho^2 \left\{ \frac{(q + \epsilon)^2}{\epsilon^2 + 1} - 1 \right\} + 1 \right], \quad (1)$$

真空紫外線から軟 X 線領域では、イオン化エネルギーの小さい外殻電子による光吸収の断面積は小さく、主な過程はイオン化エネルギーが大きい内殻電子による光の吸収となる。浅い内殻電子による断面積のごく小さい吸収が起こる場合、 q が 0 に近い大きさになる。これは位相がほぼ完全に逆である事を示し、波動関数は打ち消し合って無くなるためスペクトルは連続状態に穴があいたような構造となる。このような共鳴励起が起こると、共鳴エネルギー E_r の近傍で光吸収断面積が最小値を取り標的ガスの中を「窓のように光が通る」ため、この現象は window 共鳴と呼ばれている。window 共鳴となるのは、離散状態と連続状態の結合が非常に強く、なおかつ離散状態への遷移確率が非常に小さかつ連続状態への遷移が大きい場合のみである。遷移がほとんどないからこそ、共鳴エネルギーではほとんどイオン化が起こらなくなってイオン化断面積に穴が空いたように、断面積が減ってしまう現象が window 共鳴である。

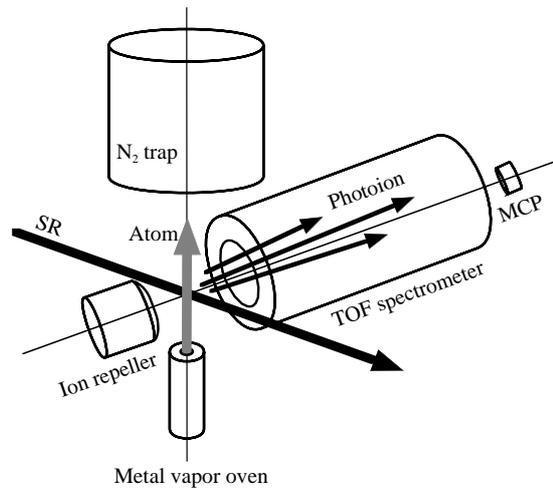


図 1: Sketch of the experimental setup and measurement system.

希ガスの window 共鳴はよく知られた現象であり、近年でも精密分光の報告が多い。アルカリ金属原子の浅い内殻での s 電子による光吸収については、Mansfield によって系統的な研究がなされている。これはマイクロ濃度計による測定で、K、Rb、Cs の三元素についてそれぞれの $(m-1)s \rightarrow mp$ という第一励起状態の window 共鳴を観測した最初の、またほとんど唯一の報告である。また Mansfield は、配置混合を考慮に入れた多配置ハートリー・フォック法での計算も合わせて行っており共鳴状態の同定を試みている。この中で Mansfield は、 $A^+(m-1)s^1(m-1)p^6ms$ の計算において、イオンコアに $(m-1)s^2(m-1)p^4(m-1)dms$ が混じる $p^2 \rightarrow sd$ mixing が 20~30% もの割合で起こっていることも指摘している。また、この s ホールに対する d オービタルの配置混合は、中性原子の場合でも一般的に考慮されなければならないであろうと予測している。しかしながら、アルカリ金属原子の内殻吸収についての精密な分光学的研究は、行われた例が少ない。K など比較的 Z の大きいアルカリ原子は、エネルギー準位計算の複雑さと困難さから敬遠されがちなテーマであったし、70 年代から 80 年代初頭に行われた数少ないの研究によって一応決着がついたと考えられて来たからでもある。本研究では最新の技術で精密な分光をすることによって、解決のついていない問題の再発見や新しい問題提起がなされるであろうと予測した。

実験は高エネルギー加速器研究機構の大型放射光施設・Photon Factory の偏向磁石ビームライン BL-3B で行った。このビームラインは真空紫外光を供給しており 24m 球面回折格子によって単色化された光を実験に用いることができる。図 1 は衝突領域の概略図である。標的として真空槽下部に取り付けられた金属原子蒸気オープンによって生成した金属蒸気を用いている。単色化された放射光を吸収した原子は、ただちに電離し飛行時間差型質量分析器 (TOF) によって分析され、イオン種別価数別のスペクトルとして観測される。最外殻の主量子数を m としたとき、 m 殻に s 電子を 1 あるいは 2 個もつ K、Rb、Cs および Ca の $(m-1)s$ 電子の光吸収の window 共鳴を部分光イオン収量スペクトル法によって高分解能で詳しく測定し、window 共鳴についていくつかの新しい知見を得た (図 1)。また、式

1 を用いてパラメータ・フィッティングをおこない Fano パラメータ q 、共鳴状態のエネルギー E_r 、および共鳴幅 Γ をそれぞれ決定した (表 2)。さらに相対論的多配置ディラック-フォック (MCDF) コードである GRASP92 を用いて計算しスペクトル構造の解析の手助けとした (表 1)。この計算で、内殻のホール状態 $(m-1)s^1(m-1)p^6msnp$ には一般に d オービタルによる激しい配置間混合が見られる事が確かめられた。fig:3big1)。

三種類のアルカリ金属の一価の部分光イオン収量スペクトル上に $(m-1)s \rightarrow mp$ 励起状態によって形成される window 共鳴の Rydberg 系列を初めて観測した。これらの光イオン収量スペクトルは、共通する特徴をいくつか備えていた。アルカリ原子の研究では、第一励起状態である $(m-1)s \rightarrow mp$ 励起状態が、一価の部分光イオン収量スペクトル上に巨大なディップを形成しており、高エネルギー側のすぐ脇に小さいディップを伴っている事が新たにわかった。この二つの構造は、第一励起状態の LS 分裂によって生じる 4P と 2P であると思われる。また、Rydberg 系列、共鳴幅 Γ について、希ガスの window 共鳴には見られない特徴を観測した。実験的理論的解析から、K、Rb について理論的にしか求められていなかった二価のしきい値を実験的に決めることが出来た。また、Ar と K の違いに着目したことから、Ca の $3s$ 吸収スペクトルも測定し Z の増加による $3s \rightarrow np$ 吸収スペクトルの形状の変化もあわせて研究した。この研究から、 q は原子番号 Z に比例して増大する一方、 Γ は Z と共に増大するが比例関係は見られないことが確認された。さらに、 Z とともに共鳴エネルギー E_r が増加し、それに伴って $3s \rightarrow 4p$ 吸収のディップが浅くなっていくことも確認された。アルカリ原子の window 共鳴の Rydberg 系列において、 $ms \rightarrow np$ の n が大きくなる程ディップが浅くなっていくのと同じ現象である。

以上の系統的研究結果をまとめてみると一般に、同じ m からの励起ならば E_r の大きい方がディップが浅くなる傾向が見られる。この領域に存在する共鳴状態にあらわれる干渉の効果は、励起準位のエネルギーや有効核電荷の変化に非常に敏感で、波動関数の形状に密接に関連しており、これらの要素が複雑に絡まる興味深い現象である。今後の理論的な発展に期待したい。

参考文献

- [1] M. Koide, F. Koike, R. Wehlitz, M.-T. Huang, T. Nagata, J. Levin, S. Fritzsche, B. D. DePaola, S. Ohtani, and Y. Azuma: J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 1676.
- [2] M. Koide, F. Koike, T. Nagata, J. Levin, S. Fritzsche, R. Wehlitz, M.-T. Huang, B. D. DePaola, S. Ohtani, and Y. Azuma: J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 2681.
- [3] M. Koide, E. kayama, T. Osawa, F. Koike, S. Obara, T. Y. Suzuki, S. Hasegawa, S. Ohtani, Y. Azuma, and T. Nagata: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 294.
- [4] S. Yagi, T. Nagata, M. Koide, Y. Itoh, T. Koizumi, and Y. Azuma: Nucl. Inst. and Meth. (2001) **183** 476.
- [5] M.-T. Huang, R. Wehlitz, Y. Azuma, L. Pibida, I. A. ellin, J. W. Cooper, M. Koide, H. Ishijima, and T. Nagata: Phys. Rev. A (1999) **59** 3397.

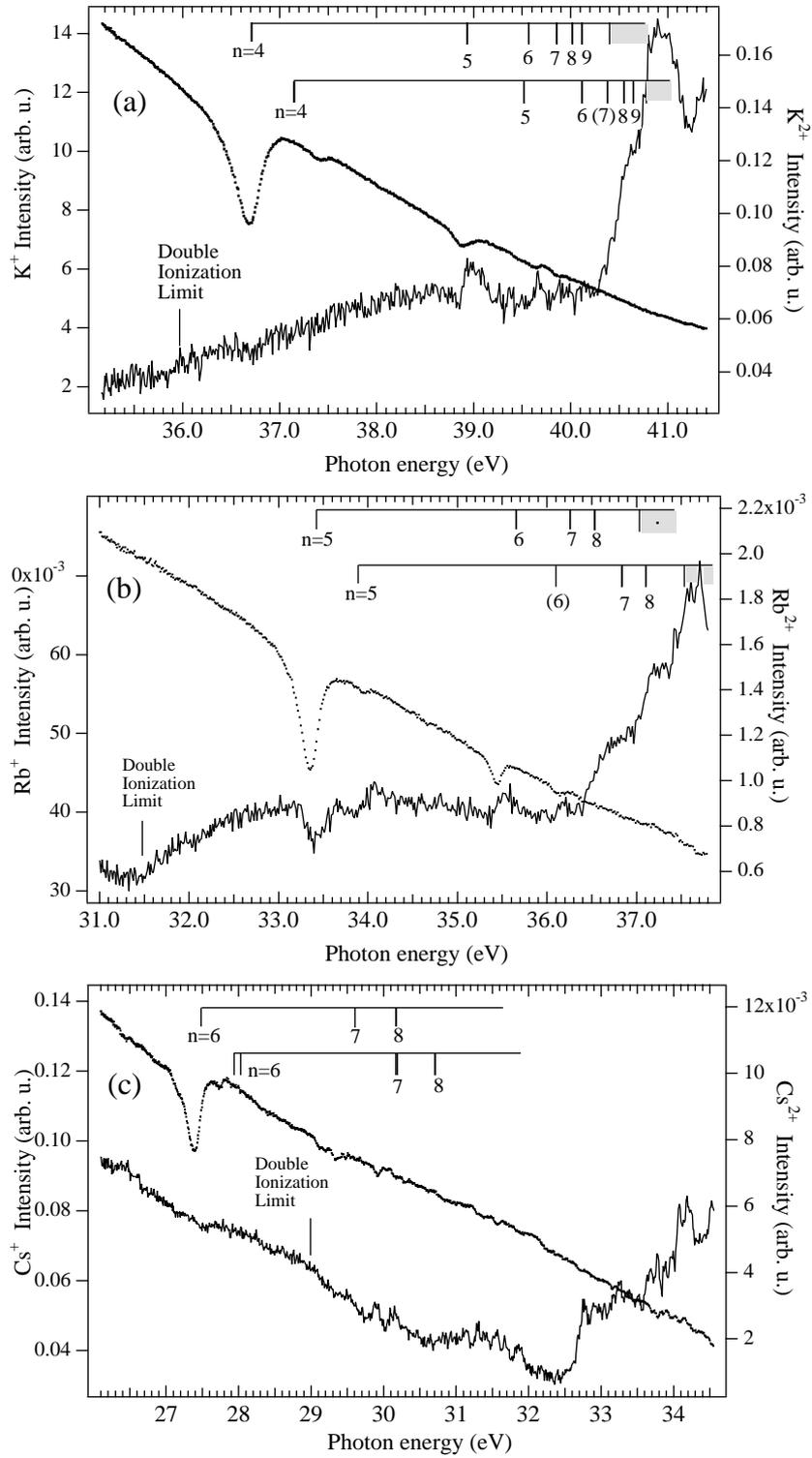


Fig. 2: Partial photoion-yield spectra of (a) K, (b) Rb, and (c) Cs. Singly-charged photoion yields are shown as dots and doubly-charged photoion yields are shown as a solid line.

表 1: Calculated energies (eV) for $(m - 1)s$ hole states and the ionization limit of K, Rb, and Cs. The right two columns show the observed energies.

main config.	${}^4P(93\%) + {}^2P(7\%)$		${}^4P(7\%) + {}^2P(93\%)$		obs.	
	1/2	3/2	1/2	3/2	Lower	Higher
<u>K</u>						
$3s^1 3p^6 4s 4p$	36.71	36.71	37.14	37.16	36.72	37.45
$3s^1 3p^6 4s 5p$	38.93	38.93	39.52	39.52	38.89	-
$3s^1 3p^6 4s 6p$	39.57	39.57	40.12	40.12	39.68	-
$3s^1 3p^6 4s 7p$	39.86	39.86	(40.12)	(40.12)	39.9	-
$3s^1 3p^6 4s 8p$	40.02	40.02	40.55	40.55	40.02	-
$3s^1 3p^6 4s 9p$	40.11	40.11	40.65	40.65	40.08	-
$3s^1 3p^6 4s \epsilon p$		40.40		40.78	40.3	40.7
<u>Rb</u>						
$4s^1 4p^6 5s 5p$	33.42	33.45	33.89	33.93	33.36	33.97
$4s^1 4p^6 5s 6p$	35.65	35.66	(36.13)	(36.13)	35.44	-
$4s^1 4p^6 5s 7p$	36.26	36.26	36.84	36.84	36.14	-
$4s^1 4p^6 5s 8p$	36.53	36.53	37.11	37.1	-	-
$4s^1 4p^6 5s \epsilon p$		37.03		37.54	37.0	37.4
<u>Cs</u>						
$5s^1 5p^6 6s 6p$	27.48	27.53	27.94	28.03	27.42	27.76
$5s^1 5p^6 6s 7p$	29.61	29.61	30.17	30.17	-	-
$5s^1 5p^6 6s 8p$	30.19	30.17	30.7	30.71	-	-
$5s^1 5p^6 6s \epsilon p$		-		-	-	-

表 2: Fano parameters of K, Rb and Cs as derived from Eq. 1. For the first excitation states $(m-1)s^1(m-1)p^6msmp$ both the 4P and the ${}^2P^*$ term are given.

main config.	E_r	Γ	q
<u>K</u>			
$3s^13p^64s4p$	36.72(5)	0.21(5)	0.23 ± 0.01
$3s^13p^64s4p$	37.4(6)	0.15(9)	0.6 ± 0.1
$3s^13p^64s5p$	38.90(8)	0.16(8)	0.14 ± 0.03
$3s^13p^64s6p$	39.6(1)	0.09(9)	1.0 ± 0.2
$3s^13p^64s7p$	39.91(8)	0.07(9)	0.8 ± 0.1
$3s^13p^64s8p$	40.0(2)	0.06(9)	0.8 ± 0.1
$3s^13p^64s9p$	40.1(1)	-	0.6 ± 0.3
<u>Rb</u>			
$4s^14p^65s5p$	33.36(1)	0.16(5)	0.11 ± 0.05
$4s^14p^65s5p$	34.0(1)	0.1(2)	0.4 ± 0.1
$4s^14p^65s6p$	35.45(2)	0.10(3)	0.12 ± 0.02
$4s^14p^65s7p$	36.1(1)	0.1(1)	0.3 ± 0.08
<u>Cs</u>			
$5s^15p^66s6p$	27.42(1)	0.15(1)	0.26 ± 0.01
$5s^15p^66s6p$	27.8(1)	0.06(1)	0.5 ± 0.1

*First state of higher series