

論文の内容の要旨

論文題目：Experimental and Numerical Analyses on X-ray Photoexcitation of Beryllium Atom

(ベリリウム原子の X 線による光励起に関する実験的および数値的解析)

氏名： 吉田 芙美子

1. 背景

Be 原子 ($1s^2 2s^2$) は 4 電子系の電子構造を持ち、He 原子に次いで 2 番目に単純な閉殻構造を持っている。2 電子系である He に関する実験的・理論的研究は詳細に行われてきているが、Be に関する実験的研究はその毒性と蒸気発生 of 困難性から数が少ない。しかしながら、Be 原子の外殻 2s 電子の励起は、2 電子系の電子相関に関する知見が得られるばかりでなく、研究実績の豊富な He 原子と比較することにより、内殻 $1s^2$ 電子の光イオン化過程での影響を明らかにすることができる。また、近年、Li 原子の光イオン化分光の実験方面での進展により、さらに進んだ 3 電子系の理論が著しく発展している。その発展型として 4 電子系を取り扱う理論についても検討が進められており、この点から内殻電子 $1s^2$ の光励起・イオン化過程に関する詳細な検討が望まれる。

本研究では、高分解能・高フラックスな放射光を用いて Be 原子の光イオン化断面積実験を行い、高分解能な実験データを取得する。具体的には、外殻・内殻励起による Rydberg 自動イオン化系列の観測を行い、4 電子系のイオン化プロセスについて、実験的な方面から系統的に解明することを目的とする。さらに、内殻励起による光イオン化プロセスについて、数値計算の手法を用いて原子構造の解析を行い、Be 原子に特徴的な現象に関して、実験的な側面に加えて理論方面からのアプローチを計ることを目的とする。

2. 実験方法

実験は、茨城県つくば市の高エネルギー加速器研究機構 (KEK) のフォトンファクトリー施設 (PF) にて行った。使用したビームラインは、低エネルギー領域をカバーする (5~40eV) 20A ラインと、アンジュレータの装備された 16B ラインである。

金属 Be を真空容器内の電子衝突加熱装置により 1,200°C 程度に熱し、Be 原子蒸気を発生させ、放射光と直角に相互作用させる。光電離の結果生成した Be イオンをパルス電場で引き出し、飛行時間型質量分析装置に導き、生成した Be イオンの 1 価および 2 価を区別した。MCP (micro channel plate) によりイオンの検出を行っている。イオンの飛行時間は Time-to-Pulse Height Converter (TPHC) を通してパルスの高さに変換され、計測系で積算される。得られた質量スペクトル上において、Be イオンの 1 価・

2価にゲートを合わせ、光エネルギーを掃引することにより1価と2価それぞれのスペクトルを取得した。

3. 外殻励起実験

Beの外殻励起実験により、 $1s^23s$ のイオン化限界へ収斂する $3snp$ のRydberg系列($n=3\sim 9$)が高分解能に観測された。この領域では、幾つかの異なるイオン化限界が接近しているため、 $Be^+(3s)$ の1つ上のイオン化限界 $Be^+(3p)$ へ収斂するRydberg系列遷移 $3p4s$ も $3s5p$ と $3s6p$ の間に観測された。得られた実験スペクトルをFanoの理論曲線を用いてFittingを行い、それぞれの遷移ピークの q 値、共鳴エネルギー、半値全幅の値(FWHM)を抽出した。理論曲線は、装置関数であるシンクロトロン光源の線幅を考慮し、三角波を畳み込んだ上で実際のFittingに用いている。

超球座標計算とR-matrix計算から得られた2つのイオン化断面積と実験結果を比較した結果、実験と計算のスペクトル形状は両者ともほぼ一致した。しかしながら、摂動軌道の入り込む $3s5p$ 遷移付近のスペクトル形状は、2つの数値計算の間で大きな差異が見られ、超球座標を用いた数値計算スペクトルの方が実験に近いことが明らかとなった。実験と計算の比較をさらに詳細に行うため、数値計算のスペクトルをFano曲線でFittingし、実験スペクトルと同様にパラメータ q 値、共鳴エネルギー値と半値全幅の値を遷移ごとに求めた。以上の比較より、 $Be^+(2p)$ から $Be^+(3s)$ の2つの閾値間のエネルギー領域において、実験と計算の結果はほぼ一致した一方で、摂動軌道の入り込む $3p4s$ 遷移付近の計算値には実験結果を再現しきれていないことが明らかとなった。したがって、今回の観測結果により理論方面での発展、特に系列間の摂動の議論に関して、実験方面から理論に大きく寄与できると考える。

4. 内殻励起実験

観測したエネルギー範囲は127~140eVの内殻励起領域の広範囲にわたり、光源分解能はおよそ13meVで観測を行った。この領域では2価の生成が主であるが、1価イオンも同時に生成され、そのため1価・2価それぞれのスペクトルを取得した。いくつかのRydberg系列に着目した結果、 $1s(2s2p^3P)$ 、 $1s(2s2p^1P)$ 、 $1s(2s3s^3S)$ 、 $1s(2s3s^1S)$ の4つのイオン化限界へ収斂する一連のRydberg系列の詳細観測に成功した。この高分解能測定から、これまで実験装置や実験方法の制約により観測されなかった遷移が数多く観測された。

得られたスペクトルの形状から、2価のスペクトルに対してはFanoの理論式を、1価のスペクトルに対してはLorentz式を用いてFittingを行った。Fitting解析の結果、2価に関してはパラメータ q 値、共鳴エネルギー値、半値全幅の値が、1価に対してはエネルギー値と半値全幅の遷移情報が得られた。共鳴エネルギー値より、Rydbergの式を用いて、4つの系列のエネルギー閾値と量子欠損値を決定した。ここではいくつかの

閾値を仮定した上で、主量子数に対して量子欠損の値をプロットし、系列を通して量子欠損の値が一定値を取るような E_{lim} をエネルギー閾値として採用している。

理論との比較を行うため、**R-matrix** 法で計算した光イオン化断面積と実験結果を比較した。計算スペクトルが高エネルギー側に $0.3\sim 0.5\text{eV}$ 程度シフトしているものの、実験と計算のスペクトルの形状はほぼ一致した。しかしながら、 140eV 付近の高エネルギー領域では、計算と実験のずれが 0.6eV 程度にまで広がることが明らかとなった。これは、**R-matrix** 計算に用いられている基底関数の数が 140eV 付近の励起状態を表すのに不十分であることと、適切な励起状態の波動関数が計算に盛り込まれていないことに起因すると考えられる。これにより、数値計算における波動関数の選択性、すなわち電子相関の描写に関して、これらの実験値が大きく役立つものと考えられる。

5. 理論計算による構造解析

Multi Configuration Dirac Fock (MCDF)法を用いて、内殻励起領域の計算を試みた。**MCDF** 計算は、光と原子の相互作用に相対論効果を取り入れた計算法である。その基礎方程式は系の保存量として **Dirac** のハミルトニアンを採用している。計算手順としては、原子の基底状態、および励起状態についてレイリー・リッツの変分原理を用いて1電子軌道を最適化し1電子軌道を求めた後、それらの **Configuration** を取り配置間相互作用から波動関数を決定する。その後、得られた基底・励起状態の波動関数を用いて双極子モーメントの振動子強度を計算する。

$1s$ から $4d$ までの1電子軌道を最適化し内殻励起領域のフォトンエネルギーに対する振動子強度が計算された。得られた結果を実験結果と比較した結果、実験において観測された振動子強度の大きなピークに対してはその構造がアサインされた。その結果を受けて、2つの **Rydberg** 系列 ($1s2s3snp$ および $1s2s3pns$) の計算を行った。しかしながら、それら2つの結果とも、実験で観測されたより系列ピークの振動子強度は非常に小さいことが明らかとなった。そのため、共鳴ピークの構造を調べ、**Rydberg** 系列の構造を持っているエネルギー値を特定しイオン化閾値を仮定した上で量子欠損の値を計算値より算出している。

6. 結論

本研究では4電子系の物理に関する実験的知見を得るために、**Be** 原子の外殻 $2s$ 電子および内殻 $1s$ 電子励起による光イオン化断面積を測定し、広範囲にわたる **Rydberg** 系列の詳細観測を行った。さらに、それらの実験結果を受けて、理論方面から内殻励起の光イオン化プロセスおよび構造の解析を行った。

外殻励起の領域では、 $3snp$ 系列および $3p4s$ 遷移を観測し、遷移の q 値、エネルギー、半値全幅の値を **Fitting** 解析により求めた。数値計算との比較から系列間の摂動の影響を解析し、実験方面から理論発展へ大きく寄与することが出来た。内殻励起による光イオン化実験では、 $127\sim 140\text{eV}$ にわたるエネルギー領域において、4つのイオン化

限界に収斂する一連の **Rydberg** 系列を 1 価と 2 価の光イオン化断面積について詳細に測定した。スペクトルのデータ解析の結果、外殻励起の場合と同様に、遷移ピークの自動イオン化パラメータ q 値、半値全幅、共鳴エネルギーの値が得られ、各系列のイオン化閾値、量子欠損の値が決定された。内殻励起による光イオン化プロセスについて、得られた実験的なデータをもとに、数値計算の手法を用いて 4 電子系の物理の理論解析を行った。この解析から、**Be** 原子の構造に関して、理論的な側面からのアプローチを計ることができた。

これらの実験および理論解析から、**Be** 原子の外殻・内殻電子の励起とそれに続く自動イオン化プロセスに関し、詳細かつ広範囲にわたる知見が得られた。