

リチウムの3電子光励起共鳴： “中空リチウム”の研究

東 善郎

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設*

“Hollow Lithium”: Triple Photoexcitation Resonances of Lithium

Yoshiro AZUMA

Photon Factory, National Laboratory for High Energy Physics

Triply photoexcited hollow lithium resonances have been studied utilizing synchrotron radiation at the Photon Factory. Total photoion yield spectra as well as time-of-flight (ToF) partial charge state yield spectra have been measured. The spectra have been interpreted with the aid of multiconfiguration Dirac-Fock (MCDF) calculations. Recently, laser excited Li targets have been employed to access even parity states unreachable from the ground-state.

1. はじめに

全く空の内殻を有する多電子励起状態の原子のことを称して“中空原子”(hollow atom)とよぶようである。この言葉をしばしば耳にするようになったのは、1980年代後半以降グローニンゲンの R. Morgenstern 等¹⁾、及びオークリッジの F. Meyer 等²⁾などによって多価イオンの、金属表面からの電子捕獲による中空原子の生成が報告されるようになってからであろうか。ごく最近においては、山崎等が多価イオンビームをマイクロカピラリーを通すことにより、high-spin metastable の中空原子を作り出すことに成功している³⁾。しかし、一方、考えて見れば、1960年代以来放

射光による光励起実験と理論の双方において、盛んに研究されてきたヘリウムの2電子励起状態も、確かに中空原子の1種であるといえることができるであろう。Madden and Codling によって NBS で行われたヘリウム2電子光励起測定⁴⁾は、放射光による最初の原子物理実験であった。そして、それを契機に、独立電子近似を超えた、電子相関に起因する様々な効果は、放射光を用いた原子物理の主要テーマとなっていったといえよう。2電子光励起においては双極子演算子自体は1電子演算子であるにもかかわらず、電子相関の作用を介して2個の電子が一度に励起されるわけである。したがって、2電子(または多電子)光励

* 高エネルギー物理学研究所放射光実験施設 〒305 つくば市大穂1-1
TEL 0298-64-5657 FAX 0298-64-2801

起は独立電子近似においては生ずることはなく、典型的かつ純粋な電子相関効果であるといえる。ヘリウム2電子光励起スペクトルは、通常の単一のHartree-Fock原子軌道配置によって記述することができず、Cooper等によって、強い $2snp+2pns$ リュドベリ列と弱い $2snp-2pns$ リュドベリ列とから成ると解釈された⁵⁾。理論実験相互の発展はその後も続き、Herrick and Sinanogluによって電子相関を直接基底にとりこむ相関量子数による記述がなされ⁶⁾、角度分解光電子測定⁷⁾、超球座標近接カプリングによる計算⁸⁾、超高分解能吸収測定による $2pnd$ リュドベリ列の発見⁹⁾など、最近に至るまで活発な研究が続いている。

2電子原子のヘリウムに引き続いて、3電子原子のリチウムにおいてもsingle-core plus valence excitationによる $[1s2s]$ 2電子光励起実験は早くから行われていた¹⁰⁾。しかし3電子光励起による中空リチウムの生成は、もっと最近、1994年にダブリンのグループにより、2重レーザープラズマ法でおこなわれた142.3 eVの $2s^22p^2P^o$ 共鳴の測定が最初であった¹¹⁾。これは、金属チタンを強力なパルスレーザーでアブレートすることによって生じたプラズマを光源とし、それに同期した別のパルスレーザーで金属リチウムをたたいてリチウム蒸気を瞬間的に発生させ、吸収測定をおこなったものである。引き続いて高エネルギー研PFにおいて、放射光による光イオン収量測定により、数多くの更に高い共鳴をふくむスペクトルの系統的な測定が初めておこなわれた¹²⁾。その後、HASYLABにおいても同様に光イオン測定がおこなわれた¹³⁾。また、フランスのWuilleumier等は、Super-ACOおよびアメリカのALSにおいて、光電子分光による測定をはじめている^{14,15)}。このように、本分野の研究活動は、急激に展開しつつある。実のところ、リチウム中空状態に結び付いた遷移は、金属リチウムの放電スペクトル¹⁶⁾、イオン原子衝突¹⁷⁾、ビームホイール法¹⁸⁾、リチウムイオンの電子衝撃共鳴捕獲励

起¹⁹⁾などによっても観測されていた。しかし、最近の放射光をもちいて始められた、分解能と選択性の高い光励起実験によって、はじめてその構造と励起-崩壊のメカニズムを充分明らかにする可能性がひらけたといえよう。

2. 光イオン収量測定

高エネルギー研放射光実験施設における測定は、ビームラインBL-3Bの24 m球面回折格子分光器を用いて行われた。最初に得られたスペクトルが、図1に示す光イオン総収量スペクトルである。これは、飛行時間差分析器に金属蒸気オープンを組み合わせた装置を用い光イオン総収量モードで測定した。図1のスペクトルの最初にあらわれるのは、ダブリンのグループによって発見された $2s^22p$ 共鳴である。そして更に高いエネルギー領域において数多くのピークが発見された。スペクトルの全体のパターンは、通常とかなり異なる様相を示して、はっきりしたりドバーク系列を認めることができないのでとりあえず図1に示したようにアルファベットをアサインした。特に目立つのは、152.32 eVにある“F”共鳴であり、これは $2s^22p$ “A”と同程度に強い。Fの周囲には幾つもの弱いピークが集まっている。また、161.59 eVにあるMの周囲には、別の弱いピークのグループがある。スペクトルがおよそ3つのピーク群に別れていてそれぞれが3電子の主量子数 (n, n', n'') がおよそ(222), (223), (233)に相当するピーク群であろうというあてはつくが、更にそれ以上の解釈をするためには、計算をする必要がある。

3. 多配置ディラックフォック (MCDF) 法による解析

計算は、北里大の小池文博氏が、Multi-configuration Dirac Fock法によるGRASP2プログラムをもちいて行った。中空状態と基底状態とを結び付けた計算をおこなうために、次のよう

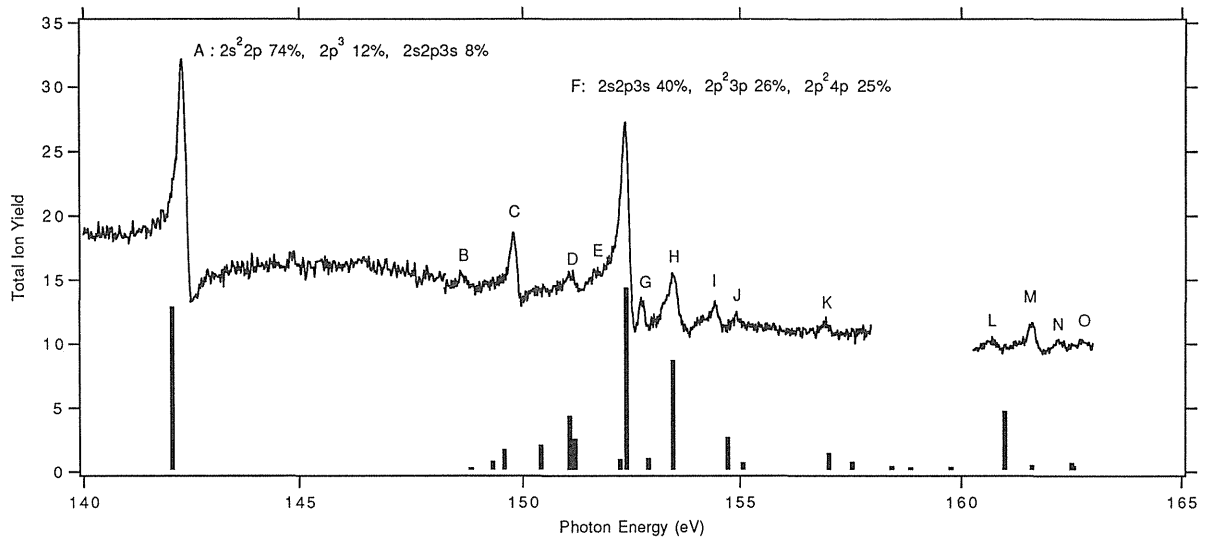


Figure 1. Total photoion yield spectrum of hollow lithium resonances. A slope obtained by visual inspection has been subtracted. The bar diagram overlaid indicates energy positions and relative intensities obtained by MCDF calculations. Calculated energy positions in this figure have 0.4 eV added.

な手続きが用いられた。

- 1) 3つの電子がそれぞれ外殻の 2s, 3s, 4s, 5s, 2p, 3p, 4p, 5p, 3d, のどれかを占める“中空配置”をまず最適化。
- 2) 次に、 $1s^2 2s$, $1s^2 3s$ などの内殻が埋っている配置と $1s 2s^2$, $1s 2s 3s$ 等の1電子内殻励起配置等を24加えて基底状態を最適化する。その際、外側の軌道は固定して中空原子軌道の性格を保つようにする。
- 3) $1s$ 軌道だけ固定しながらすべての配置(222組)を最適化。
- 4) 2)と3)のステップは、結果が充分安定するまで数回くりかえされた。

このようにして、基底状態と中空原子励起状態に共通な原子軌道波動関数の正規直交基底が得られたわけである。

表1にしめされた計算結果をみて先ず気がつくのは、励起状態における著しい配置混合(configuration mixing)である。実に、“A”などの数例をのぞいて、各ピークは多数の配置から構成され主要な配置を指定することが、ほとんど不可能である。いわば表1の横幅の大きさ自体が、リ

チウム中空状態がいかに独立電子近似からかけはなれているかを物語っていると言えよう。しかしながら、MCDF計算結果における基底状態および励起状態の配置混合を考慮することによってスペクトルのパターンの簡単な解釈をすることは可能である。(CI法: Configuration interaction approach.) リチウムの基底状態は通常 $1s^2 2s$ の単一配置であらわされるが、これを本MCDF計算によって得られた、外殻軌道に中空原子の性格を強く有する正規直交波動関数の配置によって展開すると、つぎのような多数の配置の和としてあらわされることになる。

$$\begin{array}{ll}
 1s^2 2s & (41.76\%), & 1s^2 3s & (56.35\%) \\
 1s^2 4s & (0.37\%), & 1s^2 5s & (0.17\%) \\
 1s 2s^2 & (0.37\%), & 1s 2s 3s & (1.01\%)
 \end{array}$$

この描像において、中空状態への光励起は、基底状態にわずかに含まれる、下線を施した内殻1電子励起配置からの $1s \rightarrow np$ 1電子遷移を介して起こると考えることができる。たとえば、 $2s^2 2p$ 中空状態は、基底状態に0.37%含まれる $1s 2s^2$

Table 1. Positions of resonances seen in figure 1 compared to MCDF calculations. The E_0 value for "A" resonance was obtained by a Fano profile fit while other resonances were measured by overlapping a cursor to the peak maximum. The experimental $h\nu$ scale has absolute and relative accuracies of ± 0.1 and ± 0.03 eV, respectively.

Res.	E_0 [eV] Expt.	E_0 [eV] MCDF	Osc. Strength MCDF	Dominant Configuration Admixtures (in %) in the Excited States			
A	142.34	142.057	1.29346	74 2s ² 2p,	12 2p ³	8 2s2p3s	
B	148.7	148.839	0.0322998	30 2p ³ ,	15 2s ² 3p,	14 2p ² 3p,	14 2s2p3s
		149.32	0.0850236	40 2s ² 4p,	13 2p ² 3p,	12 2p ² 4p	
		148.587	0.178457	36 2s2p4s,	20 2s ² 4p,	10 2s ² 5p	
C	149.79	150.408	0.213238	65 2s2p5s,	20 2s2p4s		
D1	151.10	151.065	0.441158	36 2s2p3d,	20 2s2p5s,	12 2s2p3s	
D2		151.189	0.264139	50 2s2p3d,	16 2p ² 3p		
E	151.7	152.205	0.101476	56 2p ² 4p,	28 2p ² 3p	9 2s2p3s	
F	152.32	152.355	1.44477	40 2s2p3s,	29 2p ² 3p,	25 2p ² 4p	
G	152.72	152.87	0.111862	83 2p ² 5p,	9 2p ² 4p		
H	153.43	153.442	0.874026	37 2p ² 3p,	29 2s2p3s,	13 2p ² 4p,	11 2p ² 5p
I	154.43	154.72	0.275326	40 2s2p3d,	26 2s2p4s,	12 2s2p5s	
J	155.0	155.068	0.0742149	85 2s2p5s			
K	157.0	157.044	0.15073	35 2p ² 3p,	21 2p ³ ,	12 2s2p3s	
		157.576	0.0836255				
		158.449	0.0490548				
		158.865	0.0386245				
L	160.6	159.767	0.0414757	40 2s3s3p,	31 2p3s ² ,	19 2p3p ²	
M	161.59	160.967	0.477756	35 2p3p ² ,	33 2p3s ² ,	23 2s3s3p	
N	162.2	161.571	0.0563835	44 2p3p ² ,	22 2p3s3d,	12 2s3s3p,	12 2s3p3d
		162.065	0.0145424				
O1	162.7	162.51	0.073798	25 2s3p4s,	23 2p3s4s,	16 2p3s3d,	12 2p3p ²
O2		162.632	0.0536372	25 2p3s4s,	22 2s3p4s,	17 2p3d ² ,	13 2p3p ²

配置からの内殻1電子励起によって生じ、2s2p3s 中空状態は、1%含まれる 1s2s3s 配置からの内殻1電子励起によって生ずる。ここにおいて、1s2s3s 配置成分の割合が 1s2s² よりもかなり大きいことが注目される。中空原子においては、内殻によるスクリーニングがなくなって外殻軌道が著しく収縮する。ちなみに計算された平均軌道半径を比較すると、つぎのようになる。

	G.S. 2s	Hollow 2s	Hollow 3s
Mean Radius (au)	5.32	2.21	5.94

従って、中空原子の 3s 軌道のほうが、通常の基底状態の 2s 軌道とのオーバーラップが中空原子の 2s 軌道よりも大きくなるのである。そして

中空配置の光励起の強度は、次のようにあらわされる。

$$|\langle 2s^2 2p | r | GS \rangle|^2 = 0.0037 \times |\langle 2s^2 | 2s^2 \rangle$$

$$\langle 2p | r | 1s \rangle|^2$$

$$|\langle 2s 2p 3s | r | GS \rangle|^2 = 0.01 \times |\langle 2s 3s | 2s 3s \rangle$$

$$\langle 2p | r | 1s \rangle|^2$$

こうしてみると、2s²2p 共鳴より100/37倍も強い 2s2p3s 共鳴が出そうに見えるが、さらに励起状態の配置混合を考慮しなければならない。共鳴の強度は、1電子 1s→2p 双極子遷移確率とそれに結び付いた基底状態における軌道配置成分の割合および励起状態における軌道配置成分の割合との積に比例する。A 共鳴とF共鳴の強度について

て、それぞれの励起状態における軌道配置成分 (A: 74% $2s^2 2p$, 8% $2s 2p 3s$ and F: 40% $2s 2p 3s$) を考慮すると次のように現わされる。

$$\begin{aligned} & |\langle A | r | GS \rangle|^2 \\ &= 0.74 \times 0.0037 \times |\langle 2s^2 | 2s^2 \rangle \langle 2p | r | 1s \rangle|^2 \\ &\quad + 0.08 \times 0.01 \times |\langle 2s 3s | 2s 3s \rangle \langle 2p | r | 1s \rangle|^2 \\ & |\langle F | r | GS \rangle|^2 \\ &= 0.40 \times 0.01 \times |\langle 2s 3s | 2s 3s \rangle \langle 2p | r | 1s \rangle|^2 \end{aligned}$$

オーバーラップ積分は規格化されて皆1であるとすると、AとFの強度比は、ほぼA:F=7:8となり、測定されたスペクトルにきわめてちがいない。そして $2s 2p 3s$ に結び付いた振動子強度の残りは、Fの周囲のピークに分配されている。このように、光励起に際した軌道の収縮に起因して、振動子強度が高い共鳴へより多く分配されるパターンは、中空原子光励起スペクトルの特徴であるということができよう。

4. 飛行時間差測定

光イオン総収量スペクトルに引き続いて、さらに中空リチウムの崩壊過程に関する知見を得るために、飛行時間差測定をおこなった。図2において、A共鳴上の光イオン総収量スペクトルとそのファノフィットがしめされている。そして、まず、A共鳴上の飛行時間差測定によって得た Li^+ と Li^{++} の収量測定結果がb), c)に、光エネルギーに対して示されている。ところで3電子励起状態から2価イオンはどのようにして生ずるであろうか？ かんがえられるメカニズムとしてはふた通りであろう。そのひとつは、1) 1つの電子が内殻におちて他の2電子が同時に外にとびだすワンステップ2重自動電離過程であり、他は、2) 3電子励起状態から自動電離によって2電子励起1価イオンになり、それがさらに自動電離によって2価イオンになるというツーステッププロセス(2階自動電離)である。このA共鳴

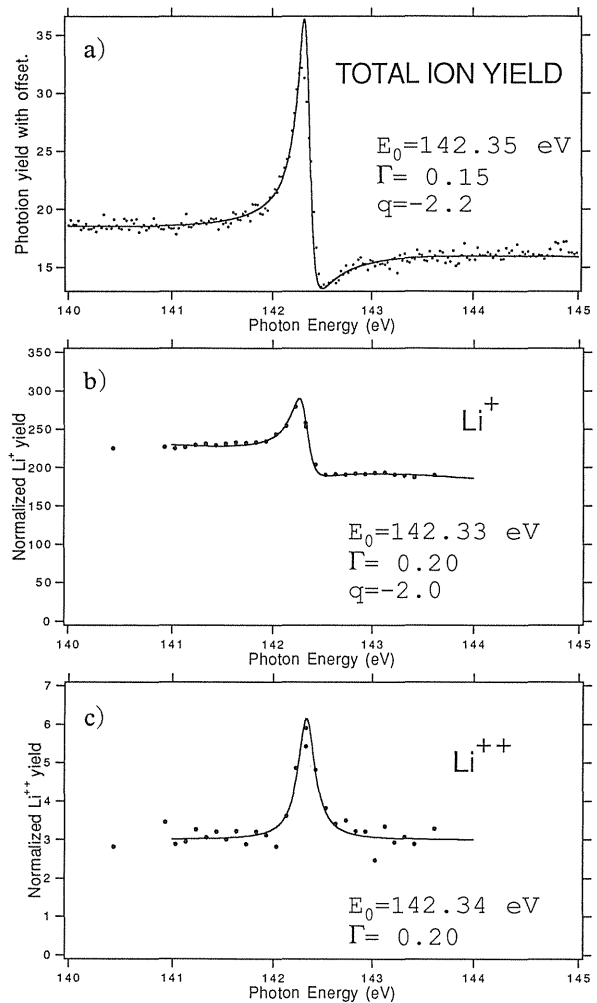


Figure 2. a) The $2s^2 2p$ A resonance in the total photoion yield spectrum with the unfolded Fano profile fit. b) The A resonance in the Li^+ channel obtained by the TOF method, with the unfolded Fano profile fit. c) The A resonance in the Li^{++} channel with the unfolded Lorentzian fit.

は、最も低い2電子励起1価イオンのしきい値よりもさらに低い光エネルギーに位置しているため、2階自動電離は不可能であり、 Li^{++} は2重自動電離によってのみ生ずるということができる。興味深いことに共鳴の形状が、 Li^+ 収量スペクトルと Li^{++} 収量とでは顕著に異なっている。 Li^+ スペクトルは、当然、光イオン総収量スペクトルと似たファノ型非対称形である。これは、イオン総収量の98%が1価イオンであることから予想される通りである。対して、 Li^{++} 収量スペクトルはLorentzianに近い対称な形状をして

いる。この理由としては、1電子光電離の光電離断面積よりも2電子光電離断面積の方が遥かに小さいということがあろう。ファノ型非対称性は、自動電離プロセスと直接光電離プロセスの干渉によって生ずるが、2重自動電離の場合は、あまりに干渉すべき相手の2電子光電離断面積が小さいのである。この、A共鳴に関する光イオン測定に続いて、Wuilleumier等がSuper ACO及びALSにおいてCIS光電子測定を行っている^{14,15)}。かれらは、 $1s2s\ ^1S\ Li^+$ メインチャンネルがファノ型非対称であるのに対し、 $1s2p\ ^3P\ Li^+$ チャンネルがほぼ対称になることを観測し、やはり相当する光電離部分断面積の違いによるものとして、定性的に説明している。表2に示すのは、各グループによるA共鳴の位置と共鳴線幅の測定結果である。概して新しい高分解能測定ほど共鳴線幅がせまくなって行く傾向が面白い。おそらく誰もがピークフィットのdeconvolutionの際に自分の測定の分解能を高く見積もり過ぎるのであろう。

更に、飛行時間差スペクトルにゲートをかけながら放射光の波長スキャンをすることによって、150 eV-170 eV光エネルギー領域の Li^+ 、 Li^{++} 部分収量測定が進められた。図3の上段には、 Li^+ 、 Li^{++} の比較、下段には Li^{++} だけ縦に拡大したスペクトルを示してある。ここで注目すべき傾向として Li^+ 、 Li^{++} におけるピークの高さの比が、高い光エネルギーに行くに従って顕著に増えて行くということがあろう。Aにおける比、0.03からはじまって、じつに40倍に達する増え方で

ある。この急激な変化は光エネルギーがふえて行くにしたがって、次から次へと1価イオンの色々な2電子励起状態のしきい値を超えて行くことに起因する。先に述べた2階自動電離による2ステップ崩壊が、しかもエネルギーが高くなるにしたがって数多くのチャンネルを通じて可能になるからである。さらに、152 eV以上の共鳴に関しては、 Li^{++} 部分収量スペクトルのほうが共鳴の(S/N)比が良くなっていることも注目すべきであろう。これは、(ピーク高/バックグラウンド)が、光イオン総収量スペクトルや Li^+ 部分収量スペクトルよりも遥かに有利になるからである。また、共鳴の形状が対称なので、エネルギー値の決定もより容易になる。共鳴ピークのなかでやや特異なのは、Gである。この共鳴の(Li^{++} ピーク高/ Li^+ ピーク高)比は、周囲の共鳴に比べて極度に大きい。これは、Gの配置成分に含まれている高い軌道のシェークオフ率が大きいことによるのかもしれない。ちなみに、MCDF計算によれば、G共鳴は83%が $2p^25p$ 配置である。

更により高い光エネルギー領域、172 eVにおいては、K殻とL殻の両方が全く空の(333)共鳴が Li^{++} 部分収量スペクトルに発見された。図4にしめしたのは、PFのアンジュレータービームラインBL16Bをもちいて測定した最新のスペクトルである。次第に波束描像が有効になってくるであろうより高い3電子励起状態の更なる追及は大変興味深い。

Table 2. Position and width measurements of the $2s^22p$ "A" resonance.

	E_0 (eV)	Γ (eV)	
Dual Laser Plasma (DUBLIN)	142.32(3)	0.20 (6)	Ref. 11)
Photoion (Photon Factory)	142.35(10)	0.15 (2)	Ref. 12)
Photoelectron (Super-ACO)	142.30(5)	0.20 (4)	Ref. 14)
Photoion (HASYLAB)	142.32(3)	0.14 (3)	Ref. 13)
Photoelectron (ALS)	142.28(3)	0.118(3)	Ref. 15)

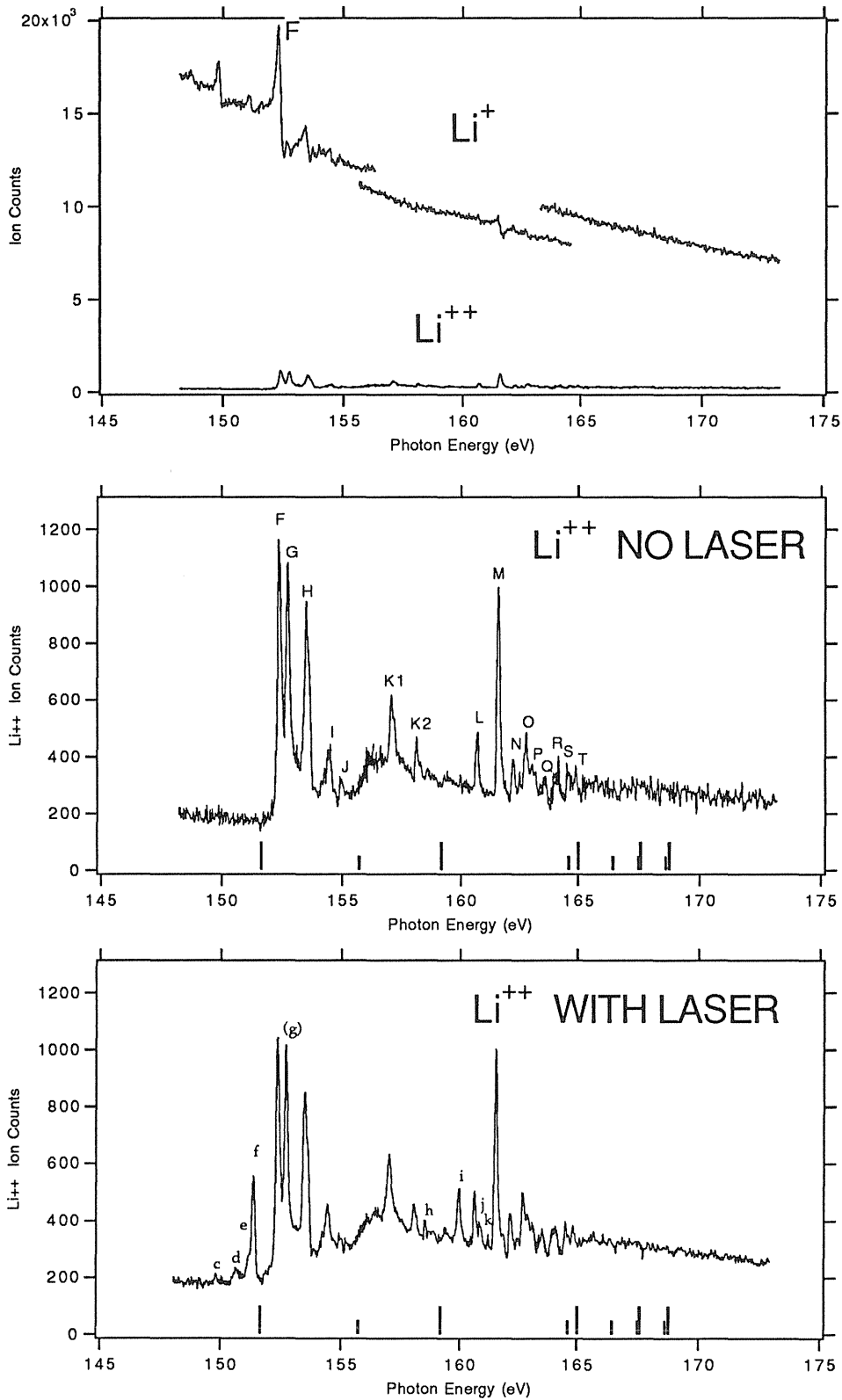


Figure 3. Top: Comparison of Li^+ yield spectrum and Li^{++} yield spectrum obtained by the gated time-of flight method. Middle: The Li^{++} yield spectrum magnified vertically. The bars represent doubly excited Li^+ thresholds. Bottom: The Li^{++} yield spectrum with laser excitation.

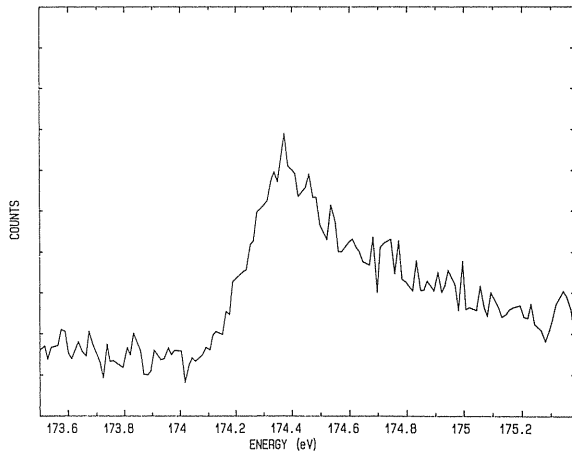


Figure 4. The (333) resonance with completely empty K and L shells, measured in the Li^{++} partial yield channel.

5. レーザー励起ターゲット：even parity 共鳴の測定

中空リチウムの飛行時間差測定のための段階として、レーザー励起ターゲットを用いた実験がはじめられた。価電子をレーザー光励起 ($2s \rightarrow 2p$) し、始状態の対称性を変えることによって通常の基底状態からの双極子遷移によっては選択則の禁止のため達することのできない自動電離共鳴をも励起することができるようになる。リチウムその他のアルカリ金属においては、 2S even parity の基底状態からの放射光励起でアクセスできるのは、すべて 2P odd parity 自動電離共鳴である。しかし価電子の、きわめて強い $ns \rightarrow np$ 遷移を色素レーザー又はチタンサファイアレーザーによって容易に飽和させて、 2P_0 の始状態を得ることができる。

このレーザー励起状態からさらに放射光で励起することによって、様々の even parity 共鳴を測定することができる。高エネルギー物理学研究所放射光実験施設において行われた実験では、始めて多数の even parity 3 電子励起共鳴を確認することができた。BL3B のプラットフォームの下に設置したレーザー設備の概要は図 5 に示されている。大型のアルゴンイオンレーザーによってポンピングされた高分解能 CW リング型色素レーザー

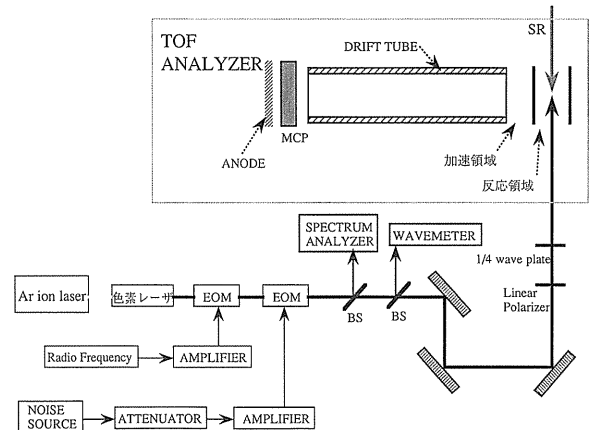


Figure 5. Laser system at the BL3B beamline of the Photon Factory.

の光ビームは飛行時間分光器の反応領域において、放射光ビームと同軸でオーバーラップする。深い赤色 (6708 Å) の価電子 $2s \rightarrow 2p$ 遷移の $F''=2$ 超微細構成成分が色素レーザーによって励起された。レーザー励起状態のポピュレーションは、約 15% であった。励起ポピュレーションは、レーザーを照射したときの odd parity 共鳴の縮小を調べることによって見積もることができた。最も低い 2 電子励起 Li^+ しきい値よりも低い光エネルギー領域においては、光イオン総収量法による測定を行い (図 6)、高い光エネルギー領域においては Li^{++} 部分収量測定の方が S/N 比が有利なので、 Li^{++} ピークにゲートをかけた飛行時間分光によって測定した (図 3 下段)。光イオン総収量スペクトルにまず even parity 共鳴、“a”、“b” があらわれ、 Li^{++} 部分収量スペクトルには、さらにずっと強い “f” 共鳴が続く。このように、even parity 共鳴においても、高い共鳴に振動子強度が多く配分されるという中空原子光励起スペクトルの特徴的パターンがみられる。これは even parity 共鳴の MCDF 計算によってもサポートされている。

6. 偏光ラベル分光

レーザー光は、偏光を回転すること、円偏光を得ること等が、きわめて容易である。したがっ

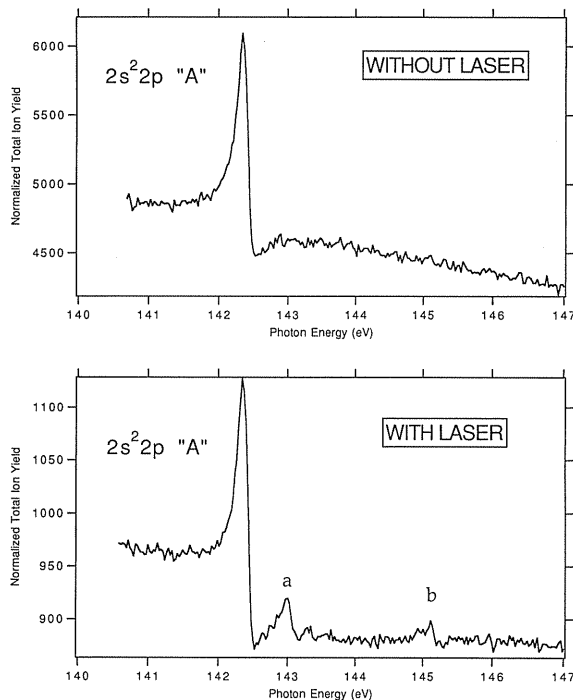


Figure 6. The 140 eV–147 eV region measured by total photoion yield method, with the laser on (bottom panel) and off (top panel).

て、optical pumping によって標的原子を偏向 (polarize, align) させることができる。今後そのような標的をもちい、磁気量子数の遷移則と放射光がほぼ直線偏向であることを利用してスペクトルの解析をすることができよう。(polarization labeling spectroscopy)。このように、標的原子のレーザー励起によって分光学の可能性を大変大きく広げることができる。今のところ励起標的の割合は、前記のように約15%にすぎなかったことがわかっている。そして、その場合にも radiation trapping の効果が作用していると考えられる (radiation trapping とは、標的密度が高い場合に、蛍光が何度も反応領域の近接した原子によって再吸収されること)。この、radiation trapping 効果は、励起標的の割合の増大のためには有効だが、標的の偏向を解消してしまう。

励起標的の割合を50%に近づけ、リチウム3重励起領域の even parity resonances を良い S/N 比で測定し、更に $^2P_{1/2, 3/2}$ の微細構成成分の選択的励起と標的偏向を組み合わせたデータを得

ることができれば、3電子光励起スペクトルの解析にきわめて大きく資することであろう。その為には、標的密度を上げずに励起標的の割合を上げなければならない。励起標的の割合が低い主な理由はふたつ考えられる。(1)レーザー線幅が遷移のドップラー幅よりもはるかに狭い。(2)レーザー励起状態からは、基底状態の $F=1, 2$ hyperfine component の両方に落ちるが、励起は一方だけからしか行えなえず、励起しないほうの hyperfine component にポピュレーションがたまってしまう。

その双方を解決するためには、EOM (Electro-optic modulator) を用いて、レーザー線のスペクトル成形を行う方法が有効である²⁰⁾。これは RF 電場をかけた EOM 結晶を通過させることによって、レーザー光の位相をモジュレートし、サイドバンドを発生させる方法である。hyperfine splitting の大きさに相当する周波数の RF をかけることによって、レーザー線を2コンポーネントに分かれさせ、 $F=1, 2$ の両方を同時にポンピングすることができる。また、白色 RF を用いることによって線幅を広げ、ドップラー幅に合わせることも可能である。最近これらの方法を用いた予備的実験を試みたところ、励起ポピュレーションが容易に30%を超え、f 共鳴等の強度に顕著なレーザー偏光依存性が認められたので、非常に有望であるといえよう。

7. 将来の展望など

実験の展開ともなって理論計算の活動も活発になりつつある。本稿において紹介した小池による MCDF 計算は、その最初のものである。それは、多くの共鳴を1 eV 以内の精度であたえ、共鳴強度のおよそのパターンを再現し、それに比較的簡単な物理的解釈をあたえたことにおいて、きわめて有用であったといえる。引き続き、Kiernan 等による MCHF 計算¹³⁾は、共鳴の位置を0.1 eV の数倍程度の精度で得ているが、共鳴強

度のパターンに関しては、全く実験結果からかけはなれているので、信頼性が低い。その後 Voky Lan 等が、R-matrix による計算をおこない共鳴のエネルギー位置を0.1 eV の数倍以内の精度で得ている。そしてスペクトルの形をかなり良く再現しているが、R-matrix 計算結果から何らかの物理的解釈を導き出すことは容易ではない。超球座標近接カプリング法による計算の試みは、電通大のグループ²¹⁾および C. D. Lin 等²²⁾によって進められている。Lin 等が報告した超球座標計算は、最初の試みであり、精度が良いとは言えないが、将来、ヘリウムの場合と同様、相関量子数が設定されて3電子の回転や振動の normal mode としてスペクトルが物理的にわかりやすく解釈されることを期待したい。さらに Chung 等は、鞍点複素回転法による計算で、エネルギー位置を0.1 eV 以内の高い精度で得ているが、残念ながら強度を全く報告していない²³⁾。

Wuilleumier 等の米国 ALS でのプロジェクトにおいては、光電子分光測定をすすめ、角度分解測定も行うことが計画されている²⁴⁾。高エネルギー研 PF においては、レーザーポンピングによる偏光ラベル分光を進め、新しいアンジュレータビームラインを用いて高分解能測定を行いたい。

高エネルギー研PFにおける本研究は、北里大の小池文博、明星大の長田哲夫、東大工学部の長谷川秀一、テネシー大の Ivan Sellin, KEK-PF の柳下明、繁政英治、アリプクトルクの各氏と共同でおこなわれている。

文献

- 1) S. T. De Zwart, A. G. Drentje, A. L. Boers and R. Morgenstern, *Surf. Sci.* **217**, 298 (1989).
- 2) F. W. Meyer, S. H. Overbury, C. C. Hanever, P. A. Zeijlmans van Emmichoven and D. M. Zehner, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 723 (1991).
- 3) Y. Yamazaki, S. Ninomiya, F. Koike, H. Masuda, T. Azuma, K. Komaki, K. Kuroki and M. Sekiguchi. *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1199 (1996).

- 4) R. P. Madden and K. Codling, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 516 (1963).
- 5) J. W. Cooper, U. Fano and F. Prats, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 518 (1963).
- 6) D. R. Herrick and O. Sinanoglu, *Phys. Rev.* **A11**, 97 (1975).
- 7) A. Menzel, S. P. Frigo, S. B. Whitfield, C. D. Caldwell, M. O. Krause, J-Z. Tang and I. Shimamura, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1479 (1995).
- 8) J. Z. Tang, S. Watanabe, M. Matsuzawa and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1633 (1992).
- 9) M. Domke, C. Xue, A. Puschmann, T. Mandel, E. Hudson, D. A. Shirley, G. Kaindl, C. H. Greene, H. R. Sadeghpour and H. Petersen, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1306 (1991).
- 10) D. E. Ederer, T. Lucatoro and R. P. Madden, *Phys. Rev. Lett.* **25**, 1537 (1970).
- 11) L. M. Kiernan, E. T. Kennedy, J.-P. Mosnier, J. T. Costello and B. F. Sonntag, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2359 (1994).
- 12) Y. Azuma, S. Hasegawa, F. Koike, G. Kutluk, T. Nagata, E. Shigemasa, A. Yagishita and I. A. Sellin, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3768 (1995).
- 13) L. M. Kiernan, M.-K. Lee, B. F. Sonntag, P. Sladeczek, P. Zimmermann, E. T. Kennedy, J.-P. Mosnier and J. T. Costello, *J. Phys.* **B28**, L161 (1995).
- 14) L. Journal, D. Cubaynes, J.-M. Bizau, S. Al Moussalami, B. Rouvellou, F. J. Wuilleumier, L. Voky, P. Faucher and A. Hibbert, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 30 (1996).
- 15) S. Diehl, D. Cubaynes, J.-M. Bizau, L. Journal, S. Al Moussalami, F. J. Wuilleumier, E. T. Kennedy, N. Berrah, C. Blancard, T. J. Morgan, J. Bozek, A. S. Schlachter, L. Voky, P. Faucher and A. Hibbert *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3915 (1996).
- 16) D. E. Bedo and D. H. Tomboulian, *Phys. Rev.* **109**, 35 (1958).
- 17) M. Rodbro, R. Bruch and P. Bisgaard, *J. Phys.* **B12**, 2413 (1979) and S. Mannervik, R. T. Short, D. Sonnek, E. Trabert, G. Mueller, V. Lodwig, P. H. Heckmann, J. H. Blanke and K. Brand, *Phys. Rev.* **A39**, 3964 (1989).
- 18) M. Agentoft, T. Andersen and K. T. Chung, *J. Phys.* **B17**, L433 (1984).
- 19) A. Mueller et al., *Phys. Rev. Lett.* **63**, 758 (1989).
- 20) C.-J. Liu, N. B. Mansour, Y. Azuma, H. G. Berry, D. A. Church and R. W. Dunford, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1354 (1990).
- 21) S. Watanabe et al. Private communications.
- 22) X. Yang, C. G. Bao and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3096 (1996).
- 23) K. T. Chung and B.-C. Gou, *Phys. Rev.* **A53**, 2189 (1996).
- 24) F. J. Wuilleumier et al. Private communications.