

JAERI-Research
98-028



多チャンネル量子欠損理論によるGd原子の
J=1自動電離リドベルグ系列の解析

1998年7月

宮部昌文・大場正規・若井田育夫

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

多チャンネル量子欠損理論によるGd原子の $J = 1$ 自動電離リドベルグ
系列の解析

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部
宮部 昌文・大場 正規・若井田育夫

(1998年5月6日受理)

3波長3段階共鳴電離分光法を用いてガドリニウムの自動電離リドベルグ系列を観測した。1価イオンの第1、第2励起状態に収束する系列 ($[f^7ds(^{\circ}D_{J_c})nf]_{J=1}(J_c=7/2, 9/2)$) を $J = 0$ の中間準位から観測し、主量子数 $n = 30 - 35$ 付近に、共鳴ピークの左右非対称性が反転する特徴的な摂動構造を見いだした。この摂動構造を位相シフト基底MQDT法によって解析し、リドベルグ状態、摂動準位、連続状態間の相互作用を決定した。この結果、摂動による電離スペクトルの変形によって、局所的に非常に強い自動電離遷移が生じる可能性があることを見いだした。

Analysis of J=1 Autoionizing Rydberg Series of Atomic Gadolinium with
Multichannel Quantum Defect Theory

Masabumi MIYABE, Masaki OBA and Ikuo WAKAIDA

Department of Material Science Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 6, 1998)

Autoionization spectra of Rydberg series ($[f^7ds(^9D_{J_c})nf]_{J=1}(J_c=7/2,9/2)$) converging to the 1st and 2nd excited states of Gd ion have been measured using 3-color 3-step resonance ionization schema via intermediate states of J=0. The observed characteristic features of the spectra, whose local asymmetry reversed around $n=30-35$, have been analyzed with the phase-shifted multichannel quantum defect theory (MQDT) in order to determine the strength of the configuration interaction among the high-lying states. This result shows that highly efficient ionization, applicable to the laser isotope separation of Gd, can be achieved around such perturbed spectral region by using a narrow-band laser.

Keywords: Gadolinium, Rydberg State, Ionization Cross-section, Configuration Interaction, MQDT

目 次

1. はじめに	1
2. 理 論	2
2.1 固有チャンネルMQDT法	2
2.2 MQDT表記の任意性	3
2.3 位相シフト基底MQDT法	4
3. 実 験	8
4. 結果と議論	8
4.1 $J=1$ の自動電離リドベルグ系列の摂動構造	8
4.2 多チャンネル量子欠損理論解析	9
5. まとめ	13
謝 辞	13
参考文献	14

Contents

1. Introduction	1
2. Theory	2
2.1 Eigen Channel MQDT	2
2.2 Variety of MQDT Expression	3
2.3 Phase Shifted MQDT	4
3. Experimental	8
4. Results and Discussion	8
4.1 Perturbed Structure of Autoionizing Rydberg Series of $J=1$	8
4.2 MQDT analysis	9
5. Summary	13
Acknowledgements	13
References	14

This is a blank page.

1 はじめに

イオン化極限よりエネルギーの高い状態に原子を励起させると、配置間相互作用によってその励起状態から連続状態への無輻射遷移が起こり、軌道電子の1つが原子からはじき出されて自動電離が起こる。このような自動電離状態の共鳴構造は、一般に、自動電離状態を介さずに連続状態へ直接光学遷移する過程との干渉によってローレンツ形から外れ、左右非対称に変形する。この自動電離状態に特有のスペクトル形状は、Beutlerによって発見され¹⁾、Fanoによって理論的に解釈されており²⁾、一般にはポイトラーファノ型形状と呼ばれている。

このファノ型形状は、通常の価電子励起状態だけでなく、イオンの励起状態に高エネルギー電子が弱く結合した高励起状態の系列（自動電離リドベルグ系列）でもよく観測される。その系列構造の大きな特徴は、同一系列でもメンバー毎に形状が変化することである。特に、インターローパーと呼ばれる線幅の広い摂動準位が存在する領域では、系列の途中で非対称形状が反転（ q 値反転）することがComneradeらによって指摘された^{3,4)}。こうした自動電離リドベルグ系列のスペクトル構造は、束縛リドベルグ系列を扱う固有チャンネル量子欠損理論(MQDT)とファノの形状理論とを融合した、位相シフト基底MQDT理論の登場によって解析できるようになった^{5,8)}。この方法は1980年代以降、電離スペクトルの解析によく用いられているが、その適用原子は、これまでのところ希ガス、アルカリ（土類）金属、及び一部の遷移金属など、原子構造の比較的単純なものに限られている⁶⁻¹³⁾。

我々はこれまで、ガドリニウムの同位体分離のために多くの電離遷移を観測し、複雑な原子構造の元素でも、多重度の小さな状態の選択励起によってシンプルな系列構造が観測できることを明らかにしてきた¹⁴⁾。そこで本研究では、このようにして観測した $J=1$ の自動電離リドベルグ系列の摂動構造に位相シフトMQDT法を適用し、高励起状態間の相互作用の解析を行った。またこのような相互作用が、摂動領域のリドベルグ状態の電離断面積を増大させる効果についても調べた。我々の知る限り、ガドリニウム原子の電離スペクトルの解析にMQDTを適用した

のは、本研究が初めてである。

2 理論

2.1 固有チャンネル MQDT 法

MQDTではリドベルグ状態の波動関数を表すのに2つの異なる基底が重要な役割を果たす。

1つは、リドベルグ電子がイオンコアから遠く離れ、クーロン力で結びついている状態を表す衝突チャンネルと呼ばれる基底であり、もう1つは、電子がイオンコア近くにあり、電子-電子間相互作用が強く働いている状態を表す緊密結合チャンネルと呼ばれる基底である。それぞれの基底は中間領域で滑らかに繋がる。離散状態では、波動関数が無限遠で発散しないために次のような境界条件が課される¹⁵⁾。

$$\sum_{\alpha=1}^N A_{\alpha} U_{i\alpha} \sin \pi(v_i + \mu_{\alpha}) = 0 \quad (i, \alpha = 1, 2, \dots, N)$$

但し $U_{i\alpha}$: 2つの基底 i, α のユニタリ変換行列要素
 μ_{α} : 固有量子欠損
 v_i : 有効主量子数

すると、全ての基底の振幅がゼロではない解(non-trivial solution)を持つ条件として

$$F(v_1 v_2 \dots v_N) \equiv |U_{i\alpha} \sin \pi(v_i + \mu_{\alpha})| = 0 \quad (1)$$

が得られる。これがコンパチビリティ方程式と呼ばれるMQDTの基本式である。この式で U や μ_{α} などのパラメータには、2つの系列間に働く相互作用の強さや、内部領域での近距離相互作用の強さ等の情報が含まれている。また v_i は次のようなリドベルグリッツの関係を通してリドベルグ準位のエネルギーと結ばれている。

$$E = I_{i\infty} - \frac{R}{v_i^2} \quad (2)$$

但し R : リドベルグ定数 $R = 0.5(a.u.)$
 $I_{i\infty}$: 収束極限

2 極限 2 チャンネルの場合には(2)式は次のように変形できる。

$$G(v_1, v_2) \equiv v_1 - \frac{1}{\sqrt{1-v_2^2} \Delta} = 0 \quad (3)$$

$$\Delta = \frac{I_{2\infty} - I_{1\infty}}{R}$$

観測された系列準位のそれぞれに、2つの極限を基準とする有効主量子数 (v_1, v_2) の組を与え、その小数点以下だけに注目して (v_1, v_2) 平面にプロットすると、全ての点は(1)、(3)式で表される2本の曲線の交点上に乗る (Lu-Fanoプロット)。そこでこのことを逆に利用して、測定値から、行列要素 U や固有量子欠損 μ_α などのパラメータをフィティングによって決めることができる。この方法は今日の束縛リドベルグ状態の標準的な解析方法となっており、Lu-Fanoプロットはこのフィティング精度や相互作用の特徴を視覚化するために用いられる。例えば、Lu-Fanoプロット上の反発交差が大きい場合は、2つの系列準位が接近した場合の波動関数の混じり合いが大きく、系列間の相互作用が強いことを表す。

2.2 MQDT 表記の任意性

上述のファノの定式化には任意性があり、MQDTパラメータの取り方を変えるとほかにも色々な表記が可能である。例えば次のような散乱行列 S を用いた Seaton の表記方法はその良い例である¹⁶⁾。

$$F(v_1, v_2, \dots, v_N) \equiv |\delta_{ij} \tan \pi v_i + R_{ij}| = 0 \quad (i, j = 1, 2, \dots, N) \quad (1)'$$

但し δ_{ij} : クロネッカー関数

R_{ij} : リアクタンス行列

$$R_{ij} = -i \left(\frac{S-1}{S+1} \right)_{ij}$$

但し i :虚数単位

前章で述べたファノの表記法（固有チャンネルMQDT法）の優れた点は、ユニタリ変換行列として、よく知られている角運動量の変換行列が使えることである。実際、2チャンネルの場合にUは次のような2次元の回転行列で書ける。

$$U = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad \theta : \text{回転角}$$

これを用いて(1)式を書き直すと

$$F(v_1, v_2) = \begin{vmatrix} \cos \theta \sin \pi(v_1 + \mu_{\alpha 1}) & \sin \theta \sin \pi(v_1 + \mu_{\alpha 2}) \\ -\sin \theta \sin \pi(v_2 + \mu_{\alpha 1}) & \cos \theta \sin \pi(v_2 + \mu_{\alpha 2}) \end{vmatrix} = 0$$

となる。一方(1)'式は

$$F(v_1, v_2) = \begin{vmatrix} \tan \pi v_1 + R_{11} & R_{12} \\ R_{12} & \tan \pi v_2 + R_{22} \end{vmatrix} = 0$$

である。この2つの関数は異なるように見えるが、 $(\theta, \mu_{\alpha 1}, \mu_{\alpha 2})$ は適当な変形によって (R_{11}, R_{22}, R_{12}) に置き換えられるので等価である。

2.3 位相シフト基底 MQDT 法

この様な表記の任意性のため、1980年代前半、自動電離スペクトルの解析に適した表記法として位相シフト基底によるMQDT法が考案された。この方法は位相シフト衝突チャンネル（解離チャンネル）の量子欠損 μ_i と反応行列R（対角要素ゼロ）の非対角行列要素 R_{ij} を利用するのが特徴である。解くべき式は次の行列方程式である。

$$\{R + \tan[\pi(v_i + \mu_i)]\}a_i = 0 \quad (4)$$

ここで、 $a_i = \cos[\pi(v_i + \mu_i)]A_i$ は位相シフトチャンネルの振幅を表すベクトル、 A_i は固有

チャンネルの振幅ベクトルである。全ての基底ベクトル a_i が0とならない解を持つ条件は、この行列式が0になることである⁶⁾。

$$F(v_1 \cdots v_N) \equiv \begin{vmatrix} \tan \pi(v_1 + \mu_1) & R_{12} & R_{1N} \\ R_{12} & \tan \pi(v_2 + \mu_2) & \vdots \\ R_{1N} & \cdots & \tan \pi(v_N + \mu_N) \end{vmatrix} = 0 \quad (5)$$

この式では、内部領域における近距離効果（量子欠損）は基底に、各チャンネル間相互作用はR行列の非対角要素にだけそれぞれ含まれるので、スペクトル解析にとって非常に都合がよい。遷移の双極子モーメントDを近距離相互作用のパラメータとすると、光吸収断面積は次のように書ける⁶⁾。

$$\sigma = K \left| \sum_{i=1}^n a_i D_i \right|^2 = K \left| \sum A_i \cos[\pi(v_i + \mu_i)] D_i \right|^2 \quad (6)$$

$$\text{但し } K = 4\pi^2 c \hbar \omega$$

これを使って第1チャンネルが連続状態(オープンチャンネル)、第2チャンネルがリドベルグ状態(クローズチャンネル)の式を具体的に書くと次のようになり、見かけ上、Fanoのプロファイル関数と同じ式が得られる²⁾。

$$\sigma = K \frac{(D_1 - R_{12} \cot \pi(v_2 + \mu_2) D_2)^2}{1 + R_{12}^4 \cot^2 \pi^2(v_2 + \mu_2)} = K D_1^2 \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} \quad (7)$$

$$\text{但し } q = -\frac{D_2}{R_{12} D_1}$$

$$\varepsilon = \frac{\tan \pi(v_2 + \mu_2)}{R_{12}^2}$$

q: ファノの形状パラメータ (q値)

(7)式より ε を横軸にして幾つかのq値のプロファイルを描くと図1のようになる。ここで極小

の位置は $\varepsilon=q$ であり、極小値はゼロである（ファノ極小）。さらにこの式のエネルギー ε は ν_2 をパラメータとする \tan 関数になっているので、 ν_2 を横軸にすると、この様なファノ型構造が周期的に現れる、系列全体の共鳴スペクトルを表すことがわかる。また D_i は中間準位から i 状態へ向かう遷移の双極子モーメント、 R_{ij} は ij チャンネル間相互作用のパラメータで、スペクトル解析で求めるべきパラメータである。

同様に、第1チャンネルだけがオープンになっている3チャンネルの式は $T_i = \tan[\pi(\nu_i + \mu_i)]$ を使って、次のように書ける。

$$\sigma = K \frac{((T_2 T_3 - R_{23}^2) D_1 - (R_{12} D_2 T_3 + R_{13} D_3 T_2 - R_{23} (R_{13} D_2 + R_{12} D_3)))^2}{(T_2 T_3 - R_{23}^2)^2 + (R_{12}^2 T_3 + R_{13}^2 T_2 - 2R_{12} R_{13} R_{23})^2} \quad (8)$$

この3チャンネルの式も2チャンネルの場合と同様、Beutler-Fano型のプロファイル関数に変形できることがSuzor⁶⁾やUeda⁷⁾によって示されている。3チャンネルの場合、このほかにも、摂動準位が系列に属さない単独準位の場合の式⁴⁾や、連続状態が2個ある場合の式¹⁰⁾などが導出されている。

ガドリニウムのように構造の複雑な原子では、さらに多くのチャンネルを考慮した数値計算が必要となる。その場合、連続状態も複数存在するのが普通であるが、実際に観測されるスペクトルのかなりの部分は、オープンチャンネルを1つとしても説明ができる。そこで、連続状態の量子状態を指定することなく、一般化された1つの連続状態として扱うことがしばしば行われる。以下では、Baig⁸⁾らの手法に沿って、そのようなオープンチャンネルを1つだけ含む多チャンネル系のMQDT式を導出する。

第1チャンネルをオープンとすると、その基底は規格化条件 $A_1^2=1$ より、

$$a_1^2 = \cos^2[\pi(\nu_1 + \mu_1)] = [1 + \tan^2[\pi(\nu_1 + \mu_1)]]^{-1} = [1 + T_1^2]^{-1} \quad (9)$$

と書ける。一方、(5)の行列式を(4)のMQDT行列 $(R+T)$ の余因子 C_{ij} を使って1行目で展開すると、

$$T_1 C_{11} + \sum_{i=2}^n R_{1i} C_{1i} = 0 \quad (10)$$

となる。この2式より T_1 を消去すると a_1 が余因子 C を用いて次のように書ける。

$$a_1^2 = \frac{C_{11}^2}{C_{11}^2 + \left| \sum_{i=2}^n C_{1i} R_{1i} \right|^2} \quad (11)$$

次に残った $n-1$ 行列に着目すると次のような連立方程式となる。

$$\begin{pmatrix} T_2 & R_{23} & \cdots & R_{2n} \\ R_{23} & T_3 & & R_{3n} \\ \vdots & & \ddots & \vdots \\ R_{2n} & R_{3n} & \cdots & T_n \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_2/a_1 \\ a_3/a_1 \\ \vdots \\ a_n/a_1 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} R_{12} \\ R_{13} \\ \vdots \\ R_{1n} \end{pmatrix} \quad (12)$$

上式に非斉次連立方程式のためのクラメース規則を適用すると次のような振幅比が得られる。

$$\frac{a_i}{a_1} = - \frac{C_{1i}}{C_{11}} \quad (13)$$

(11)、(13)を(6)式に代入すれば、第1チャンネルだけがオープンなMQDTの一般式が得られる。

$$\sigma = K \frac{\left| \sum_{i=1}^n C_{1i} D_i \right|^2}{C_{11}^2 + \left| \sum_{i=2}^n C_{1i} R_{1i} \right|^2} \quad (14)$$

この式の利点は、数値計算コードを大幅に簡略化できることである。一般に、より高いイオン準位へ収束する系列ほど相互作用する連続状態の数が増すが、各系列ピークのパノ極小の断面積がほぼゼロと見なせる場合には、オープンチャンネルを1つとして上式を使うことができる。

3 実験

実験装置は以前のものと同じである¹⁴⁾。その概要を図2に示す。3台のXeClエキシマレーザー(Resonetics LX100X)で励起される3台の疑似斜入射型色素レーザー(LAS LDL5050G, 線幅:約2GHz)の光を、真空度約 1×10^{-7} torrの真空容器中に導き、ガドリニウム原子ビームに垂直に照射した。原子ビームはタンタルるつぼ中の天然ガドリニウム金属片(約10g)を、タングステンメッシュヒーターで1450℃に加熱して発生させた。発生した光電離イオンは数100nsecの遅延時間の後に光反応領域に印加した約50v/cmのパルス電場でリフレクトロン型質量分析器(質量分解能1200以上)に導き、MCPで検出した。広帯域増幅器で増幅したイオン信号はボックスカー積分器(SRS SR250)で積算平均した後、AD変換器を介してコンピューターに取り込んだ。また真空容器を透過したレーザー光はGd/Neホロカソードランプにも導き、発生した光ガルバノ信号は波長校正用信号としてコンピューターに同時記録した。さらに、一部の共鳴ピークの波長はフィゾー干渉計(Lasertechnics 100F)を用いて測定した。これにより得られる波長の絶対値の精度は ± 0.005 nm程度と考えられる。

基底状態の原子は、図3に示すように 17227.969cm^{-1} の第1励起状態¹⁷⁾を介して 31236.74cm^{-1} 及び 34601.68cm^{-1} の $J=0$ の中間準位¹⁸⁾に励起し、引き続き電離レーザー光を、波長を変化させながら照射して、イオン化極限(49601.45cm^{-1} ¹⁴⁾)付近から約 700cm^{-1} 上方までの電離スペクトルを測定した。

4 結果と議論

4.1 $J=1$ の自動電離リドベルグ系列の摂動構造

図3の励起スキームを用いて観測した広い範囲の電離スペクトルを図4(a)(b)に示す。図の横軸はレーザーの波長と中間準位のエネルギーから計算した電離準位のエネルギーである。エネル

ギー範囲は多少異なっているが、フルスケールはともに 650cm^{-1} である。また図中の縦線はイオンの励起準位の位置を表している。どちらのスペクトルでも、イオンの第1励起状態($E_2=261.841\text{cm}^{-1}$)及び第2励起状態($E_3=633.273\text{cm}^{-1}$)に収束する自動電離リドベルグ系列が観測できた。これらの系列の電子配置は $[f^7ds(^{10}D^{\circ}_{7/2})nf_{5/2,7/2}]_{J=1}$ (E_2 系列)、 $[f^7ds(^{10}D^{\circ}_{9/2})nf_{7/2}]_{J=1}$ (E_3 系列)と考えられる¹⁴⁾。

図から明らかな様に、系列スペクトルに重なっている価電子状態のピークは少なく、構造は比較的単純である。どちらのスペクトルでも 49780cm^{-1} と 50140cm^{-1} 付近で系列ピーク強度が増大するとともに、ピークの左右非対称性が反転しており、特徴的な摂動による影響が認められる。このようなq値反転構造はConerradeらが理論的に調べているが^{3,4)}、これほど鮮明な構造が観測されたのは、我々の知る限りこれが初めてである。

2つのスペクトルを比較すると、摂動の無い領域のピークの波長は誤差範囲で一致しており、同一系列が現れていると考えられる¹⁴⁾。しかし 34602cm^{-1} からのスペクトルでは E_2, E_3 系列とも、摂動中心より低エネルギー側で強度が急激に小さくなるのに対し、 31237cm^{-1} では低エネルギー側の構造が強いまま長く続いており、同じ系列でありながらスペクトルの現われ方に大きな違いが見られる。これは介在する様々な相互作用の違いによるものと思われるが、そのために、 31237cm^{-1} の E_2 系列のスペクトルでは、 E_3 系列の低nメンバーが重なって構造が複雑になっている。一方、この観測範囲より高エネルギー側、 50760cm^{-1} にはイオンの第3励起状態があるが、 E_3 状態とのエネルギー差が大きいため、 E_4 系列が E_3 系列に重なって構造を複雑にしている様子は認められない。そこで以下では、まず構造の単純な E_3 系列で解析を行い、次に得られたパラメータを利用して E_2 系列の解析を行った。

4.2 多チャンネル量子欠損理論解析

(1) E_3 系列の1オープン3チャンネルモデルによる解析

図5(a),(b)に E_3 系列の摂動領域の拡大図を示す。図中の数字は、これらの系列がコア貫入性

の小さい電子系列であることから、広い範囲で量子欠損が0~1の範囲になるように同定した系列メンバーの主量子数である¹⁴⁾。どちらのスペクトルでも、 $n=35$ 付近で q 値がほぼ0になっており、リドベルグ状態が本来存在する位置で電離断面積が極小になっている。この様に断面積が増減するのは、リドベルグ状態を介して連続状態へ向かう電離過程と、摂動準位を介して連続状態へ移る電離過程とで確率振幅が干渉するためである。

この領域には連続状態、摂動準位、 E_3 系列準位の3種類のチャンネルがあるので、解析には3チャンネルモデルを用いた。MQDTパラメータのうち収束極限と固有量子欠損の値は、以前報告した非摂動領域の解析結果とその誤差を考慮して、 $I_2=50234.72\text{cm}^{-1}$ 、 $\mu_2=0.13$ とした¹⁴⁾。

(8)式を基に数個のパラメータによる最小二乗近似を繰り返すことで、パラメータ D_i と R_i を求めた。図5(a)と(b)では同一系列を異なる中間準位から観測しているため、パラメータ R は共通で、パラメータ D の違いだけで両スペクトルが再現できなければならない。図5(a)(b)の下側のトレースはこの様にして再現したスペクトルで、どちらの場合も良い一致が得られた。上述したようにこの2つのスペクトルでは、摂動の両側のピークの高さに違いがあるが、その違いも断面積比の違いでよく再現できた。また摂動中心より高エネルギー側ではピーク幅が狭まり、特に $n=36-37$ の高さが増加する様子が分かった。表1に得られた2組のパラメータを示す。摂動準位は今回の実験だけでは同定できないので、ここではイオンの低励起状態に収束する系列準位の中で、量子欠損が0.1程度のを仮に同定した。

表1でチャンネル間相互作用に注目すると、摂動準位と系列準位間の相互作用エネルギー R_{23} が他のパラメータに比べて小さいことが分かる。そこで図5(b)の R_{23} を変えてスペクトルの変化を調べると図6のようになり、摂動の増大とともに、インターローパーの輪郭が消えてその振動子強度が系列の広い範囲にわたって分散する様子や、インターローパーとリドベルグ状態の区別が無くなり、系列ピークの数が見かけ上1つ増える様子などが分かった。この図から、今回観測された特徴的な形のスペクトルが現れるのは、このクローズチャンネル間

相互作用が比較的小さく、摂動が局在する場合に限られることがわかった。

高励起状態間の相互作用の強さと他の物性値との関係はまだ明らかではないが、これまで我々が行ってきたウランやガドリニウムの高角運動量電離状態の分光では、今回の様な特徴的な形のスペクトルが観測されたことはなかった。このことは高角運動量状態間の相互作用が低角運動量の場合よりもかなり強いことを示唆していると思われ、こうした角運動量と相互作用の強さの関係が今後の重要な研究課題になるものと考えられる。

E_3 系列の自動電離では、基底状態と第1励起状態の2種類のイオンが生じうる。このようなイオンの生成割合（自動電離の分岐比）はイオンの電荷移行反応と関係するため¹⁹⁾、レーザー同位体分離にとっても重要である。今の場合、 E_3 系列のスペクトルは3チャンネルモデルで良く再現できるので、この事から、一方のイオンだけが生成される（分岐比100%）と言えるかどうかを、2オープン4チャンネルモデルによって検証した。図5(b)のスペクトルを再現した結果を図7(a)(b)に示す。また、用いたパラメータを表2に示す。2つの連続状態へ50%ずつ分岐する場合(a)でも、片方に100%分岐する場合(b)でも、スペクトルに大きな差は見られない。従って今回のスペクトルでは、自動電離の分岐比を知ることは難しいと考えられる。しかしリドベルグ状態と両連続状態との相互作用が大きい場合には、相互作用によってスペクトル形状が大きく変化するので、分岐比を求めることも可能と思われる。

(2) E_2 系列の1オープン5チャンネルモデルによる解析

この領域には E_2 系列（第2チャンネル）のほか、前述した E_3 系列の低エネルギーメンバー（第3チャンネル）や、 49770cm^{-1} 付近の大きな摂動（第4チャンネル）、 49720cm^{-1} 近傍の小さな摂動（第5チャンネル）などが存在するため、 E_3 系列より構造が複雑になっている。そこでこれらを考慮するため、1オープン5チャンネルのモデルを利用した。また 34602cm^{-1} から測定した E_2 系列のスペクトルは小さくS/N比も良くないので、解析は 31237cm^{-1} からのスペクトルについてのみ行った。まず、以前報告した無摂動領域の解析結果を参考にして、この系列の収束

極限を $I_2=49863.29\text{cm}^{-1}$ 、固有量子欠損を $\mu_2=0.062$ とした。また E_3 領域と共通のパラメータである I_3 や μ_3 は同じ値にして、(14)式により残りのパラメータを決定した(但し、 E_3 領域とは連続状態が異なるので、 R_{13} の値は E_3 領域の $R_{12}=0.1$ よりも小さいものとした)。その結果を表3に示す。またこれらのパラメータから再現したスペクトルを図8に示す。再現したスペクトルと測定結果の一致は比較的良いが、 49720cm^{-1} 付近の構造はやや異なっている。この付近のファノ極小はゼロになっておらず、これはオープンチャンネルを1つしか考慮していないことが主な原因と考えられる。しかし、2オープン4チャンネルモデルでこの部分を計算すると、各オープンチャンネルとりドベルグ状態間の相互作用が強い場合に(0.3 au.程度)、図9のファノ極小部分(矢印)の一致が良くなるものの、低エネルギー側のピークの形状が合わなくなることが分かった。従って E_2 系列の正確な解析のためには2オープン4クローズのMQDTモデルの適用が必要と考えられる。

(3) 摂動による電離断面積の変化

MQDTによるスペクトル計算ではレーザーの周波数プロファイルの畳み込み計算は行っていない。従って図5や図8に示した系列スペクトルの計算結果で、摂動中心より高エネルギー側のピークは、主量子数が大きくなるほど幅が狭くなっている。その幅が計算の刻み幅(約 0.02cm^{-1})より狭い部分では完全なピークが描けず、ピークの高さにばらつきが生じていると考えられる。これらのピークの幅が狭いことは、観測されているこれらのピークの幅が、実験で用いたレーザーの発振幅とほぼ等しく、 0.07cm^{-1} 程度であることから理解できる。

図4(a)(b)のエネルギー範囲で最も断面積が大きいのは、 49994.6cm^{-1} の価電子自動電離準位に向かう遷移であり、どちらの場合もその断面積は飽和法によって $8 \times 10^{-15}\text{cm}^2$ 程度と測定されている²⁰⁾。しかしこのピーク幅はレーザーのバンド幅より広いので、これ以上高分解能のレーザーを使っても観測される断面積は増えないと考えられる。これに対し、例えば E_3 系列の $n=36-38$ 付近のピークはこれより1~2割ほど低いものの、幅が狭いので、よりバンド幅の狭

いレーザーで観測すると断面積が増えると予想される。仮にピークの幅が 0.03cm^{-1} 程度なら、リドベルグ状態の方が価電子状態よりも電離断面積が大きくなり、レーザー同位体分離の光利用効率の向上に役立つ可能性がある。

5 まとめ

多チャンネル量子欠損理論を用いて、ガドリニウムの自動電離リドベルグ系列のスペクトルを解析した。これにより、ガドリニウムのような複雑な原子構造の原子でも、MQDTによるスペクトル解析が有効であることをはじめて示すことができた。また、観測された特徴的な非対称性の反転構造が比較的弱い摂動によって生じることや、バンド幅の狭いレーザーで系列の摂動構造を観測することで、強い電離遷移が見つかる可能性のあることがわかった。この方法は、複雑な原子構造を有する他のランタノイド、アクチノイド元素のスペクトル解析にも有効と思われる。

謝 辞

本研究を進めるにあたって助言と激励を頂きました柴田猛順室長に深く感謝いたします。また本原稿を読んでいただき、貴重なコメントを頂きました物質科学研究部主任研究員、白石浩二氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) Beutler H : Z. Phys. **93** 177 (1935)
- 2) Fano U : Phys. Rev. **124** 1866 (1961)
- 3) Connerade J P : Proc. R. Soc. Lond. **A362** 361 (1978)
- 4) Connerade J P, Lane A M and Baig M A : J. Phys.B: At. Mol. Phys. **18** 3507 (1985)
- 5) Cooke W E and Cromer C L : Phys. Rev. **A32** 2725 (1985)
- 6) Giusti-Suzor A and Lefebvre-Brion H : Phys. Rev. **A30** 3057 (1984)
- 7) Ueda K : Phys. Rev. **A35** 2484 (1987)
- 8) Baig M A, Akram M, Bhatti S A, Sommer K and Hormes J : J. Phys. B: At. Mol. Phys. **27** 1693 (1994)
- 9) Baig M A and Bhatti S A : Phys. Rev. **A 50** 2750 (1994)
- 10) Martins M and Zimmermann P : Z.Phys. **D27** 115 (1993)
- 11) Hieronymus H, Neukammer J and Rinneberg H : J. Phys.B: At. Mol. Phys. **25** 3463 (1992)
- 12) Farooqi S M, Nawaz M, Bhatti S A, Ahmad N and Baig M A : J. Phys.B: At. Mol. Phys. **28** 2875 (1995)
- 13) Bhatti S A, Nawaz M, Farooqi S M, Ahad A, Butt S, Ahmad N and Baig M A : J. Phys.B: At. Mol. Phys. **30** 1179 (1997)
- 14) 宮部昌文、大場正規、若井田育夫: JAERI-Research 98-011 (1997)
- 15) Seaton M J : Rep. Prog. Phys. **46** 167 (1983)
- 16) Lu K T: Phys.Rev. **A4** 579 (1971)
- 17) Martin W C, Zalubas R and Hogan L: Atomic Energy Levels - The Rare-earth Elements, NSRDS-NBS 60 (Washington DC: US Govt Printing Office)
- 18) Miyabe M, Wakaida I and Arisawa T: J. Phys.B: At. Mol. Phys. **29** 4073 (1996)
- 19) 柴田猛順、小倉浩一: JAERI-Research 94-025 (1994)
- 20) Miyabe M and Wakaida I : Resonance Ionization Spectroscopy 1996 (New York, AIP) p.319 (1996)

表1 3チャンネルモデルで得られたE₃系列のMQDTパラメータ

Channels	I _i	μ _i	D _i	Reaction matrix R _{ij}	
(a) 31237cm ⁻¹					
f ⁷ ds(¹⁰ D _{7/2,5/2})εl			1		
f ⁷ ds(¹⁰ D _{9/2})nf	50234.72	0.13	1.8	R ₁₂ =0.1	
摂動準位	52458.13	0.113	3.95	R ₁₃ =0.158	R ₂₃ =0.0632
(b) 34601cm ⁻¹					
f ⁷ ds(¹⁰ D _{7/2,5/2})εl			1		
f ⁷ ds(¹⁰ D _{9/2})nf	50234.72	0.13	5	R ₁₂ =0.1	
摂動準位	52458.13	0.113	47.4	R ₁₃ =0.158	R ₂₃ =0.0632

(DとRの値は原子単位 : 1a.u.=2.1947x10⁵cm⁻¹)表2 2オープン4チャンネルモデルで得られた34602cm⁻¹からのE₃系列のMQDTパラメータ

Channels	I _i	μ _i	D _i	Reaction matrix R _{ij}		
(a) case_A						
1.連続状態			0.707			
2.連続状態			0.707	R ₁₂ =0		
3. E ₃ 系列	50234.72	0.13	5	R ₁₃ =0.0707	R ₂₃ =0.0707	
4.摂動準位	52458.13	0.113	47.4	R ₁₄ =0.112	R ₂₄ =0.112	R ₃₄ =0.0632
(b) case_B						
1.連続状態			1			
2.連続状態			0	R ₁₂ =0		
3. E ₃ 系列	50234.72	0.13	5	R ₁₃ =0.1	R ₂₃ =0	
4.摂動準位	52458.13	0.113	47.4	R ₁₄ =0.158	R ₂₄ =0	R ₃₄ =0.0632

表3 5チャンネルモデルで得られた 31237cm^{-1} からの E_2 系列のMQDTパラメータ

Channels	I_i	μ_i	D_i	Reaction matrix R_{ij}
1.連続状態			1	
2. E_2 系列	49863.29	0.062	6.123	$R_{12}=0.1$
3. E_3 系列	50234.72	0.13	2	$R_{13}=0.05$ $R_{23}=0.01$
4.摂動準位	51536.30	0.113	15.652	$R_{14}=0.224$ $R_{24}=0.137$ $R_{34}=0$
5.摂動準位	51536.30	0.22	7	$R_{15}=0.1$ $R_{25}=0.08$ $R_{35}=0$ $R_{45}=0$

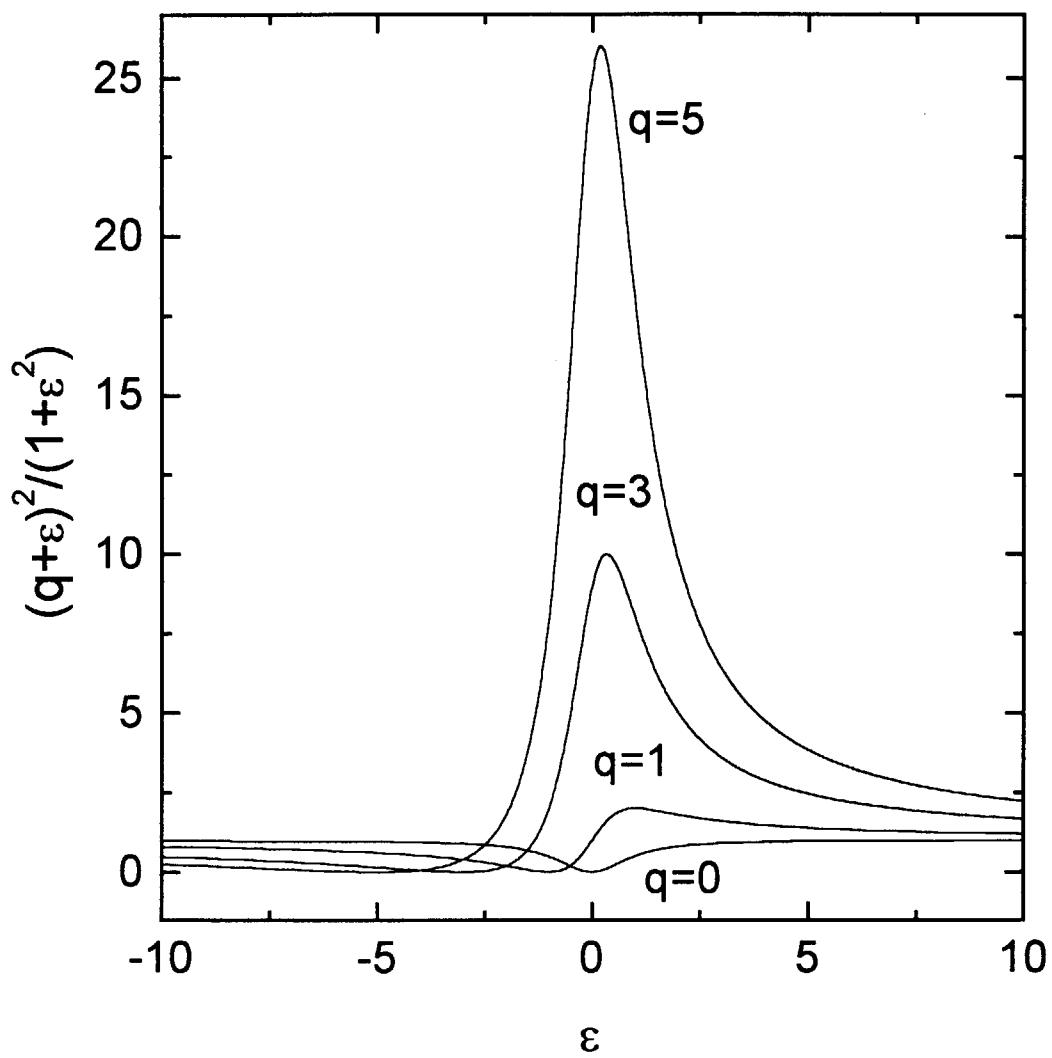


図1 ファノ型プロファイルの一例

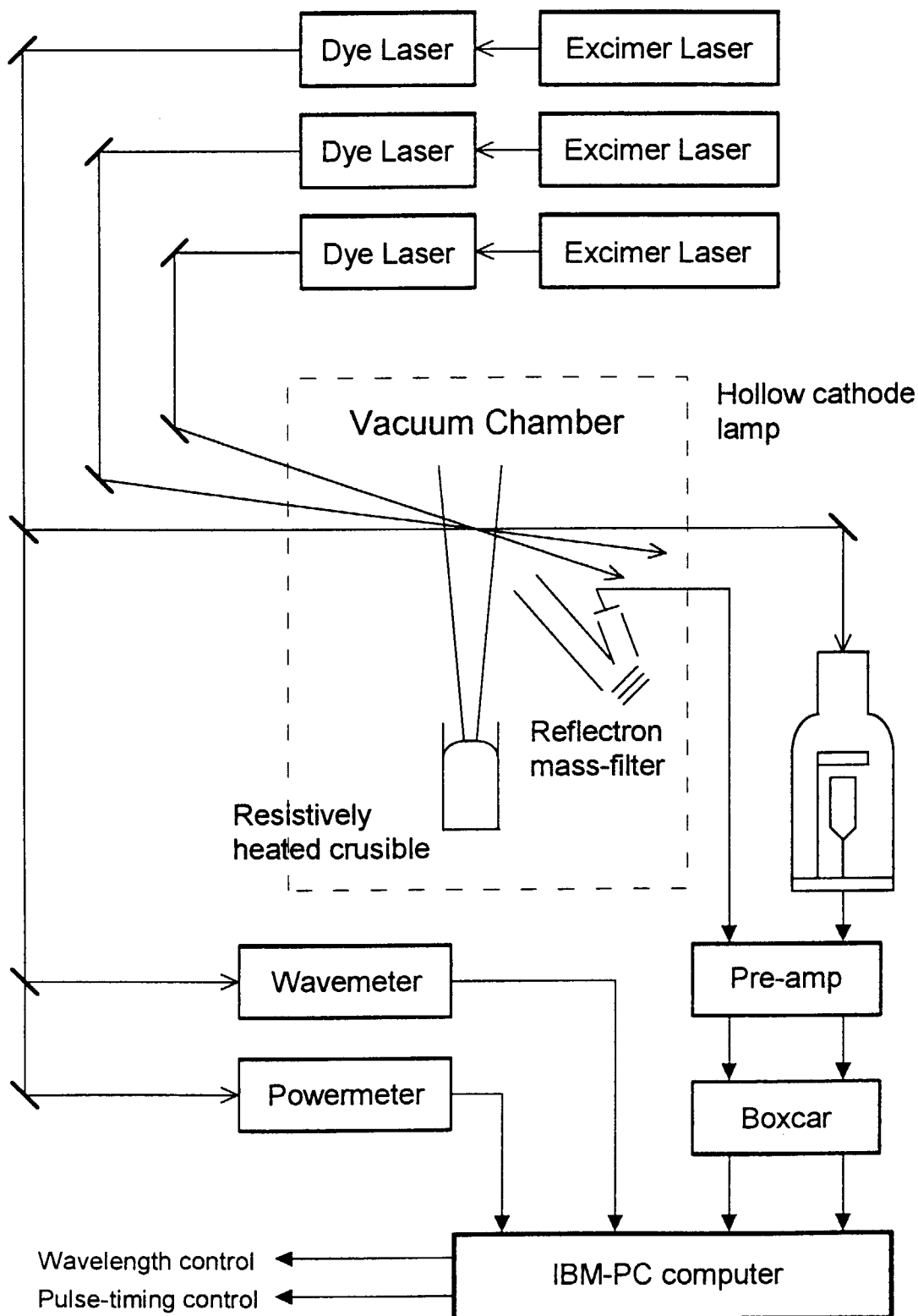


図2 実験装置

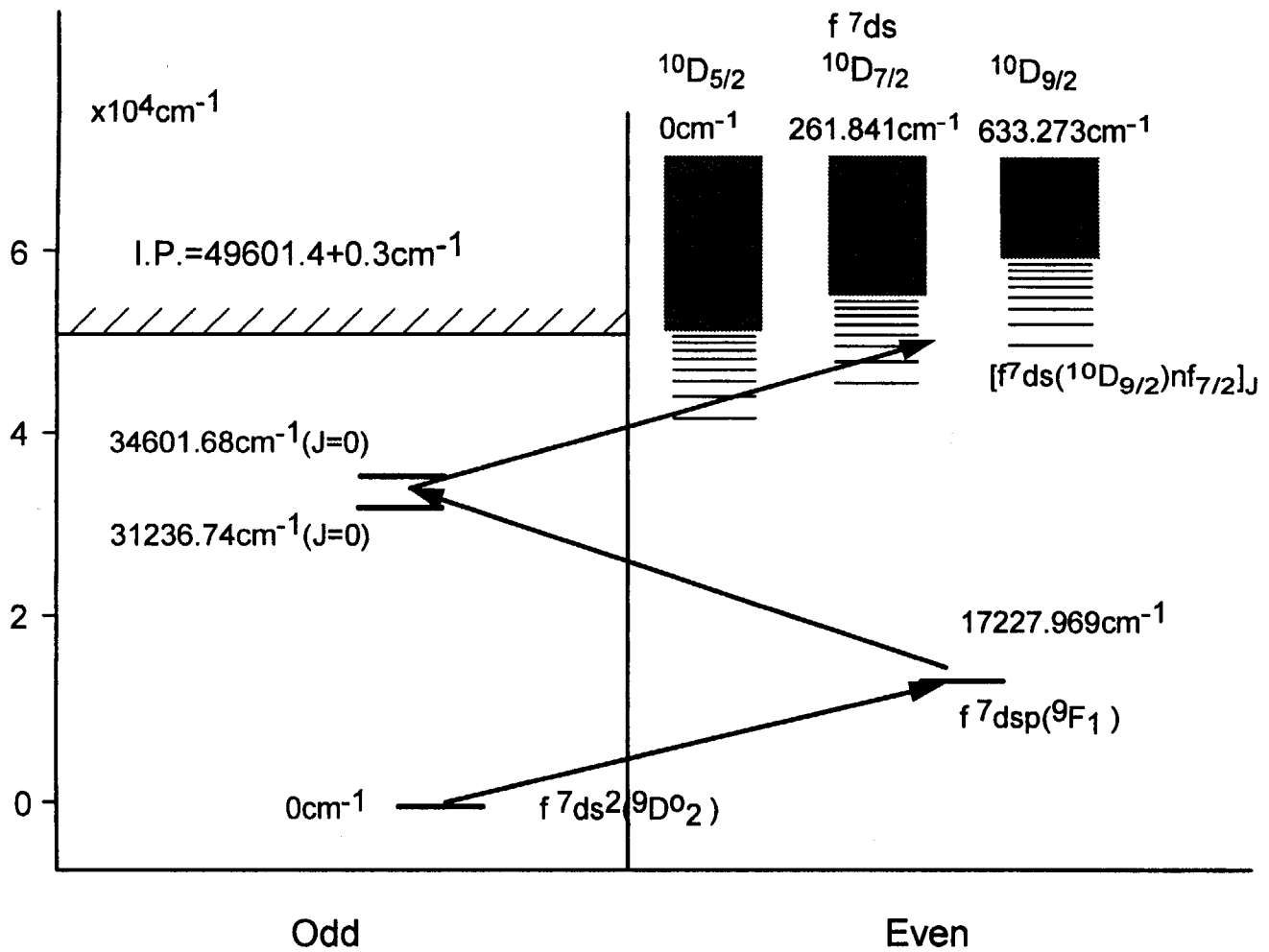


図3 3段階共鳴電離スキーム

基底状態の原子を2段階でJ=0の中間準位に励起し、引き続き電離レーザーの波長を変化させて照射することにより、イオン化極限付近から約700cm⁻¹の範囲の電離スペクトルを測定した。

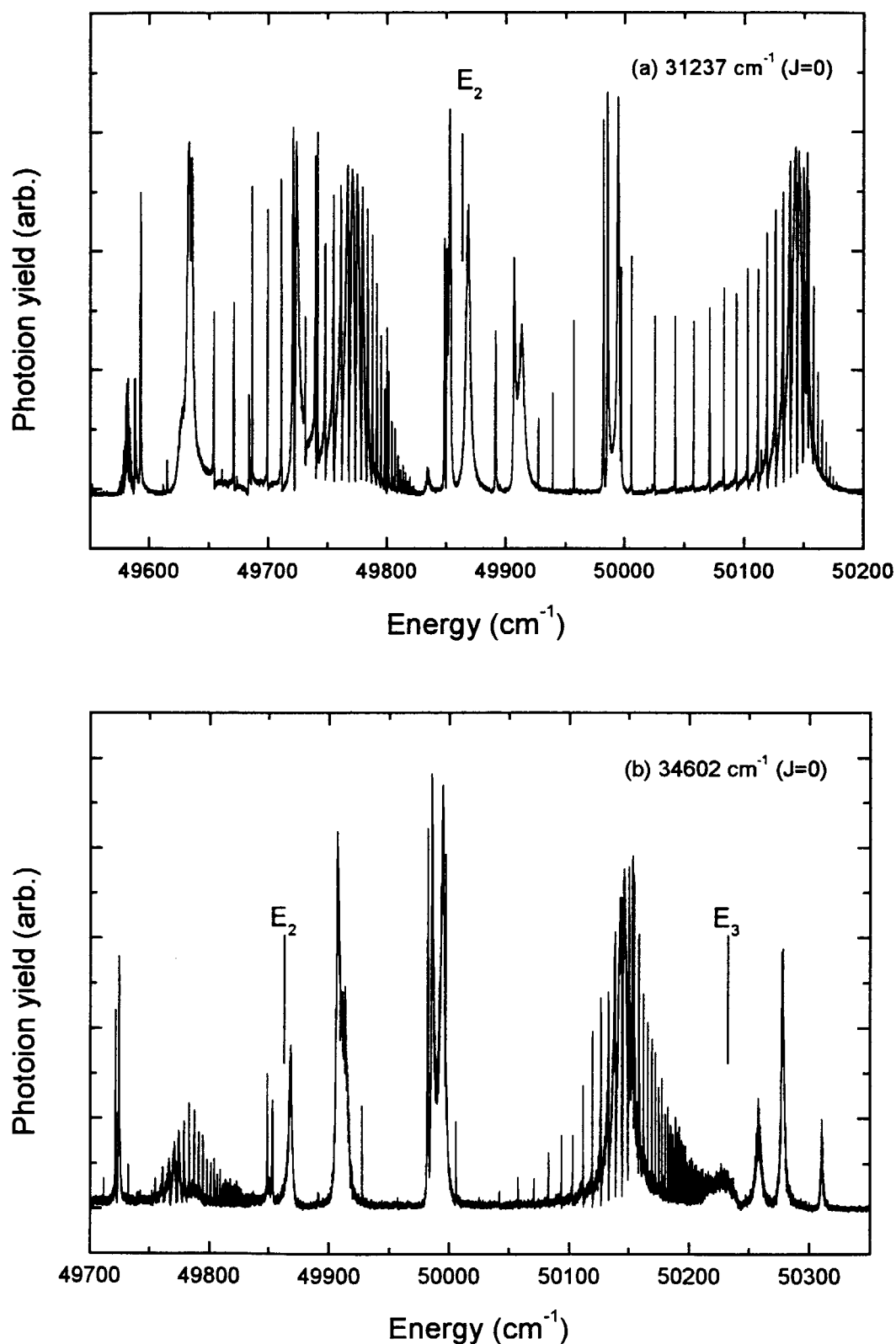


図4 観測した広範囲の電離スペクトル

観測に用いた中間準位： (a) 31237cm⁻¹ (b) 34602cm⁻¹

49780cm⁻¹ および 50140cm⁻¹ 付近で強度や非対称性の変化が認められ、この付近で系列準位が他の準位と相互作用していることがわかる。

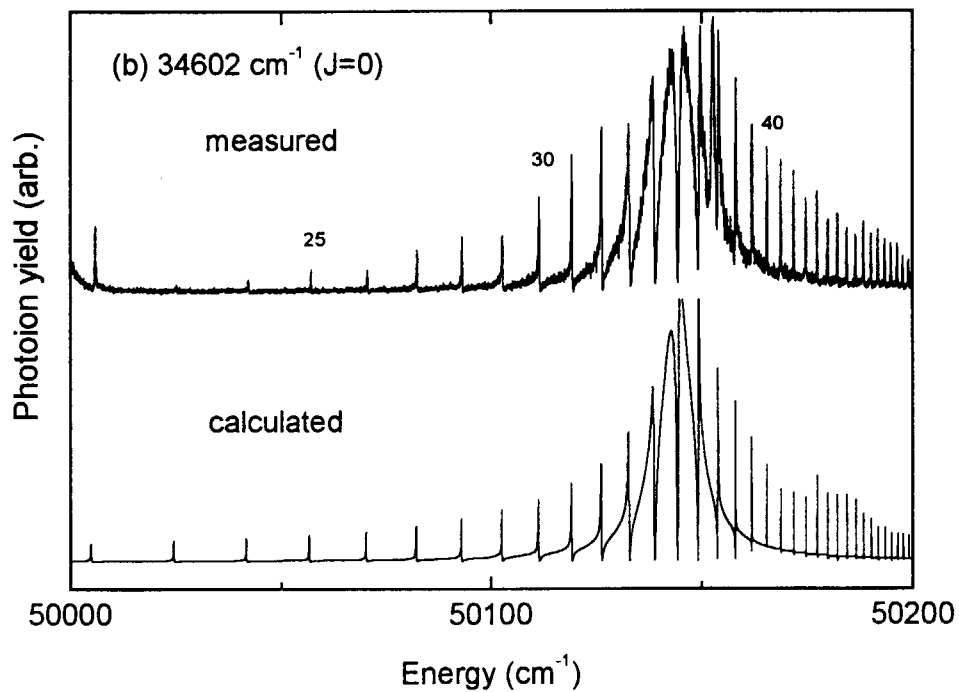
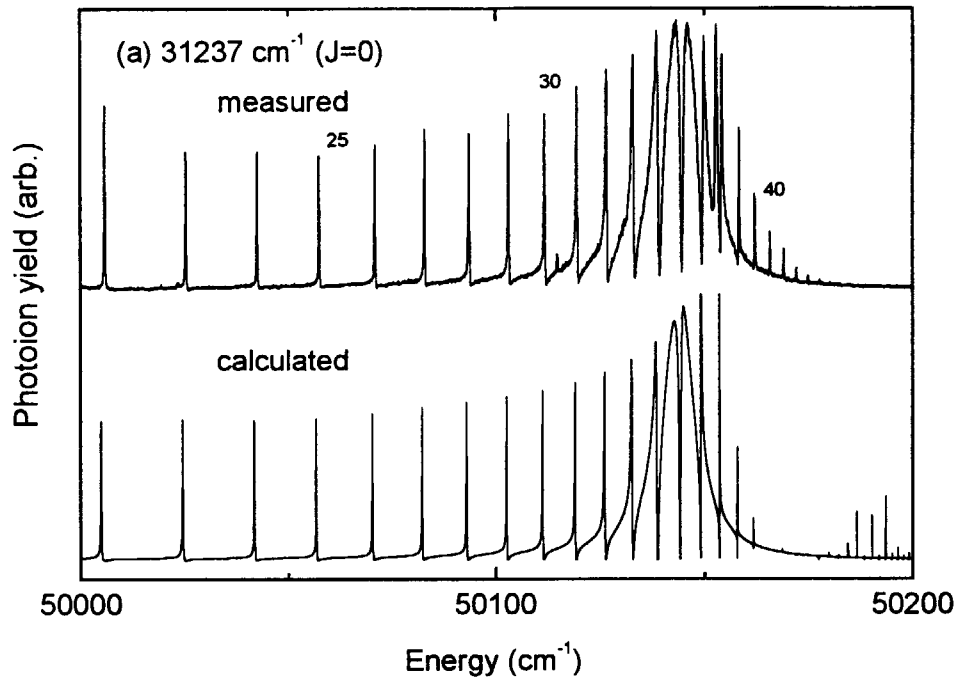


図5 E₃ 系列スペクトルの実測と計算の比較

観測に用いた中間準位： (a) 31237cm⁻¹ (b) 34602cm⁻¹

(a)は摂動中心より低エネルギー側、(b)は高エネルギー側のピークが高く、長い系列が続いているが、断面積比の違いだけで、このようなスペクトルの差が再現できている。

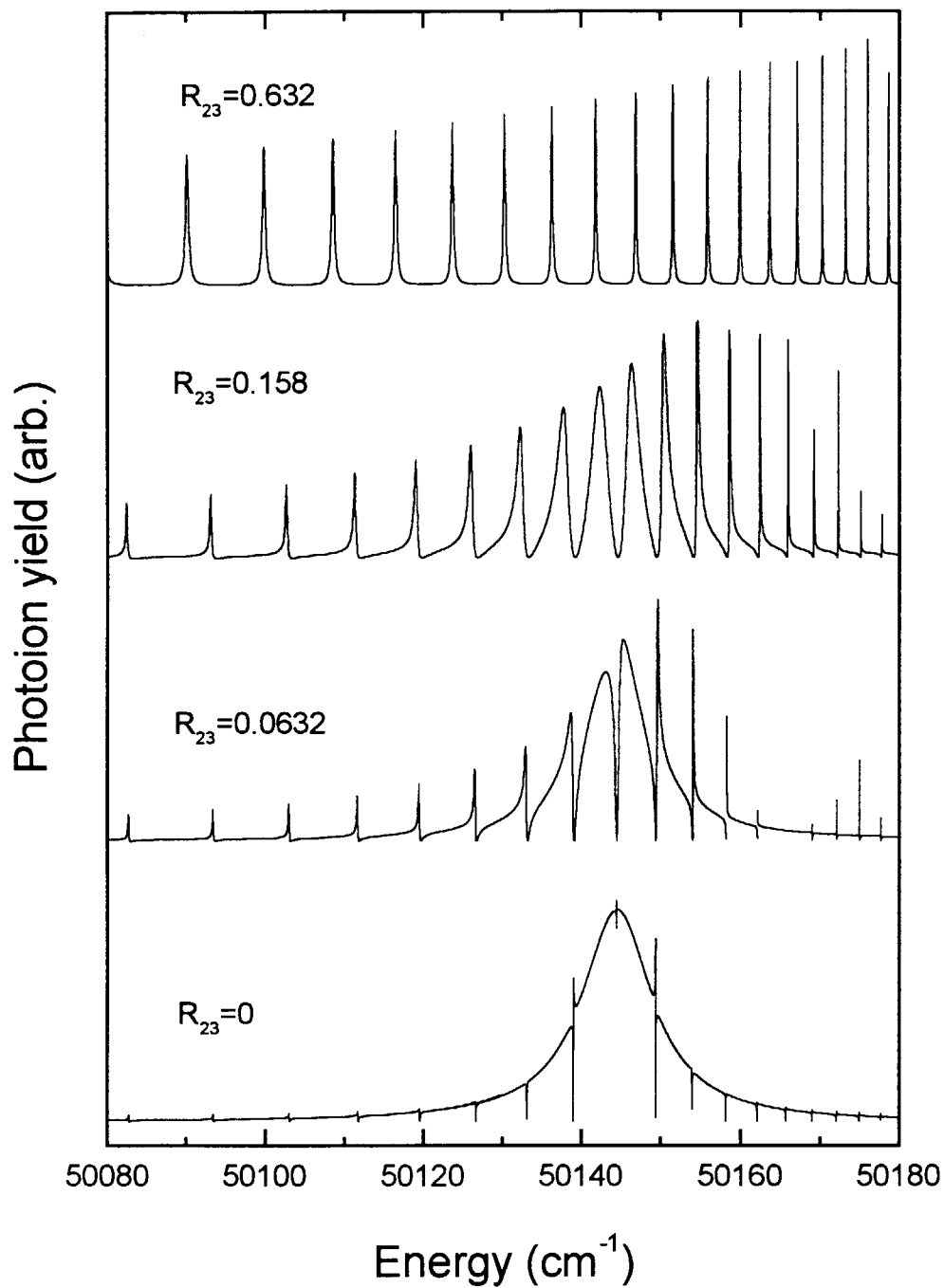


図6 クローズチャンネル間相互作用によるスペクトル形状の変化
観測されたような特徴的な形状は、摂動が小さい場合にのみ現れることがわかる。

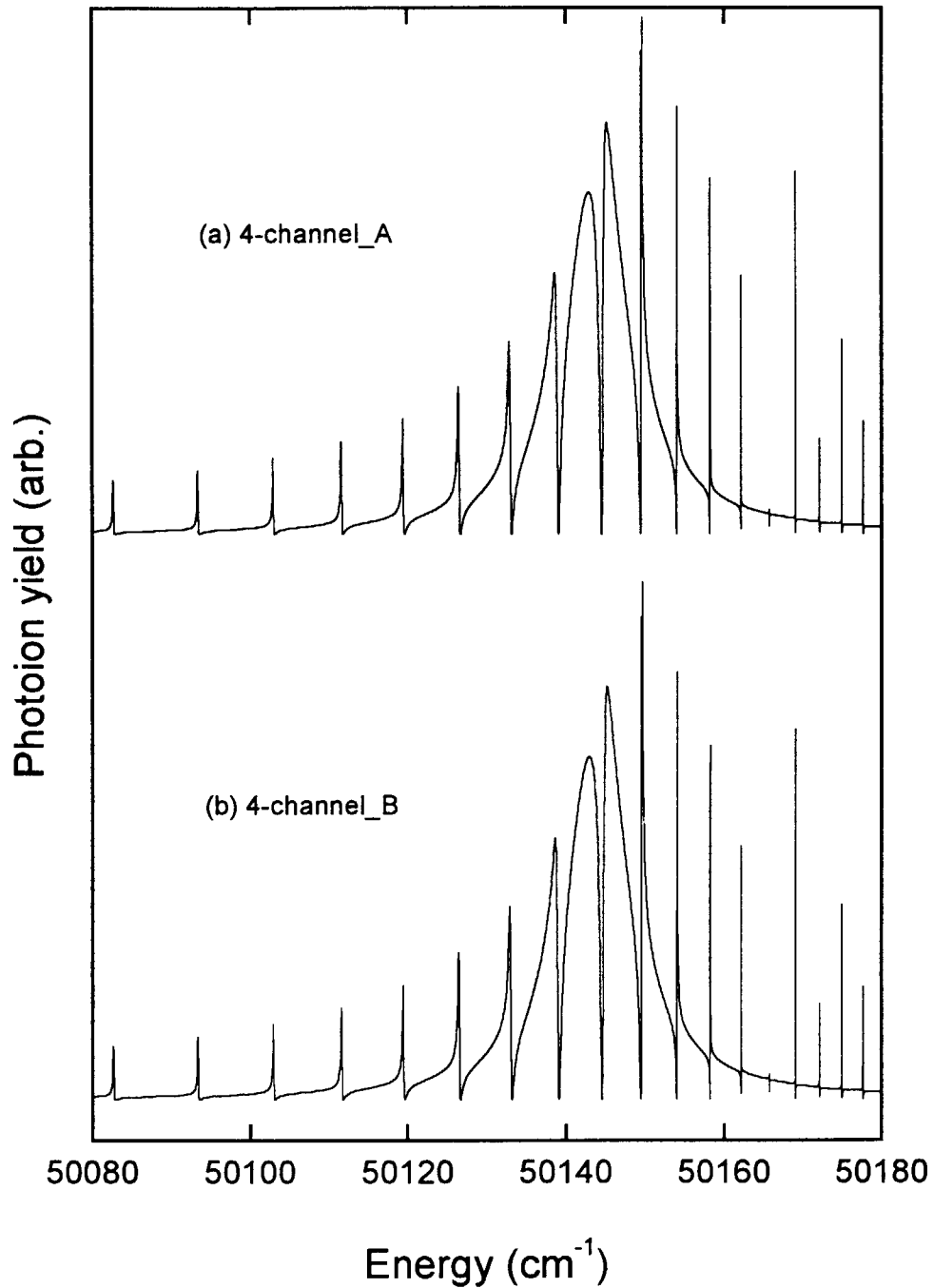


図7 2オープン4チャンネルモデルによるE₃系列スペクトルの計算

(a)2つの連続状態へ50%づつ分岐する場合でも、(b)片方に100%分岐する場合でも、スペクトルに大きな差は見られない。このことから、今回のスペクトルでは自動電離の分岐比を知ることは難しいことが分かる。

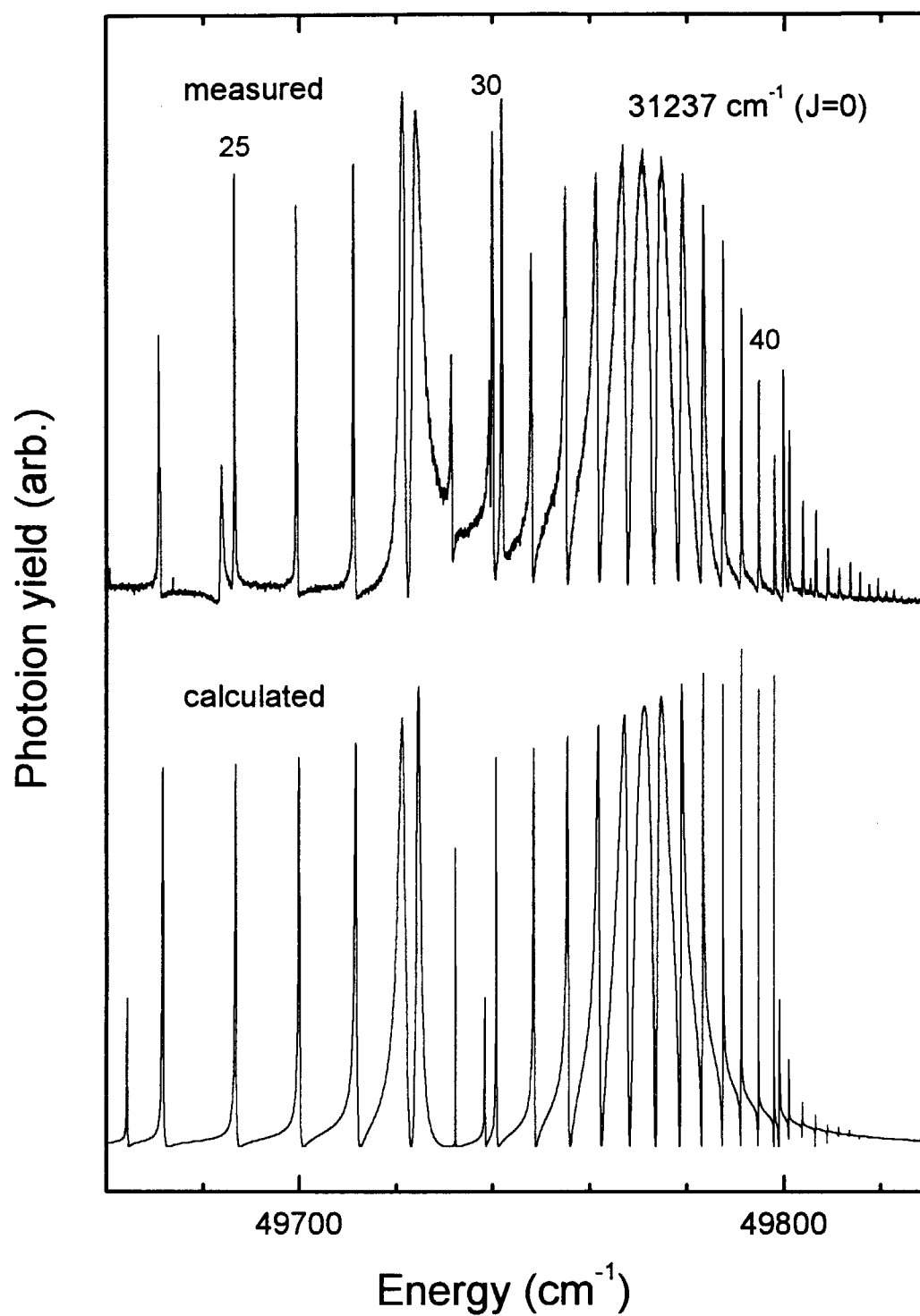


図8 31237cm⁻¹の中間準位から観測したE₂系列スペクトルの実測と計算の比較
 摂動準位が多いため1オープン4クローズの5チャンネルモデルで計算した。49720cm⁻¹付近の構造に違いが認められる。

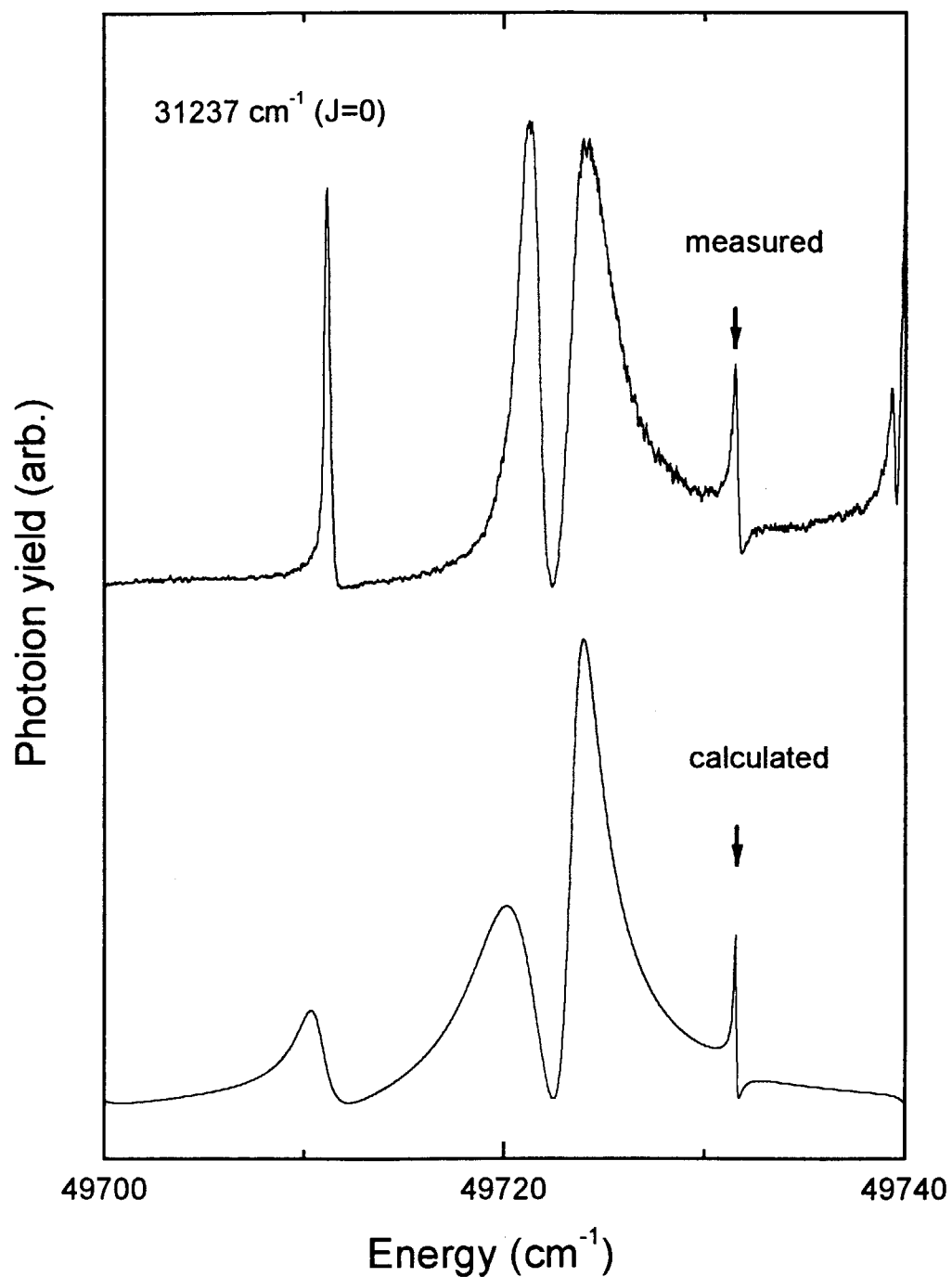


図9 E_2 系列スペクトルの2オープン2クローズMQDTモデルによる計算と実測の比較
 ファノ極小がゼロにならない点は再現できたが、低エネルギー側のピークが合わない。
 より精度の高い解析には、多オープン多クローズのMQDTモデルが必要である。

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガロン	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁻⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクタ	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m²)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s=10⁴St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻¹	1.35951×10 ⁻³	1.31579×10 ⁻³	1	1.93368×10 ⁻²
	6.89476×10 ⁻³	7.03070×10 ⁻²	6.80460×10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.12082×10 ¹⁹
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸
	1.60218×10 ¹⁹	1.63377×10 ²⁰	4.45050×10 ²⁶	3.82743×10 ²⁰	1.51857×10 ²²	1.18171×10 ¹⁹	1

1 cal= 4.18605J (計量法)
= 4.184J (熱化学)
= 4.1855J (15°C)
= 4.1868J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 ⁻¹¹
	3.7×10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

多チャンネル量子欠損理論によるGd原子のJ=1自動電離リドヘルグ系列の解析