

XFELに誘起されるヨウ素含有分子およびフラーレンのクーロン爆発とその反応動力学モデルの開発

¹東北大院・理, ²東北大・金研, ³東北大・多元研, ⁴JASRI, ⁵京都大院・理
○落合 宏平¹, 中村 公亮¹, 山崎 馨², 菅野 学¹, 高梨 司³, 福澤 宏宣³,
遠野 健介⁴, 永谷 清信⁵, 上田 潔³, 河野 裕彦¹

Coulomb explosion of I-containing molecules and fullerene induced by XFELs and development of this dynamics model

○Kohei Ochiai¹, Kosuke Nakamura¹, Kaoru Yamazaki², Manabu Kanno¹,
Tsukasa Takanashi³, Hironobu Fukuzawa³, Kensuke Tono⁴, Kiyonobu Nagaya⁵,
Kiyoshi Ueda³, Hirohiko Kono¹

¹ Graduate School of Science, Tohoku University, Japan

² IMR, Tohoku University, Japan, ³ IMRAM, Tohoku University, Japan

⁴ JASRI, Japan, ⁵ Graduate School of Science, Kyoto University, Japan

【Abstract】 Intense X-ray pulses provided by X-ray free electron laser (XFEL) can ionize molecules to high charge states instantaneously and then induce Coulomb explosion by the repulsion between positive charges. Understanding the Coulomb explosion mechanism is essential to elucidate the radiation damage mechanism and to establish a novel time-resolved molecular imaging method since momenta of fragment ions reflect the instantaneous molecular structure just before explosion. In this study, we developed a reaction dynamics model of XFEL-induced Coulomb explosion and performed simulations of Coulomb explosion imaging of I-containing molecules, e.g., 5-iodouracil (5-IU), and fullerene (C₆₀). The results of the simulations successfully reproduced the experimentally observed angular correlation, kinetic energy distributions and generation rates of fragments. Our model simulations provide the time scales of the explosion processes of fragment ions, which is difficult to directly extract from the experimental results.

【序】 現在、X線自由電子レーザー(XFEL)と分子の超高速の相互作用は大きな注目を集めており、広い分野で研究開発が盛んに行われている。その一例として、分子のXFEL誘起クーロン爆発がある。高強度X線に曝された分子は、内殻電子脱離とそれに次ぐオーグメント緩和などを経て瞬時に多価イオン化し、その正電荷間の反発によりクーロン爆発が誘起される。その機構の理解は、生体分子の放射線損傷機構の解明や、解離イオンの運動量が爆発直前の分子構造を反映することを応用した時間分解分子イメージング法の確立に寄与すると考えられる。本研究では、XFEL誘起クーロン爆発を再現する理論計算法の構築を目的とし、様々な現象・条件を取り込んだXFEL誘起クーロン爆発モデルを考案した。DNAの放射線増感剤として使われる5-ヨードウラシル(5-IU)などのヨウ素含有分子や、代表的なナノ材料分子であるC₆₀フラーレンなどにこのモデルを適用し、実験結果と比較してその有用性を検証した。

【計算手法】 電子状態計算には Self-Consistent Charge Density Functional Based Tight-Binding (SCC-DFTB) 法[1]を用いた。これは密度汎関数法に基づく半経験的な計算方法であり、原子間の電荷揺らぎを考慮しながらも極めて低い計算コストで化学結合の効果を取り込むことができる。SCC-DFTB計算から得られたポテンシャルを用いて分子動力学(MD)計算を行った。

【モデル】時刻 t での分子の電荷 $Q(t)$ は、XFEL 照射から段階的に上昇していくと考え、最終電荷を Z 、多価イオン生成に要する時定数を τ とし、 $Q(t) = Z(1 - e^{-t/\tau})$ で表した[2]。電荷上昇に伴う電子励起状態は、以下の手法で再現した。まず、電子励起状態の影響を考慮した分子の電荷分布が電子温度 T_e に従うものとした。さらに電子励起状態の緩和により発生する余剰エネルギーを、結合軸反跳モデル[4]に基づいて各原子 i の運動量 p_i に Δp_i として加えるようにした。上記モデルを採用した理論計算により各フラグメントイオンの生成比や運動エネルギーおよび角度相関の分布を求め、実験結果と比較した。

【結果・考察】5-IU のクーロン爆発で放出される水素イオンとヨウ素イオンの角度相関を Fig. 1 に示す。そのピーク位置は実験結果をほぼ正確に再現しており、5-IU の構造を反映するものであった。運動エネルギー分布も実験をよく再現できた[2]。本モデルをジヨードメタンなどの小分子に適用する際には、実験から得られた各イオンの平均電荷を再現した古典クーロンモデルを用いて補正することで精度が大きく向上した。

次にこのモデルを C_{60} に適用したところ、先行研究[5,6]で示唆された二段階で崩壊する特徴的な爆発過程（いくつかの原子イオンが飛び出し、残りは徐々に崩壊していく）を再現することに成功した。しかし、遠方に解離した炭素原子イオンにも電荷移動が起こるといった問題があった。そこで、解離した炭素イオンを整数電荷をもつ点電荷として古典的に扱い、解離極限での電荷移動確率が 0 となるように改良した(Fig. 2)。

$Z = 16$ の場合における XFEL 照射後の各フラグメントイオン数の時間変化を Fig. 3 に示す。生成フラグメントイオン比およびそれぞれの運動エネルギー分布は、実験結果[7]をよく再現するものであった。本モデルにより、XFEL により生成される C_{60} 多価カチオンの価数の推定、断片化過程の追跡など、 C_{60} のクーロン爆発過程の詳細な解析が可能となり、その機構の解明に大きく近づいた。

以上、XFEL 誘起クーロン爆発の機構について詳細な議論が可能となる動力学モデルの開発に成功した。

【参考文献】

- [1] M. Elstner *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, 7260 (1998)
- [2] K. Nagaya *et al.*, *Faraday Discuss.* **194**, 537 (2016)
- [3] K. Motomura *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **6**, 2944 (2015)
- [4] T. Takanashi *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 19707 (2017)
- [5] S. Tomita *et al.*, *Phys. Rev. A* **65**, 053201 (2002)
- [6] K. Yamazaki *et al.*, *J. Chem. Phys.* **141**, 121105 (2014)
- [7] To be published.

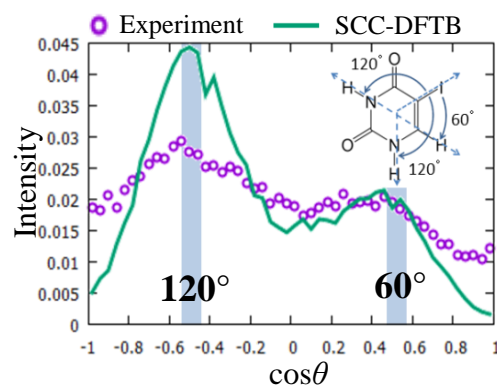


Fig. 1. Distributions of angular correlation between an iodine ion and a proton. The angle θ is defined as follows:

$$\cos\theta = \mathbf{p}_I \cdot \mathbf{p}_H / |\mathbf{p}_I| |\mathbf{p}_H|$$

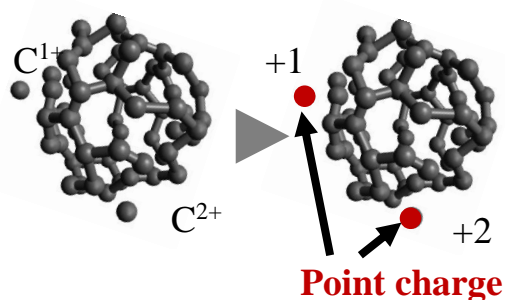


Fig. 2. Improved model for C_{60} . Atomic fragment ions leaving the molecular core are treated as classical point charges.

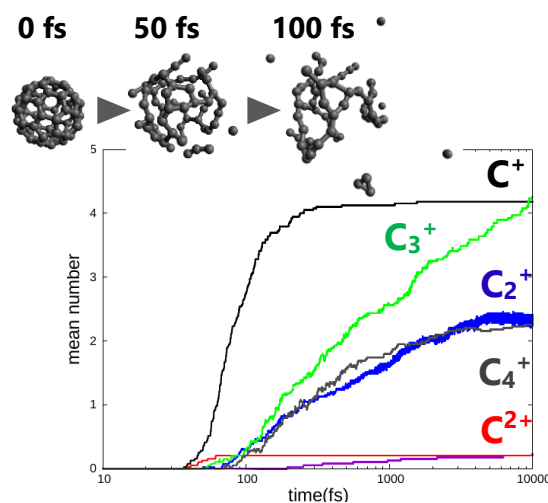


Fig. 3. Fragmentation of C_{60} . Atomic fragment ions are emitted in the early stage and then molecular fragment ions are generated gradually.

位相制御FELを用いたアト秒スケールの光イオン化遅延時間計測

¹ 東北大学, ² 理科科学研究所, ³ 東京大, ⁴ Moscow State Uni,
⁵ Uni Freiburg, ⁶ TU Wien, ⁷ ELI-ALPS, ⁸ European XFEL,
⁹ Uni Trieste, ¹⁰ Elettra, ¹¹ ENEA, ¹² Uni Nova Gorica, ¹³ Swinburne Uni
 ○ You Daehyun^{1,2}, Iablonskyi Denys¹, 上田潔^{1,2}, 石川顕一³, Oyunbileg Tugs³, 織茂
 悠貴³, 佐藤健³, Gryzlova Elena V⁴, Staroselskaya Ekaterina I⁴, Grum-Grzhimailo
 Alexei N⁴, Sansone Giuseppe⁵, Kumar Pravinm M⁵, Carpeggiani Paolo A⁶, Füle
 Miklós⁷, Csizmadia Tamás⁷, Meyer Michael⁸, Mazza Tommaso⁸, D'Elia Alessandro⁹,
 Callegari Carlo¹⁰, Di Fraia Michele¹⁰, Plekan Oksana¹⁰, Giannessi Luca^{10,11}, Allaria
 Enrico M¹⁰, De Ninno Giovanni^{10,12}, Trovò Mauro¹⁰, Badano Laura¹⁰, Diviaco
 Bruno¹⁰, Gauthier David¹⁰, Mirian Najmeh S¹⁰, Penco Giuseppe M¹⁰, Rebernik Primoz
 R¹⁰, Spampinati Simone¹⁰, Spezzani Carlo¹⁰, Gaio Giulio¹⁰, Prince Kevin C^{10,13}

Attosecond delays in photoionization studied with seeded FEL

○ Daehyun You^{1,2}, Denys Iablonskyi¹, Kiyoshi Ueda^{1,2}, Kenichi L Ishikawa³, Tugs
 Oyunbileg³, Yuki Orimo³, Takeshi Sato³, Elena V Gryzlova⁴, Ekaterina I Staroselskaya⁴,
 Alexei N Grum-Grzhimailo⁴, Giuseppe Sansone⁵, Pravinm M Kumar⁵, Paolo A Carpeggiani⁶,
 Miklós Füle⁷, Tamás Csizmadia⁷, Michael Meyer⁸, Tommaso Mazza⁸, Alessandro D'Elia⁹,
 Carlo Callegari¹⁰, Michele Di Fraia¹⁰, Oksana Plekan¹⁰, Luca Giannessi^{10,11}, Enrico M
 Allaria¹⁰, Giovanni De Ninno^{10,12}, Mauro Trovò¹⁰, Laura Badano¹⁰, Bruno Diviaco¹⁰, David
 Gauthier¹⁰, Najmeh S Mirian¹⁰, Giuseppe M Penco¹⁰, Primoz R Rebernik¹⁰, Simone
 Spampinati¹⁰, Carlo Spezzani¹⁰, Giulio Gaio¹⁰, Kevin C Prince^{10,13}

¹ *Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Japan*

² *RIKEN SPring-8 Center, RIKEN, Japan*

³ *School of Engineering, the University of Tokyo, Japan*

⁴ *Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Russia*

⁵ *Institute of Physics, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Germany*

⁶ *Technische Universität Wien, Austria*

⁷ *ELI-ALPS, Hungary*

⁸ *European XFEL, Germany*

⁹ *Department of Physics, University of Trieste, Italy*

¹⁰ *Elettra-Sincrotrone Trieste, Italy*

¹¹ *ENEA Centro Ricerche Frascati, Italy*

¹² *Laboratory of Quantum Optics, University of Nova Gorica, Slovenia*

¹³ *Department of Chemistry and Biotechnology, Swinburne University of Technology, Australia*

【Abstract】 When an electron is ejected from an atom after absorption of a photon, there is an extremely short delay between the photon absorption and the electron emission. This interval, called the Eisenbud-Wigner-Smith (EWS) delay, is on the order of a few attoseconds (10^{-18} seconds). Currently, there are two primary methods to measure the EWS delay. Both methods are based on optical laser pulses including infrared (IR) pulses as part of the technique. The IR field, however, perturbs the Coulomb field in atomic systems. Here we present a new method

to measure the EWS delay, using coherent-controlled free-electron laser (FEL) pulses; no IR pulse is required. Therefore, no corrections regarding the measurement of the EWS delay are necessary.

【序】 The age of attosecond physics was ushered in by the invention of methods for probing samples on a time scale less than femtoseconds [1], and currently, many such ultrafast phenomena are being investigated. Photoemission is one such process, which has attracted much interest, particularly regarding the time delay between the absorption of a photon and the emission of a photoelectron, which is called the Eisenbud-Wigner-Smith (EWS) time delay [2]. There are currently two main methods of measuring the EWS delay: attosecond streaking [3] and RABBITT [4]. Both methods are based on optical laser pulses including infrared (IR) pulses as part of the technique. The IR field, however, perturbs the Coulomb field in the atomic system; thus, it is necessary to apply corrections during analysis and maintain a sufficiently low IR intensity.

Here we present a new method to measure the EWS delay. In this method, we use short wavelength XUV light, consisting of phase-locked first (ω) and second harmonic (2ω) pulses. This method eliminates the perturbation of the IR field present in the other approaches. Furthermore, being interferometric, our technique does not require extremely short, few-cycle pulses, but it depends instead on extremely accurate phase control (few attoseconds). Such fine control is available from the Italian free-electron laser, FERMI [5]. We report the measurement of EWS delay difference between electrons emitted by single-photon and two-photon processes of Ne, as a demonstration of the new method.

【実験方法】 We carried out the measurements at LDM beam-line, FERMI. The photon energies were set to 14.3 eV, 15.9 eV, and 19.1 eV for ω , which is below the Ne ionization threshold (21.6 eV), while the second harmonic 2ω is above the threshold. The dichromatic light beam with fixed relative phase crosses the atomic jet with He and Ne mixture. A velocity map imaging spectrometer measures angular distribution of ejected electrons.

【結果・考察】 Our target process is the photoionization of Ne by 1 or 2 photons:

single-photon process: $\text{Ne} + \text{photon}(2\omega) \rightarrow \text{Ne}^+(2p^{-1}) + e(s\text{- and } d\text{-waves}),$

two-photon process: $\text{Ne} + 2\text{photon}(\omega) \rightarrow \text{Ne}^+(2p^{-1}) + e(p\text{- and } f\text{-waves}).$

Because these four partial waves of an electron emitted by the two different pathways interfere with each other, the electron angular distribution is correlated to the unique phase shifts of each partial wave. The phase shifts can be extracted, by scanning the optical phase difference between ω and 2ω . On the other hand, the EWS delay $\tau(E)$ is defined as the derivative of phase η with respect to the photoelectron kinetic energy E : $\hbar \partial\eta/\partial E$ [2], where η is the phase shift of each partial wave. Hence, we have measured the phase shift differences at various photon energies and took their derivative to estimate the EWS delay. We find the EWS delay differences $\tau_{\text{two}} - \tau_{\text{single}}$ of -50 ± 15 attoseconds at 14—16 eV and -7 ± 5 attoseconds at 16—19 eV, which are in good agreement with theory.

【参考文献】

[1] F. Krausz *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).

[2] R. Pazourek *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **87**, 765 (2015).

[3] M. Schultze *et al.*, *Science* **328**, 1658 (2010).

[4] P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001).

[5] K. C. Prince *et al.*, *Nat. Photonics* **10**, 176 (2016).

強電場レーザーパルスを用いた波束の分散制御

¹奈良先端科技大, ²東北大院理, ³分子研
○香月浩之¹, 大槻幸義², 安食徹², 後藤悠³, 大森賢治³

Controlling Ultrafast Wave-packet Dispersion by Strong-laser-induced Quantum Interference

○Hiroyuki Katsuki¹, Yuki Yoshi Ohtsuki², Toru Ajiki², Haruka Goto³, Kenji Ohmori³
¹ Graduate School of Science and Technology, Nara Institute of Science and Technology, Japan
² Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tohoku University, Japan
³ Institute for Molecular Science, Japan

【Abstract】 The dispersion of a wave packet is a general phenomenon that exists in every quantum system other than harmonic oscillators. A non-dispersive wave packet is a general topic, and has been attracting much interest of researchers in the field of mathematics, physics, and engineering. Here we demonstrate a new approach to actively control the dispersion of a quantum wave packet. A vibrational wave packet is generated in the iodine molecule and irradiated with a strong non-resonant femtosecond laser pulse. We have found that the dispersion of this wave packet is advanced or retarded depending on the timing of the strong laser pulse. This is due to the instantaneous phase jump among the vibrational eigenstates induced by the strong electric field, which have been measured directly by the wave packet interferometry. These results qualitatively agree with simulations based on the time-dependent Schrödinger equations.

【序】 波束の分散は非調和性の結果であり、調和振動子以外の量子系において普遍的に存在する事象である。その影響をできるだけ抑え、局在化した状態を保持するソリトンのような波束は数学、物理学、エンジニアリングなど多岐にわたる分野で多くの研究者の興味を集めている。以前の研究で、我々は強電場の照射によって波束内の量子状態間の干渉を引き起こし、そのポピュレーション分布を制御できることを報告している[1]。本研究ではさらにその手法を発展させ、強電場によって変調された波束に対してラムゼイフリンジ測定を行い、位相シフトの測定を行うことによって、強電場が固有波動関数の位相に与える影響について議論する。

【実験】 対象とする実験系として、図 1 (a) に示した気相中の孤立ヨウ素分子の電子振動準位を用いる [2, 3]。フェムト秒ポンプパルスによって生成した B 電子状態の振動波束に対し、中心波長 1540nm の近赤外フェムト秒パルス (NIR パルス) を照射し、波束に含まれる振動準位間の干渉を引き起こす。この際、プローブ光としてフェムト秒のパルスを用いることで波束の時間発展を量子ビートとして観測することができる (図 1 (b))。一方、波束内に含まれる量子状態の位相については図 1 (c) に示したように、ダブルパルス励起とナノ秒プローブによる状態選別計測を行うことで測定することができる。実際の測定では各準位の絶対位相の測定はできないため、基準となる振動準位 (B 状態の $v=30$) に対して、その近傍に存在する $v=29$ 及び $v=31$ の両準位の相対位相が受ける影響について、評価を試みた。また、実験に使用したレーザーのパラメータを利用して、時間依存シュレーディンガー方程式 (TDSE) の

近似解析解を用いたシミュレーションを行い[4]、各振動準位が NIR パルスによって受ける位相の変化を計算して、実験と比較を試みた。

【結果・考察】まず図 1(b)のスキームに従い、NIR パルスを入射した場合のポンププローブ信号の量子ビートの形状を測定し、NIR パルスを照射するタイミングに応じてその後の量子ビートの形状が変化していることを確認した。このことは準位間の相対位相やポピュレーション分布に変化が起きていることを示している。より詳細にこれらの変化を議論するために、図 1(c)のスキームに従い、 $v=29, 30, 31$ の各準位間の相対位相測定を、NIR パルスの照射あり/なしの各条件で行った。両者において得られた 2 準位間の位相差を計算することで、NIR パルスが波束に及ぼす影響を議論することができる。実験結果から、 $v=30$ に対して $v=29$ 及び $v=31$ の準位が受ける相対位相の変化は、NIR パルスのタイミングによって複雑に変化することがわかった。これらの結果は TDSE シミュレーションにおいても再現することができた。

興味深いことに TDSE シミュレーションの結果から、特定のタイミングで NIR パルスを入射した場合、 $v=29$ 及び $v=31$ に誘起される位相ジャンプ量の絶対値が等しく、符号のみ逆転しているような状況を実現できることが示された。この結果は、時間発展によって非調和性の結果、波束に含まれる固有状態間の相対位相差が蓄積していく状況において、波束の状態 $\psi(t)$ を外部摂動によって $\psi(t \pm \Delta)$ の状態に変更できることを示唆している。今回得られた知見は振動波束の運動に限定されるものではなく、複数の量子準位からなる任意の量子波束に適用可能であり、分散を制御する新しい方法として今後応用が可能であると考えられる。

【参考文献】

- [1] H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba, and K. Ohmori, Nat. Phys. **7**, 383 (2011).
- [2] H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, Science **311**, 1589 (2006).
- [3] H. Katsuki, H. Chiba, C. Meier, B. Girard, and K. Ohmori, Phys. Rev. Lett. **102**, 103602 (2009).
- [4] Y. Ohtsuki, H. Goto, H. Katsuki, and K. Ohmori, Phys. Chem. Chem. Phys. **16**, 5689 (2014).

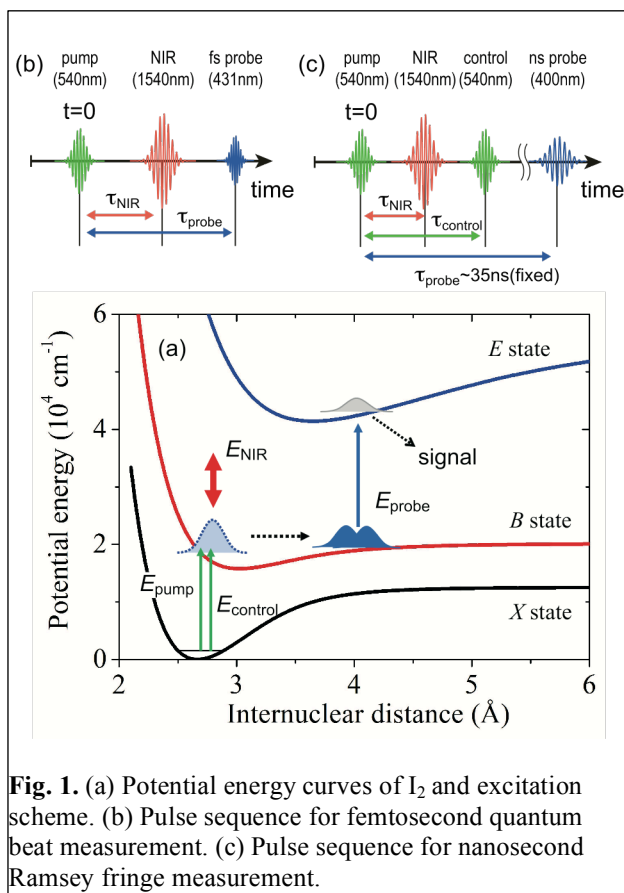


Fig. 1. (a) Potential energy curves of I_2 and excitation scheme. (b) Pulse sequence for femtosecond quantum beat measurement. (c) Pulse sequence for nanosecond Ramsey fringe measurement.

一光子吸収による二電子励起断面積の測定：H₂SおよびH₂O

¹東工大, ²カッセル大, ³上智大

○穂坂綱一¹, 鳥塚祐太郎¹, 南崎開¹, Philipp Schmidt², Andre Knie², Arno Ehresmann²,
小田切丈³, 北島昌史¹, 河内宣之¹

Double excitation cross sections in the single-photon absorption of H₂S and H₂O

Kouichi Hosaka¹, Yutaro Torizuka¹, Kai Minamizaki¹, Philipp Schmidt², Andre Knie²,
Arno Ehresmann², Takeshi Odagiri³, Masashi Kitajima¹, and Noriyuki Kouchi¹

¹ Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Japan

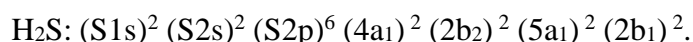
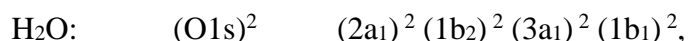
² Institute of Physics, University of Kassel Germany

³ Department of Materials and Life Sciences, Sophia University, Japan

【Abstract】The cross sections for the emission of the Lyman- α fluorescence are measured as a function of the incident photon energy in the outer and inner valence range in the photoexcitation of H₂S and H₂O. State-resolved dipole oscillator strengths for H(2p) formation are determined. Doubly excited states of H₂O and H₂S are compared based on the similarity and difference of the electronic structure.

【序】

分子軌道法は、化学の根幹である。その下では、1光子により1電子が励起する。最外殻電子の光励起はこのモデルでよく説明できるが、inner-valence 電子の光励起においては、エネルギー的に近接した2電子励起配置との配置間相互作用により、様々な過程の励起スペクトルは、複雑な形状を示す (CH₄[1], NH₃[2], H₂O[3])。この事は、分子軌道法の破れ、即ち、強い電子相関の存在を示している。本研究では、以下に示す様に、H₂O と H₂S では基底状態の電子配置が類似していることに注目して、電子相関が実証されている H₂O[3]に加えて、H₂S の2電子励起状態を調べた [4]。



inner shell

両者は中心原子のみが異なり、価電子軌道を構成する原子軌道が H₂O では O 原子の 2s と 2p 軌道であるのに対し、H₂S では、S 原子の 3s と 3p 軌道である。この軌道の違いを反映し、状態密度は H₂O と比べると H₂S では大きい。従って、H₂S における電子相関は H₂O よりも大きいであろう。H₂O と H₂S の比較は、電子相関の強さが、二電子励起状態ダイナミクスに与える影響を研究する格好の題材である。

【実験】

2電子励起状態は、第一イオン化エネルギーを超える超励起状態であり、その波動関数は電子的束縛状態と連続状態の重ね合わせ状態である。我々は、解離生成する H(2p) 原子由来の Lyman- α 光子を選択的に検出し、束縛成分を分離、抽出してきた[1-3]。これまでの対象分子では(CH₄, NH₃, H₂O)、マイクロチャンネルプレート(MCP)と MgF₂

窓の組み合わせで、波長 121.6 nm の Lyman- α 光子のみを選別できた [1-3]。しかし、 H_2S の場合、この検出器の組み合わせでは、Lyman- α 光子と励起 S 原子由来のけい光を区別出来ない。そこで、本研究では、(i) けい光分光器を用いた高波長分解能、低感度の計測と(ii)感度の波長依存性が異なる 2 種類の MCP を用いた低波長分解能、高感度の計測を組み合わせ、Lyman- α 光子生成断面積を入射光子エネルギーに対し測定した。2 つの手法を組み合わせることで、高い波長選択性と高い統計精度の両立に成功した。

(i) けい光分光器を用いた分散けい光実験は、放射光施設 BESSY II(ドイツ) のアンジュレータビームライン U125-2 で行なった。波長 120-185 nm のけい光を 1m 直入射分光器を用いて分散させ、位置敏感検出器を用いて検出した。入射光子エネルギーは、12 eV から 24 eV の範囲で、0.5 eV 刻みでスキャンした。

(ii) 感度の波長依存性が異なる 2 種類の MCP を用いた非分散けい光実験は、高エネルギー加速器研究機構放射光科学研究施設(KEK-PF)の真空紫外ビームライン BL-20A で行なった。MCP 表面への CsI 蒸着の有無により、2 つの MCP で、検出感度の波長依存性を変えた。入射光子エネルギーは、11 eV から 40 eV の範囲で 50 meV 刻みでスキャンした。Lyman- α 光子生成断面積が既知の水素分子での測定を同じセットアップで行い、 H_2O と H_2S の光励起に由来する Lyman- α 光子生成断面積の値を絶対値スケールで決定した。

【結果・考察】

得られた H_2S の Lyman- α 光子放出断面積は H_2O よりも複雑な構造を示した。 H_2S の断面積カーブをフィッティングによりピーク分離し、10 個の超励起状態を見出した [4]。そのうち 2 状態は、 $2b_2$ 軌道の電子が励起した単一配置の 1 電子励起状態、残り 8 状態は、多配置の 2 電子励起状態である。それらの状態ごとに断面積曲線を積分し、各状態を経由して Lyman- α 光子を放出する過程の振動子強度を決定した。振動子強度 (H_2S) の値は、 H_2O と同様、 $\sim 10^{-3}$ のオーダーであった。また、8 個の 2 電子励起状態のうち、 $4a_1$ 軌道の 1 電子励起配置を含む状態は、3 つあった。一方、 H_2O の場合、対応する状態、即ち、 $2a_1$ 軌道の 1 電子励起配置を含む 2 電子励起状態は、1 つしか観測されなかった。この違いは、電子相関の違いを反映している。電子相関が小さい H_2O では、状態分裂が小さく、近接した状態が 1 つのピークとして観測されたのに対し、電子相関が大きい H_2S では別々のピークとして分裂して観測された。

【参考文献】

- [1] H. Fukuzawa et al., J. Phys. B 38, 565 (2005).
- [2] L. Ishikawa et al., J. Phys. B 41, 195204 (2008).
- [3] M. Nakano et al., J. Phys. B 43, 215206 (2010).
- [4] K. Hosaka et.al, submitted.