

2B17

フォントラップ分光：マンガンイオンの磁気光学効果

(豊田工大*, (株)コンポン研**) ○寺崎 亨*, 間嶋拓也**, 近藤 保*

【序】光の閉じ込め寿命を計測する共振器光損失測定法が分光手段に転用され、その感度の高さと簡便さから、特に気相分子の微弱な吸収の検出に利用されている。現在では基板状の固体やセル中の液体にも測定対象が広がっている。当初発案されたキャビティ・リングダウン法[1]は共振器中を往復するパルス光の減衰時定数を光の寿命と考える時間領域の描像だが、我々は、これを共振器の共鳴特性と捉える周波数領域の描像が連続光の場合や固体試料を含む共振器の解析に有効であることを指摘し、これらを統一的に総称して「フォントラップ法」と呼んでいる[2]。

ところが、中性種に比べてはるかに希薄な気相イオンには、この測定感度も及ばない。この困難を克服するために、イオントラップを利用してイオンを蓄積する方針で、新たな実験装置を設計・製作した[3]。これは、分子やクラスターの質量選別イオンの光吸収を直接的に検出する原理的に新しい実験手段であり、レーザー誘起蛍光や光解離による従来の間接的な情報に代わる測定が期待される[4]。

現在、金属クラスターの特異な磁気特性[5]に着目して、クラスターイオンの微弱な光吸収を磁場中で測定して磁気光学効果を捉える「フォントラップ磁気分光」実験を進めている。昨年の討論会で、マンガン単量体イオンの ${}^7P_J \leftarrow {}^7S_3$ ($J = 2, 3, 4$)遷移について、光吸収、ゼーマン分裂、ファラデー回転のスペクトルを報告した[3]。本講演では、これらスペクトルを解析した結果を報告する。

【解析手順】

超微細構造：各電子状態は、電子の角運動量 J と Mn の核スピン ($I=5/2$) とが結合して量子数 $F (= |J-I|, \dots, J+I)$ の準位を形成し、磁気双極子相互作用 (定数 A) と電気四重極子相互作用 (定数 B) のために分裂する。分裂した基底状態 7S_3 と励起状態 ${}^7P_{2,3,4}$ の間で、各準位間のエネルギー差と遷移強度を量子論に沿って計算し、吸収線を求めた。その際に必要な各電子状態の超微細構造定数 (A, B) と、基底状態-励起状態間の遷移エネルギーの中心値、振動子強度は、放電生成した Mn^+ の発光スペクトル測定の報告値を参照した[6]。測定分解能 (約 0.1 cm^{-1}) に対応する装置関数を遷移強度に相当する重みで各吸収線に割り当て、それらを総和して吸収スペクトルを描いた。

ゼーマン分裂：弱磁場下では、量子数 F の準位が $m_F (= -F, \dots, +F)$ に比例して分裂する。磁場 10 mT 以上では、異なる F から生じる同一 m_F の準位間で相互作用が顕著となり、新たな固有状態が形成される。この固有状態のエネルギーから遷移エネルギーを、波動関数から遷移強度をそれぞれ計算し[7]、同様の装置関数を仮定して、ゼーマン分裂のスペクトルを得た。

ファラデー回転：ゼーマン分裂で生じた各固有状態間の吸収線に分散関数形を割り当て、さらに装置関数を考慮して、左右円偏光成分の屈折率の差が原因で生じるファラデー回転のスペクトルを描いた。

【解析結果】 図1に ${}^7P_4 \leftarrow {}^7S_3$ 吸収スペクトルの解析結果を示す。図1(a)に示す無磁場での超微細構造(HFS)は、15本の遷移の総和で説明できた。図1(b)は、磁場3 Tでゼーマン分裂したスペクトルである。HFSよりも磁場による分裂が大きいパッシェン-バック効果の領域であるが、HFSを考慮せずに得られる $\Delta m_J = +1, -1$ によるそれぞれ7本の吸収線だけでは実験結果を再現できない。そこでHFSを考慮した結果が図1(c)である。7本の吸収線はそれぞれさらに m_J で6本に分裂する ($\Delta m_J = 0$)。しかも、 m_J 値によって分裂の大きさが異なるために、鋭いピークや幅広い肩構造が生じることがわかる。これら84本の吸収線の総和で実験結果が良く再現された。さらに、ファラデー回転のスペクトルも、図1(d)のように見事に再現できた。以上のように、実験で得られたスペクトルの形状は、いずれも原子スペクトルの量子論でよく説明できた。

一方、吸収断面積の絶対値(振動子強度)の導出にはイオン密度の情報が必要である。ところが、捕捉イオン量とトラップ容積とから求めた平均密度をもとに算出した振動子強度は、発光測定の結果とは異なる結果となった。これはトラップ中のイオン分布が必ずしも一様ではないことを示唆しており、イオン分布の実測を試みている[8]。

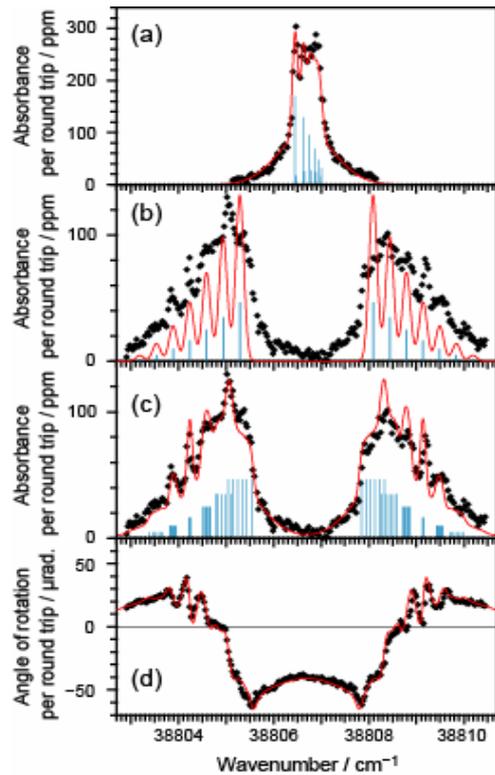


図1 $Mn^+ : {}^7P_4 \leftarrow {}^7S_3$ 遷移のスペクトル
 (a) 超微細構造 (HFS), $B = 0$ T;
 (b) ゼーマン分裂, $B = 3$ T, HFSを無視;
 (c) ゼーマン分裂, $B = 3$ T, HFSを考慮;
 (d) ファラデー回転, $B = 3$ T, HFSを考慮.
 黒丸: 実験データ;
 縦棒: 吸収線 (長さは強度を示す);
 赤線: 計算されたスペクトル.

[1] A. O'Keefe and D. A. G. Deacon, Rev. Sci. Instrum. **59**, 2544 (1988).
 [2] A. Terasaki et al., J. Opt. Soc. Am. B **22**, 675 (2005); K. Egashira et al., J. Chem. Phys. **126**, 221102 (2007); 寺寄ら：分光研究 **56** (2), 62 (2007).
 [3] 寺寄ら：分子構造総合討論会 (2006) 2B16; 間嶋ら：同 3P034.
 [4] A. Terasaki, J. Phys. Chem. A (Feature article), in press (Published on Web: May 25, 2007).
 [5] A. Terasaki et al., J. Chem. Phys. **114**, 9367 (2001); *ibid.* **118**, 2180 (2003).
 [6] R. Kling and U. Griesmann, Astrophys. J. **531**, 1173 (2000); R. Kling et al., Astrophys. J. Suppl. Ser. **134**, 173 (2001); R. J. Blackwell-Whitehead et al., Mon. Not. R. Astron. Soc. **364**, 705 (2005).
 [7] P. Tremblay et al., Phys. Rev. A **42**, 2766 (1990).
 [8] 間嶋ら：本討論会 4P038.