

## ヨウ素分子のイオン対状態間の ASE 輻射緩和過程

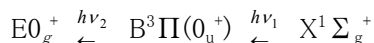
(広島市立大学・情報科学研究科)○中野幸夫, 藤原久志, 福島勝, 石渡孝

## 【序論】

ヨウ素分子の励起状態のうち、イオン対状態は基底状態との平衡核間距離の違いより、一光子での直接励起が不可能である。これまでに本研究室においては、光一光二重共鳴法を用いることにより、ヨウ素分子のイオン対状態の測定を可能とし、その構造解析などを行ってきた。本研究においては、ヨウ素分子のイオン対状態間の  $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  の緩和過程について調べた。この  $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  の緩和過程はこれまでの研究において、さまざまな緩和過程の機構が提案されてきたが、それらは実験結果を十分に説明できるものではない。そこで、本研究では光一光二重共鳴法を用いて  $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  イオン対状態間の緩和過程の測定を行い、その機構の解明を目的とした。

## 【実験】

本研究では、光一光二重共鳴法を用いてイオン対状態である  $E0_g^+$  状態の緩和過程の測定を行なった。実験には  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  レーザー励起の 2 台の色素レーザーを用い、一台はポンプ光 ( $h\nu_1$ )、もう一台はプローブ光 ( $h\nu_2$ ) として用いた。ポンプ光によりヨウ素分子を基底状態 ( $X^1\Sigma_g^+$ ) から  $B^3\Pi(0_u^+)$  状態に励起し、その後、約 20 ns の遅延時間を置きプローブ光を照射することにより、 $E0_g^+$  状態に励起した。



$E0_g^+$  状態、また  $D0_u^+$  状態の緩和により生成する  $D0_u^+$  状態からの発光をそれぞれ  $E0_g^+ \rightarrow B^3\Pi(0_u^+)$  と  $D0_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$  を用いて検出した。

## 【結果と考察】

図1には  $E0_g^+$  ( $v=0$ ) 状態に励起した際に観測される  $D0_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$  遷移の発光スペクトルを示した。 $E0_g^+$  状態に選択的な励起を行ったにもかかわらず、 $D0_u^+$  状態からの発光が観測されるのは、 $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  という何らかの緩和過程が起こっていることを示している。

図1の(a)と(b)はそれぞれプローブ光とポンプ光の空間的重なりが小さい時(a)と大きい時(b)に観測された  $D0_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$  遷移の発光スペクトルを示している。プローブ光とポンプ光の空間的重なり大きさにより生成される  $D0_u^+$  状態の振動分布が異なっていることが

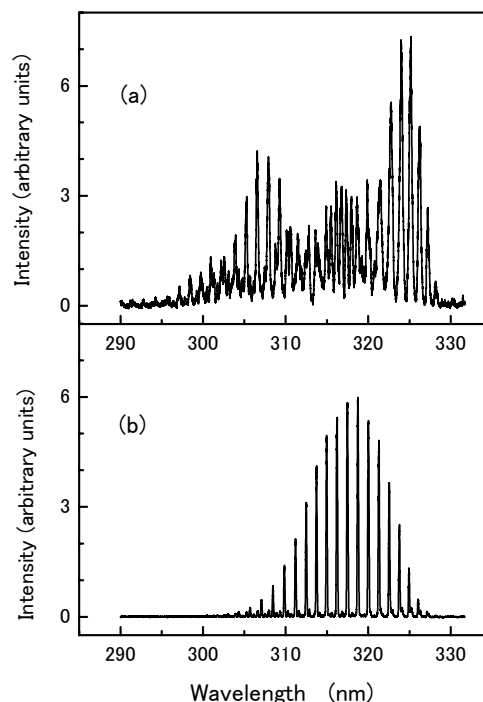


図1  $E0_g^+$  ( $v=0$ ) 状態に励起した際に観測される  $D0_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$  遷移の発光スペクトル

- (a): プローブ光とポンプ光が分光器のスリットの前で  $30^\circ$  の角度で交差するようなアライメントで測定  
 (b): プローブ光とポンプ光が同軸上を通るようにしたアライメントで測定

わかる。図1の(a)の測定条件下で生成される  $D0_u^+$  状態は  $v' = 2$  状態を中心にした広い振動準位に分布を起こしているのに対して、図1の(b)の測定条件下で生成される  $D0_u^+$  状態は、ほぼ  $v' = 0$  状態にのみ分布している。

以上の現象を詳しく調べるため、各条件下において  $E0_g^+$  と  $D0_u^+$  状態からの発光のタイムプロファイルの測定を行った。図2は図1の(a)の発光が観測される条件下において、 $E0_g^+$  と  $D0_u^+$  状態からの発光波形である。 $E0_g^+$  状態からの発光波形はプローブ光波形を用い、 $D0_u^+$  状態からの発光波形に対しては、 $E0_g^+$  状態からの衝突緩和過程を考えたシミュレーションを行うことにより波形の再現ができ、この  $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  緩和過程が衝突緩和であると提案される。また緩和速度が基底状態のヨウ素分子の濃度に比例するため、この条件下においては  $E0_g^+$  状態分子と基底状態分子間の衝突によるエネルギー緩和が主に起こっていると考えられる。

一方、図1の(b)の発光が観測される条件下において  $E0_g^+$  と  $D0_u^+$  状態からの発光のタイムプロファイルを測定すると、図3に示したように、図2とはまったく異なった発光波形であった。図3の  $E0_g^+$  状態からの発光波形より  $E0_g^+$  状態がプローブレーザー照射中に半分近くの緩和を起し、 $D0_u^+$  状態からの発光波形からは  $D0_u^+$  状態が数 ns という非常に短い時間の中に生成されていることがわかる。これらことより、この発光波形は  $E0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  の誘導放出(ASE)緩和過程が起こった結果、観測されているものであるということがわかった。

以上のことより、 $E0_g^+$  状態はプローブ光とポンプ光の空間的重なりが、2つの異なる緩和過程を示すことがわかった。一つは  $E0_g^+$  状態と基底状態分子との衝突によるエネルギー移動による  $D0_u^+$  状態への衝突緩和であり、もう一つは、ASE による  $D0_u^+$  状態への輻射遷移ある。

$E0_g^+$  状態の ASE 輻射緩和過程により生成する  $D0_u^+$  状態の振動分布を  $E0_g^+$  ( $v'=0-9$ ) の状態に対して調べ、 $E0_g^+ v'$  状態と  $D0_u^+ v''$  状態間のフランクコンドンファクターとの比較を行うことにより、ASE 輻射緩和過程の定量的な説明を行った。上記の詳細は実際の発表にて説明を行う。

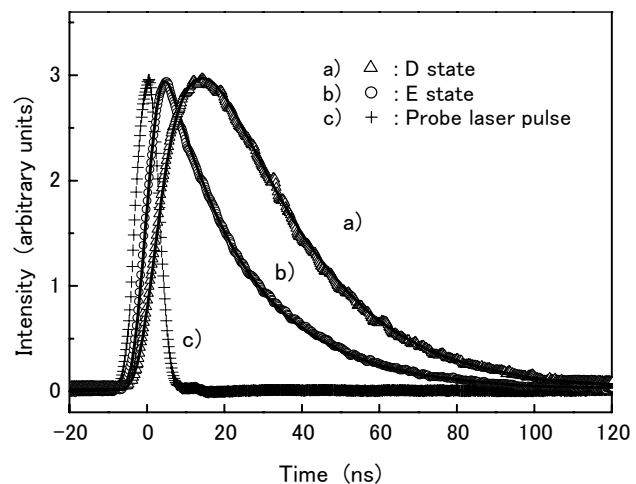


図2 プローブ光とポンプ光が分光器のスリットの前で  $30^\circ$  の角度で交差するようなアライメントで測定した  $E0_g^+$ 、 $D0_u^+$  状態からの発光波形。実線は衝突緩和過程を考えた時のシミュレーション結果。

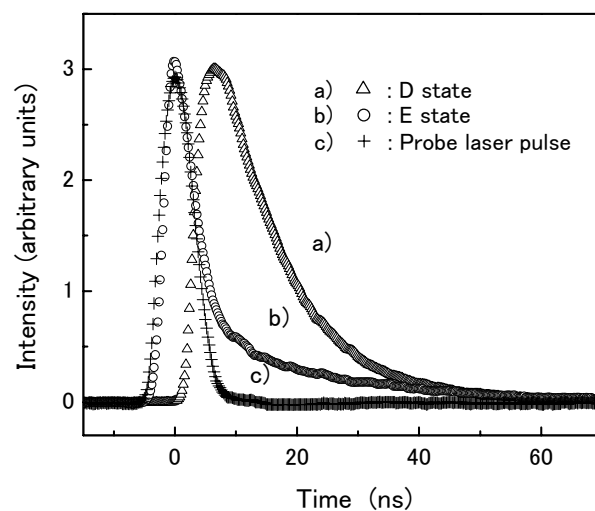


図3 プローブ光とポンプ光が同軸上を通るようにしたアライメントで測定される  $E0_g^+$  と  $D0_u^+$  状態からの発光波形