

3P022

N0 分子の Rydberg 状態 9s 及び 10s からの遠赤外発光

(東理大院総化) ○古川博基, 荒木光典, 築山光一

【序】レーザー誘起自然放射増幅光(Laser induced - Amplified Spontaneous Emission :LI-ASE)とは、レーザー光によって反転分布を形成した媒質からの自然放射光が、媒質自身の誘導放射過程によって増幅された光のことである。我々は N0 分子からの LI-ASE を測定することにより、①発光波長が近赤外-中赤外領域である、②Rydberg 状態間の遷移である、③振動準位間の選択則として $\Delta v = 0$ が成り立つ、④カスケード的緩和過程である、⑤解離性の高い状態からでも LI-ASE を発生する、ことを見出してきた[1]。近年我々は、初めて N0 分子の Rydberg 状態 8s と 8f からそれぞれ 27 μm と 21 μm の遠赤外発光を検出した[2]。検出された発光が遠赤外領域であることから、自然放射増幅光ではなく、黒体放射により誘導放射過程が誘起された誘導放射増幅光だと予想された。黒体放射光による Rydberg 状態間遷移は、主にアルカリ金属原子の Rydberg 状態について報告はあるが[3]、N0 のような分子系に関しては報告例がない。今回我々は、初めて N0 分子の Rydberg 状態 9s, 10s から遠赤外領域での誘導放射増幅光の測定に成功した。また、その発光スペクトルより、黒体放射による Rydberg 状態間励起過程が示唆されたので報告する。

【実験】 $A^2\Sigma^+(v=0)$ 状態を経由した光-光二重共鳴法を用いることにより目的の Rydberg 状態を生成した。励起光源には Nd:YAG レーザーの第 2 高調波励起の色素レーザーを 2 台用いた。1 台目の色素レーザーからの出力光を第 3 高調波 ω_1 (227 nm) に変換したものを $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi(0,0)$ の励起光とし、 $A^2\Sigma^+$ における単一の振動回転状態を生成した。2 台目の色素レーザーからの出力光を第 2 高調波 ω_2 (347 ~ 343 nm) に変換したものを、 $A^2\Sigma^+(v=0)$ から目的の Rydberg 状態 9s ($v=0$), 10s ($v=0$) への励起光とした。それらを時間的・空間的に重ね合わせ、N0 を ~5 Torr 封入したステンレスセルに導入した。この過程でレーザー光軸上に発生した誘導放射増幅光をレーザー光と分離し、分光器で波長分散した後に MCT 及びボロメーターで検出した。

【結果・考察】得られた 9s- $A^2\Sigma^+(0,0)$ と 10s- $A^2\Sigma^+(0,0)$ 励起スペクトルは、四波混合分光法の実験から得られた分子定数を用いて帰属した[4]。9s 及び 10s からの発光スペクトルを図 1, 2 にそれぞれ示す。9s からは 19 μm と 40 μm の発光を確認し、40 μm の発光は、9s \rightarrow 8p $\sigma(0,0)$ 遷移によるものと帰属できた。19 μm の発光については、9s に励起した N0 分子が、常温における周囲からの黒体放射を吸収し、8f \leftarrow 9s(0,0) 遷移(126 μm) をし、その状態から 8f \rightarrow 7g(0,0) 遷移によって誘導放射光を発振したと考えた(図 3)。また、10s からは 19 μm , 28 μm 及び 60 μm の発光を確認した。60 μm の発光は 10s \rightarrow 9p $\sigma(0,0)$ 遷移によるものと帰属した。19 μm , 28 μm の発光は、9s と同様に、黒体放射による 9f \leftarrow 10s(0,0) 遷移(185 μm) の後、カスケード的

な $9f \rightarrow 8g \rightarrow 7f(0, 0, 0)$ 遷移によって発振したと帰属した(図 3). 自然放射による遷移レートを表す Einstein の A 係数と, 黒体放射による遷移レート K の関係は式(1)で定義される.

$$\frac{A_{m'm'}}{K_{m'm'}} = \exp\left(\frac{h\nu_{m'm'}}{kT}\right) - 1 \quad (1)$$

$T = 300$ Kにおいて, 今回観測した $20 \sim 60 \mu\text{m}$ の範囲では $(A_{nn'}/K_{nn'}) = 10 \sim 1.2$ となり, $2 \mu\text{m}$ のときの $(A_{nn'}/K_{nn'}) = 5.2 \times 10^{10}$ と比較すると, 黒体放射による遷移の割合が著しく増加することがわかる. またアルカリ金属原子の Rydberg 状態では, 黒体放射誘起による遷移は, 近接の Rydberg 状態間で起こることが示唆されている[3]. 以上のことから, 今回測定した発光が, 黒体放射によって誘起された誘導放射増幅光であるものと結論した.

当日は遠赤外誘導放射スペクトル強度の温度依存性, $11s$ 及び $10f$ からの遠赤外誘導放射増幅過程についても報告する予定である.

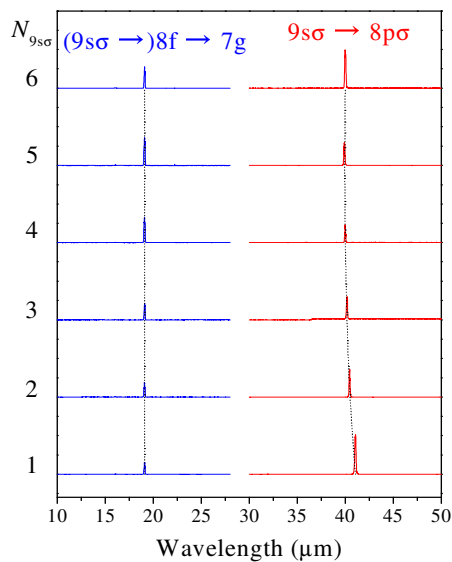


図 1. $9s(v = 0)$ からの発光スペクトル

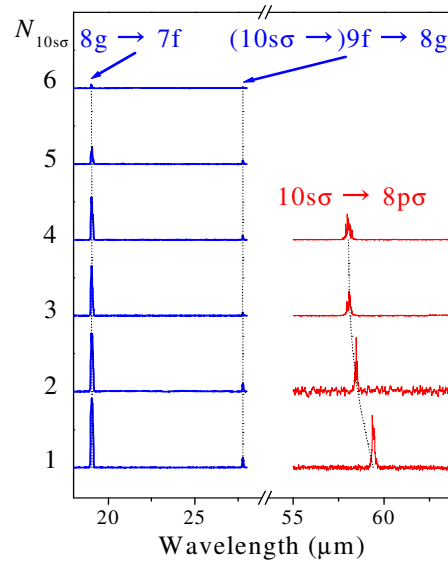


図 2. $10s(v = 0)$ からの発光スペクトル

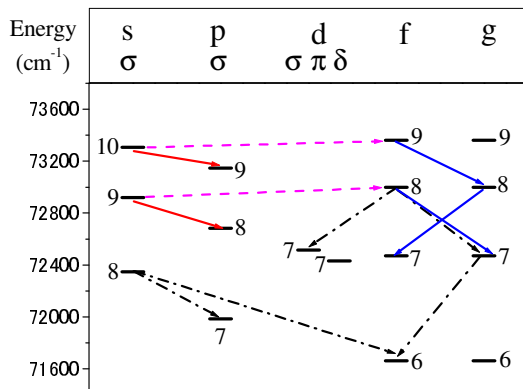


図 3. NO 分子の Grotrian ダイアグラム

- (red), — (blue) : 今回観測した放射経路
- · - : 過去に観測された放射経路
- - - (pink) : 黒体放射による励起経路

[1] 例えば : A. Sugita *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **109**, 3386 (1998).

[2] Y. Ogi *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **436**, 303 (2007).

[3] I. I. Beterov *et al.*, *Phys. Rev. A*, **79**, 052504 (2009).

[4] J. Geng *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **266**, 290 (1997).