

2P-004

NO の高 Rydberg 状態からの遠赤外誘導放射過程及び偏光度解析

(東京理科大学総合化学) 阿部恭子, 古川博基, 荒木光典, 築山光一

Far-infrared stimulated emission from the high Rydberg states of NO and analysis of the polarization degree

(Tokyo Univ. of Science) Kyoko Abe, Hiroki Furukawa, Mitsunori Araki, Koichi Tsukiyama

【序】 本研究室では、NO の Rydberg 状態間遷移による誘導放射過程である自然放射増幅光 (Amplified Spontaneous Emission: ASE) について研究を行ってきた。近年、高 Rydberg 状態である $9s\sigma$ ($\nu=0$)、 $10s\sigma$ ($\nu=0$) から遠赤外発光 (FIR) の観測に成功している¹⁾。しかし、ASE が発生するために必要な自然放射光が $9s\sigma$ 及び $10s\sigma$ から観測されたという報告はなく、また一般的に遠赤外領域では自然放射の確率が著しく低いことから、観測された FIR は近赤外 ASE (NIR) と異なる発光過程であることが示唆された。

本研究では FIR の発光過程に関する情報を得るために、NO の自動イオン化 Rydberg 状態からの FIR の観測及び FIR の偏光度測定を行った。その結果、自動イオン化状態からも十分な強度を持つ FIR の観測に成功し、FIR が NIR と同様の偏光特性を持つことがわかった。

【実験】 目的とする Rydberg 状態への励起には、最低 Rydberg 状態である $A^2\Sigma^+$ を中間状態とした光 - 光二重共鳴法を用いた。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 ω_1 を $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi(0,0)$ 遷移の励起光とし、2 台目の色素レーザーからの出力光 ω_2 を $A^2\Sigma^+$ から目的の状態への遷移に相当する励起光とした。この 2 つの光を時間的・空間的に重ね合わせ、NO を約 5 Torr 封入したステンレスセルに入射し、単一の振動回転状態からの FIR を発光させ検出した。

偏光度は、 ω_2 の偏光面を基準にした際の検出光の平行及び垂直成分の強度を用いて求めた。ダブルフレネルロムを用いて ω_2 の偏光面を ω_1 の偏光面に対して平行・垂直になるよう操作し、セルと検出器の間に設置した偏光子の角度を 0° , 90° となるように変化させ、偏光子を通過した FIR の平行及び垂直成分のみを検出できるようにした。また FIR の偏光度と比較するために NIR の偏光度も同様にして求めた。なお、偏光度測定は分光器を用いずに行った。

【結果と考察】

自動イオン化 Rydberg 状態からの FIR の観測

$A^2\Sigma^+$ ($\nu=1$) を経由し、 $\nu=0$ Rydberg 系列の極限である第一イオン化限界 $IP_0 = 74720 \text{ cm}^{-1}$ より高いエネルギーを持つ自動イオン化 Rydberg 状態に励起することにより、自動イオン化 Rydberg 状態からも高強度の FIR を観測することに成功した。図 1 に観測した Rydberg 状態 ($\nu=1$) への励起スペクトルの一部を示す。各スペクトルを $9-13s\sigma$ ($\nu=1$)、 $8-12f$ ($\nu=1$)、 $12p$ (ν

=1)と帰属した²⁾。自動イオン化 Rydberg 状態の寿命は $9s\sigma$ ($\nu=1$)、 $12f$ ($\nu=1$)で 1 ns 以下であり、 $12p$ ($\nu=1$)では数 ps であると報告されている³⁾⁴⁾。しかし本研究で十分な強度の FIR が観測されたことにより、高 Rydberg 状態の緩和過程において FIR 放射が前期解離や自動イオン化と競合していることがわかった。

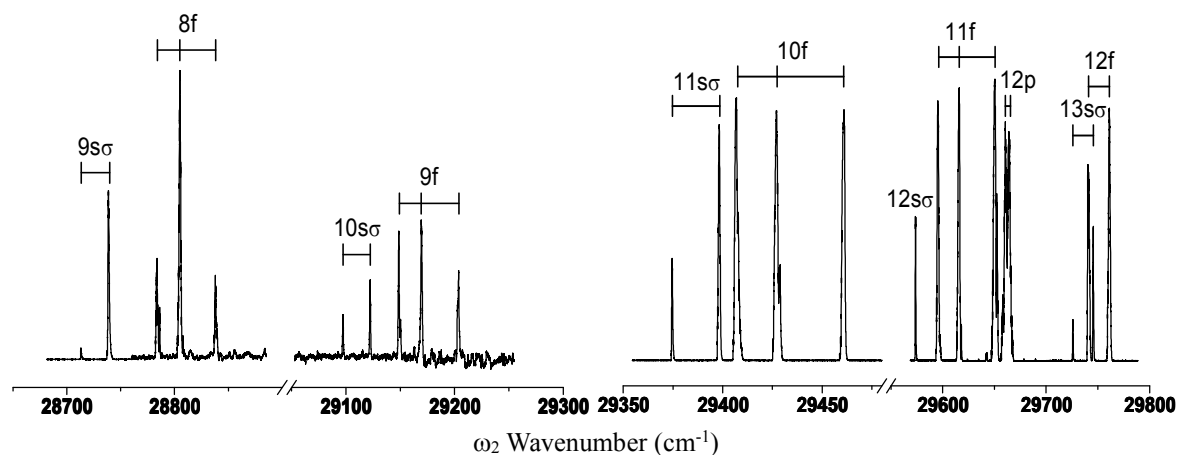


図1 観測された励起スペクトルの一部

FIR の偏光度解析

$9s\sigma^2\Sigma^+ \rightarrow 8p\sigma^2\Sigma^+(0,0)$ 遷移による約 $40 \mu\text{m}$ の FIR と $E^2\Sigma^+ \rightarrow D^2\Sigma^+(0,0)$ 遷移による約 $1.3 \mu\text{m}$ の NIR の偏光度を測定した。図2は ω_1 を $A \leftarrow X(0,0)$ 遷移の P 枝、 ω_2 を $9s\sigma \leftarrow A(0,0)$ 遷移の R 枝にそれぞれ固定し、 ω_1 と ω_2 の偏光面を垂直にした際に観測された FIR と NIR の偏光度 $P(\perp)$ 及び LIF 理論値を基底状態 X の各回転準位 J_x に対してプロットしたものである。励起状態の特性が大きく反映される FIR 及び NIR の増幅過程を一般的かつ定量的に扱うことが困難なため、偏光度 P の理論計算は線形過程である LIF について行った⁴⁾。FIR の偏光度は最大 ± 0.2 程度の誤差があると見積もられる。FIR の偏光度は NIR と同様に LIF 理論値よりも大きな値をとることがわかった。誘導放射過程の非線形な光増幅が優勢な偏光成分をより強く増幅するため、NIR の偏光度は LIF の偏光度よりも大きくなるが、FIR にも同様な偏光特性が見られた。

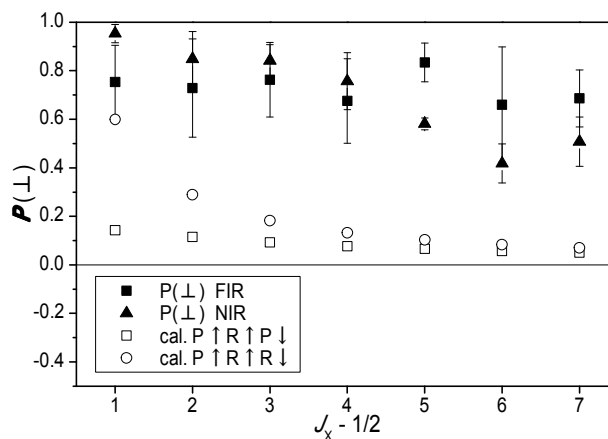


図2 $9s\sigma \rightarrow 8p\sigma(0,0)$ 及び $E \rightarrow D(0,0)$ 遷移の偏光度の J_x 依存性

- 1) 古川博基・荒木光典・築山光一、第4回分子科学討論会 **3P022** (2010) 2) Anezaki *et al.*, *Chem. Phys.*, **97**, 153 (1985) 3) Nussenzweig and Eyler, *J. Chem. Phys.*, **101**, 4617 (1994) 4) Biernacki, *J. Chem. Phys.*, **89**, 2599 (1988) 5) Y. Ogi *et al.*, *Chem. Phys.*, **271**, 215-225 (2001)