

## I<sub>2</sub>のイオン対状態 $f'0_g^+$ ( $^1D_2$ )からの自然放射増幅過程に関する研究

(東京理科大学総合化学研究科<sup>1</sup>, 広島市立大情報科学研究科<sup>2</sup>)

星野 翔麻<sup>1</sup>, 荒木 光典<sup>1</sup>, 築山 光一<sup>1</sup>, 福島 勝<sup>2</sup>, 藤原 久志<sup>2</sup>, 石渡 孝<sup>2</sup>

### Amplified spontaneous emission from the $f'0_g^+$ ( $^1D_2$ ) ion-pair state of I<sub>2</sub>

(Graduate school of Chemical Sciences and Technology, Tokyo University of Science<sup>1</sup>,

Graduate school of Information Sciences, Hiroshima City University<sup>2</sup>)

Shoma Hoshino,<sup>1</sup> Mitsunori Araki,<sup>1</sup> Koichi Tsukiyama,<sup>1</sup>

Masaru Fukushima,<sup>2</sup> Hisashi Fujiwara,<sup>2</sup> Takashi Ishiwata<sup>2</sup>

**【序】** レーザー誘起自然放射増幅光 (Amplified Spontaneous Emission: 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. 本研究室では, ASE の発生を励起状態の緩和過程の一つと認識し, ヨウ素分子 (I<sub>2</sub>) の ion-pair 状態間遷移の ASE を測定し, その過程を研究してきた. I<sub>2</sub> の  $f'0_g^+$  ( $^1D_2$ ) –  $F'0_u^+$  ( $^1D_2$ ) ion-pair 状態間で赤外領域の ASE が発生することが Donovan 等によって指摘されてきた[1]. しかし彼等は, 直接 ASE を検出したわけではなかった. 今回我々はレーザー励起により生成した I<sub>2</sub> のイオン対状態  $f'0_g^+$  からの ASE を直接検出した.

**【実験】** I<sub>2</sub> のイオン対状態である  $f'0_g^+$  状態への励起は Valence 状態である  $B0_u^+$  ( $v_B = 23$ ) 状態を中間状態とする光-光二重共鳴法を用いて行った. 励起光源には 2 台の Nd: YAG レーザー励起の 2 台の色素レーザーを用いた. 1 台目の色素レーザーからの出力光を  $B0_u^+$  ( $v_B = 23$ ) ←  $X0_g^+$  ( $v_X = 0$ ) の Pump 光 (≈ 551.5 nm, 20 mJ/Pulse) とし, 2 台目の色素レーザーからの出力光を第 2 高調波 (266 ~ 269 nm, < 0.4 mJ/Pulse) に変換したものを  $f'0_g^+$  ( $v_{f'} = 0 \sim 3, 5, 6$ ) ←  $B0_u^+$  ( $v_B = 23$ ) の Probe 光とした. それらの光を時間的・空間的に重ね合わせ, I<sub>2</sub> (蒸気圧: ~0.23 Torr) を封入したセルに導入した. この過程でレーザー光軸上に発生した ASE を光学フィルターによりレーザー光と分離し, 分光器で波長分散した後に赤外検出器 (PbSe) で検出した. また, 蛍光分散スペクトルを測定する際は, セルの横側に発生した蛍光をレンズで集光し, 分光器で波長分散した後に MCT で検出した.

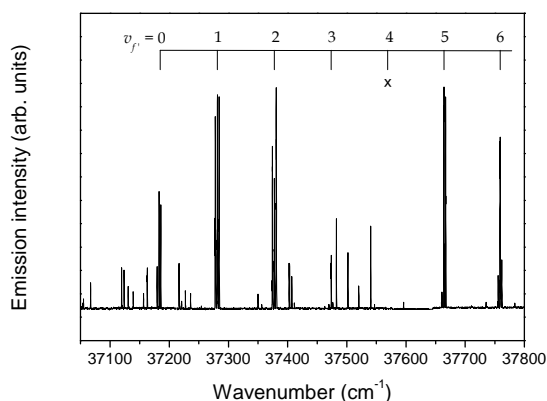


Fig. 1.  $f'0_g^+$  ←  $B0_u^+$  励起スペクトル

**【結果と考察】** Fig. 1 は  $f'0_g^+$  ( $v_{f'} = 0 \sim 3, 5, 6$ ) ←  $B0_u^+$  ( $v_B = 23$ ) 励起スペクトルである. 用いた  $B0_u^+$  ( $v_B = 23$ ) ←  $X0_g^+$  ( $v_X = 0$ ) 遷移の P<sub>39</sub> branch と R<sub>43</sub> branch の遷移周波数がほぼ同じであるために, それら 2 つの状態が同時に励起され, それらを経由して  $f'0_g^+$  ( $v_{f'} = 0 \sim 3, 5, 6$ ) 状態まで励起された. 報告されている分子定数[2]から, 得られたピークをそれぞれ P<sub>38</sub>, R<sub>38</sub>,

P<sub>44</sub>, R<sub>44</sub> branch と帰属した.

$f'0_g^+(v_{f'}=6) \leftarrow B0_u^+(v_B=21)$  励起スペクトルの R<sub>38</sub> branch を分光して得られた 200 nm ~ 450 nm 領域の蛍光分散スペクトルを Fig. 2 に示す.  $f'0_g^+(v_{f'}=6)$  に励起したにも関わらず, 強い  $F'0_u^+$  状態からの発光が観測されている. これは  $f'0_g^+ \rightarrow F'0_u^+$  の緩和経路が存在することを示している. Fig. 3 は ASE 分散スペクトルである. 帰属の印は蛍光分散スペクトルで観測されている振動準位にのみに付けられている. 蛍光分散スペクトルから予想されるように  $f'0_g^+ \rightarrow F'0_u^+$  の発光が観測されている.  $F'0_u^+$  状態の振動準位は報告されている分子定数[3]から決定された. 得られた ASE 分散スペクトルには蛍光分散スペクトルから決定した  $F'0_u^+$  状態の振動準位の分布のうち低振動準位への発光のみが観測され, 高振動準位への発光は観測されない (Fig. 3 x 印). これは, レーザーの強度が弱く, 自然放射が比較的強い発光のみが検出できるレベルで発振したと考えられる. また, ASE の強度比が蛍光分散スペクトルから決定した分布比と一致しないという特徴も見られる. 優勢な自然放射が誘導放射により強く増幅されているためと考えられる.

また, 検出した発光が ASE であることを確認するため,  $f'0_g^+(v_{f'}=1) \leftarrow B0_u^+(v_B=23)$  の R<sub>38</sub> branch を用いて, ASE 発振の立体角と 2 台のレーザーの遅延時間に対する Time profile を測定した. 観測された発光は, レーザー光軸に対し約 0.41° 程度の小さな立体角から発振されている. これは以前に我々が測定した  $f'0_g^+ \rightarrow D0_u^+$  の ASE と同様な結果であり[4], 今回観測された発光が ASE である事を支持する結果となった.

一方, 四波混合過程(FWM)で発生する発光も ASE 同様に指向性を持つことが知られている. もし, レーザー光軸上に発生した発光が FWM によるものであるならば, 2つのレーザーが時間的に重なり合った条件下でのみ発振される. しかし, 今回観測された発光は 2つのレーザーが時間的に重なっていない条件下でも発振していることが確認された. この結果も観測された発光が ASE であることを支持している.

#### 【参考文献】

- [1] Donovan *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **9**, 5885 (2007), [2] Ishiwata *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.* **158**, 237 (1993), [3] Ishiwata *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.* **117**, 89 (1986), [4] 星野翔麻・古川博基・荒木光典・築山光一, 第 5 回分子科学討論会要旨, **2P017** (2011)

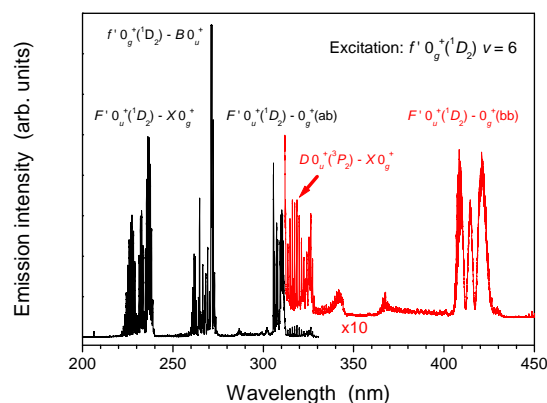


Fig. 2.  $f'0_g^+(v_{f'}=6)$  に励起した場合に観測される蛍光分散スペクトル

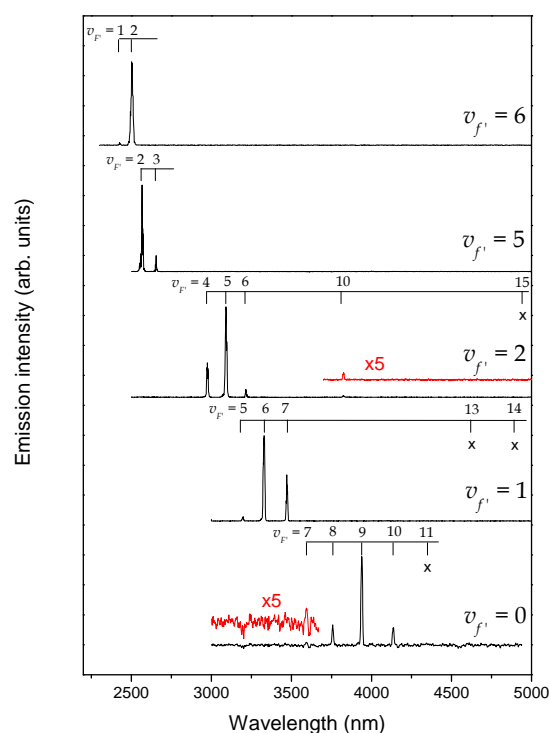


Fig. 3.  $f'0_g^+ \rightarrow F'0_u^+$  ASE 分散スペクトル