

CO の  $E^1\Pi \rightarrow B^1\Sigma^+(0, 0)$  遷移による近赤外発光

(東理大理) ○菊池浩平、田辺千寿子、小城吉寛、築山光一

【序】一酸化炭素 CO の Rydberg 状態である  $3s\sigma B^1\Sigma^+$  および  $3p\sigma C^1\Sigma^+$  状態を基底状態  $X^1\Sigma^+$  からレーザー二光子共鳴励起すると、それぞれ  $B \rightarrow A^1\Pi$  および  $C \rightarrow B$  遷移に伴うレーザー誘起自然放射増幅光 (Laser-Induced Amplified Spontaneous Emission; LI-ASE) が発振することが知られている。LI-ASE とは、レーザー励起された反転分布媒質から発生した自然放射光がその媒質自身の誘導放射過程により増幅された擬コヒーレント光を指し、励起レーザー光軸上前後方に強い指向性を持って発生する。本研究では第三の Rydberg 状態である  $3p\pi E^1\Pi (v=0)$  を二光子励起し、 $E^1\Pi \rightarrow B^1\Sigma^+(0, 0)$  遷移に伴う波長約  $1.7 \mu\text{m}$  の近赤外発光を LI-ASE として検出し、その特徴を明らかにすることを目的とした。

【実験】Nd:YAG レーザー励起の色素レーザー出力 ( $\sim 645 \text{ nm}$ ) を非線形光学結晶 (KDP, BBO) 中で紫外光  $215 \text{ nm}$  ( $< 0.5 \text{ mJ/pulse}$ ) に変換した。この光を二色性ミラーにより反射後、レンズを用いて CO を  $200 \text{ Torr}$  封入したセルに入射した。この時発生した近赤外光をレーザー光軸上セルの前方 (レーザー進行方向: 以下、前方発光) ならびに後方 (逆方向: 後方発光) に設置した光ダイオードで検出した。発光スペクトルは分光器を、偏光特性は偏光子をそれぞれ検出器前に設置して観測した。

【結果と考察】図 1 は紫外光を波長掃引し得られた  $E^1\Pi \leftarrow X^1\Sigma^+(0, 0)$  励起スペクトルで、報告されている分子定数に基づいて計算された回転線の帰属を併せて示した。二光子遷移に許容な回転線のうち、O、P、R、および S 枝が観測され、すべてのラインが共鳴位置であることが確認された。また前方、後方を比較して明確な違いは見られない。

図 2 の○は紫外光波長を  $P(J'')$  に固定し、前方発光の偏光度を  $J''$  に対してプロットしたものである。偏光度  $P$  は直線偏光した紫外レーザー光に対し、前方信号の平行成分強度 ( $I_{\parallel}$ ) と垂直成分強度 ( $I_{\perp}$ ) より  $(I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$  で定義される。すなわち、観測され

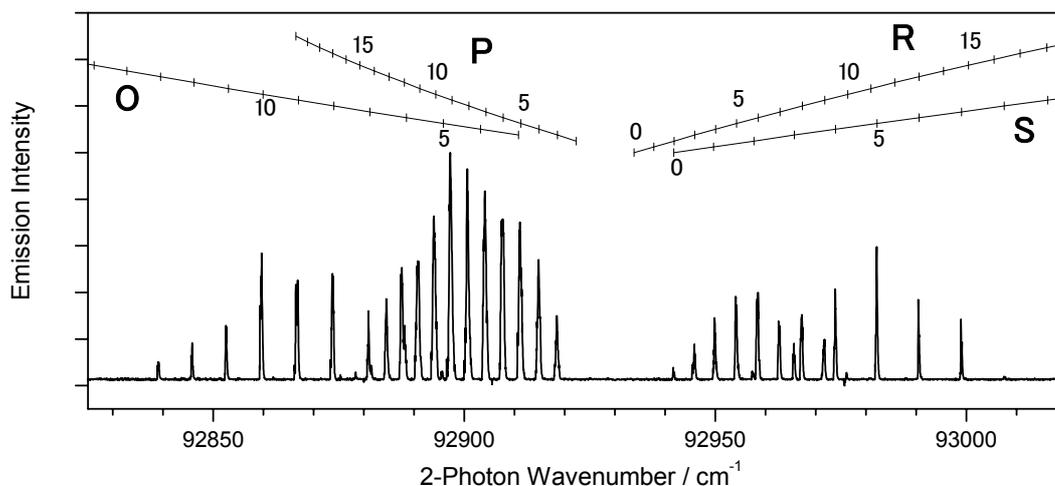


図 1 前方信号に対する  $E^1\Pi \leftarrow X^1\Sigma^+(0, 0)$  励起スペクトル

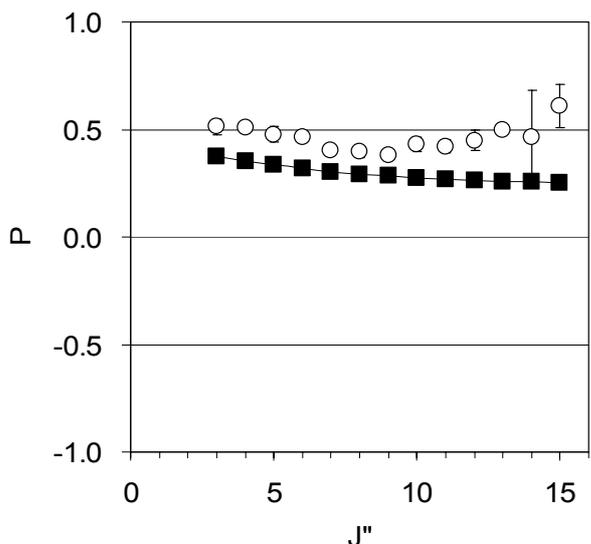


図2 P 枝励起に伴う前方発光の偏光度

た正の  $P$  値は平行成分の方が垂直成分よりも強度が高いことを示している。■は、二光子励起に伴うレーザー誘起蛍光の  $P$  値を理論計算した結果で、観測値はすべて理論値よりも高い値を示している。これは LI-ASE が誘導放射過程であるため、より強い偏光成分がより効率的に増幅された結果であると解釈できる。以上のことはこれまでに我々が報告してきた二光子共鳴励起に伴う LI-ASE の特徴と合致する。

一方で、発光スペクトルは実に奇妙な結果を示した。表に  $E^1\Pi \rightarrow B^1\Sigma^+(0,0)$  遷移に相当する波長約  $1.7\ \mu\text{m}$  の発光スペクトルの回転線帰属結果をまとめた。 $E^1\Pi \leftarrow X^1\Sigma^+$  遷移において、選択律から O・S 枝励起では

$E^1\Pi^+$ へ、P・R 枝励起では  $E^1\Pi^-$ への遷移のみがそれぞれ許容である。よって続いて起こる  $E^1\Pi \rightarrow B^1\Sigma^+$ では、O・S 枝励起についてはP・R 枝が、P・R 励起ではQ 枝のみが許容となる。このことについて観測結果に矛盾はない。しかしながら、①O・S 枝励起後の前方信号を比較して、同じ  $^1\Pi$ 成分からの発光であるにもかかわらず回転線が異なる、②S 枝励起において前後方で発光回転線が異なる、という事は明らかに特異的で、LI-ASE 過程としてこれらの現象を説明する要因は見当たらない。他の気相分子中の二光子励起に伴う過程としては、四波混合や Stimulated Hyper-Raman Scattering (SHRS) が知られており、いずれも高い指向性をもった光を放射する。本研究で観測された発光が LI-ASE 過程に起因するものであるか否かを判断する手段としては、予め遷移の下位状態である  $B^1\Sigma^+$ 状態に population を分布させる方法がある。ASE は反転分布に基づく放射であるため、 $E^1\Pi$ と  $B^1\Sigma^+$ との間の反転分布が解消されれば、ASE は消失する。発表ではこの実験の結果についても併せて報告し、発光過程の起源についてより詳しく議論する。

表 励起回転線と発光回転線との関係

励起回転線	前方信号	後方信号
O	R	R>>P
P	Q	Q
R	Q	Q
S	P	R