

### 3重項ヘリウムのリュードベリ状態のシュタルク効果 —電場による原子・分子制御—

(東北大院理) 山北佳宏、○高橋理沙子、大野公一

【序】気相中で原子・分子の並進運動や配向を制御することは、衝突反応のみならず高分解能分光の観点からも興味を持たれる。本研究の目的は、リュードベリ状態のシュタルク効果を利用して、原子・分子について偏向や減速などの空間制御を行うことにある。リュードベリ状態において緩く束縛された電子は大きな電気感受率をもたらし、無極性・非磁性な中性分子でも電場に対して大きなシュタルク効果を示す。シュタルク効果はある磁気量子数を持つ状態の電場に対するエネルギー的安定性を示しているため、双極子電場などの不均一電場を用いることにより、原子・分子に力を与えることができる。本研究では、そのために不可欠なシュタルク状態のエネルギー準位に関する知見を得るため、最も軽い多電子原子である He 原子について実験を行い、簡単な理論計算を用いてスペクトル解析と空間制御のシミュレーションを行った。本研究の目指す知見と手法は、希ガスのリュードベリ状態の衝突反応などに応用可能な、一般的なものであると言える。リュードベリ状態を利用した空間制御の意義は、非磁性かつ無極性なすべての中性の原子・分子に原理的には適用できることであり、リュードベリ状態の顕著な物理的特異性を利用することから新規な実験的発展が期待される[1-3]。

【実験】窒化ホウ素ノズル中の中空陰極電極とスキマーとの間の連続放電によって、噴流中の He を励起した。ディフレクターによりイオンと高リュードベリ状態から成る不要成分を除去した後、0-1600 V/cm のシュタルク静電場の存在下でナノ秒紫外レーザー光でリュードベリ状態に光励起し、パルス幅 1  $\mu$ s の 6000 V/cm のパルス電場で光励起の 0.8  $\mu$ s 後にイオン化し、40 cm の飛行距離を経てマイクロチャンネルプレートで観測した。

【計算】スペクトルと空間制御の解析には、量子欠損を最適化して得ら

れる無摂動の球面表示の固有関数  $|v, l, m\rangle$  を基底とし、式(1)を用いて算出されるハミルトニアン  $\hat{H} = \hat{H}_0 + eFz$  の行列対角化を用いた。ここで  $v$  は有効主量子数である。基底関数には主量子数  $n \leq 22$  の固有関数をすべて含めた。

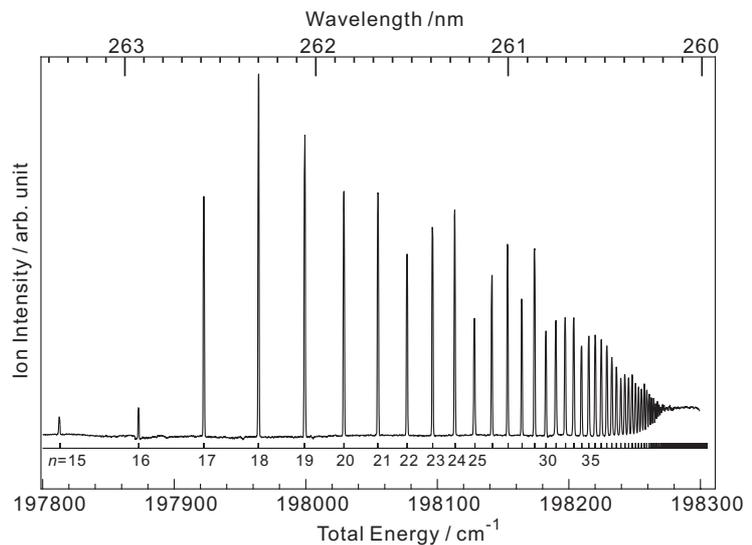


図 1 6000 V/cm の電場イオン化で検出した He(1snp<sup>3</sup>P) リュードベリ系列の He(2<sup>3</sup>S) 経由 1 光子励起スペクトル

$$\langle v, l, m | z | v', l', m' \rangle = \delta_{m, m'} \delta_{l, l' \pm 1} \cdot \langle l, m | \cos \theta | l', m' \rangle \langle v, l | r | v', l' \rangle \quad (1)$$

【結果と考察】図1はシュタルク電場のない状態で測定されたリュードベリ励起スペクトルである。3重項の量子欠損  $\mu_{q=1}=0.063$  を用いたエネルギー準位の計算は、文献値で波数校正した実測スペクトルを平均自乗誤差  $0.04 \text{ cm}^{-1}$  で再現する。このことから、図1のスペクトルには  $\text{He}(2^3\text{S})$ 以外の状態を始状態とする遷移が含まれていないことが示され、分離されたピークは  $\text{He}(2^3\text{S}) \rightarrow \text{He}(1snp^3\text{P})$  遷移によって励起された  $n=15-58$  の3重項リュードベリ状態に帰属される。 $^3\text{S}$ ,  $J=1$  の始状態からは  $^3\text{P}$ ,  $J=0,1,2$  の終状態が励起されうる。 $J$ の異なる微細構造の分裂幅は  $1/n^3$  に比例すると考えられるので、 $1s3p^3\text{P}$  状態での分裂幅の実験値  $0.357 \text{ cm}^{-1}$  から、 $n=15$  の分裂幅は  $0.003 \text{ cm}^{-1}$  と見積もられる。従って、無電場の条件で微細構造が分解されていないことは、励起光の線幅が約  $0.1 \text{ cm}^{-1}$  であることと矛盾しない。図1の強度分布はXeなどの他の希ガス原子の場合と同様の典型的なものである。電場イオン化の遅延時間が  $0.8 \mu\text{s}$  と短いことから、黒体放射誘起の遷移の影響は小さいと言える。従ってこの強度分布は主として振動子強度を反映していると考えられるが、パルス電場の立ち上がり(下がり)時間  $150 \text{ ns}$  に影響されて  $n$  の大きな浅い状態ほど電場イオン化が長時間起こることが予想される。 $n=15$  まで低いリュードベリ状態が観測されていることは、古典的なポテンシャル鞍点における有効主量子数が  $n=15.2$  と計算されることから説明される。 $n=15,16$  のピークが  $n \geq 17$  のピークに比べて強度が弱いことは、しきいエネルギーのより浅い非断熱的なイオン化機構が寄与している可能性が高い。

図2に、主量子数  $n=17$  の状態の実測と計算のシュタルクスペクトルを  $0-1000 \text{ V/cm}$  の範囲について示す。 $n$  のより大きな領域では、断熱イオン化しきい値  $IE-6.1\sqrt{F}$  より大きなエネルギーを持つ状態ではシュタルク電場によってイオン化され、それ以下ではシュタルク多岐線の交差が明瞭に観測される。図2に示すように、計算は実測スペクトルのシュタルク多岐線の振動数と全体の強度分布を良く再現していると言える。しかし、実測のバンド幅は計算よりかなり大きい。励起光の偏光はシュタルク電場に対して直交する  $\sigma$ -偏光条件 ( $\Delta M_J = \pm 1$ ) であり、 $J=0,1,2$  の終状態とその全ての磁気量子数が光学許容となる。従って、図2では実験条件による線幅のブロードニングが重なっていると思われるものの、シュタルク分裂した微細構造が分解されている可能性がある。この詳細を明らかにするためには、スピンのカップリングを考慮に入れた理論計算を行う必要がある。このようにして実測値との一致を調べたシュタルクマップを用いることにより、不均一電場を用いた空間制御のシミュレーションを行うことが可能となる。

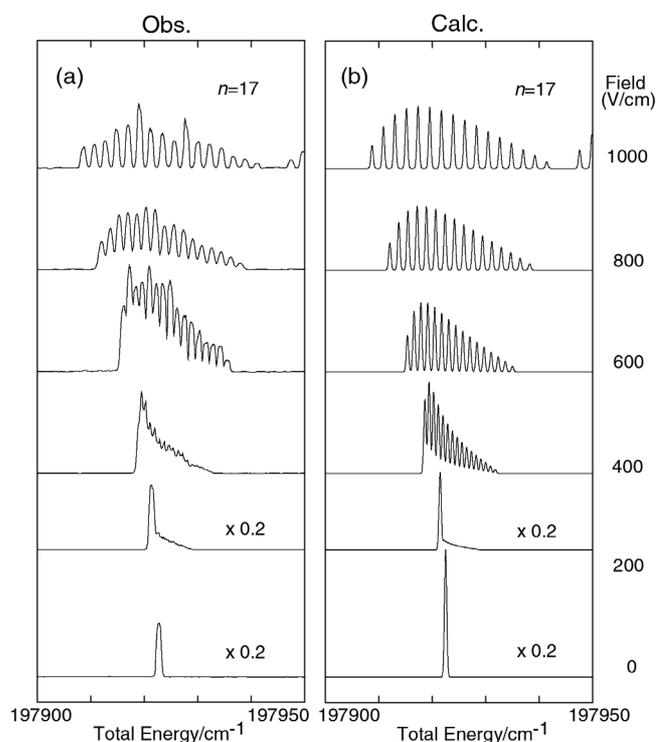


図2  $\sigma$ -偏光条件で測定した  $\text{He}(1s17p^3\text{P})$  リュードベリ状態の静電場シュタルクスペクトル

- [1] S. R. Procter, Y. Yamakita, F. Merkt, and T. P. Softley, *Chem. Phys. Lett.* **374**, 667-675 (2003).  
 [2] Y. Yamakita, S. R. Procter, F. Merkt, and T. P. Softley, *J. Chem. Phys.* (to be submitted).  
 [3] 山北、2002年分子構造総合討論会、1EY05.