

低温ヘリウムガス中のアルカリ-ヘリウム励起分子

(京大理) ○榎本勝成、熊倉光孝、薮崎努

【序】アルカリ金属原子とヘリウム原子が形成する **exciplex** M^*He_n (M :アルカリ金属原子) は以下のような特徴を持った分子である。まず、アルカリ-ヘリウム間の引力相互作用が数百 cm^{-1} 程度と非常に小さいため、微弱なスピン-軌道相互作用でさえも **exciplex** の構造や形成ダイナミクスを大きく変えてしまうことが期待される。また、極めてシンプルな電子構造を持つため、モデル分子として適当であると考えられる。また、結合が弱いことから室温以上の環境では **exciplex** の観測が困難で、これまで研究があまり進んでいなかった。当研究室では以前、液体ヘリウム中にドーブしたアルカリ金属原子を励起することで **exciplex** を生成し、その発光スペクトルの観測を行った。しかし、液体ヘリウム中では **exciplex** の生成・成長レートが極めて速いため、例えばヘリウム原子が1、2個だけ付着したような過渡的な状態や生成ダイナミクスについて調べることはできなかった。

それに対し、今回、低温ヘリウムガス中にアルカリ金属蒸気を生成し、それを光学的に励起して **exciplex** を得る方法で、近赤外・可視の領域内における Li から Cs までのすべての **exciplex** の発光スペクトルを観測することができた[1,2]。こうした低温気体を用いる方法はジェットなどを用いる実験に比べ装置が簡単である上、ヘリウムガスの温度や密度を変化させることでダイナミクスに関する情報を得ることも可能であり、低温でしか生成されない多くの van der Waals 分子の研究に利用できると思われる。

【実験装置と実験結果】実験には、アルカリ金属少量と室温で約 3.5 気圧 ($9 \times 10^{19} cm^{-3}$) のヘリウムガスを封入したガラスセルを用いた。これをクライオスタット中で $1.2 K \sim 100 K$ に冷却し、レンズで絞ったパルスレーザーをアルカリ金属に照射して、 $10^{10} cm^{-3}$ 程度の金属原子気体を低温環境下で得た。低温での原子気体の生成法としてはこのレーザーアブレーション法以外に、光誘起原子脱離法[3]や放電生成法などについても研究も行っているので、それらについても紹介する。

得られたアルカリ金属原子を D_2 線 ($^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$) で励起すると、

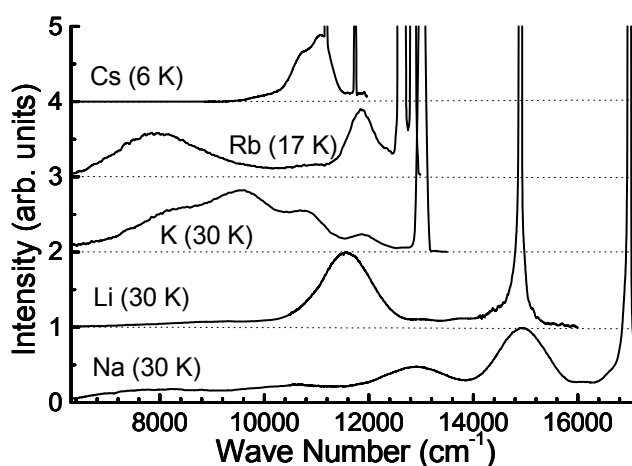


図1：低温ヘリウム気体中の各アルカリ-ヘリウム **exciplex** の発光スペクトル。鋭いスペクトルはアルカリ金属原子からの発光。

これより長波長側にも発光が観測された。図1に各アルカリ金属原子の発光スペクトルの例を示す。励起原子の9割程度が **exciplex** を形成しており、ヘリウムガスの温度や密度により結合ヘリウム原子数が異なる **exciplex** 間のポピュレーション分布は変化する。このような発光スペクトルの観測により、 $\text{Cs}^*\text{He}_n (n=1,2)$ 、 $\text{Rb}^*\text{He}_n (n=1-6)$ 、 $\text{K}^*\text{He}_n (n=1-6)$ 、 $\text{Na}^*\text{He}_n (n=1-4)$ 、 $\text{Li}^*\text{He}_n (n=1,2)$ の生成を確認することができた。また、 M^*He の振動励起状態からの発光も確認できた。また、液体ヘリウム中の **exciplex** の発光スペクトルとの比較から、液体ヘリウム中では Cs^*He_2 、 Rb^*He_6 、 K^*He_6 が形成されていることがわかった。

重い Cs と軽い Rb や K では、結合するヘリウム原子の個数がそれぞれ 2、6 と大きく異なる興味深い結果が得られたが、これは重いアルカリ金属原子ほど第一電子励起状態 (2P 状態) のスピナー軌道相互作用が強くなることに起因する。このスピナー軌道相互作用は、 $^2P_{1/2}$ 状態のアルカリ金属原子にヘリウム原子が1個結合する過程や、 M^*He_2 にもう1つヘリウム原子が結合する過程においてポテンシャル障壁を作り出すことが、理論的考察から明らかになった。そのう

ち後者のポテンシャル障壁が Cs と Rb に結合しうるヘリウム原子の個数を大きく左右し、その結果液体ヘリウム中の **exciplex** の構造は図2に示すように Cs とそれ以外で大きく異なる。また、こうしたポテンシャル障壁の影響は発光スペクトルの温度依存性にも表れている。

また、軽い Na や Li ではそれぞれ $n=4,2$ までしか発光が確認できなかったが、それ以上のヘリウム原子が結合した場合については以下の二つの可能性が考えられる。一つは発光スペクトルが観測範囲外の赤外の領域に存在する可能性であり、もう一つは電子励起状態と電子基底状態の準位交差が起こり、**exciplex** が無輻射的に緩和する可能性である。こうした可能性について第一原理計算を用いて考察を行ったので、それも報告したい。

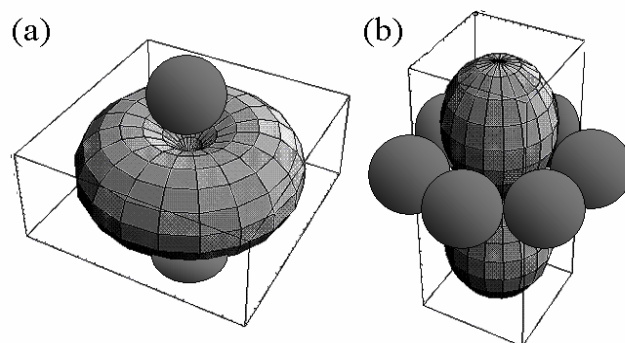


図2：液体ヘリウム中の **exciplex** の模式図。(a)Cs では2個のヘリウム原子が結合し、価電子の波動関数はりんご形。(b)Rb等では3個以上のヘリウム原子が結合し、価電子の波動関数はダンベル形。

- [1] K. Enomoto, K. Hirano, M. Kumakura, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, Phys. Rev. A **66**, 042505 (2002).
- [2] K. Hirano, K. Enomoto, M. Kumakura, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, Phys. Rev. A **68**, 012722 (2003).
- [3] A. Hatakeyama, K. Enomoto, N. Sugimoto, and T. Yabuzaki, Phys. Rev. A **65**, 022904 (2002).