

I₂ のイオン対状態 $f0_g^+(^3P_0)$ からの自然放射増幅光の直接検出

(東京理大院総合化学^a、Univ. of New Brunswick^b)

○古川博基^a、星野翔麻^a、荒木光典^a、Stephen C. Ross^b、築山光一^a

Direct detection of the amplified spontaneous emission

from the $f0_g^+(^3P_0)$ ion-pair state of I₂

(Tokyo Univ. of Science^a, Univ. of New Brunswick^b)

H. Furukawa^a, S. Hoshino^a, M. Araki^a, Stephen C. Ross^b and K. Tsukiyama^a

Laser-induced amplified spontaneous emission from the $f0_g^+(^3P_0)$ ion-pair state of I₂ is reported. The rovibronic levels of $v_f = 0 \sim 6$, $J_f = 47, 49, 53, 55$ in the f state were populated by optical-optical double resonance excitation via the $B0_u^+$ state ($v_B = 21$, $J_B = 48, 54$). The emission from the f state was observed in the same direction of the laser beam axis. The observed emission was in near-infrared region (~ 1660 nm) and was assigned as the transitions from the f state to the $D0_u^+(^3P_2)$ ion-pair state. The vibronic transitions in $f \rightarrow D$ were found to be those between the levels having the same vibrational quantum number.

【序】 レーザー誘起自然放射増幅光(Laser-Induced Amplified Spontaneous Emission, 以下 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。我々の研究室では、ASE を発光過程の一つと認識し、一酸化窒素分子(NO)の Rydberg 状態間遷移による ASE を測定し、その遷移過程を求めてきた[1]。NO 以外の二原子分子では、ヨウ素分子(I₂)のイオン対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[2]。しかし Donovan 等は、反転分布の長さと紫外蛍光強度の相関を、イオン対状態間の遷移による ASE 発振の根拠としており、直接 ASE を検出したわけではない。今回我々は I₂ のイオン対状態 $f0_g^+(^3P_0)$ からの ASE を直接検出し、その緩和過程を求めることができた。

【実験】 $B0_u^+$ 状態を経由した光 - 光二重共鳴法を用いることにより目的のイオン対状態に励起した。励起光源には Nd:YAG レーザーの第二高調波励起の色素レーザーを二台用いた。一台目の色素レーザーからの出力 ω_1 を $B0_u^+ - X0_g^+(v_B = 21, v_f = 0)$ の励起光、二台目の色素レーザーからの出力の第二高調波 ω_2 を $f - B(0 \sim 6, 21)$ の励起光とした。それらを時間的・空間的に重ね合わせ、I₂ (~ 0.3 Torr) を封入したステンレスセルに導入した。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(InGaAs, PbS)で検出した。また、検出した発光が ASE であることを確認するため、発光の指向性と発光強度の ω_2 強度依存性を測定した。

【結果・考察】今回得られた、 $B-X(21,0)$ 遷移の $R_{53} + P_{49}$ branch を中間状態とした、 $f-B(v_f, 21)$ 励起スペクトルを Fig. 1 に示す。励起した f 状態の振動準位は $v_f = 0 \sim 6$ であり、各振動準位において 4 本の branch を得た。得られた branch をそれぞれ P_{54} 、 R_{54} 、 P_{48} 、 R_{48} branch と帰属した。また、観測された発光は、レーザー光軸に対し約 0.48 度しか広がりを持たず、 ω_2 に対する発光強度が、一般的な蛍光と異なる挙動を示したことから、蛍光ではなく ASE であると結論した。

$f-B(1, 21)$ 励起スペクトルの R_{48} branch (Fig.1.の↓)を分光して得られた、分散発光スペクトルを Fig. 2 に示す。観測された二本の branch を、イオン対状態 $D0_u^+(^3P_2)$ の振動準位 $v_D = 1$ への遷移による P_{50} と R_{48} branch と帰属した。他の振動準位における branch の分光も行ったが、 f 状態と D 状態の振動準位が等しい遷移のみが観測された。なお、励起スペクトルと分散発光スペクトルの帰属は、過去に得られた分子定数を用いて行われた[3,4]。

LeRoy の RKR1 プログラム[5]を用い、Franck-Condon 因子(FCF)を計算した結果、 $f \rightarrow D$ 遷移の FCF は同じ振動量子数で最大値を取り、異なる振動量子数では著しく小さい値となることがわかった。NO の Rydberg 状態間の ASE の測定でも、FCF が最大となる振動量子数間での遷移のみが許容されることが確認されている。

今後は、NO で観測されている ASE のカスケード放射、及び遠赤外発光の検出を I_2 でも行っていく予定である。

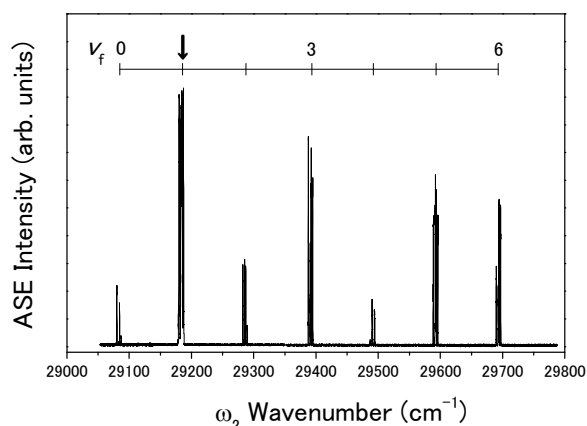


Fig. 1. The $f-B(v_f, 21)$ excitation spectrum

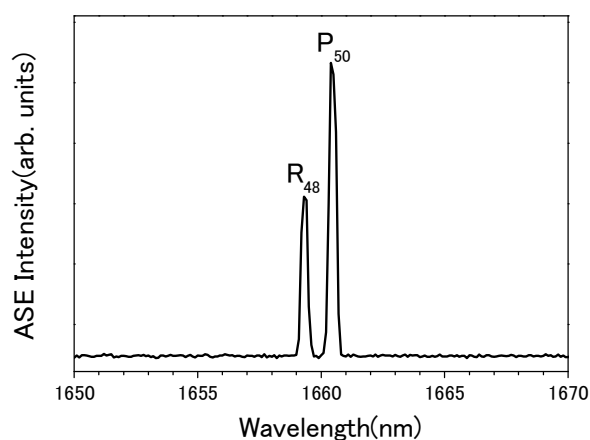


Fig. 2. The dispersed emission spectrum from the $f(v = 21, J = 49)$ state

- [1] 例えば、Sugita *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **109**, 3386 (1998)
- [2] 例えば、T. Ridley *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **130**, 124302 (2009)
- [3] Hickmann *et al.*, *J. Mol. Spec.*, **127**, 556 (1988)
- [4] Ishiwata and I. Tanaka, *Laser. Chem.*, **7**, 79 (1987)
- [5] R. J. LeRoy, University of Waterloo Chemical Physics Research Report No. CP-657R (2004)