

VII-4 気体物性グループ

教授 森岡弓男

大学院生(4名)

【1】放射光を用いた原子分子の分光

(1) N₂の VUV 蛍光の研究

N₂は地球大気の大部分を占める非常に重要な二原子分子である。極紫外光領域における $c'_4^1\Sigma_u^+(v)$ - $X^1\Sigma_g^+(v)$ 系列と紫外光領域における $c'_4^1\Sigma_u^+(v')$ - $a^1\Pi_g(v')$ 系列は、地球大気のオーロラや日中光、夜光の過程を完全に理解する上で重要である。タイタンやトリトンの上層大気で $c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ - $X^1\Sigma_g^+(0)$ バンドは最も強い蛍光であることが Voyager ミッションによって明らかになった。よって、N₂の電子状態や電離、解離過程、断面積、寿命などに関する情報を得ることは惑星大気現象をモデル化する上で非常に重要であり、古くからあらゆる分野で研究の対象とされてきた。

注目した $c'_4^1\Sigma_u^+$ 状態は N₂⁺ の基底状態 $X^2\Sigma_g^+$ に収斂する $np\sigma_u$ Rydberg 系列の最も低いメンバーであり、Yoshino と Tanaka による高分解能吸収実験により振動・回転構造が明らかにされている。本研究ではシンクロトロン放射光を光源とし、VUV 蛍光と回転準位ごとの寿命測定を行った。個々の回転状態に対する寿命は報告されていない。

実験は KEK-PF の BL20A において、シンクロトロン放射光を光源として行った。光源からの光は 3m 直入射型分光器により単色化して用いている。単色化された光は試料チャンバー内でジェットノズルにより供給される N₂ ガスを光励起し、励起状態から緩和する際の蛍光を MCP (Micro Channel Plate) と PMT (Photo Multiplier Tube) により検出している。これらの検出器は波長感度が異なりそれぞれ約 200~1,300 Å と 1,150~3,200 Å の蛍光を捕らえている。その結果、MCP は $c'_4^1\Sigma_u^+(v=0)$ 近傍から基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ への緩和、PMT では基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ の高振動状態への緩和を観測していることになる。蛍光励起スペクトル測定では、KEK-PF のマルチバンチ運転モードを利用し、試料に照射する光の波長を 0.05 Å ステップで掃引させて行った。寿命測定では、624nsec 周期で光が来るシングルバンチ運転モードを利用し、照射する光の波長を測定する状態に固定して測定を行った。

蛍光励起スペクトル測定では、KEK-PF のマルチバンチ運転モードを利用し、試料に照射する光の波長を 0.05 Å ステップで掃引させて行った。寿命測定では、624nsec 周期で光が来るシングルバンチ運転モードを利用し、照射する光の波長を測定する状態に固定して測定を行った。

結果

$c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ 状態は $b^1\Sigma_u^+(1)$ 状態とエネルギー的に重なっている。特に量子数 J' が 10、11 近傍では J' が同じものが接近して振動を起こし、お互い反発する。この結果、回転準位間隔が $J'=10$ 、11 近傍で不規則になっている。MCP では $c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ から基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ への遷移による蛍光が、 $b^1\Sigma_u^+(1)$ からのものより 10 倍以上強く観測されている。PMT では $b^1\Sigma_u^+(1)$ から $X^1\Sigma_g^+$ の高振動状態への遷移による蛍光が強く観測され、特に振動を起こす回転量子数 10、11 で約 5 倍強い。これは振動により $b^1\Sigma_u^+(1)$ 状態と $c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ 状態が混合している結果、遷移モーメントが増大したと考えられる。

寿命測定は、過去に行われた G.Stark 【1】の吸収実験で得られている振動子強度から計算した寿命 τ_{ex} と比較を行っている。計算は $c'_4^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ 遷移のみ考慮した値を導く。観測された値と比較すると、 $c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ 状態の寿命は J' の増加に伴って減少している。一般に前期解離の寿命は自然放出による寿命に比べ早い。従って、 J' の増加に伴い前期解離が大きくなっていると考えられる。この状態の前期解離は論争中である。 $b^1\Sigma_u^+(1)$ 状態の寿命は $J' < 8$ では回転準位がよく分解されていないため、測定範囲を広く取り、 $J' < 8$ の平均寿命としている。この状態の寿命は、 $c'_4^1\Sigma_u^+(0)$ 状態より

長い。J'=10,11 近傍で短い値となっているのは摂動によって $c'_4 \Sigma_v^+(0)$ 状態の短い寿命の影響を受けるためである。

【1】 G.Stark *et al.*, APJ, (2000) 321

【2】 Kr 真空紫外蛍光のシュタルク量子ビート

はじめに

Stark 量子ビートとは、電場の摂動によって磁気量子数Mの縮退が解け、エネルギー的に非常に近くにある準位間どうしの量子力学的な干渉効果によって生じるものである。このビートの周期は干渉の起こる二つの準位間のエネルギー差によって決定されるため、その周期を測定することで、微細な準位間のエネルギー差を調べることができる。この現象を利用した研究は過去にもビームフォイル分光や、レーザー分光などの手法によって、Ba 原子、NO のような2原子分子、プリミジンのような多原子分子について行われており、分子の電気的雙極子モーメントなどが求められている。また、シンクロトロン放射光を光源として、Kr や Xe などの希ガスについての Zeeman 効果による Zeeman 量子ビートが研究されており、核の角度分布の研究を行っている。本研究では、シンクロトロン放射光を光源として、真空紫外領域における希ガス原子 Kr についての Stark 量子ビートを測定し、その結果から磁気量子数の違いによるエネルギー分裂を計算し、*jl*-coupling scheme による理論的な計算値との比較を行った。また、MQDT(多チャンネル量子欠損理論)による議論も行った。

実験

本研究は KEK-PF の Beamline-20A においてシンクロトロン放射光を光源とし、光量の多いマルチバンチ運転モードで Kr の蛍光励起スペクトルを測定し、時間分解能に優れたシングルバンチ運転モードでその崩壊曲線を測定した。崩壊曲線測定における時間分解能は 300[psec]であり、本研究における量子ビートの周期は短いものでも数 nsec であることから、十分な分解能をもつといえる。

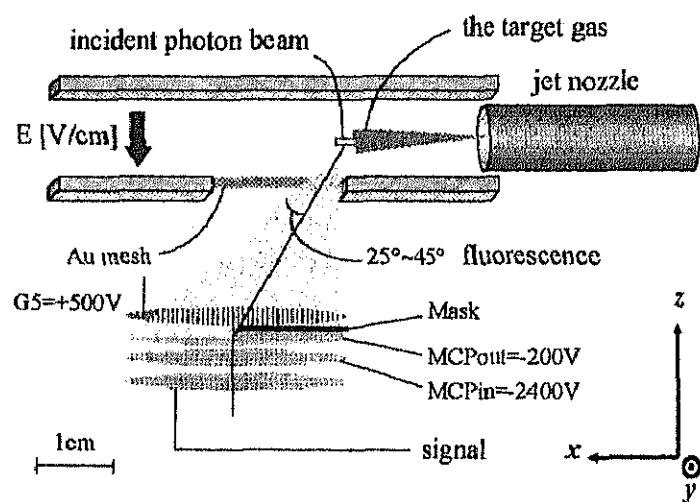


Fig.1 The diagram of the experimental apparatus

光源からの光は分光器によって単色化され、ミラーを用いて試料チャンバー内で焦点を結ぶ。チャンバー内では超音速ジェットノズルにより供給されたガスが光励起され、そこからの蛍光を時間応答が速い MCP (Micro Channel Plate) により検出している。2次光などの影響などにより発生するイオンや電子が MCP に到達しないように、それぞれ Fig.1 に示すように電極 G5、MCP_{in}、MCP_{out} には電圧が印加されている。量子ビートは励起光の進行方向に対して右方向と左方向に放出した蛍光では逆の位相を持つ

という性質があり、これらを同時に観測してしまうとそれらが互いに打ち消しあってビートスペクトルを観測することができない。したがって、相互作用領域から -x 方向の蛍光は電極板プレートによって遮られている。また、ビートの振幅は電場の方向に対して 45 度方向に放出されたものが最も大きい。本研究では、MCP には半分が覆いがかけられており、相互作用領域から放出される蛍光の、電場方向に対して 45 度に近い成分のみを検出するように設計してある (Fig.1)。

結果

Fig.2 に Kr の蛍光励起スペクトルを励起光のエネルギーの関数として、Fig.3 に Kr $8d[1/2]_1$ における量子ビートスペクトルを示す。Kr のような希ガスの場合、基底状態 $J=0$ から励起が許されるのは全角運動量 $J=1$ だけであるので、量子ビートは磁気量子数 $M=0$ と $|M|=1$ との間で起こる干渉効果によって生ずる。ここで、蛍光強度は $\square\omega$ を二つの状態間のエネルギー差とすると、次のような式で時間変化することが分かっており²⁾

$$I \approx (A + B \cos \omega t) e^{-t/\tau}$$

量子ビートスペクトルの周波数から Stark 効果による磁気量子数 M の違いによるエネルギー分裂の大きさを知ることができる。このようにして実験的に得られたエネルギー分裂幅と jl -coupling scheme や MQDT により理論的に計算された値との比較から議論を行った。また、電場の増加に伴ってビートの周期が短くなっているのが分かった。ビートの周波数が電場の 2 乗に比例して大きくなることも確認された。

参考文献

- 1) K.Yoshino and Y.Tanaka, J. Opt. Soc. Am. 69, 159 (1979)
- 2) H.Bitto and J.Robert Huber, Opt Commun. 80, 2 (1990)

【3】Ar 第一イオン化準位に収斂する $11d, 18d$ の Stark 効果

これまで我々は Stark quantum beats (SQB) 分光法を希ガス (Ne, Ar, Kr 等) の第一イオン化しきい値に収斂する Rydberg 状態に適用し、KEK-PF のシングルバンチ運転モードを用いて、電場によって縮退が解けて分裂した Magnetic sublevel 間のエネルギー差、すなわち、Stark splitting の測定を行ってきた。本研究では、VUV 光を励起光として用いているが、励起される Rydberg 状態は全角運動量 $J=1$ の状態が許容なので、 $M=0$ と $|M|=1$ の状態間の Stark splitting を測定していることになる。 $M=0$ と $|M|=1$ の状態への同時励起は、励起光の偏光方向に対して 45 度傾いた方向に電場をかけることで実現している。我々のこれまでの研究では、Stark splitting の電場依存性のほとんどが電場の二乗に比例しており、それらの分裂幅は、2 次の摂動と適当な近似計算を用いて説明された[1, 2]。

今回得られた、Ar の $11d[3/2]$, $18d[3/2]$ Rydberg 状態の SQB スペクトルでは、その周期の電場依存性が例外的な振る舞いを見せた。電場ゼロから 5.44V/cm の間で変化させて得られた、 $18d[3/2]$ の SQB スペクトルを Fig.1 に示す。この状態は他の状態に比べて、小さい電場 (数 V/cm 程度) でビートが生じている。この状態のビート周波数-電場依存性を Fig.2 に示した。Fig.2 から分かるよ

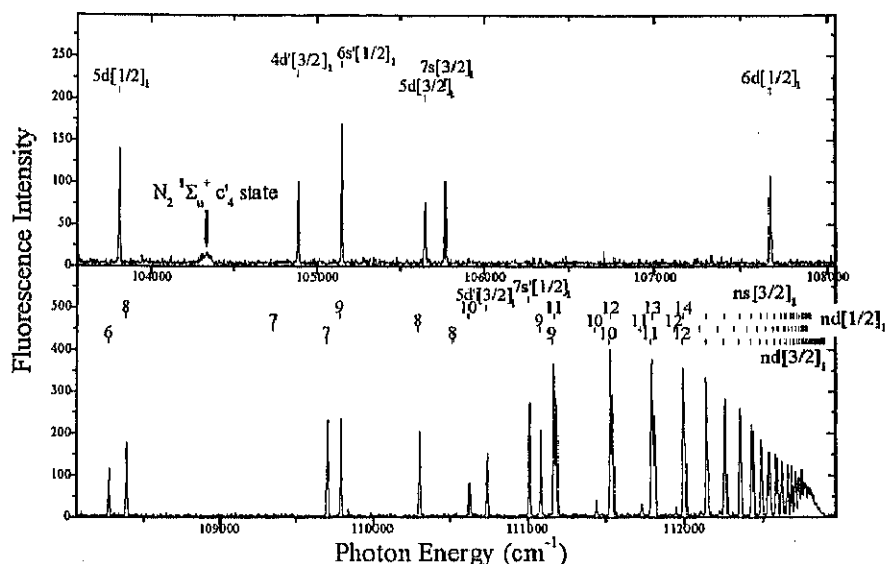


Fig.2 The fluorescence excitation spectra of Kr atom as a function of incident photon energy. These were obtained with slit widths of 50 μ m. The peak assignment was performed by referring to Yoshino *et al*¹⁾.

うに、ビートの周波数が電場に比例していることが分かる。この線形性は、以前研究された $n=18$ の Stark manifold の l の $-$ splitting[3]が関係していると考えられる。

発表会では、注目している2つの状態の、SQB スペクトルでの例外的な電場依存性についての解析結果を報告する。

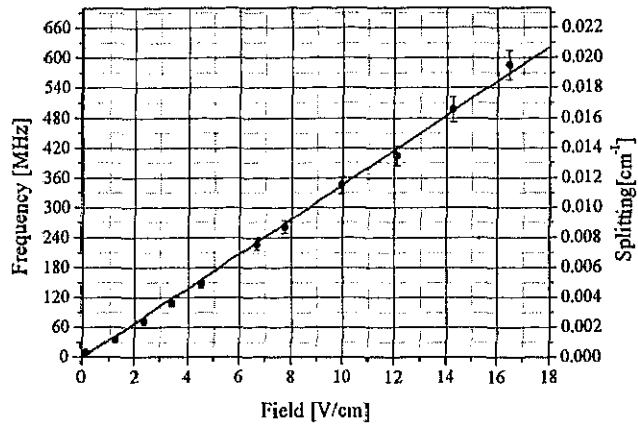
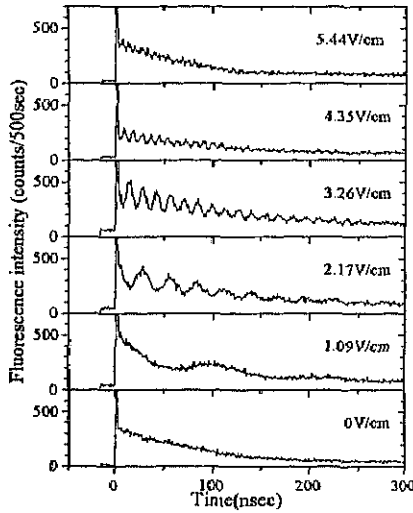


Fig. 1 Ar 18d[3/2]のSQB スペクトル

Fig. 2 ビート周波数の電場依存性

References

- [1] Y. Morioka, T. Aoto, and H. Yoshii, Phys. Rev. A 64, 053409 (2001).
- [2] T. Aoto, H. Tokunaga, H. 67, 282-289 (2003)
- [3] P. F. Brevet, M. Pellarin and J. L. Vialle, Phys. Rev. A 42, 1460 (1990).

【4】パルス電場を用いた Stark quantum beat の測定

我々はこれまで、Stark quantum beat (SQB)分光法を希ガス原子 (He, Ne, Ar, Kr 等) に適用し、DC 電場を用いて、希ガス原子イオン化準位に収斂する Rydberg 状態の Stark splitting、すなわち $M=0$ と $|M|=1$ の magnetic sublevel 間のエネルギー分裂幅の測定を行ってきた [1, 2]。本研究では、パルス電場を用いた SQB 測定で、 $M=0$ と $|M|=1$ の状態の時間発展波動関数における位相制御を試みた。縮退した Rydberg 状態の位相制御実験については、例えば Na に対して、量子コンピューターなどの量子工学の基となる量子干渉効果や量子状態のエンタングルメントの基礎研究を目的としたものがある [3]。

実験は KEK-PF の BL-20A で、シングルバンチ運転モードを利用して行われた。Fig. 1 は、2v/cm, 120nsec のパルス電場をかけ、3つの角度で観測された Ar 18d 状態の SQB スペクトルである。ここで言う角度は、励起光の電気ベクトルに対する蛍光検出方向として定義しており、電気ベクトルに平行な方向での検出は 0deg. および 180deg. に対応する。図中の斜線で示した時間帯に電場がかけられており、この電場の強度と時間幅によって、電場をかける前後で、 $M=0$ と $|M|=1$ の状態の時間発展波動関数の位相に変化が生じる。

Fig. 2 は Fig. 1 中に示した A, B, C の各点における蛍光の角度分布を、最大強度を 1 に補正して示したものである。パルス電場をかける前後、A と C での蛍光角度分布は変化しており、この変化には波動関数の位相のずれが反映されている。

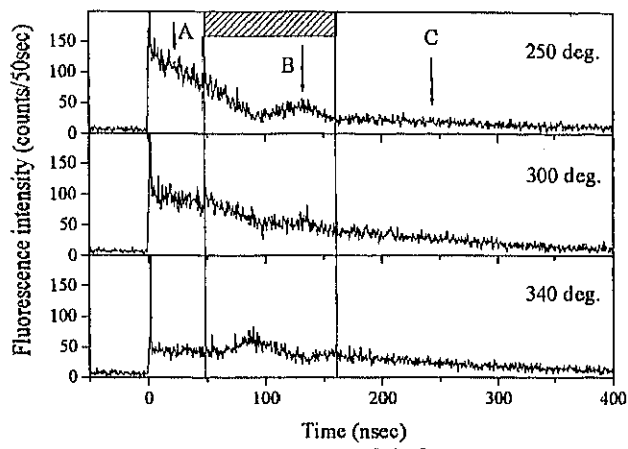


Fig.1 Ar 18d のSQB スペクトル

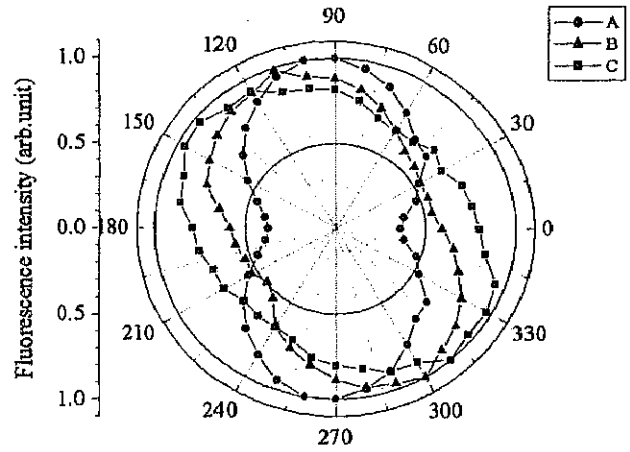


Fig.2 3つの時刻A、B、Cでの蛍光角度分布

References

- [1] Y. Morioka, T. Aoto, and H. Yoshii, Phys. Rev. A 64, 053409 (2001)
- [2] T. Aoto, H. Tokunaga, H. Yoshida, H. Yoshii, T. Hayaishi and Y. Morioka, Phys. Scripta (To be published)
- [3] I. I. Ryabtsev and I. M. Beterov, Phys. Rev. A 61, 063414 (2000)

研究発表

<論文>

- 1) Matsui T; Yoshii H; Higurashi A; Murakami E; Aoto T; Onuma T; Morioka Y; Yagishita A; Hayaishi T, Cascade processes after 3p-shell threshold photoionization of Kr, J. Phys. B35, 3069-3075 (2002)
- 2) Yoshii H; Hayaishi T; Onuma T; Aoto T; Morioka Y; Ito K, Decay processes of the $C_2(2)Pi(1/2u)$ states of $Ar_2(+)$, $Kr_2(+)$, and $Xe_2(+)$, J. Chem. Phys. 171, 1517-1521 (2002)
- 3) Yoshii H; Hayaishi T; Onuma T; Aoto T; Morioka Y; Ito K, Vibrationally resolved threshold photoelectron-photoion coincidence spectra of ArXe, J. Chem. Phys. 116, 7468-7472 (2002)
- 4) Aoto T; Yoshii H; Hayaishi T; Morioka Y, The Stark Quantum Beat of Ne Fluorescence in the Vacuum Ultra Violet Region, Physica Scripta., 67, 282 - 289 (20032)

<報告>

- 1) 1-1 The Stark Quantum Beat of Ne Fluorescence in the Vacuum Ultra Violet Region: Photon Factory Activity Report, 5, (2001) 2002年発行
- 2) Stark quantum beat of He IWAI Osamu : Photon Factory Activity Report, (2001)2, 2002年発行
- 3) Stark quantum beat of Kr in V. U. V. region, TOKUNAGA Hajime : Photon Factory Activity Report, (2001)3, 2002年発行
- 4) Dissociation process of the $Kr_2^+ C_2^2 \Pi_{1/2u}$ state, YOSHII Hiroshi: Photon Factory Activity Report, (2001) 4, 2002年発行
- 5) Dissociation of inner valence states of O 2+ studied by threshold photoelectron-photoion coincidence spectroscopy, AOTO Tomohiro : Photon Factory Activity Report, (2001) 6 2002年発行
- 6) How are threshold electrons produced on the Xe 4dnp resonance?, AOTO Tomohiro : Photon Factory Activity Report, (2001)7 2002年発行
- 7) Ar 2s Auger spectrum observed in coincidence with the 2s photoelectron in the sub-natural linewidth regime AOTO Tomohiro : Photon Factory Activity Report, 5, (2001) 8 2002年発行
- 8) Double photoionization of O 2 studied by threshold electron-electron coincidence spectroscopy, Hikosaka, AOTO Tomohiro : Photon Factory Activity Report, 5, (2001) 9 2002年発行

<国際会議講演>

International Workshop on Photoionization (IWP2002)

- 1) Stark beat of rare gases in the VUV region, T. Aoto, H. Tokunaga, H. Yoshida, H. Yoshii, T. Hayaishi and Y. Morioka
- 2) Dissociation of inner valence states of O2+ studied by threshold photoelectron-photoion coincidence spectroscopy Y. Hikosaka, T. Aoto, K. Ito, R. I. Hall
- 3) Dissociation of rare gas dimer and trimer ions in the energy range between

- 2P_{3/2} and 2P_{1/2} of rare gas monomer ions, H. Yoshii, K. Tsukamoto, T. Aoto,
H. Tokunaga, H. Yoshida, Y. Morioka, K. Ito and T. Hayaishi
- 4) Threshold photoelectrons emitted in the vicinity of the Xenon 4d hole as probe
of Auger dynamics S. Sheinerman, P. Lablanquie, M. Ahmad, and F. Penent

<学会講演>

日本物理学会

- 1) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司
フラグメントの運動エネルギー分光による解離的光イオン化における研究、日本物理学会 2002、9月、中部大学
- 2) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司
Dynamics of Xe 4d decay observed by threshold electron coincidence measurements,
日本物理学会 2002、9月、中部大学
- 3) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司、Stark 蛍光量子ビートの角度分布、日本物理学会 2003、3月、東北大学
- 4) 吉井裕、青戸智浩、森岡弓男、早石達司、Xe²⁺とXe³⁺の解離過程、日本物理学会、2003-3月 仙台
- 5) 伊藤健二、青戸智浩、H₂ 光衝撃によるプロトン運動エネルギー分布、日本物理学会、2003-3月 仙台
- 6) 彦坂泰正、青戸智浩、O₂ の解離的イオン化における非等方的フラグメント放出、日本物理学会、2003-3月 仙台

第16回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、(姫路)、2003年1月

- 1) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司
Ar 第一イオン化準位に収斂する 11d, 18d の Stark 効果、日本放射光学会、2003-1月 姫路
- 2) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司
Stark 蛍光量子ビートの角度分布、日本物理学会 2003、3月、東北大学
- 3) 徳永肇、青戸智浩、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司
希ガス V. U. V 蛍光の Stark 量子ビート角度分布、日本放射光学会、2003-1月、2002年度、姫路
- 4) 吉田英将、青戸智浩、徳永肇、森岡弓男、吉井裕、早石達司
希ガス Stark Quantum Beat を利用した量子状態の制御、日本放射光学会、2003年1月、2002年度、姫路

分子科学研究所研究会；原子分子の価電子素過程ダイナミクス

- 1) 青戸智浩、徳永肇、吉田英将、森岡弓男、吉井裕、早石達司、価電子励起からの
蛍光 Stark 量子ビート、

目次

VII-4 気体物性グループ

- 【1】放射光を用いた原子分子の分光
- 【2】Kr 真空紫外蛍光のシュタルク量子ビート
- 【3】Ar 第一イオン化準位に収斂する 11d, 18d の Stark 効果
- 【4】パルス電場を用いた Stark quantum beat の測定