

## VII-4 気体物性グループ

教授 森岡弓男

大学院生 青戸智浩 (D3)、榊田勲 (M1)

### 【1】Ne 原子蛍光の Stark 量子ビート測定

原子は最も基本的な粒子ではないが、我々の身の回りで起きる諸現象は自然界が原子の集合体であるとする立場から理解されている。つまり原子は実質的な物質の基本的構成要素であり、この意味で孤立系での原子の性質の理解を目指して多くの研究がなされている。そのような物理的性質の一つとして Stark (シュタルク) 効果と呼ばれるものがある。Stark 効果は原子に外場として電場がかけられると、スペクトル線の位置がシフトする Stark シフトや、縮退が解けてスペクトル線が分裂する現象 (Stark 分裂) として観測される。このような現象は 1913 年に、水素原子のスペクトル線観測において J. Stark によって発見されたため、その名がつけられている。原子・分子の Stark 効果の研究は分光学的な情報を得るのはもちろんのこととして、理論的な研究の発展にも大きく寄与する、重要な基礎研究のテーマのひとつである。

ここでは、Ne (ネオン) を標的とし、それらの Rydberg (リュドベルグ) 状態の Stark 効果に注目した。Ne 原子の Rydberg 状態に関しては、放電管を用いた高電場印加測定によって Stark 効果の研究がいくつかなされていたが、その対象は低い励起状態に限られていた。そこで、本研究では未開拓の Ne 原子 Rydberg 状態を標的にしたのである。

一般に原子・分子の Rydberg (リュドベルグ) 状態とは、イオン核から比較的遠い軌道をひとつの電子が回っている状態を指し、電子に対するイオン核のクーロン力が弱くなっており、電場の影響を受けやすく、壊れやすい。したがって、このような Rydberg 状態の原子の Stark 効果を観測する場合、適当な大きさの電場印加と高分解能分光測定が必要になる。本研究では、Rydberg 状態にある原子の Stark 効果の一つである Stark 分裂のエネルギー幅を、Stark 量子ビート (SQB) 分光法[1]を用いて測定する試みがなされた。SQB は、電場によって縮退が解けて生じたエネルギー差を持つ複数の準位を同時励起することで、重ね合わせの量子状態をつくり、その励起状態からの蛍光を時間蛍光スペクトルとして観測する際に見られる現象で、量子力学的な干渉効果の一つである。このビート周波数は、同時励起された複数の準位のエネルギー間隔によって決まる。このように干渉効果を利用して、Stark 分裂のエネルギー幅を測定するのが SQB 分光法である。

Ne の Rydberg 状態に励起するには、十数 eV のエネルギーを必要とし、光励起を考えた場合、真空紫外光が必要となる。そこで実験は、高エネルギー加速器研究機構・放射光施設内にあるビームライン 20A で行われた。このラインでは 2400 本/mm の回折格子を備えた 3m 直入射型分光器によってシンクロトロン放射光が単色化される。このラインにおいて、励起光の使用可能なエネルギー領域は 10-40eV で、その分解能は約 20000 程度が実現できる。SQB 測定には、シングルバンチ運転を利用し、Ne の Rydberg 状態のある特定の主量子数  $n$  準位へ光励起させ、蛍光を伴って崩壊する際の時間依存した蛍光崩壊曲線を、電場を与えながら測定することで、SQB スペクトルを得た。

Ne 基底状態の最外殻電子角運動量は 1 (p 電子) で  $^1S_0$  状態である。本研究で、光励起によって生じる Ne の Rydberg 状態は、双極子遷移における選択則から、全角運動量  $J=1$  の状態に限定される。最大 7kV/cm の電場印加によって、 $J=1$  の状態の縮退が解けて生じる磁気準位は  $M=0$  と  $|M|=1$  の 2 準位であり、この準位間のエネルギー差を SQB によって測定した。測定の際、分光器の分解能による励起光の線幅は 2 準位間のエネルギー差よりも十分広いので、2 準位への同時励起が実現された。

Ne に関しては、26 の Rydberg 状態について SQB 測定を行い、本研究での測定範囲内では、これらすべてのビート周波数が電場の 2 乗依存性を示していた。すなわち  $M=0$  と  $|M|=1$  の 2 準位の Stark 分裂幅が電場の 2 乗依存性を示していたことになる。この電場 2 乗依存性から、テンソル分極率と呼ばれる量が決定できる。ここでは、Ne Rydberg 状態のテンソル分極率を 4% の精度で決定した。また測定した Stark 分裂幅を、 $jl$ -結合基底とクーロン近似、そして、多チャンネル量子欠損理論によって、状態間の混合を考慮に入れながら、2 次の摂動計算と比較することで、摂動を引き起こす状態との関係について議論した[2]。

#### 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. Scr. 67, 282 (2003)

### 【2】 Ar 11d, 18d Rydberg 状態の Stark 量子ビート

Ar に関しては、数多く存在する Rydberg 状態の中でも、11d $[3/2]_1$  と 18d $[3/2]_1$  の 2 つの状態に注目した。その理由は、過去の分光研究によって、これら 2 つの状態がそれぞれ 11f および 18f にエネルギー的に非常に近くに存在することがわかっており、摂動が非常に強く引き起こされると考えられ、Ne で見られるような Stark 分裂の電場 2 乗依存性とは異なる振る舞いが期待されたからである。Ar の結果で、Ar 11d $[3/2]_1$  と 18d $[3/2]_1$  の SQB スペ

クトルには、それぞれにおいて3種類のビートが観測された。本来純粋に  $11d[3/2]_1$  と  $18d[3/2]_1$  のSQBが観測されるならば、それぞれ1種類ずつのビートのみが現れるはずであったが、複数のビートが観測されたわけである。 $11d[3/2]_1$ の結果として得られた3種類のビート周波数は、200V/cmの電場において約800、約600、約30MHzであり、電場二乗依存性を示していた。一方  $18d[3/2]_1$ の3種類のSQBは、主量子数  $n$  が比較的小さいにもかかわらず、他の状態に比べて1V/cmという非常に小さい電場でビートが生じることがわかった。さらに  $18d[3/2]_1$ のビート周波数電場依存性は、複雑な振る舞いを見せていた。このように複数現れるビートの素性を明らかにするために、計算との比較を行った。その計算には、永年方程式を解く手法を用い、行列要素の計算には  $j\ell$ 結合基底とクーロン近似、多チャンネル量子欠損理論を考慮した。計算結果は実験結果を非常によく再現しており、ビートが複数現れるのは、Stark効果による状態の混合が生じ、 $d$ 状態だけでなく近傍にある、双極子遷移では励起されない  $f$ 状態のビートが関与していることが明らかになった。

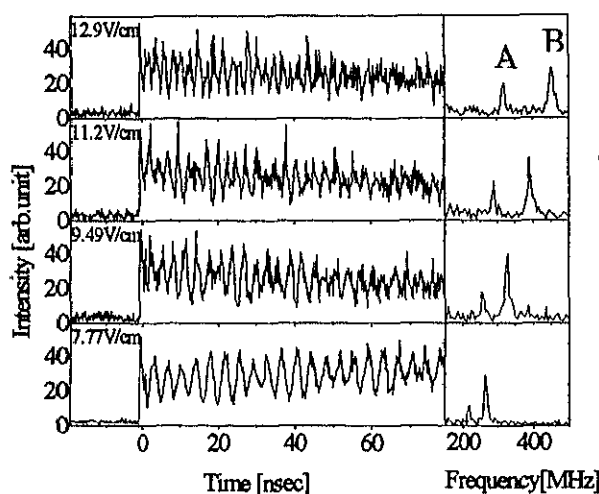


Fig. 1 Ar 18d のSQB とフーリエスペクトル

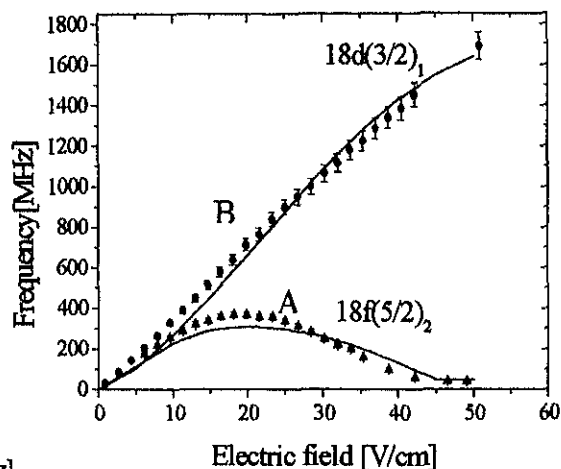


Fig. 2 Beat 周波数の電場依存性

本研究では、 $18d[3/2]_1$ に対してSQBの角度分布も観測した。これによりSQBという現象が、蛍光放出方向が時間とともに変化するものであることを確認し、予想された計算と良い一致を示していた。SQB測定を行った結果のうち、 $18d[3/2]_1$ のSQBスペクトルと、それらをフーリエ変換して得られるフーリエスペクトルをFig. 1に示す。フーリエスペクトルではA、Bで示された2種類の周波数が確認できる。SQB測定で得られた周波数を、Fig. 1の結果も含め、電場に対してプロットするとFig. 2のようになる。理論計算との比較により、2種類のbeat周波数A、Bはそれぞれ  $18f[5/2]_2$  と  $18d[3/2]_1$ の状態のものであり、 $18f[5/2]_2$ 状態のbeatは、Stark効果による  $18d[3/2]_1$ 状態との混合によって現れたものと考えられる。

### 【3】 Inner Valence領域における $N_2^+$ の解離過程

多くの分子イオンに対して、inner valence 領域における解離動力学は、十分に理解されておらず、 $N_2^+$ については、この領域における解離過程の理解を含め、電子状態ですら未だ正確に把握されていない。

本研究では、しきい光電子・光イオン同時計測 (TPEPICO) 分光法を適用することで、inner valence 領域における  $N_2^+$  の振電状態の探査・同定とともに、解離過程の動的な理解を試みた。実験には、しみ出し電場型しきい光電子分析器に加え、静電半球型エネルギー分析器を解離生成物の運動エネルギー分析に用いた。解離生成物の運動エネルギー分布 (KED) を、しきい電子との同時計測することで、イオン状態を規定しつつ、解離終状態を明確にできる[1]。

Fig. 1 は、 $N_2$  のしきい光電子 (TPE) スペクトルで、図中の a~c の縦線は KED 測定を行ったエネルギー位置を示す。フラグメントイオンの運動エネルギーを横軸にした KED スペクトルを Fig. 2 に示す。a~c は Fig. 1 のそれに対応している。KED スペクトル中の数字を伴った縦線は解離生成物の状態を示すものである。解離生成物 (3)  $N^+(^3P)+N(^2D)$  は a~c を通じて強く現れており、(b) と (c) では生成物 (6)  $N^+(^1D)+N(^2D)$  も現れている。このような解離生成物の相関から、ポテンシャルエネルギー曲線に関する議論ができる。

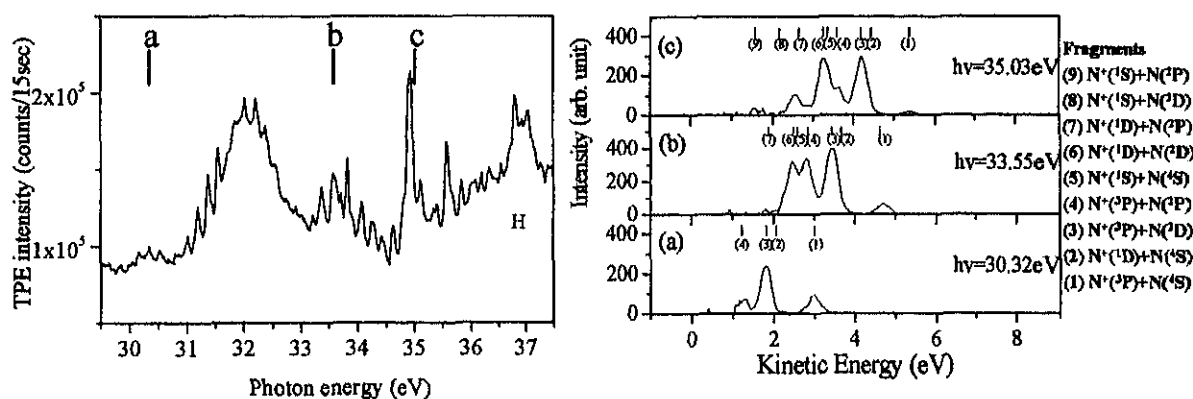


Fig. 1  $N_2$  の TPE スペクト

#### Reference

- [1] Y. Hikosaka et. al., J. Chem. Phys. 119, 7693 (2003)

### 【4】 Stark パルス電場による量子状態の制御

Stark 効果を利用した量子状態の制御は、これまでに実験的に実現されてきた [1]。実験では Ar 原子の Rydberg 状態に注目し、時間幅が数 10ns の Stark パルス電場を印加して、量子ビートを測定することにより、量子状態間の位相の制御を行った。Ar 原子のエネルギー準位  $18d(3/2)_1$  では、比較的寿命が長く、低電場でも量子ビートが観測されるため、制御に適している。Stark 分裂による磁気量子数  $M=0$  と  $M=\pm 1$  の重ね合わせの状態  $\Psi = c_1\Psi_1 + c_2\Psi_2$  からの蛍光強度は、エネルギー分裂幅  $E_1-E_2$  偏光面と電場のなす角度  $\theta$  に依存した式

$$I(\theta, t) \propto \left\{ A + B \cos \theta \sin \theta \cos\left(\frac{E_1 - E_2}{\hbar} t\right) \right\} e^{-t/\tau}$$

れる。 $\tau$  は  $18d(3/2)_1$  での寿命である。また、パルス電場を途中で止めた場合、位

相差  $\Delta = \int_0^t \frac{E_1 - E_2}{\hbar} dt$  を得るために、パルス

後の蛍光強度に位相差の影響が現れ、蛍光強度を制御することができる。右図に、Ar 原子のエネルギー準位  $18d(3/2)_1$  の蛍光強度変化を示す。パルス電場が印加している時間だけ量子ビートが起こっていることが見て取れる。

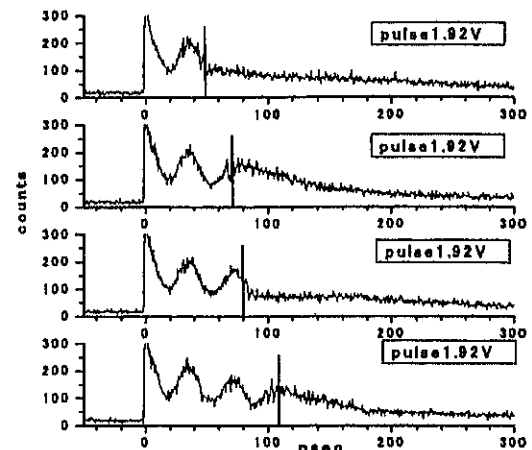


Fig. 1 蛍光時間強度の依存性

右図に、Ar 原子のエネルギー準位  $18d(3/2)_1$  の蛍光強度変化を示す。パルス電場が印加している時間だけ量子ビートが起こっていることが見て取れる。

[1] I. I. Ryabtsev and I. M. Beterov, Phys. Rev. A61, 063414 (2000)

### 【5】Xe の 23-35 eV 領域高分解能しきい光電子分光

High-resolution threshold photoelectron (TPE) spectra of Xe were measured in the photon energy region of 23-35 eV. The measured full width at half maximum (FWHM) of the threshold peaks is typically  $\sim 5$ meV.

The measured TPE spectrum in the photon energy region of 23.5-29.5 eV is shown in figure 1. In this spectrum, a number of peaks were observed and assigned to the satellite states, which correspond to excited states of XeII. The number of the observed peaks in our spectrum is larger than one of Slattery *et al.* [1] because of high-resolution. Although most observed lines correspond

to the lines assigned by Hansen and Presson [2], some lines were observed for the first time. Especially in the spectrum of 29-32 eV region, lots of new peaks were observed.

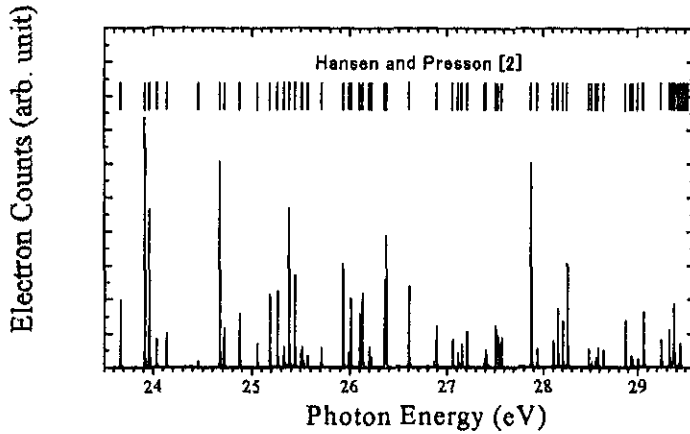


Figure 1: Threshold photoelectron spectrum in the region of Xe 5s satellite states

The observed TPE spectrum near the XeIII  $^3P_2$  state, which is the ground state of XeIII, is shown in figure 2. The upper part of this spectrum was observed in narrower slit widths. The observed 15 lines were assigned to the Rydberg series converging to the XeIII  $^3P_2$  state. The energy level of the XeIII  $^3P_2$  state obtained as a limit of the observed Rydberg series is similar to that obtained by threshold photoelectron-photoelectron coincidence (TPEPECO) measurement [3]. Four peaks were also observed in 33.1-33.3 eV region. Although the origin of these peaks cannot be specified because of little number of the observed lines, it seems that they are Rydberg series converging to the  $^3P_0$  state of XeIII. In the spectrum of 33.4-35 eV region (figure is not shown), some peaks were also observed and assigned to the Rydberg series converging to the  $^3P_0$  state of XeIII.

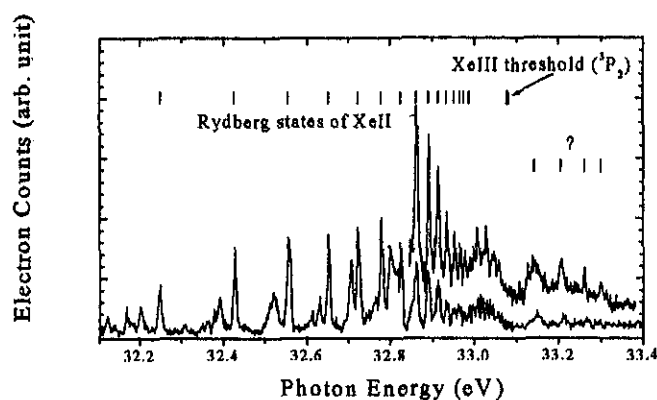


Figure 2: Threshold photoelectron spectrum near XeIII threshold

### References

- [1] A. E. Slattery *et al.*, J. Phys. B 33 (2000) 4833
- [2] J. E. Hansen and W. Presson, Phys. Scr. 36 (1987) 602
- [3] R. I. Hall *et al.*, J. Phys. B 25 (1992) 799

### <学位論文>

青戸智浩: Stark effect study on Ne and Ar Rydberg states with quantum beat measurement、(理学博士、筑波大学、2003年3月)

### 研究発表

#### <論文>

- 1) Post-collision interaction effects following 4p-shell ionization of Xe, *J. Phys. B* 35, 141-148 (2002)、T. Hayaishi, Y. Morioka *et al.*,
- 2) Fragment Emission Anisotropy in the Dissociative Photoionization of O<sub>2</sub>, *J. Phys. B* 36, 1423 (2003), Y. Hikosaka, T. Aoto

#### <報告>

- 1) Dissociative processes of the Xe<sub>2</sub><sup>+</sup> state: Photon Factory Activity Report, 5, (2002) 2003年発行
- 2) Stark beats of Ar 11d Rydberg state: Photon Factory Activity Report, (2002) 2, 2003年発行

- 3) Vibrational structures and dissociation of  $N_2^+$  inner valence state: Photon Factory Activity Report, (2002)2, 2003年発行
- 4) Threshold electron-electron coincidence study on dissociative photoionization of  $O_2$  followed by fragment autoionization: Photon Factory Activity Report, (2002)2, 2003年発行
- 5) Threshold electron-Auger electron coincidence spectroscopy of sulphur hole decay in  $H_2S$ : Photon Factory Activity Report, (2002)2, 2003年発行

<学会講演>

日本物理学会

- 1) 吉井裕、青戸智浩、森岡弓男、伊藤健二、早石達司、Xeの高分解能しきい光電子分光、日本物理学会 2003、9月、岡山大学
- 2) 青戸智浩、榊田勲、吉井裕、早石達司、森岡弓男、Ar 11d, 18d Rydberg 状態の Stark 量子ビート、日本物理学会 2003、9月、岡山大学
- 3) 榊田勲、青戸智浩、吉井裕、早石達司、森岡弓男、Ar Rydberg 原子の量子状態制御、日本物理学会 2004、3月、九州大学
- 4) 青戸智浩、彦坂泰正、森岡弓男、伊藤健二、Inner Valence 領域における  $N_2^+$  の解離過程、2004-3月 九州大学
- 5) 彦坂泰正、青戸智浩、伊藤健二、しきい光電子-電子同時計測による Ne の段階的 2重イオン化の研究、2004-3月 九州大学
- 6) 伊藤健二、彦坂泰正、青戸智浩、森岡弓男、水素分子の Q(3)及び Q(4) の実験的確認、2004-3月 九州大学

第17回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、(つくば)、2004年1月

- 1) 青戸智浩、森岡弓男、彦坂泰正、伊藤健二、 $N_2^+$  Inner Valence 状態の解離過程、日本放射光学会、2004-1月 つくば
- 2) 吉井裕、川北昌治、青戸智浩、森岡弓男、伊藤健二、早石達司、希ガス原子の高分解能しきい光電子スペクトル、日本放射光学会、2004-1月 つくば
- 3) 青戸智浩、榊田勲、吉井裕、早石達司、森岡弓男、Ar Rydberg 状態の Stark 量子ビート、日本放射光学会、2004-1月、2003年度、つくば
- 4) 榊田勲、青戸智浩、吉井裕、早石達司、森岡弓男、Stark パルス電場による量子状態の制御、日本放射光学会、2004年1月、2003年度、つくば