

デュアルコム分光法によるアセチレン $v_1 + v_3$ バンド圧力幅係数の オルト-パラ依存性の観測

(産総研物理計測^a, 慶應大理工^b, 産総研環境管理^c, 横国大理工^d)

○大久保章^a・岩國加奈^{a,b}・山田耕一^c・稲場肇^a・大苗敦^a・洪鋒雷^d・佐々田博之^b

Ortho-para dependence of pressure broadening coefficients observed in the C_2H_2
 $v_1 + v_3$ band by dual-comb spectroscopy

(NMIJ AIST^a, Keio Univ.^b, EMRI AIST^c, YNU^d) Sho Okubo^a, Kana Iwakuni^{a,b}, Koichi M. T. Yamada^c,
Hajime Inaba^a, Atsushi Onae^a, Feng-Lei Hong^d, Hiroyuki Sasada^b

We have observed the ortho-para dependence of pressure-broadening coefficients for the rovibrational transitions from $P(26)$ to $R(29)$ in the $^{12}C_2H_2$ $v_1 + v_3$ band at six pressures ranging from 25 to 2654 Pa by using a dual-comb spectrometer [1]. Each observed line profile has been analyzed by employing the Voigt function, and the parameters for the intensity, pressure broadening and shift have been determined. The determined pressure broadening coefficients vary alternatively with the rotational angular momentum quantum number of the transitions, where those for the ortho transitions are larger than those for para transitions. It suggests that the collisional cross section is in particular large between molecules in the identical rotational level.

【序】分子スペクトルの中心周波数、ピーク強度、スペクトル線幅は、準位構造、光と分子の相互作用、分子間相互作用に関する基礎的情報である。希薄分子ガスの振動バンドの分光では、分子間相互作用の理解、地球や惑星の大気に含まれる微量ガススペクトルの定量解析への要求などから、これらのパラメータの圧力効果がこれまでよく調べられている。

光コムは、光周波数を高精度に測定するために開発され、近年は高精度な分光用光源としても利用され始めている。特に、2台の光コムの用いたデュアルコム分光[2]は、繰り返し周波数に僅かな差をつけてインターフェログラムを記録するフーリエ変換分光法で、高分解能・高周波数精度のスペクトルを短時間で取得できる。これらの特長は、光路のアラインメントや試料の圧力といった条件を、全てのスペクトル線で共通かつ一定に保持できるため、スペクトルパラメータの決定に大きな利点がある。

そこで本研究では、 $^{12}C_2H_2$ $v_1 + v_3$ バンドのデュアルコム分光を行い、各吸収線の中心周波数と線幅に対する圧力効果を調べた。その結果、オルト遷移の圧力幅係数がパラ遷移よりも大きいことが分かった。これは、同じ回転準位にいる分子同士の衝突断面積が異なる回転準位にいる分子同士の衝突断面積より有意に大きいことを示唆している。

【実験】図1は、デュアルコム分光計のセットアップを示す。2つの光コム (Signal comb と Local comb) の発生には、繰り返し周波数 48 MHz のモード同期 Er ファイバーレーザーを基に広帯域化したものを用いた。それぞれのオフセット周波数 $f_{ceo,S}$ 、 $f_{ceo,L}$ 、および共通の CW レーザーとのビート周波数 $f_{beat,S}$ 、 $f_{beat,L}$ を基準信号に位相同期し、2台のコムの相対線幅を 1 Hz 以下にした。これにより、 $^{12}C_2H_2$ $v_1 + v_3$ バンドを一度に観測できる測定帯域とインターフェログラムのリアルタイム積算による高 S/N を確保した。

Signal comb からの出射ビームをサンプルセルに通し、PBS で Local comb と重ね、差動受光器を用いてインターフェログラムをバランス検出した。検出したインターフェログラム

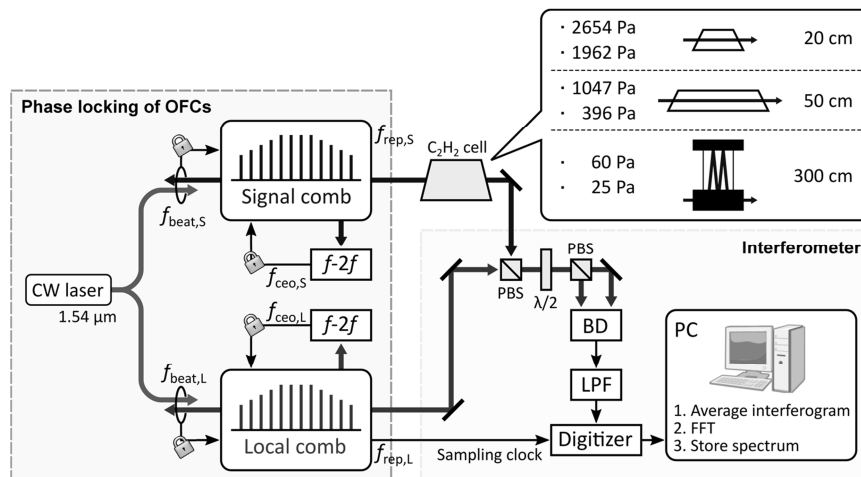


図 1: デュアルコム分光計のセットアップ

をデジタイザでサンプリングして PC に転送し、PC 内部で積算処理とフーリエ変換をしてスペクトルとして記録した。 $P(26)$ から $R(29)$ までの遷移を含んだスペクトルを、25 Pa から 2654 Pa までの 6 つの圧力で測定した。吸収が飽和するのを防ぐために、2654 Pa と 1962 Pa には長さ 20 cm のセル、1047 Pa と 396 Pa には長さ 50 cm のセル、60 Pa と 25 Pa には光路長 300 cm (15 cm × 20 パス) のホワイトセルを用いた。最大の吸収率は約 99% であった。

【結果と考察】図 2 は、観測したスペクトルの解析によって得られた圧力幅係数の一部を示す。横軸には R ブランチの上準位の回転の角運動量量子数 (J') をとった。圧力幅係数は、 J' が小さいほど大きいことに加え、 J' が近い遷移ではオルト遷移の係数がパラ遷移に対して大きくなることから、圧力幅の J' 依存性にはオルトーパラ準位間の分布数差の効果を加えた補正が必要なことが分かる。これは、同じ回転準位にいる分子同士の衝突断面積が大きいことを示唆している。

本講演では、モデル式による圧力幅係数のオルトーパラ依存性の詳細な解析結果を報告する。また、圧カシフト係数に関しても、詳しい解析を進めていく。

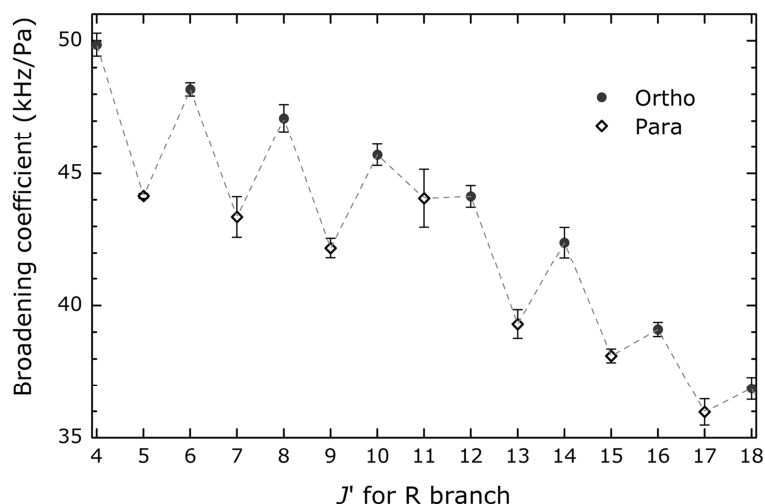


図 2: 圧力幅係数の回転準位依存性

- [1] S. Okubo, K. Iwakuni, H. Inaba, K. Hosaka, A. Onae, H. Sasada, and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express **8**, 082402 (2015).
- [2] Keilmann, G. Gohle, and R. Holzwarth, Opt. Lett. **29**, 1542 (2004).