

同軸同方向配置で観測された I₂ 分子の二重共鳴吸収スペクトルの解析

(東工大理) ○村松秀和・金森英人

Analysis of absorption spectrum of I₂ observed by copropagating double resonance spectroscopy (Tokyo Institute of Tech.) Muramatsu Hidekazu, Kanamori Hideto

We are developing Optical-Optical Double Resonance spectroscopy for heterodyne detection in order to obtain quantum phase of molecular wave function. For that purpose, an intermodulation technique was introduced in the frequency modulation of the pump and probe lasers, and applied to B-X transition of I₂ molecule. Here, we present some results of the new OODR system including analysis for the spectral line shape and its width.

[序論] 位相同期された 2 本のレーザーを用いた二重共鳴信号には分子の波動関数の位相に関する情報が含まれているが、これを読み出すためには光ヘテロダイン検出が必要となる。すなわち、pump 光と probe 光を同時に検出器（光ミキサー）に入射する同軸同方向の実験配置での測定が必要となる。今回、このようなヘテロダイン検出を前提とする条件の元で、二重共鳴信号を高感度で検出する手段として Intermodulation technique[1]に周波数変調を適用する試みを行った。この方法は、二本の光が同じ検出器に入るので、チョッパーによる変調が使えないような場合でも適用され、さらにチョッパー変調よりも高い周波数での変調が容易なことから、より高感度な測定法となることが期待される。

今回は超微細構造を有するヨウ素分子に対してこの手法を用い、二重共鳴吸収スペクトルを得ることに成功し、スペクトル線形の解析を行ったので報告する。

[実験] 実験配置のブロック図を図 1 に示す。2 台の DFB 半導体レーザーは中心波長が 1,064 nm 付近で、これらを偏波保持シングルモードファイバーでカップルすることで同軸同方向光源とした。半導体レーザーはいずれも出力が 3 mW 程度で飽和分光を行う上で十分ではないので、これをファイバーアンプで 2 W まで増幅し、非線形光学結晶(PPLN)によって SHG 光を生成した。得られた 532 nm の光を用いて、ヨウ素の B-X バンドの二重共鳴分光[pump : R(40) 32-0, probe : P(40) 32-0]を行った。周波数掃引は、ファンクションジェネレータからの三角波を半導体レーザーの電流コントローラの外部変調信号端子に入力することで行っており、各レーザーの周波数は波長計(High finesse WS7)でモニターしている。

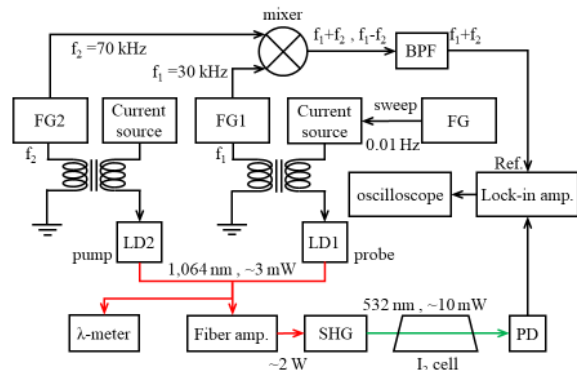


図 1 : 二重共鳴分光実験ブロック図

周波数変調は、ファンクションジェネレータ(FG1, FG2)の sin 波 f_1, f_2 をそれぞれの半導体レーザーの注入電流にトランスを介して重畳した。また double balanced mixer を使って変調周波数(f_1, f_2)の和周波(f_1+f_2)及び差周波(f_1-f_2)を生成した。今回用いたロックインアンプの参照信号の上限が 100 kHz であったので $f_1 = 70$ kHz, $f_2 = 30$ kHz とし、バンドパスフィルタにより和周波 $f_1+f_2 = 100$ kHz を切り出して参照信号とし、1f 検波で復調した。

[結果と考察] 得られた二重共鳴スペクトルは図2のようになり、二次微分波形をしていることがわかる。一般に、周波数変調で得られる信号は1f検波では一次微分波形が、2f検波では二次微分波形が得られる[2]が、今回は pump 光と probe 光の両方にそれぞれ変調をかけているため、1f検波でもこのような二次微分波形の信号が得られたと考えられる。数学的には、Lambert-Beer 法則に従って減衰した透過光強度を、周波数変調を施した各レーザー周波数 $\omega_i = \omega_{i0} + a_i \sin(2\pi f_i t)$ (ω_{i0} : 中心周波数、 a_i : 変調の深さ)の二変数関数としてテイラー展開すると、吸収係数の二次微分の波形となることを導出した。

今回観測した遷移には15本の超微細構造が存在し、図3(a)の点線で示されるような Doppler 幅で広がっている。一般に二重共鳴分光で得られるピークの位置は Lamb-dip とは異なり、これらの超微細構造成分ごとに pump される速度成分が異なることを考慮する必要がある。特に今回のような同方向の実験配置での測定では、これらの超微細構造は非常に近接して観測されることになるため、得られた二重共鳴信号(図2)は超微細構造分裂が重なって観測していると考えられる。ただし、各超微細構造の Doppler 幅は 440 MHz 程度で pump 光がすべての超微細構造のドップラー幅内に入っているわけではなく、pump 位置によって二重共鳴信号の形成に寄与する超微細構造は変わる。そこで、pump 位置を変化させながら得られた二重共鳴信号の解析を行った。二重共鳴信号に寄与する超微細構造がなるべく少なくなるような pump 位置(図3(b)④)で得られた二重共鳴信号から超微細構造1本当たりの線幅はおおよそ $6.7 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ であることがわかった。今回、いずれのレーザーも変調の深さ a_i は $1.2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ 程度に設定しており、Lamb-dip の線幅が約 $3.5 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ となっているので、これらの和が線幅として観測されていると考えられる。

今回の結果から、同軸同方向で検出器に入射した光から二重共鳴信号を取り出すことに成功し、二重共鳴分光のヘテロダイン検出のための基盤技術を確立することができた。

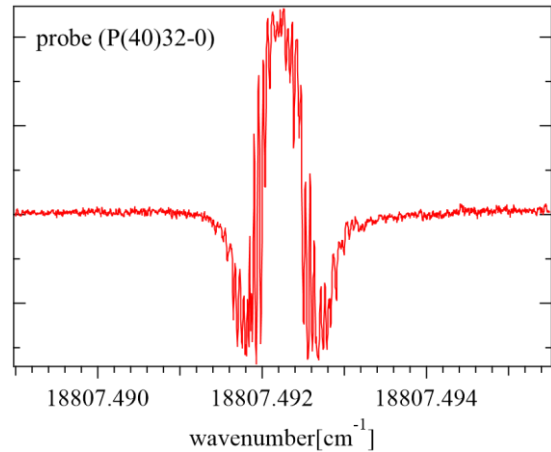


図2: 二重共鳴スペクトル
pump 位置 18811.092 cm^{-1}

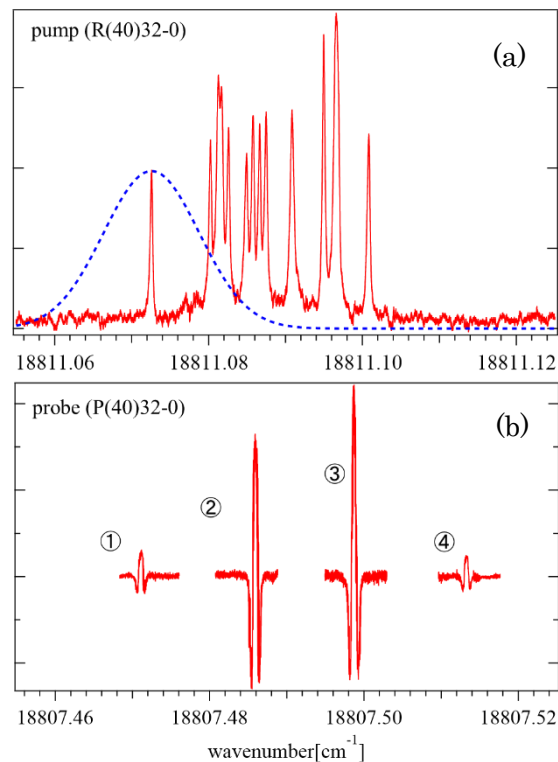


図3(a): pump 遷移の Lamb-dip スペクトル
点線: 一つの超微細構造のドップラー波形(計算)
(b): 二重共鳴スペクトル
pump 位置 ①18811.070 cm^{-1} ②18811.086 cm^{-1}
③18811.098 cm^{-1} ④18811.112 cm^{-1}

[1] Demtroeder “Laser Spectroscopy 2nd” p.446-448 (Springer)

[2] Demtroeder “Laser Spectroscopy 2nd” p.372-375 (Springer)