

## cw-OPO 赤外レーザーによる

CH<sub>3</sub>F 分子のコヒーレント過渡現象の観測

(岡山大自然\*、岡山大理\*\*、岡山大極限量子研\*\*\*) ○岡林裕介\*、唐健\*、川口建太郎\*、久間晋\*\*\*、笹尾登\*\*\*、谷口敬\*\*\*、中嶋享\*\*、中野逸夫\*\*、福見敦\*\*、宮本祐樹\*、吉村太彦\*\*

【序論】 分子の代表的なコヒーレント過渡現象としては、光章動、自由誘導減衰 (FID)、光エコー、超放射などがある。分子のコヒーレント過渡現象は、分子の緩和現象と密接に関係し、観測によって媒質の2準位による非線形コヒーレント分極の時間的波形を知ることができる。コヒーレント過渡現象観測は、1970年代に始まり、シュタルクスイッチング法や周波数スイッチング法を用いることで行なわれた。シュタルクスイッチング法を用いた実験としては、R. Brewer らによって、cw-CO<sub>2</sub> レーザー (9.66 μm、パワー密度 6.3W/cm<sup>2</sup>) を用いて CH<sub>3</sub>F 分子と NH<sub>2</sub>D 分子で光章動や FID が観測された。また、周波数スイッチング法では、J. Hall によって Intra-cavity EOM を用いて CH<sub>4</sub> 分子の光章動と FID が観測された。過去のコヒーレント過渡現象観測では、周波数固定のレーザーで実験が行なわれており、任意の波数域での光章動や FID を観測することは困難だった。本研究では、以前にシュタルクスイッチング法で低出力(14mW)の cw-OPO レーザを用いて振動回転遷移  $\nu_3(4)$  (3.39 μm) での光章動と FID を観測した。 $\nu_3(4)$  遷移では、シュタルク分裂成分間の許容遷移が多数になり、それら各々からくる FID が重ね合わさって信号が観測しづらいという点があった。そこで、今回は大強度周波数可変の cw-OPO レーザー (3.32 μm、~600mW) によって、シュタルクスイッチング法を用いて、CH<sub>3</sub>F 分子の振動回転遷移  $\nu_{R_0}(0)$  (3010.751cm<sup>-1</sup>) を用いることによってシュタルク単成分からの光章動と FID を観測し、緩和過程について知見を得たので報告する。

【原理】 シュタルクスイッチング法の原理は、図1に示されているように、シュタルク電場パルスを印加すると分子の振動回転遷移がシフトし、レーザー周波数  $\omega_L$  と共鳴していた速度成分  $v$  の分子集団が共鳴から外れ、速度成分  $v'$  の分子集団が共鳴しだす。速度成分  $v$  の分子集団は共鳴していた時に生じた誘起双極子モーメントが共鳴から外れたことによって、自由誘導減衰(FID)を起こす。速度成分  $v'$  の分子集団は突然共鳴しだすことで、深い吸収から定常的な吸収に減衰する光章動を引き起こす。FID や光章動は誘起双極子モーメントが起源で起こる現象であることから、主に横緩和時間で減衰する。

【実験】 cw-OPO レーザーは、シードレーザ (<70kHz、10mW) から出た光をファイバーアンプで最大 20W まで増幅でき、PPLN 結晶を通してアイドラー光とシグナル光を出し、アイドラー光は最大~600mW の出力を持つ。実験では、アイドラー光を使い最大出力~600mW で実験を行なった。標的分子は、CH<sub>3</sub>F で、遷移は、 $\nu_{R_0}(0)$  (3010.751cm<sup>-1</sup>) を用いた。簡単に実験セ

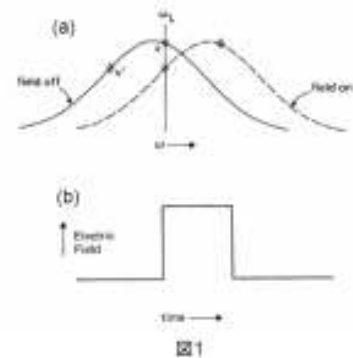


図1

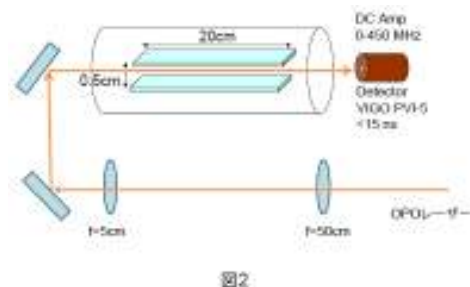


図2

ットアップを図2に示す。レーザー光を  $f=50\text{cm}$  と  $f=5\text{cm}$  のレンズでコリメートし、シュタルクセルに入れ、信号を検出した。

レーザーの偏光とシュタルク電場が垂直になるようにし、 $\Delta M=\pm 1$  の遷移を用いた。FID はレーザー光と同じ方向に放出され、レーザー光と FID が同時に検出器に入るので、FID とレーザー光のビート信号が検出される。信号は早い応答時間 ( $< 15\text{ns}$ ) の検出器 (VIGO PVI-5) で検出され、DC プリアンプ (帯域幅  $\sim 350\text{MHz}$ ) で 25 倍に増幅されてデジタルオシロスコープ (帯域幅  $500\text{MHz}$ ) で 10000 回積算平均、収録した。

OPO レーザーは  $\sim 600\text{mW}$  の出力で、遷移  ${}^1R_0(0)$  ( $3010.751\text{cm}^{-1}$ ) のドップラー幅の中心にレーザー周波数を固定し、セル中の  $\text{CH}_3\text{F}$  圧力は数  $\text{mTorr}$  で FID と光章動を観測した。図3は自作のスイッチング回路 (rise time  $\sim 30\text{nsec}$ ) を用いてシュタルク電圧 30V 印加した時の実験結果である。深い dip が光章動により徐々に平衡状態に落ち着いていく。dip のところでの振動が FID とレーザー光とのビート信号である。

図4に示しているように、シュタルク電圧を変えるとシュタルク効果による分子のエネルギー準位のシフトが変化するので、FID とレーザー光とのビート周波数も変わる。

### 【解析】

遷移  ${}^1R_0(0)$  ( $3010.751\text{cm}^{-1}$ ) は、シュタルク電場をかけると励起状態はシュタルク効果によって分裂し、レーザーの偏光とシュタルク電場が垂直であるから許される遷移は  $\Delta M=\pm 1$  になる。 $M=1 \leftarrow 0$  と  $M=-1 \leftarrow 0$  の遷移はそれぞれレーザー周波数に対して同じシフト周波数をもつので、FID とレーザー光のビート周波数は1個だけとなる。図5は、実験結果に対して行なったシミュレーションである。(図5)

観測された信号は FID とレーザーのビートと光章動との足し合わせだと考えられる。

FID と光章動からくる電場は理論モデルより次式で与えられる。

$$E_{\text{FID}} = Ae^{-t/T_2(1+d)} \cos(\omega_{\text{beat}}t)$$

$$E_{\text{光章動}} = Be^{-t/T_2} J_0(\chi t)$$

$\chi$ 、 $T_2$ 、 $J_0$  はそれぞれラビ周波数、横緩和時間、0 次のベッセル関数である。シミュレーションした結果、実験結果とシミュレーションの位相は合う結果となった。

今後は、過去に議論された FID、光章動の理論モデルが正しいかどうか再検討し、理論モデルが実験結果を再現できるように努力していきたい。

### 【謝辞】

東京工業大学にて、大強度 cw-OPO レーザーを使って実験をさせていただいた金森英人先生には厚く御礼申し上げます。

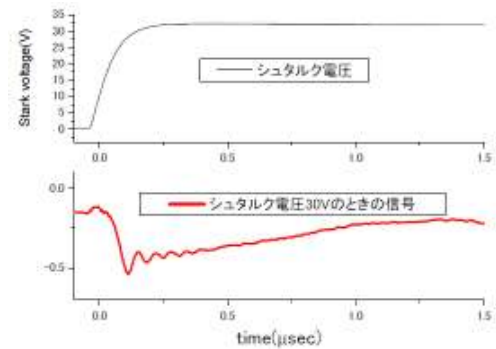


図3

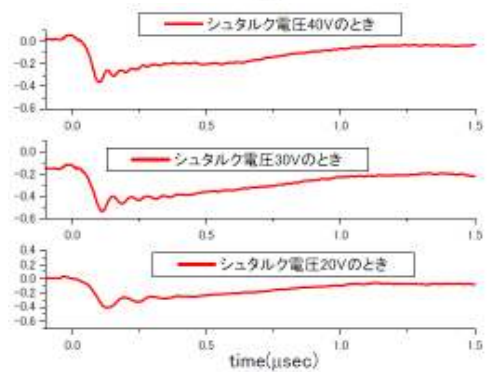


図4

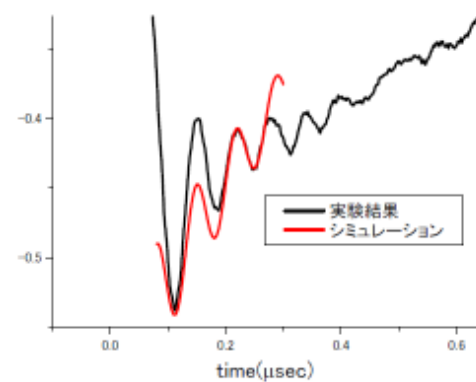


図5