

シュタルクスペクトルを用いた高分解能分光用  
周波数安定化レーザー

椎尾 一郎, アヌン・クスノボ, 大津 元一, 田幸 敏治

## 報 文 2

## シュタルクスペクトルを用いた高分解能分光用 周波数安定化レーザー

椎尾 一郎\*, アヌン・クスノボ\*†, 大津 元一\*\*, 田幸 敏治\*

\* 東京工業大学精密工学研究所 横浜市緑区長津田 4259 (〒227)

\*\* 東京工業大学理工学国際交流センター 東京都目黒区大岡山 2-12-1 (〒152)

(1984年3月9日受理)

### A Frequency Stabilized Laser System for High Resolution Spectroscopy Using Stark Spectrum

Itiro SHIO\*, Anung KUSNOWO\*†, Motoichi OHTSU\*\*  
and Toshiharu TAKO\*

\* Research Laboratory of Precision Machinery and Electronics, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta-cho Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 227

\*\* International Cooperation Center for Science and Technology, Tokyo Institute of Technology, O-Okayama Meguro-ku, Tokyo 152

(Received March 9, 1984)

An offset-locked He-Xe laser system for high resolution spectroscopy on  $\text{H}_2\text{CO}$  at  $3.51 \mu\text{m}$ , was constructed using a Stark shifted line. In this offset-locked laser system, a local oscillator laser which is necessary in conventional system can be eliminated, because reference laser is locked at offset-frequency. The frequency stability and tunable range of this system is  $\sigma = 8.8 \times 10^{-14}$  (at  $\tau = 10$  s) and 12 MHz, respectively, where  $\sigma$  is the square root of Allan variance and  $\tau$  is the sampling time. The performance of this offset-locked laser system satisfied the requirement for a light source of ultra-high resolution spectroscopy.

The pressure broadening coefficient of  $\text{H}_2\text{CO}$  was measured to be  $56 \pm 7 \text{ kHz/mTorr}$ , using present system.

Stark coefficient of  $\text{H}_2\text{CO}$  at  $3.51 \mu\text{m}$  was precisely measured using beat frequency between two stabilized He-Xe lasers. The electric dipole moment at  $v_5 = 1$  excited vibrational state was measured to be  $2.288 \pm 0.005 \text{ D}$ .

#### 1. はじめに

周波数の安定化制御を行わない気体レーザーの周波数安定度は、共振器長の熱膨張による変動等の原因で、

† National Institute for Physics, Indonesian Institute of Sciences Kompleks Lipi, Jalan Cisit, Bandung, Indonesia.

$10^{-7} \sim 10^{-6}$  程度である。一方、飽和分光法等によりドップラー幅を除去した赤外高分解能分光では分解能が  $10^{-8}$  から  $10^{-10}$  に達するので、分光用光源レーザーの周波数安定化が必要となる。また、光源レーザーの周波数は測定対象のスペクトルの範囲で精密に掃引可能であることが必要である。

周波数が安定で波長可変のレーザーを実現する方法の

一つはシュタルク効果などにより周波数掃引可能な原子・分子の吸収線を周波数基準としてレーザーの周波数安定化を行うことである<sup>2),3)</sup>。しかし、この安定化レーザーを分光光源に応用出来るのは、周波数基準の吸収線が測定対象のスペクトル範囲を掃引可能な場合に限られる。

精密な分光光源レーザーを実現するもう一つの方法はオフセットロックレーザーの手法である。特に3台のレーザーから成るオフセットロックレーザーシステムを用いる事で、原理的には任意の測定対象スペクトルを安定に周波数掃引する事が出来る<sup>1),4),5)</sup>。この方法を Fig. 1 (a) に示す。図中の3台のレーザーは上からそれぞれ、掃引レーザー、局部発振レーザー、基準レーザーの働きをする。基準レーザーは測定対象の吸収線を基準として周波数安定化される。次に局部発振レーザーは基準レ

ザーとのビート周波数と基準発振器の周波数を位相比較して、基準レーザーに対して  $\Delta f$  だけ異なる周波数に周波数オフセットロックされる。更に、掃引レーザーは局部発振レーザーに対して周波数オフセットロックされ、測定対象の吸収線を中心に精密に周波数掃引される。この方法では、ゼロビート時の注入同期によるレーザーゆらぎを防ぐため2台目の局部発振レーザーが必要となる。

ところが、Fig. 1 (b) に示すように基準レーザーを測定対象吸収線のシュタルク分裂した吸収線により安定化することにより、2台のレーザーで精密分光光源レーザーを構成することが出来る。本論文では  $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線の精密分光用オフセットロックレーザーシステムを、シュタルク効果により  $12.7 \text{ MHz}$  シフトした  $\text{H}_2\text{CO}$  の吸収線を基準とした H-Xe レーザーを用いて製作した。また、この吸収線のシュタルク係数の精密測定についても述べる。

## 2. 性能の目標

本研究では  $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線の精密な高分解能分光測定のための分光光源としてシュタルクシフトを用いたオフセットロックレーザーシステムを製作した。本装置に必要なとされる性能は次の2点である。

### (1) 周波数安定度

測定対象である  $\text{H}_2\text{CO}$  の飽和吸収スペクトル線の全幅 (FWHM) は約  $500 \text{ kHz}$  である。これを精密に測定するためには少なくとも  $10 \text{ kHz}$  程度の掃引きざみで測定することになる。また超微細構造<sup>6),7)</sup>の影響を観測する場合は  $1 \text{ kHz}$  程度の掃引きざみが必要である。このためレーザーの安定度は測定時間程度の積分時間において  $10^{-11}$  ( $\sim 1 \text{ kHz}$ ) から  $10^{-12}$  ( $\sim 100 \text{ Hz}$ ) 程度である必要がある。一方、積分制御された安定化レーザーの安定度は積分時間の  $-1/2$  乗から  $-1$  乗に比例する傾向があるため測定時間を長くする方が有利である。しかし吸収セルやシュタルク電場の安定度などを考えると、一回の測定の所要時間は  $10^8 \text{ s}$  程度以下が適当である。この場合周波数掃引の1きざみ当りの測定時間は  $1 \text{ s}$  のオーダーである。このため前述の安定度は  $1 \text{ s}$  から  $10^8 \text{ s}$  の測定時間の範囲で達成されることが必要である。すなわち本装置には  $1 \text{ s} \leq \tau \leq 10^8 \text{ s}$  において  $\sigma \leq 10^{-11}$  から  $\sigma \leq 10^{-12}$  の周波数安定度が要求される。

### (2) 周波数掃引特性

前述のように測定対象のスペクトル線全幅が約  $500 \text{ kHz}$  であることから本装置は吸収線を含む周波数領域で  $2 \text{ MHz}$  程度掃引幅を持つことが必要である。

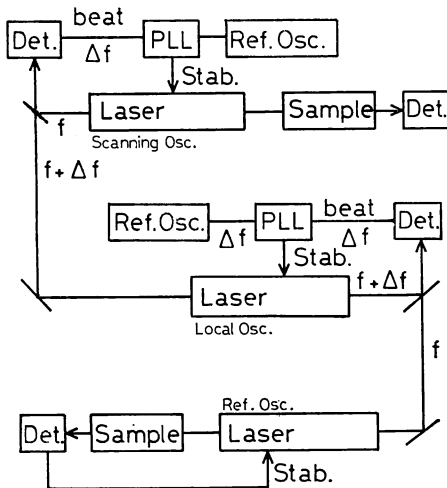


Fig. 1 (a) Conventional offset-locked laser system. The reference laser is stabilized using the inverted Lamb dip in  $\text{H}_2\text{CO}$ .

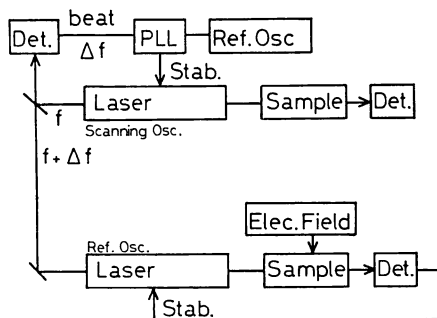
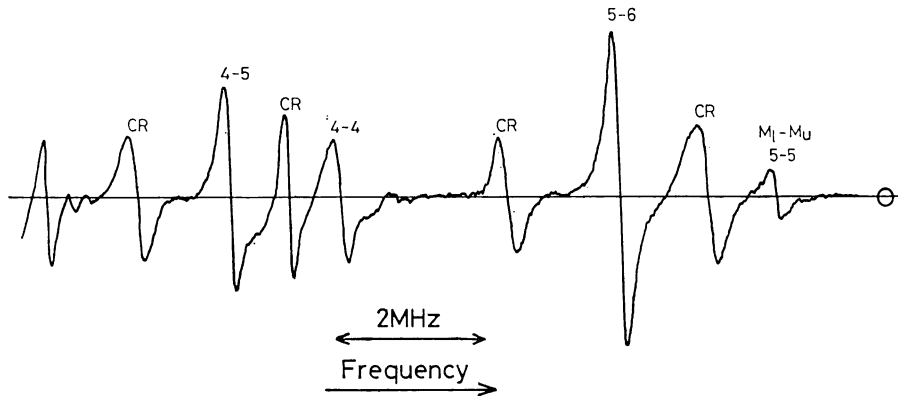


Fig. 1 (b) Proposed offset-locked laser system. The reference laser is stabilized to Stark shifted line.

Fig. 2 Derivative signal of Stark components of  $\text{H}_2\text{CO}$ .

そこで、以上の性能を達成することを目標としてオフセットロックレーザーシステムを製作した。

### 3. 基準レーザー

本装置の基準レーザーは、 $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線の高分解能シュタルクスペクトル<sup>3)</sup>を周波数基準として安定化した He-Xe レーザーである。この吸収線は  $6_{0,6} (v_5=1) \leftarrow 5_{1,6} (v=0)$  振動回転遷移によるものであり、飽和吸収分光法によって初めて観測される程度の2次の弱いシュタルク効果を示す。He-Xe レーザーにより観測した  $\text{H}_2\text{CO}$  の高分解能シュタルクスペクトルを Fig. 2 に示す。これはレーザー共振器内に長さ 33cm, 間隔 6.5 mm のシュタルク電極を内蔵した  $\text{H}_2\text{CO}$  吸収セルを設置して反転ラムくぼみを測定した結果である。印加電場は  $4.6155 \pm 0.0001 \text{ kV/cm}$  であり、シュタルク変調の目的で 3 kHz, 40 Vp.p. の正弦波電圧を重畳した。 $\text{H}_2\text{CO}$  の圧力は 5 mTorr でスペクトルの半値全幅は約 430 kHz である。図中で吸収線に付された記号は帰属の結果を示す。すなわち数値は下準位及び上準位の M の値の絶対値  $|M_l|$ ,  $|M_u|$  を示し、記号 CR は飽和吸収分光に特有の交叉共鳴の吸収線を示す。基準レーザーはこのうち  $|M_l|=5$ ,  $|M_u|=6$  の吸収線の直線部分を周波数弁別信号として用いて共振器ミラーを PID (比例, 積分, 微分) 制御して安定化された。これは比例制御に加えて長期及び短期の安定度の改善のために積分器及び微分器を併用する制御である<sup>4)</sup>。この吸収線のシュタルク係数は  $597 \text{ kHz}/(\text{kV/cm})^2$  であるので、基準レーザーは  $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線に対して 12.72 MHz 高周波側に安定化される。

基準レーザーの周波数安定度は制御系の誤差信号から得られる結果すなわち吸収線への追従度と、シュタルク

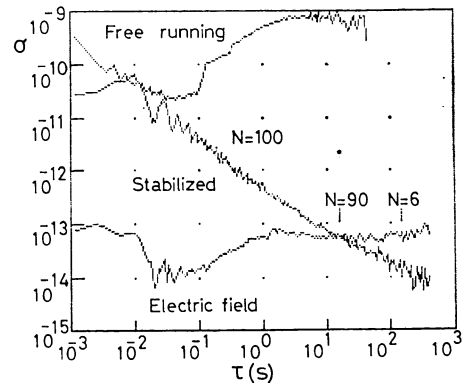


Fig. 3 Frequency stability of the reference laser as measured by Allan variance.

電場の安定度の二乗和の平方根として求めた。後者は印加電圧の安定度と電極スペーサーの温度変化による膨張を測定して算出した。Fig. 3 にこれらの結果をアラン分散の平方根  $\sigma$  で示す。積分時間  $\tau > 10 \text{ s}$  の安定度はシュタルク電場のゆらぎのため  $10^{-13}$  程度に制限される。基準レーザーの周波数安定度は  $\tau = 10 \text{ s}$  において  $\sigma = 8.6 \times 10^{-14}$  である。

### 4. シュタルク係数の精密測定

シュタルクスペクトル安定化 He-Xe レーザーをオフセットロックレーザーシステムの基準レーザーとして使用するためには、シュタルク係数が正確に測定されている必要がある。そこで Fig. 4 に示すシュタルク係数の精密測定の実験装置によって測定を行った。これは2台の  $\text{H}_2\text{CO}$  安定化 He-Xe レーザーを用いて、1台を零電場の吸収線に、他の1台をシュタルクスペクトルの吸収線に安定化する。2台のレーザーのビート信号を周波数

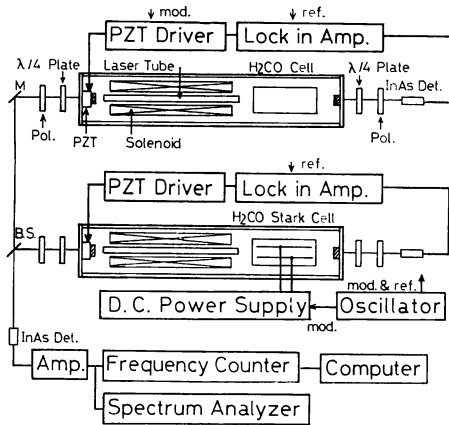


Fig. 4 Experimental set-up for precise measurement of Stark coefficient of H<sub>2</sub>CO, using two He-Xe lasers which are stabilized to a Stark shifted line and a zero field absorption line, respectively.

カウンタで計測して、マイクロコンピュータで統計処理して、シュタルク係数を精密に測定する。H<sub>2</sub>COの零電場の吸収線に安定化したHe-Xeレーザーの周波数安定度は $\tau \leq 1$ sではシュタルクスペクトル安定化レーザーの安定度とほぼ同じ結果となる。 $\tau \geq 1$ sではシュタルク電場のゆらぎの影響を受けない零電場吸収線安定化レーザーの方が良い安定度となり、 $\tau = 10$ sでは $\sigma = 4.0 \times 10^{-14}$ である。ビート周波数測定時間は、2台のレーザーの安定度が良い結果を示す1sから100sの範囲とした。

シュタルク係数の測定結果と、H<sub>2</sub>COの分子定数<sup>9)~12)</sup>から求めた計算値<sup>9)</sup>をTable 1に示す。測定結果は計

Table 1 A list of Stark coefficients of H<sub>2</sub>CO absorption lines at 3.51  $\mu$ m. Calculated values are computed using molecular constants in refs. (9), (10), (11) and (12).

Line $ M_i  -  M_u $	Frequency Shift (kHz)	Electric field (kV/cm)	Stark coef. (kHz/(kV/cm) <sup>2</sup> )	
			Obs.	Calc.
5-5	14390 ± 20	4.6155 ± 1	676 ± 1	684
cross res.	13531 ± 20	4.6155 ± 1	635 ± 1	641
5-6	12716 ± 20	4.6155 ± 1	597 ± 1	597
cross res.	11040 ± 20	4.6155 ± 1	518 ± 1	518
4-4	9026 ± 20	4.6155 ± 1	421 ± 1	423
cross res.	8281 ± 20	4.6155 ± 1	389 ± 1	388
4-5	7518 ± 20	4.6155 ± 1	353 ± 1	352

算値と良く一致した。なお係数の大きい2つの吸収線で計算値と一致しないのはビート測定系の周波数特性が原因である。係数の測定誤差の原因には電場の誤差、ビート周波数のばらつき、吸収線信号の零点に対する非対称性が考えられる。これらの値はビート周波数に換算してそれぞれ0.5 kHz, 1 kHz, 20 kHzであり、吸収線信号の非対称性が誤差の主要因である。

この測定結果から $v_5 = 1$ の振動励起状態の電気双極子モーメント $\mu_A$ を求めたところ

$$\mu_A(v_5 = 1) = 2.288 \pm 0.005 \text{ D}$$

を得た。これは従来の測定値である $\mu_A(v_5 = 1) = 2.2844 \pm 0.0047 \text{ D}^{12)}$ と同じ精度の結果であり誤差範囲内で一致した。

### 5. 掃引レーザー

Fig. 5に本研究で製作したH<sub>2</sub>CO分子の精密分光用オフセットロックレーザーシステムを示す。2台のHe-Xeレーザーは基準レーザー及び掃引レーザーである。基準レーザーは先に述べたH<sub>2</sub>COのシュタルクスペクトル安定化He-Xeレーザーで、H<sub>2</sub>COの3.51  $\mu$ m吸収線に対して12.7 MHz高周波側に安定化されている。掃引レーザーは周波数オフセットロックレーザーである。すなわち基準レーザーとのビート信号を検出し、ビート周波数が水晶共振器を基準とした周波数シンセサイザーの周波数値に一致するように制御されている。ここ

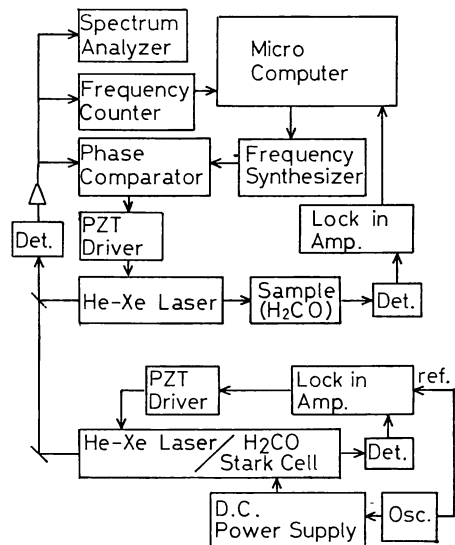


Fig. 5 Block diagram of the He-Xe offset-locked laser system for high resolution spectroscopy on H<sub>2</sub>CO at 3.51  $\mu$ m.

で周波数シンセサイザの周波数を掃引すれば、掃引レーザーは基準レーザーと同程度の安定度を保ちつつ周波数掃引される。基準レーザーのシュタルクシフト量である 12.72 MHz を含む周波数範囲で掃引レーザーを周波数掃引すれば、 $\text{H}_2\text{CO}$  の 3.51  $\mu\text{m}$  吸収線の精密分光測定が可能である。

周波数オフセットロックでビート周波数を誤差信号に変換する方法として、周波数-電圧変換、位相-電圧変換などがある。本装置では 2 台のレーザーのビート周波数を 1/10 分周して周波数シンセサイザの周波数と位相比较して、これを誤差信号として掃引レーザー共振器ミラーを PID 制御した。位相比较器は 12 bit 2 進カウンタが 2 組、加算器、12 bit D/A 変換器で構成される。2 組の 2 進カウンタはそれぞれ比較すべき周波数信号を計数して、この計数値の差、すなわち位相差が加算器と D/A 変換器により電圧に変換される。周波数オフセットロックの方法を用いるときに問題となる点は 2 台のレーザーのビート周波数の変動が大きい場合、ビート信号と周波数シンセサイザの信号の位相差が大きくなり、位相比较器のダイナミックレンジを超えてしまうことである。ここで用いた位相比较器は 12 bit カウンタを用いているので、位相余裕度は  $2\pi \times 2^{12}$  rad すなわち  $4 \times 10^6$  Hz $\cdot$ s である。一方 He-Xe レーザーのフリーランニングの安定度は  $\tau \leq 1$  s では  $\sigma \leq 10^{-9}$  すなわち  $10^6$  Hz である。ビート信号は 1/10 分周した後に位相比较しているのでゆらぎは  $10^4$  Hz となるが、制御系の応答速度は 0.1 s より充分速いのでこの位相比较器の余裕度を越える事はない。このため周波数オフセットロックを安定に行うことが可能である。

掃引レーザーの周波数の設定、掃引及びモニターと、分光信号のデータ処理のためにマイクロコンピュータが用いられる。マイクロコンピュータの第 1 の役割は掃引レーザーの周波数の設定と掃引である。周波数シンセサイザの設定をマイクロコンピュータで制御する事により、掃引の開始と終了の周波数値、掃引のきざみ及び掃引の 1 きざみ当りの停留時間を任意にプログラムすることができる。マイクロコンピュータの第 2 の役割は掃引レーザーの周波数のモニターである。周波数シンセサイザの周波数値を新しい値に設定した後、掃引レーザーが正しい値に安定するまで 0.1 s~1 s 程度必要である。これは周波数シンセサイザとレーザーの制御系の応答時間が原因である。分光測定の際はこの不安定な過渡時期を避けなければならない。そこでビート周波数を周波数カウンタで計数し、マイクロコンピュータでモニターして、レーザー周波数掃引時の周波数の過渡時期を避けて

分光測定するプログラムを開発した。マイクロコンピュータの第 3 の役割は掃引レーザーによる分光測定結果のデータ処理である。分光測定結果を 12 bit A/D 変換器でマイクロコンピュータに取り込み、信号の積分やその結果得られる離散的な測定データの数値処理を行う。

## 6. 性能の評価

本装置の周波数安定度と周波数掃引特性の性能を測定評価したところ以下の結果を得た。

位相比较器の出力電圧から測定した掃引レーザーの基準レーザーに対する追従度を Fig. 6 に示す。ここでは 2 台のレーザーのビート周波数が 11 MHz となるように周波数オフセットロックしている。掃引レーザーの追従度は  $\tau=10$  s で  $\sigma=2.0 \times 10^{-14}$  である。この図に示すように掃引レーザーの追従度が基準レーザーの安定度より良い結果を示しているので、掃引レーザーは基準レーザーに対して良好に追従していると言える。掃引レーザーの真の安定度は、基準レーザーの安定度との 2 乗和の平方根となり、 $\tau=10$  s で  $\sigma=8.8 \times 10^{-14}$  である。これは前述の周波数安定度の目標値を満足している。

周波数掃引特性はビート周波数を分周して周波数-電圧変換器で電圧に変換して X-T レコーダーにより測定した。Fig. 7 は掃引レーザーを基準レーザーに対して低周波側に 11 MHz から 14 MHz 掃引した例である。掃引は 100 kHz きざみで行い、各周波数値の停留時間は 4 s とした。停留時間内に分光測定用ロックインアンプ出力は 1000 個採取され積分される。この測定はレーザー周波数の掃引に伴う周波数の過渡時期を避けて行われる。本装置の掃引可能範囲は基準レーザーに対して 2 MHz から -14 MHz である。これは前述の周波数掃引

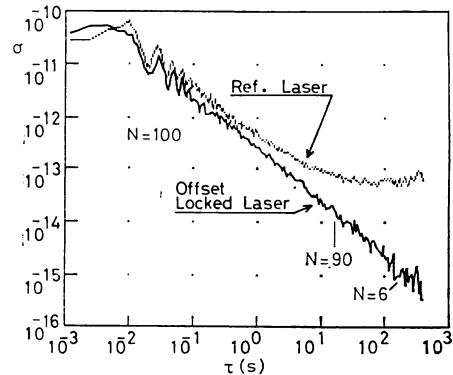


Fig. 6 Frequency traceability of the scanning laser to the reference laser as measured by Allan variance.

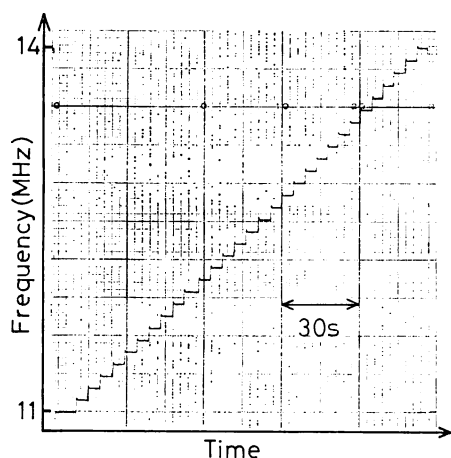


Fig. 7 An example of computer aided frequency scanning at 100 kHz interval.

特性の目標を満足している。掃引の下限は周波数シンセサイザの周波数レンジの制限に因るものであり、2 MHz未満の掃引にはここでレンジ設定スイッチを切り換える必要がある。しかし H<sub>2</sub>CO の精密分光装置として用いる場合この周波数領域の掃引はあまり意味が無い。一方、掃引範囲の上限 (14 MHz) を超えるとビート信号が小さくなり周波数オフセットが外れ易くなる。従って現在の結果より周波数可変範囲を広げるには、ビート検出の光軸合せを更に厳密に行い、光波面を一致させる必要がある。

### 7. H<sub>2</sub>CO の飽和吸収線の精密測定

H<sub>2</sub>CO の 3.51 μm 飽和吸収線 (反転ラムくぼみ) の測定は、従来周波数安定化されていない He-Xe レーザーを用いていたので、信号の S/N 比、周波数軸の精度などの問題のために吸収線の形の評価や線幅の精密な測定が困難であった。そこで本研究で開発したオフセットロックレーザーシステムを用いて吸収線の精密測定を行った。

反転ラムくぼみを測定するために掃引レーザーの共振器中に H<sub>2</sub>CO の吸収セルを設置した。掃引レーザーの出力光は 1 kHz のチョップで強度変調してロックインアンプで同期検波した。Fig. 8 に精密測定された 4.9 m Torr 圧の H<sub>2</sub>CO の飽和吸収線を示す。周波数の掃引は基準レーザーに対して -11 MHz から -14 MHz の範囲で 50 kHz きざみで行った。各周波数値における停留時間は 2 s でこの期間に 500 個の測定値を積分した。縦軸は図のフルスケールがロックインアンプ入力の 6.7 μV

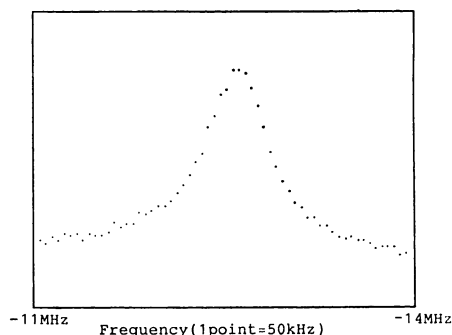


Fig. 8 Profile of the H<sub>2</sub>CO absorption line observed by the offset-locked laser system.

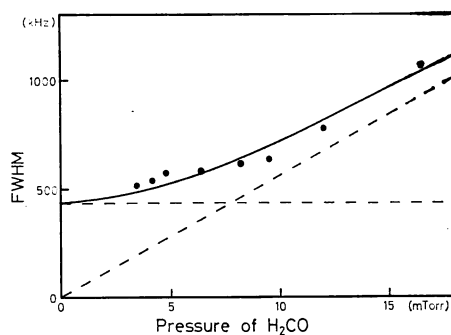


Fig. 9 Pressure dependence of FWHM of the inverted Lamb dip of H<sub>2</sub>CO (circles). Lines show the result of curve fitting using the method of least squares.

に相当する。数 100 μV の強力なレーザー光をバックグラウンドとした微弱な反転ラムくぼみ信号が本装置により良い S/N 比で測定された。また横軸の周波数値は正確かつ線形であるので吸収線の形を正確に評価することが可能である。

Fig. 9 は本装置による H<sub>2</sub>CO の圧力広がり測定結果である。この結果から圧力に比例しない全幅は約 500 kHz であるが、これはパワー広がりによる値<sup>13)</sup>と同じ程度であるので、これが原因であると考えられる。図の測定値から最小二乗法で圧力広がり係数を求めたところ、反転ラムくぼみの全幅 Δν<sub>f</sub> は

$$\Delta\nu_f^2 = \{(56 \pm 7) \cdot P_{H_2CO}\}^2 + \{444 \pm 30\}^2 \quad (\text{kHz}^2)$$

と近似できた。ただし P<sub>H<sub>2</sub>CO</sub> は H<sub>2</sub>CO の圧力で単位は mTorr である。ここで得られた圧力広がり係数 56 ± 7 kHz/mTorr は、周波数安定化されていない He-Xe レーザーによる従来測定結果<sup>13)</sup>の HWHM に対する 155 ± 31 kHz/Pa すなわち FWHM に対する 41.3 ± 8.3

kHz/mTorr に比べて少し大きい値となった。

### 8. まとめと今後の展望

本論文では測定対象吸収線のシュタルク分裂スペクトルを用いたオフセットロックレーザーシステムを提案した。これは、従来3台のレーザーを必要としていたオフセットロックレーザーシステムを2台のレーザーで構成するものである。そして  $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線の精密な高分解能分光測定を目的としたオフセットロックレーザーシステムを試作した。また基準レーザーの周波数値の測定のために、 $\text{H}_2\text{CO}$  の  $3.51 \mu\text{m}$  吸収線のシュタルク係数の精密測定を行った。

試作したオフセットロックレーザーシステムは  $\text{H}_2\text{CO}$  の精密な高分解能分光測定に必要な周波数安定度と周波数掃引特性を有している。またマイクロコンピュータ制御により正確な自動掃引と分光データ処理が行われる。

次に、本装置を用いて  $\text{H}_2\text{CO}$  の反転ラムくぼみの精密測定を行い、圧力広がりの係数を求めた。

本装置は周波数安定度が  $\tau \geq 1\text{s}$  で  $\sigma \leq 10^{-13}$  ( $\leq 100$  Hz) であるので、数 10 kHz の超微細構造の分解能を目標とする  $\text{H}_2\text{CO}$  の将来の高分解能分光用光源として充分使用可能である。また本論文で提案したオフセットロックレーザーシステムの方法は、 $\text{H}_2\text{CO}$  以外の分子に対してもシュタルク分裂スペクトルが観測されれば適用可

能である。

### 文 献

- 1) J. L. Hall and C. Bordé: Phys. Rev. Lett. **30**, 1101 (1973).
- 2) T. A. Nussmeier and R. L. Abrams: Appl. Phys. Lett. **25**, 615 (1974).
- 3) T. Kunikane, M. Otsu, T. Nakamura and T. Tako: Jpn. J. Appl. Phys.
- 4) M. Otsu, S. Katsuragi and T. Tako: IEEE QE-**17**, 1100 (1981).
- 5) J. L. Hall, C. J. Bordé and K. Uehara: Phys. Rev. Lett. **37**, 1339 (1976).
- 6) P. Thaddeus, L. C. Krisher and J. H. N. Loubser: J. Chem. Phys. **40**, 257 (1964).
- 7) B. Fabricant, D. Krieger and J. S. Muentzer: J. Chem. Phys. **67**, 1576 (1977).
- 8) I. Siiio, M. Ohtsu and T. Tako: Jpn. J. Appl. Phys. **21**, 813 (1982).
- 9) F. Y. Chu, S. M. Freund, J. W. C. Johns and T. Oka: J. Mol. Spectrosc. **48**, 328 (1973).
- 10) M. Allegrini, J. W. C. Johns and A. R. W. McKellar: J. Mol. Spectrosc. **66**, 69 (1977).
- 11) B. Fabricant, D. Krieger and J. S. Muentzer: J. Chem. Phys. **67**, 1576 (1977).
- 12) M. Allegrini, J. W. C. Johns and A. R. W. McKellar: J. Mol. Spectrosc. **67**, 476 (1977).
- 13) M. Ohtsu and T. Tako: J. Appl. Phys. **50**, 599 (1979).