

光コムを基準にした差周波光源による サブドップラー分解能分子分光

(慶大理工) ○岩國加奈・大久保章・中山裕天・阿部真志・佐々田博之

Sub-Doppler Resolution Molecular Spectroscopy with Optical-Comb-Referenced
Difference-Frequency-Generation Spectrometer

(Keio Univ.) Kana Iwakuni, Sho Okubo, Hirotaka Nakayama, Masashi Abe,
and Hiroyuki Sasada

We have developed a sub-Doppler resolution molecular spectrometer, which allowed us to determine 56 absolute frequencies of the 3.4- μm transitions of CH_4 with an uncertainty of 2 kHz using an optical comb [1]. In this study, the frequency of the 3.4- μm source is referenced to TAI (Temp Atomique International) through the comb. Therefore, recorded spectra can be averaged for a long time without any frequency drift or broadening.

【序】我々はこれまでに、差周波発生法による波長3.4 μm 中赤外光源と光共振器吸収セルを用いてサブドップラー分解能分光計を開発してきた。光源の出力パワー約100 μW 、線幅50 kHz以下、同調範囲86.4 ~90.5 THzで、 CH_4 と CH_3I で線幅約200 kHzの飽和吸収線を観測した。 CH_4 で観測された56本の飽和吸収線の中心周波数を国際原子時に同期した光コムで測定し、精度約2 kHz、相対精度 10^{-11} を達成した[1]。本発表では光コムを周波数基準として光源周波数を掃引する分光計について報告する。この分光計では周波数ドリフトがないため、スペクトル分解能を下げることなく長時間信号を積分することができ、検出感度が向上する。

【実験】図1に実験装置を示す。波長1.06 μm のNd:YAGレーザーと波長1.55 μm の外部共振器型半導体レーザー (ECLD) からの光をファイバーで重ね、周期分極反転LiNbO₃ (PPLN) に入射し、波長3.4 μm の差周波光を得る。この光を試料気体を封入した光共振器吸収セルに入射して、透過光をInSb受光器で検出する。光共振器吸収セル内では実効吸収長が伸び、また、定在波の腹で光電場が増強するので飽和吸収スペクトルが高感度に観測される。中赤外光周波数と光共振器吸収セルの共振周波数が常に一致するようにPound-Drever-Hall法で制御されている。

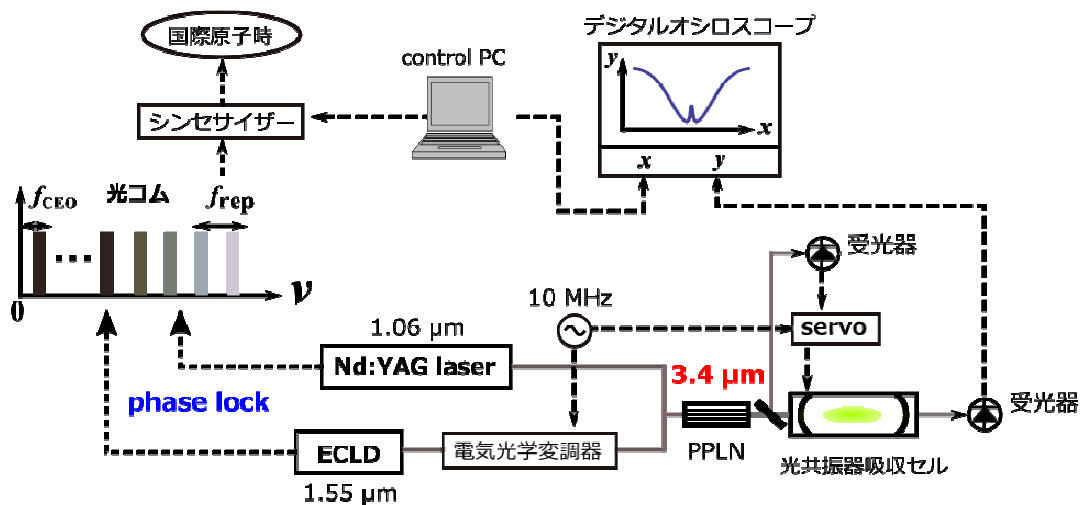


図1 実験装置

光コムはパルス幅の狭いモード同期レーザーである。その出力は、時間軸上では等間隔に並ぶ光パルス列、周波数軸上では図1左中央のように繰り返し周波数 f_{rep} ごとにモードが並ぶ。このスペクトルの形状から光コムと呼ばれる。モードを仮想的に低周波数側に外挿したときの余りの周波数をキャリア・エンベロープ・オフセット周波数 f_{CEO} という。したがって、 n 番目のモード周波数は

$$\nu_n = f_{\text{CEO}} + n f_{\text{rep}} \quad (1)$$

で与えられる。モード番号 n は整数で 10^6 のオーダーである。本研究で使用した光コムは、 $f_{\text{rep}} = 67$ MHz、スペクトルは波長 $1.55 \mu\text{m}$ を中心に 40 nm 程度広がっており、これを高非線形ファイバーにより波長 $1.0 \sim 2.0 \mu\text{m}$ の範囲まで広帯域化している。

Nd:YAGレーザー/ECLDと光コムの最も近いモードとのビートを観測する。そのビート周波数が $f_{\text{beat}}^{1.06}$ 、 $f_{\text{beat}}^{1.55}$ になるようにフェーズロックすると、差周波光の周波数は

$$\nu_{3.4} = \Delta n f_{\text{rep}} + f_{\text{beat}}^{1.06} - f_{\text{beat}}^{1.55} \quad (2)$$

となる。 Δn はNd:YAGレーザーとECLDを安定化している各モードのモード番号の差である。 f_{rep} 、 $f_{\text{beat}}^{1.06}$ 、 $f_{\text{beat}}^{1.55}$ は国際原子時に同期したRb原子時計に安定化しており、周波数ドリフトはなく、標準偏差はmHz程度である。式(2)は f_{CEO} に依存しないので f_{CEO} を安定化する必要はない。この時 $3.4 \mu\text{m}$ 光は絶対周波数が値付けされている。またドリフトがないので、スペクトルを積算してS/Nを向上できる。PCで f_{rep} を 0.01 Hz/step 、 10 ms/step で掃引すると、 $3.4 \mu\text{m}$ 光は 13 kHz/step で周波数掃引される。

【結果】図2は、観測された CH_3I 分子の ν_1 バンド $P(J = 26, K = 1)$ 遷移の飽和吸収スペクトルである。上記の分光計で掃引を20回繰り返し、信号を2分間にわたって平均した。ヨウ素原子核はスピン $5/2$ を持つので電気四重極相互作用により6本の超微細分裂があるが、そのうちの5本の分裂が確認できる。スペクトルの半値全幅は 190 kHz で、その内訳は圧力広がり 60 kHz (試料圧力 0.93 Pa)、通過時間幅 28 kHz (ビーム半径 0.7 mm)、パワー広がり光源のスペクトル幅の効果は合わせて 100 kHz と見積もっている。S/Nに余裕があるので、圧力を下げて分解能を高めることができる。

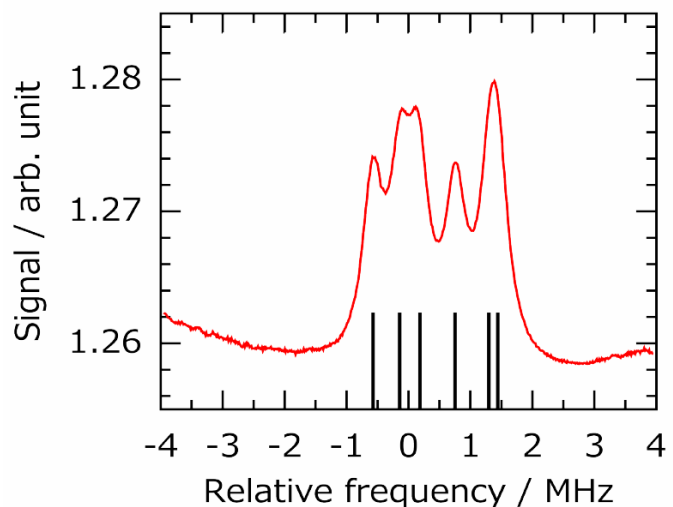


図2 CH_3I ν_1 バンド $P(J = 26, K = 1)$ 遷移の飽和吸収スペクトル

【まとめ】光コムを分光計の周波数基準として用い、周波数軸が絶対周波数で目盛付けされたスペクトルを記録できるようになった。周波数ドリフトなくスペクトルを積算できるので検出感度が改善された。周波数決定精度は約 5 kHz 程度まで達成可能で、マイクロ波分光に匹敵する精度でエネルギーが高い振動励起状態の準位構造を決定できるようになった。

参考文献

- [1] S.Okubo, H. Nakayama, K. Iwakuni, H. Inaba, and H. Sasada, Opt. Express, **19**, 23878 (2011).