

光周波数コムを用いた超高分解能分光システム

(福岡大理) ○西山明子・石川大樹・御園雅俊

High resolution spectroscopic system with an optical frequency comb
(Fukuoka Univ.) Akiko Nishiyama, Daiki Ishikawa, and Masatoshi Misono

We developed a high resolution spectroscopic system to study detailed structures and dynamics in excited states of molecules. The system was composed of an optical frequency comb and a single mode dye laser, and realized high resolution and high accuracy as well as wide frequency range with easy operation. To demonstrate the ability of our system, we measured hyperfine spectra of B – X rovibronic transitions of molecular iodine. The absolute frequencies of hyperfine components for each transition were determined with the uncertainty of about 100 kHz. The obtained hyperfine splittings were fitted by the four term Hamiltonian and we showed vibrational dependences of the hyperfine constants.

【序】高分解能分光は、分子スペクトルの微小なシフトや広がり、分裂等を精密計測することで、分子の電子励起状態間の相互作用やダイナミクスを明らかにする手段である。分子スペクトルは広い波長領域にわたって複雑なスペクトルを持つため、その精密計測には、高分解能、高周波数精度、広波長範囲で測定可能な分光システムの開発が必要である。我々は光周波数コムを用いて、分子分光からのこれらの要求を満たす超高分解能分光システムを製作した。今回、そのシステムの高分解能分子分光における性能を示すために、ヨウ素分子の超微細構造スペクトルを広い波長領域にわたって測定し、超微細構造定数の振動状態への依存性を検討した。

【実験】測定を行った分光システムを Fig. 1 に示す。分光システムは、色素レーザーを分光光源としたヨウ素分子の飽和吸収分光システムと、光周波数コムによる光源の周波数校正システムからなる。光源の色素レーザーは、半値半幅 200 kHz 以下の狭い線幅を持ち、今回使用した色素 (Rhodamine 6G) では 560 – 620 nm の波長範囲で発振可能である。光周波数コムとしては、モードロック Ti:Sapphire レーザーを用いた。このモード間隔周波数とオフセット周波数を GPS 衛星からの基準信号にロックすることで、高い周波数精度が得られた。

周波数校正システムでは、2つのレーザーのビート信号と、バンドパスフィルター (BPF1,2) を利用した簡単な構成によって、周波数マーカーを生成した[1]。この方法によって、掃引する色素レーザーの周波数を容易に、高い精度で決定することが可能となる。得られた周波数マーカーとヨウ素分子の飽和吸収スペクトルは、同時にオシロスコープで記録した。さらに、波

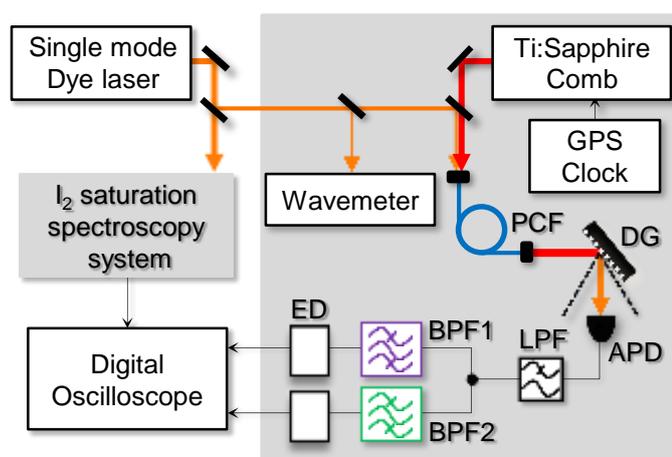


Fig. 1. Experimental setup

PCF: Photonic crystal fiber, DG: Diffraction grating, APD: Avalanche photodiode, LPF: Low-pass filter, BPF1,BPF2: Band-pass filter, ED: Envelope detector.

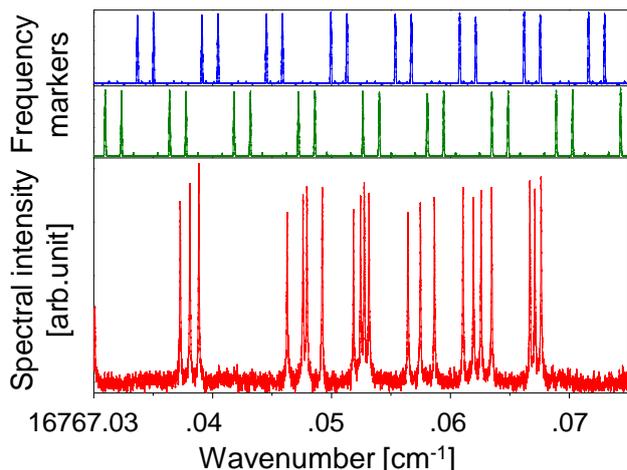


Fig. 2. Saturated absorption spectrum of R(47)13-2 transition of molecular iodine.

遷移について 10 回繰り返し、周波数マーカによる周波数校正を行った。これによって不確かさおよそ 100 kHz で超微細構造スペクトルの絶対周波数を決定した。また、今回の測定結果が過去の文献の値とも一致することを確認した。

さらに、各遷移の超微細構成分の周波数差から、超微細構造相互作用を表す 4 つの超微細構造定数を求めた。4 つの定数はそれぞれ、electric quadrupole (eQq)、spin-rotation (C)、tensorial spin-spin (d)、scalar spin-spin (δ) 相互作用を表す。得られた定数について励起状態の振動量子数 v' を横軸にとってプロットしたものを Fig. 3 に示した。 eQq と C では振動状態への依存性が明らかに見られたが、他の 2 つの定数では、計算のエラーバーが相対的に大きくなった。これらの結果について、過去の文献との比較を行った。

[1] P. Del'Haye, *et al.*, Nature Photon. 3, 529 (2009).

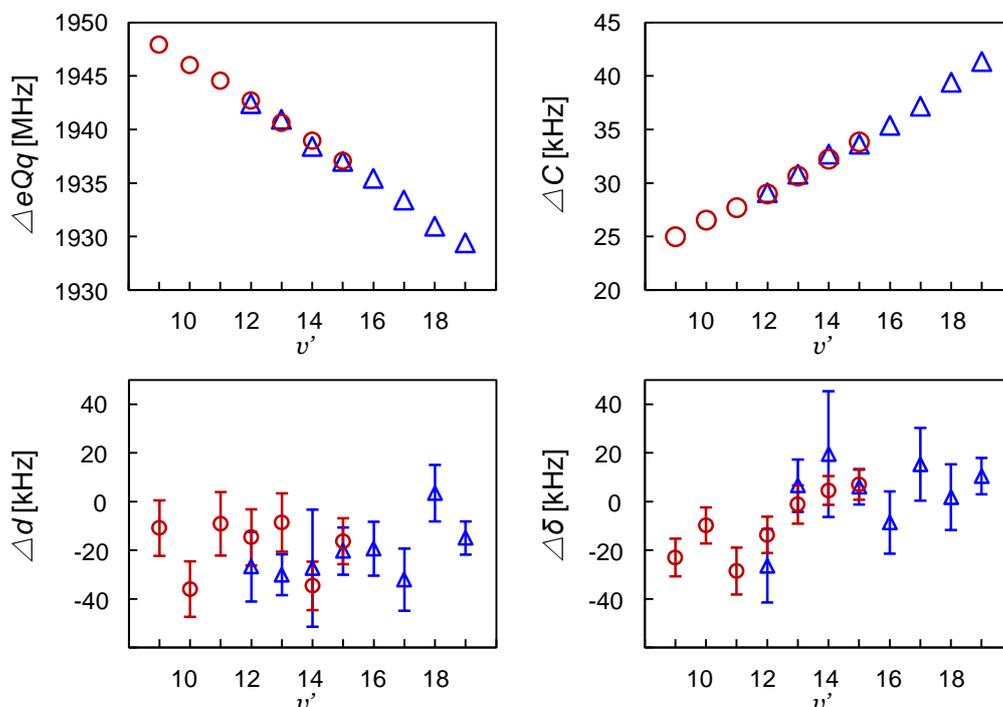


Fig. 3. Vibrational dependences of hyperfine constants, Δ :P(62) $v' - 1$, $v' = 12 - 19$; \circ :R(47) $v' - 2$, $v' = 9 - 15$.

長計での測定を同時に行うことでスペクトルの絶対周波数を決定した。

測定はヨウ素分子の B-X 遷移の P(62) $v' - 1$ ($v' = 12-19$)、R(47) $v' - 2$ ($v' = 9-12$)について行い、超微細構造スペクトルの絶対周波数を決定した。P(62)19-1 遷移はおよそ 570.1 nm、R(47)9-2 遷移はおよそ 612.0 nm であり、測定範囲は周波数にして約 36 THz におよぶ。

【結果】 Figure 2 に R(47)13-2 遷移の飽和吸収スペクトルと、同時に記録した周波数マーカを示す。飽和吸収スペクトルにはヨウ素分子の 21 本の超微細構造が観測されている。このような測定を各