

光周波数コムを用いたキャビティーエンハンスドフーリエ変換分光による CO の高感度分光計測

(1. ニコラス・コペルニクス大, 2. 電通大, 3. JSPS, 4. DESY, 5. QUEST-Leibniz-Research School)

○西山 明子^{1,2,3}, G. Kowzan¹, D. Charczun¹, V. S. de Oliveira⁴, A. Ruehl^{4,5}, I. Hartl⁴, 美濃島 薫², R. S. Trawiński¹, P. Maślowski¹

Highly sensitive measurement of CO using cavity-enhanced Fourier-transform spectroscopy with an optical frequency comb

(1. NCU, 2. UEC, 3. JSPS, 4. DESY, 5. QUEST-Leibniz-Research School)
A. Nishiyama^{1,2,3}, G. Kowzan¹, D. Charczun¹, V. S. de Oliveira⁴, A. Ruehl^{4,5}, I. Hartl⁴, K. Minoshima², R. S. Trawiński¹, P. Maślowski¹

The frequency comb based cavity-enhanced absorption spectroscopy (FC-CEAS), cavity mode-width spectroscopy (CMWS), and cavity mode dispersion spectroscopy (CMDS) realize highly sensitive measurements in a wide wavelength range. In this study, we apply the three cavity enhanced spectroscopic methods and high-resolution Fourier-transform spectroscopy (FTS) to measure the second overtone band (0→3) of CO in near infrared region (1560-1600 nm). We demonstrated massively parallel acquisition of precise line-shape of more than 20 spectral lines with high signal-to-noise ratio (SNR) in far shorter acquisition time than the conventional step-scan techniques with a cw laser, and showed the high potential of the comb based cavity-enhancement spectroscopies for the precise line shape study.

【序】 キャビティーエンハンスド吸収分光法は、検出困難な分子種を計測するための高感度分光計測の手法として、強力な分光手法であることが知られている。なかでも、光周波数コムを光源として用いたキャビティーエンハンスド吸収分光法(FC-CEAS)[1]は、コムの多数のモードと共振器を共鳴させることで、広波長域の高感度スペクトルの同時計測を可能にする。また、スペクトルの取得に、光周波数コムを光源としたフーリエ変換分光計(FC-FTS)を用いると、干渉計の光路長によって決まる分解能と精度の限界を超えて、コムのモード分解能と精度が実現できる[2,3]。本研究では、これらの分光手法を用いて、近赤外域におけるCO気体の倍音遷移(0-3)の測定を行い、同時計測した多数の吸収線について、collisional effectによるスペクトル線形の変化を明らかにした。加えて本研究では、cavity mode-width spectroscopy (CMWS)と cavity mode dispersion spectroscopy (CMDS) [4]を用いて同様の遷移を観測し、その原理検証を行った。

【実験】 Figure 1 に、FC-CEAS システムの概略を示した。光源としては Er ファイバー型光周波数コムを用い、その出力を高フィネス共振器 (Finesse=21000) に入射した。光周波数コムの繰

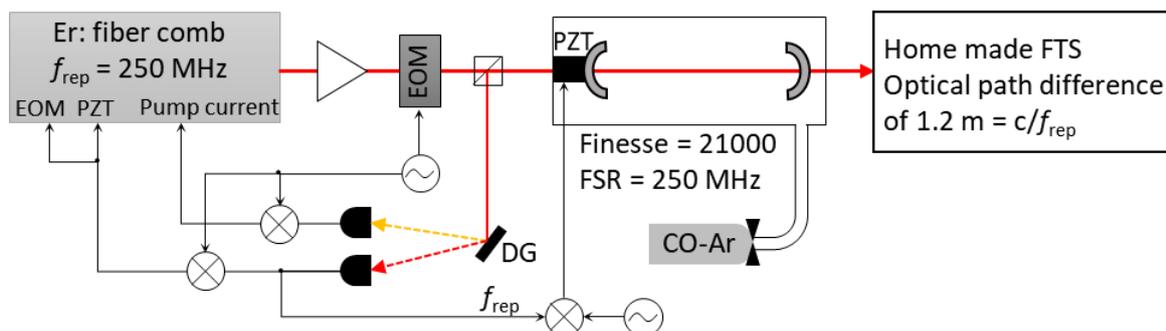


Fig. 1. Experimental setup for FC-CEAS. Two point Pound-Drever-Hall lock [1] is used to stabilize the comb to high-finesse cavity. DG: diffracting grating, EOM: electro-optic modulator.

り返し周波数(f_{rep})と共振器のFSRはともに250 MHzとし、測定範囲(1.56-1.60 μm)においてすべてのコムモードが共振器に共鳴するように、コム周波数を制御した。さらに共振器長は、コム f_{rep} が一定となるように、GPS clockを基準に安定化した。共振器内にCO-Ar混合気体(CO濃度:1000 ppm)を封入し、気体圧力を10-700 Torrに変化させて測定を行った。

一方CMWSとCMDSの実験システムでは、コム f_{rep} とわずかに異なるFSRをもつ共振器を用い、コムモードを掃引することで分子の吸収によって変化する共振器の共鳴線幅とFSRをそれぞれ計測する。この測定は、キャビティリングダウン分光法においてリングダウン時間を取得することと本質的に同じであり、かつ広波長域における同時測定が可能となる。

透過光スペクトルを得るために、すべての実験システムにおいて用いたFC-FTSは、安定化HeNeレーザーを基準とした干渉計で構成されており、干渉光路長が c/f_{rep} (~ 1.2 m)に正確に等しくなるように干渉信号を取得する。これによって、FTSのサンプリング分解能はコム f_{rep} と等しくなり、FTSの装置関数の影響を除くことができるので、得られたスペクトルの各点からコム狭線幅なモードの情報を取得できる。

【結果】 Figure 2(a)は、FC-CEASを用いて測定した0-3遷移R枝のスペクトルを示した。スペクトルは50回積算後、参照スペクトルを取得して規格化しており、得られたスペクトルのSN比は1200である。1つの干渉信号の測定時間は4秒であり、50 MHz分解能、50回積算のスペクトルを取得するのに要した時間は17分であった。

Figure 2(a)に示したスペクトルのうちほとんどの吸収線が非対称であるが、これは共振器内の分子の分散によって共振器のFSRが変化し、正確に等間隔であるコムモード周波数と共鳴周波数にずれが生じるために生じる[1]。Figure 2(b)に、R(4) line付近を拡大して示し、フィッティングした関数とその残差を示した。フィッティングした関数の半値全幅はおよそ1.3 GHzである。フィッティングの関数には、Voight profile (VP)とこれに衝突幅のspeed-dependentを考慮した関数であるSDVPを用い、共振器内の分散によって生じる非対称項も考慮した。VPによるフィッティングでは、w型の残差がみられるが、一方でSDVPを用いた場合のフィッティングはより良い一致を示している。VPによるフィッティングのquality factor (QF)は93、SDVPにおいては278であり、およそ3倍改善されている。本研究で取得したP、R枝の多数の吸収線に同様の解析を行うことができ、この結果から、スペクトル線形のSpeed-dependenceパラメーターやDicke narrowingの詳細を議論することが可能になる。

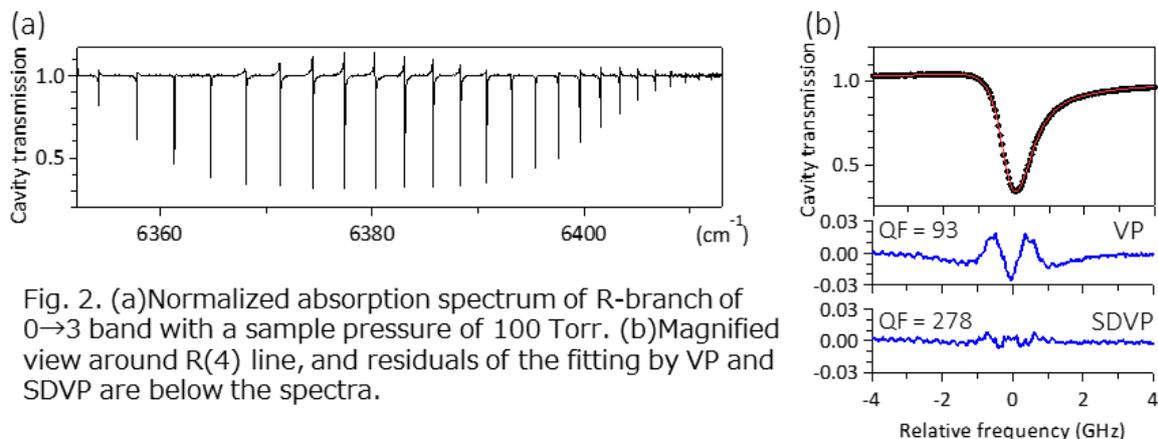


Fig. 2. (a) Normalized absorption spectrum of R-branch of 0 \rightarrow 3 band with a sample pressure of 100 Torr. (b) Magnified view around R(4) line, and residuals of the fitting by VP and SDVP are below the spectra.

本研究は、National Science Centre, Poland (No. UMO-2016/23/B/ST2/00730, 2016/21/N/ST2/00334, 2017/24/T/ST2/00242)とJSPS KAKENHI 16J02345, 17K14435の助成を受けて行われた。

[1] A. Foltynowicz, et al., Physical Review Letters 107, 233002 (2011).

[2] P. Masłowski, et al., Phys. Rev. A 93, 021802(R) (2016).

[3] L. Rutkowski, et al., Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 204, 63 (2018).

[4] A. Cygan, et al., J. Chem. Phys. 144, 214202-1 (2016).