

光周波数コムを用いた超高分解能分光システムによる ナフタレン分子の高精度スペクトル測定

(福岡大・理) 西山 明子, 松葉 歩美, 御園 雅俊

Precise measurement of naphthalene spectra with high resolution spectroscopic system employing an optical frequency comb
(Fukuoka Univ.) Akiko Nishiyama , Ayumi Matsuba , Masatoshi Misono

【序】 多原子分子の電子励起状態には、状態間摂動や前期解離などの興味深い現象が存在することが知られており、超高分解能分光はこれらの現象を明らかにするための有力な手段となる。高分解能分子分光において、電子励起状態間の相互作用や解離現象は、電子振動回転スペクトルの微小なシフトや線幅の変化として現れるため、測定には高い分解能と周波数精度が必要である。これまでに我々は、高分解能分子分光において従来よりも高い周波数精度を得るために、光周波数コムを用いた周波数計測システムを開発し、掃引している狭線幅色素レーザーの周波数を高精度に計測した。今回は、開発した周波数計測システムをドップラーフリー分光システムに適用し、ナフタレン分子の電子振動回転スペクトルの測定を行った。

【実験】 本研究の実験システムを Fig. 1 に示す。周波数計測システム(A)では、GPS衛星搭載の Cs 原子時計に安定化したモード同期 Ti:S レーザーを光周波数コムとして用いた。光源として用いる狭線幅色素レーザー光の一部を周波数計測システムに入射し、コムのモードとのビート周波数を計測するが、この際、ビート周波数を測定できない周波数領域が生じることが問題となる。そこで本システムでは、色素レーザー光を音響光学変調器(AOM)によって周波数シフトさせることで、コムとのビート周波

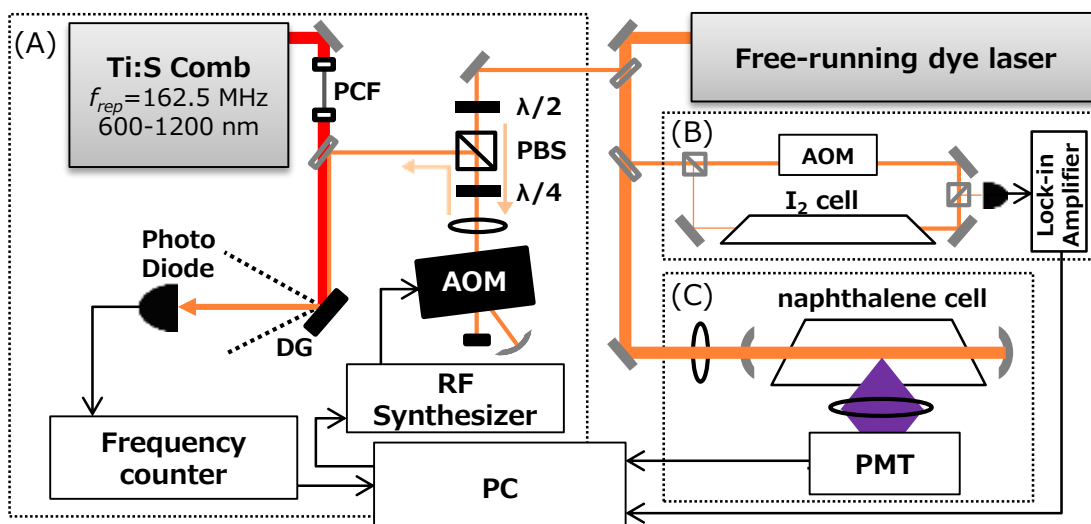


Fig. 1. Experimental setup with the following components: acousto-optic modulator (AOM), photomultiplier tube (PMT), photonic crystal fiber (PCF), and diffraction grating (DG). (A) absolute frequency measurement part with an optical frequency comb and an AOM. (B) Saturated absorption spectroscopic part of molecular iodine. (c) Doppler-free two-photon absorption spectroscopic system.

数を連続的に測定することを可能にした。AOM のシフト周波数はレーザーの掃引周波数を打ち消すように変化させ、色素レーザーの掃引中もビート周波数がほぼ一定となるようにした。

(C)はナフタレン分子のドップラーフリー 2 光子吸収分光システムである。掃引している狭線幅色素レーザーに共鳴を保つよう制御した共振器内にナフタレンセル（圧力 20 Pa）を設置し、ナフタレン分子からの蛍光を観測した。色素レーザーの波数を 16788 cm^{-1} 付近で掃引し、 $S_1B_{1u}(v_4=1) \leftarrow S_0A_g(v=0)$ 遷移のバンドオリジンを含む 2 光子遷移スペクトルを得た。また、同時にヨウ素分子の飽和吸収スペクトルを測定した。

【結果】 Figure 2 に、本研究で得られたナフタレン分子スペクトルとヨウ素分子スペクトルを示す。横軸の絶対波数は、周波数計測システムによって、コムモード周波数と測定したビート周波数、Fig. 2 上段に示した AOM のシフト周波数の値を用いて校正した。測定を行った範囲に見られる多数の電子振動回転線を、すべてローレンツ関数でフィットし、その中心周波数を求めた。得られたナフタレン分子スペクトルのほとんどは、 $Q^{(K)}Q(J)$ 遷移であり、 $J = 0-42$ 、 $K = 0-22$ のスペクトルのうち、1050 本を帰属することができた。帰属したスペクトルの遷移周波数を最小二乗法によってフィッティングし、励起状態の回転定数を高い精度で決定した。さらに、コリオリ相互作用によるエネルギーシフトを求めたところ、過去の文献とよく一致した。

また、得られたナフタレン分子スペクトルの半値半幅は、セル内の圧力が 20 Pa である場合に 1.3 MHz であったが、圧力拡がりの影響を小さくした場合には、 $S_1B_{1u}(v_4=1)$ バンドの蛍光寿命から計算される自然幅 (0.9 MHz) に近い幅を持つスペクトルが得られることを示した。

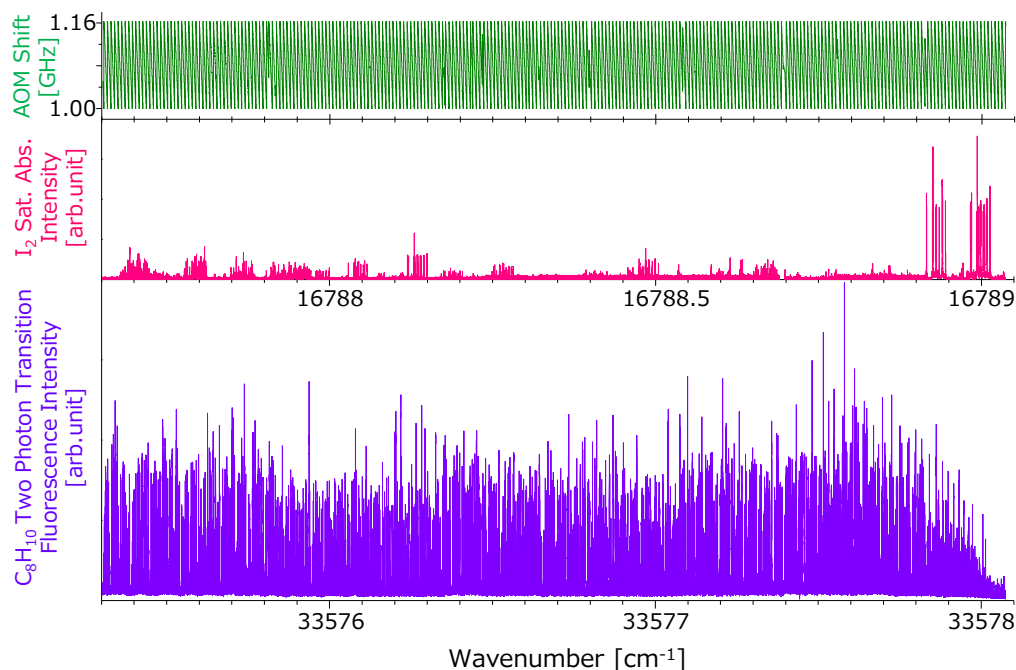


Fig. 2. Saturated absorption spectra of molecular iodine and Doppler-free two-photon absorption spectra of naphthalene from 33575.3 cm^{-1} to 33578.1 cm^{-1} . The horizontal axis was calibrated by our frequency measurement system with the optical frequency comb and the AOM.