

デュアルコム分光法による振動遷移モーメントの決定： アセチレン $\nu_1+\nu_3$ バンド

¹産総研物理計測，²JILA，³産総研環境管理，⁴横国大理工，⁵慶応大理工
大久保章¹，岩國加奈^{1,2,5}，○山田耕一^{1,3}，稲場肇¹，大苗敦¹，洪鋒雷⁴，
佐々田博之⁵

Vibrational transition moment determined by dual-comb spectroscopy: $\nu_1+\nu_3$ band of C₂H₂

Sho Okubo¹, Kana Iwakuni^{1,2,5}, ○Koichi MT Yamada^{1,3}, Hajime Inaba¹, Atsushi Onae¹,
Feng-Lei Hong⁴, Hiroyuki Sasada⁵

¹NMIJ, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Japan

²JILA, University of Colorado, USA

³EMRI, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Japan

⁴Department of Physics, Yokohama National University, Japan

⁵Department of Physics, Keio University, Japan

【Abstract】 The $\nu_1+\nu_3$ vibration band of acetylene (C₂H₂) in the near infrared region was recorded with a dual-comb Fourier-transform spectrometer for 56 transitions from *P*(26) to *R*(29) at six different column densities. Each observed line-profile in transmittance was fitted with the Voigt profile, to determine line-center frequency, the Lorentzian line-width, and the integral line intensity. The outstanding capability of dual-comb spectroscopy allowed us to cover a broad spectrum in a relatively short time with high resolution and high frequency precision. The determined line strength for each ro-vibrational transition as well as the transition dipole moment for this band will be presented.

【序】 2005年のノーベル物理学賞は T. W. Hänsch と J. L. Hall による光周波数コム
の開発に対して授与された。時間領域と周波数領域の両方で等間隔パルスの性質を
持つ周波数コムは、その高い周波数安定性により分子分光に革命的变化をもたら
しつつある。本研究では2つの近赤外光コムを用いる、いわゆるデュアルコム分光
(Dual-comb spectroscopy: DCS) 装置を作成し、6550 cm⁻¹付近にバンド中心を持
つアセチレンの複合音 $\nu_1+\nu_3$ バンドを高分解能・高精度で測定することによって、そ
の性能の実証し、一部の成果は既に発表した[1,2]。今回は、吸収強度の解析から
 $\nu_1+\nu_3$ モードの振動遷移モーメントを決定したので報告する。

【方法(実験・理論)】 使用した装置については報文[1,2]で詳しく述べた。DCSは繰り
返し周波数が少しだけ異なる2つの光コムを用い、一方をシグナルビームとしサン
プルセルを通過させ、他方をローカルビームとし、両者を検出器で重ね合わせてヘ
テロダイン検出することによって、時間領域インターフェログラムを得た。これは
図1の非対称光学配置で、得られた時間領域インターフェログラムをフーリエ変換
すると、振幅スペクトルと位相スペクトルの両方が得られる。今回は使用しなかつ

た対称光学配置（図 1）を用いると、インターフェログラムは自己相関関数となり、

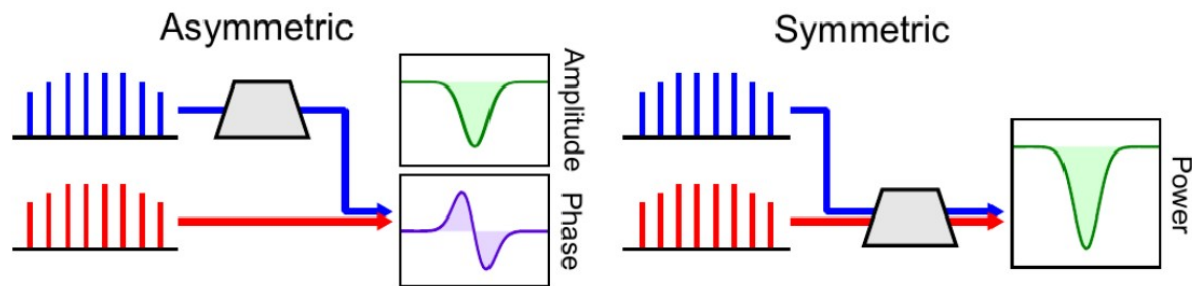


Fig. 1. Two kinds of hetero-dyne spectroscopy: asymmetric and symmetric optical alignments

そのフーリエ変換はパワースペクトルになる。

光路長 20 cm, 50 cm の直管セルと 305 cm のホワイトセルを用い、それぞれ 2 つの圧力、すなわち 6 つの異なる柱密度でスペクトルを測定した。得られた振幅透過率スペクトル $T_a(\nu)$ を Lambert-Beer の式を用いて解析した。各振動回転遷移について、中心周波数から ± 2 GHz の範囲で、Voigt 型吸収線形を仮定して最小二乗法で当てはめ、積分吸収強度を求めた。透過率を定義する Lambert-Beer の法則はパワースペクトルで定義されているので、振幅透過率 T_a とパワー透過率 T_p の関係、

$$T_a^2 = T_p \quad (1)$$

に留意した。P(26)~R(29)の測定線の強度から $\nu_{1+\nu_3}$ モードの振動遷移モーメントを $|\mu(\nu_{1+\nu_3})| = 10.852(22)$ mD と決定した。この際、1 次の Herman-Wallis 補正項、

$$F(m) = (1+c_1m)^2 \quad (2)$$

を導入した。ここで m は P(J) のとき $-J$, R(J) のとき $J+1$ である。また解析ではサンプルガスは実験時の室温 (296 K) で平衡状態にあると仮定した。

【結果・考察】今回決定した振動遷移モーメントは Hachtouki ら[3] (FTIR) や Li ら[4] (CW laser spectroscopy) により報告されている値と、約 1 % の差で一致している。これは DCS が、横軸 (周波数) の精度の圧倒的高さに加え、縦軸 (強度) についても、約 5 分という短時間測定で、従来の高分解能 FTIR 測定に匹敵する能力を持っていることを示している。

【参考文献】

- [1] S. Okubo, K. Iwakuni, H. Inaba, K. Hosaka, A. Onae, H. Sasada, and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express, 8 (2015) 082402.
- [2] K. Iwakuni, S. Okubo, K. M. T. Yamada, H. Inaba, A. Onae, F.-L. Hong, and H. Sasada, Phys. Rev. Lett., 117 (2016) 143902.
- [3] R. El Hachtouki and J. V. Auwera, J. Mol. Spectrosc. 216 (2002) 355–362.
- [4] J. Li, L. Joly, J. Cousin, B. Parvitte, B. Bonno, V. Zeninari, and G. Durry, Spectrochim. Acta. A 74 (2009) 1204–1208.