

光周波数コムを周波数目盛とした芳香族炭化水素の高分解能分光

¹福岡大理, ²電通大院情報理工, ³京大院理
○御園雅俊¹, 白濱光¹, 中島一樹¹, 西山明子², 馬場正昭³

**High resolution spectroscopy of aromatic hydrocarbons
referenced to an optical frequency comb**

○M. Misono¹, H. Shirahama¹, K. Nakashima¹, A. Nishiyama², M. Baba³

¹*Department of Applied Physics, Fukuoka University, Japan*

²*Department of Engineering Science, The University of Electro-Communications, Japan*

³*Department of Chemistry, Kyoto University, Japan*

【Abstract】 There are various interesting interactions in the electronic excited states of polyatomic molecules. Since these interactions appear as minute spectral line shifts or line broadenings, we need to employ spectroscopy with high resolution, high precision, and high accuracy. So far, we developed spectroscopic systems assisted by optical frequency combs, and studied small aromatic molecules such as benzene and naphthalene. We elucidated precise structures and dynamics in the vibronic excited states of these molecules.

Recently, we have started to study larger polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). As a frequency measure, we have made an Er fiber based optical frequency comb. And we apply our system to high resolution spectroscopy of PAHs such as coronene and perylene.

【序】 おもな芳香族炭化水素の電子振動遷移の波長は、およそ 240 nm から 450 nm にわたって分布している。この波長域をカバーする高分解能分光に適した分光光源が存在しないため、単一モードの Ti:Sapphire レーザーおよび色素レーザーの第 2 高調波がよく用いられる。また、これらのレーザー光の周波数を精確に測定するためには、モード周波数を安定化した光周波数コムを利用することができる。我々は、これまでに、Ti:Sapphire 光周波数コムを周波数目盛として利用する高分解能分光システム[1]を製作し、ベンゼン、ナフタレンなど小さな芳香族炭化水素の高分解能分光を行ってきた。これらの研究においては、分光光源として単一モード色素レーザーを用いた。

最近、我々は、これら小さな芳香族炭化水素の研究成果を踏まえて、多環芳香族炭化水素の高分解能分光に着手した。分光光源として単一モード Ti:Sapphire レーザーを用い、ペリレンやコロネンなどの多環芳香族炭化水素の分光を行っている。今回は、新たに、周波数目盛として、Er ドープファイバーレーザーを利用した光周波数コム (Er コム) を製作した。これによって、分光光源として単一モード Ti:Sapphire レーザーと色素レーザー、周波数目盛として Ti:Sapphire コムと Er コムが利用できるようになり、これらを適宜組み合わせることによって、多くの分子に対応できる高分解能分光システムが実現した。

【実験】 Figure 1 は、本研究の高分解能分光システムを模式的に示したものである。このシステムは、分子分光システムと、周波数測定システムの 2 つの部分からなる。分子分光システムでは、光源として連続発振の単一モード Ti:Sapphire レーザー (Coherent, 899-29, $\lambda \sim 807$ nm) を用いた。この出力光を、LBO 結晶を使用した第

2 高調波発生装置 (Spectra-Physics, Wavetrain, $\lambda \sim 403.5 \text{ nm}$) に導入し、第 2 高調波を発生させた。サンプルを約 $150 \text{ }^\circ\text{C}$ に加熱し、 1.4 気圧 の He をバッファとしてパルスノズルから噴射した。スキマー、スリットを経て上記の第 2 高調波と垂直に交差させた。分子線および第 2 高調波の双方に垂直な方向へ蛍光を集光して光子係数を行った。

周波数測定システムでは、新たに自作した Er コムを用いた。繰り返し周波数 f_{rep} は約 68.4 MHz 、オフセット周波数 f_{CEO} は約 17.1 MHz であり、GPS からの基準信号にロックした。Er コム出力光を PPLN に入射させて第 2 高調波 ($\lambda \sim 807 \text{ nm}$) を発生させた。単一モード Ti:Sapphire レーザー光の周波数を音響光学周波数シフター (AOFS) によってシフトさせてから、この光を PPLN 出力光に重ね、Ti:Sapphire レーザー光の周波数を連続的に測定した[2]。この手法では、Ti:Sapphire レーザー光と Er コム出力光との間のビート周波数がほぼ一定となるように、AOFS でレーザー光の周波数をシフトさせる。これによって、Ti:Sapphire レーザー光の周波数を掃引しながら、その値と揺らぎを測定することができる。

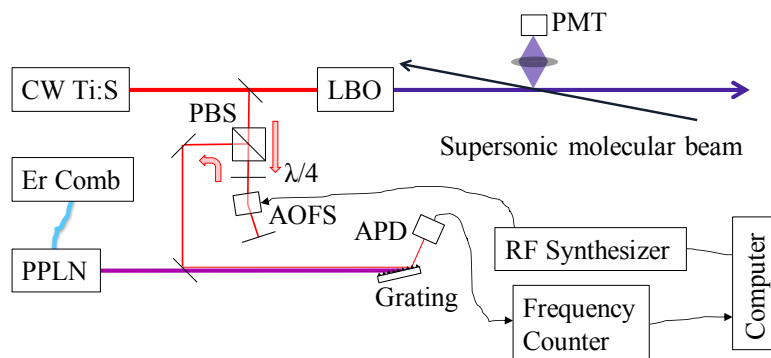


FIG. 1. Experimental setup. APD: Avalanche Photodiode, PBS: Polarizing Beam Splitter, AOFS: Acousto-Optic Frequency Shifter, PMT: Photomultiplier Tube

【結果・考察】 Figure 2 は、上記の高分解能分光システムを用いて、ペリレンのホットバンドのスペクトルを測定したものである。光子計数およびビート測定のためのゲート時間を 1 秒とした。この図の 2 段目に示したのは、Ti:Sapphire レーザー光と Er コム出力光とのビート周波数である。この周波数は約 17.85 MHz を中心にばらついており、標準偏差は約 400 kHz であった。Er コムの各モードの周波数ゆらぎは 10 kHz 以下に抑えられているので、ビートの標準偏差はゲート時間 1 秒のときの Ti:Sapphire レーザー光周波数のゆらぎを表している。講演では、この測定システムの詳細と、多環芳香族炭化水素の高分解能分光について述べる。

【参考文献】

- [1] A. Nishiyama, A. Matsuba, and M. Misono, *Opt. Lett.* 39, 4923 (2014).
 [2] A. Nishiyama, K. Nakashima, A. Matsuba, and M. Misono, *J. Mol. Spectrosc.*, 318, 40 (2015).

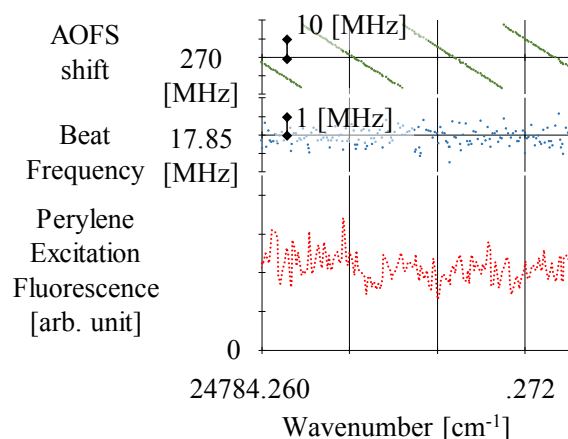


Fig. 2. Observed spectrum.