

学位論文 博士（理学）

広帯域中赤外光源によるサブドップラー分解能分子分光と
光周波数コムを用いた高精度周波数測定

2011 年度

慶應義塾大学大学院理工学研究科

大久保章

主 論 文 要 旨

報告番号	甲 乙 第	号	氏 名	大久保 章
主 論 文 題 目： 広帯域中赤外光源によるサブドップラー分解能分子分光と 光周波数コムを用いた高精度周波数測定				
(内容の要旨) 分光学は、原子や分子の電子振動回転準位構造を解明し、物理学、化学、天文学などの発展に寄与してきた。特に、中赤外領域には分子の基本振動バンドに属する強い吸収線が多数存在し、これらのスペクトルの高分解能分光測定は、物理定数の時間変化や対称性の破れなど分子に現れる量子力学的効果の検証や、中赤外領域の周波数標準の提供、それによる分子種同定、微量ガス検出の精度向上など、基礎科学から応用分野に至るまでその波及効果は大きい。しかし、中赤外領域にはサブドップラー分解能（相対分解能 10^6 以上）の分光に適した狭線幅、高強度、広同調範囲をもつ光源は少なく、限られた波長領域の測定が報告されているだけだった。 本研究では、差周波発生と光共振器を用いて、波長 $3.4 \mu\text{m}$ (88 THz) 帯で同調範囲が 4.3 THz (140 cm^{-1})、スペクトル線幅が 50 kHz 以下の中赤外コヒーレント光源を有する分光計を開発した。光共振器は吸収セルとしても使われ、分子と相互作用する光電場が増強され、実効吸収長も伸びる。このため、多くの吸収線を初めてサブドップラー分解能で測定した。また、国際原子時にリンクした光周波数コムを使って吸収線の絶対周波数を 2.2×10^{-11} の相対不確かさで測定した。 本論文の第1章では、中赤外領域の分子分光と光の絶対周波数測定について概説した。 第2章では、本研究で使われる、飽和吸収分光法、光共振器、周波数変調法と Pound-Drever-Hall 法、光周波数のオフセットロック、光周波数コムによる周波数計測について基本的な理論を述べた。 第3章では、本研究で用いた差周波中赤外光源と光共振器吸収セルについて説明し、開発した分光計の構成と光周波数コムの詳細について述べた。 第4章では、開発した分光計を用いたヨウ化メチル分子 ν_1 バンドのサブドップラー分解能分光について述べた。観測されたスペクトルの分解能は 250 kHz と狭く、多くの超微細分裂を分離した。スペクトルを、 $\nu_1=1$ 状態と $(\nu_2, \nu_6^1)=(1, 2^2)$ 状態間のコリオリ相互作用を考慮して解析し、両振動励起状態の電気四重極相互作用定数をそれぞれ $-1937.06(3) \text{ MHz}$ 、 $-1951.24(12) \text{ MHz}$ 、コリオリ結合定数を $257.6(10) \text{ MHz}$ と決定した。決定した $\nu_1=1$ 状態の電気四重極相互作用定数の不確かさは線幅 1 kHz 以下の He-Ne レーザーを使った先行研究と同程度、コリオリ結合定数は従来の分子定数の不確かさを1桁改善した。また、 $(\nu_2, \nu_6^1)=(1, 2^2)$ 状態の電気四重極相互作用定数を決定したのは本研究が初めてである。 第5章では、光周波数コムを使ったメタン分子 ν_3 バンドの絶対周波数測定について述べた。これまでドップラー分解能の測定しかなかった44本の遷移を含む56本の遷移の測定を行い、 2 kHz の不確かさで遷移周波数を決定した。これは、先行研究の精度を3桁上まわる。 $P(7) F_2^{(2)}$ 遷移の測定値 $88\,376\,181\,600.3(21) \text{ kHz}$ は CIPM 勧告値と不確かさの範囲で一致しており、測定の信頼性が実証された。 第6章では、光周波数コムに安定化した中赤外光源の開発について述べた。光源周波数は約 1 kHz の精度で制御され、今後さらなる高精度高感度の分光測定につながる。 第7章を結論とし、本研究の総括および今後の展望を述べた。				

SUMMARY OF Ph.D. DISSERTATION

School	Student Identification Number	SURNAME, First name
Science and Technology	80945049	OKUBO, Sho
Title Sub-Doppler resolution molecular spectroscopy with a widely tunable mid-infrared source and precise frequency measurement using an optical frequency comb		
Abstract <p>Spectroscopy has contributed to investigations of electronic, vibrational, and rotational energy structures of atoms and molecules and to development of physics, chemistry, and astronomy. Since most molecules have characteristic strong absorption lines of the fundamental vibrational band in the mid-infrared region, sub-Doppler-resolution (SDR, a relative resolution $\sim 10^6$) mid-infrared spectroscopy is important for fundamental physics such as parity violation of chiral molecules and for applications to trace-gas detection. However, a lack of light sources suitable for SDR spectroscopy causes the mid-infrared region unexplored.</p> <p>In this thesis, a 3.4-μm (88-THz) spectrometer with a difference frequency generation (DFG) source and a cavity-enhanced absorption cell (CEAC) has been developed. The DFG source has a tunable range of 4.3 THz, and the spectral linewidth reduces less than 50 kHz by stabilizing the frequency to one of fringes of the CEAC, which also enhances the optical field strength, the effective absorption length, and thereby the sensitivity of the SDR spectrometer.</p> <p>The spectrometer has been applied to record hyperfine-resolved spectra of the ν_1 band of CH_3I with a spectral linewidth of 250 kHz. The analysis taking account of the local Coriolis interaction between the $\nu_1 = 1$ and $(\nu_2, \nu_6') = (1, 2^2)$ states yields the electric quadrupole interaction constants and the Coriolis coupling constant between the states. The wide tunability and high resolution of the spectrometer enable us to carry out such detailed analysis.</p> <p>The spectrometer has also been applied to SDR spectroscopy of the ν_3 band of methane. The absolute frequency of 56 transitions is measured with an uncertainty of 2 kHz, a relative accuracy of 10^{11}, using an optical frequency comb linked to the international atomic time. Among them, 44 transitions are recorded in SDR for the first time, and the accuracy of the transition frequency is improved by three orders of magnitudes in comparison with the previous works. The measured frequency of the $P(7) F_2^{(2)}$ transition is consistent with the CIPM recommendation value within 2.0 kHz, which proves the precision of the frequency measurement system.</p> <p>It has been explicitly demonstrated that the spectrometer is able to provide precise transition frequencies over a wide range, which induces drastical progress in mid-infrared spectroscopy.</p>		