

原子時計精度での超高分解能レーザー分光計測

御園 雅俊

福岡大学理学部応用物理学科

1. 研究のねらい

多原子分子の超高分解能レーザー分光による精密計測の重要性が高まっている。たとえば、環境ホルモン等による環境汚染が深刻な社会問題となっているが、多くの汚染物質については、その光化学的な研究はなされてはならず、分解のメカニズムは未だ不明である。

このような環境汚染物質や生体分子の光化学的な性質を研究するためには、それらの物質の基礎となる基本的な多原子分子の分光学的性質を研究することがきわめて重要である。多原子分子の電子励起状態間の相互作用や解離のダイナミクスは、励起準位の微小なシフトや広がり、分裂等として現れるため、高分解能レーザー分光によってこれらを精密に計測する必要がある。

このような微小な効果の精密な計測において重要となるのが、優れた精度を持つ光波長の目盛、すなわち、波長標準（周波数標準）である。多原子分子の電子励起状態におけるダイナミクスを詳細に研究するためには、従来にない精確さを持つ光周波数の目盛が必要となる。

この光周波数の目盛として有力なのが光周波数コムである。光周波数コムは、図1に示すように、一定の間隔で並んだ櫛型のモード群からなるスペクトルを持つものである。この光周波数コムを利用すれば、優れた精度を持つ分光計測の目盛が得られる。

この光周波数コムのモードを目盛として利用するには、モード間隔 (f_{rep}) と、キャリア・エンベロープオフセット周波数 (f_{CEO}) の安定化が必要となる。本研究では、この安定化の基準として、GPS衛星に搭載されたセシウム原子時計を利用した。セシウム原子時計は、時間の単位「秒」の定義にも使用されている究極の精度を持つものである。セシウム原子時計を自前で用意せずに、GPS衛星から送られてくる信号を利用したため、安価にシステムを構成することが可能となった。また、精度の高い基準器ほど校正が困難になるが、GPS衛星に搭載されているセシウム原子時計は常に校正されているので、本研究で得られるスペクトルも常に最高の精度で校正することができる。このようにして、原子時計から光周波数の正確な目盛を得ることができる。

分光の対象は、ナフタレン等の多原子分子である。このような分子の電子励起状態では、項間交差や一重項状態間の相互作用など、興味深い現象が観測されている。多原子分子の中ではシンプルな分子を研究することで、生体分子や環境汚染物質など、より複雑な分子の中で起こっている基礎的な過程を研究することが可能となる。

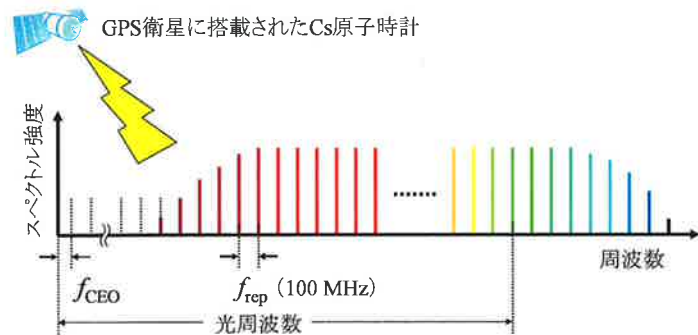


図1. 光周波数コムのスペクトル

2. 研究成果

(1) 超高精度な光周波数の目盛：光周波数コム

超高分解能レーザー分光のための光周波数の目盛として、光周波数コムを独自に設計・開発した。製作した光周波数コムの全景を図2に示す。(a)は制御部、(b)は光学系である。制御部のGPS受信機でGPS衛星からの10 MHz基準信号を受信し、これを分配増幅器で分配した。とくに、制御部最下にあるシンセサイザーをこの基準信号に安定化し、 f_{rep} や f_{CEO} の安定化に利用している。光

学系は主に超短パルスモード同期チタンサファイアレーザー、フォトニック結晶ファイバー、自己参照系の3つの部分からなる。

超短パルスモード同期チタンサファイアレーザー 本研究では、パルス幅約 20 fs、繰り返し周波数 100 MHz の、超短パルスモード同期チタンサファイアレーザーを製作した。励起は、チタンサファイアレーザーの励起光源としては最も安定な $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ レーザー (Coherent, Verdi-V5) により行った。光周波数コムでは周波数安定度が問題となるため、チタンサファイアレーザーは安定性に配慮した設計とした。とくに、レーザー共振器中には、利得媒質であるチタンサファイア結晶以外は入れない設計とし、分散補償のためにはチャープミラーを使用した。また、チタンサファイア結晶やそのマウントを温度制御に配慮した設計とした、光学部品のマウントを振動の影響を受けにくい構造とした等の点に配慮した。

フォトニック結晶ファイバー チタンサファイアレーザーの出力光をフォトニック結晶ファイバーに通し、そのスペクトルを、波長 500 nm から 1200 nm まで、1 オクターブ以上にわたって広げた。また、入射光とファイバー入力端の位置関係を一定に保つシステムを開発し、結合効率を一定に保てるようにした。

自己参照系 キャリア・エンベロープオフセット周波数 (f_{CEO}) を検出し、安定化するシステムである自己参照系を製作した。この系によって、 f_{CEO} を 40 dB の高い SN 比で検出し、安定化することに成功した。また、モード間隔 (f_{rep}) については、チタンサファイアレーザー出力をフォトダイオードで測定することによって、容易に 70 dB を超える高い SN 比のビートが得られ、安定化に成功した。

以上に示したように、光周波数コムを設計・製作してその安定化を行い、超高分解能分光計測のための光周波数の目盛として安定に稼働させることに成功した。

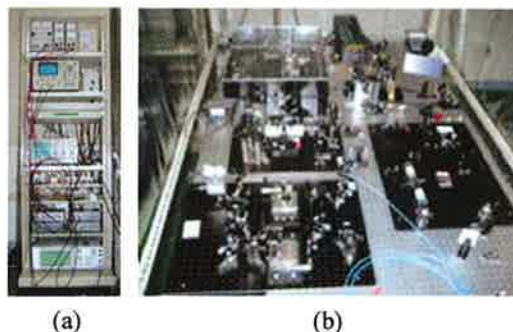


図2. 製作した光周波数コム (a)制御部 (b)光学系

(2) ドップラーフリー二光子吸収分光システム

気体の超高分解能分光を行う際に分解能を制限する大きな要因のひとつとして、ドップラー効果による周波数シフトが挙げられる。本研究では、この影響を受けない分光システムである、ドップラーフリー二光子吸収分光システムを開発を行った。製作したシステムを図3に示す。

この分光法は、2枚のミラーを向かい合わせたファブリー・ペロー型光共振器内にサンプルセルを設置し、互いに進行方向の異なる二つの光で分子を励起することによって、ドップラー効果を相殺する。光共振器は、フィネスがおおよそ 100 となるように、すなわち、共鳴時に光強度が 100 倍に増強されるように設計した。測定中に常に共鳴状態が保たれるようにするための安定化システムや、サンプルからの蛍光を計数するシステムを製作した。これらのシステムはすべてコンピュータで制御されるが、そのプログラムも本研究において開発を行った。以上のように、ドップラーフリー二光子吸収分光システムの開発に成功した。



図3. ドップラーフリー二光子吸収分光システム

3. 主な論文

- M. Okubo, J. G. Wang, M. Baba, M. Misono, S. Kasahara, and H. Kato, "Doppler-free two-photon excitation spectroscopy and the Zeeman effects of the $S_1^1B_{1u}(v_{21}=1) \leftarrow S_0^1A_g(v=0)$ band of naphthalene-d₈," J. Chem. Phys. **122**, 144303 (2005).