

液体水素ドロップレットにおける誘導ラマン散乱

白田研究室 9614014 伊丹 規彦

1. はじめに

液体ドロップレットとは、水道の蛇口を少しだけひねることで、1 滴、1 滴落ちるしずくのように球状の液体のことをいう。この液体ドロップレットは液体である為、表面が滑らかで密度が均一であるということ、また媒質と外部との境界における内部での全反射を繰り返し、光の場を狭い空間に閉じ込める、WG モードの利用により高い Q 値を持つ共振器になりうるということが知られている。

一方、液体水素は水素分子からなる分子性結晶で、振動状態だけでなく、回転状態も量子化されている、振動ラマン遷移の線幅が狭い、真空紫外領域まで吸収がない、低温である為、ヘリウム、ネオン、オルソ水素や重水素などの水素以外の不純物が含まれないなどの特徴を持っている。

このような特徴を持つ液体水素のドロップレットを用いた共振器は、WG モードにより真空紫外領域まで高い Q 値を持つ共振器として振舞うことが予想され、我々の研究室では液体水素ドロップレットを用いた誘導ラマン散乱の研究を行なっている。

図 1 は、水素分子の基底状態における SRS 過程である。パンプ光で励起されることによって、振動及び回転のエネルギーだけシフトした信号が得られる。液体水素の振動ラマンシフトは、 4151cm^{-1} 、回転ラマンシフトは、 353cm^{-1} である。

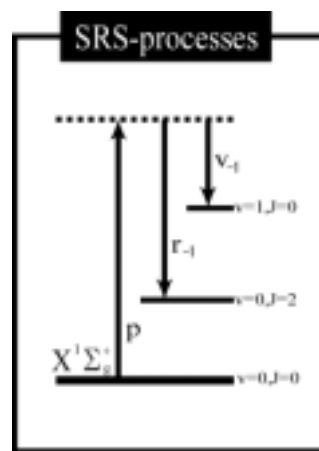


図 1

2. 研究の背景と目的

次に、本研究に至るまでの SRS 過程の研究の背景について説明する。1999 年に励起光 532nm を用いた液体水素ドロップレットにおける誘導ラマン散乱の実験において、Q 値は 10^9 以上で、回転によるスペクトルがストークスサイドは 12 次、アンチストークスサイドは 2 次までの発生が確認され、我々は長波長側であるストークスサイドにスペクトルが強く発生していることに注目した。

本研究では励起光に紫外光を用いることで、より短波長である紫外領域から近赤外領域における液体水素ドロップレットにおける誘導ラマン散乱光の発生を確認することを目的としている。

3. 実験

図 2 が実験のセットアップである。液体水素ドロップレットは真空中に保たれたクライオスタット内で作製する。励起光は波長 200nm のレーザー光を用いる。 200nm は Nd:YAG レーザ

一の第 4 高調波である 266nm と、波長 832nm の OPO レーザー光で、非線形光学結晶 BBO を用いた和周波混合過程を利用し発生させる。266nm の光は Nd:YAG レーザーの第 2 高調波 532nm で、非線形光学結晶 CLBO を用いた 2 倍波高調波発生過程により得る。測定は 3 方向で行ない、入射光と垂直な 2 方向でスペクトルと時間波形を可視光用と真空紫外光用の 2 台の分光器で測定し、入射方向ではガラスフィルターを通し、CCD カメラを用いて発光の様子をモニターする。

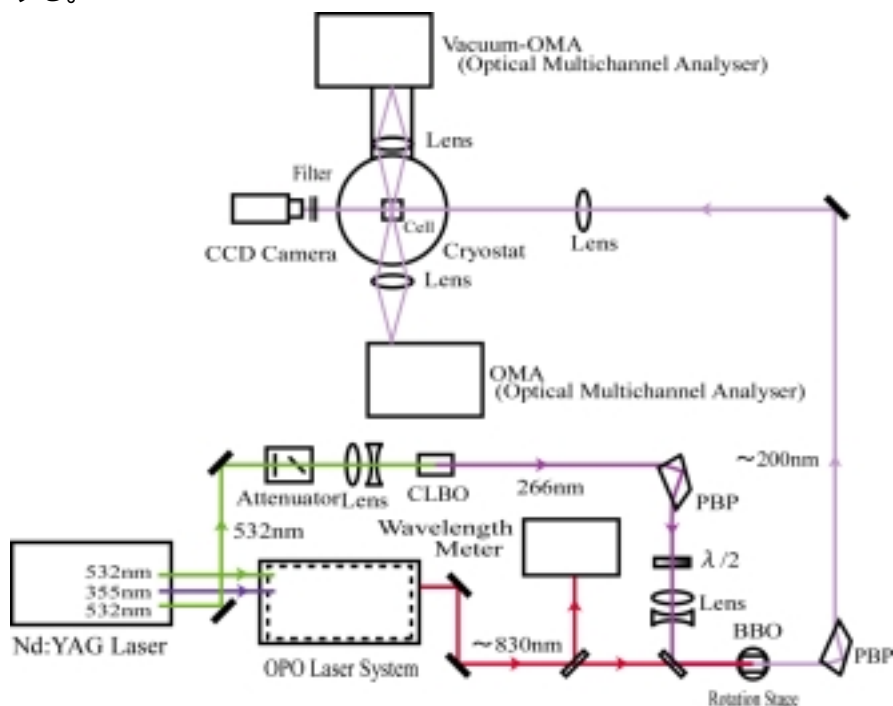


図 2

4. 液体水素ドロップレット作製システム

図 3 が真空クライオスタット内にある、液体水素ドロップレット作製システムの概略図である。主な装置はコンバーター、コンテナ、光学セル、4 K に保たれたステージからなっている。まず水素ガスをコンバーターに送り込み、金属触媒を用いることでパラ水素に変換する。その後回収したパラ水素を 14 から 15K に保たれた液体水素コンテナに送る。さらにコンテナのヒーターの温度を上げ、発生した蒸気圧を利用することで液体水素を光学セルに送る。光学セルには、外径 360 μ m の熔融石英製のキャピラリ - が垂直に立っており、このキャピラリ - に表面張力によって吊り下げることで液体水素ドロップレットを作製する。図 4 はコンテナのヒーターの温度を上げ、発生した蒸気圧を利用したドロップレットのサイズの変化である。ヒーターの温度を調整することで、ドロップレットの大きさを直径 1 mm 程度に保つ。このようにして作製したドロップレットの赤道の端に励起光を入射させる。

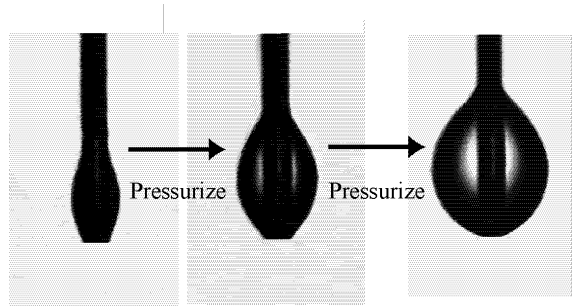
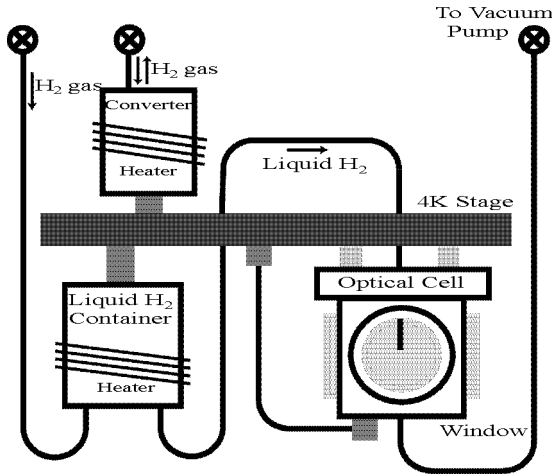


図 4

図 3

5. 実験結果

図 5 が励起光 200nm を左側の淵に入射させた際、ドロップレットが発光した様子である。左側が強く光っているのは、ドロップレットの中で 1 方向に光が閉じ込められているということが考えられる。

図 6 が励起光 200nm により得られた液体水素ドロップレットにおける誘導ラマン散乱光のスペクトルである。全てのスペクトルが、振動励起状態への遷移 $Q_1(0)$ 及び、回転励起状態への

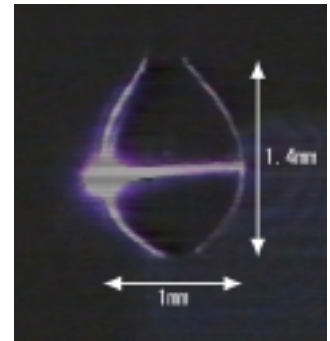


図 5

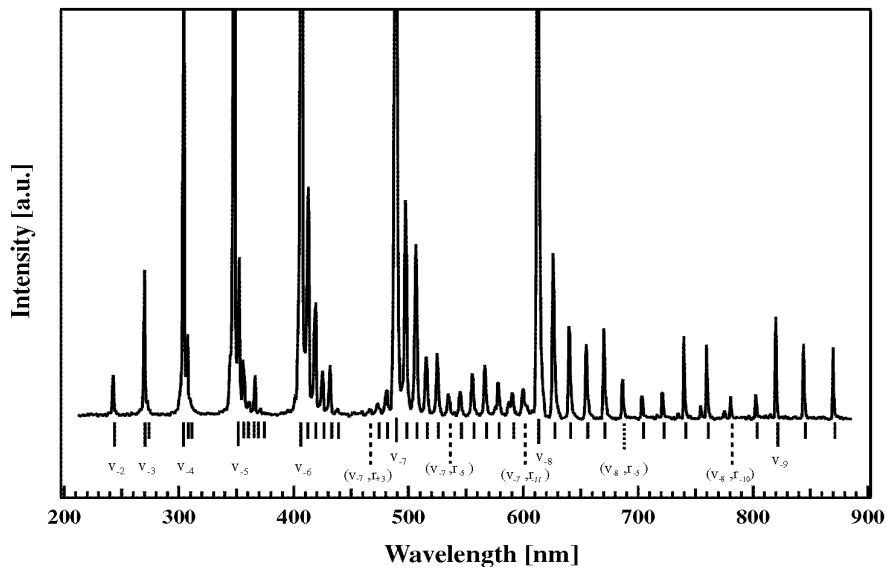


図 6

遷移 $S_0(0)$ により生じたサイドバンドとして指定される。 $Q_1(0)$ に対しては、Stokes の 2 次から 9 次まで、 $S_0(0)$ に対しては Anti-Stokes の 3 次から Stokes の 11 次までの多次にわたるサイドバンドが発生していることがわかる。

図 7 が励起光 266nm による閾値直上における SRS のスペクトル、図 9 がそれに対応する 1st Stokes 光の時間波形である。本来であれば、励起光に 200nm を用いるべきだが、この波長では真空紫外領域に近接しており、出力を安定にすることが非常に困難であったため、266nm を励起光として用いた。図 9 の 1st - Stokes 光の時間波形から Q 値を求めることができる。 Q 値は共鳴周波数 と、1st - Stokes 光の時間波形のピーク値が $1/e$ になる値 を用い、 $Q = \omega \tau$ として定義されており、このときの Q 値は 2.6×10^8 であった。

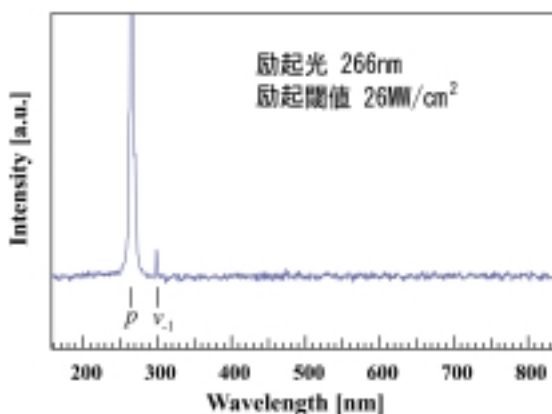


図 7

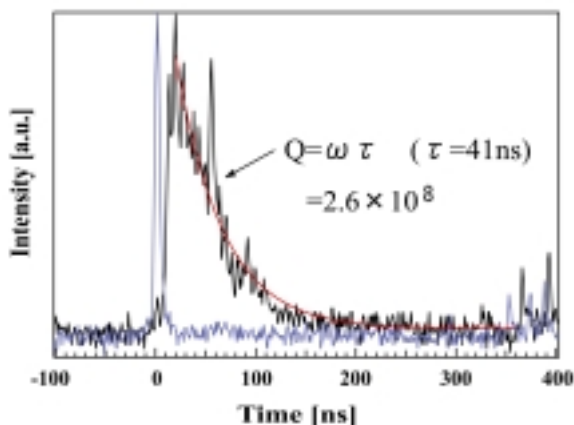


図 8

6.まとめと今後の課題

本研究において、励起光 200nm を用い、液体水素ドロップレットにおける誘導ラマン散乱光の発生を試みた。得られたスペクトルから、振動励起状態への遷移 $Q_1(0)$ に対しては Stokes の 2 次から 9 次まで、回転励起状態への遷移 $S_0(0)$ に対しては Anti-Stokes の 3 次から Stokes の 11 次までと、紫外領域から近赤外領域にわたる、超広帯域の誘導ラマン散乱光の発生が確認できた。

また、励起光 266nm における 1st - Stokes 光の時間波形から Q 値を求めた。

今後の課題としては、振動、回転に共鳴した 2 波長を入射することで、発生サイドバンドの制御を試みる。これにより例えば、ゲインの高い振動のスペクトルを押さえ、回転のスペクトルを強く発生させることができる可能性がある。