

極低温下における水素分子の誘導ラマン散乱

電子物性工学専攻 白田研究室 石井 総一

1. はじめに

本研究室では極低温における水素を非線形光学媒質として用い、その非線形光学過程について研究を行っている。そのテーマのひとつとして、私のチームでは液体水素を微小球共振器として用い、誘導ラマン散乱(SRS : Stimulated Raman Scattering)を測定した。

液体水素は Whispering Gallery Mode(WG モード)により高いQ 値を持つ。また液体水素は量子液体と呼ばれ、孤立した水素分子(原子)に匹敵するほど光学遷移の線幅が狭い。このような特徴を持つ液体水素を液滴(ドロップレット)にすることで非常に高いQ 値を持つ共振器が得られる。微小球共振器は、球のサイズが大きくなるほど共振器のQ 値が高くなるがモード間隔が狭くなってしまふ。そのため球のサイズをむやみに大きくすることはできない。しかし非常に線幅の狭い液体水素のドロップレットを用いることで、このジレンマが解決できる。たとえば、高いQ 値を得るために球のサイズを大きくしながら、発光の線幅内に共振器の共鳴モードを唯一つにすることが不可能ではない。

2. 液滴作成ドロップレットの作成

液体水素作成システムを図1に示す。この装置はコンバーター(Converter) , ホットセル(Hot cell),光学セル(Optical cell)のパーツよりなる。また光学セルの上部にはリザーバー(Reservoir)が組み込まれている。図のうように各パーツは液体ヘリウム温度 4.2K の銅製のステージ(4K ステージ)に接続し熱的に接触させてある。この冷却効果と各パーツに取り付けたヒーターによって温度を調整する。この装置はさらに窒素シールドとステンレスのカバーをかぶせ、クライオスタットを真空にすることで外部と熱的に独立させる。

まずコンバーターに気体のノーマル水素を流し込む。ノーマル水素は液化され、酸化鉄触媒と接触することでパラ水素(>99.9%)にコンバージョンされる。オルソ水素とパラ水素はお互いに不純物として振る舞うので、できるだけオルソ水素濃度を低くする。コンバージョンは温度が低い環境で行うほどオルソ水素の濃度が下がるので、水素の3重点13.8Kより少し高い温度14Kでおこなう。パラ水素はホットセルとリザーバーに蓄えられる。

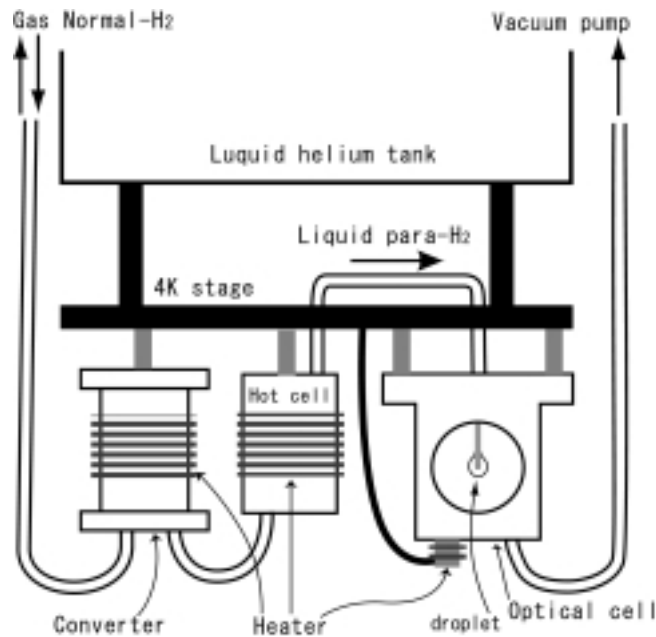
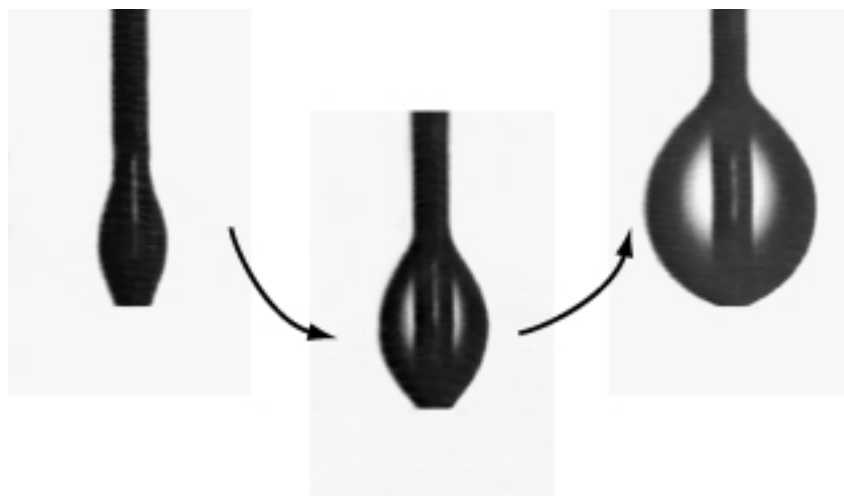


図 1：液体水素液滴作成装置の概略図

さらにリザーバーに取り付けたキャピラリーを通して、光学セル内に液体パラ水素を注入する。これはホットセルと光学セル内に生じさせた圧力差を利用した。ドロップレットはキャピラリーの表面を表面張力によって濡らしながら、キャピラリーの先端につりさがった。このときの光学セル内の圧力は60Torr程度である。キャピラリーの外形は $20\mu\text{m}$ と $363\mu\text{m}$ 、ドロップレットの大きさは赤道直径が $0.1\text{mm} \sim 2.0\text{mm}$ （下図）である。



3 . 光学系

入射光 532nm

光学セル内で作成した液体水素に励起光を絞り入射する。図 2 は入射光 532[nm]に対する、実験配置の概略図である。入射光は Q-switch Nd:YAG レーザーの第二高調波 532[nm]を用いた。パルス幅は約 10[ns]である。入射光強度はアッテネーターを用いて調整する。ポンプ光はドロップレットの赤道端の位置に入射させ、その位置で焦点を結ぶように $f=300$ [mm]のレンズで集光した。ビーム径は約 $70[\mu\text{m}]$ であった。図のように測定は 3 方向から行った。入射光に垂直な方向では OMA でスペクトルを、分光器と PMT の組合せによって時間波形を測定した。平行な方向では CCD Camera でドロップレットの様子を観察した。

入射光 266nm

532[nm]のときと同様にして、光学セル内で作成した液体水素に励起光を絞り入射する。実験配置は図 2 のアッテネーターの後ろに非線形光学結晶 BBO を置いたものである。入射光は Q-switch Nd:YAG レーザーの第二高調波 532[nm]を非線形光学結晶 BBO に入射させ、2 倍波 266[nm]を発生させる。パルス幅は約 8[ns]である。焦点でのビーム径は約 $130[\mu\text{m}]$ であった。

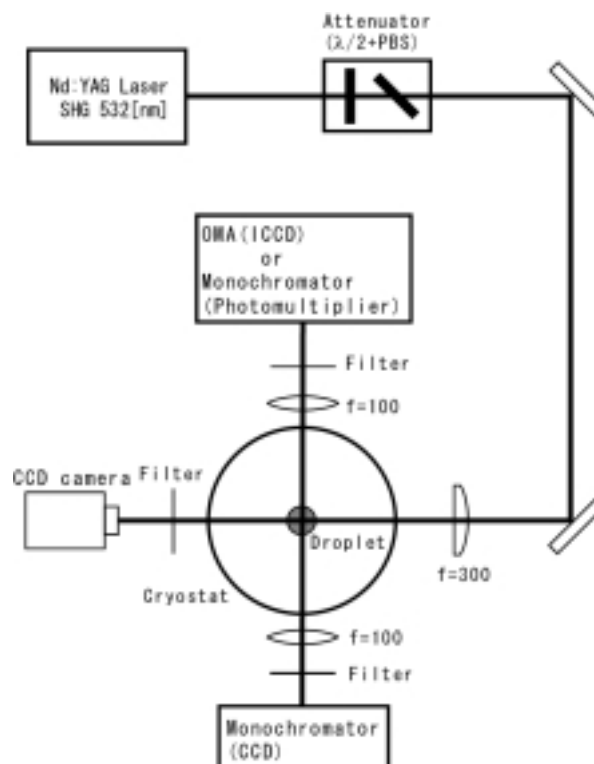


図 2 : 光学系 (532nm)

4. 測定結果

得られた時間波形は図 3、4 となる。図 3、4 はそれぞれ、入射光 532[nm]、266[nm]の時のものである。時間波形測定ときは共に入射強度は閾値直上であり、入射光を元にした純振動ラマン遷移の 1st stokes 光以外は観測されなかった。入射光 532[nm]のときこれを元にした純振動ラマン遷移の 1st stokes 光 683[nm]は、図 3 のフィッティングカーブより緩和時間が 902[ns]と得られる。このとき共振器の Q 値は 2.5×10^9 になる。入射光 266[nm]のときこれを元にした純振動ラマン遷移の 1st stokes 光 299[nm]は、図 4 のフィッティングカーブより緩和時間が 660[ns]と得られる。このとき共振器の Q 値は 4.2×10^9 になる。

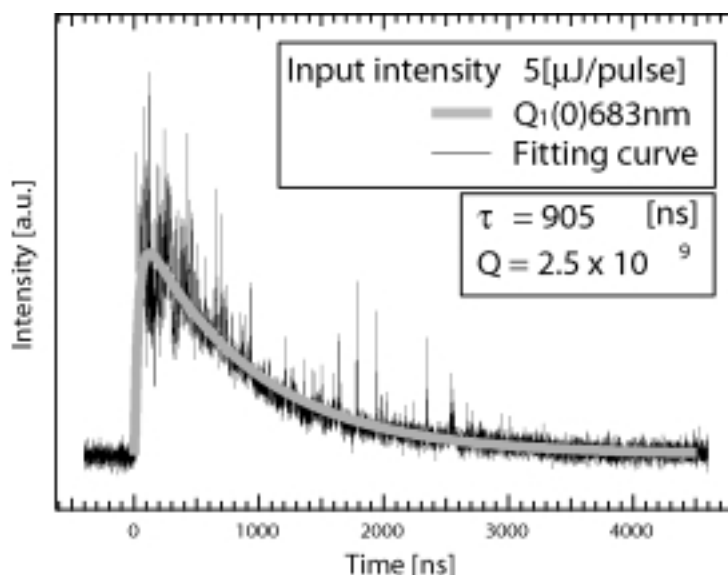


図 3 : 683 [nm] の時間応答

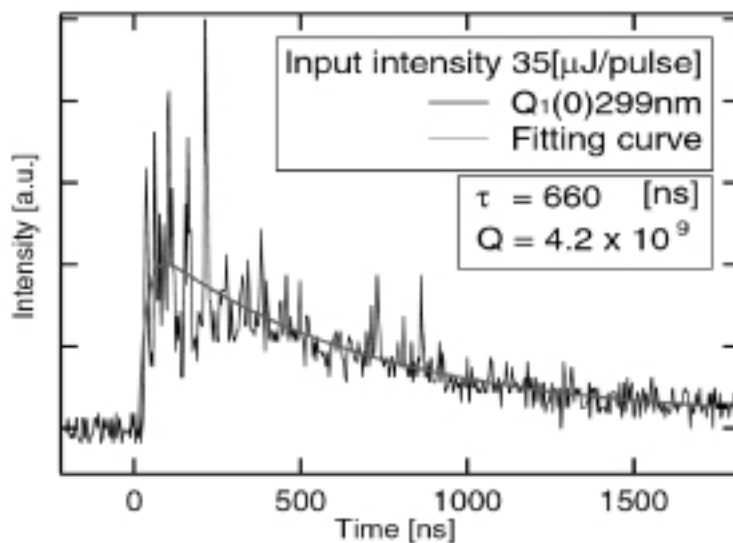


図 4 : 299 [nm] の時間応答

次に図5に入射光 532[nm]のときのスペクトルを示す。このときの入射光強度は 110[μJ]であり、閾値の 20 倍以上も大きい値である。よって、多次にわたる誘導ラマン散乱が観測された。 V_0 が入射光で、これを元にした回転ラマン遷移がストークス側に 16 次 (図の (V_0, r_{-16}))、アンチストークス側に 5 次 (図の (V_0, r_{+5})) まで観測できた。さらに入射光を元にした振動ラマン遷移がストークス側に 1 次 (V_{-1})、アンチストークス側に 1 次 (V_{+1}) を観測できた。この V_{-1} 、 V_{+1} を元にして回転ラマン遷移のストークス光、アンチストークス光が発生している。しかし、さらに多くのラマンサイドバンドが発生していると考えられる。例えば低波長側では (V_{+2}, r_{-2}) の様に、 V_{+2} を元にした回転ラマンサイドバンドが観測されている。したがって、観測されていないが V_{+2} (入射光を元にした振動ラマン遷移で 2 次のアンチストークス光) が発生しているはずである。今回観測できなかったのは、測定器がこれ以上の波長領域を観測できなかったためである。

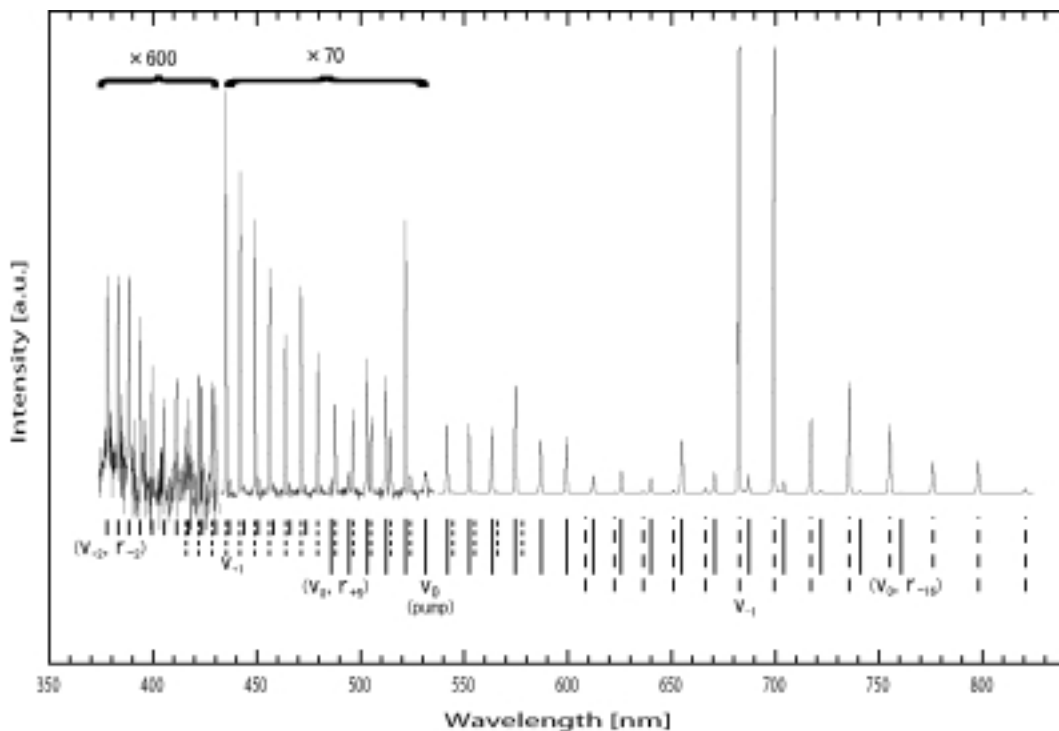


図 5 : スペクトル (入射光 532nm)

5. まとめ

液体水素ドロップレットを用いた誘導ラマン散乱の測定を行った。入射光 532[nm], 266[nm] を励起光とする誘導ラマン散乱の測定では表 1 の様な Q 値が得られた。

表 1 : 誘導ラマン散乱の Q 値

測定波長[nm]	緩和時間 [ns]	Q 値
683	902	2.5×10^9
299	660	4.2×10^9

このように可視・真空紫外領域で Q 値が 10^9 以上という非常に大きな値である。さらに多次にわたる振動・回転の誘導ラマン遷移を観測できた。励起光 532[nm] において、最大で振動ラマン遷移はアンチストークス側に 2 次, ストークス側に 1 次、回転ラマン遷移はアンチストークス側に 5 次, ストークス側に 16 次も発生した。以上から液体水素ドロップレットが非線形光学の探求に非常に有望であるとわかる。

6. 今後の展開

液体水素ドロップレットを用いて実験を行ってきた。今後の展開としては中空ファイバーを用いた実験が考えられる。これは、ドロップレットを内径 100 μm 、長さ 20cm 程度の中空ファイバーに置き換えて実験を行う。中空ファイバー内には非線形光学媒質として水素を満たす。このとき水素は液体だけではなく固体、気体においても実験が容易である。