

# 固体水素の低周波モードの高感度高分解能分光法の開発

電子物性工学専攻 白田研究室 小池 直樹

## 1 序論

我々の研究室では、固体水素を媒質として用いた非線形光学の研究を行っている。その中のテーマの1つに分光学的研究が挙げられ、これまでに、固体水素のコヒーレントブリルアン分光の計測を行ってきた。これにより、固体水素の基礎データが得られ、また作製した結晶の質の評価を行うことができる。さらに本研究で新たに結晶の質の評価と、また純粋に  $Q_1(0)$  遷移の情報を得るために、固体水素のコヒーレントラマン分光の計測を行った。

本研究の目的は、これらの高感度高分解能化した分光システムを開発し、計測を行うことにある。

## 2 固体水素のコヒーレントブリルアン分光

我々が用いたコヒーレントブリルアン分光は、OHD-BIKES(Optically Heterodyne Detected-Brillouin Induced Kerr Effect Spectroscopy)と呼ばれるものであり、ポンプとプローブ光を結晶に対向に入射させ、ポンプとプローブ光の周波数差が媒質のブリルアンシフトに一致したときにポンプ光により複屈折が誘起され、プローブ光の偏光が変化する。この偏光の変化をヘテロダイン方式で検出する分光法である。エネルギースキームを図1に示す。ブリルアンシフトは、通常  $1\text{cm}^{-1}$  以下と大変小さいものとなっている。

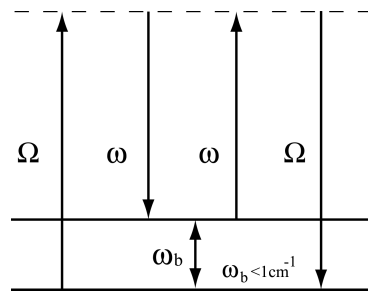


図1 エネルギースキーム

### 2.1.1 初期に行った実験

図2に初期に行った固体水素のOHD-BIKESの実験のセットアップを示す。プローブ光、ポンプ光ともに発振波長780nmの半導体レーザーを用いている。プローブ光は、リトロー配置のグレーティングにより外部共振器を組み、スペクトル線幅の狭窄化と発振周波数の制御を行っている。ポンプ光は、外部共振器を組んだ半導体レーザーと高出力な半導体レーザーを用い、注入同期法により、スペクトル線幅が狭く周波数が安定で、なおかつ高出力な光源となっている。周波数の掃引はプローブ光のグレーティングの角度を決めるピエゾ素子に電圧を印加するとともに、注入電流を変化させることで行い、最大で20GHzの連続掃引が可能となっている。変調は、ポンプ光の注入電流に変調をかける周波数変調で行い、変調周波数は20kHzである。また偏光はプローブ光が垂直な直線偏光、ポンプ光が円偏光となっている。

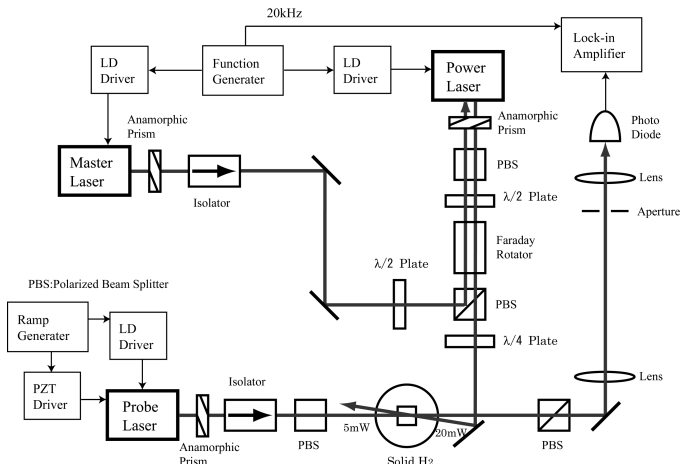


図2 初期に行った固体水素のOHD-BIKESの実験のセットアップ

### 2.1.2 実験の結果

図3に観測したスペクトルを示す。左図が全域、右図がストークスサイドのスペクトルの拡大図になる。これより、構造の無いスペクトルで単一の遷移となっていることがわかる。また、プリルアンシフトは5.7GHzで、スペクトルの半値全幅は測定の度に5~10MHzと揺らいでいた。これは2つの光源ともにフリーラン計測を行っており、それぞれに2MHzの周波数揺らぎがあるためであると考えられる。

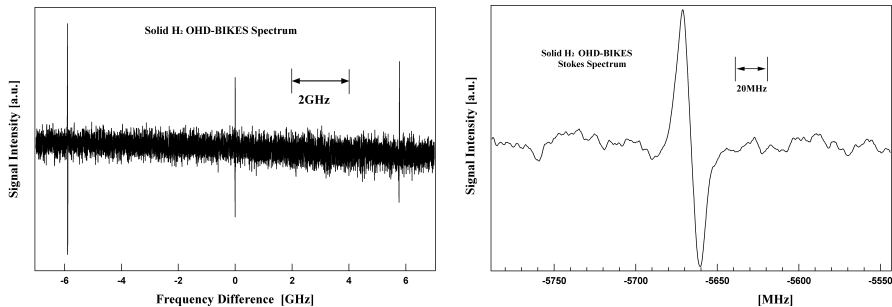


図3 固体水素のOHD-BIKESのスペクトル

### 2.1.3 ここまでのまとめと課題

初期に行った固体水素のOHD-BIKESの計測では、光源の周波数揺らぎのために半値全幅が5~10MHzとなり、線幅の特定が行えなかった。また、観測したのは音波の縦波のスペクトルであり、横波のスペクトルは観測できなかった。そこで光源の装置幅の低減のために、Rbの飽和吸収線に周波数ロックをすることと、音響光学変調器(AOM)を用いS/N比の向上を図る、という課題が挙げられる。

### 2.2.1 高感度高分解能化した測定

図4に高感度高分解能化した実験のセットアップを示す。このセットアップ

では、プローブ光に前回の実験でパンプ光として用いた注入同期半導体レーザー、パンプ光に発振波長 780nm のチタンサファイアレーザーを用いた。また、プローブ光はマスターレーザーを Rb の吸収線に周波数ロックを行い、装置幅の低減を行っている。周波数の掃引は、チタンサファイアレーザーの掃引で行い、強度一定で最大 20GHz の連続掃引が可能となっている。また、変調は AOM の一次回折光を利用する強度変調で行い、変調周波数は 100kHz である。偏光はプローブ光が直線偏光、パンプ光が円偏光となっている。

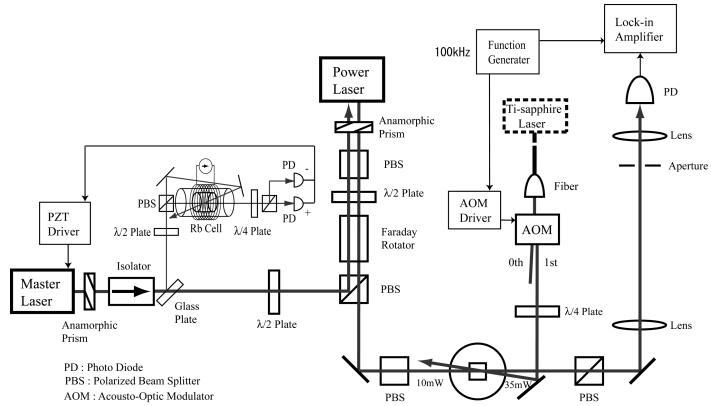


図 4 高感度高分解能化した実験のセットアップ

### 2.2.2 実験の結果

図 5 に観測したストークスサイドのスペクトルを示す。3つのスペクトルが確認でき、どれも構造の無いスペクトルで単一の遷移となっていることがわかる。ブリルアンシフトは、それぞれ 5.8、6、6.6GHz となっている。計算より 3つのスペクトルとも音波の縦波によるものであり、C 軸と音波の間の角度が  $0^\circ$  付近に 1本(6.6GHz)、  $90^\circ$  付近に 2本(5.8、6GHz)でているものと考えている。また、 $90^\circ$  付近のスペクトルの間隔は約 200MHz であり、これを角度に換算すると  $35^\circ$  に対応している。つまり、この間に  $35^\circ$  の C 軸のずれが存在することになる。スペクトルの半値全幅は、どれも 10MHz となっている。さらに、S/N 比は前回の周波数変調方式のときよりも改善が行えたといえる。

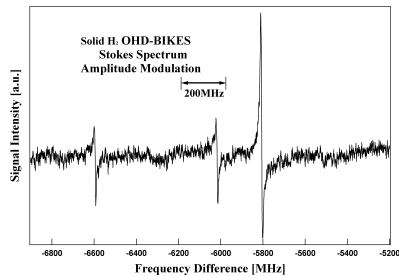


図 5 観測したスペクトル

### 2.3 まとめと課題

AOM を用いることで、周波数変調方式よりも S/N 比の改善が行え、また Rb の吸収線に周波数ロックすることにより光源の装置幅を行った。この 2つにより、高感度高分解能化を行うことができた。しかし、音波の横波のスペクトルは観測できなかった。また、ストークスサイドに 3つのスペクトルを観測した。課題としては、結晶の C 軸の向きを事前に確認してから実験を行い、角度依存性を測定し弾性定数を決定するということが挙げられる。今現在、こ

の実験が系統的に行われている。私はここでブリルアンの計測から離れ、新たに固体水素のコヒーレントラマン分光のシステムを開発し、計測を行った。

### 3 固体水素のコヒーレントラマン分光

我々が用いたコヒーレントラマン分光は、OHD-RIKES(Optically Heterodyne Detected-Raman Induced Kerr Effect Spectroscopy)と呼ばれるものであり、パンプとプローブ光の周波数差が媒質のラマンシフトに一致したときにパンプ光により複屈折が誘起され、プローブ光の偏光が変化する。この偏光の変化をヘテロダイン方式で検出する分光法である。我々が対象とするラマンシフトは固体水素の  $Q_1(0)$  遷移である。

#### 3.1.1 OHD-RIKES

図6に固体水素のOHD-RIKESの実験のセットアップを示す。このセットアップでは、プローブ光に発振波長852nmの外部共振器半導体レーザー、パンプ光に発振波長1319nmのLD励起YAGレーザー、いわゆるMISERを用いている。周波数の掃引は、プローブ光のグレーティングの角度を決めるピエゾ素子に電圧を印加することでを行い、最大で5GHzの連続掃引が可能となっている。変調は、AOMの1次回折光を利用する強度変調で行い、変調周波数は100kHzである。また、偏光はプローブ光が直線偏光、パンプ光が円偏光となっている。

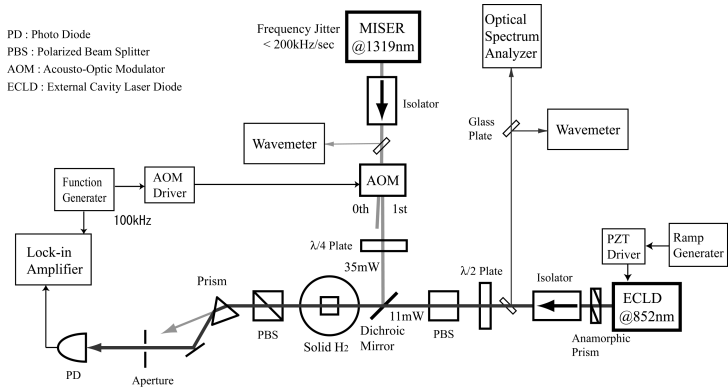


図6 固体水素のOHD-RIKESの実験のセットアップ

#### 3.1.2 実験の結果

図7に観測したスペクトルを示す。BIKESのスペクトルと比べても非常に高いS/N比で観測できていることがわかる。スペクトルの半値半幅は約7MHz、ラマンシフトは  $4149.646\text{cm}^{-1}$  となっている。また、高周波数側に構造らしきものが観測されていることがわかる。結晶の位置を変え

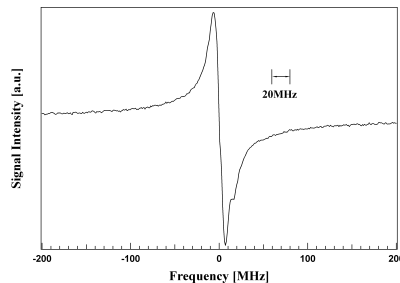


図7 OHD-RIKES スペクトル

ると、もっと明らかに分裂したり、くっついたりもする。今のところこの構造が何によるものかはわかっていない。圧力などの状態の異なる結晶が複数存在するのか、あるいは、もっと他の理由によるものなのかもしれない。

図8に、固体水素の温度を変化させたときのスペクトルの変化の様子を示す。これより、温度を上げるほどスペクトルの線幅とラマンシフトの値が増加していき、スペクトルの強度が減少していくことがわかる。

図9に、スペクトルの線幅とラマンシフトの温度依存性のプロットを示す。これより、低温では、線幅が一定値に収束していく様子がみとれる。しかし、光源の装置幅がでているのかもしれない。ラマンシフトについても、低温では一定値に収束していく様子がみとれる。

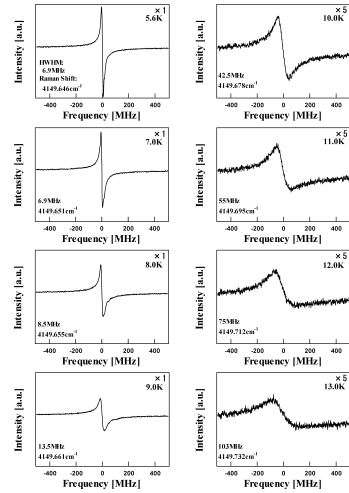


図8 スペクトルの温度依存

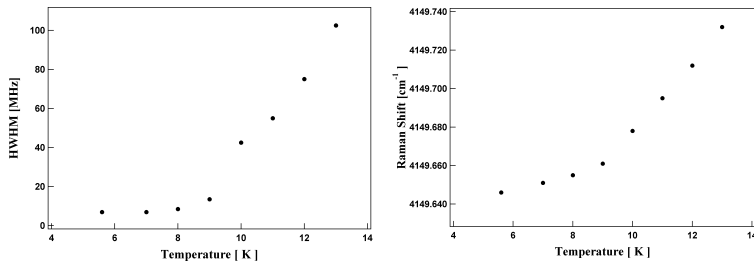


図9 スペクトルの線幅とラマンシフトの温度依存性

### 3.2 SRS

次に、OHD-RIKES の計測と併せて SRS(Stimulated Raman Spectroscopy) の計測も行ったので報告する。図10に SRS の概略図を示す。OHD-RIKES のセットアップからクロスポラライザーを取り去り、パンプ光とプローブ光の直線偏光の向きを同じにして結晶に入射させるだけで SRS の計測が行えることとなる。

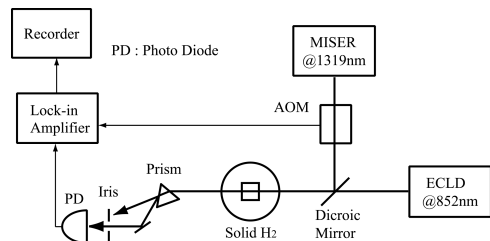


図10 SRS 概略図

図11に、観測したスペクトルを示す。こちらにも構造が観測されていることがわかる、やはり結晶の位置を変えると、もっと明らかに分裂したりくっついたりもする。大きい方のスペクトルに着目するとガウス型のスペクトルとなっていることがわかる。ガウス型になる理由としては、光源自体の周波数揺らぎ

がガウス型の周波数分布をもっているためか、結晶が大きく2つに分かれていて、その中に小さな構造がたくさんあり、その不均一幅がでているのではないかと考えている。

図12に固体水素の温度を変化させたときのスペクトルの変化の様子を示す。やはり、温度を上げるほどスペクトルの線幅とラマンシフトの値が増加し、スペクトルの強度が減少することがわかる。また、スペクトルの形がガウス型から徐々にローレンツ型に変化していく様子も見てとれる。図13に、スペクトルの線幅とラマンシフトの温度依存性のプロットを示す。こちら、低温ではスペクトルの線幅とラマンシフトの値が一定値に収束していく様子が見てとれる。しかし、線幅については、先ほども述べたように光源自体の揺らぎ、あるいは結晶の状態による不均一幅がでているのかもしれない。

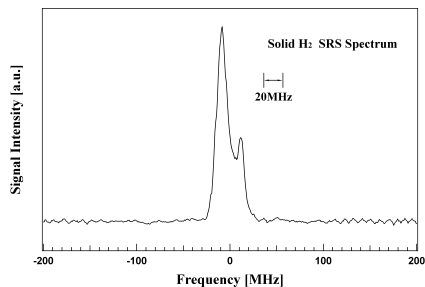


図11 SRS スペクトル

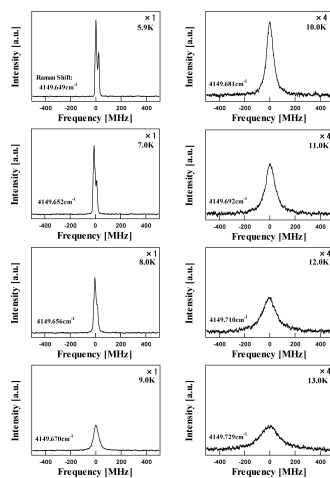


図12 スペクトルの温度依存

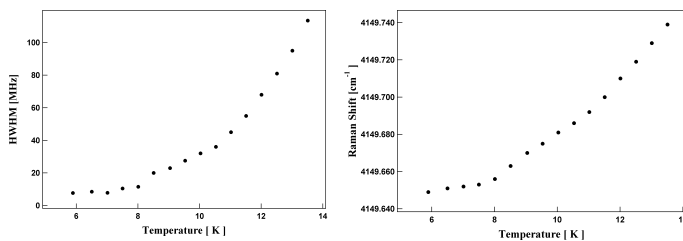


図13 スペクトルの線幅とラマンシフトの温度依存性

### 3.3 まとめと課題

高感度高分解能な固体水素の OHD-RIKES と SRS の計測を行い、それぞれのスペクトルに構造を観測した。また、温度依存性の測定も行った。今後の課題としては、スペクトルの構造の特定を行うということ、また、半導体レーザーの装置幅の低減のために、高安定な共振器に周波数ロックをすること、さらに、3重点を超える相転移での測定も計画している。

## 4 本研究の総括

最後に本研究の総括として、高感度高分解能の固体水素の分光システムを開発し、計測を行うことができたといえる。