

「固体水素の高分解能ラマン損失分光」

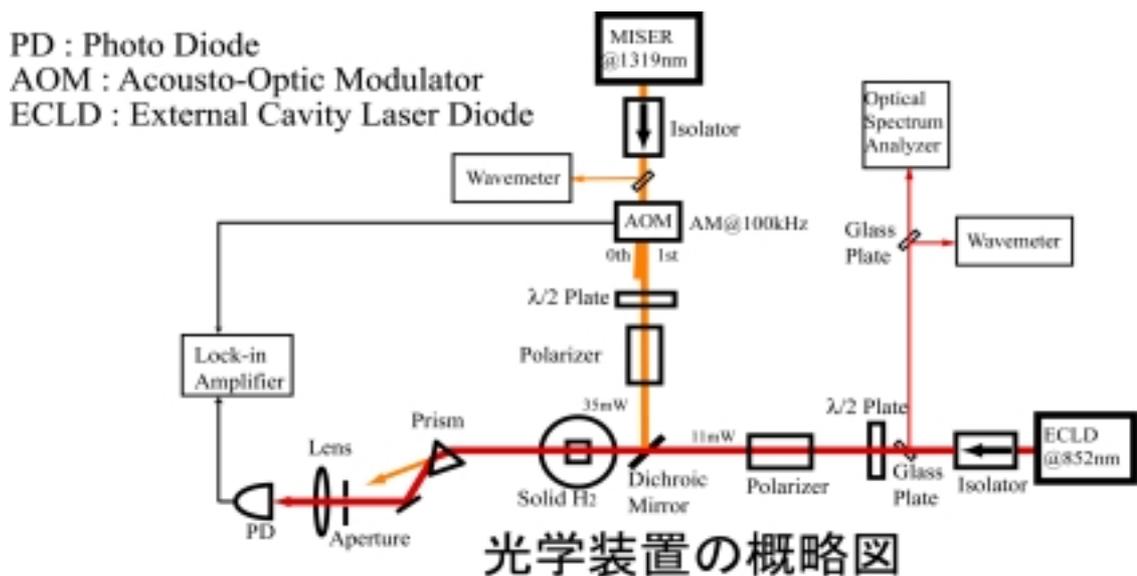
電気通信大学電気通信学部電子物性工学科

白田研究室 原 健人

1.目的

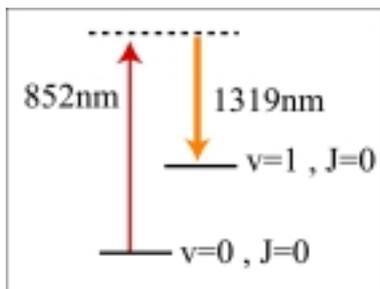
我々の研究室では、固体水素を用いた非線形光学研究を行っています。
一般に凝縮系の分光スペクトルには、励起状態と周囲の環境との相互作用の情報が含まれているはずですが、不均一幅や均一幅などによる線幅の広がりによってその情報によるスペクトル上の微細構造は消えてしまいます。
ところが固体水素は、構造分子である水素分子が気相と同様に振舞っています。これは、分子間の結合エネルギーに比べて非常に小さいことに由来しています。このため、光学遷移の線幅が非常に狭く、凝縮系にもかかわらず高分解能分光が可能であります。
そこで、今回の実験では 固体水素の $Q_1(0)$ ラマン線の高分解能分光により、純振動励起状態のエネルギーと線幅を測定し、固体水素の結晶成長法によるスペクトルの差異を調べました。

2.原理（光学装置の説明）



本実験では、ラマン損失分光法を用いました。
プローブ光には外部共振器半導体レーザーを用い、ポンプ光には MISER を用

いました。MISER の使用強度は 36 mW、ビーム系 500 μm で非常に安定なレーザーです。LD は、発振中心周波長 850 nm、使用強度 11 mW、ビーム系 350 μm 、周波数ジッター 2 MHz、です。このジッターで、今回使用している分光装置の分解能が決まっています。それぞれのレーザーは、ダイクロイックミラーを使い、同軸に重ねて結晶に入射させました。



波長 1319 nm のポンプ光を固定し、波長 852 nm のプローブ光を掃引させ、周波数がラマン周波数に一致したときのプローブ光の損失を測定することでラマン損失スペクトルが得られます。

半導体レーザーは、グレーティングにより外部共振器を組んでいてグレーティングの角度をピエゾ素子で変えることによって LD の発信周波数を振っています。ピエゾ素子へは、ファンクション シンセサイザーで三角波を出力し、アンプで増幅した電圧を掛けています。スペクトルアナライザーは、LD が測定中の周波数掃引幅の中でモードホッピングしていないことを確認するために使用しています。また、ポーラライザーと $\lambda/2$ 板を用いて強度を調節しています。

結晶から出射した光はプリズムで分け、プローブ光のみを検出しています。MISER に AOM で 100 KHz の強度変調を掛けることで、フォトダイオードで検出されたプローブ光強度をロックイン検出し、感度を高めています。

結晶から出射した光はプリズムで分け、プローブ光のみを検出しています。

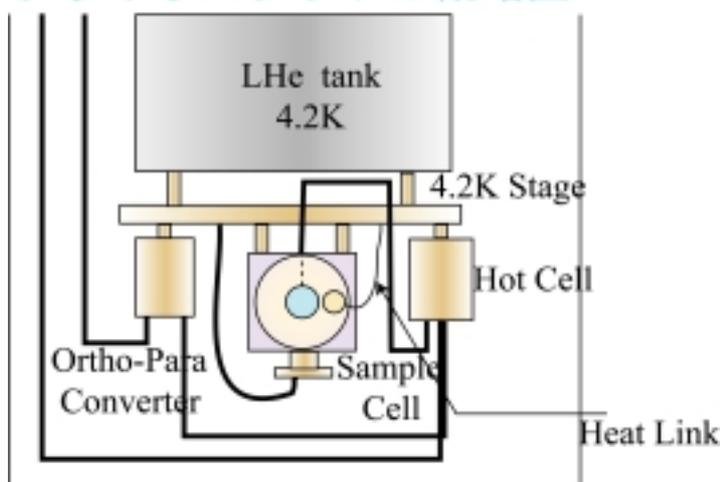
MISER に AOM で 100 KHz の強度変調を掛けることで、フォトダイオードで検出されたプローブ光強度をロックイン検出し、感度を高めています。

3. 実験方法

3 - 1 クライオスタット

今回用いているクライオスタットは、液体 He 温度付近で光学実験ができるように設計されています。

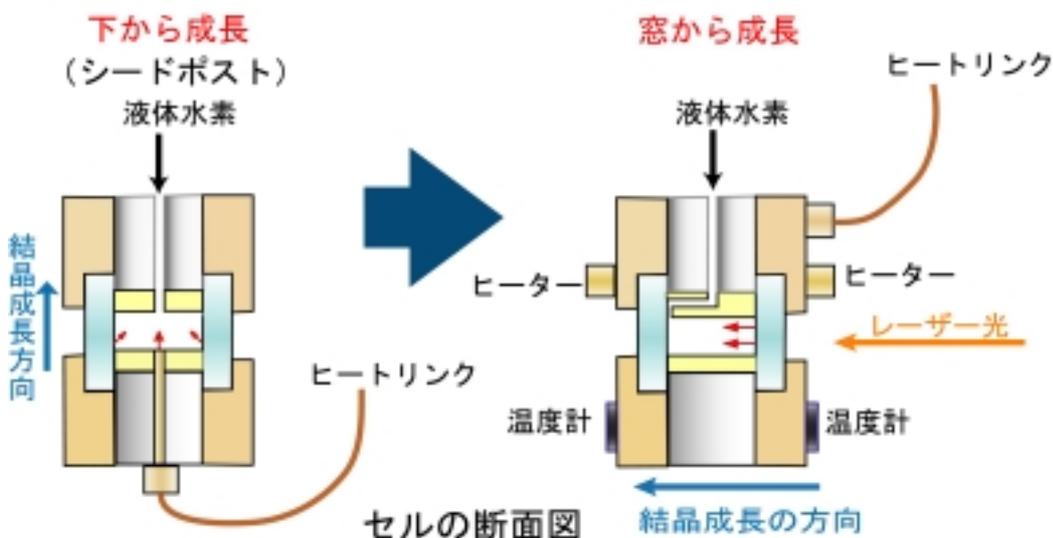
クライオスタットの概略図



まず、クライオスタットに入ってきた水素はコンバーターでパラ水素に変換されます。コンバーターには金属触媒が入っていて、その温度での平衡状態のオルソとパラの比に素早く変換できます。例として14Kでコンバージョンを行った場合、理想的には99.9995%のパラ水素濃度が得られることになります。コンバージョン後、パラ水素はホットセルとサンプルセルに満たされます。ホットセルは、ホットセル自身の温度を上げることでサンプルセルの圧力を制御するためのものです。結晶作成時には、いかに圧力を一定に保てるかが重要になってきます。なぜなら結晶成長時の圧力で結晶の密度が決まるからです。今回の実験では、圧力制御の精度を以前より30倍まで上げています。具体的には32 atmで0.005 atmまで制御できるようになっています。

3 - 2 サンプルセル

新しい結晶成長法



上の図は、サンプルセルの断面図です。右が今回用いたセル、左が以前まで使っていたセルです。セルの中には円柱型のテフロンチューブを入れ、熱絶縁しています。そして、両側から銅製のフランジとサファイアの窓でインジウムシールしています。片側にはHe槽からヒーティングパワーを供給するためヒートリンクを付けてあります。また、両側のフランジにヒーターを付け、掛ける電圧を調節することで、横方向に熱勾配をつくり結晶を成長させました。以前までは、セル下部のシードポストから成長させていましたが、この方法では、両側の窓とシードポストの計三箇所から結晶が成長してしまうことになります。結晶軸の向きは、結晶成長方向に向くのでこの場合結晶軸は三方向存在してしまうと考えられます。

そこで、今回の「窓から成長させる」方法では窓のみから成長するので結晶軸は一方向にそろおうと考えられます。

3 - 3 液相加圧成長法

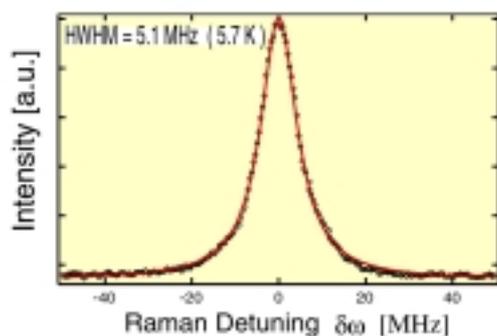
結晶は液相加圧成長法で作っています。つまり14.8 K にて30気圧の加圧下で成長させることにより、結晶成長後体積を変化させることなく5 K 付近まで下げることが可能となっています。よって結晶にクラックが入る心配がありません。

4. 結果，考察

実験結果

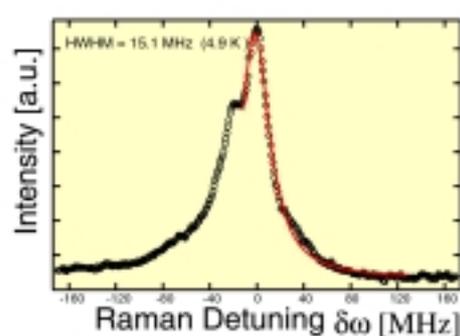
下からの成長

半値半幅 : 5.1 MHz
ラマン周波数 : 4149.641 cm^{-1}



窓からの成長

半値半幅 : 15.1 MHz
ラマン周波数 : 4149.667 cm^{-1}



ラマン損失スペクトル

曲線はローレンツ関数によるフィッティング

今回の実験では、結晶軸がそろふことで線幅が細くなると予測しましたが、必ずしも思惑道理には行かないということが分かりました。

このように15.1 MHzと、かなり線幅は広くなってしまいました。また、ピークが複数できてしまいました。原因として考えられることは、窓に種結晶が複数できてしまい、育っていき、結晶軸が複数できてしまったのではないかと考えられます。

これに対しては今後テフロン製の開口を小さくし、対処していきたいと思っています。今後の課題としては、複数ピークの原因の探求をしていき、またさらなる結晶作成法の検討をしていきたいと思っています。また、結晶の密度を変え、緩和過程の詳細を調べていきたいと思っています。線幅と密度依存性についても調べていきたいと思っています。