

CARS 位相整合条件の緩和からみた液体構造

(東大院理) ○奥野将成、濱口宏夫

【序】 CARS位相整合条件は物質の光学的な均質性を仮定したものであるが、実際の物質は光学的に完全に均一ではなく、ミクロなレベルで少なからず不均一性を持っている。この不均一性により CARS位相整合条件の緩和が起き、完全な均質性を仮定した場合の CARS信号の発生する方向 $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ (\mathbf{k}_1 および \mathbf{k}_2 はおよびポンプ光 ω_1 および Stokes 光 ω_2 の \mathbf{k} ベクトル) とは異なる方向にも CARS信号が観測される。このように CARS位相整合条件の緩和は液体構造を反映した重要な情報を持っている。本研究では位相整合条件をきつめて満足する実験配置で CARS信号のビーム形を測定することにより、位相整合条件の緩和をより敏感に検出することを試みた。

【実験】 図 1 に本実験での実験配置を示す。通常 CARS の実験を行う際には位相整合条件を満たすように非同軸に試料へと ω_1 および ω_2 光を集光するか、 ω_1 および ω_2 光を同軸にし、 \mathbf{k} ベクトルに分布を持たせて位相整合条件を緩和させる

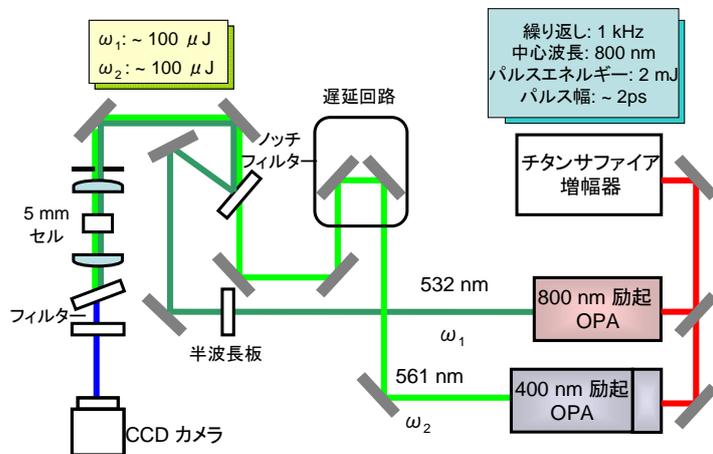


図 1 実験装置

のが一般的である。本実験では、 ω_1 および ω_2 光を同軸にした上で位相整合条件を満足しにくいよう、サンプルに集光するレンズの前までで ω_1 および ω_2 光のビーム径を小さくし、 \mathbf{k} ベクトルの分布を制限した。発生した CARS信号はフィルターを通した後 CCDカメラにて直接そのビーム形を測定した。また、本実験ではベンゼンの環伸縮振動 992.5 cm^{-1} の共鳴に合わせ、 $\omega_1 = 532 \text{ nm}$ 、 $\omega_2 = 561 \text{ nm}$ とした。

【結果と考察】 図 2 に得られた結果を示す。それぞれ(a) ベンゼンのみ、(b) ベンゼン/シクロヘキサノン = 80/20 (vol/vol) 混合溶液、(c) ベンゼン/シクロヘキサノン = 70/30 混合溶液、(d) ベンゼン/メタノール = 70/30 混合溶液でのCARS信号のビーム形である。(a)で顕著であるように、リング状のCARS信号が得られた。これは、 ω_1 、 ω_2 の \mathbf{k} ベクトルの方向を厳密に決定することで、CARS位相整合条件を満足する方向にのみCARS

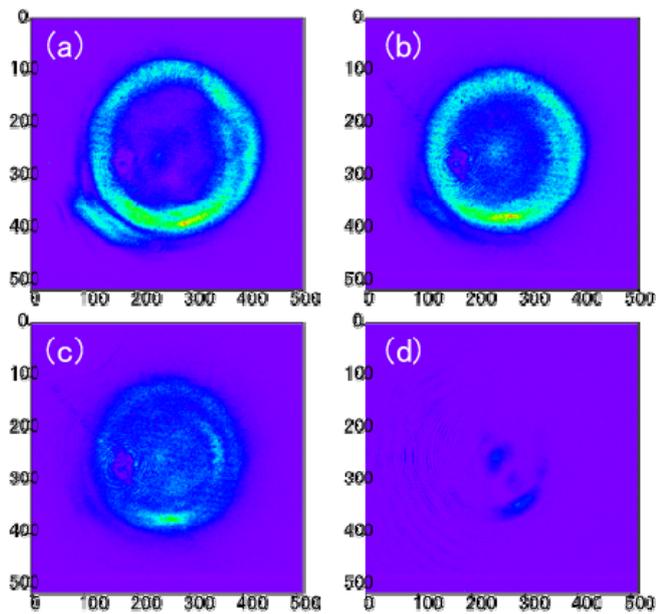


図 2 いくつかの試料の CARS 信号のビーム形

- (a) ベンゼンのみ、
- (b) ベンゼン/シクロヘキサノン = 80/20 混合溶液
- (c) ベンゼン/シクロヘキサノン = 70/30 混合溶液
- (d) ベンゼン/メタノール = 70/30 混合溶液

信号が得られたと考えられる。また、(a), (b), (c)にみられるように、同じベンゼン/シクロヘキサノンの二成分を持つ混合溶液でもその割合が異なればCARSビーム形が異なること、(c), (d)からわかるように同じ割合でもその成分がシクロヘキサノン、メタノールと異なればCARS信号の形状が大きく変化することがわかった。CARS信号のビーム形が変化するという事は、CARS位相整合条件の緩和に差異があることを意味している。シクロヘキサノン(a)→(b)→(c)の順にベンゼンの濃度が下がるにつれてCARS信号がぼやけていく様子は濃度が下がるとベンゼンの位相整合が取りにくくなることを、(c), (d)の比較ではメタノール混合溶液ではCARS信号がぼやけているが、これはメタノール混合溶液中では不均一性がシクロヘキサノン混合溶液に比べて大きいことを意味していると考えられる。