

1P077

液滴からの誘導ラマン散乱高次光の発生と液滴形状による強度変化

(学習院大学) ○根岸 孝輔, 河野 淳也

Morphology Dependence of Multiorder Stokes Raman Emission from Liquid Droplet

(Gakushuin University) ○Kosuke Negishi, Jun-ya Kohno

[序] 微小な液滴にレーザー光を照射すると、液滴表面で光が共振し、定在波が生じることによってその強度が大幅に増強される。その高強度の光によって液滴内では誘導ラマン散乱光やそれを励起光とする高次誘導ラマン散乱光が容易に生じる。本研究では、液滴の形状と誘導ラマン散乱の関係に着目し、トルエンの球形単一液滴、歪んだ単一液滴、および衝突液滴の誘導ラマン散乱を観測した。

[実験] 図1に実験装置図を示す。顕微鏡を用いて直径約 $75 \mu\text{m}$ の液滴を観測した。XYZ ステージに取り付けられた piezo 素子駆動の液滴ノズルからトルエン液滴を生成した。白色 LED を照明とし、ストロボ画像をカラー CCD カメラにより観測した。また、液滴に Nd:YAG レーザーの 2 倍波 (0.26 mJ/pulse) を集光して照射した。レーザー光は液滴に入射する前に波長板を通し、偏光方向を調整して液滴に照射した。ラマン散乱光は波長 537 nm 以上の光を透過するロングパ

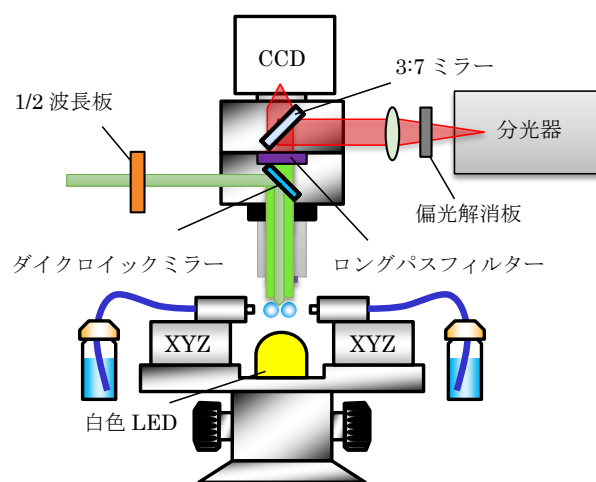


図1 液滴衝突実験装置

スフィルターを通してレイリー散乱光を除いたあと、ハーフミラーを用いて強度比 3:7 に分け、それぞれカメラと分光器に導いて画像とラマンスペクトルを同時に測定した。液滴はノズルから生成した直後は歪んだ形状をとるが、減衰振動を経て、最終的に球形になる。液滴が球形になる前の歪んだ液滴や球形の液滴にレーザーを照射し、共振増強ラマンスペクトルを測定した。また、ノズルを 2 つ使用し、液滴衝突を行った。液滴同士が衝突すると衝突部は円盤状になる。その衝突部の端にレーザーを照射し、共振増強されたラマン散乱光を観測した。衝突後 $10\sim 40 \mu\text{s}$ の範囲で測定を行った。

[結果・考察] 図2にトルエンの球形単一液滴の液滴画像とラマンスペクトルを示す。4 色の矢印、赤いバツ印はそれぞれ照射レーザーの偏光方向、レーザー照射位置を示している。4 つのスペクトルの色とレーザーを照射した液滴画像の枠の色は偏光方向の色と対応している。ラマンスペクトルには約 $1000, 2000, 3000, 4000 \text{ cm}^{-1}$ にトルエンの環呼吸振動バンドのそれぞれ 1~4 次光が観測された。一つのレーザー照射位置において、液滴の接線方向に入射光の偏光がある方がスペクトルの強度が強いことがわかる。(青>赤, 黄>緑) 液滴内の光の共振は、光の入射点を含む、画像に垂直な断面内で起こる。従って接線方向の偏光は s 偏光となる。また入射光の偏光面が 90° 変わると p 偏光になる。s 偏光と p 偏光の反射率は、入射角が約 10° 以下ではほぼ同じだが、角度が大きくなると s 偏光の方が高くなる[1]。液滴内で共振している光の入射角は大きい

と考えられるので、s 偏光の方が p 偏光よりも反射率が高くなり、共振増強の効果が上がると考えられる。図 3 に歪んだ単一液滴の液滴画像とラマンスペクトルを示す。白矢印は液滴の進行方向を示している。図 3 から、進行方向に対して垂直に位置する液滴の端にレーザーを照射する方が強度が強いことがわかる。(赤、青>黄、緑) 液滴の進行軸に垂直な断面は円形だと考えられる。一方、進行軸を含む断面は楕円形である。このため図 3 において下端にレーザーを照射した方が強度がより強くなることは、円形共振面の方が共振効率が高いことを示す。図 4(a)に衝突後 10, 20, 40 μs の液滴の画像とラマンスペクトル、図 4(b)に衝突後 10~40 μs の液滴と球形単一液滴のスペクトルにおける面積強度をそれぞれ示す。図 4(a)より衝突液滴は単一液滴に比べ様々なピークが見られ、図 4(b)から強度も増していることがわかる。円盤状の衝突部の直径は、単一液滴の直径よりも大きい。このため共振増強により現れるピークの間隔は短くなり、様々なピークが見られる。一方、衝突液滴における共振は、衝突部円盤の均一化した外側の部分で進行する。衝突面では屈折率に微小の揺らぎがあり、共振効率が上がらないと考えられる。このとき、球形の単一液滴に比べ、円盤状である衝突部は光が共振する場所が限定されるため、光の密度が高くなり強度が強くなる。これが衝突液滴において単一液滴よりも高強度のラマン散乱が得られる理由だと考えられる。また図 4(b)より、衝突液滴から得られるラマン散乱光の強度は衝突後 20 μs まで上がり、その後下がっていく結果となった。これは、衝突直後共振の起こる衝突部の外側においては不均一性があり、時間が経過すると混合部先端から分子が均一になっていくため衝突後 20 μs までは強度は上がっていく。更に時間が経過していくと均一化は進んでいくが、今度は光が共振する領域が広がることで、光の密度が下がるため強度も下がっていくと考えられる。

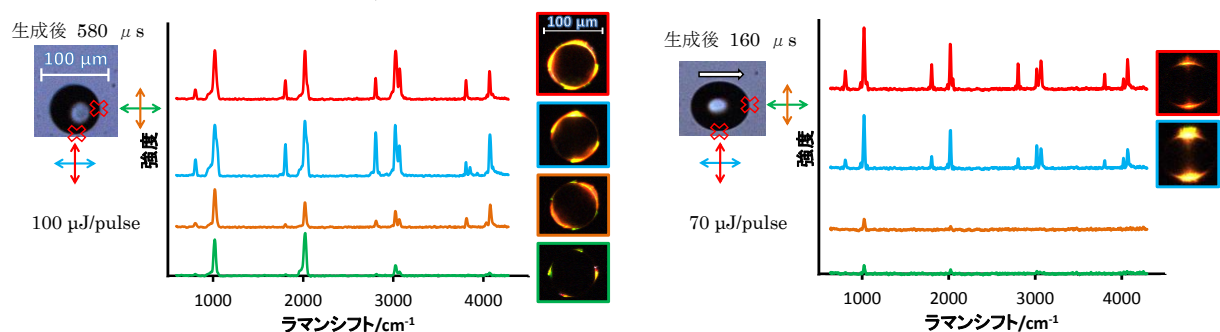


図 2 球形単一液滴のラマンスペクトルと液滴画像

図 3 歪んだ単一液滴のラマンスペクトルと液滴画像

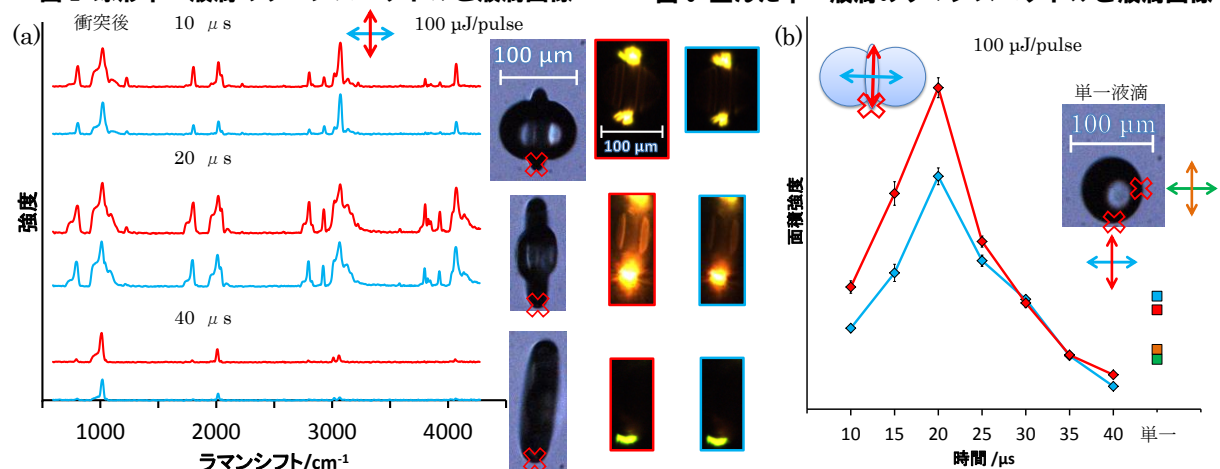


図 4 衝突液滴の測定結果 (a) 衝突後 10, 20, 40 μs の液滴から得られたラマンスペクトル

(b) 衝突液滴と単一液滴から得られたラマンスペクトルの面積強度