

固体水素におけるレイリー散乱の研究

東北大学大学院理学研究科 是枝聡肇 岡田靖之 齊官清四郎

Study of Rayleigh light scattering in solid hydrogen

A. Koreeda, Y. Okada, S. Saikan

Graduate School of Science, Tohoku University

フォノン平均自由行程および音速の非破壊・非接触測定方法として最も有効なものの一つがレイリーおよびブリルアン光散乱法であり、スペクトル線幅と周波数シフトからそれぞれフォノン平均自由行程と音速が測定できる。しかし固体水素は低温であるため信号強度が十分に得られなかったり、線幅が狭いために分光器の分解能が不足するなどの制約がある。一方、「強制光散乱法」と呼ばれる方法ではレーザーによって強制的に誘起された熱拡散や弾性波伝播の様子を実時間軸上で測定するので、緩和時間の長い物質においてはむしろ高い精度で測定することが可能となる。さらに、熱拡散(レイリー散乱)の実時間上の別の測定法としてはレーザー光による熱レンズ効果の時間変化を観測する「過渡的熱レンズ分光法」(transient opto-thermal lensing spectroscopy = TOTLS)がある。

我々はまず TOTLS 法によって固体水素のレイリー散乱を実時間上で測定した。この方法では固体水素に熱を吸収させる必要があるため、797nm(12545cm⁻¹)の Q1(0)+S2(0) という同時遷移吸収線をパルス Ti:S レーザー(パルス幅約 7ns)で励起し、それと同軸に入射したプローブ光(cw-Ar+レーザー)の小開口通過後の強度の時間変化を観測した(図1, 但し曲線は二重指数関数による fit)。信号の時間変化のうち後半の減衰部分が熱拡散によるものであり、これが実時間上のレイリー散乱に対応する。この減衰の時定数と光学配置で決まる揺らぎの波数から熱拡散係数を知ることができる。フォノン平均自由行程は熱拡散係数と $D_{th} = \frac{1}{3} \bar{v} l$ (ここで D_{th} , \bar{v} , l はそれぞれ熱拡散係数, 音速の平均値, フォノン平均自由行程) という関係にあるが, \bar{v} の温度変化は l のそれに比べてずっと小さいのでこの関係を用いて熱拡散係数すなわちレイリー線幅(の逆数)から近似的にフォノン平均自由行程の温度依存性を知ることができる。図2に測定したレイリー線幅の温度依存性を示す。低温になるほど緩和速度が速くなっており、熱拡散がその他の緩和過程とはまったく逆の温度依存性を示すことがわかるが、これはフォノン平均自由行程の温度依存性を反映しているためである。この結果より、我々の固体水素の熱伝導率のピークが約7Kにあることなどがわかった。

さらにこの TOTLS 法では重要な副産物として、光励起した状態の寿命(無輻射緩和時間)が、信号の立ち上がりの時定数から(係数が掛からない)独立した値として得られる。従来この立ち上がりは時間原点における接線の傾きから読まれていたため、温度依存性のある係数や光学配置で決まる係数で割る必要があったが、今回の解析法ではその必要がなくなり、測定精度が上がっていると考えられる。図3にこの立ち上がり速度の温度依存性を示す。約8K以上の温度ではほとんど温度依存性を示さないが、それより低温では温度降下とともに急激に緩和速度が増加するという奇妙な振る舞いが観測された。この結果については現在解析の途上であり、明確な物理的説明を与えるには至っていないが、フォノン平均自由行程が低温で長くなることに伴う局所熱平衡の破れによって TOTLS 信号の起源である熱膨張が追従できなくなっている可能性もあるので、こちらについてはさらなる実験および TOTLS 信号発生機構の再検討が必要であると考えている。

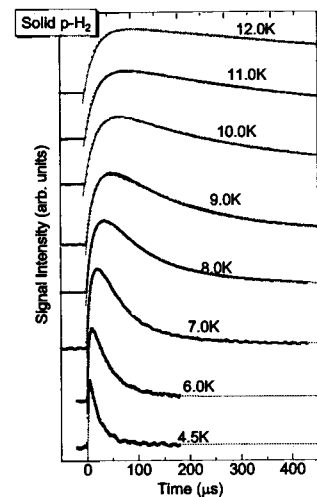


図1: 固体水素 Q1(0)+S2(0) 遷移の TOTLS 信号

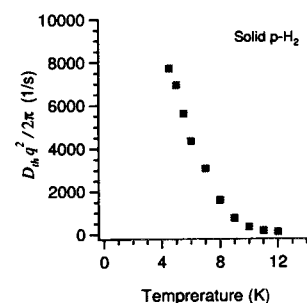


図2: レイリー線幅の温度依存性

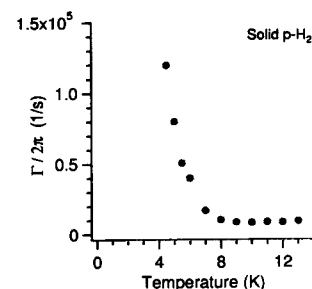


図3: 無輻射緩和速度の温度依存性