

固体水素のコヒーレントラマン分光

電通大 量子・物質^A、東北大理^B、CREST JST^C
高柳進^{A,C}、是枝聡肇^{A,C}、鈴木勝^{A,C}、白田耕藏^{A,C}、齊宮清四郎^{B,C}

Coherent Raman Spectroscopy for Solid Hydrogen

Department of Applied Physics and Chemistry; University of Electro-Communications^A,
Department of Physics; Tohoku University^B, CREST JST^C
S.Takayanagi^{A,C}, A.Koreeda^{A,C}, M.Suzuki^{A,C}, K.Hakuta^{A,C}, S.Saikan^{B,C}

固体水素は、凝縮系にも関わらずスペクトル線幅が非常に狭く、気相と同様な高分解能分光が可能であり、分子間多体相互作用の研究に適した物質である。また、3-2-1、3-2-2 で述べられたような固体水素の非線形光学媒質としての応用には巨大なラマンコヒーレンスの発生が不可欠であるが、これには線幅が狭いことが本質的に重要である。従って、線幅の起因となる励起状態の緩和過程の詳細を調べることは、基礎と応用の両面において非常に重要である。本研究では、固体水素の基底状態から純振動励起状態へのラマン遷移、即ち $Q_1(0)$ ラマンスペクトルを分子数密度一定の条件下で定量的に測定した。高純度で均一性の高い固体パラ水素結晶を液相加圧成長法により作成し、測定にはラマン損失分光装置を用いた。測定の結果、最低到達温度 5.7K において半値半幅 ~ 5.1 MHz (図 1) を得た。ほぼローレンツスペクトルであるが、わずかな非対称性があるようにも見え、残留オルソ水素による選択則の破れ、もしくは結晶の不均一性が現れている可能性が考えられる。また、全測定温度領域 (5.7K \sim 12.5K) においてほぼローレンツスペクトルであった。温度変化に伴うスペクトル線のシフトと線幅 (図 2) は、それぞれ指数関数的に増大した。解析した結果、これは結晶格子に束縛された孤立的な分子の振動と音響フォノンとの間の相互作用、という非常に単純なモデルによって定量的に説明できることが明らかになった。これによると、ラマン線幅の起因は音響フォノンを介した分子振動の純位相緩和であると結論できる。これは、孤立分子の量子性と固体の高密度性をあわせ持つ固体水素に特徴的な結果といえる。結晶の質量密度依存性についても今後測定する予定である。

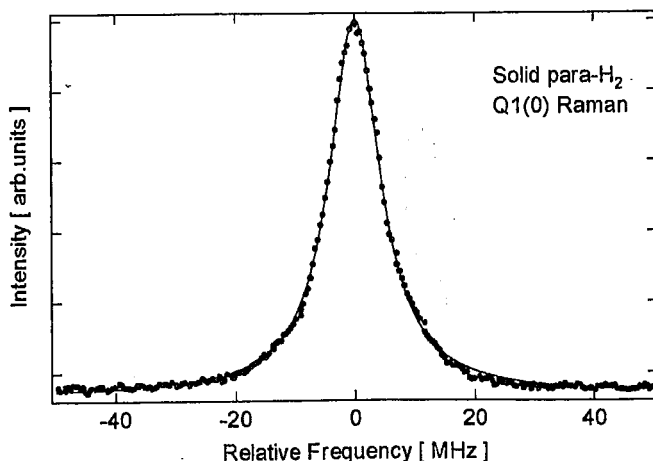


図 1 $Q_1(0)$ ラマンロススペクトル

$T = 5.7$ K, $\text{HWHM} = 5.1$ MHz
(実線 : ローレンツフィッティング)

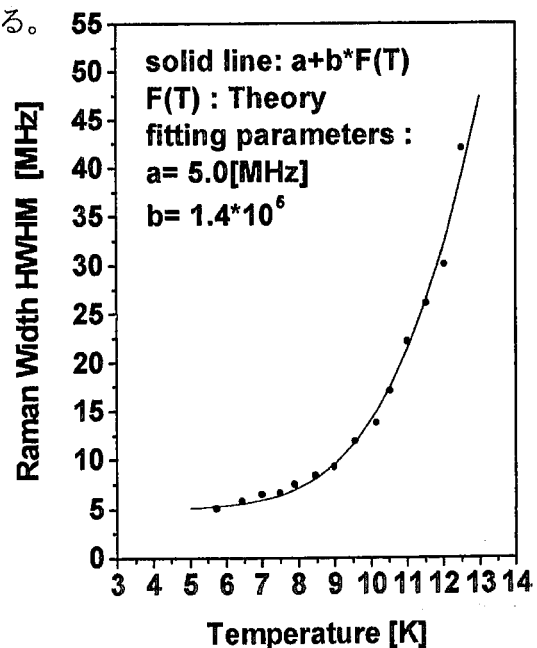


図 2 $Q_1(0)$ ラマン線幅の温度依存性