

行われればその点がはっきりするであろう。

*) Phys. Letters A (in press).

液体ヘリウムにおけるラマン散乱 (review)

京大・理 大 見 哲 巨

Raman 散乱を用いた He の研究は, Greytak と Yan 達¹⁾ による液体 He⁴ の素励起の測定に始まり, 最近では固体の He³, He⁴²⁾ 及び液体の He³-He⁴ mixture³⁾⁴⁾ の実験も行われ, 少しずつ盛になりつつある。このノートでは, 主に液体の pure He⁴ 及び He³-He⁴ mixture における Raman 散乱の理論と実験の review を行う。

§ 1. 液体 pure He⁴

詳しい議論に入るまえにまず液体 He⁴ の素励起 (主に roton) と観測に使われている, laser 光の energy と momentum の order の比較をしておく。laser の波長が, 4880 Å と 5145 Å のものが主に使われていることから, 素励起の方が, energy で 10^{-3} 程小さく momentum で 10^3 程度大きい。したがって, Raman 散乱の場合には, 大きさが等しく, 向きが反対の momentum を持った素励起を励起させることにより momentum と energy の保存則を満足させることができる。

さて, 液体 He⁴ の Raman 散乱についての理論は, Halley⁵⁾, Stephen⁶⁾, Iwamoto⁷⁾, Nakajima⁸⁾, 等の論文がある。ここでは, Stephen の論文にそってまず, 話しを進める。液体 He⁴ を誘電性連続体で近似し, 古典電磁気学を用いて光の散乱を考える。Max. well 方程式を積分形で書くと座標 $(\vec{r}, t)$ における電場の強さは, 入射光による外場 $\vec{E}_0(\vec{r}', t)$ と, $(\vec{r}', t')$ における分極ベクトル $\vec{P}(\vec{r}', t')$ による電場の重ね合せで,

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}, t) + \int_{\sigma} d\vec{r}' \int dt' \vec{G}(\vec{r} - \vec{r}', t - t') \vec{P}(\vec{r}', t') \quad (1)$$

と書ける。ここで積分領域には、 $(\vec{r}, t)$ が誘電体の中にある時には、そのまわりに atomic volume の大きさの穴をあけて電場を定義することからくる制限がある。 $\vec{G}(\vec{R}, t)$ は、単位の大きさを持った時間的に振動する dipole が $(\vec{R}, t)$ だけ離れた所につくる電場で diadic form で、

$$\vec{G}(\vec{R}, t) = \frac{c}{2\pi} \int dk e^{-i\vec{c}k \cdot \vec{t}} \vec{G}_k(\vec{R})$$

$$\vec{G}_k(\vec{R}) \begin{cases} = k^2 \frac{e^{ikR}}{R} (\vec{I} - \vec{R}, \vec{R} / R^2) ; kR \gg 1 & (2) \\ = (3\vec{R} \cdot \vec{R} - R^2 \cdot \vec{I}) / R^5 ; kR \ll 1 & (3) \end{cases}$$

と書ける。よく知られているように $kR \gg 1$ では、Spherical な横波、 $kR \ll 1$ では、dipole field になっている。ところで、分極ベクトル $\vec{P}(\vec{r}, t)$ は、粒子密度 $n(\vec{r}, t)$ を用いて

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \alpha n(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t)$$

α は原子の電気感受率と書ける。さらに、 $n(\vec{r}, t) = n_0 + \delta n(\vec{r}, t)$ で密度の fluctuation を導入し、 δn のべき展開で、電場を求める。(1)式を用いて、

$$\delta \vec{E}_1(1) = \alpha \int_{\sigma} d(2) \vec{G}(1-2) \delta n(2) \vec{E}_0(2) \quad (4)$$

$$\delta \vec{E}_2(2) = \alpha^2 \int_{\sigma} d(2) d(3) \vec{G}(1-2) \delta n(2) \times \vec{G}(2-3) \delta n(3) \vec{E}_0(3) \quad (5)$$

$1 = (\vec{r}_1, t_1)$ と求まる。ここで、 1 は、観測点であるから $\vec{G}(1-2)$ は球面波を与えるが、 $\vec{r}_2 - \vec{r}_3$ については、積分が atomic な order までであることを考慮すれば、 $\vec{G}(2-3)$ は dipole field になる。

(4), (5) で与えられる電場の correlation から散乱強度が求まる。correlation

$$W_i^{(1)}(\tau) = \langle \delta E_{1i}(R, t) \delta E_{1i}(R, t + \tau) \rangle \quad (6)$$

$$W_i^{(2)}(\tau) = \langle \delta E_{2i}(R, t) \delta E_{2i}(R, t + \tau) \rangle \quad (7)$$

をつくれば、(6)は Brillouin 散乱(7)は、Raman 散乱の強度を与える。(6)と(7)の比から Raman 散乱と Brillouin 散乱の強度の比を求めると Raman 散乱の方が 10^{-3} 程度小さくなる。これは、Greytak Yan の実験¹⁾とよく合う。

次に Raman 散乱(7)式を少し詳しく見てみよう。

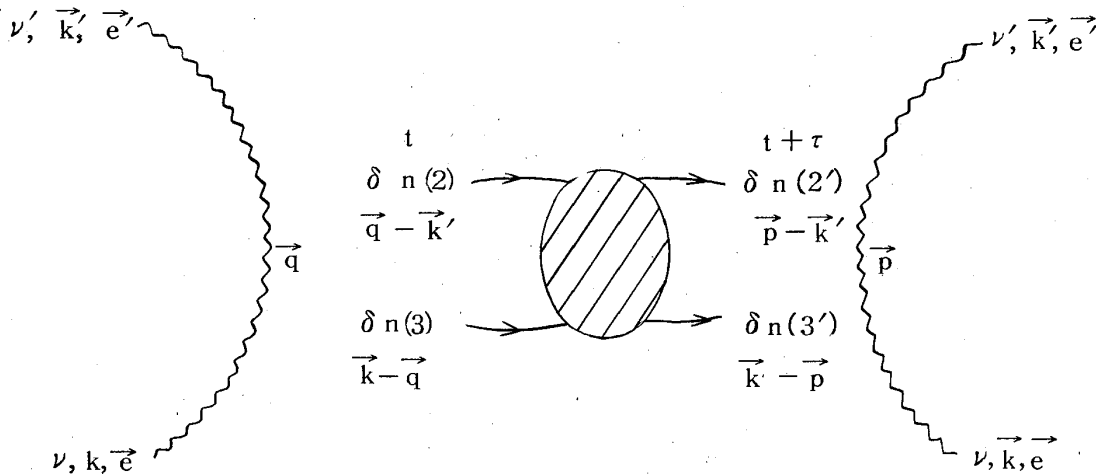


図 1

(5)式から、図1のように振動数 ν 、波数ベクトル $\vec{k}$ 、偏光方向 $\vec{e}$ の光が入射し、場所2と3で密度の fluctuation の影響をうけて散乱され ν' 、 $\vec{k}'$ 、 $\vec{e}'$ の光になる。この散乱光の時間 τ だけへだった correlation をとることにより密度の fluctuation の二体の correlation が観測にかかる。一方 Nakajima の論文⁸⁾では、この課程を micro に取り扱う。入射光が、3で He^4 原子を励起し励起子をつくる。その励起子が dipole 相互作用で、2に転移した後で光を放出するという計算になっているが、結果は Stephen の場合と同じである。以上の議論で注意すべきことは、 $p, q \gg k$ は勿論であるが、 $\nu\tau \gg 1$ であるため、2と3の時間のちがいは無視できることである。結局入射光の強さで normalize した単位立体角あたりの散乱強度は、

$$\begin{aligned}
W^{(2)}(\omega) = & \left(\frac{\alpha\nu}{c}\right)^4 \sum_{\vec{p}, \vec{q}} \left\{ 3 \cdot \frac{(\vec{p}, \vec{e})(\vec{p}, \vec{e}')}{p^2} - (\vec{e}, \vec{e}') \right\} \\
& \times \left\{ 3 \cdot \frac{(\vec{q}, \vec{e})(\vec{q}, \vec{e}')}{q^2} - (\vec{e}, \vec{e}') \right\} \cdot g(p) g(q) \\
& \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\tau}{2\pi} e^{i\omega\tau} \langle \delta n_{-\vec{p}}(\tau) \delta n_{\vec{p}}(\tau) \delta n_{\vec{q}}(0) \delta_{-\vec{q}} n(0) \rangle, \\
g(p) = & \left(\frac{d^2}{dp^2} - \frac{1}{p} \frac{d}{dp} \right) \int_{\sigma} \frac{e^{-i\vec{p} \cdot \vec{R}}}{R^5} d\vec{R} \quad (8)
\end{aligned}$$

となる。密度の fluctuation を素励起の生成、消滅演算子で書きかえればわかるように散乱強度の計算は、全波数ベクトル 0, 全振動数 ω の素励起 (phonon rotation) についての二体の Green 関数の計算に帰せられる。

(8)式を計算するにあたって dipole type の factor がどのような働きをするかからみてみよう。[$3 \cdot \frac{(\vec{p}, \vec{e})(\vec{p}, \vec{e}')}{p^2} - (\vec{e}, \vec{e}')$] は $\vec{p}$ の方向について、Legendre の球関数の $l=2$ の成分だけからなっている。したがって、(8)式は、二体の Green 関数 $K(\omega, \vec{p}, \vec{q})$ で、 $\vec{p}, \vec{q}$ 間の角度について $l=2$ の成分 $K^{(2)}(\omega, |\vec{p}|, |\vec{q}|)$ にだけ依存している。このようにして、角度積分は実行できる。 $\vec{e}, \vec{e}'$ について、 $1 + \frac{(\vec{e}, \vec{e}')^2}{3}$ という factor を得る。ところでこの結果は model に依存した結果で、一般には、 e, e', p からつくることができるスカラーは $(\vec{e} \cdot \vec{e}')$ と $(\vec{e} \cdot \vec{p})(\vec{e}' \cdot \vec{p})$ の二つであることに注意すれば上で得られた D-type の coupling の他に $(\vec{e} \cdot \vec{e}')$ という S-type の coupling も可能である。これらの coupling を仮定した時のちがって方向、ちがって偏光方向を持った Raman 光の強度の比を Gretak, Yan¹⁾ の ω が二倍の roton minimum あたりの実験と比較し、表にしておく。表にあらわれる記号については図2を参照。実験は D-type の coupling が主であることを示している。

最後に(8)式の与える Raman の spectrum の議論にうつる。それには、二体の Green 関数の計算が必要になる。もし、二つの素励起の間に相互作用がないと仮定すると散乱スペクトルの強度は簡単に計算され、二素励起の状態密度に比例するという結果を得る。したがって、素励起にエネルギー巾がない場合には、phonon

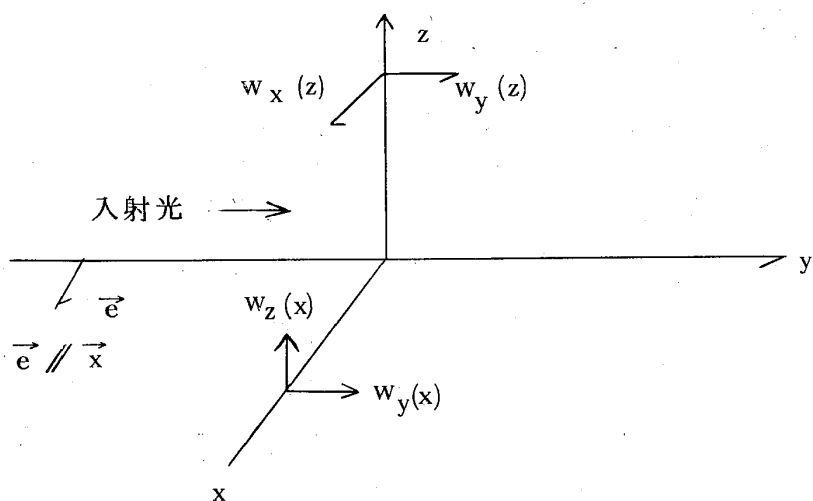


図 2

	S	D	Exp.
$w_y(x)/w_z(x)$	$\times$	1	1.15 ± 0.2
$w_y(z)/w_x(z)$	O	$3/4$	0.9 ± 0.2
$w_y(x) + w_z(x)$ $w_x(z) + w_y(z)$	O	$6/7$	0.84 ± 0.08

-roton の分散曲線の極大または極小にともなった無限大が散乱強度にあらわれるはずで、実験と比較すると特に極大のところでは不一致がみられる。これは二つの素励起間の相互作用が重要なことを意味している。図3に二体の Green関数に対する ladder 近似のグラフを示す。

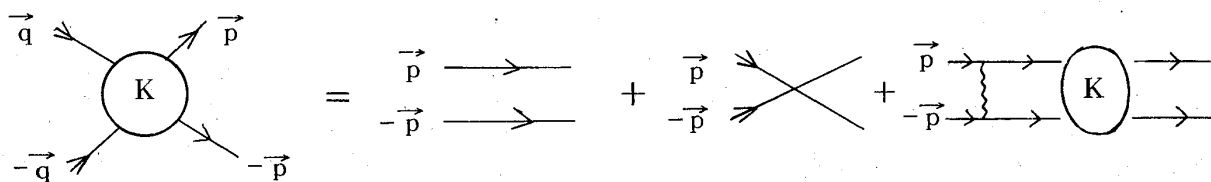


図 3

$\hat{p}\hat{q}$ 間の角度における $l=2$ の成分について図3は次の方程式を与える。

$$K^{(2)}(\omega, |\vec{p}|, |\vec{q}|) = K_0(\omega, |\vec{p}|) \delta(|\vec{p}| - |\vec{q}|) + \sum_{|\vec{p}'|} K_0(\omega, |\vec{p}'|) V^{(2)}(|\vec{p}|, |\vec{p}'|) K^{(2)}(\omega, |\vec{p}'|, |\vec{q}|) \quad (9)$$

ここで $K_0(\omega, |\vec{p}|) = 2 \cdot \frac{1}{\omega - 2\varepsilon_{\vec{p}}}$, $\varepsilon_{\vec{p}}$ は phonon-roton のエネルギー, $V^{(2)}(|\vec{p}|, |\vec{p}'|)$ は, 二つの素励起間の相互作用 $V(\vec{p}, \vec{p}')$ の $l=2$ の成分である。このように相互作用を取り入れた場合の Raman spectrum についての議論は, Iwamoto の論文⁷⁾ に詳しくされている。ここでは, $V^{(2)}(|\vec{p}'|, |\vec{p}|)$ が separable とした場合の定性的な結果を Iwamoto の論文⁸⁾ から引用しておく。図4は, 左が引力, 右が斥力の場合の散乱強度, Δ , Δ' , Δ'' はそれぞれ roton minimum, energy の maximum, plateau の二倍のエネルギーを表わしている。

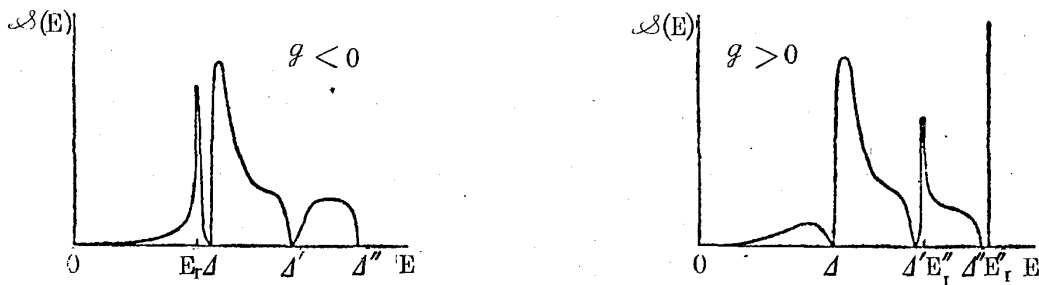


図 4

実験との比較のため引力の場合の特徴的なことをあげておく。まず, Δ の下に相互作用がいくら弱くても共鳴状態が生じる。それは, phonon-roton にエネルギー巾がなくとも巾を持つ Δ' には peak は出ないなどである。Greytak・Woerner 達の実験⁹⁾ によると roton minimum の二倍より少し下に Raman の強度に peak があらわれている。これから引力 $V^{(2)}(|\vec{p}'|, |\vec{p}|)$ の momentum 依存を落とした場合の大きさが estimate できる。また, Raman peak の巾から中性子散乱ではきめられない温度での roton のエネルギー巾が測定¹⁰⁾ されている。

§ 2. 液体 $\text{He}^3 - \text{He}^4$

最近, 液体 $\text{He}^3 - \text{He}^4$ mixture における Raman 散乱の実験が, 温度 $T = 1.3^\circ \text{K}^{3)}$ と $0.60^\circ \text{K}^{4)}$ の二つの場合に行われた。 He^3 の concentration $x = \frac{n_3}{n_3 + n_4}$ が一方は 30%, もう一方は 10% まで roton minimum からくると思われる Raman の peak の位置にほとんど変化がない。この結果が何を意味するか mixture における Raman 散乱, 特に roton minimum からくる peak について理論的に少し詳しくみてみよう。

Raman 散乱の強度は (8) 式で与えられ, 密度の fluctuation の二体の correlation $\langle \delta n(\tau) \delta n(\tau) \delta n(0) \delta n(0) \rangle$ から計算される。mixture の場合には, δn は, He^4 と He^3 の密度の fluctuation の和で $\delta n = \delta n_4 + \delta n_3$ と書ける。ここでもし He^3 のエネルギー曲線に Pitaevskii や Stephen & Mittag¹¹⁾ のような minimum はないとすれば, δn_3 を含むような correlation には peak があらわれない。したがって peak は $\langle \delta n_4(\tau) \delta n_4(\tau) \delta n_4(0) \delta n_4(0) \rangle$ に関係しているものと思われる。 δn_4 を素励起の生成, 消滅演算子で書きかえた, $\langle B_p(\tau) B_{-p}(\tau) B_q^+(0) B_{-q}^+(0) \rangle$ が問題になる。この correlation を次のような scheme で計算する。まず, He^3 の影響を考えるとこの立場から pure の roton-roton 相互作用は考えない代りに He^3 と roton 間の相互作用を考える。それは吸収放出 type, 散乱 type どちらをとってもよい。さらに mixture における roton のエネルギーは求まっているものとし, $\frac{1}{2\mu}(p - p_0)^2 + \Delta(x)$, エネルギー巾は $\Gamma(x)$ とする。この roton の二体の correlation を相互作用なしとして計算すると,

$$\frac{1}{\pi^2} \frac{\Gamma P_0^2 \sqrt{2\mu}}{\sqrt{\{(2\Gamma)^2 + (\omega - 2\Delta)^2\} \{ \sqrt{(\omega - 2\Delta)^2 + (2\Gamma)^2} - (\omega - 2\Delta) \}}} \quad (10)$$

となる。一方 $\Delta(x)$ と $\Gamma(x)$ は He^3 がフェルミ縮退していない場合は, $x \ll 1$ で x についてべき展開できる。

$$\Delta(x) = \Delta(0) + \frac{\partial \Delta}{\partial x} x$$

$$\Gamma(x) = \Gamma(0) + \frac{\partial \Gamma}{\partial x} x$$

$\Gamma(x)$ について pure He^4 の roton の巾が無視できる範囲では、 $\Gamma(x)$ は、 x に linear に依存する。したがって (10) 式が与える peak 位置は 2Δ 、その高さは $x^{-\frac{1}{2}}$ に比例することがわかる。

さて次に、roton 間に He^3 を通しての相互作用を考えよう。図 5 にその内の一부를あげておく。

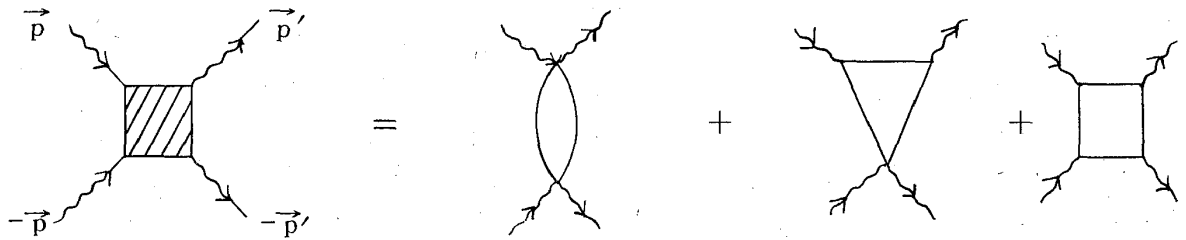


図 5

実線は He^3 、波線は roton の propagator をあらわしている。この vertex を $L(\omega, p, p')$ と書けば、ladder 近似した時の二体の Green 関数から $l=2$ について、

$$K^{(2)}(\omega, p, q) = K_0(\omega, |\vec{p}|) \delta(|\vec{p}| - |\vec{q}|) + \sum_{p'} K_0(\omega, \vec{p}) L^{(2)}(\omega, p, p') K^{(2)}(\omega, p', q) \quad (11)$$

が得られる。したがって (11) 式の絶対値をとりさらに $|L^{(2)}(\omega, p, p')|$ については無限大になることはないなのでその最大値 $L(\max)$ で置き代えることにより得られる不等式、

$$\begin{aligned} & \text{Im} \left[\sum_{p, q} \{ K^{(2)}(\omega, p, q) - K_0(\omega, p) \delta(|\vec{p}| - |\vec{q}|) \} \right] \\ & \leq \sum_{p, q, p'} |K_0(\omega, p)| |L^{(2)}(\omega, p, p')| |K^{(2)}(\omega, p', q)| \\ & \leq L(\max) \sum_p |K_0(\omega, p)| \sum_{p', q} |K^{(2)}(\omega, p', q)| \end{aligned} \quad (12)$$

から, $\sum_p |K_0(\omega, p)|$, $\sum |K^{(2)}(\omega, p', q)|$ がもし $x^{-\frac{1}{2}}$ で大きくなっても, $L(\max)$ は, He^3 の loop を含み x に比例していることを考慮すれば, 相互作用があっても, correlation は, peak の付近に注目する限り (10) 式で近似してよいことが解る。以上の議論より Raman 散乱の peak の位置が, x にほとんど依存していないということは, mixture における roton minimum が pure の場合と変わらない。すなわち $\frac{\partial I}{\partial x} \simeq 0$ であることを意味していることが明らかになった。

§ 3. 結びに

最後に固体の He における Raman 散乱について簡単にふれておく。固体の He についての Raman 散乱の理論は, Werthamer による論文¹²⁾がある。さらにこの理論に基づいて Raman spectrum を数値計算してみせたのが, Werthamer, Gray 達の論文¹³⁾である。一方実験は Slusher & Surko²⁾によって行われている。固体の場合には Raman 散乱で, trasverse optic phonon の momentum がゼロの所が, one-phonon の Raman として実験にかかるが, これについては, 理論値の方が実験よりエネルギーが少し大きめにでているが, まずまず一致はよい。しかし, two-phonon Raman については理論は, one-phonon のエネルギー巾と phonon-phonon 相互作用を落していることもあって, 実験結果との対応関係はほとんどかわらない。この問題は今後に残された問題であろう。

文 献

- 1) T. Greytak and J. Yan, Phys. Rev. Lett. 22, 987. (1969)
- 2) R. E. Slusher and C. M. Surko, Phys. Rev. Lett. 27, 1699 (1971)
- 3) C. M. Surko and R. E. Slusher, Phys. Rev. Lett. 30 1111 (1973)
- 4) R. L. Woerner, D. A. Rockwell and T. J. Greytak, Phys. Rev. Lett. 30 1114 (1973)
- 5) J. W. Halley, Phys. Rev. 181, 338 (1969)
- 6) M. Stephen, Phys. Rev. 187, 279 (1969)
- 7) F. Iwamoto, Prog. Theor. Phys. 44, 1135 (1970)

- 8) S. Nakajima, Prog. Theor. Phys. 45, 353 (1971)
- 9) T. Greytak, R. Woerner, J. Yan and R. Benjamin, Phys. Rev. Lett. 25, 1547 (1970)
- 10) T. Greytak and J. Yan, Proc. 12th Intern. Conf. Low. Temp. Phys. (Kyoto) 1970, p. 89.
- 11) M. J. Stephen and L. Mittag, Phys. Rev. Lett. 31 923 (1973)
- 12) N. R. Werthamer, Phys. Rev. 185 348 (1969)
- 13) N. R. Werthamer, R. L. Gray and T. R. Koehler, Phys. Rev. B4 1324 (1971)

超流動ヘリウムのラマン散乱

東大物性研 生嶋 明, 大林康二

Greytak らの He^4 におけるラマン散乱の実験は、周知のように、ロトン・ロトン相互作用についてきわめて活発な議論をひきおこした。彼らの結論で重要な点は、

- (1) ロトン・ロトンは引力相互作用。
- (2) その結合エネルギーは約 0.37°K 。
- (3) 幅の温度変化が Landau-Khalatnikov の理論曲線および従来の中性子の結果に合う。
- (4) ロトン・ロトンの結合係数は粘性係数の値と矛盾しない。
- (5) 偏光効果の確認。

であろう。

しかし、Greytak らの測定にはいくつかの疑問点がある (Surko らの同様な測定は質的にずっと劣り、問題にならない)。上記(1)および(2)は、ラマン散乱強度のピークが中性子散乱で得られたロトン・エネルギー Δ_0 の2倍より内側に位置すること、およびその位置から得られた結論であるが、それならば $2\Delta_0$ のところに何ら