

固体パラ水素結晶に内包された一酸化窒素の高分解能分光測定

(東工大院理工¹, CREST²) 溝口麻雄^{1,2}、戸田直也¹、金森英人^{1,2}

【序】固体パラ水素($p\text{-H}_2$)結晶中に内包された分子は希ガスマトリクスに内包された分子と比較して媒体からの相互作用が小さいことから高分解能分光が可能な系である。内包された分子の振動回転線は結晶媒体との僅かな相互作用により複雑な分裂を示すことが知られている。我々は分子の内部準位構造を利用した量子演算処理を行う事を目的としている。これまでに観測されたスペクトルの線幅は分子や遷移の種類によっても大きく異なる事が報告されている。線幅の原因を解明するためには振動回転遷移だけでなく、回転遷移の観測が非常に有効である事は固体パラ水素中に内包した($o\text{-H}_2$)₂の解析から証明された。これまで振動回転遷移が帰属されたCOやHCN分子を内包した結晶に対してマイクロ波測定を行ってきたが、透過光の強度ゆらぎが大きいため、未だに純回転遷移の観測には至っていない。今回は常磁性の一酸化窒素($\text{NO} : {}^2\Pi_r$)を用いることで光源強度に依存しないZeeman変調法による測定を行ったので、その結果を報告する。また、NOについての振動回転遷移の帰属はこれまで報告されていないので合わせて報告する。

【実験】実験装置の配置図を図1に示す。 $p\text{-H}_2$ で10 ppmに薄めたNOガスをクライオスタット内に設置した2K程度に冷却したBaF₂基板に吹き付けることで結晶を成長させた。サンプルガスの吹き付けた後にパラ水素結晶基板を4.5K程度でアニーリングすることで最安定の六方最密構造を得た。振動回転遷移の測定にはフーリエ変換赤外分光器(分解能: 0.1 cm⁻¹)を用いた。

純回転遷移は位相安定化されたBWO (OB-86: 118~155 GHz)およびミリ波モジュール (HP83558A: 75~110 GHz)光源を用い、Zeeman変調法による測定を行った。測定対象の遷移としては、結晶温度が2K以下であるため、最も低い振動回転準位から遷移 ${}^2\Pi_{1/2} J = 3/2-1/2$ の観測を試みた。Zeeman変調法に使うAC磁場はクライオスタットの外側に設置したソレノイドコイルに1AのAC電流(2 kHz)を流すことで、基板上で約13 G_{pp}の磁場を発生できる。

【結果】フーリエ変換赤外分光器による結晶生成過程でのスペクトルの変化を図1に示した。気相でのNOの基準振動数 $\nu_0 = 1876 \text{ cm}^{-1}$ 付近の影をつけた部分にNO由来の信号が観測された。この3つの部分の信号に対するアニーリングでの振舞いは大きく異なり、中央の 1874 cm^{-1}

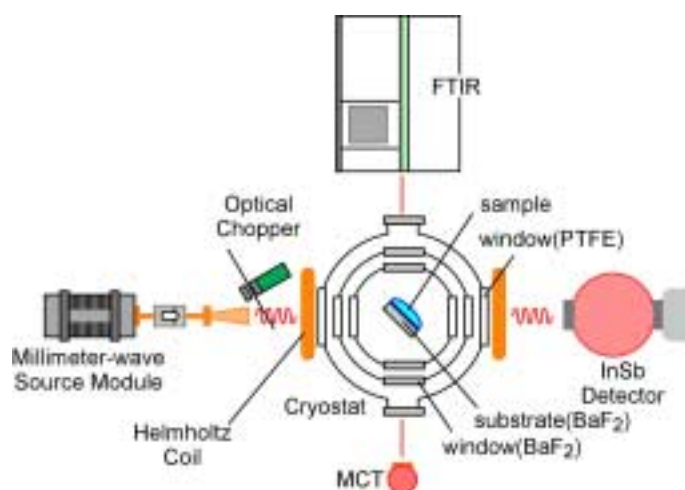


図2 実験装置の配置図

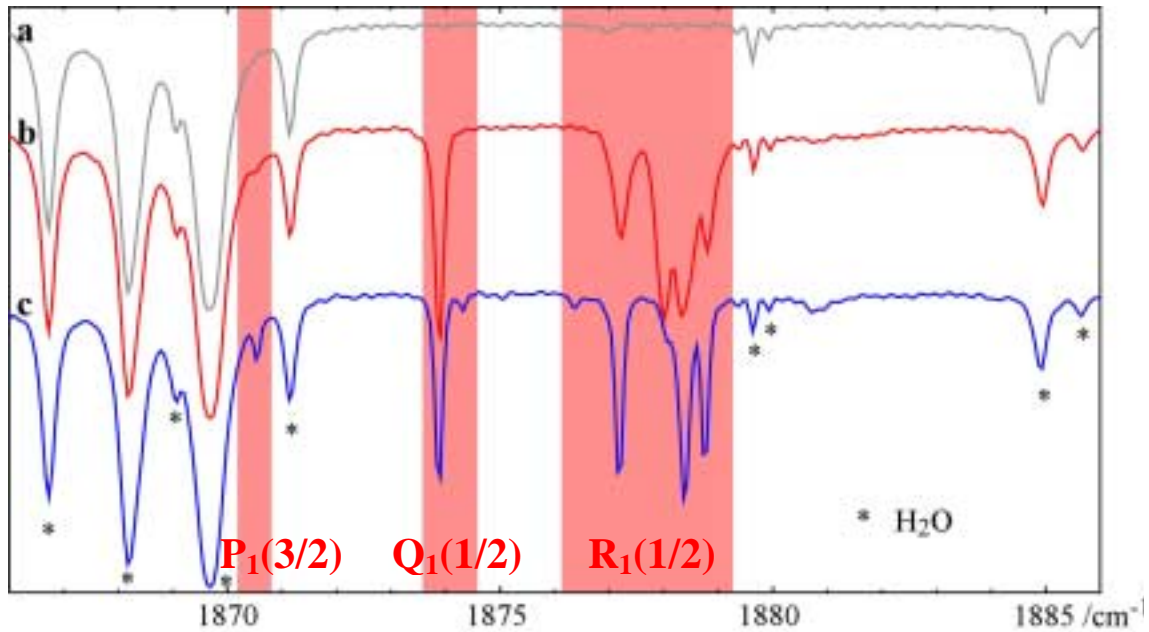


図1 NO を含んだ固体パラ水素結晶の生成過程

a: p -H₂ のみの結晶, b: NO を内包した p -H₂ 結晶, c: アニール後の NO を内包した p -H₂ 結晶

付近の信号はアニール前後で強度および線幅が殆ど変化しないのに対して、他の 2 箇所では信号強度が大きく変化した。この NO のスペクトルに対して低振動数側から $P_1(3/2)$ 、 $Q_1(1/2)$ 、 $R_1(1/2)$ と帰属した。この帰属から実効的な回転定数は 1.3 cm^{-1} 程度となり、気相中における回転定数に対して 80% ほど小さい値となった。この変化量はこれまでに観測された固体水素結晶に内包した分子の実効的な回転定数の変化量と同程度である。また、ボルツマン分布から見積られる $P(3/2)$ に対する信号強度は $Q(1/2)$ および $R(1/2)$ に比べて 1 桁程度弱いことも実験結果と一致した。

NO の純回転遷移 ${}^2\Pi_{1/2} J = 3/2-1/2$ は振動回転遷移の帰属から 117 GHz 付近と予測された。しかし振動回転遷移の $R(1/2)$ に見られるように結晶場による分裂が 2 cm^{-1} 程度存在するために 75~150 GHz の広い領域で純回転遷移の観測を試みた。現在、まだ回転線の同定には至っていない。観測に用いた遷移は ${}^2\Pi_{1/2}$ の g 因子は非常に小さい値をもつことが予測される。予備実験として気相の NO について同じ遷移を測定したところ、13 Gpp の磁場で約 2 MHz の線幅が観測された。用いた磁場ではこの遷移に対して 2 MHz 程度の変調度しか得られていないことから、それ以上に太い線幅を持つ遷移の検出には適しておらず、さらに強い磁場を発生させることも検討している。実験的な改良を進めつつ測定を行っており、討論会では回転準位構造およびその線幅について議論するつもりである。