

固体パラ水素中に捕捉した分子の振動回転遷移の線幅測定

(東工大院理工¹, CREST²) 戸田 直也¹, 溝口 麻雄^{1,2}, 福田 浩司¹, 金森 英人^{1,2}

【緒言】パラ水素結晶は最安定状態においては六方最密充填構造をとり、その格子間隔は大きく分子間相互作用が小さい。そのため結晶内部に捕捉した分子は気相中と同様に高分解能分光可能な細いスペクトル線幅を持ち、このことから捕捉した分子の励起状態は気相に匹敵するほど安定であると推測される。この特徴を用いれば空間的に固定された分子の様々なエネルギー準位を qubit とした量子情報デバイスへの応用が可能であると期待されるが、そのためには励起状態の緩和過程について詳細な情報を得ることが重要である。本研究ではパラ水素結晶中に捕捉した一酸化炭素等の分子について、振動回転遷移のスペクトル線幅について中赤外半導体レーザー等を用いて測定し、その温度依存性やアニーリング条件の違いによる結晶状態の変化を比較し、振動・回転励起状態の緩和ダイナミクスに関する知見を得ることを目的とした。

【実験】図 1 に実験装置の概要を示す。クライオスタットの 1 K pot 中に溜められた液体ヘリウムをロータリーポンプで減圧し、BaF₂ 基板を約 2 K に冷却した。基板に吹き付けノズルから p-H₂ (流量: 70 CCM) および p-H₂ で 0.05 % または 0.1 % に希釈した CO (流量: 0.2 CCM) を 25 分間吹き付けることで CO を内包したパラ水素結晶を作成した。結晶の成長は Fourier 変換赤外分光装置 (FTIR、分解能: 0.1 cm⁻¹) で確認した。吹き付け終了後、結晶を 4.6 ~ 5.5 K で約 10 分間アニーリングしたのち基板温度を 2 K 以下に冷却し、中赤外半導体レーザー (分解能 < 20 MHz) で CO の振動

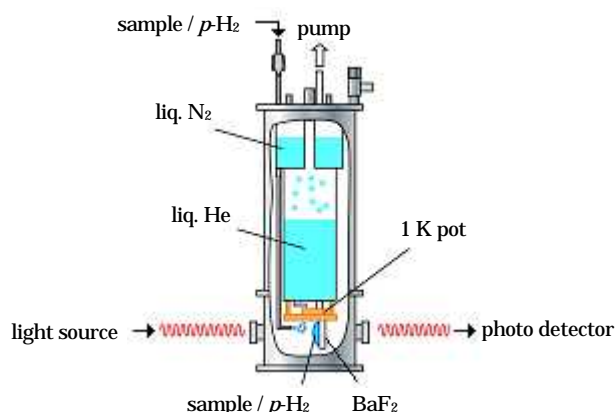


図 1 実験装置の概要

回転遷移の線幅を測定した。さらに、同一の試料に対して 7 K 以上で短時間アニーリングし同様に線幅を測定した。また、濃度 0.5 % の試料を 5 分間吹き付けた結晶も作成し、同様に測定をおこなった。パラ水素結晶は *c* 軸を基板に対して垂直に成長する。基板はレーザーの光軸に対して 45 度の角をなして取り付けられており、レーザー光は *c* 軸に対して垂直・平行いずれの遷移双極子モーメントを持つ遷移も励起できる。

【結果】図 2 に FTIR スペクトルを示す。P(1) ((*J*, *M*) = (0, 0) (1, 1))、R(0) (1, 1) (0, 0) および R(0)^{||} ((1, 0) (0, 0)) の各遷移が観測されている。ここで、量子数 *M* は回転量子数 *J* のパラ水素結晶の *c* 軸への射影成分である。これらの遷移に対して線幅の測定をおこなった。図 3 にレーザー分光の結果のいくつかを、図 4 に線幅の温度依存性を示す。濃度 0.05 % あるいは

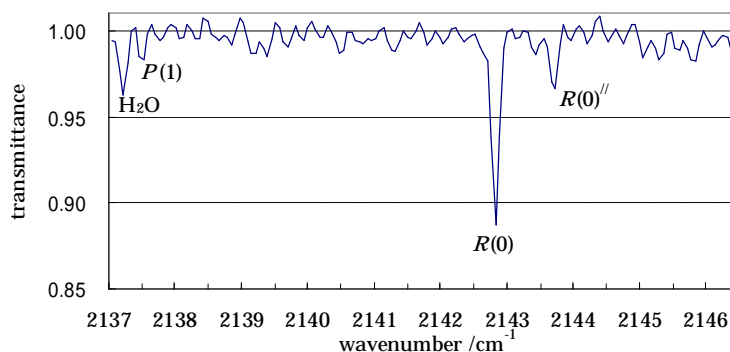


図 2 FTIR スペクトル (試料濃度 0.1 %)

0.1%のいずれの試料でも $R(0)$ 遷移の線幅のほうが $P(1)$ 遷移と比較して同程度かやや大きい傾向が見られた。アニーリング温度 4.6 K と 5.5 K の結晶を比較したところ大きな違いはなく、基板温度 1.8 K において線幅 (FWHM) は $R(0)$ 遷移で 1.6 GHz、 $P(1)$ 遷移で 1.2 GHz 程度であったが、7 K 以上に昇温したのち冷却した場合、4.6 K または 5.5 K でのアニーリング後よりも線幅は細くなり、 $R(0)$ 遷移で 0.82 GHz、 $P(1)$ 遷移で 0.71 GHz 程度となった。濃度 0.5%、吹き付け 5 分間の試料では 4.6 K でのアニール後、 $R(0)$ 遷移で 1.8 GHz、 $P(1)$ 遷移で 1.2 GHz であったものが、7 K に昇温後はそれぞれ 1.1 GHz、1.0 GHz となり、やはり線幅は細くなったが、他の試料ほど大きな変化はなかった。いずれの試料でも $R(0)$ 遷移、 $P(1)$ 遷移は同様の温度依存性を示し基板温度の上昇とともに線幅は増大した。また、 $R(0)$ 遷移の線幅は $R(0)$ 遷移よりも大きかった。

以上の結果から次のように推測した。まず同一条件における測定では $R(0)$ 遷移のほうが $P(1)$ 遷移よりもやや線幅が大きいことから、振動励起状態における回転励起状態 ($J=1$) のほうが回転基底状態 ($J=0$) よりも緩和しやすい。またアニーリング温度の違いによる線幅の比較から、パラ水素結晶の状態は 5.5 K 以下の温度に比べ 7 K 以上に昇温することによって大きく変化しており、相転移のような現象の存在も示唆している。さらに $R(0)$ 遷移と $R(0)$ 遷移の相違であるが、図 5 に示すように $R(0)$ 遷移は励起状態における分子の回転軸がパラ水素結晶の c 軸に対して平行であるのに対して $R(0)$ 遷移は垂直である。 $R(0)$ 遷移のほうが $R(0)$ 遷移よりも線幅が細く緩和時間が長いことは、パラ水素結晶が緩和に及ぼす影響には異方性があり、内包された CO の回転運動は結晶の a 、 b 軸よりも c 軸方向からの格子振動によって乱されやすいことを示唆している。水晶では結晶軸に平行か垂直かによって熱伝導率が異なるが、同様にパラ水素結晶も格子振動の性質に異方性があることが考えられる。

今後は作成条件の異なる試料についてより詳細に測定をおこなうとともに、CO 以外の分子を内包したパラ水素結晶についても同様の特徴があるか研究を進めたい。

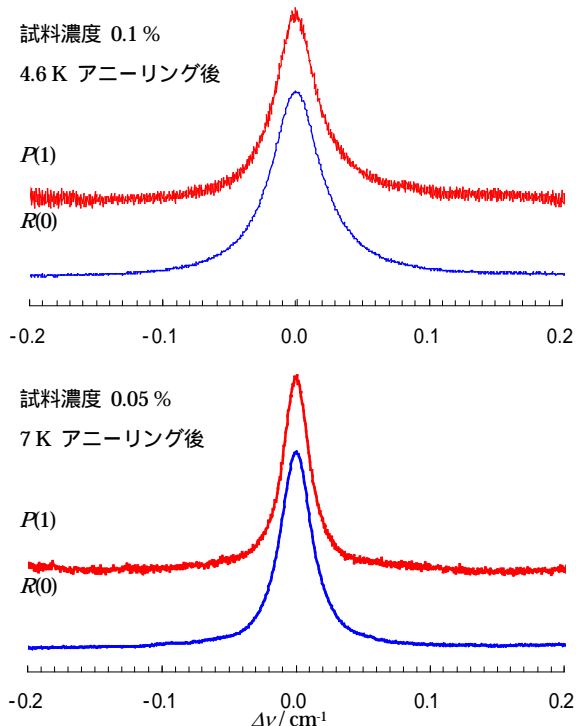


図 3 半導体レーザーによる CO 振動回転スペクトル
 $\nu_0(P) = 2137.62 \text{ cm}^{-1}$ 、 $\nu_0(R) = 2142.96 \text{ cm}^{-1}$

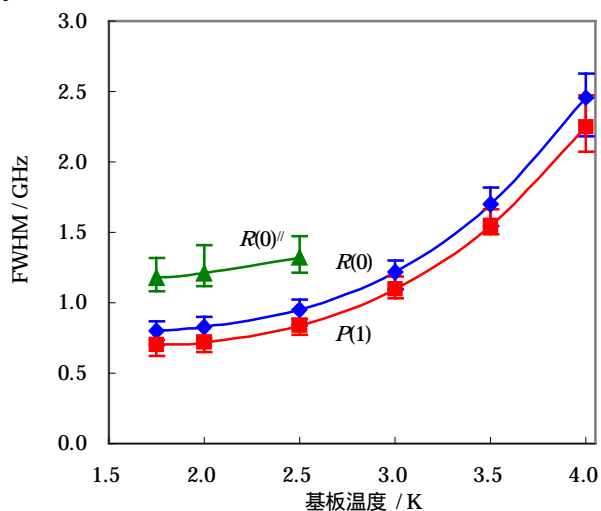


図 4 スペクトル線幅の線幅の温度依存性
 試料濃度 0.05%、7 K アニーリング後

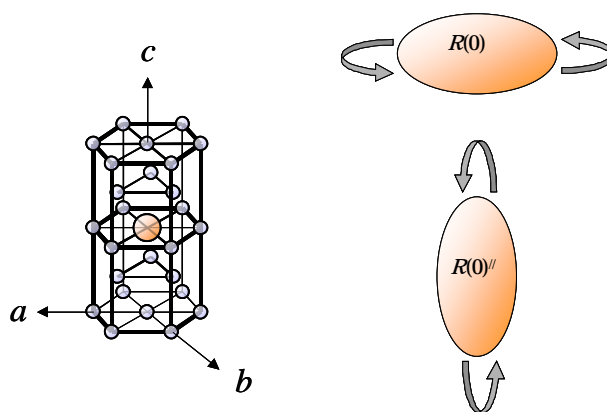


図 5 パラ水素の結晶軸と分子の回転軸の関係