

2P036

## 赤外レーザー-pump-probe分光を用いたCH<sub>3</sub>F/*p*-H<sub>2</sub>結晶の*p*-H<sub>2</sub>のQ<sub>1</sub>(0)遷移の測定による点欠陥の局所歪の研究

<sup>1</sup>東工大理

○中井川晃<sup>1</sup>, 金森 英人<sup>1</sup>

### Study of local distortions of the point defects by measuring the Q<sub>1</sub>(0) transition of *p*-H<sub>2</sub> in CH<sub>3</sub>F/*p*-H<sub>2</sub> crystal using infrared laser pump-probe spectroscopy

○Akira Nakaigawa<sup>1</sup>, Hideto Kanamori<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Department of Physics, Tokyo institute of technology, Japan

#### 【Abstract】

We observed the Q<sub>1</sub>(0) transitions of *p*-H<sub>2</sub> induced by CH<sub>3</sub>F doped in *p*-H<sub>2</sub> crystal by using infrared pump-probe laser spectroscopy. Several peaks are classified by not only the *n*-th number of CH<sub>3</sub>F(*ortho*-H<sub>2</sub>)<sub>*n*</sub> cluster model but also three sets of equal interval series. Further, all those peaks are accompanied with a series of satellite peaks consist of more than six that is the number of the next nearest site. We need to make a new model for the induced transition mechanism in the *p*-H<sub>2</sub> crystal.

#### 【序】

固相でも極めて細いスペクトルを持つことで知られる *p*-H<sub>2</sub> に異なる分子をドーブすることによって *p*-H<sub>2</sub> の新しいピークが発生することが多くの分子で確認されている。我々はその中でも CH<sub>3</sub>F をドーブした際に発現するピークについて、CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>)<sub>*n*</sub> クラスタモデルを用いて帰属をつけることに成功した[1,2]。

その一方でこのスペクトルは CH<sub>3</sub>F の濃度によってスペクトルの様子が異なることが FTIR を用いた実験で知られている[3]。そこで我々はレーザー分光を用いてより高分解能な測定を行い CH<sub>3</sub>F 濃度の変化によるスペクトルの変化を観測した。

#### 【方法 (実験)】

実験には二種類の CW レーザーを用いた pump-probe 分光を用いる。一つはドーブされた CH<sub>3</sub>F によって誘起された *p*-H<sub>2</sub> の Q<sub>1</sub>(0)ピークを観測するための波長 2.4 μm の赤外 DFB 半導体レーザー、もう一つは CH<sub>3</sub>F の CF 伸縮振動モードを pump し、結晶内の CH<sub>3</sub>F(*ortho*-H<sub>2</sub>)<sub>*n*</sub> クラスタの存在比を変化させる 9 μm の赤外 QC レーザーである。

この二つのレーザーを結晶の同じ場所に当て、CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>)<sub>*n*</sub> クラスタの存在比の変化に伴う *p*-H<sub>2</sub> の Q<sub>1</sub>(0)ピークの変化を観測しその相関をとる。これを用い CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>)<sub>*n*</sub> クラスタで得られている結果を用いて *p*-H<sub>2</sub> の Q<sub>1</sub>(0)ピークの解析を行う。

#### 【結果・考察】

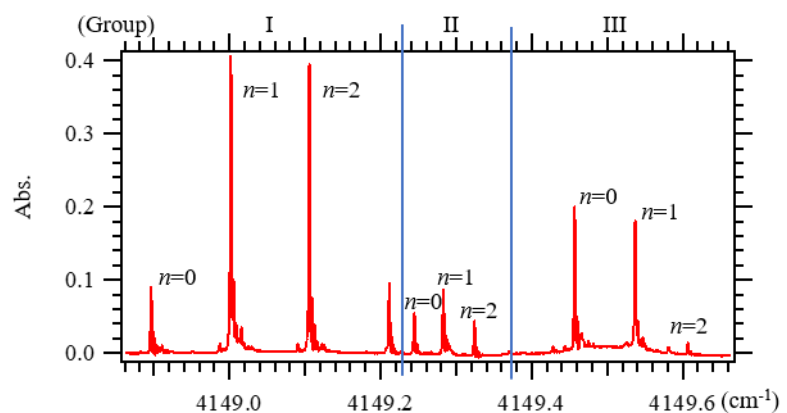


Fig. 1 Spectrum of Q<sub>1</sub>(0) peaks of *p*-H<sub>2</sub> at *ortho*-H<sub>2</sub> concentration of 1000 ppm and CH<sub>3</sub>F concentration of 40 ppm.

今回は  $Q_1(0)$ 遷移として得られる1群のピークの帰属・分類に注目して分析を行った。

(1) グループの再確認と新ピーク

$\text{CH}_3\text{F}$  をドープした際の  $p\text{-H}_2$  の  $Q_1(0)$ の例を Fig.1 に示す。これらのピークについては、pump 光による depletion 実験によって、 $n(=0,1,2,3)$ を指定した  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタからのピークとして分類される。一方、これらのピークは等間隔な3つのシリーズを形成しているため、それらを I,II,III グループとして分類することも可能である。この等間隔に現れるピーク群を構成するピーク数は、従来4,3,2本としてきたが、今回の測定でグループ III に新たなピークが観測された(Fig. 2)。これによって、各グループの構成ピーク数は皆等しい可能性がでてきた。

(2) サテライトピークの解析

今回の実験では高い S/N で測定に成功し、Fig. 1 や Fig. 2 にみられるように  $p\text{-H}_2$  の  $Q_1(0)$ ピークの強いメインピークだけでなく、その肩の部分にある弱いサテライトピークについても精度よく測定できた。その結果、サテライトピークは従来の予想よりも多くの本数存在することが明らかになった(Fig. 3)。サテライトピークについて、従来は  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタのサテライトピークの説明に用いられた第二近接サイトの  $ortho\text{-H}_2$  もクラスタに考慮した  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタモデルを  $p\text{-H}_2$  の  $Q_1(0)$ にも適用したモデルで説明されてきた。しかし、(1)の結果メインピークにおけるグループの存在を考慮すると、このサテライトピークにもグループの存在があると推測される。その場合、予想されるサテライトピークの本数は  $n'$  の最大数6にグループの数3をかけた  $6 \times 3 = 18$ 本のサテライトピークがあると考えられ、今回の測定結果はこの数のサテライトピークが存在することの証拠として考えられる。

以上、今回の結果からは  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタによって誘起される  $Q_1(0)$ 遷移について、メイン、およびサテライトピークについても3つのグループを発現させるモデルの必要性が指摘される。

【参考文献】

- [1] 京都, 第17回分子分光研究会, F15 (2017).
- [2] つくば, 第18回分子分光研究会, (2018).
- [3] K. Yoshioka and D. T. Anderson, J. Chem. Phys. **119**, 4731 (2003).

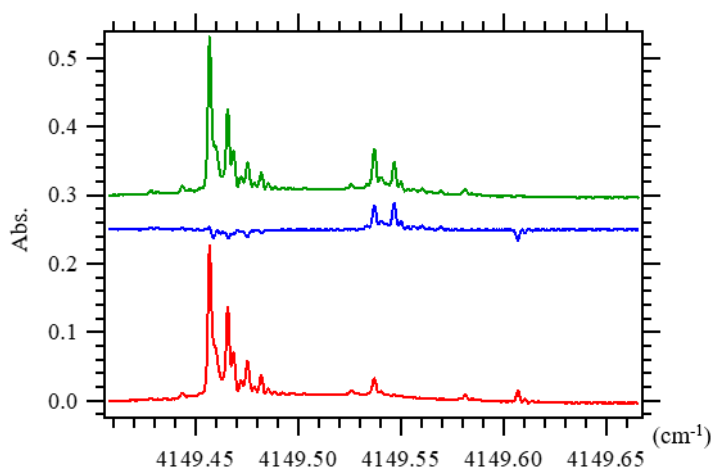


Fig. 2 Expanding the group III. Before pumping  $n=2$ (red), after pumping(green) and difference(blue). There is a peak that decreases by pumping  $n=2$  around  $4149.61\text{cm}^{-1}$ .

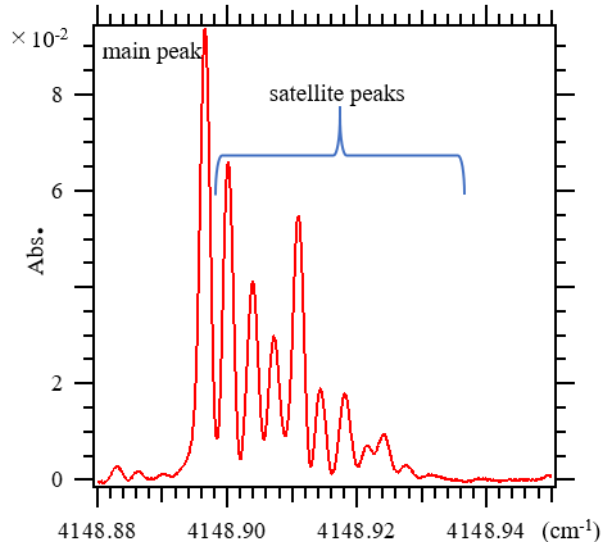


Fig. 3 Peak from  $n=0$  in the group I. In addition to the main peak at  $4148.896\text{cm}^{-1}$ , 9 or more peaks can be confirmed.