

量子凝縮相中における分子のマイクロ波分光

(原研・基礎セ) ○石黒正純・荒殿保幸

<序論> 量子凝縮相、とくに凝縮相ヘリウムはその特異かつ優れた性質（超流動・極低温・非常に小さな分極率等）により、分子科学における理想的な観測場および反応場としても注目されている。観測場として注目した場合、被捕捉分子のほとんどが基底状態に分布し、かつヘリウムとの相互作用が極端に小さいため、マトリックス中における高分解能分光が可能となるとともに、回転のような分子運動の観測さえ可能となる。

1995年に超流動ヘリウム液滴（ドロップレット）中における SF_6 の回転運動が観測されて以来、凝縮相ヘリウム中における分子の回転運動が注目されている。ドロップレット中では分子が自由回転を行っており、慣性モーメントが気相の値の1–3倍に増大することが見出されている。この分子の種類による増大の程度の違い、さらに慣性モーメントが増大する現象に対するミクロなレベルでのメカニズムを実験的に解明するには、分子の周囲の束縛状態を変え、それに対する回転運動のふるまいを明らかにすることが重要である。このような実験は内部の温度および圧力（密度）がほぼ一義的に決まってしまうドロップレットでは不可能であり、これらのパラメータを自由に制御できるバルクの系を用いてはじめて可能となる。さらに従来の赤外分光による実験では、振動緩和による線幅の広がり不可避免である。分子回転のメカニズムの解明に際し重要な鍵となる回転緩和を厳密に扱うには、振動緩和の影響を受けないマイクロ波分光法による純回転遷移の観測が重要である。

以上の経緯により、われわれはバルクの凝縮相ヘリウムを観測場としたマイクロ波分光の手法を開発し、凝縮相ヘリウム中における分子のスペクトルの観測を試みた。

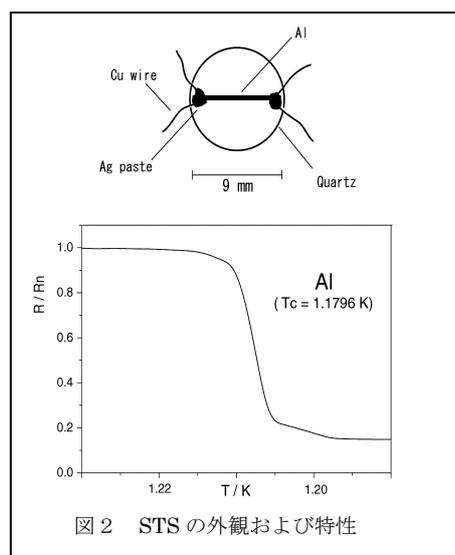
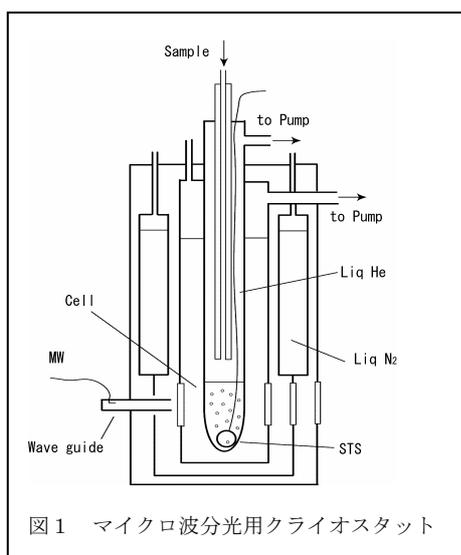
<実験装置> 凝縮相のマイクロ波分光における最大の問題点は、線幅の広がりによりピーク強度が著しく低下することである。この問題を克服するために、光熱変換検出法を採用した。この方法はマイクロ波吸収した分子が緩和する過程において生じる熱を、試料中にセットした高感度温度センサで検出する方法である。センサとして、超電導薄膜センサ (STS: Super conductive Thin film Sensor) に着目した。STSは超電導体（薄膜）の電気抵抗が超電導点付近において急激に変化する特性を利用したものであり、従来のセンサに比べて格段に高い感度をもつ。

実験装置の構成は以下のとおりである。[1. 試料セル] 直径 25 mm の石英管の先を封じたシンプルなものである。[2. クライオスタット] マイクロ波導入用の導波管を取りつけた液体ヘリウム冷却クライオスタットを用いた。冷却用液体ヘリウム層を減圧することにより、セルの温度を 4.2 K – 1.2 K の範囲で自由に設定できる。(図1) [3. STS] 水晶基板上（直径 9 mm、厚み 0.5 mm）にアルミニウム（99.99%）を 1 mm x 9 mm の帯

状に蒸着し、その両端に導電性接着剤を用いて極細電線を接着した。製作したセンサの抵抗値は室温にて約 120Ω である。(図2) [4. マイクロ波光源] 40 GHz まで発振可能なマイクロ波シナセサイザを用いた。[5. 信号処理系] センサのバイアス電流およびマイクロ波のパワーそれぞれに振幅変調をかけ、ロックインアンプで信号処理を行なった。変調周波数は前者が 20 kHz、後者が 100 Hz である。

<スペクトルの観測> はじめにテストとして固体パラ水素結晶中に少量存在するオルト水素対の吸収を測定した。この吸収は対形成にともなうオルト水素の $J = 1$ の回転エネルギー準位の分裂に相当するものであり、Hardy らにより正確な遷移周波数が測定されている¹⁾。実際に 13.65 GHz に観測される吸収線の測定を試みたところ、弱いながらも (S/N = 2) そのスペクトルを観測することができた。

つづいてバルクの超流動ヘリウム中における OCS の純回転遷移の測定を試みた。サンプルの導入は以下のようにおこなった。(1) 予冷したセルの底部の器壁に OCS を吸着させる。(2) セルを 1.3 K に冷却したのち、ヘリウムガスを注入しセルの底部に液体ヘリウムを凝縮させる。(3) YAG レーザーの 2 倍波をセルに照射し、器壁に吸着した OCS を液体ヘリウム中にたたき出す。12 - 16 GHz の範囲をスキャンしたところ、15 GHz 付近に強い吸収を観測した。吸収のピークは 14.92 GHz、線幅 (FWHM) は約 500 MHz であった。これらの値は赤外・マイクロ波二重共鳴スペクトル²⁾ から得られた、ドロップレット中における $J = 4 - 3$ の純回転線の値と非常によく一致している。おどろくべきことにレーザー照射を止めても吸収は観測されたが、強度は 80% に低下した。現在、この吸収が真に OCS の回転線によるものか慎重に追実験を進めている。



- 1) W. N. Hardy *et al.*, *Can. J. Phys.* **55**, 1150-1179, (1977)
- 2) S. Grebenev *et al.*, *J. Chem Phys.* **113**, 9060-9066 (2000)