

量子固体中の分子の振動緩和の研究

(京大院理) ○安藤大介・宮本祐樹・香月浩之・百瀬孝昌

【序論】

固体パラ水素は固体内の分子間相互作用が非常に小さいことが知られている。また、量子固体の特質として均一な結晶構造を常にとることから、固体パラ水素中に捕捉されたゲスト分子はすべて同じ環境におかれる。これらの性質のため固体水素中では不均一幅の影響をほとんど受けないゲスト分子の高分解能スペクトルが得られる。この性質を利用して、今回我々はパラ水素中に捕捉した CD_4 の赤外振動回転スペクトルを測定し、1Kから 6Kまでの温度範囲で均一幅の温度変化を調べた。

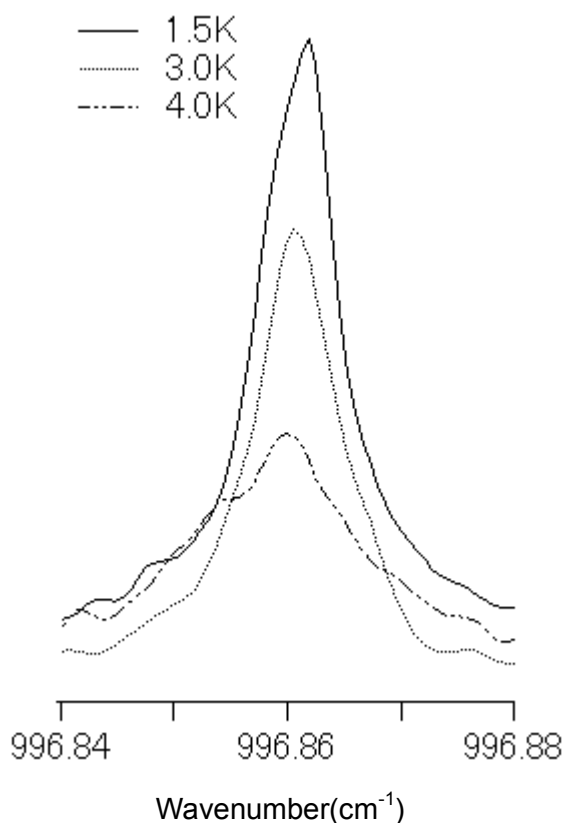
結晶中での不純物の均一幅の温度変化についてはこれまで多くの理論的なアプローチがなされている [1]。結晶フォノンについて、デバイタイプの acoustic phonon を仮定して純粋位相緩和を考える場合、均一幅が温度の 7 乗に比例する結果が導かれる。また、pseudolocal phonon を仮定した場合、均一幅が Arrhenius 型を示す結果が得られる。過去に我々の研究グループでは、この2つモデルを検証するために、固体パラ水素中に捕捉された CD_4 の赤外スペクトルを測定し、4K から 8K までの温度範囲で線幅の温度変化を調べた [2]。しかし、4K から 8K までの狭い温度範囲では適切なモデルを選択するまでにはいたらなかった。今回 ^3He クライオスタットを用いることで、初めて 4K 以下での測定が可能となり、新たに、1K から 6K までの温度範囲で固体パラ水素中の CD_4 のスペクトルを測定することで、線幅の温度依存性のより正確なプロットが得られた。

【実験】

気相中での CD_4 とパラ水素の混合ガスの CD_4 濃度は 0.0014%、結晶は 8.5Kを維持しながら 2 時間かけて作成した。実験に必要な低温は ^3He クライオスタットを用いて実現した。スペクトルの測定には BRUKER IFS-120HR を用い、 $719\sim 1436\text{cm}^{-1}$ の範囲を分解能 0.0035cm^{-1} で測定した。スペクトルの測定は 1.0K～6.0Kの温度範囲で行った。

【結果】

測定の結果、単離された CD_4 の ν_4 (非対称振動)モードが観測された。スペクトルの各振動回転線は完全に Lorentz 関数でフィッティングできた。このことから、不均一幅の影響がまったくないことがわかる。

図 1 : CD_4 の ν_4 の R(0)遷移

1.5K、3.0K、4.0Kでの吸収スペクトルの ν_4 のR(0)遷移($J=1\leftarrow 0$ 、 $M=\pm 1\leftarrow 0$)を図1に示す。温度が上がるにつれてブロードになるのがわかる。この遷移の線幅の温度変化を図2に、低温域での温度変化を図3に示す。縦軸は吸収スペクトルの半値幅、横軸は絶対温度である。スペクトルの各吸収線の線幅の温度依存については温度の約5乗で良くフィットできた。Arrhenius型では低温域でのフィットに差がみられた。したがって、固体水素中では主としてデバイ型の緩和をしていると考えられる。解析の詳細を当日報告する。

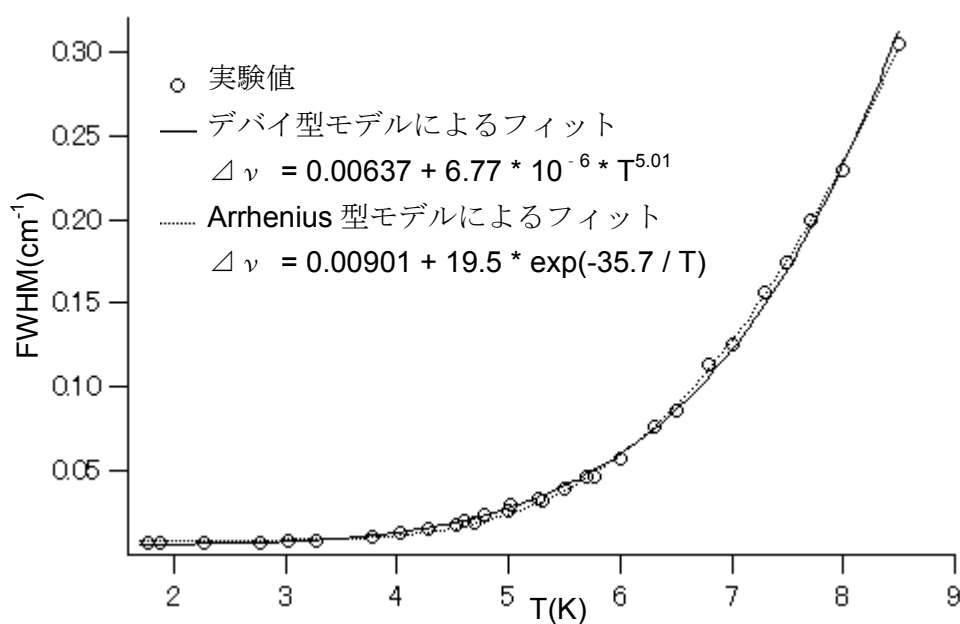


図2：線幅の温度変化

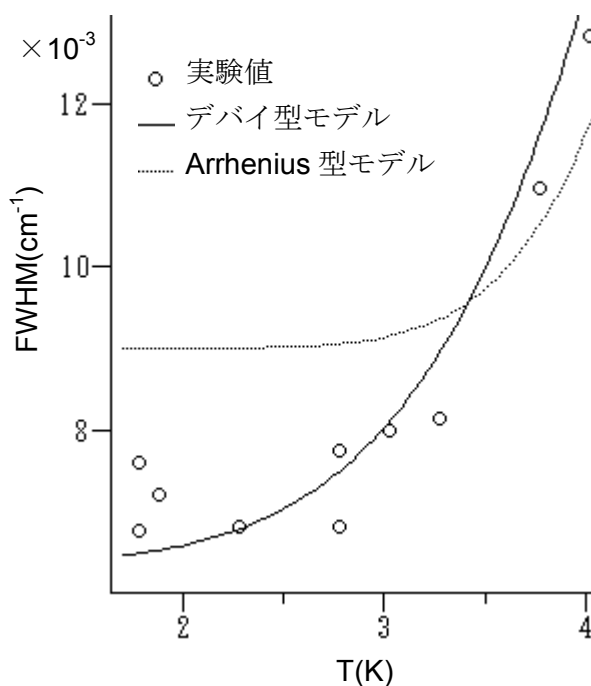


図3：線幅の温度変化

参考文献

- [1] J. L. Skinner, and D. Hsu,
Chem. Phys. **128**, 35 (1988)
- [2] H. Katsuki, and T. Momose,
Phys. Rev. Lett. **84**, 3286 (2000)