

1P090 量子凝縮相中における分子のマイクロ波分光（2）

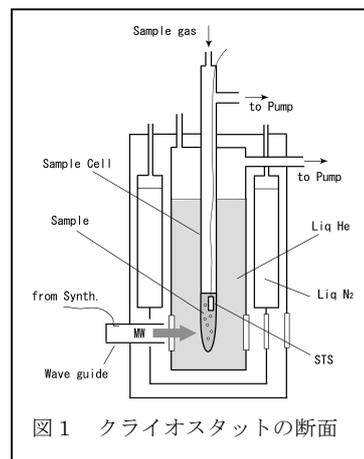
ーバルク液体ヘリウム中におけるアンモニアの反転スペクトルの観測ー

（原研・基礎セ） ○石黒正純・荒殿保幸

＜序論＞ 量子凝縮相中、とくに超流動ヘリウム中における分子運動は、外部の等方的な束縛とカップルした分子運動を考える上で非常に適した系である。ヘリウムの超流動性や著しく小さい分子間相互作用は、通常のマトリックス中では観測困難であった分子回転の観測、さらに高分解能分光による観測を可能にする。近年、超流動ヘリウム液滴中における分子運動、とくに分子回転の研究がさかんに行われている。しかしながら液滴中における温度は **0.37 K**、圧力はほぼ真空と、その条件はほぼ一義的に決まってしまう [1]。すなわち「束縛された運動」の観測場としてみた場合、その束縛条件（温度、圧力）を変える実験ができないという点で非常に制約が大きい。われわれは内部の温度、圧力を自由に変えられるバルクの液体ヘリウムを観測場とすることで、束縛状態下にある分子運動のふるまいと、束縛条件の相関を系統的に明らかにしていくことを目指している。

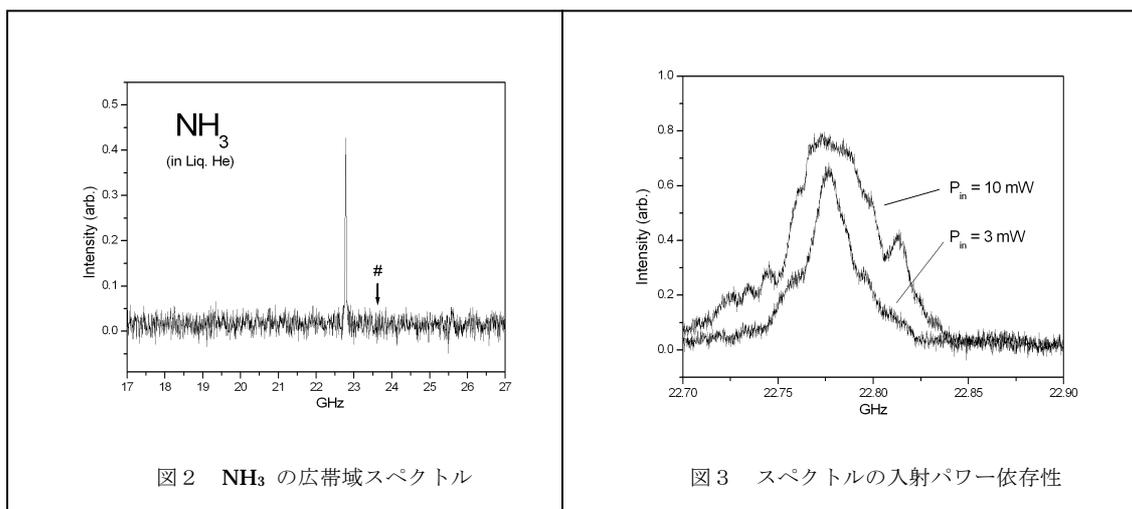
超流動ヘリウム中の分子運動において、興味深い対象の一つがトンネル運動、とくにアンモニアの反転運動である。気相中における基底状態のトンネル分裂の大きさが **~24 GHz** であり、2極小ポテンシャルの障壁の高さが **~2000 cm⁻¹** であることは非常によく知られている [2]。凝縮相中においては、超流動ヘリウム液滴中における赤外分光 [3] や **Ar, Ne, Kr, Xe, N₂** 等の固体マトリックス中における赤外分光 [4] による研究が知られている。しかしながら、これらの研究によってわかるのは励起状態と基底状態における分裂の差であり、基底状態の正確なトンネル分裂の決定は不可能であった。反転運動の分子内ポテンシャルが周囲のヘリウムの存在でどのように変化するのか？また、系の温度・圧力を変えていくことで、どのように変わっていくのかは、非常に根本的かつ興味深いテーマである。以上の経緯により、われわれはバルク超流動ヘリウム中におけるトンネル分裂を、マイクロ波分光法により直接観測することを試みた。

＜実験＞ 凝縮相のマイクロ波分光における最大の問題点は、線幅の広がりによるピーク強度の著しい低下である。この問題を克服するために、超電導薄膜センサ (STS) を用いた光熱変換検出法を開発した。図1に実験に用いたクライオスタットの模式図を示す。**20 ppm** のアンモニアをシードしたヘリウムガスを、**1.4 K** に冷却した石英製試料セル（内径 **22 mm**）中に凝縮させた。導波管の開放端よりマイクロ波を照射し、アンモニアの吸収による系の温度上昇を **STS** により検出した。



<観測されたスペクトルおよび考察> **12 – 36 GHz** の領域で観測を行い、**22.78 GHz** に鋭いピークを観測した (図2)。クライオスタット内部の金属部品の配置を変えても中心周波数に変化しないこと (=マイクロ波反射の影響ではない)、スペクトル線形および強度のマイクロ波パワー依存性、さらに強度の時間的挙動より、これらの吸収は **NH₃** による可能性が非常に高い。現在、窒素同位体種、**¹⁵NH₃** を用いた最終確認を行なっている。図3に拡大したスペクトルおよび、そのマイクロ波パワー依存性を示す。入射パワーが **3 mW** のときの線幅は 約 **20 MHz** であった。**10 mW** 入射時にはピーク強度が頭打ちになり飽和が生じていることがわかる。

系の温度 (**1.4 K**)、アンモニアの回転エネルギー ($B = 9.96 \text{ cm}^{-1}$, $\sim 14.3 \text{ K}$)、および振動回転準位の対称性を考慮すると、液体ヘリウム中においてはアンモニア分子のほとんどが、 $(J, K) = (0, 0), A_2$ および $(1, 1), E$ の回転エネルギー順位に分布し、そのうち実際にトンネル分裂が観測できるのは $(J, K) = (1, 1)$ の準位のみである。 $(K = 0)$ のレベルはパウリの排他律により分裂の片方の準位しか存在できない。) 観測された **22.78 GHz** の吸収が、 $(J, K) = (1, 1)$ の準位のトンネル分裂であると仮定すると、その値は気相での値 (**23.694 GHz**、図2に#で示す。) の **96.1%** となる。この値はヘリウムがアンモニアの反転運動に与える影響が非常に小さいことを示す。今後はスペクトルの温度・圧力効果の観測を進めていく予定である。



- [1] H. Hartmann *et al.*, Phys. Rev. Lett. 75, 1566 (1995)
- [2] C. H. Townes *et al.*, "Microwave Spectroscopy", McGraw-Hill (1955)
- [3] J. M. Behrens *et al.*, Chem. Phys. 109, 5914 (1998)
- [4] L. Abouaf-Marguin *et al.*, J. Mol. Spectrosc. 67, 34 (1977)