

### 3E05 少数多体系の液・固相転移 —超流動ヘリウム液滴中の少数クラスタの分光研究から (京大院理) ○百瀬孝昌

【序】 ヘリウムや水素分子の液体や固体（量子凝縮相）は、粒子間の相互作用が極端に弱いこと、その中に捕捉した原子・分子の高分解能分光ができることが最近の研究で明らかになり、究極の極低温分光媒質（マトリックス）として注目を集めている [1,2,3]。量子凝縮相中では単離した原子分子だけでなく、原子・分子の少数クラスタについても高分解能分光が可能であり [4,5,6]、ナノクラスタの極低温における性質を分光学的に明らかにする上で量子凝縮相は有用な分光媒質である。本講演では、超流動ヘリウム液滴の中に捕捉した原子・分子の少数クラスタの高分解能分光研究から明らかになった少数クラスタの液・固相転移について報告する。

【超流動ヘリウム液滴】 20-30atom 程度に加圧したヘリウムガスを、10-20K の温度に冷却し、10 $\mu$ m 程度のピンホールから真空中に噴出させると、ヘリウム原子数が 10<sup>3</sup>-10<sup>4</sup> 程度のヘリウム液滴を生成できる [7]。この液滴の温度は生成条件によらずおよそ 0.38K であり、超流動状態になっていることが知られている。そのため、このヘリウム液滴内に捕捉された分子の振動・回転運動は完全に量子化される。ヘリウム液滴は、他の原子・分子がほんのわずかに気相状態で存在する領域（ピックアップセルと呼んでいる）の中を通過させると、その原子・分子を容易にその内部に取り込むという性質を持つ。内部に取り込む数は、ピックアップセル内の圧力を変えることで制御でき、1つから数千までの数の原子・分子を取り込むことができる [6]。またピックアップセルを複数並べることで、異なる原子・分子を任意の数取り込むこともできる。このようにしてヘリウム液滴中に取り込んだ原子・分子はヘリウム液滴の中心でクラスタとなる。このクラスタも高分解能分光が可能であるため、極低温下の原子・分子のナノクラスタの性質を分光学的に明らかにすることができる。

【超流動ヘリウム液滴中のフタロシアニン】 超流動ヘリウム液滴中には、フタロシアニンのような巨大分子も捕捉できる。その S<sub>1</sub> - S<sub>0</sub> LIF スペクトルは、非常にシャープである [8]。我々は、超流動ヘリウム液滴中のフタロシアニンにさらに Ar や H<sub>2</sub> を付加させたときの S<sub>1</sub> - S<sub>0</sub> LIF スペクトルの zero phonon line 付近の高分解能スペクトルの測定を試みた。図 1 は H<sub>2</sub> を付加したときのスペクトルである。中心の強いスペクトルはフタロシアニンのみの場合の S<sub>1</sub> - S<sub>0</sub> zero phonon line である。その周りに弱いピークが何本観測された。これは、H<sub>2</sub> が 1つまたは 2つ付加したフタロシアニンのスペクトルに対応することが、ピックアップセル中の水素分子の圧力変化から明らかである。H<sub>2</sub> が 1つまたは 2つ付加したフタロシアニンがシャープ（線幅  $\sim 0.5\text{cm}^{-1}$ ）な zero phonon line を示すことは、H<sub>2</sub> とフタロシアニンがしっかりとしたクラスタを作っていることを示している。

さらに、ピックアップセル中の水素分子の圧力を増加させ、10-100 個の水素分子を付加させたとき、1, 2 個のクラスタの場合に観測されていたシャープな zero phonon line が消失し、線幅が数百 cm<sup>-1</sup> にも及ぶブロードな LIF 信号のみが観測された。（図 2）この LIF 信号のブロードニングは Ar, N<sub>2</sub> などを付加させた場合でも同様に観測された。

このブロードニングのメカニズムについてはいくつかの可能性が考えられるが、われわれ

は、あるクラスターサイズ以上では付加した水素分子のクラスターの揺らぎが大きくなるために起きていると考えている。すなわち、少数クラスターの場合はフタロシアニンの周りに固体のように堅く結合しているが、ある程度の大きさのクラスターになると、液体のような大振幅振動運動をおこしだすと考えられる。このような、少数クラスターのサイズによる固体・液体相転移はJortner らによってテトラセン-Arのクラスターについて報告されている[9]。また、少数クラスターの固体・液体共存が、極低温でも起こることがBerryらによって理論的に示されている[10]。今回の観測されたブロードニングはJortner らによって観測されたテトラセン-Arの系より極低温で起き、しかも線幅の広がりには10倍ほど大きい。このことから超流動ヘリウム液滴にはクラスターをより軟らかくする効果があるということが出来る。いずれにしても、極低温でも少数クラスターの液体化が起こっている可能性があり、興味深い結果である。当日詳細を報告する。

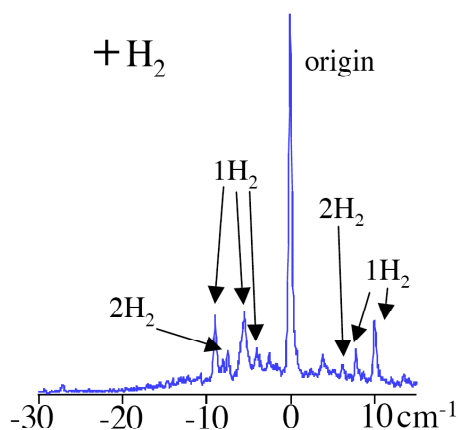


図1 H<sub>2</sub>を1,2個付加させたフタロシアニンのS<sub>1</sub> - S<sub>0</sub> zero phonon line.

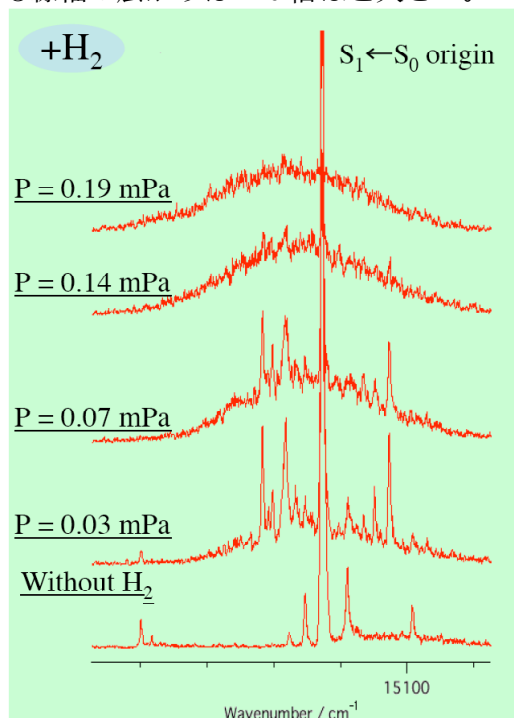


図2 H<sub>2</sub>を数10～数百付加させたフタロシアニンのS<sub>1</sub> - S<sub>0</sub> zero phonon line.

- [1] K. K. Lehmann, and G. Scoles, *Science*, **279**, 2065 (1998).
- [2] J. P. Toennies, A. F. Vilesov, and K. B. Whaley, *Phys. Today*, **54**, 31 (2001).
- [3] T. Momose, H. Hoshina, M. Fushitani, and H. Katsuki, *Vib. Spectrosc.* **34**, 95 (2004).
- [4] S. Grebnev, M. Hartmann, M. Havenith, B. Sartakov, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *J. Chem. Phys.* **112**, 4485 (2000).
- [5] T. Momose, H. Katsuki, H. Hoshina, N. Sogoshi, T. Wakabayashi, and T. Shida, *J. Chem. Phys.* **107**, 7717 (1997).
- [6] H. Hoshina, M. Slipchenko, and A. F. Vilesov, 本討論会, 1E12 (2004).
- [7] J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **49**, 1 (1998).
- [8] A. Slenczka, B. Dick, M. Hartmann, J. P. Toennies, *J. Chem. Phys.* **115**, 10199 (2001).
- [9] N. Ben-Horin, U. Even, J. Jortner, and S. Leutwyler, *J. Chem. Phys.*, **97**, 5296 (1992).
- [10] R. S. Berry, J. Jellinek, and G. Natanson, *Phys. Rev. A* **30**, 919 (1984).