

# 高分解能赤外分光によるドーパント誘起の固体パラ水素 $Q_1(0)$ およびサテライトピークの線形と帰属

(東工大理<sup>a</sup>) ○中井川晃<sup>a</sup>・金森英人<sup>a</sup>

Line shape and assignment of dopant-induced  $Q_1(0)$  and its satellite lines of solid parahydrogen by high resolution IR laser spectroscopy  
(Tokyo Tech.<sup>a</sup>) Akira Nakaigawa<sup>a</sup>, Hideto Kanamori<sup>b</sup>

We are interested in how a dopant affects on the spectral line shape of vibrational transition of *para*- $H_2$  in the crystal. Gaussian and Lorentzian components in the line profile and the spectral frequency may depend on the number and position of *ortho*- $H_2$  around the dopant. The temperature dependence in the line profile and peak position is another subject of our research. This time we present some results about  $Q_1(0)$  transition of *para*- $H_2$  around the point defect of  $CH_3F$  doped in a *para*- $H_2$  crystal at the temperature around 1K.

【序】パラ水素結晶中のパラ水素分子やドーパされた分子の吸収スペクトルの線形は均一な幅を持つ Lorentzian 成分と不均一な幅を持つ Gaussian 成分が合成された形をしている。これらの成分は温度の変化に対し、Gaussian 成分は変化しない一方で Lorentzian 成分は温度の 4 乗に比例して増加するという結果が報告されている[1]。本研究においては、不純物としてドーパされた  $CH_3F$  によって誘起されたパラ水素の振動遷移のスペクトル線幅と周波数シフトを通して、点欠陥の局所的な物理情報を引き出すことを目的としている。今回は  $CH_3F$  の最近接格子サイトおよび第 2 近接サイトに入るオルト水素の個数によって、パラ水素のスペクトル線がどのように影響を受けるかを測定し、 $CH_3F$  をドーパしていない場合のスペクトルとどのように異なる振る舞いを示すかを調べた。また先行研究[2]において、温度が変化した際にはスペクトル線幅だけでなく、ピークの位置も変化することが報告されているので、不純物近傍にあるパラ水素の遷移周波数の温度依存性についても調べることにした。

【実験】  $CH_3F$  をドーパしたに出現するパラ水素の  $Q_1(0)$  遷移を高分解能で観測するために、2.4 ミクロンの DFB レーザーを用いた吸収分光を行った。 $CH_3F$  によって誘起されたパラ水素のピークは最近接サイトにあるオルト水素の数に応じて異なる位置に複数本出現する。さらにそれぞれのピークの近傍にはサテライトピークがシリーズで存在する[3]。

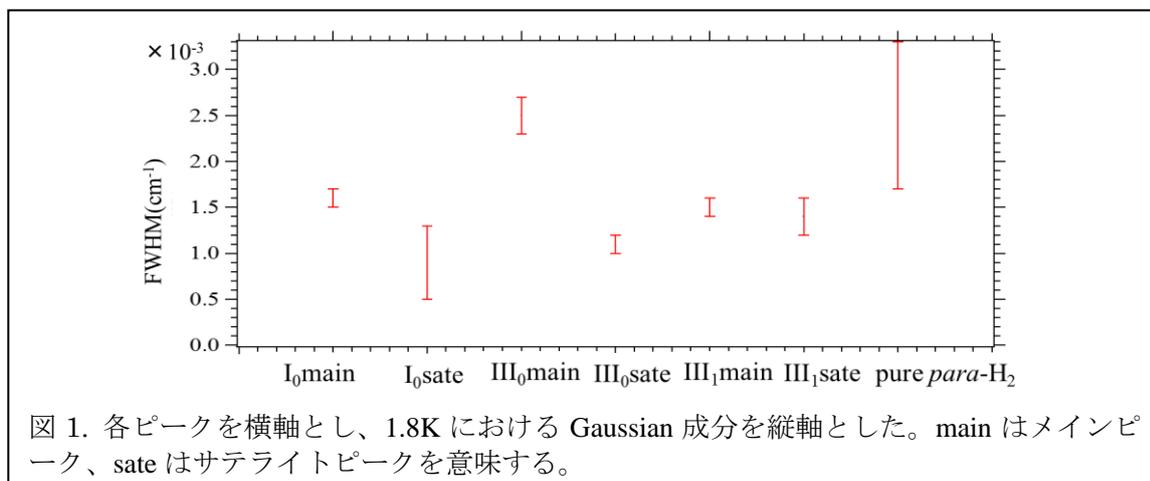


図 1. 各ピークを横軸とし、1.8K における Gaussian 成分を縦軸とした。main はメインピーク、sate はサテライトピークを意味する。

今回はこれらのピークに対して、NH<sub>3</sub>分子の赤外スペクトルを周波数標準とする絶対周波数測定とスペクトル線形の温度依存性を1.8から4.3Kの範囲で測定した。

### 【結果と考察】①ピークの線形

図1に各ピークの1.8KでのGaussian幅をまとめて示した。いずれのピークも、50MHz前後のほぼ同じ値を取り、メインやサテライトで大きな差がないことが分かった。参照値としてCH<sub>3</sub>Fをドープしていない時の結果を図中右端に示したが、これとも大きな差が無いことから、Gaussian幅は不純物の存在に因るものではなく、結晶の単結晶としての不均一性に起因することを示唆している。

図2にメインピークの全スペクトル線幅の温度依存性の結果を示す。全線幅については、純粋なパラ水素の結果とは定数倍の差があるものの、温度の4乗に依存するとした先行研究の結果と一致している。このことは、パラ水素の線幅の温度依存性を決定する物理過程において、CH<sub>3</sub>Fは敏感性を増大させるものの、本質的な違いはないと考えられる。

### ②ピークのシフト

図3にメインピークの遷移周波数について、3.0, 4.3Kでの値を1.8Kからのシフトとして示した。点数は少ないが直線的に増加する傾向は、参照データとして示した、CH<sub>3</sub>Fがドープされていない先行研究の結果とは定性的な違いがあるように見られる。

### ③サテライトピークの帰属と線形

観測された一部のサテライトピークについてはCH<sub>3</sub>Fのν<sub>3</sub>バンドで観測されたサテライトピーク[4]とのポンププローブ実験によるスペクトル強度変化の相関から対応するパラ水素のサテライトピークの帰属を行うことに成功した。また、それらのピークについて行ったスペクトル線形の温度依存性は図1に示すようにメインピークとほぼ同様であった。特にGaussian成分については純粋なパラ水素の結果とほぼ同じ値になり、不均一幅を作る物理過程は周囲のオルト水素によらないことが示された。

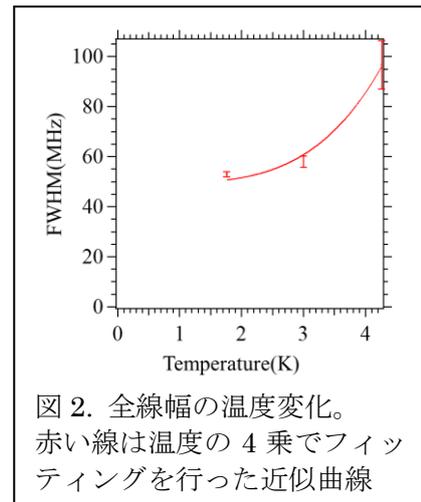


図2. 全線幅の温度変化。  
赤い線は温度の4乗でフィッティングを行った近似曲線

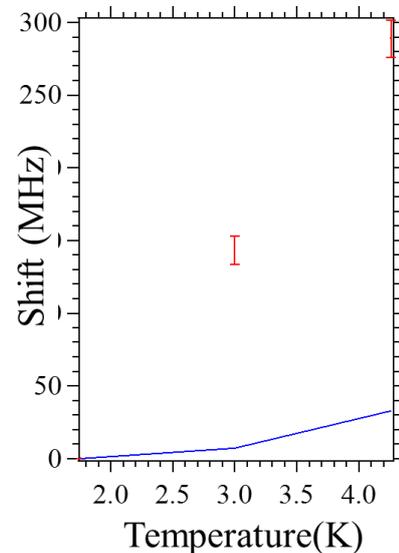


図3. メインピークの温度による遷移周波数のシフト量。赤はCH<sub>3</sub>Fをドープした結晶、青は純粋なパラ水素の結果[2]をこの温度まで延長したもの。

### 参考文献

- [1] H. Katsuki and T. Momose, Phys. Rev. Lett. **84**, 3286 (2000)
- [2] K.E. Kerr, T. Momose, D. P. Weliky, C. M. Gabrys and T. Oka, Phys. Rev. Lett. **72**, 3957 (1994)
- [3] 分子分光研究会 2017 中井川晃, 川崎博之, 金森英人
- [4] H. Kawasaki, A. Mizoguchi and H. Kanamori, J. Mol. Spectrosc. **310**, 39 (2015)