



Pd(210)表面における分子状化学吸着水素分子の核スピン および回転状態の転換

INTRODUCTION

背景

- ✓水素分子の核スピン異性体(回転状態と結合)
→転換は孤立系で禁制, 表面との相互作用で促進
- ✓Pd(210)表面で水素は分子状化学吸着
→異方性ポテンシャル&電子の移動積分が増強
→オルソパラ転換が促進される

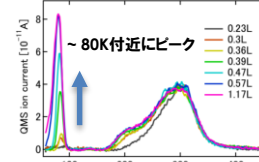
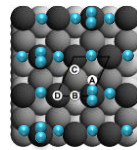
本研究の目的

- ✓Pd(210)表面の異方性ポテンシャルによる回転状態および核スピン転換への寄与を解析する

全波動関数

$$\Psi \propto \chi_n \cdot Y_{J,M}(\theta, \phi) \quad \dots \text{陽子交換に} \\ \text{核スピン} \quad \text{回転} \quad \text{対して反対称}$$

Pd(210)表面での分子状化学吸着



P. K. Schmidt et al., PRL 87 (2001)

J	χ_n	$Y_{J,M}$	異性体
奇数	反対称	対称	オルソ
偶数	対称	反対称	パラ

$$(\mathcal{H}_0 + V(\theta))\psi = E\psi$$

異方性ポテンシャル

$$\Rightarrow \psi'_p = C_0 Y_{00} + C_2 Y_{20} + C_4 Y_{40}$$

$$\psi'_o = C_1 Y_{10} + C_3 Y_{30} + C_5 Y_{50}$$

REMPI-TPD

S. Ohno et al., PRB 97 (2018)

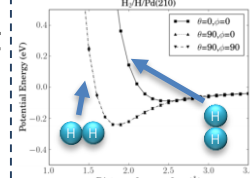
異方性ポテンシャル

- ✓分子軸方向に依存する異方性ポテンシャルの存在
- ✓異方性ポテンシャルに由来してオルソパラ転換に必要なエネルギーが減少

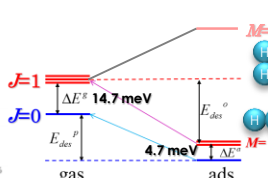
REMPI-TPD

- ✓回転選択的に熱脱離スペクトルを観測
→Jによってピーク位置が異なる
- ✓オルソパラ比の吸着時間依存性
→~100 sで既に熱平衡に達する
→異方性ポテンシャルに起因する速い転換を示唆
- ✓オルソパラ転換時間の見積り
...昇温に伴う熱平衡とのズレを計測
⇒ $\tau \sim 0.8$ s なる転換時間を予測

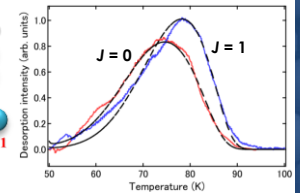
異方性ポテンシャル



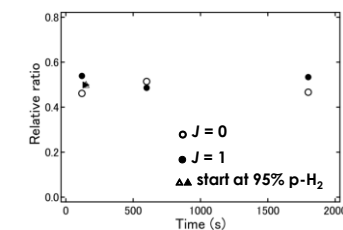
エネルギーダイアグラム



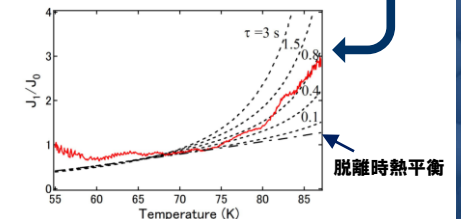
REMPI-TPD



オルソパラ転換



転換時間スケール



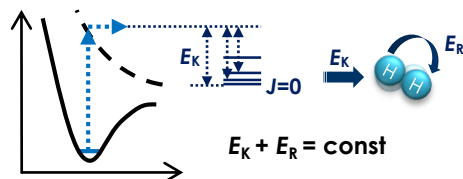
REMPI-PSD

光脱離水素分子の飛行時間(TOF)

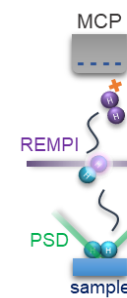
- 複数のMaxwell-Boltzmannピークが出現
- ✓吸着水素分子の回転固有関数
⇒ 光脱離中の電子励起による回転遷移を考慮 (hönli-london因子)

理論値	C ₀	C ₁	C ₂	C ₃	C ₄	C ₅
ψ_p	0.27		0.61		0.12	
ψ_o		0.41		0.45		0.15

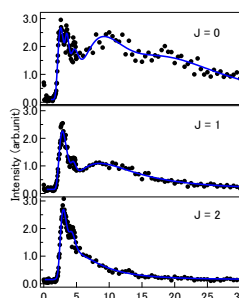
並進・回転エネルギーの和の保存(第1成分)



REMPI-PSD



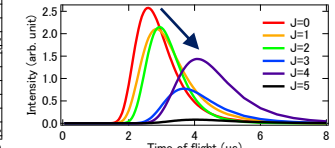
TOF(44 K)



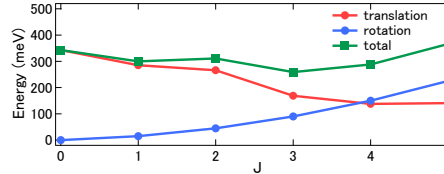
波動関数(第1成分)

	C ₀	C ₁	C ₂	C ₃	C ₄	C ₅
ψ_p	0.38		0.29		0.32	
ψ_o		0.69		0.29		0.03

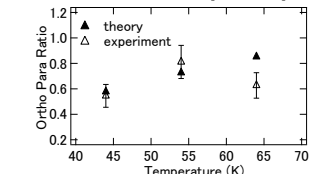
第1成分(44 K)



並進・回転エネルギー(第1成分)



試料温度とオルソパラ比(第1成分)

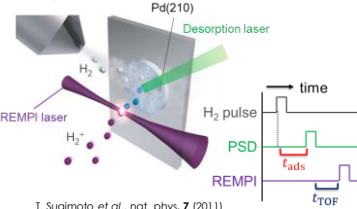


PROSPECT

今後の展望

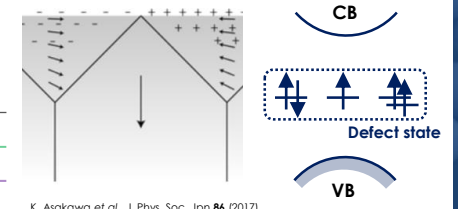
- ✓水素分子ビームを用いた転換時間の計測
→REMPI-PSDと併せ, Pd(210)や磁性体表面におけるミリ秒時間分解能での測定を実現
- ✓水素分子を用いた表面スピンの検出
→表面磁気構造との相関を解明

水素分子ビーム × REMPI-PSD



T. Sugimoto et al., nat. phys. 7 (2011)

表面磁性



K. Asakawa et al., J. Phys. Soc. Jpn 86 (2017)