

## Xe凝縮層中に分離したH<sub>2</sub>Oの核スピン転換率の温度依存性

学習院大・理

○山川紘一郎, 山口姫和, 荒川一郎

### Temperature dependence of nuclear spin conversion rate of H<sub>2</sub>O isolated in solid Xe

○Koichiro Yamakawa, Kiwa Yamaguchi, Ichiro Arakawa

*Department of Physics, Gakushuin University, Japan*

#### 【Abstract】

A H<sub>2</sub>O molecule includes two hydrogen nuclei in the C<sub>2</sub>-symmetric positions, and therefore is classified into either the ortho or para isomer. Since the proton-permutation symmetry allows only specific combinations of the nuclear-spin- and rotational-states, we monitored the rotational relaxation of H<sub>2</sub>O isolated in solid Xe with use of infrared spectroscopy to observe its nuclear spin conversion. In the infrared absorption spectrum, we detected both the rovibrational peaks of ortho- and para-H<sub>2</sub>O. The time evolution of the spectrum showed the increase of the para peak in intensity as well as the decrease of the ortho one. This result means the nuclear spin conversion from ortho to para. Plotting the integrated intensities of these absorption peaks, we determined the conversion rate of H<sub>2</sub>O in a Xe matrix. We will show the analysis of the temperature dependence of the rate on the basis of the phonon-mediated relaxation model established previously and will discuss the relaxation channels.

#### 【序】

H<sub>2</sub>Oは核スピン1/2のH原子核(陽子)を2つ対称位置に有するため、全核スピン $I$ の値によって、オルソ( $I=1$ )とパラ( $I=0$ )の2種類の異性体に区別される。核スピン異性体の存在比は、熱平衡分布を考えることで温度と1対1に対応づけられ、これを核スピン温度と呼ぶ。様々な天体で観測されてきたH<sub>2</sub>Oの核スピン温度[1-3]を正しく解釈するためには、凝縮系における核スピン転換の研究が必要不可欠である。

非対称こま分子であるH<sub>2</sub>Oの回転準位は、 $J_{K_a K_c}$ とラベル付けされる。ここで、 $J$ は回転角運動量の量子数を表し、 $K_i$  ( $i = a, c$ )はその分子軸 $i$ への射影成分に対応するパラメータである。フェルミオンである2つのH原子核の交換について分子の全波動関数が反対称になる必要があるため、 $K_a + K_c$ の値はオルソでは奇数、パラでは偶数のみを取り得る。このように、核スピン状態と回転状態とは特定の組み合わせのみが許され、赤外分光法による回転緩和の測定からH<sub>2</sub>Oの核スピン転換率が得られる。

転換率の温度依存性は転換時のエネルギー緩和経路を知る上で特に重要な情報であるが、温度依存性と緩和経路を結びつける肝心な理論モデルが存在せず、電子スピンの緩和モデル[4]が慣習的に代用されてきた。著者らは以前の研究において、このモデルを核スピンの転換に適用することの問題点を指摘し、凝縮系のフォノンとの相互作用による核スピン緩和のモデルを構築した[5]。さらに、Arマトリックス中のH<sub>2</sub>Oの核スピン転換率を赤外分光法で測定し、その温度依存性が著者らのモデルによって良く再現されることを示した。マトリックス種を替えると、H<sub>2</sub>Oの束縛回転準位のエ

エネルギー間隔とフォノンの状態密度の両方が変化する。よって、核スピン緩和モデルをさらに検証するためには、転換率のマトリックス種依存性を実験と理論で比較することが大変有効である。

本研究では、Xe マトリックス中に分離した H<sub>2</sub>O の赤外分光を超高真空下で測定した。赤外吸収スペクトルの時間変化から核スピン転換率を 5-15 K の範囲で測定した。さらに、核スピン緩和モデルに基づいて転換率の温度依存性を解析し、モデルの妥当性を検証した。

### 【方法 (実験・理論)】

実験装置は、超高真空容器、液体ヘリウム連続フロー型クライオスタット、フーリエ変換型赤外分光計、HgCdTe 検出器から成る。超高真空容器の到達圧力は  $1 \times 10^{-8}$  Pa であった。クライオスタットに無酸素銅製の試料ホルダーを接続し、その上に金基板を固定した。基板温度はシリコンダイオードで直接測定し、クライオスタット下部に取り付けた通電加熱ヒーターを用いて制御した。水は凍結脱気を繰り返すことにより予め精製し、水蒸気と Xe ガスを気体溜めで混合した。混合比は水晶振動子真空計で測定し、Xe/H<sub>2</sub>O = 1000 とした。微流量調整バルブを通して混合ガスを超高真空容器に導入し、5 K に冷却した金基板上に蒸着して試料を生成した。試料には 20 K でアニール処理を施し、その後測定温度まで急冷して赤外吸収スペクトルの時間変化を測定した。

### 【結果・考察】

H<sub>2</sub>O の変角振動領域のスペクトルに、2 つの主要な振動回転吸収ピークを検出した。この内、1604 cm<sup>-1</sup> のピークはオルソ H<sub>2</sub>O に由来する 1<sub>10</sub>←1<sub>01</sub> の遷移に、1629 cm<sup>-1</sup> のピークはパラ H<sub>2</sub>O 由来の 1<sub>11</sub>←0<sub>00</sub> の遷移に帰属するものとした。オルソのピーク強度は時間の経過と共に減少したのに対し、パラのピーク強度は増加した。この結果は、オルソ→パラの核スピン転換を伴う回転緩和が進行したことをはっきりと示している。5-15 K の範囲の各温度において、ピークの面積強度の時間変化をプロットし、指数関数を用いてフィッティングすることにより、Xe マトリックス中の H<sub>2</sub>O の核スピン転換率を求めた。本発表では、フォノン介在の核スピン緩和のモデルに基づく転換率の温度依存性の解析を示し、緩和経路を議論する。また、Ar マトリックス中での実験結果[5]と比較し、転換率が回転準位のエネルギー間隔とフォノンの状態密度にどのように依存するかを明らかにする。

### 【参考文献】

- [1] M. J. Mumma *et al.*, *Science* **232**, 1523 (1986).
- [2] M. J. Mumma *et al.*, *Astron. Astrophys.* **187**, 419 (1987).
- [3] M. Emprechtinger *et al.*, *Astron. Astrophys.* **521**, L28 (2010).
- [4] P. L. Scott *et al.*, *Phys. Rev.* **127**, 32 (1962).
- [5] K. Yamakawa *et al.*, *Eur. Phys. J. D*, **71**, 70 (2017).