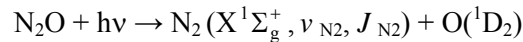


## 高分解能画像観測法による $N_2O$ 光解離過程の研究 — $O(^1D)$ の散乱角度分布と電子軌道整列 —

(理研、清華大<sup>†</sup>) 小城 吉寛、○高口 博志、莫 宇翔<sup>†</sup>、鈴木 俊法

【序】直線分子  $N_2O$  は、紫外吸収帯(185 ~220 nm)において屈曲構造を持つ  $A'(^1\Delta)$  および  $A''(^1\Sigma)$  に遷移した後、



の光解離を生じる<sup>1)</sup>。我々はこれまで、解離生成  $N_2$  の高分解能散乱画像を観測し、その並進速度分布から、 $N_2O$  変角振動励起による光吸収断面積の増大や高回転励起  $N_2$  フラグメントの生成を明らかにしてきた。本研究では、 $O(^1D_2)$  の電子軌道角運動量 ( $L = 2$ ) 整列に関するパラメーターを決定し、光解離動力学のより詳細な知見を得た。

【実験】ナノ秒パルス深紫外光を  $N_2O/Ar$  試料気体の分子線に照射し、解離生成した  $O(^1D_2)$  の並進速度・角度分布を高分解能画像観測装置にて測定した。YAG レーザー励起の色素レーザー出力の第三高調波として得た深紫外光は、 $N_2O$  の一光子吸収に伴う解離と、生成物の(2+1)共鳴多光子イオン化 (REMPI) とを同一の光パルスで起こす。 $O(^1D_2)$  のイオン化には  $^1F_3(203.8 \text{ nm})$  および  $^1P_1(205.5 \text{ nm})$  の2つの共鳴準位を利用した。 $O(^1D_2)$  の散乱画像は文献1でも報告したが、これは連続分子線 ( $N_2O$  の振動温度約 295 K) を用い測定したものであり、 $N_2O$  変角振動  $\nu_2 = 0, 1$ , および 2 を始状態とする過程の散乱画像が重なったものである。本研究では、試料気体にイソブタン( $iso-C_4H_{10}$ )を添加し振動温度約 150 K まで冷却したパルス分子線を用いることで、 $N_2O$  の振動基底状態だけを始状態とする過程の画像観測を行った。

【結果と考察】図1は、(a)  $^1F_3$  状態および(b)  $^1P_1$  状態を経由したイオン化により観測された  $O(^1D_2)$  の散乱画像であり、測定画像と p-BASEX 法による断層像を並べて示してある。 $O(^1D_2)$  の並進速度分布には、複数の環状構造が明確に現れている。個々の環状分布は対生成する  $N_2$  の  $\nu_{N_2}$ 、 $J_{N_2}$  終状態に対応しており、回転分布を分離するに足る分解能に達していることを示している。一方、角度分布については、解離過程において形成された  $O(^1D_2)$  の電子軌道角運動量整列に

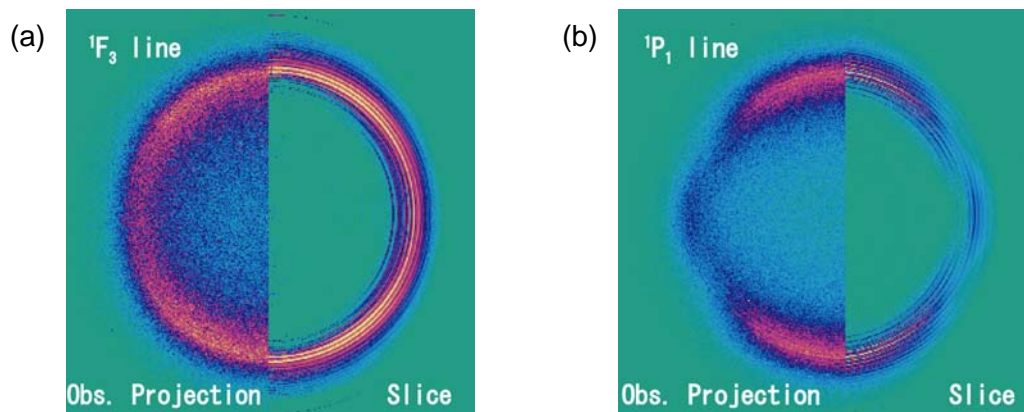


図1  $N_2O$  の紫外光吸収により解離生成した  $O(^1D_2)$  の散乱画像。

(a)  $^1F_3$  状態経由検出、(b)  $^1P_1$  状態経由検出。Obs.: 測定画像、Slice: 断層像

対する検出効率（感度因子）の違いを反映し、(a)と(b)とは明らかに異なる分布を示している。

$O(^1D_2)$ 散乱角度分布の解析は、Mo and Suzuki<sup>2)</sup>によって定式化された $^1F_3$ および $^1P_1$ を経由したREMPIの軌道整列に対する感度因子を用い、文献3の理論によって行った。実測値として得られるのは、 $^1F_3$ 、 $^1P_1$ 検出それぞれについて、各 $(v_{N_2}, J_{N_2})$ 終状態に対応する角度分布を6次までのルジャンドル偶関数にフィッティングした異方性因子 $\beta_2, \beta_4, \beta_6$ である（計6個）。決定する電子軌道整列パラメータは散乱速度ベクトルを量子化軸とする座標系での多重極展開係数であり、0次の係数 $\beta$ （対生成する $N_2(v_{N_2}, J_{N_2})$ の異方性因子）、2次の係数 $g_2$ 、 $g(2, 1)$ 、 $g(2, 2)$ 、4次の係数 $g_4$ 、 $g(4, 1)$ 、 $g(4, 2)$ である（計7個）。実測値の数が1つ少ないため、高次の非対角項 $g(4, 1)$ 、 $g(4, 2)$ の値は小さいもの（=0）と仮定した2通りのフィッティングを試みた。

図2はフィッティング結果のうち $\beta$ を $J_{N_2}$ に対してプロットしたものである。生成 $N_2(v_{N_2}, J_{N_2})$ 画像観測により得られた値と比べると、 $g(4, 2) = 0$ と仮定した結果の方が良く一致しており、他のパラメータについても誤差が小さいことが示されたことから、 $g(4, 1) = 0$ の仮定よりも確からしいと考えられる。図3は、 $g(4, 2) = 0$ と仮定して得られた $O(^1D_2)$ の各 $M_J$ 状態分布比である。 $M_J$ は、散乱速度座標系量子化軸への電子軌道角運動量（ $L = 2$ ）の射影成分を表す。結果は、 $M_J = 0$ 成分と $M_J = \pm 1$ 成分が同程度存在し、 $M_J = \pm 2$ 成分には分布がほとんど無いことを示している。また、 $N_2$ の回転励起とともに $M_J = 0$ 分布が増加するのに対し、 $M_J = \pm 1$ 分布は逆に減少するという傾向が明らかとなった。

## 【参考文献】

- 1) H. Kawamata et al., J. Chem. Phys. 125, 133312 (2006).
- 2) Y. Mo and T. Suzuki, J. Chem. Phys. 109 4691 (1998).
- 3) Y. Mo and T. Suzuki, J. Chem. Phys. 112 3463 (2000).

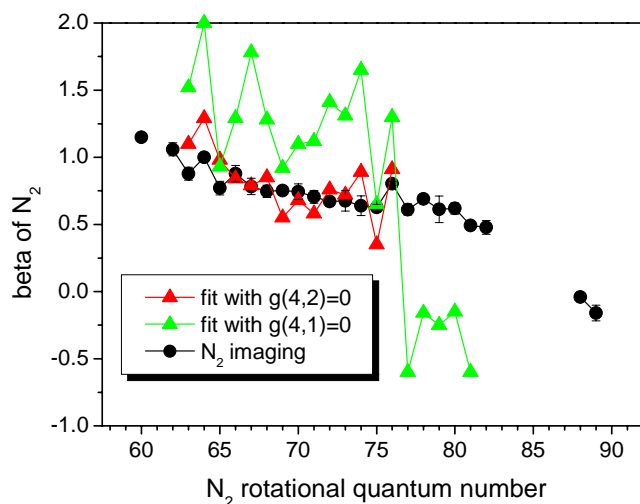


図2 生成 $N_2$ の $\beta_2$ 値。 $O(^1D_2)$ 画像解析から得た値（赤）と $N_2$ 画像からの値（黒）との比較

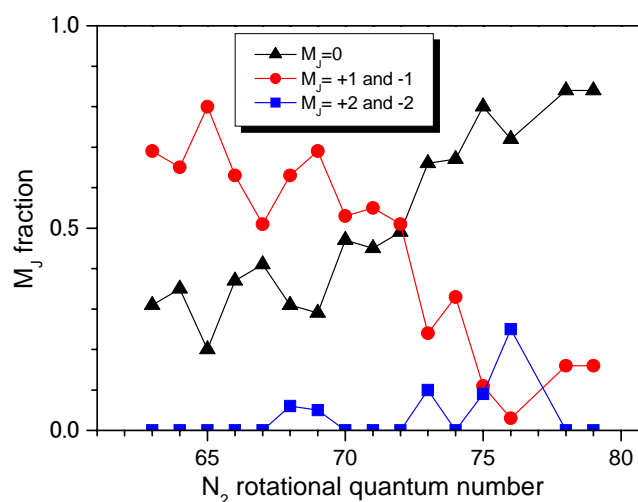


図3  $O(^1D_2)$ 画像解析から得た $M_J$ 分布の比。 $g(4, 2) = 0$ を仮定。