

3P001

Velocity map imagingを用いた $Y+O_2 \rightarrow YO+O$ の反応ダイナミクスの研究

(兵庫県立大学) 川股 貴史、山城 亮、松本 剛昭、本間 健二

【序】反応ダイナミクスの研究において反応生成物の速度分布と角度分布は重要な情報である。velocity map imagingの手法を用いることでこれら2つの分布を精度良く得ることができるようになった。イットリウム(Y)の O_2 による酸化反応は以前にも化学発光とLIFによって生成物の振動一回転分布等についての研究が行われている。本研究では速度分布と角度分布を得ることでこの反応系について更なる知見を得ようと試みた。

【実験】実験は交差分子線装置を用いて行った。Y原子はYロッドにNd:YAGレーザーの第4高調波(266nm)を集光し、レーザー蒸発により生成した。パルスノズルからキャリアガス(N_2)を噴出し、スキマーを通すことでY原子ビームとした。これに直行する方向から O_2 ビームを交差させ反応させた。生成されたYO分子はレーザーでイオン化し、飛行時間型質量分析器(TOFMS)、MCP、ケイ光スクリーンを用いて検出した。TOFMSにはvelocity mappingの条件を満たすように設計されたイオンレンズを組み込んだ。また、MCPには時間幅 50nsのパルス電圧をかけてイオン雲をスライスし2次元分布を得られるようにした。ケイ光スクリーン上に検出されたシグナルはCCDカメラを用いてコンピューターに記録し、その画像を解析して速度分布と角度分布を求めた。

1ピクセルあたりの長さを求めるために、 O_2 のHerzberg帯の吸収による光解離により生成する酸素原子を(2+1)REMPIで観測した。まず酸素原子の飛行時間を計測した。次に得られた画像はリングを作っているので画像からその中心を決め、動径分布を計算してそのピーク値を算出することでリングの半径を求めた。そしてすでに分かっている酸素分子の結合エネルギーなどから並進速度を計算することで1ピクセルあたりの長さを得た。

【結果・考察】今回の実験において反応生成物のYOをイオン化するためのレーザーとしてYOの全ての状態をイオン化する205nmと電子励起状態のみをイオン化できる308nmの2つの波長を用いた。これら2つの波長の両方でシグナルのレーザー強度依存性を測定したところ、どちらも一次の強度依存性を示した。また、レーザーが強いとイオン間での反発によって画像が広がるのでレーザーはできる限り弱くした。撮影された画像にはYロッド由来のYOのシグナルが出ていたので、別に O_2 ビームのタイミングをずらして

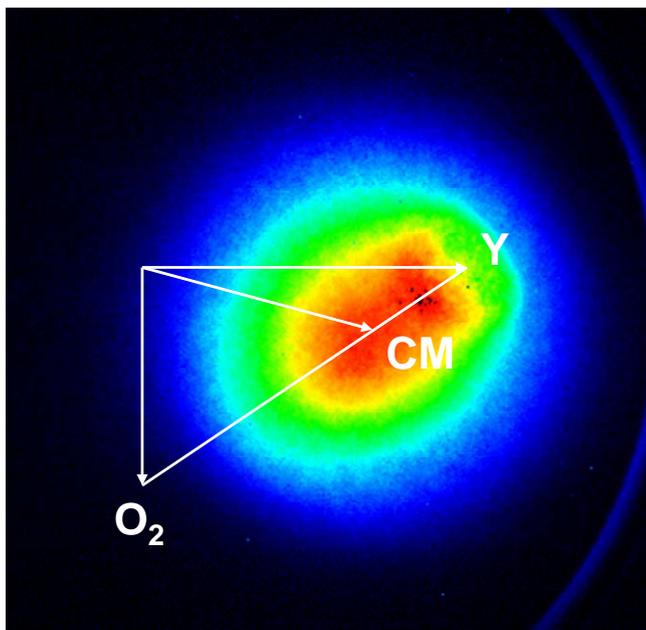


図1 205nmにおける速度分布

測定を行い、その差を取ることで補正した。図1には205nmでイオン化した場合の画像を示す。重心(CM)を中心にしたほぼ等方的な分布が得られた。この画像から角度分布を求めたものを図2に示した。図には308nmにおける角度分布も示してある。観測された角度分布はどちらの波長においても前方—後方対称性を示しており、過去の研究¹から報告されているとおり長寿命の錯合体を経由して反応が進んでいることを示唆している。

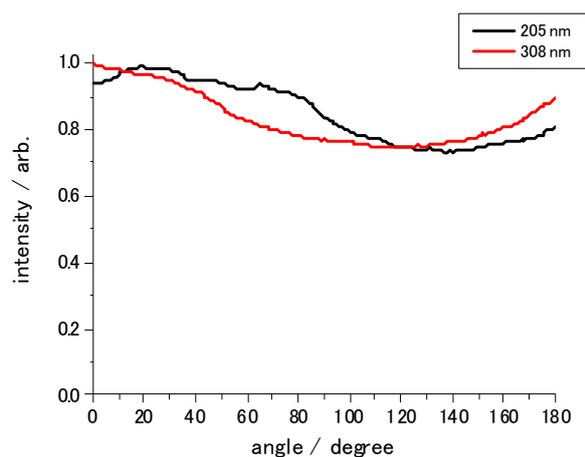


図2 角度分布

図3には205nmでイオン化して得た画像から求められた速度分布を示している。この速度分布とYOの各状態(X,A,A')についてエネルギーが生成物の振動、回転、並進の各自由度に統計的に分配されたと仮定したプライアー分布をそのまま足し合わせたもの(計算2)、電子励起状態の分布を約2倍にして足し合わせたもの(計算1)を比較すると後者のほうがよく一致することが分かった。図にはこれらの分布も載せている。比較から電子励起状態がプライアー分布の比から考えられるよりも多く生成していると考えられる。これは過去の実験結果と一致している。また

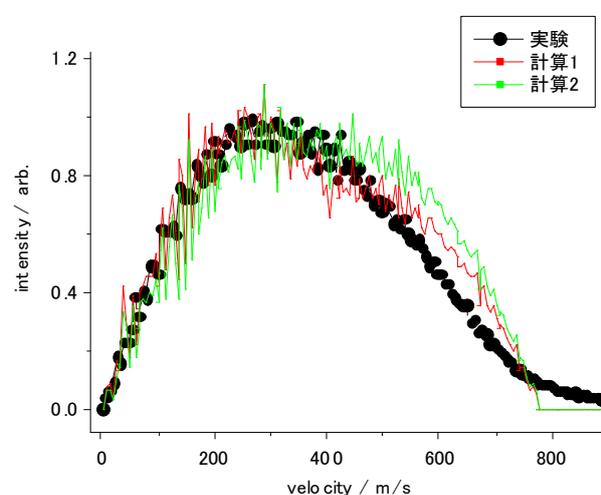


図3 205nmにおける速度分布

308nmの波長においても同様に速度分布を求めたところ、電子励起状態に対する分布とよく一致した。以上のことから、反応における余剰エネルギーは統計的に分配されていることが分かる。本研究の結果から、Y+O₂反応は長寿命の錯合体を経由して進んでいることが直接示された。

¹ T.Higashiyama, M.Ishida, Y.Matsumoto, and K.Honma, Phys.Chem.Chem.Phys 7,2481-2488