

4P002

メタン、アンモニアの光解離による準安定水素原子生成

(東京工業大学院化学、¹高エネ機構放射光、²産総研)

○熊谷嘉晃、小田切文、田邊健彦、中野元善、鈴木功^{1,2}、北島昌史、河内宣之

■序論

超励起分子は、イオン化ポテンシャル以上の内部エネルギーをもち、様々な反応の中間体の役割を果たすために、重要な研究対象である。しかし超励起状態は、イオン化連続状態と縮重しているため、それを観測するためには直接イオン化の寄与を除外する工夫が必要である。我々のグループでは、メタン^{[1], [2]}およびアンモニア^{[3], [4]}の超励起状態を、解離 H($n \geq 2$)原子の放出するけい光放出断面積を入射光子エネルギーの関数として測定することにより研究した。その結果、二電子励起状態が、一電子平均場近似から予想されるよりも、大きな寄与を与えることが明らかとなった。しかしながら、多原子分子の多電子励起状態の研究はいまだに十分ではなく、他の手法による研究が必要である。

最近、本研究グループでは、分子の光励起に伴い生成する準安定水素原子(H(2s)原子)を検出する実験手法を開発した^[5]。この手法を用いても、直接イオン化の寄与は除外できるはずである。そこで、本研究ではメタン、アンモニアの光励起に伴う H(2s)原子生成の角度微分断面積を入射光子エネルギーの関数として測定する。これにより、メタン、アンモニア分子超励起状態について、分光学的、動力学的知見を得ることを目的とする。

■実験

実験は高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリーの BL20A で行った。標的分子(メタンまたはアンモニア)を導入したガスセルに直線偏光放射光を照射し、偏光ベクトルに対して鉛直な方向に放出される H(2s)原子を検出した^[5]。H(2s)原子計数率を光量と標的ガス圧力で規格化することにより、光励起に伴う準安定水素原子生成の角度微分断面積を入射光子エネルギーの関数としてメタンおよびアンモニアに対して初めて測定した。

■結果

メタンおよびアンモニアの測定結果を Fig.1(a)と Fig.2(a)にそれぞれ示す。Fig.1(b)と Fig.2(b)にそれぞれメタン^[2]、アンモニア^[4]の光励起に伴う Lyman- α けい光放出断面積を比較のために示す。いずれも我々のグループにより測定された。メタンの Lyman- α けい光放出断面積(Fig.1 (b))との比較から、メタンの H(2s)原子生成の角度微分断面積(Fig.1(a))の 19-24eV のピークは一電子励起状態($(2a_1)^{-1}(3p_{t_2})$, $(2a_1)^{-1}(4p_{t_2})$)に、同様にして 29eV 付近の構造はメタン分子二電子励起状態(主に D2 state)に起因すると考えられる。さらに、アンモニアの Lyman- α けい光放出断面積(Fig.2(b))との比較から、アン

モニアの H(2s)原子生成の角度微分断面積(Fig.2(a))の 16.3eV のピークは一電子励起状態((1e⁻¹)(mo'))に、同様にして 27eV 付近の構造は一電子励起状態と二電子励起状態が配置混合した状態('2a₁⁻¹(mo')')に起因すると考えられる。これより、メタン、アンモニアともに、H(2p)原子と H(2s)原子は、主として同種の一電子励起状態または二電子励起状態を経由して生成していると考えられる。

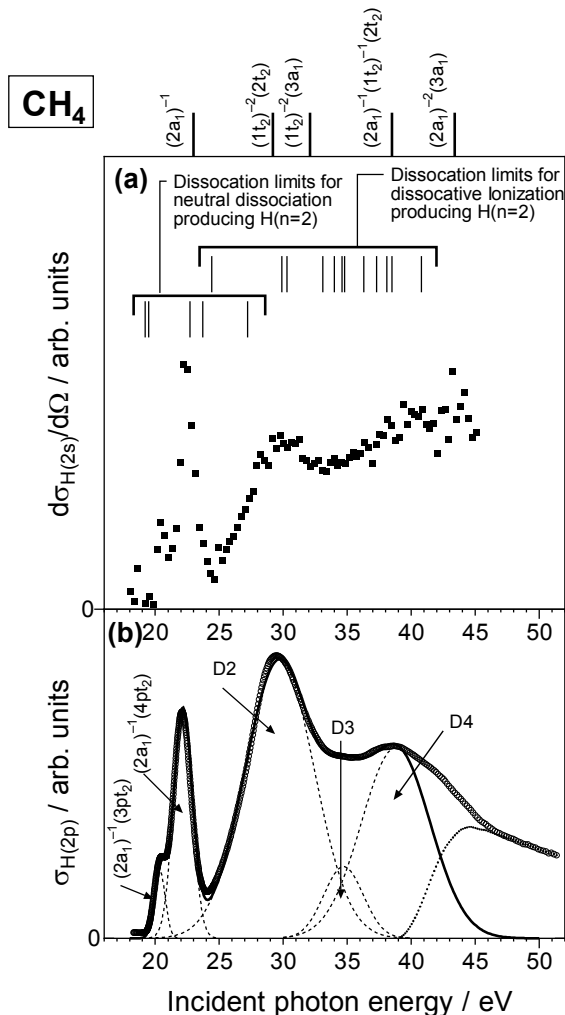


Fig.1 メタンの光励起に伴う(a)H(2s)原子生成の角度微分断面積、(b)Lyman- α けい光放出断面積^[2]。図上部の縦棒はメタン分子のイオン化ポテンシャル、図中の縦棒は H(n=2)フラグメンを生成する解離極限を示す。(2a₁)⁻¹(3pt₂), (2a₁)⁻¹(4pt₂): 一電子励起状態、D2, D3, D4: 二電子励起状態。

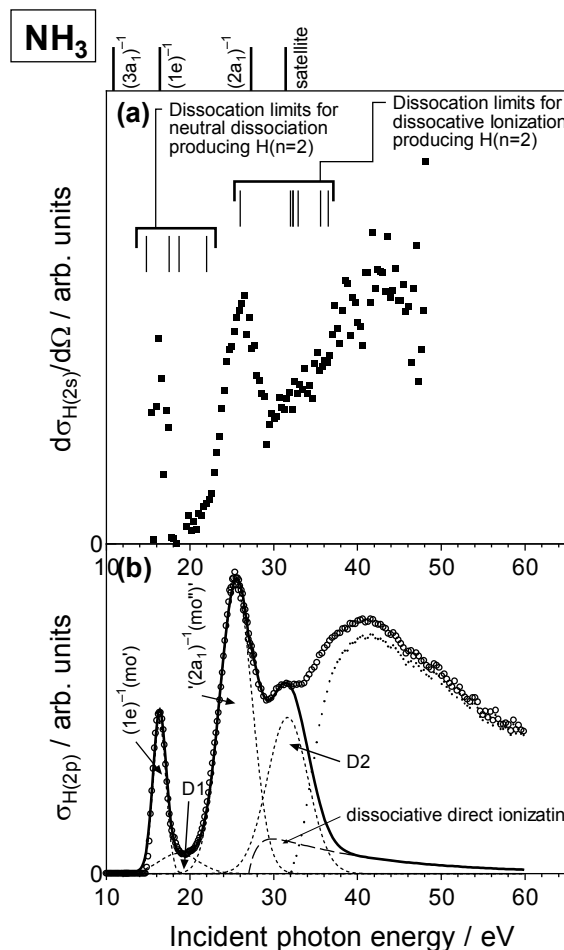


Fig.2 アンモニアの光励起に伴う(a)H(2s)原子生成の角度微分断面積、(b)Lyman- α けい光放出断面積^[4]。図上部の縦棒はアンモニア分子のイオン化ポテンシャル、図中の縦棒は H(n=2)フラグメンを生成する解離極限を示す。(1e₁)⁻¹(mo'): 一電子励起状態、D1, D2: 二電子励起状態、('2a₁)⁻¹(mo')': 一電子励起状態(2a₁)⁻¹(mo')と二電子励起状態が配置混合した状態。

- [1] M. Kato *et al.*, *J. Phys. B.* **35**, 565 (2002)
- [2] H. Fukuzawa *et al.*, *J. Phys. B.* **38**, 565 (2005)
- [3] M. Kato *et al.*, *J. Phys. B.* **36**, 565 (2003)
- [4] L. Ishikawa *et al.*, *J. Phys. B.* **41**, 195204 (2008)
- [5] T. Odagiri *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **81**, 063108 (2010)