

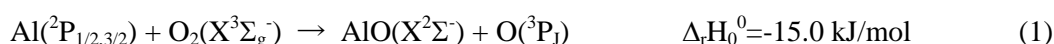
画像観測法による反応ダイナミクスの解明： $\text{Al}+\text{O}_2\rightarrow\text{AlO}+\text{O}$.

(兵庫県立大院物質) 本間 健二、宮下 一紀、松本 剛昭

Reaction dynamics studied by time-sliced velocity map imaging technique: $\text{Al}+\text{O}_2\rightarrow\text{AlO}+\text{O}$

(Univ. of Hyogo) Kenji Honma, Kazuki Miyashita, Yoshiteru Matsumoto.

【序】金属原子は様々な触媒反応の反応中心として広く使われており、基礎的な観点からも、様々な分子との相互作用に関心が持たれている。アルミニウム原子の酸化反応(1)は非常に速い反応で、ホウ素の酸化反応と並んで宇宙空間の飛翔体における推進動力源としても考えられておち、応用面からも興味深い系である。動力的興味からの研究も、実験・理論の両面からいくつかの報告がある。私たちも、交差分子線レーザー誘起蛍光法をもちいて、AlOの

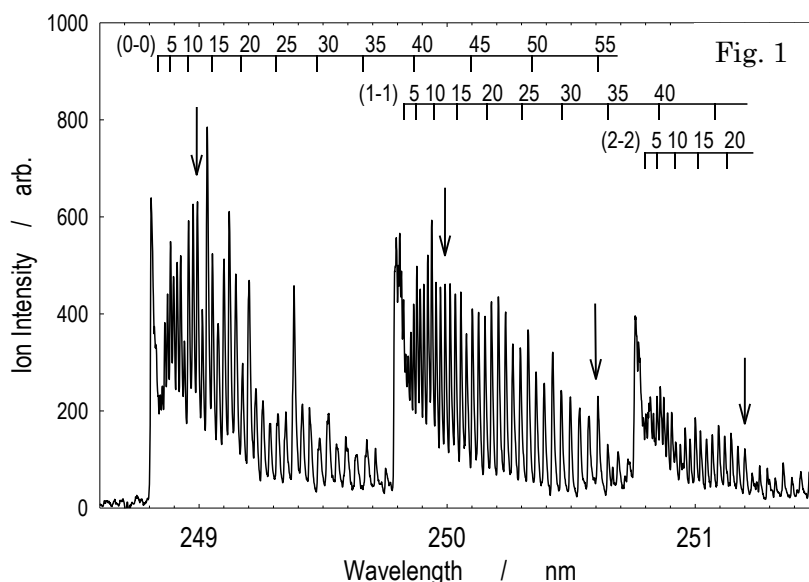


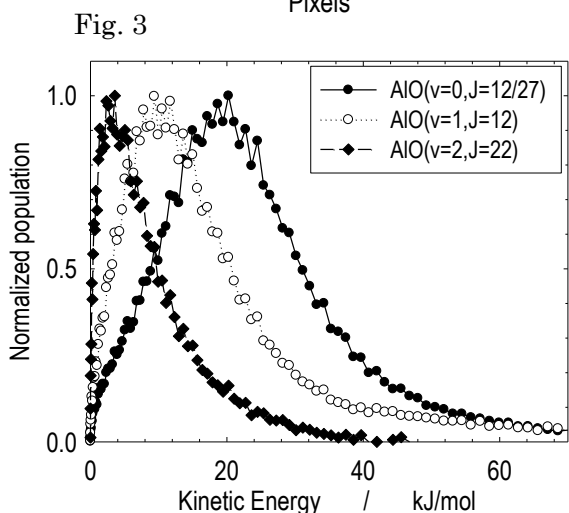
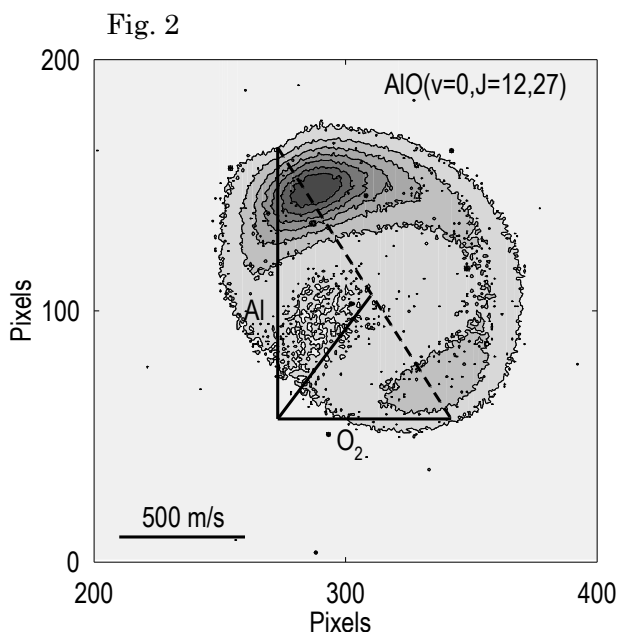
の振動準位 $v=0$ および 1 について回転状態分布を決定し、統計的に期待されるものよりもわずかに低い状態の分布が多いことを見いだした。つまり、反応は中間体を経て進むが、その寿命が十分長くはないか、反応出口において何らかの相互作用があると結論した[1]。

本研究では、交差分子線反応装置にレーザー多光子イオン化—飛行時間型質量分析計—2次元検出器を取り付け、反応(1)で生成するAlOの振動回転状態を選別した速度・角度分布の測定を行った。これにより、反応機構を直接反映した情報が得られると期待される。

【実験】YAGレーザー4倍波(266nm)によるレーザー蒸発で生成したAl原子は、パルスノズルから噴出した窒素をキャリアガスとして冷却し、スキマーを通した後にノズルスキマーで生成した O_2 ビームと交差させた。窒素は準安定励起状態 $\text{Al}(^2\text{P}_{3/2})$ を良く失活するので、本研究で用いたAlビームは大部分が基底状態 $\text{Al}(^2\text{P}_{1/2})$ であると考えられる。AlOはその $\text{D}^2\Sigma-X^2\Sigma$ 遷移を介した(1+1)共鳴2光子イオン化を用いてイオン化した。Fig.1にそのイオン化

スペクトルを示す。図中に矢印で示した波長を用いてAlOをイオン化し、 AlO^+ をMCP-蛍光スクリーン検出器で2次元画像として観測した。MCPに30nsの高電圧パルスをかけて、 AlO^+ の飛行時間の中心を切り出した。衝突エネルギーは15.0kJ/molで測定を行った。

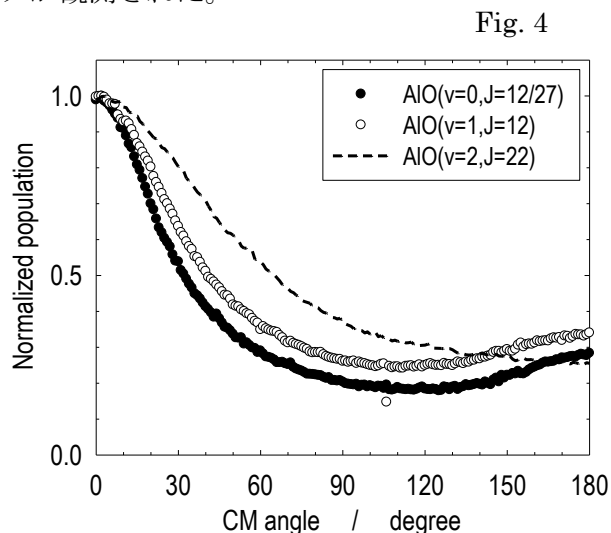




序で述べたように、反応(1)で得られる AIO の回転状態分布は、prior 分布に比べて低い回転状態の分布が多いことが報告されている。理論計算によると、 C_{2v} 対称性を持った AIO_2 (2A_2) が安定に存在すること、直接 $AIO+O$ を生成する経路はないことが報告されている。つまり、反応は、安定な中間体を経るが、その寿命はあまり長くないことが示唆されている。本研究では、振動・回転状態によらずに前方散乱に偏った角度分布が観測された。この異方性分布は、中間体の寿命がその回転周期と比べて短いことを示しており、回転状態分布に関するこれまでの結果と辻褃が合っている。

【結果と考察】Fig. 2 に $AIO(v=0, J=12, 27)$ をイオン化して得られた 2 次元画像を示す。同時に示したニュートンダイアグラムからわかるように生成物 AIO は前方と後方にピークを持っているが、前方のピークははるかに強い。観測を行った他の振動回転状態でも、同様の結果が得られた。つまり、画像の大きさは、高い内部エネルギーを持つ状態については小さくなるが、いずれの場合も、前方散乱の強いピークが観測された。これらの画像を解析して得られた、生成物

の運動エネルギー分布と角度分布を Fig. 3 と Fig. 4 に示す。エネルギー分布は、振動回転状態を選別しているが、Al および O_2 ビームの速度に広がりがあるためと、2 つの回転状態に対応する P 枝と R 枝が重なるために、それほど狭い分布は得られなかった。Figure 4 に示した角度分布は、画像から予測されるとおり、重心系の角度 0° にピークが観測された。



[1] Kenji Honma, *J. Chem. Phys.* **119**, 3641 (2003), Masayuki Ishida, T. Higashiyama, Yoshiteru Matsumoto, and Kenji Honma, *J. Chem. Phys.* **122**, 204312 (2005)..