

## 配向-配向ベクトル相関による多重度系ダイナミクスの研究

(阪大院・理) ○大山 浩, 松浦 裕介

### Study on Reaction Dynamics in the Multi-Degree of Freedom System by using the Orientation-Orientation Vector Correlation

(Osaka Univ., Graduate School of Science) ○Hiroshi Ohoyama, Yusuke Matsuura

**[序]** 反応系の自由度の増加に伴い、反応動力学過程にとって重要な自由度を反映した選択性は、統計的振る舞いの中に隠れてしまい、観測が困難となる。速度-速度ベクトル相関としての微分散乱断面積も等方的分布へ移行し、選択性の観測に有効でなくなると考えられる。他方、分子-分子系の衝突過程は、大自由度系でも常に分子の相対配向の組み合わせに依存した多次元的側面を持つと期待される。このため、ベクトル相関としての配向-配向相関は、複雑な多体系の研究においても選択性測定の有効な手法であると考えられる。このような見地から、大自由度系への動力学の展開を視野に入れて、今回、分子-分子系での配向-配向相関の測定を試みた。

**[実験]** 分子配向に関連した以下の3つのベクトル相関の測定を行った。

#### [1] $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 配列- $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$ 配向ベクトル相関

放電励起で生成した  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  を六極不均一磁場で状態選別し配列  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  分子線とした。他方、 $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  を六極不均一電場で状態選別し配向  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  分子線とした。衝突座標系での  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  の配列は磁場により、 $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  の配向は電場により独立に制御した。代表的な3つの  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列配置  $\Theta$  (平行( $0^\circ$ )、斜め( $45^\circ$ )、垂直( $90^\circ$ ))、3つの  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  配向配置  $\Phi$  (N-端、O-端、ランダム) の計9つの相対配置の組み合わせにおいて (図1参照)、配列  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  と配向  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  を交差させ、生成した  $NO(A^2\Sigma^+)$  からの発光を光子計数した。

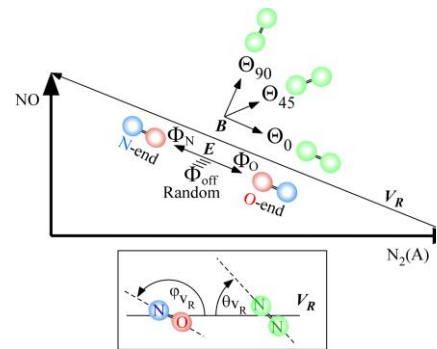


図1 衝突座標系での  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列配置  $\Theta$  と  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  配向配置  $\Phi$

#### [2] $NO(A^2\Sigma^+)$ 配列- $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 配列ベクトル相関

図2の実験配置において、衝突座標系での生成物  $NO(A^2\Sigma^+)$  の偏光度  $P = (I_{||} - I_{\perp}) / (I_{||} + I_{\perp})$  を  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列配置 ( $\Theta$ ) を変えて測定した。(図3参照)

#### [3] $NO(A^2\Sigma^+)$ 配列選別反応断面積の衝突エネルギー依存性

無配向  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  分子線及び  $NO(X^2\Pi)$  分子線を用いて、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  分子線強度と  $NO(A^2\Sigma^+)$  発光強度の同時時間測定により、飛行時間法により  $NO(A^2\Sigma^+)$  偏光度  $P = (I_{||} - I_{\perp}) / (I_{||} + I_{\perp})$  の衝突エネルギー依存性を測定した。

#### [結果]

##### [1] $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 配列- $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$ 配向ベクトル相関

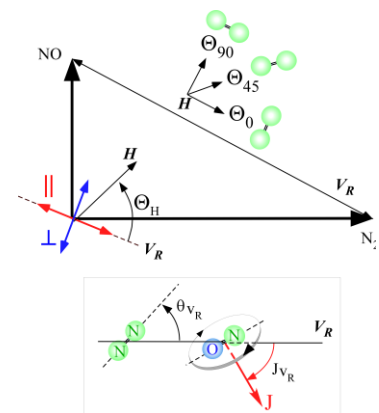


図2 衝突座標系での  $NO(A^2\Sigma^+)$  偏光配置と  $NO(A^2\Sigma^+)$  回転角運動量  $J$  の配列角 ( $J_{vR}$ )

3つの  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列配置  $\Theta$ 、3つの  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  配向配置  $\Phi$  の計 9 つの相対配置の組み合わせにおける  $NO(A^2\Sigma^+)$  発光強度の測定結果と、配列  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  及び配向  $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  の配向分布関数をもとに求めた、多次元立体オパシテイ関数を図 3 に示す。これより、下記の反応性の配向相関が見出された。

$NO(X) (\varphi_{v_R} \sim 90^\circ) \leftrightarrow N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 45^\circ)$

$NO(X) (\varphi_{v_R} \sim 0^\circ \& 180^\circ) \leftrightarrow N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 0^\circ \& 90^\circ)$

### [2] $NO(A^2\Sigma^+)$ 配列- $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 配列ベクトル相関

$NO(A^2\Sigma^+)$  の偏光度  $P = (I_{||} - I_{\perp}) / (I_{||} + I_{\perp})$  の  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列配置 ( $\Theta$ ) 依存性と  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配向分布から、衝突座標系での  $NO(A^2\Sigma^+)$  回転角運動量  $J$  の配列分布  $f(J_{v_R})$  の  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列角 ( $\theta_{v_R}$ ) 依存性を求めた (図 4 参照)。図 3 に示した  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列- $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  配向ベクトル相関と同様に下記の良い相関があることが分かる。

$N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 45^\circ) \leftrightarrow NO(A) (J \perp v_R: J_{v_R} \sim 0^\circ \& 180^\circ)$

$N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 0^\circ \& 90^\circ) \leftrightarrow NO(A) (J \parallel v_R: J_{v_R} \sim 90^\circ)$

### [3] $NO(A^2\Sigma^+)$ 配列選別断面積の衝突エネルギー依存性

$NO(A^2\Sigma^+)$  偏光度  $P$  の衝突エネルギー依存性から、 $NO(A^2\Sigma^+)$  回転角運動量  $J$  の空間配列分布  $f(J_{v_R})$  及び  $NO(A^2\Sigma^+)$  配列選別反応断面積の衝突エネルギー依存性を求めた。(図 5 参照) 衝突エネルギーの増加に伴い、反応断面積は、明確な閾値を示さずに増加後減少する急激な変化を示した。加えて、 $J \perp v_R$  の配列がより優勢となることが分かった。

以上、得られた 3 重ベクトル相関の結果を図 6 にまとめる。

図 6 の  $N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 45^\circ) \leftrightarrow NO(A) (J \perp v_R)$ 、 $N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 0^\circ \& 90^\circ) \leftrightarrow NO(A) (J \parallel v_R)$  のベクトル相関と図 5 の比較から、 $NO(X) (\varphi_{v_R} \sim 90^\circ) \leftrightarrow N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 45^\circ)$  及び  $NO(X) (\varphi_{v_R} \sim 0^\circ \& 180^\circ) \leftrightarrow N_2(A) (\theta_{v_R} \sim 0^\circ \& 90^\circ)$  の反応に有利な分子配向の組み合わせでの、衝突エネルギー依存性の違いが見取れ、分子配向の組み合わせに依存した多次元エネルギー曲面交差の違いによる非断熱遷移の差異が明らかになった。

実験結果についての詳細な議論は、討論会で行う。

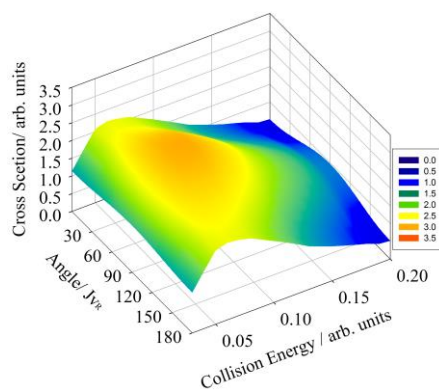


図 5  $NO(A^2\Sigma^+)$  配列選別反応断面積の衝突エネルギー依存性

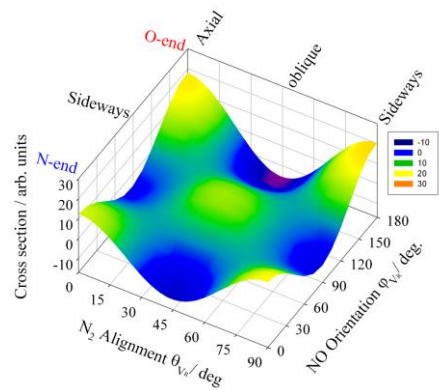


図 3  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列- $NO(X^2\Pi, \Omega = 1/2)$  配向ベクトル相関 (多次元立体オパシテイ関数)

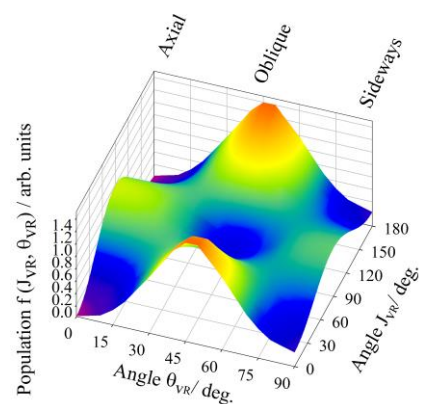


図 4  $NO(A^2\Sigma^+)$  回転角運動量  $J$  の空間配列分布  $f(J_{v_R})$  の  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列角 ( $\theta_{v_R}$ ) 依存性

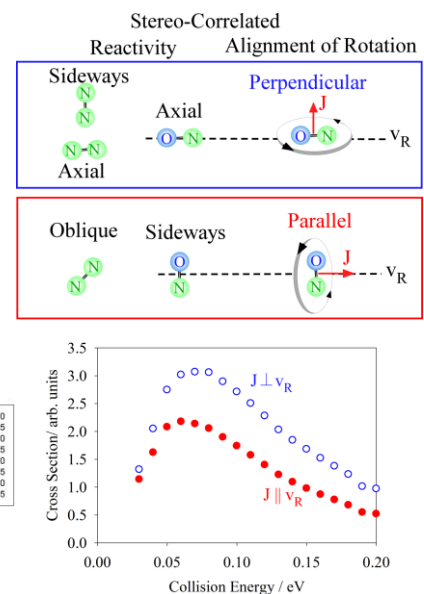


図 6  $NO(A^2\Sigma^+)$  配列- $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  配列- $NO(A^2\Sigma^+)$  配列の 3 重ベクトル相関と衝突エネルギー依存性