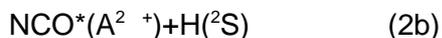
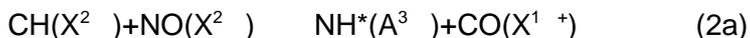
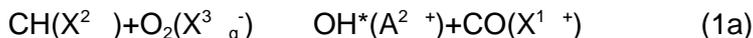


3P078 CH ラジカル燃焼反応の回転状態依存と分子配向効果

(阪大院理) 長町 有起, 大山 浩, 池尻 和正, 渡辺 大裕, 笠井 俊夫

【序】 CH ラジカルは炭化水素燃焼反応および星間物質の反応で最も重要な中間体の一つである。従って、全反応速度定数の決定などの多くの速度論の実験が行われている。しかし、その一方で各反応チャンネルに関する研究は少ない。反応生成物に関する研究が少ない理由として、CH を発生させる際の副生成物の寄与が挙げられる。今回、私たちはこの問題点を克服するため六極電場によって集束された純粋な CH ビームを用いて、CH ラジカル燃焼反応のダイナミクスを解明している。CH と O_2, NO をビーム-セル法で反応させ、これらの反応チャンネルのいくつかを初めて直接観測し、反応断面積を決定した。さらに、分子配向効果を測定して立体オパシチ関数を決定した。

【実験】 反応断面積の決定 CH ラジカルビームの発生には $He + e^- \rightarrow He^*, He^* + CO$ $C(^1D) + O + He(^1S), C(^1D) + H_2 \rightarrow CH(X^2) + H$ という反応を用いた。LIF を用いて、六極電場によって集束された単一の回転量子状態の集束曲線と CH ラジカル濃度を決定した。次に、この CH ラジカルを 2 mTorr 圧の O_2 または NO で満たされたセル内に通し、



による化学発光を各化学種の波長に合わせたフィルターを通して光電子増倍管で観測し、六極電場印加電圧依存性を測定した。この結果と CH のフラックスから反応断面積を決定した。

分子配向効果の測定 六極電場と反応セルの間に誘導電場を、反応セル中に配向電場を設置

し、これらの電場を制御し、バックグラウ

ンド(六極電場 0kV)、配向させた CH との化学発光強度: I_{ori} 、ランダム CH との化学発光強度: I_{ran} を (1a) と (2a) のチャンネルで測定し、 I_{ori}/I_{ran} を決定した。CH の各回転状態での配向分布関数を求め、これに各反応の反応断面積の重みをかけて足し合わせ、各六極電場の電圧での配向分布関数を決定した。そして、 I_{ori}/I_{ran} と配向分布関数から立体オパシチ関数を得た。

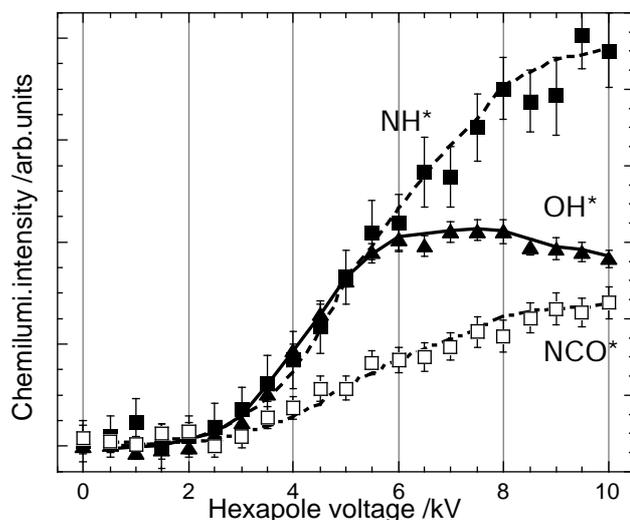


図 1 化学発光の六極電場印加電圧依存性

【結果と考察】 反応断面積の CH 回転状態依存 図 1 は測定で得られた化学発光の六極電場印加電圧依存性を表している。これらを比較すると、明らかに反応 (1a)と反応(2a)(2b)の化学発光の六極電場印加電圧依存性が異なっている。OH*では LIF で得られた各単一量子状態 CH 集束曲線を足し合わせたものと同様な

六極電場印加電圧依存性を示す一方で、NH*,NCO*は明らかに CH 集束曲線とは異なる依存性を示した。これは六極電場は印加電圧によって回転状態選別を行っているので、CH+NO 反応において、反応断面積の CH 回転状態依存があることを示している。各回転状態の反応断面積の比を変数として NH*の化学発光の六極電場印加電圧依存性を再現した。その結果、図 2 に示すような断面積の回転状態依存性をを用いるとよく再現することができた。(図 1

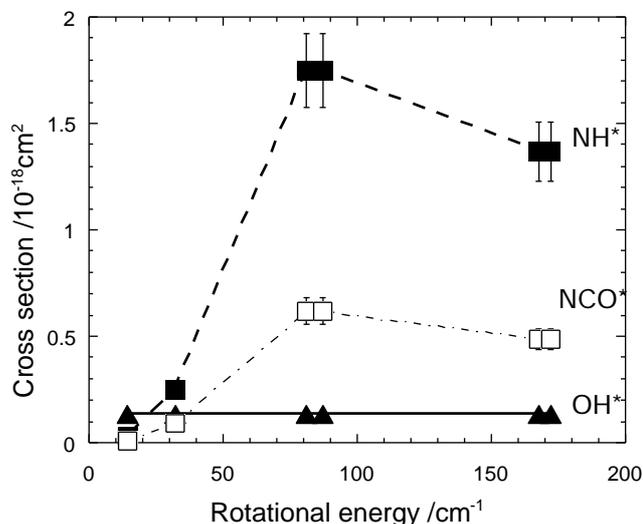


図 2 反応断面積の回転状態依存性

の実線、波線) また、NH*と NCO*の回転状態依存性が類似しているため、この二つの反応は同一の前駆体を経由して進むことが推測できる。

分子配向効果の依存性 表 1 に配向電場 3kV/cm, 六極電場 5kV の条件で配向させた CH との反応強度とランダム分子との反応強度の比: I_{ori}/I_{ran} を示す。これから、CH と O₂ の反応では等方的な反応であることがわかる。CH と NO の反応では、H 端、C 端ともに I_{ori}/I_{ran} が 1 より小さいので、アライメントの寄与が大きいことがわかる。六極電場 5kV 配向電場 3kV/cm での配向分布関数と表 1 の

表 1 配向電場:3kV/cm,六極電場:5kV での CH 配向効果

	H-end I_{ori}/I_{ran}	C-end I_{ori}/I_{ran}
CH+O ₂	1.00 ± 0.03	1.00 ± 0.03
CH+NO	0.96 ± 0.01	0.93 ± 0.01

結果を用いると CH 軸方向に反応活性で、やや H 端の方がより活性である立体オパシチ関数を得た。

CH は 形二重分離が大きいので、弱い電場では配向度が良くない化学種であるので、配向電場 3kV/cm という条件では決して良い配向状態とはいえない。また、反応断面積の回転状態依存があるため、六極電場の印加電圧を変化させると、配向分布関数は大きく異なる。従って、六極電場印加電圧、配向電場強度を変化させることにより、詳細な立体オパシチ関数の決定が可能となる。現在は、強い配向電場を用いた良い配向度での CH 配向効果測定を試みている。