

2D19

R 行列法による電子-酸素分子衝突過程の研究

(エモリー大・化学) 田代 基慶, 諸熊 奎治

・序

電子と酸素分子の衝突反応は放電や上層大気等の解析で重要な素過程である。これまで多くの実験が行われ弾性散乱、電子励起や振動励起等に関する断面積や速度定数が集積されてきた。この衝突反応に対する理論的な取り扱いとしては、第一原理 R 行列法を利用し酸素分子の基底状態を始状態とした弾性衝突・電子励起・振動励起過程等の研究が 10 年程前にイギリスのグループによって行われている。また電子衝突解離や解離性電子付加に関しては約 40 年前の比較的単純な理論計算はあるものの、理論的な仕事はそれほど存在していない。近年、より精密な速度定数や励起酸素分子を始状態とする場合の断面積がレーザー化学等の解析で必要とされる場合があるため、我々はこれらの電子・酸素分子衝突過程に関する理論的研究を行うことにした。本研究で我々は主に第一原理 R 行列法を利用し、従来あまり着目されてこなかった励起状態間の遷移や解離過程等も視野に入れた研究を行っている。

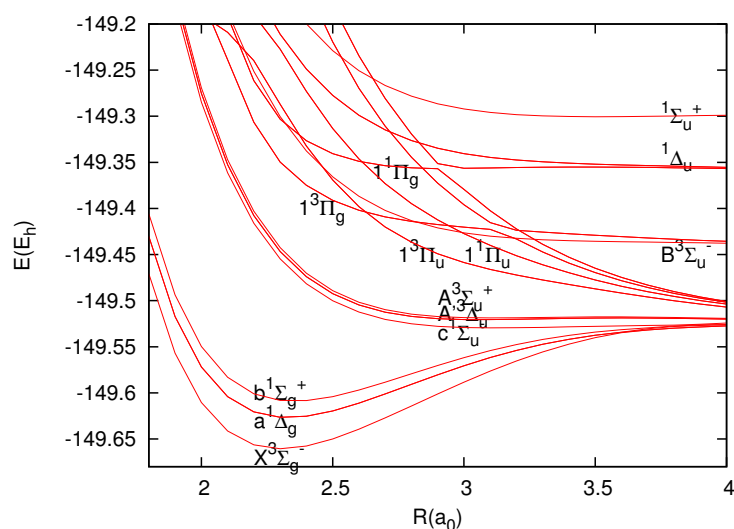


図 1: 酸素分子ポテンシャルエネルギー曲線の様子 (SA-CASSCF)。

・手法

本研究では主に UK molecular R-matrix codes を使用し、必要に応じて適宜改変を加えている。酸素分子はガウス基底 ([5s,3p,1d])、SA-CASSCF(valence CI) で表現し、計算に採り入れる標的電子状態としては図 1 から 20 個 (縮退含む) の状態を選択した。さらに、散乱電子を表現するために分子の中心には diffuse なガウス基底 (s,p,d 関数を各 7 つ程度) を配置した。これらの軌道から構成した 17 電子 CSF を基底として半径 $10a_0$ の球内で Hamiltonian を対角化し、球表面での固有ベクトルの値から R 行列を計算して散乱断面積等の情報を得た。

・結果の一部

図 2~4 に $e+O_2(X^3\Sigma_g^+)$ を始状態にした場合の電子励起断面積を示した。また、図 5 には散乱計算で得られた O_2^- 共鳴状態及び束縛状態の位置を O_2 ポテンシャルエネルギー曲線とともに示した。本講演ではこれらの結果とともに、励起状態間の断面積や振動・解離等に関する議論も行う予定である。

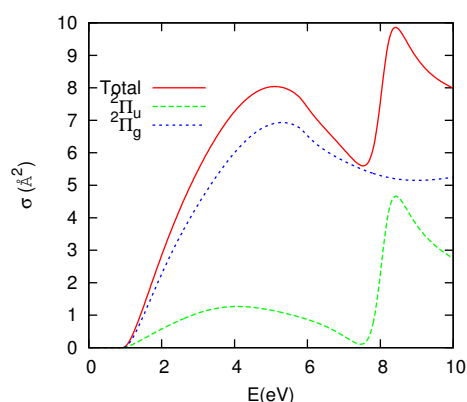


図 2: 断面積 : $e+O_2(X) \rightarrow e+O_2(a^1\Delta_g)$

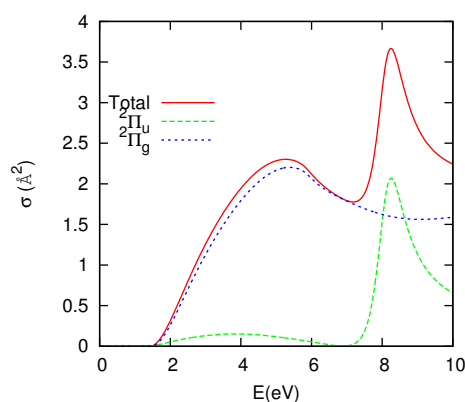


図 3: 断面積 : $e+O_2(X) \rightarrow e+O_2(b^1\Sigma_g^+)$

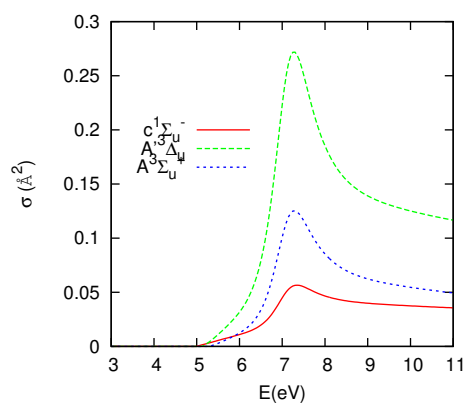


図 4: 断面積 : $e+O_2(X) \rightarrow e+O_2(c,A',A)$

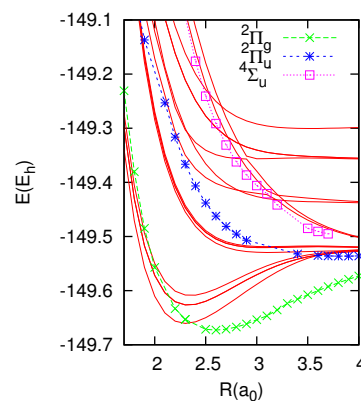


図 5: O_2^- ($^2\Pi_g, ^2\Pi_u, ^4\Sigma_u^-$) 共鳴/束縛状態