

Title	励起一酸化窒素分子と不飽和炭化水素(炭化重水素)、水(重水)分子からのH(D)原子生成過程
Author(s)	田中, 邦和
Citation	
Issue Date	2001-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2786
Rights	
Description	Supervisor:梅本 宏信, 材料科学研究科, 修士

励起一酸化窒素分子と不飽和炭化水素(炭化重水素) 水(重水)分子からの H (D) 原子生成過程

田中 邦和 (梅本研究室)

1. **緒言** 内燃機関等から排出された一酸化窒素が、酸性雨や光化学スモッグの原因物質となっており、早急な対策が必要とされている。レーザー誘起蛍光法は微量な一酸化窒素の検出、定量に有効な手段である。しかし、絶対濃度の測定には、消光速度定数の情報が必要となる。そこで、第一励起状態の一酸化窒素の総括消光速度定数を決定した。

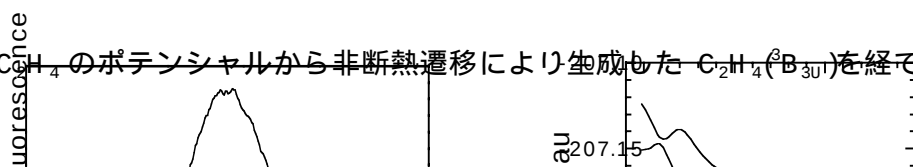
消光後の生成物を捉えることは基礎科学的にも重要である。励起一酸化窒素は、その発光帯域が広く、通常のレーザー誘起蛍光法では生成物を捉えることは困難である。本研究では、真空紫外の発光をモニターすることにより、エチレン、アセチレン、水分子との反応により生成する水素原子の検出を行い、その生成過程について考察を行った。重水素化合物についても測定を行った。

2. **実験** $\text{NO}(\text{A}^2\Sigma^+)$ は、YAG レーザー励起の色素レーザーの倍波を用いて生成した。このポンプ光を用いて、 NO の発光の時間分解測定により総括消光速度定数の決定を行った。また、エチレン等との反応により生成した $\text{H}(\text{D})$ 原子は、やはり YAG レーザー励起の色素レーザーの倍波を用いた二光子レーザー誘起蛍光法により検出した。プローブの波長を掃引することでドップラー線型の測定を行った。

3. **結果** 図 1 に $\text{NO}(\text{A}^2\Sigma^+)$ と C_2H_4 から生成した H 原子のドップラースペクトルを示す。他の系でも同様の結果が得られた。スペクトルはガウス関数で近似が可能で、線幅から $\text{H}(\text{D})$ 原子の並進エネルギーを求めることができる。結果の一部を総括消光速度定数と共に表 1 にまとめる。また、図 2 に $\text{NO}/\text{C}_2\text{H}_4$ 系で得られた断熱ポテンシャルエネルギーを $\text{C}-\text{N}$ 核間距離の関数として示す。

4. **考察** 今回観測された $\text{H}(\text{D})$ 原子は、そのエネルギーの大きさから考えて、エネルギー移動によって一旦、三重項状態の C_2H_4 等が生成し、それが分解して生成したとは考えられない。対生成物として、 ONC_2H_3 というような窒素化合物が生成していなければならない。一方、ポテンシャル図からは、三重項状態に相関するエネルギー準位が重要な役割を果たしていることが分かる。

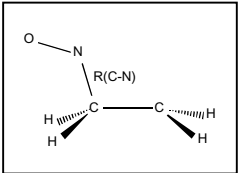
$\text{NO}(\text{A}^2\Sigma^+)+\text{C}_2\text{H}_4$ のポテンシャルから非断熱遷移により生成した $\text{C}_2\text{H}_4(\text{B}_{301})$ を経て、項間交差によ



り基底状態に落ちる。この後、例えば C-N 結合が切れる場合もあれば、これとは別方向に、C-H 結合が切れることもありえる。また、H (D)原子の並進エネルギーの大きさから、これらの中間状態の寿命はエネルギー再分配の時間に比べて十分短いと考えられる。他の系についても同様の議論が可能である。

表 1 総括消光速度定数 ($10^{-10}\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$)と H 原子の
並進運動エネルギー (kJ mol^{-1})

	Rate constants	Translational energy
C ₂ H ₄	1.64 ± 0.05	73 ± 4
C ₂ H ₂	3.04 ± 0.07	133 ± 6
H ₂ O	7.51 ± 0.15	113 ± 7



Keywords 一酸化窒素、励起状態、二光子レーザー誘起蛍光法