JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	準安定励起一重項状態の窒素分子と水素化物からの水素原子生成過程
Author(s)	尾関，亮二
Citation	
Issue Date	2002-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2899
Rights	
Description	Supervisor:梅本　宏信，材料科学研究科，修士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

C19a1

準安定励起一重項状態の窒素分子と水素化物からの水素原子生成過程

尾関　亮二(梅本研究室)

１．緒言　準安定状態の窒素分子は、プラズマプロセッシングにおける重要な活性種の一つと考えられており、その反応過程の解明が望まれる物質の一つである。しかし、プラズマ放電中の窒素は様々な励起状態をとっており、特定の励起状態のみを研究することが困難である。そこで本研究では準安定励起一重項状態の窒素分子 $N_2(a\ ^1\Sigma_u^-)$を光(レーザー)励起によって作り出し、$N_2(a\ ^1\Sigma_u^-)$と水素化物との反応により生成する水素原子の検出を行い、その反応過程について考察した。

２．実験　$N_2(a\ ^1\Sigma_u^-)$は、YAG レーザー励起の色素レーザーの倍波(289.9nm)を用いて、基底状態の窒素分子を二光子励起して $N_2(a\ ^1\Pi_g)$を作り、それをさらに窒素分子で電子緩和させることで生成した。$H_2(D_2)$、CH_4、H_2O 添加系で生成するH(D)原子を、やはり、YAG レーザー励起の色素レーザーの倍波(243.2nm)により二光子レーザー誘蛍光法を用いて検出した。二つのレーザーのパルス間隔は 500ns とした。

H_2／D_2 混合系、CH_4／D_2 混合系で H（D）原子の検出を行った。D 原子のスペクトル強度(積分値)で規格化し、H 原子のスペクトル強度を比較することで、H 原子生成の収率を求めた。

$$N_2(X) + 2h\nu \rightarrow N(a)$$
$$N_2(a) + N_2 \rightarrow N_2(a) + N_2$$
$$N_2(a) + D_2 \rightarrow N_2 + 2D$$
$$N_2(a) + H_2 \rightarrow N_2 + 2H + 381\ \mathrm{kJ/mol}$$
$$N_2(a) + CH_4 \rightarrow N_2 + CH_3(X\ ^2A_2) + H + 376\ \mathrm{kJ/mol}$$
$$\rightarrow N_2 + CH_2(\tilde{a}\ ^1A_1) + H_2 + 310\ \mathrm{kJ/mol}$$

３．結果と考察　Fig.1 に H_2／D_2 混合系、CH_4／D_2 混合系で測定した H（D）原子の二光子レーザー誘起蛍光スペクトルを示す。水素、メタン、重水素の圧力はすべて 26.7Pa とした。この図からメタンでは水素の 1.8 倍多く H 原子が生成していることが分かる。$N_2(a\ ^1\Sigma_u^-)$とメタンの総括速度定数は Piper の測定によると水素に比べて 11.5 倍大きい。（速度定数　H_2 : 2.6×10^{-11} , CH_4 : 3.0×10^{-10} $cm^3\ s^{-1}$）

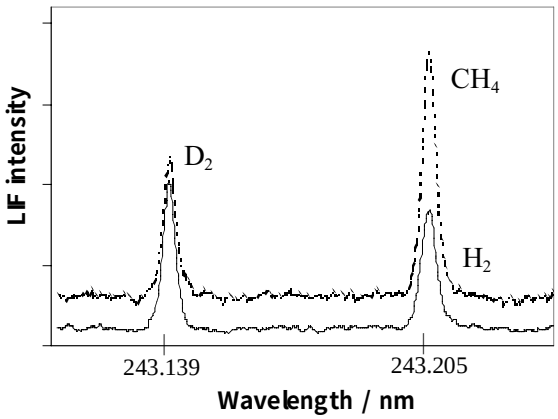

Fig.1 Two photon LIF spectra in H_2/D_2 and CH_4/D_2 systems

水素分子から H 原子が生成する絶対収率は２と考えられ、これから、$N_2(a\ ^1\Sigma_u^-)$+ CH_4 の反応での H 原子生成過程の分岐比は 0.32 となった。発熱量から考えて物理的消光は考えにくく、スピン許容な $CH_2(\tilde{a}\ ^1A_1)$ + H_2 への解離が主要な経路の一つとなっていることが示唆される。また、水分子の場合も CH_4 同様なH原子の生成が認められた。

Keywords：レーザー誘起蛍光法、準安定状態、窒素分子、H 原子検出