

|              |                                                                                 |
|--------------|---------------------------------------------------------------------------------|
| 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          | <a href="http://hdl.handle.net/10119/2786">http://hdl.handle.net/10119/2786</a> |
| 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。

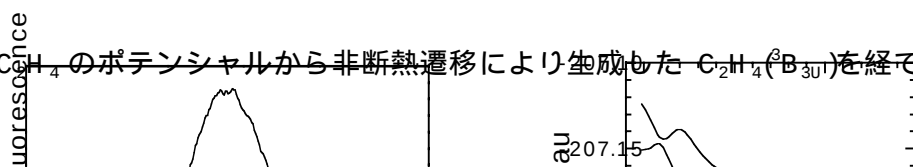
消光後の生成物を捉えることは基礎科学的にも重要である。励起一酸化窒素は、その発光帯域が広く、通常のレーザー誘起蛍光法では生成物を捉えることは困難である。本研究では、真空紫外の発光をモニターすることにより、エチレン、アセチレン、水分子との反応により生成する水素原子の検出を行い、その生成過程について考察を行った。重水素化合物についても測定を行った。

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、 $\text{NO}$  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  $\text{C}_2\text{H}_4$  から生成した  $\text{H}$  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  $\text{C}_2\text{H}_4$  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、 $\text{ONC}_2\text{H}_3$  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。

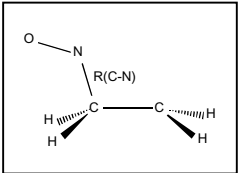
$\text{NO}(\text{A}^2\Sigma^+)+\text{C}_2\text{H}_4$  のポテンシャルから非断熱遷移により生成した  $\text{C}_2\text{H}_4(\text{B}_{301})$  を経て、項間交差によ



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 ( $\text{kJ mol}^{-1}$ )

|                               | Rate constants | Translational energy |
|-------------------------------|----------------|----------------------|
| C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> | 1.64 ± 0.05    | 73 ± 4               |
| C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> | 3.04 ± 0.07    | 133 ± 6              |
| H <sub>2</sub> 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