T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	H(2s)生成断面積測定による分子二電子励起状態の研究
Title(English)	Investigation of doubly excited molecules by measuring cross sections for the formation of H(2s) fragment atoms
著者(和文)	熊谷嘉晃
Author(English)	Yoshiaki Kumagai
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9384号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:河内　宣之,木口　学,北島　昌史,河合　明雄,沖本　洋一,小田切　丈
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9384号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	化学　　専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士　（　理学　） Doctor of
学生氏名： Student's Name	熊谷　嘉晃	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	河内　宣之　教授
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	北島　昌史　准教授

要旨（和文 2000 字程度）
Thesis Summary（approx.2000 Japanese Characters ）

本論文は、”H(2*s*)生成断面積測定による分子二電子励起状態の研究”と題し、6 章から構成されている。

第 1 章「序論」において、本研究の背景および目的について述べた。分子二電子励起状態をはじめとする共鳴状態では、平均場近似の破れに由来し、連続的電子状態との混じり合いがおこる。そのため、Born-Oppenheimer 近似の帰結とは異なり、原子核の相対運動と電子の運動が分離できなくなる。分子二電子励起状態は化学における基本的な枠組みを逸脱する系として興味深い研究対象である。分子二電子励起状態の生成と崩壊のダイナミクスを解明するためには、分子二電子励起状態が寄与する断面積およびその振動子強度を定量的に議論することが重要である。本研究は、分子二電子励起状態のダイナミクスを明らかにするため、光励起による H_2, D_2, CH_4, NH_3, C_2H_2 の H(2*s*)生成断面積および H(2*p*)生成断面積の絶対値を入射光子エネルギーに対して測定することを目的にしている。

第 2 章「実験」において、光励起による H(2*s*)生成断面積および H(2*p*)生成断面積の絶対値を入射光子エネルギーに対して測定する手法およびその装置について説明した。H(2*s*)原子および D(2*s*)原子検出器を開発するにあたって種々の工夫も説明した。本研究により、これらの断面積を絶対値として測定できるようになった。さらに、直線偏光した放射光により直線分子を励起し、入射光の偏光ベクトルに対する解離方向を指定し H(2*s*)原子を検出することにより、二電子励起状態の対称性(Σ, Π)を分けて光励起による H(2*s*)生成断面積を測定する手法も説明した。

第 3 章「H_2 と D_2 の二電子励起状態」において、H_2 および D_2 の実験結果と考察を示した。30-50 eV のエネルギー領域において絶対値として測定された光励起による H_2 と D_2 の H(2*s*), D(2*s*)生成断面積および H(2*p*), D(2*p*)生成断面積を示した。ここで、二電子励起状態の対称性(Σ, Π)を明らかにした上で、H(2*s*)生成および D(2*s*)生成断面積を測定した。測定された H(2*s*)生成断面積と、計算された光解離断面積を比較することにより、H_2 の二電子励起 Q_2 $^1\Pi_u(1)$状態および Q_2 $^1\Pi_u(2)$状態の H(2*s*)生成に対する大きな寄与が明らかになった。本研究結果に加えて、理論計算により示唆された Q_2 $^1\Pi_u(1)$状態と Q_2 $^1\Pi_u(2)$状態の擬交差の存在から、二電子励起 H_2 分子の中性解離過程において、Q_2 $^1\Pi_u(1)$状態と Q_2 $^1\Pi_u(2)$状態の間で状態間の遷移がおきていることが明らかになった。さらに、Q_2 $^1\Pi_u(1)$状態と Q_2 $^1\Pi_u(2)$状態に由来する H(2*s*)生成および D(2*s*)生成の振動子強度に大きな同位体効果が現れていた。とくに、後者の同位体効果は常識はずれに大きかった。

第 4 章「CH_4 と NH_3 の二電子励起状態」において、CH_4 および NH_3 の実験結果と考察を示した。光励起による CH_4 および NH_3 の H(2*s*)生成断面積および H(2*p*)生成断面積の絶対値を、それぞれ 18-45 eV と 15-48 eV のエネルギー領域において測定した。CH_4 および NH_3 において、H(2*s*)生成断面積と H(2*p*)生成断面積のエネルギー依存性がよく一致していた。これらの断面積に対して、鏡映近似に基づいてピーク分離を施すことにより、H(2*s*)生成および H(2*p*)生成に同じ二電子励起状態が寄与していることが明らかになった。その理由として、二電子励起 CH_4, NH_3 分子の解離過程における多数回にわたる二電子励起状態間の遷移が考えられる。

第 5 章「C_2H_2 の二電子励起状態」においては、C_2H_2 の実験結果と考察を示した。15-45 eV のエネルギー領域において測定された光励起による C_2H_2 の H(2*s*)生成断面積および H(2*p*)生成断面積を示した。本研究において初めて、C_2H_2 の二電子励起状態を観測することに成功した。CH_4 および NH_3 と同様に、H(2s)生成および H(2*p*)生成に同じ二電子励起状態が寄与しており、その原因として、多数回にわたる状態間遷移が挙げられる。

第 6 章「総括」において、本研究により得られた成果をまとめた。本研究において、光励起による H_2, D_2, CH_4, NH_3, C_2H_2 の H(2*s*)生成断面積および H(2*p*)生成断面積の絶対値を入射光子エネルギーに対して測定した。実験結果に基づき、分子二電子励起状態の理論研究においてあまり考慮されてこなかった二電子励起状態間の遷移が、その崩壊ダイナミクスにおいて重要な役割を果たすことを明らかにした。

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	化学　　専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of　（　理学　）
学生氏名： Student's Name	熊谷　嘉晃	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	河内　宣之　教授
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	北島　昌史　准教授

要旨（英文 300 語程度）
Thesis Summary（approx.300 English Words ）

The dynamics of the formation and decay of doubly excited states molecules has been investigated experimentally and the results are described in this thesis. Since the doubly excited states are resonant states embedded in the electronic continuum, the wave function of the doubly excited molecules cannot simply be described with the Born-Oppenheimer products of the electronic and nuclear parts. Thus revealing the dynamics of the doubly excited molecules is one of the important and challenging subjects in quantum mechanics of atoms and molecules.

In this study, I have measured the absolute values of the cross sections for the formation of the H(2*s*) and H(2*p*) atoms against the incident photon energy in the photoexcitation of H_2, D_2, CH_4, NH_3 and C_2H_2 in the extreme ultraviolet range. I have developed a method to measure the cross sections for the H(2*s*) formation originating from the symmetry-resolved states in the photoexcitation of linear molecules.

In the study of H_2 and D_2, it has been found that the doubly excited Q_2 $^1\Pi_u(1)$ and Q_2 $^1\Pi_u(2)$ states of H_2 make a large contribution to the H(2*s*) atom formation. Since the Q_2 $^1\Pi_u(1)$ state also dominantly contributes to the formation to two H(2*p*) atoms, the transition between the Q_2 $^1\Pi_u(1)$ and Q_2 $^1\Pi_u(2)$ states during the neutral dissociation has been suggested. Interestingly, the extremely large isotope effect has been found in the oscillator strength for the formation of 2*s*-atom originating from the Q_2 $^1\Pi_u(2)$ state in the photoexcitation of H_2 and D_2.

In the study of CH_4 and NH_3, it has been found the same doubly excited states contribute to the formation of the H(2*s*) and H(2*p*) atoms, which seems to be due to the frequent transitions between the doubly excited states involved during the neutral dissociation.

In the study of C_2H_2, the doubly excited states resulting in the formation of the H(2*s*) and H(2*p*) atoms have been formed for the first time. As in CH_4 and NH_3, it has been found that the same doubly excited states contribute to the formation of the H(2*s*) and H(2*p*) atoms, again due to the frequent transitions between the doubly excited states involved during the neutral dissociation.

In summary I have measured the absolute values of the cross sections for the formation of the H(2*s*) and H(2*p*) atoms against the incident photon energy in the photoexcitation of H_2, D_2, CH_4, NH_3 and C_2H_2 in the extreme ultraviolet range. Based upon the experimental results it has turned out that the transition between the doubly excited states plays a significant role in the decay dynamics of them, which has not been considered well in most of the theoretical investigations of the doubly excited molecules.

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).