

## 4C15

### 高強度フェムト秒レーザーによる $\text{CH}_3\text{X}$ (X:H, F, Cl, Br, I, and CN)の 原子様イオン化

( 阪市大院理 ) 田中倫規・村上政直・ハッ橋知幸・中島信昭

【序】メタン、ハロゲン化メタン、アセトニトリルを、波長 800 nm、パルス幅 40 fs、レーザー強度  $10^{13}\sim 10^{15}\text{ Wcm}^{-2}$  の高強度フェムト秒レーザーによりイオン化した。高強度フェムト秒レーザーによる希ガスのイオン化は、原子のイオン化理論である PPT 理論(Perelomov, Popov, and Terent'ev)とよい一致を示す [1]。イオン収量をレーザー強度に対してプロットし PPT 理論と比較した。原子のトンネルイオン化理論である ADK 理論(Ammosov, Delone, and Krainov)はこれまで希ガスや二原子分子、そして有機分子のイオン化と比較されてきたが、低いレーザー強度でのイオン化は ADK 理論では再現できない。

メタン、ハロゲン化メタン、アセトニトリルのイオン化が飽和するレーザー強度  $I_{\text{sat}}$  を実験と、PPT 理論、ADK 理論による計算から見積もった[2]。

【実験】中心波長 800 nm、最短パルスのパルス幅 40 fs、繰り返し周波数 100 Hz の Ti: sapphire レーザーを用いた。用いたエネルギーは 600  $\mu\text{J}$  以下で、ND フィルターを用いてエネルギーを減衰させた。レーザー強度は Xe をイオン化し、飽和レーザー強度を測定することにより見積もった。

生成したイオンは、分解能 2300 のリフレクトロン型飛行時間質量分析計を用いて検出した。レーザー光をレンズにより引き出し電極の中心に集光させた。最もレーザー強度の強い領域から生成されるイオンを検出するために、引き出し電極に、 $0.5 \times 10\text{ mm}$  のスリットを設けた。Xe をイオン化し、最も高い価数のイオン種を検出できるよう、レンズの位置を調節した。

PPT 理論、ADK 理論によるイオン収量の計算は、イオン化の速度を求め、時間的、空間的なガウシアンパルスを考慮して求めた。

【結果】図 1 に塩化メチルの TOF マススペクトルを示す。飽和レーザー強度よりも高い領域では、分子イオンと 2 価の分子イオン、 $\text{CH}_3^+$ ,  $\text{Cl}^+$ ,  $\text{Cl}^{2+}$  などが検出された。飽和レーザー強度付近になると、ほとんど分子イオンのピークしか検出されなかった。さらにレーザー強度の低い領域では分子イオンのみが検出された。このように分子イオンと多価のハロゲンイオンが検出される傾向は、臭化メチル、沃化メチルでも見られた。

図 2 に塩化メチルのイオン収量のレーザー強度依存プロットを示す。両対数プロットには、PPT 理論によるイオン収量の計算結果を示した。片対数プロットから、イオン化の飽和レーザー強度  $I_{\text{sat}}$  を見積もった。PPT 理論によるイオン収量の計算は、フッ化メチルを除いてよい一致を示した。実験から見積もった  $I_{\text{sat}}$  は、 $\sim 1.6$  倍程度 PPT 理論から見積もった  $I_{\text{sat}}$  よりも大きかった。

図 3 に飽和レーザー強度の相関とイオン化ポテンシャルを示す。低いイオン化ポテンシャルを持つ分子の飽和レーザー強度は、PPT 理論から見積もった飽和レーザー強度よりも大き

くなる傾向が得られた。

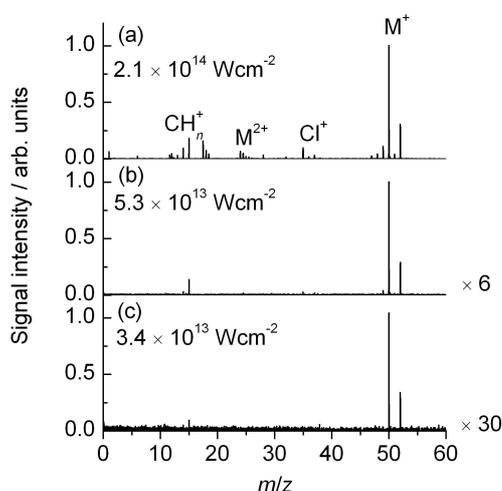


図1 塩化メチルの TOF マススペクトル

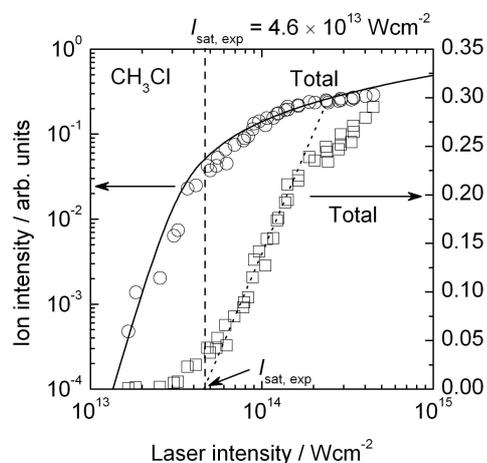


図2 塩化メチルイオン収量のレーザー強度依存プロット

【考察】典型的なハロゲン化メチルである塩化メチル、臭化メチル、沃化メチルのイオン化と原子のイオン化理論との一致を、光電子スペクトルより考察した。これらの光電子スペクトルの第一バンドは非常にシャープで、 $0 \rightarrow 0$  遷移と帰属される。ハロゲン原子上のイオン化する孤立電子が原子の性質を持っているため、原子のイオン化理論とよい一致を示したものと考えられる。メタンのイオン化する電子は C-H 軸に一様に分布しているが、ベンゼンやアントラセ

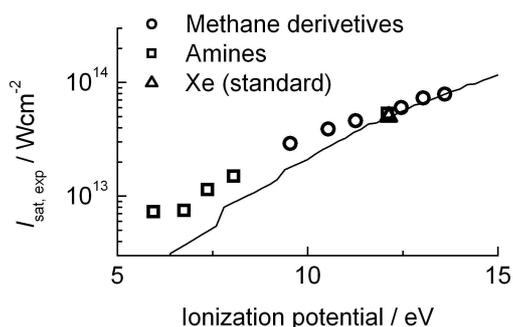


図3 イオン化ポテンシャルと飽和レーザー強度の相関

ンのような芳香族の電子よりはメタンの電子は炭素上に局在しているものと考えられ、原子のイオン化理論と一致したものと考えられる。フッ化メチルでの結果が原子のイオン化理論により再現できないのは、フッ素原子の高い電気陰性度によるものと考察した。

また、低いイオン化ポテンシャルを持つ化合物の飽和レーザー強度を、PPT 理論で再現できないのは、非共鳴多光子イオン化により生成したイオンを過剰に評価しているためと考察した。

[1] Larochelle et al. J.Phys. B, 38 (1998) 1201.

[2] Tanaka et al. J. Chem. Phys in press.