

強光子場中メチルアミン分子の超高速水素マイグレーション

(東大院理*, 原子力機構**) ○沖野 友哉*, 市川 太佳之*, 板倉 隆二**、山内 薫*

【序】近年の強光子場中における多原子分子の解離性イオン化に関する研究から、分子中の水素原子が結合解離の前に移動することが明らかとなった [1]。また、強光子場中におけるメタノール分子に関する研究結果から水素原子イオンおよび水素分子イオンの生成が確認されている [2, 3]。本研究では、コインシデンス運動量画像法 [5] を用いて強光子場中におけるメチルアミン ($\text{CH}_3\text{-NH}_2$) 分子における水素マイグレーション過程を調べた。

【実験】再生増幅フェムト秒レーザーの出力 (800 nm, 0.14 mJ/pulse, 60 fs, 3 kHz, 直線偏光) を焦点距離 150 mm のレンズで分子線として導入したメチルアミン分子に集光照射し、強光子場 (0.2 PW/cm^2) を生成した。単一親分子からの解離過程を抽出するため、チェンバー内を超高真空に保ち、レーザー1ショットあたりの親イオン数を 0.6 に抑えた。フラグメントイオンは、速度投影型電極で引き出し、2次元位置敏感型検出器で検出を行った。2次元位置情報 ($\Delta x, \Delta y$) と、飛行時間 (t) から、解離チャンネルごとの解離フラグメントイオンの運動量の決定を行った。

【結果と考察】

(1) 分子内水素移動を伴う2価イオンからの2体クーロン爆発過程

図1にメチルアミン2価イオン $\text{CH}_3\text{NH}_2^{2+}$ からの二体解離経路 $\text{CH}_3\text{NH}_2^{2+} \rightarrow \text{CH}_{(3-n)}\text{NH}_{(2+n)}^{2+} \rightarrow \text{CH}_{(3-n)}^+ + \text{NH}_{(2+n)}^+$ ($n = 0, 1, 2$) によって生成されるフラグメントイオンのコインシデンス運動量画像を示す。解離過程 ($n = 1$) および解離過程 ($n = 2$) は、メチル基側の水素原子がアミノ基に各々1個、2個移動したのちに2体クーロン爆発を起こす過程である。解離フラグメントイオンの角度分布の異方性 $\langle \cos^2 \theta \rangle$ は、0.57(2) ($n = 0$)、0.58(1) ($n = 1$)、0.66(15) ($n = 2$) であり、水素移動を伴っても、異方性は低くならないことが明らかとなった。このことは、強光子場中において、メチルアミン分子中の水素原子がC原子側からN原子側へとレーザーパルス幅内の非常に短い時間内に高速で移動することを示している。

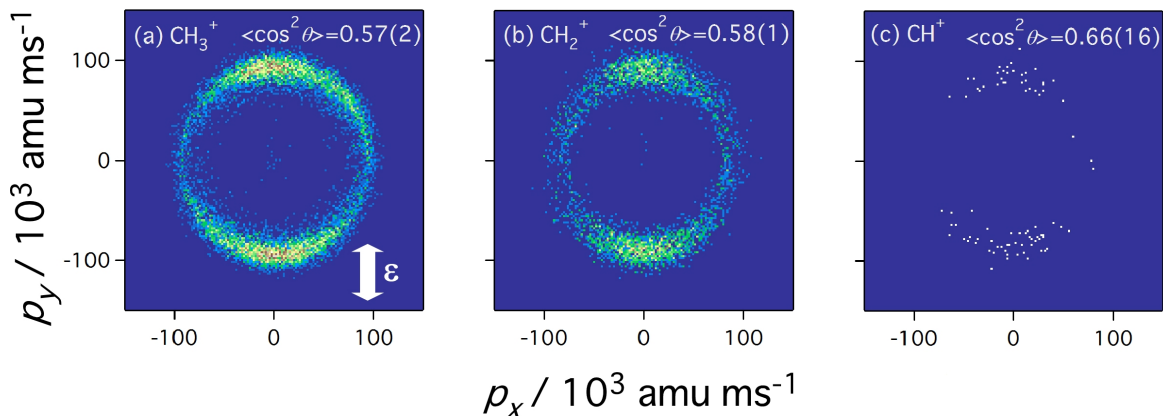


図1: メチルアミンの2体クーロン爆発過程によって生成するフラグメントイオンのコインシデンス運動量画像。[(a) CH_3^+ , (b) CH_2^+ , (c) CH^+] 白矢印はレーザー偏光方向を表す。

(2) 3体クーロン爆発過程における段階的解離過程

一方、3体クーロン爆発過程の場合には、図2に示すように3本のC-H結合とC-N結合の解離を伴う解離過程 $\text{CH}_3\text{NH}_2^{3+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{H}_2^+ + \text{CNH}_2^+$ が最も分岐比の大きい解離過程として確認された。図2に運動量相関図を示す。これは各フラグメントイオンの持つ運動量ベクトルのなす角度 χ および θ についての相関図となっている。相関図は2成分から構成されており、これらは、次の2種類の段階的解離過程に由来する。



この分布は、古典力学シミュレーションによって実測の分布を再現することが可能であり、図2(a)に示した2本の曲線がその結果に対応する。2つの段階的解離過程に関しては、 $c = 70^\circ$ を境界線に大まかな分離をすることが可能であり、それぞれの過程についてフラグメントイオンの異方性を評価すると、第1段階で放出されるフラグメントイオンが主にレーザー偏光方向に放出される傾向があることが分かった。

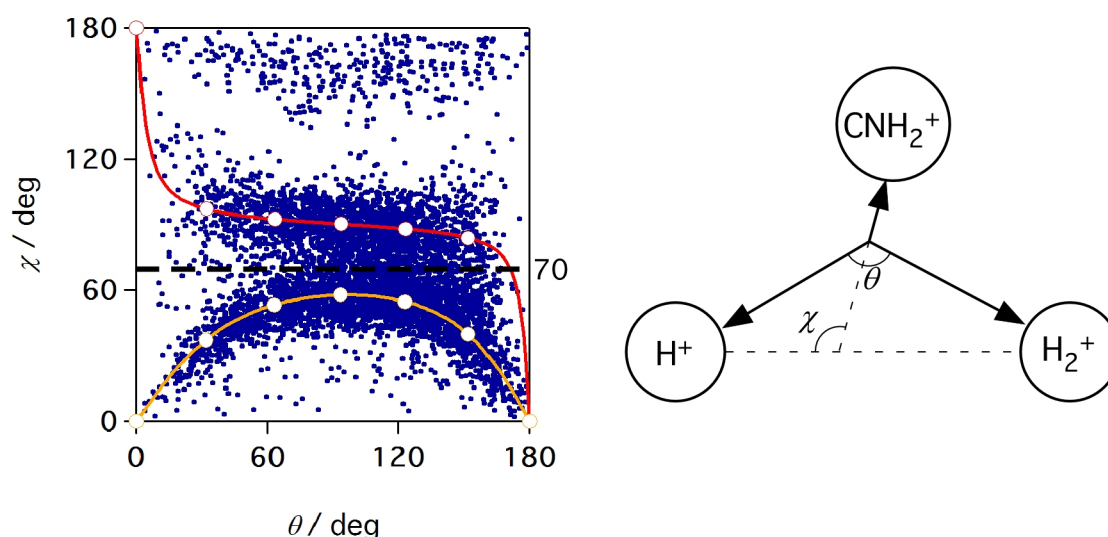


図2: (a) 3体クーロン爆発過程についての運動量相関図。2本の曲線は、シミュレーションの結果を示している。(b) 運動量相関図を構成する際の角度 χ と θ の定義

【参考文献】

- [1] A. Hishikawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, J. Electr. Spectrosc. Relat. Phenom. 141 (2004) 195.
- [2] Y. Furukawa, K. Hoshina, K. Yamanouchi, H. Nakano, Chem. Phys. Lett. 414 (2005) 117.
- [3] T. Okino, Y. Furukawa, P. Liu, T. Ichikawa, R. Itakura, K. Hoshina, K. Yamanouchi, H. Nakano, Chem. Phys. Lett. 419 (2006) 223.
- [4] T. Okino, Y. Furukawa, P. Liu, T. Ichikawa, R. Itakura, K. Hoshina, K. Yamanouchi, H. Nakano, J. Phys. B 39, (2006) S515.
- [5] H. Hasegawa, A. Hishikawa, K. Yamanouchi, Chem. Phys. Lett. 349 (2001) 57.