

【序】近年の研究から、炭化水素分子が強光子場中でクーロン爆発をする際に水素分子イオン ( $\text{H}_2^+$ ,  $\text{H}_3^+$ ) が生成することが知られるようになった[1]。メタン分子を試料とした研究では、レーザーのパルス幅が 100 fs から 1500 fs に増加したとき、 $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_2^+$  の生成量が倍以上に増加することが報告されている[2]。本研究ではメタン分子のクーロン爆発過程について知るために、飛行時間型質量分析装置と質量選別運動量画像法 (MRMI) を用いてフラグメントイオンの生成を調べた。

【実験】高真空中に分子線としてメタン分子を導入した。この分子線にフェムト秒レーザーの出力 (805 nm, 0.55 mJ/pulse, 5 kHz, 45 fs, 直線偏光) を焦点距離 250 mm のレンズを用いて集光照射し、強光子場 ( $\sim 0.45 \text{ PW/cm}^2$ ) を生成した。このとき生成したイオンを飛行時間 (TOF) 型質量分析計で検出した。レーザー偏光の方向を変化させて運動量分布の計測を行った。また、レーザーのパルスあたりエネルギーを一定とし、パルス幅を 45-630 fs の間で変化させることにより、フラグメントイオンの運動量分布のパルス幅依存性を調べた。

## 【結果と考察】

### (1) 水素分子イオンの生成と異方性

図 1 に、パルス幅が 45 fs の時の TOF 質量スペクトルを示す。水素分子イオンにあたる質量 2 および 3 のピークが確認できる。このとき、 $\text{H}_3^+$  イオンの  $\text{H}_2^+$  イオンに対するピーク強度比を  $\gamma = [\text{H}_3^+]/[\text{H}_2^+]$  とすると、 $\gamma \approx 0.04$  であり、メタノールなどでのピーク強度比  $\gamma = 0.15$ [1] と比べて小さい値となっている。図 2 にこのパルス幅での  $\text{H}_2^+$  イオンの MRMI 図を示す。このサイドピーク ( $25 \times 10^3 \text{ amu m/s} < |p| < 70 \times 10^3 \text{ amu m/s}$ ) の異方性は、レーザー偏光方向とイオンの放出方向がなす角を  $\theta$  としたとき  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 0.57$  と得られ、 $\text{H}_2^+$  の生成が高い異方性を持つことがわかった。このことは、メタンからの水素分子イオンの生成の際に、メタン分子がレーザー偏光方向に大きく変形することを示唆している。

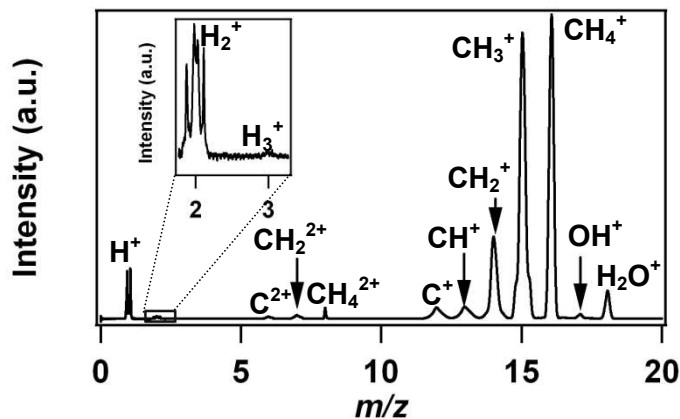


図 1: メタン分子の質量スペクトル  
レーザー偏光方向は TOF 軸と平行  
(45 fs,  $0.39 \text{ PW/cm}^2$ )

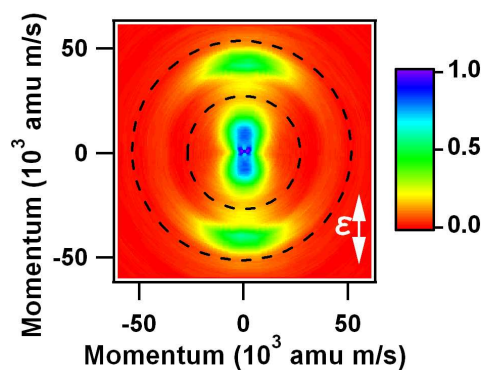


図 2:  $\text{H}_2^+$  イオンの MRMI 図  
白矢印はレーザー偏光方向を表す。  
2つの円の間の部分が異方性を算出したサイドピークである。

## (2) フラグメントイオンの運動量分布のパルス幅依存性

図3に、レーザー偏光方向がTOF軸に平行であるときの $H^+$ および $H_2^+$ の運動量分布のパルス幅依存性を示す。図3(a)では、パルス幅がおよそ70-300 fsのときのみAのピークとBのピークの間、Cのピークが現れている。また図3(b)では、E, Fのピークに加え、このパルス幅のあたりでGのピークが現れている。低い運動量のイオンを放出する解離経路は、分子が1度イオン化され、核間距離が伸びた後、もう一度イオン化される、増強イオン化によるものと考えられ[3]、今回のCおよびGのピークが生じる経路も増強イオン化によるものと考えられる。パルス幅が300 fsよりも長い場合にCおよびGのピークが弱くなっているのは、パルス幅の増大とともにレーザー電場の強度が減少するためであると考えられる。

また、図3(a)では、パルス幅が短い場合 (~70 fs 以下) でのみAのピークのさらに外側にもう1組のピークDが現れている。高い運動量を持つこのイオンは3価の親イオンから解離したフラグメントイオンであると考えられ、この解離経路がパルス幅が短いときにのみ進行することを示している。

さらに、パルス幅が45 fsと短い場合、(a)ではAのピークが、(b)ではEのピークが、パルス幅がより長い場合と比べて外側に広がっていることがわかる。これは、短いパルス幅ではクーロン爆発が起こるまでに核間距離が伸び切らず、クーロン爆発直後のフラグメントイオンの運動量が大きくなるためであると考えられる。

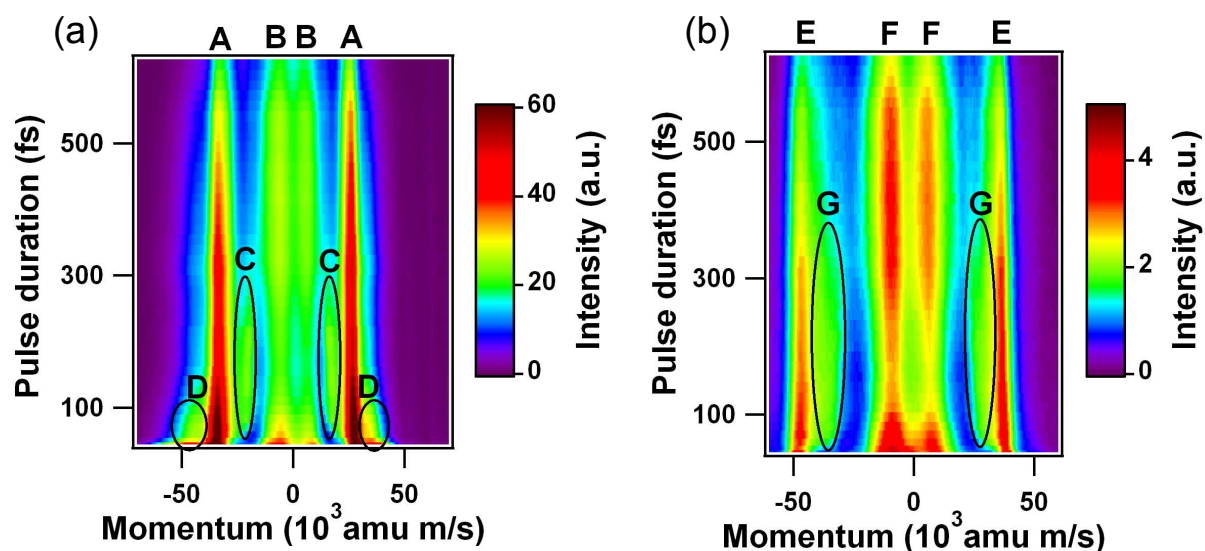


図3: 運動量分布のパルス幅依存性 [(a)  $H^+$ , (b)  $H_2^+$ ]

各パルス幅におけるスペクトルを垂直軸方向に並べ、現われているピークにA~Gの記号を割り振った。

### 【参考文献】

- [1] T.Okino, Y.Furukawa, P.Liu, T.Ichikawa, R.Itakura, K.Hoshina, K.Yamanouchi, H.Nakano, Chem. Phys. Lett. **419** (2006) 223.
- [2] D.Mathur, F.A.Rajgara, J. Chem.Phys. **120** (2004) 5616.
- [3] K.Codling, L.J.Frasinski, J. Phys. B **26** (1993) 783.