

1P005

コインシデンス運動量画像法によるメタノール分子における超高速水素マイグレーションのレーザーパラメーター依存性

(1. 東大院・理 2. 吉林大学 3. Vienna 工科大学 4. Laval 大学) Huailing Xu^{1,2}、
 沖野 友哉¹、○工藤 達矢¹、中井 克典¹、山内 薫¹、Stefan Roither³、Markus Kitzler³、
 Andrius Baltuska³、See-Leang Chin⁴

【序】強光子場ではメタノール、アレン、ブタジエン等の炭化水素分子において、水素マイグレーションが誘起されることが明らかになっている[1, 2]。しかし、これまでのところ、どのようなレーザー波形の場合に水素マイグレーションが効率的に誘起されるかは明らかにされていない。そこで、本研究では、コインシデンス運動量画像法(Coincidence Momentum Imaging: CMI 法)を用いて、2 価のメタノールイオンが示す二つの解離過程、マイグレーションを伴う解離過程($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$)とマイグレーションを伴わない解離過程($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$) の比率のレーザーパラメーター依存性を調べた。

【実験】フェムト秒レーザー (中心波長 795 nm、繰り返し数 5 kHz) の強度、パルス幅、偏光を変え、 7×10^{-11} torr の超高真空チャンバーに導入したメタノール分子に集光照射した。集光強度については、パルス幅を 40 fs と一定に保ち、 $1.5 \times 10^{14} \sim 1.5 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ の間で変化させた。次に、集光強度を $6.5 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ と固定し、正負両方の 2 次分散をパルス圧縮器の回折格子間距離を変化させることにより加え、パルス幅を 40 ~ 100 fs まで変化させ CMI 画像を計測した。さらに、円偏光の場合と直線偏光の場合について、レーザー場強度を $6.5 \times 10^{14} \sim 1.0 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ の範囲で変化させ

CMI 画像を観測した。

【結果と考察】得られた CMI 画像の例を図 1 に示す。水素マイグレーションを伴う解離過程で生成する CH_2^+ と水素マイグレーションを伴わない直接解離過程で生成する CH_3^+ の生成数をそれぞれ η_{mig} と $\eta_{\text{non-mig}}$ とし、フラグメント生成比 $\gamma = \eta_{\text{mig}} / \eta_{\text{non-mig}}$ を求めた。

(1) レーザー場強度依存性

図 2 にレーザー場強度に対する γ の変化をプロットした。このとき γ は 0.24 ~ 0.20 まで減少した。レーザー場強度が高いときほど水素マイグレーションを伴う解離過程の割合が小さいことを意味している。これは、水素マイグレーションが 1 価イオンで誘起されると考えると説明できる。すなわち、光子場強度が高くなるにつれ、多重イオン化の確率が高くなり、

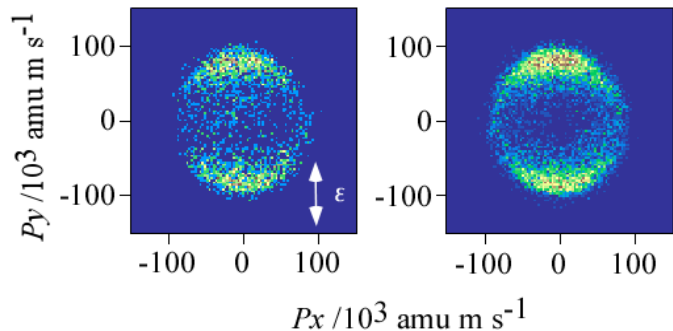


図 1. CMI 画像 : CH_2^+ (左)、 CH_3^+ (右)

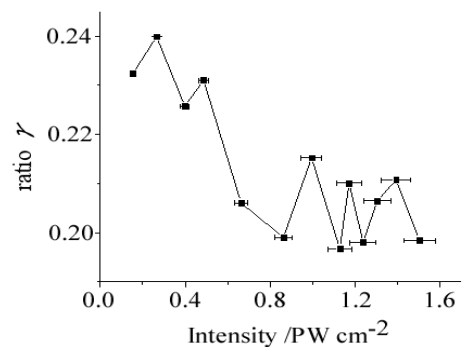


図 2. γ のレーザー場強度依存性

1価から2価イオンになるまでにかかる時間が短くなるものと考えられる。一方、一度2価イオンが生成すると、クーロン爆発が引き起こされるため光子場強度が高い場合には、相対的に水素マイグレーション過程の割合が少なくなるものと考えられる。

(2) パルス幅依存性

図3では、レーザー場強度を一定に保った場合のフラグメント生成比のパルス幅依存性を示した。パルス幅の長い場合の方が、水素マイグレーションを伴う解離過程の割合が大きいたことが明らかとなった。これは、パルス幅が短い場合では、パルスのピークに達する前、1価で水素マイグレーションが起こる前に2価イオンが生成し、クーロン爆発が起こるのに対して、パルス幅が長ければ、1価のイオンが生成したのちに、2価イオンが生成するまでレーザー電場と相互作用する時間が十分あるために、相対的に水素マイグレーションが誘起される割合が大きくなるものと考えられる。

(3) 偏光依存性

図4では、それぞれのレーザー場強度での水素マイグレーションを伴う解離過程と水素マイグレーションを伴わない解離過程の割合 γ を直線偏光(γ_{linear})および円偏光($\gamma_{circular}$)の場合に計測し、各レーザー場強度での割合 $\chi = \gamma_{linear} / \gamma_{circular}$ をプロットした。 χ の値は、レーザー場強度に依存せず、0.85~0.91の範囲に分布した。この結果から、水素マイグレーションの起こりやすさは、レーザー電場の偏光には、ほとんど依存しないことが明らかとなった。

以上から、1価イオンの状態を長く保てるレーザー電場（レーザー場強度が低い場合とパルス幅が長い場合）が水素マイグレーション誘起には有効である可能性が示された。

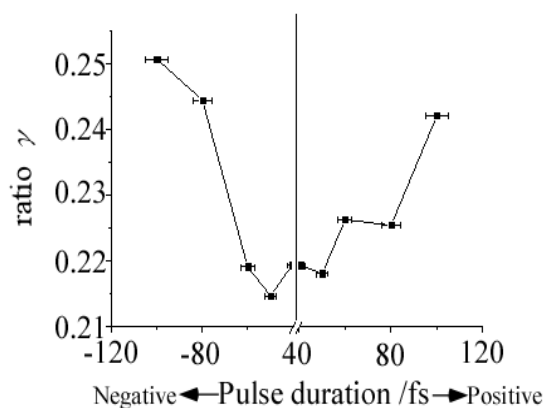


図3. γ のパルス幅依存性

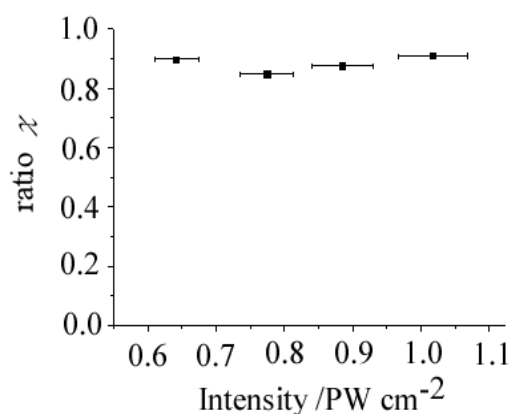


図4. χ の偏光依存性

【参考文献】

- [1] H. Xu, T. Okino, K. Yamanouchi *Chem. Phys. Lett.* **469** 255-260 (2009).
- [2] H. Xu, T. Okino, K. Nakai, K. Yamanouchi, S. Roither, X. Xie, D. Kartashov, M. Schöffler, A. Baltuska, M. Kitzler *Chem. Phys. Lett.* **484** 119-123 (2010).