

# 1P022

## 数サイクルパルスを用いたポンプ・プローブコインシデンス運動量画像法による 強光子場中のメタンの解離過程の追跡

(東大院理) ○島本 章弘, 安藤 俊明, 三浦 瞬, 岩崎 純史, 山内 薫

### Dissociation of methane in intense laser fields studied by pump-probe coincidence momentum imaging

(School of Science, The University of Tokyo) ○Akihiro Shimamoto, Toshiaki Ando, Shun Miura,  
Atsushi Iwasaki and Kaoru Yamanouchi

#### 【序】

強光子場におかれた炭化水素分子では、その構造の変化や解離にともなって分子内の水素原子が速く移動することがあり、近年、その時間スケールを追跡する研究が行われている。たとえば、強光子場によって誘起されるメタノール分子内の水素移動には、レーザーパルス内 (30 ~ 50 fs) で起きる速い過程と、100 ~ 200 fs で起きる遅い過程の 2 種類があることが報告されている[1]。一方で、O<sub>2</sub> や N<sub>2</sub> のような二原子分子の解離過程については、パルス幅が 10 fs 以下である数サイクルパルスによって高い時間分解能で追跡されている[2]。

本研究では、数サイクルパルスを用いたポンプ・プローブコインシデンス運動量画像法によって、強光子場における CH<sub>4</sub> からの H<sup>+</sup>、H<sub>2</sub><sup>+</sup>、H<sub>3</sub><sup>+</sup> の生成過程を観測した。断片イオンの収量と運動エネルギー放出 (KER) の遅延時間依存性や、放出方向の異方性に基づき、CH<sub>4</sub><sup>2+</sup> の解離機構について検討した。

#### 【実験】

実験装置の概要を図 1 に示す。Ne ガス (1.7 atm) を充填したファイバーにフェムト秒レーザーパルスを集光してスペクトル幅を広げたのち、チャープミラーとウェッジ板によってスペクトル位相を補償することで数サイクルパルスを得た。これをマッハツェンダー型の干渉計を用いて遅延時間  $\tau$  の 2 つのパルス (いずれも 750 nm、5 kHz、14  $\mu$ J、8 fs) に分けた。遅延時間  $\tau$  は、ピエゾステージにのこぎり波電圧を入力することにより、0 fs  $\leq$   $\tau$   $\leq$  510 fs の範囲で連続的に変化させた。それぞれのパルスを集光ミラー ( $f = 150$  mm) により真空チャンバー内でメタンの分子線に集光した。集光点における集光強度は、いずれのパルスについても  $4 \times 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup> と見積もられた。放出された断片イオンを電場によって引き出し、2次元位置敏感型検出器を用いて飛行時間と検出位置を測定し、各イベントにおいて生成する断片イオンの KER を遅延時間  $\tau$  の関数として得た。

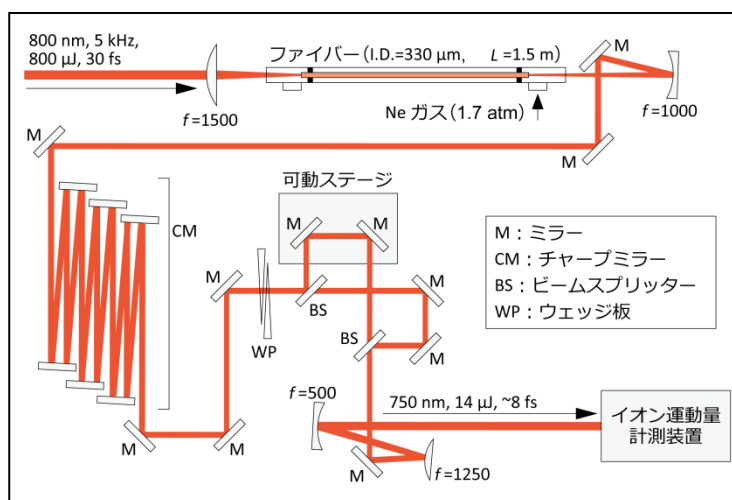
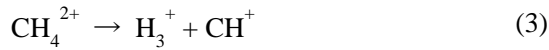
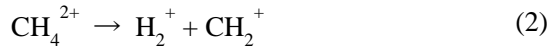


図 1. 実験装置の概要。

### 【結果・考察】

クーロン爆発によって  $\text{CH}_4^{2+}$  から  $\text{H}^+$ 、 $\text{H}_2^+$ 、 $\text{H}_3^+$  が生成する各過程



について、断片イオンの KER を遅延時間  $\tau$  の関数として図 2 に示す。各過程において、 $\tau$  によらず KER がほぼ一定となる成分 A と、 $\tau$  の増加にともなって KER が減少する成分 B が観測された。いずれの過程も、単一パルスを用いた場合には成分 B は観測されなかった。 $\text{H}^+$ 、 $\text{H}_2^+$  が生成する過程における、 $\tau$  の増加にともなう成分 A の収量の減少および成分 B の収量の増加は、ポンプパルスによって生成した  $\text{CH}_4^+$  の分子構造が、成分 A を生成しやすい構造から、成分 B を生成しやすい構造へと変化していることを反映していると推測される。また、 $\text{H}_2^+$  が解離する過程において、 $\tau$  が大きい領域では成分 B の収量が成分 A の収量を上回っており、このことは、中性分子の場合に比べて、1 価イオンの方が分子内の水素原子どうしの間で結合が生成しやすいことを示している。

次に、 $210 \text{ fs} < \tau < 510 \text{ fs}$  における  $\text{H}^+$  と  $\text{H}_2^+$  の運動量画像を図 3 に示す。 $\text{H}^+$  の放出運動量はレーザーの偏光方向への異方性が見出されるのに対し、 $\text{H}_2^+$  の放出運動量はほぼ完全に等方的であることが分かった。このことは、 $\text{H}^+$  が生成する過程よりも  $\text{H}_2^+$  が生成する過程のほうが  $\text{CH}_4^{2+}$  の寿命が長く、その寿命が分子全体の回転の周期程度か、それ以上であることを示している。

### 【参考文献】

[1] H. Xu *et al.*, *J. Chem. Phys.* **133**, 071103 (2010).

[2] A. S. Alnaser *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39**, S485 (2006).

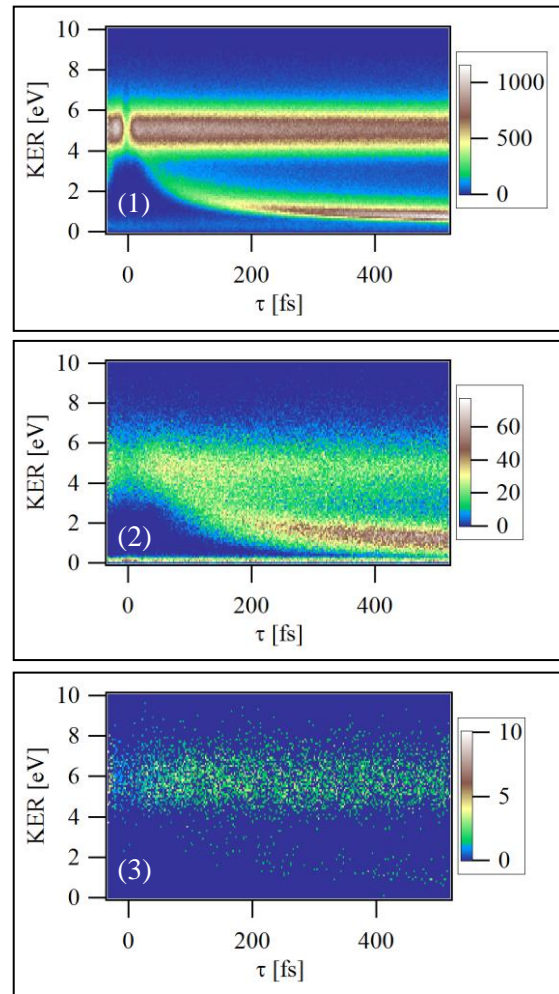


図 2. 断片イオンの KER の遅延時間  $\tau$  に対する分布。

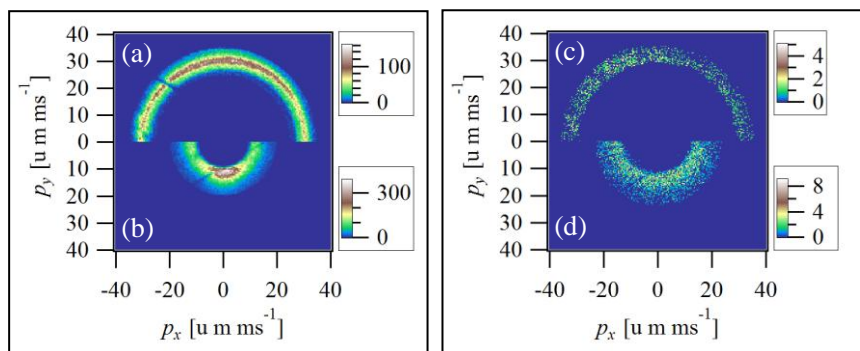


図 3.  $\text{H}^+$ 、 $\text{H}_2^+$  の運動量画像。(a)  $\text{H}^+$  (成分 A)、(b)  $\text{H}^+$  (成分 B)、(c)  $\text{H}_2^+$  (成分 A)、(d)  $\text{H}_2^+$  (成分 B)。