

2P122

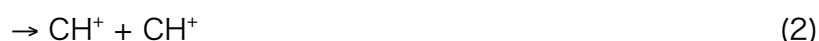
クーロン爆発反応イメージング： $C_2H_2^{2+}$ 異性化反応実時間追跡

(分子研¹・総研大²・JSTさきがけ³) ○菱川明栄^{1,2,3}, 松田晃孝¹, 高橋栄治^{1,2}

【序】 強レーザー場 ($\sim 10^{15}$ W/cm²) 中におかれた分子は、レーザー場との強い相互作用によって複数の電子が放出され、生成した多価分子イオンは原子間のクーロン反発による解離、すなわち「クーロン爆発」を起こす。レーザーパルス幅が極めて短く (<10fs)、多重イオン化が核の動きに比べて十分に速やかにおこる場合には、生成したフラグメントイオンの持つ運動量ベクトルから標的分子の持つ構造の再構築が可能となる[1-3]。本研究では、強レーザーパルスの照射によって生成した $C_2H_2^{2+}$ 分子イオンの異性化反応過程を、この「クーロン爆発イメージング」を用いて実時間で追跡し、その超高速水素移動ダイナミクスの詳細を明らかにすることを目指した。

【実験】 フェムト秒チタンサファイアレーザーシステムから出力された光パルス (波長 800nm, パルス幅 <32fs, 繰り返し1kHz) を、Ar ガス (~ 0.5 MPa) を充填した中空ファイバーとチャープミラーを用いてパルス圧縮した。フリッジ分解自己相関波形から求められたパルス幅は 9 fs であり、パルスあたりのエネルギーとして 0.4 mJを得た。これを超高真空チャンバー (<10⁻⁸ Pa) 内に設置した銀コート凹面鏡で集光し、強レーザー場を発生させ、標的分子と相互作用させた。生成した解離イオンは位置敏感型粒子検出器 (PSD) を用いたコインシデンス運動量画像法[4]を用いて検出した。これによって、単一の親分子から生成するすべての解離生成イオンを同時に検出し、さらに PSD における到着位置 (x,y) および到着時間 t からそれぞれのイオンの持つ運動量をベクトルとして決定した。

【結果・考察】 9fs 強光子場 (~ 50 TW/cm²) における C_2H_2 の飛行時間質量スペクトルには8つの解離イオン種、 $C_2H_2^+$, C_2H^+ , C_2^+ , CH_2^+ , CH^+ , C^+ , H_2^+ , H^+ に由来するピークが観測された。コインシデンス計測によってクーロン爆発過程には、3種の異なる2体爆発経路



が観測され、アセチレン型構造に由来する経路(2)に加えて、ビニリデン型構造からの解離経路(3)の存在が明らかとなった。

この結果を踏まえて、強レーザー場 (~ 50 TW/cm²) において生成した $C_2H_2^{2+}$ のダイナミクス追跡を行った。ポンプ・プローブ計測に必要なパルス対 (9 fs, 50 TW/cm²) は高安定マイケルソン干渉計を用いて得た。ポンプ光によって生成した $C_2H_2^{2+}$ に時間遅延においてプローブ光を照射し、3体クーロン爆発過程



によって生成したフラグメントイオンをコインシデンス運動量画像法によって検出した (図 1)。ポンプ光だけを照射した場合, C^+ および H^+ イオンの運動量 $p(C^+)$, $p(H^+)$ がなす角 θ_{12} の分布は 0 度近辺にピークを示し (図 2 a), アセチレン型構造からのクーロン爆発過程が起こることが見いだされた。一方でプローブ光を 40fs の時間遅延をおいて照射した場合, $\theta_{12} \sim 70^\circ$ にピークを持つ幅の広い分布が見いだされ (図 2 b), ポンプ光照射後極めて短い時間スケールで, 水素が他方の炭素に向かって大きく移動していることが明らかとなった。

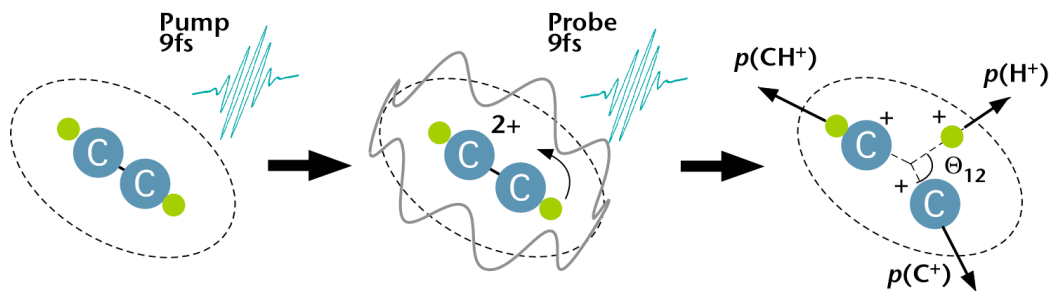


図 1 : アセチレン水素移動過程のクーロン爆発反応イメージング概念図。

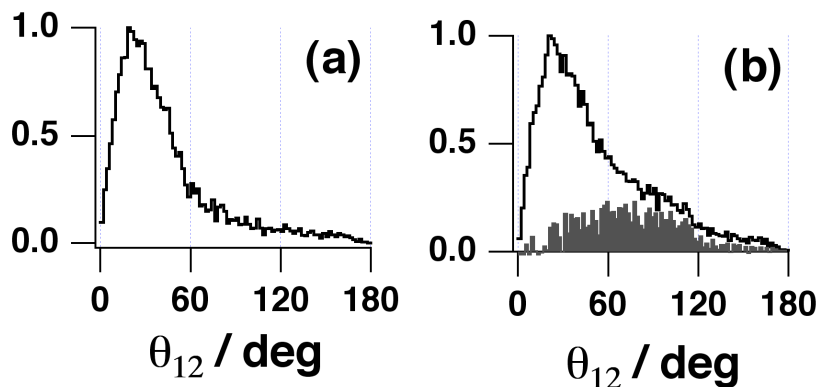


図 2 : (a)ポンプ光のみ, (b) ポンププローブ遅延時間=40fs における運動量角 θ_{12} の分布。2つの分布の差 ((b) 下) は $\theta_{12} \sim 70^\circ$ にピークを持つ幅の広い分布を示す。

【参考文献】

- [1] F. Legare, et al., Phys. Rev. A **72**, 052717 (2005).
- [2] F. Legare, et al., Phys. Rev. A **71**, 013415 (2005).
- [3] E. Baldit, et al., Phys. Rev. A **71**, 021403 (2005).
- [4] H. Hasegawa, et al., Chem. Phys. Lett. **349**, 57 (2001).