

3A12

フェムト秒レーザー場中でのレーザーアシステッド電子回折の観測

(東京大学) 森本 裕也, 歸家 令果, 山内 薫

Observation of Laser-Assisted Electron Diffraction in Femtosecond Laser Fields

(The University of Tokyo) Yuya Morimoto, Reika Kanya, and Kaoru Yamanouchi

【序】気体電子回折法は、気体分子によって散乱された高速電子の散乱角度分布に現れる干渉縞から、分子の幾何学的構造を決定できる有用な手法である。近年、反応途中にある分子種の幾何学的構造を追跡するために、超短電子パルスを用いたパルス電子回折法が行われているが、気体試料における時間分解能はピコ秒が限度であると考えられている [1].

我々は、フェムト秒以下の時間分解能と 0.1 \AA 以下の空間分解能を共に達成する手法として、レーザーアシステッド電子散乱過程を利用した新たな電子回折法を提案した [2]. レーザーアシステッド電子散乱過程とは、レーザー場中での原子・分子 - 電子散乱により、散乱電子のエネルギーが光子エネルギー ($h\nu$) の整数倍だけ変化する散乱過程である。レーザーアシステッド電子散乱過程を用いた電子回折法における時間分解能は、用いるレーザーのパルス幅でのみ決定されるため、フェムト秒以下の時間分解能の達成が可能である。また、用いる電子線の運動エネルギーは任意であるため、空間分解能に対する原理上の制限がなく、 0.1 \AA 以下の空間分解能が達成可能である。我々はこれまでに、Xe 原子を用いて、フェムト秒レーザーによるレーザーアシステッド電子散乱過程の初観測に成功した [2]. 本研究では、四塩化炭素 CCl_4 を標的に用いることによって、レーザーアシステッド散乱電子の散乱角度分布に現れる、分子の幾何学的構造に由来する干渉縞を初めて観測した。

【実験】実験装置の概要を図 1 に示す。単色電子パルス ($E = 1000 \text{ eV}$, $\tau = 50 \text{ ps}$) は、チタン・サファイアレーザーの第三次高調波 ($\lambda = 267 \text{ nm}$, $\tau = 50 \text{ ps}$) を利用した光電陰極型電子銃により生成され、散乱点にて CCl_4 の漏れ出し分子線、高強度レーザーパルス ($\lambda = 800 \text{ nm}$, $h\nu = 1.55 \text{ eV}$, $\tau = 500 \text{ fs}$, $I = 1.7 \times 10^{12} \text{ Wcm}^{-2}$) と直交する。電子パルスと高強度レーザーパルス間の遅延時間 (Δt) は、第三次高調波の光路に設置した遅延ステージによって調整され、パルス間の同期は約 1 ps の精度にて保証されている [3]. 散乱電子はスリットで切り出された後、トロイダル型電子エネルギー分析器にて運動エネルギー分布および散乱角度分布が分析され、位置敏感型検出器により計数法検出される。本装置のエネルギー分解能は 0.4 eV 、散乱角度分解能は 1° である。検出可能な散乱角度範囲は 2° から 13° である。

【結果と考察】運動エネルギーごとに散乱角度分布を積分して得た、散乱電子の運動エネルギースペクトルを図 2(a) に示す。赤丸はレーザー場中で散乱した散乱電子信号 ($\Delta t = 0 \text{ ps}$)、黒丸は背景信号 ($\Delta t =$

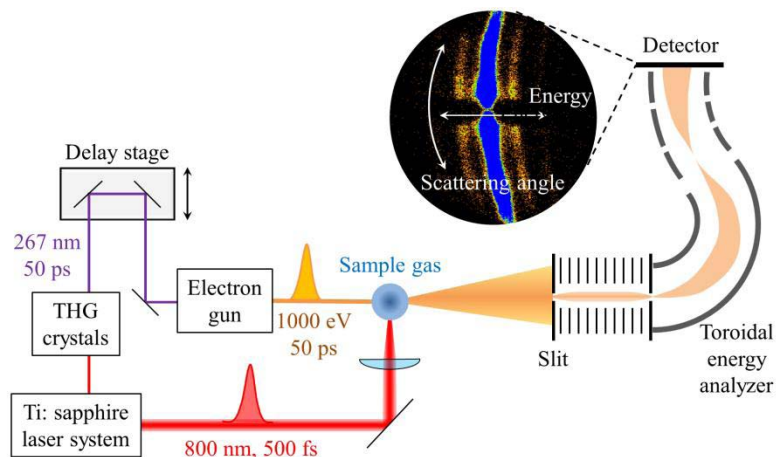


図 1. 実験装置の概略図

± 87 ps) である. なお, 信号強度は弾性散乱 ($\Delta E = 0$ eV) のピーク強度によって規格化されている. $\Delta t = 0$ ps の運動エネルギースペクトルでは, $\Delta E = \pm hv$ および $\Delta E = \pm 2hv$ に, 明確なピーク構造が観測された. これらピークの帰属を確認するために, 背景信号を差し引き (図 2(b)赤丸), レーザーアシステッド電子散乱過程の微分散乱断面積を与える Kroll-Watson の式 [4]に基づいた数値シミュレーション結果 (図 2(b)青線) との比較を行った. 実験値とシミュレーション結果は良い一致を示し, $\Delta E = \pm hv$ および $\Delta E = \pm 2hv$ に現れたピーク構造がレーザーアシステッド電子散乱過程由来の信号であることが確認された.

図 3(a)に $\Delta E = +hv$, (b)に $\Delta E = -hv$ のエネルギーシフトにおける散乱角度分布を赤丸で示す. $\Delta E = +hv$, $\Delta E = -hv$ ともに, 散乱角度 6° 付近で極小値, 9° 付近で極大値を取る干涉縞が現れている. このような干涉縞は Xe 原子を用いた場合の散乱角度分布には観測されていないので [2], 分子の幾何学的構造に由来する干涉縞であると考えられる. 図 3 黒線で Kroll-Watson の式 [4]に基づいた数値シミュレーション結果を示す. 実験で得られた干涉縞の構造はシミュレーション結果によって良く再現されており, レーザーアシステッド電子回折が観測されたことを示している.

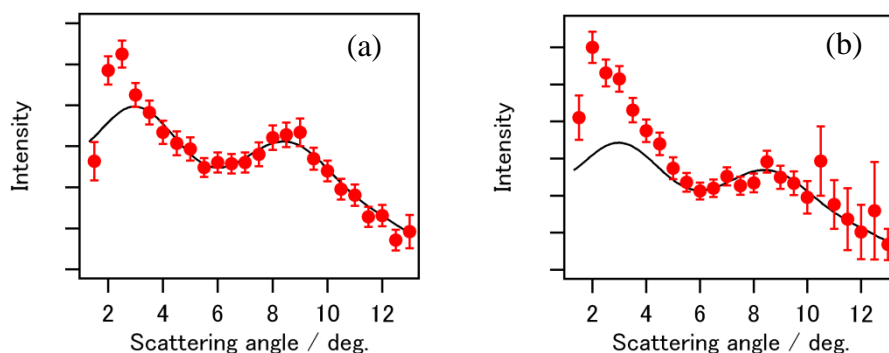


図 3. CCl_4 によるレーザーアシステッド散乱電子の散乱角度分布. 赤丸は実験値, 黒色実線は Kroll-Watson の式に基づいたシミュレーション結果. (a), (b)はそれぞれ $\Delta E = +hv$, $\Delta E = -hv$ の場合を表している. シミュレーションにおける弾性散乱の角度分布には, 実験で得られた CCl_4 による弾性散乱 ($\Delta E = 0$ eV) の散乱角度分布を用いた.

【参考文献】

- [1] R. Srinivasan, *et. al.*, *Helv. Chim. Acta* **86**, 1761 (2003).
- [2] R. Kanya, Y. Morimoto, and K. Yamanouchi, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123202 (2010).
- [3] R. Kanya, Y. Morimoto, and K. Yamanouchi, *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 123105 (2011).
- [4] N. M. Kroll and K. M. Watson, *Phys. Rev. A* **8**, 804 (1973).

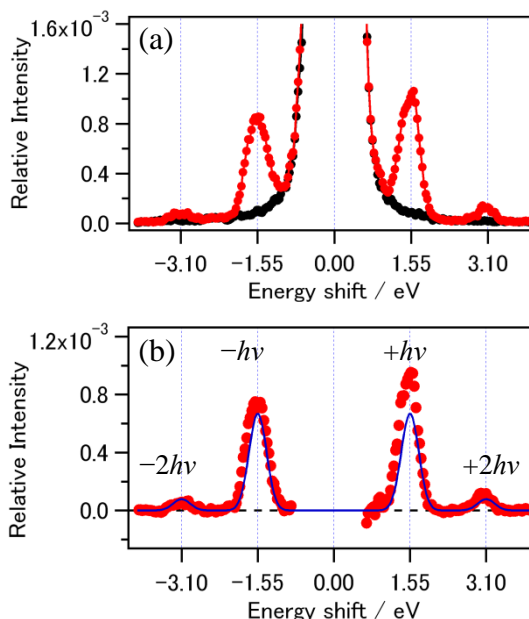


図 2. (a) CCl_4 による散乱電子の運動エネルギースペクトル. 赤丸が $\Delta t = 0$ ps, 黒丸が $\Delta t = \pm 87$ ps の場合である. 横軸は入射電子のエネルギー $E = 1000$ eV からの変化量である. 信号強度は弾性散乱信号 ($\Delta E = 0$ eV) のピーク強度によって規格化している. (b) $\Delta t = 0$ ps のときの運動エネルギースペクトルと $\Delta t = \pm 87$ ps のときの運動エネルギースペクトルの差スペクトル. 赤丸は実験値, 青色実線はシミュレーションによって得られた結果を表す.

図 3 黒線で Kroll-Watson の式 [4]に基づいた数値シミュレーション結果を示す. 実験で得られた干涉縞の構造はシミュレーション結果によって良く再現されており, レーザーアシステッド電子回折が観測されたことを示している.