

3A01

X線自由電子レーザーによる 希ガスクラスターの多光子多重イオン化ダイナミクス

(東北大・多元研¹, CFEL, DESY², Lund Univ.³, 理研・放射光科学総合研究センター⁴,
京大・院理⁵, Imperial College London⁶, 広大・院理⁷, Synchrotron SOLEIL⁸,
Uppsala Univ.⁹, JASRI¹⁰, Univ. of Hamburg¹¹)

○立花 徹也¹, Jurek Zoltan², Johnsson Per³, 福澤 宏宣^{1,4}, 本村 幸治¹, 永谷 清信^{4,5},
Siano Marco⁶, 和田 真一^{4,7}, Mondal Subhendu¹, 木村 美紅¹, 伊藤 雄太¹, 酒井 司⁵,
松波 健司⁵, 林下 弘憲⁷, 梶川 隼平⁷, Liu XiaoJing⁸, Robert Emmanuel⁸, Catalin Miron⁸,
Feifel Raimund⁹, Marangos Jon⁹, 登野 健介¹⁰, 犬伏 雄一⁴, 初井 宇記⁴, 矢橋 牧名⁴,
Ziaja Beata², Son Sang-Kil², Santra Robin^{2,11}, 八尾 誠⁵, 上田 潔^{1,4}

Multiphoton multiple ionization dynamics of rare-gas clusters by X-ray free electron laser

(IMRAM, Tohoku Univ.¹, CFEL, DESY², Lund Univ.³, RIKEN SPring-8 Center⁴,
Kyoto Univ.⁵, Imperial College London⁶, Hiroshima Univ.⁷, Synchrotron SOLEIL⁸,
Uppsala Univ.⁹, JASRI¹⁰, Univ. of Hamburg¹¹)

○Tetsuya Tachibana¹, Zoltan Jurek², Per Johnsson³, Hironobu Fukuzawa^{1,4}, Koji Motomura¹,
Kiyonobu Nagaya^{4,5}, Marco Siano⁶, Shin-ichi Wada^{4,7}, Subhendu Mondal¹, Miku Kimura¹,
Yuta Ito¹, Tsukasa Sakai⁵, Kenji Matsunami⁵, Hironori Hayashita⁷, Jumpei Kajikawa⁷,
XiaoJing Liu⁸, Emmanuel Robert⁸, Catalin Miron⁸, Raimund Feifel⁹, Jon Marangos⁶,
Kensuke Tono¹⁰, Yuichi Inubushi⁴, Takaki Hatsui⁴, Makina Yabashi⁴, Beata Ziaja², Sang-kil Son²,
Robin Santra^{2,11}, Makoto Yao⁵, and Kiyoshi Ueda^{1,4}

【諸言】

近年の自由電子レーザー (Free Electron Laser; FEL) 施設が目覚ましい発展により、短波長領域においても非線形過程である多光子吸収による原子・分子・クラスターの多重イオン化について研究することが可能となった。2012年3月、SPring-8敷地内に我が国では初めて、世界では米国 LCLS に次ぐ2番目のX線自由電子レーザー施設であるSPring-8 Angstrom Compact free electron LASer (SACLA) がユーザー運転を開始した[1]。これまで本研究グループでは理研播磨研究所のSCSS試験加速器から得られる極紫外FELを用いて、希ガスクラスターを標的とした研究を行い、クラスターから放出された多数の電子・イオンによるナノプラズマ形成など、クラスター特有の現象を観測してきた[2]。本研究では、X線領域でのクラスターの多光子光イオン化ダイナミクスの研究を目的として実験を行い、高エネルギーのX線光子の多光子吸収による振る舞いに着目した。

【実験】

実験はSACLAのBL3, EH3で行った。用いたXFEL光のエネルギーは5 keV および 5.5 keV である。XFEL光はEH3に常設されているK-Bミラーシステム[3]により1 μ m程度に集光され

て実験チャンバーに導入し、集光点においてパルス超音速分子線として導入されたクラスタービームと交差するように実験チャンバーを設置した。本実験では、平均サイズ 100~1000 のアルゴンクラスターおよび 100~37000 のキセノンクラスターを標的とした。クラスターの光イオン化により生じた電子は Velocity Map Imaging (VMI) 型分光計によって観測し、得られた画像を逆アーベル変換することで電子エネルギースペクトルと角度分布の情報を得た。VMI 型分光計には蛍光板付きマイクロチャンネルプレート(MCP)が備え付けてあり、CCD カメラによって検出イメージをパルス毎に撮影した。この装置は高エネルギー領域にまで広がる電子を観測するため、高エネルギーに対応可能なように設計されており、検出できる電子の最大エネルギーは約 900 eV である。反応領域を通過した XFEL 光はベリリウム窓を通して大気中に導き出され、PIN フォトダイオードで検出してパルス毎の光強度データを得た。

【結果と考察】

図 1 は 5 keV の XFEL を平均クラスターサイズ 1000 の Ar クラスターに照射して得られた電子スペクトルである。XFEL 照射実験では、VMI 型分光器の検出限界を超えた高エネルギーの電子が数多く生成し、その一部は電子スペクトル中にバックグラウンドを生成する。本研究ではこのバックグラウンドを除去する方法を開発し、図 1 に示すような電

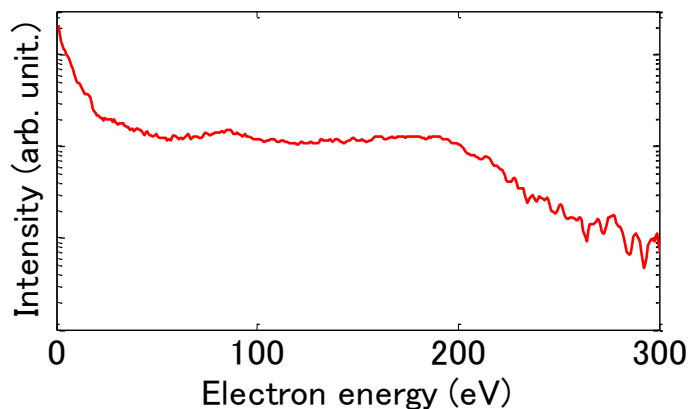


図 1. Ar クラスター ($\langle N \rangle = 1000$) の電子スペクトル

子スペクトルを得ることが可能となった。図 1 に示す電子スペクトルには、比較的高エネルギーにまで広がる裾と、数 eV の低エネルギー電子ピークの増大が観測され、ナノプラズマ形成を示唆している。発表では本実験結果をクラスターサイズ、光強度の依存性について交えながら最新の理論計算と比較し議論する。

【謝辞】

本研究は文部科学省の X線自由電子レーザー利用推進研究課題およびX線自由電子レーザー重点戦略研究課題、理化学研究所の SACLA 利用装置提案課題として援助を受け行われました。

【参考文献】

- [1] T. Ishikawa *et al.*, Nature Photonics **6**, 540 (2012).
- [2] H. Fukuzawa *et al.*, Phys. Rev. A **79**, 031201(R) (2009); H. Iwayama *et al.*, J. Phys. B **42**, 134019(2009); H. Iwayama *et al.*, J. Phys. B **43**, 161001(2010); A. Sugishima *et al.*, Phys. Rev. A **86**, 033203 (2012); K. Nagaya *et al.*, J. Phys. B, in press.
- [3] H. Yumoto *et al.*, Nat. Photon., **7**, 43 (2013).

フラーレン超多価カチオン C_{60}^{q+} ($q = 20-60$) のクーロン爆発過程と解離種

(東北大院理¹・産総研²・東北大多元研³) ○山崎 馨¹・中村 堯祉¹・新津 直幸^{1,2}・菅野 学¹・
上田 潔³・河野 裕彦¹

Coulomb explosions of highly charged fullerene cations C_{60}^{q+} ($q = 20-60$) and their fragments

(Graduate School of Science, Tohoku Univ.¹; AIST²; IMRAM, Tohoku Univ.³) ○Kaoru Yamazaki¹, Takashi Nakamura¹, Naoyuki Niitsu^{1,2}, Manabu Kanno¹, Kiyoshi Ueda³, Hirohiko Kono¹

【序論】 X線自由電子レーザー(XFEL)パルスは、数十 GW の高いピークパワーとフェムト秒(fs)オーダーのパルス幅をもつため、タンパク質などの巨大分子の構造決定や反応動力学イメージングに用いる新光源として期待されている[1]。しかし、XFEL パルスはその高い光強度のために試料に含まれる原子や分子の多重イオン化[2-4]や解離[3,4]を容易に引き起こし、試料を損傷させてしまう。そこで、試料の損傷ダイナミクスの解明を目指して、XFEL パルスによる多重イオン化およびフェムト秒解離動力学に関する実験[2-4]が窒素分子 N_2 [3] や methylselenol CH_3SeH [4] などの小分子において実施され、理論計算による検証[5]やより大きな分子への拡張が進められている。

フラーレン C_{60} は、 Xe^{25+} との衝突実験により電荷 $q \approx 60$ までの超多価カチオン C_{60}^{q+} の生成が確認されており[6]、XFEL パルスによって生成された巨大多価カチオンの解離動力学イメージング法のテスト分子として適している。それでは、 C_{60}^{q+} の解離の時間スケールや解離種は q や初期運動エネルギー E_{in} によってどの様に変化するのだろうか。Tomita らの解離種の Kinetic energy release (KER) 測定によると、 C_{60}^{q+} の主要解離種は $q \approx 30$ を境に C_n^+ ($n = 2, 3, \dots$) 等の分子解離種から C^+ など原子解離種へと変化することが示唆されている[6]。また Beu らは、 C_{60}^{q+} ($q = 0, 10, 20$) において E_{in} を増加させるほど小さな解離種が増加すると理論的に予想している[7]。しかし Tomita らの実験と Beu らの計算では、解離機構の E_{in} 依存性と解離機構が大きく変化するとされる $q \approx 30$ 付近における情報がそれぞれ欠落している。そこで我々は、フラーレン超多価カチオン C_{60}^{q+} ($q = 20, 23, 28, 60$) のクーロン爆発過程を *on-the-fly* 古典トラジェクトリ計算により調べた。計算には密度汎関数法(UB3LYP/3-21G法)と密度汎関数緊密結合法(SCC-DFTB法)[8,9]を用いた。また、初期構造は $q = 0$ の最安定構造を仮定した(垂直遷移モデル)。

【結果と考察】 π 電子が全て脱離した $q = 60$ 、 $E_{in} = 0$ eV の場合には、 C_{60}^{q+} が I_h 対称性をほぼ保ちながら 60 個の C^+ に数十 fs で解離する「均一な」クーロン爆発が観測された。トラジェクトリから求めた C^+ の平均 KER は

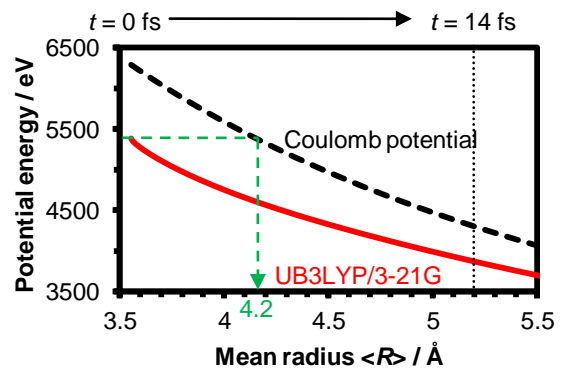


図 1 : $q = 60$, $E_{in} = 0$ eV における「均一な」クーロン爆発のトラジェクトリに沿ったポテンシャルエネルギー曲線。C-C 結合の解裂が完了した平均半径 $\langle R \rangle \geq 11.6$ \text{\AA} の領域でクーロンポテンシャル[10]と一致する。このクーロンポテンシャルを用いて見積もった $\langle R \rangle \approx 4.2$ \text{\AA} は量子化学計算に基づく値(3.6 \text{\AA})を過大評価している。

UB3LYP/3-21G 法と SCC-DFTB 法でそれぞれ 90 eV と 94 eV であり, Tomita らによる $q > 50$ の実験値 (約 100 eV) をほぼ再現している. なお, 解離前の平均半径 $\langle R \rangle$ を図 1 に示す単純なクーロンポテンシャル[10]を用いて計算すると $\langle R \rangle \approx 4.2 \text{ \AA}$ となり, 量子化学計算に基づく値 (3.6 \AA) を 17% 程度過大評価してしまう (図 1). このことから, XFEL パルスを用いた構造・反応イメージング実験を行う際には, 単純かつ高速なクーロン爆発であっても量子化学計算に基づくポテンシャルエネルギー曲線を用いて解離前の構造を議論することが必要である.

HOMO から HOMO-2 までの 28π 電子が脱離した $q = 28$, $E_{in} = 0 \text{ eV}$ の場合は, 図 2 に示す様に, 静電反発により, C_{60}^{28+} が 12 個の 5 員環 (電荷 2.3) に 100 fs 程度で爆発した後, C_n^+ ($n = 1, 2, 3, 4$) へと解離する「不均一な」爆発過程が観測された. 主要な解離種は C^+ (12 個) および C_3^+ (9 個) であった. なお, 同様の爆発過程は $q = 23$ (HOMO-2 が半占) でも観測されたが, 主要解離種は鎖状の C_4^+ (4 個) と C_5^+ (5 個) であった. このことから, HOMO から HOMO-2 までの 28 電子を脱離すると, C^+ が主要解離種となる解離チャネルが開くと考えられる. また, 初期運動エネルギー E_{in} が動力学に与える影響を調べるために $q = 28$ において $E_{in} = 280 \text{ eV}$ に設定した場合には, 図 3 に示すように解離の初期段階でケージ構造が直接崩壊して, 主要解離種である高速 ($KER \geq 40 \text{ eV}$) な C^+ (18 個) とその他の比較的低速 ($KER < 40 \text{ eV}$) な分子解離種 C_n^+ ($n = 2, 3, 4$) に 1 ps 以内で分解された. この様に, $q = 28$ においても C_{60}^{q+} 解離動力学は初期運動エネルギーに強く依存する,

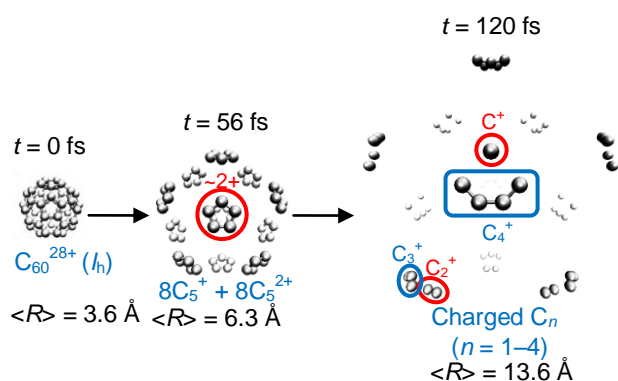


図 2: $q = 28$, $E_{in} = 0 \text{ eV}$ における「不均一な」クーロン爆発のスナップショット. SCC-DFTB 法による結果.

は, 図 3 に示すように解離の初期段階でケージ構造が直接崩壊して, 主要解離種である高速 ($KER \geq 40 \text{ eV}$) な C^+ (18 個) とその他の比較的低速 ($KER < 40 \text{ eV}$) な分子解離種 C_n^+ ($n = 2, 3, 4$) に 1 ps 以内で分解された. この様に, $q = 28$ においても C_{60}^{q+} 解離動力学は初期運動エネルギーに強く依存する,

以上より, C_{60}^{q+} などの電荷と初期運動エネルギーに解離過程が大きく依存する巨大分子の構造決定や反応動力学イメージングを行う為には, 量子化学計算に基づくポテンシャルエネルギー曲線の構築に加えて, 動力学計算によって解離ダイナミクスや解離種の KER 分布を求め, 実験的に推論された構造や解離過程の検証を行うことが不可欠である.

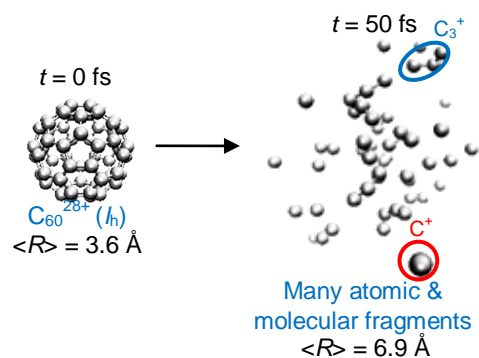


図 3: $q = 28$, $E_{in} = 280 \text{ eV}$ における爆発過程のスナップショット. SCC-DFTB 法による結果.

【参考文献】 [1] K. J. Gaffney *et al.*, *Science* **2007**, 316, 1444; [2] B. Rudek *et al.*, *Nature Photon.* **2012**, 6, 858; [3] L. Fang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 109, 263001; [4] B. Erk, K. Ueda *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 110, 053003; [5] A. Fratallocchi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **2011**, 106, 105504; [6] S. Tomita *et al.*, *Phys. Rev. A* **2002**, 65, 053201; [7] T. A. Beu *et al.*, *Phys. Rev. B* **2009**, 79, 054112; [8] M. Elstner, *et al.*, *Phys. Rev. B* **1998**, 58, 260; [9] C. Köhler *et al.*, *Chem. Phys.* **2005**, 309, 23; [10] R. Sahnoun, H. Kono *et al.*, *J. Chem. Phys.* **2006**, 125, 184306.

ヘリウム原子の多準位系における超放射の測定

(近畿大・理工¹, 分子研², 理研³, 岡山大・極限量子⁴, 岡山大・自然⁵, 岡山大・理⁶, JASRI⁷)
 ○中嶋 享¹, 岩山 洋士^{2,3}, 久間 晋^{3,4}, 宮本 祐樹^{3,5}, 永園 充³, 中野 逸夫⁴, 笹尾 登^{3,4},
 繁政 英治^{2,3}, 富樫 格⁷, 植竹 智⁵, 若林 知成¹, 吉見 彰洋⁴, 吉村 太彦⁶

Measurement of superradiance from a multi-level system
in atomic helium

(Faculty of Science and Engineering, Kinki University¹, Institute for Molecular Science²,
 RIKEN³, Research Core for Extreme Quantum World, Okayama University⁴,
 Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University⁵,
 Faculty of Science, Okayama University⁶, Japan Synchrotron Radiation Research Institute⁷)
 ○Kyo Nakajima¹, Hiroshi Iwayama^{2,3}, Susumu Kuma^{3,4}, Yuki Miyamoto^{3,5},
 Mitsuru Nagasono³, Itsuo Nakano⁴, Noboru Sasao^{3,4}, Eiji Shigemasa^{2,3}, Tadashi Togashi⁷,
 Satoshi Uetake⁵, Tomonari Wakabayashi¹, Akihiro Yoshimi⁴, Motohiko Yoshimura⁶

【序】原子や分子などの励起状態の集団からの協同的な自然放射である超放射は、1954年に R. H. Dicke によって初めて理論的に提唱され、その後、様々な理論的、実験的研究が多様な原子や分子種、標的性状、そしてマイクロ波から紫外に及ぶ幅広いエネルギー領域の準位系に対して行われてきている。そのような中で、近年利用可能になった、理研播磨研究所 SCSS 試験加速器における EUV-FEL 光を励起光として、ヘリウム原子の励起状態からの超蛍光(超放射)現象の観測 [1]が実現した。この実験では、中心波長 53.7 nm の FEL 光によって励起状態となる 1s3p 準位から 1s3p→1s2s 遷移に対応する 502 nm の超放射パルスを観測している。1s3p 準位からはこの他にも複数の脱励起遷移が許容であり、本研究では、多準位系における超放射発展の解明を目的として、これらの遷移に関わる超放射の同時測定実験を行った。

図 1 に本実験に関係のあるエネルギー準位を示す。1s3p 準位からの脱励起には、1s² および 1s2s 準位への遷移に加えて、1s3p→1s3d→1s2p 準位と 1s3p→1s3s→1s2p 準位のカスケード遷移が E1 許容遷移として存在する。1s3p→1s3d 遷移および 1s3p→1s3s 遷移のエネルギー間隔はそれぞれ 0.013 eV (96 μm)、0.167 eV (7.4 μm) である。本実験では可視光領域の 1s3p→1s2s 遷移 (502 nm)、1s3d→1s2p 遷移 (668 nm)、1s3s→1s2p 遷移 (728 nm) の超放射を観測対象とした。

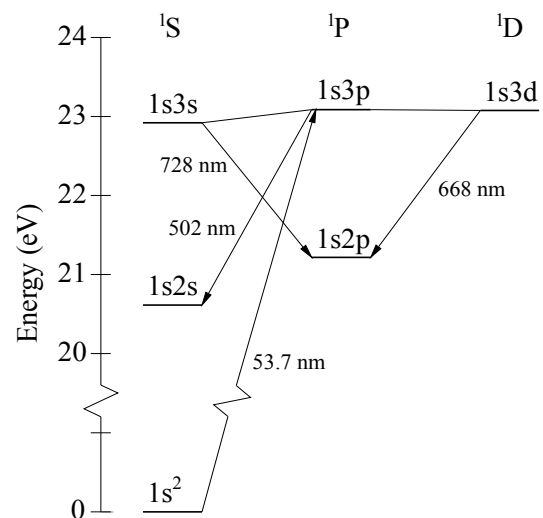


図 1. ヘリウム原子のエネルギー準位

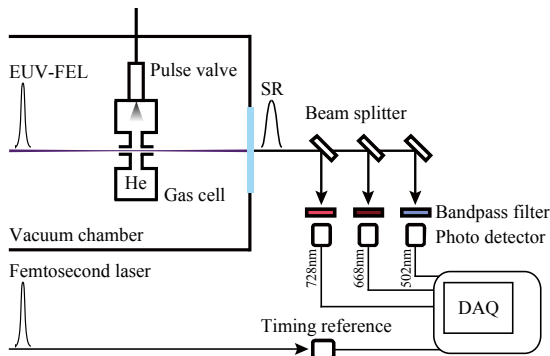


図 2. 実験セットアップの概略図

【実験】図 2 に理研播磨研究所 SCSS 試験加速器を用いて行った実験のセットアップ概略図を示す。FEL パルス光は 2 枚の集光ミラーによって真空チャンバー内のガスセル中心に集光され、そのビームウエスト半径は $5 \mu\text{m}$ (FWHM)、コンフォーカルパラメーターは 1.5 mm である。FEL パルス時間幅は 100 fs 、平均パルスエネルギーは $3.5 \mu\text{J/pulse}$ であり、ガスセル中心におけるピーク強度は $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ となる。ガスセルへのヘリウムガスの導入は、 30 Hz の FEL パルスに同期したパルスバルブを用いて行った。ガスセルの FEL 光軸に沿った両端には直径 2 mm 、長さ 5 mm のアパーチャーが取り付けられている。アパーチャー内面の間隔は 4 mm である。パルスバルブの背圧によりセル中のヘリウム原子数密度の調整を行い、実験条件におけるセル中のヘリウム原子のピーク圧力は $2.3 \text{ Pa} \sim 2.5 \times 10^3 \text{ Pa}$ 、数密度は $6 \times 10^{14} / \text{cm}^3 \sim 6 \times 10^{17} / \text{cm}^3$ と見積もられる。真空チャンバー外に取り出した超放射パルス光はビームスプリッターで 3 つに分岐し、それぞれをバンドパスフィルターで波長弁別して高速フォトディテクター (Response time 30 ps) で検出し、波形を高速オシロスコープ (Sampling rate 40 GS/s) で同時記録した。

【結果と考察】図 3 にヘリウム数密度ごとに平均化した波形を示す。数密度 $2 \times 10^{15} / \text{cm}^3$ では $1s3d \rightarrow 1s2p$ 遷移 (668 nm) の超放射のみが発達する。 $5 \times 10^{15} / \text{cm}^3$ では $1s3p \rightarrow 1s2s$ 遷移 (502 nm) の超放射が現れる。 $4 \times 10^{16} / \text{cm}^3$ で $1s3s \rightarrow 1s2p$ 遷移 (728 nm) にも弱い超放射が現れる。これらの数密度依存性を解釈するため、Maxwell-Bloch 方程式を用いて図 1 に示したヘリウム原子 6 準位系のポピュレーション、コヒーレンスおよび E1 遷移に対応する電場の時間発展の追跡を試みた。その結果、超放射が優位に発展する遷移は $1s3p \rightarrow 1s3s \rightarrow 1s2p$ および $1s3p \rightarrow 1s2s$ であり、 $1s3p \rightarrow 1s3d \rightarrow 1s2p$ のカスケード遷移に超放射は発展しにくいことが示された。講演ではこの結果が、エネルギー間隔の接近した $1s3p \rightarrow 1s3d$ 遷移における超放射発展、あるいは大

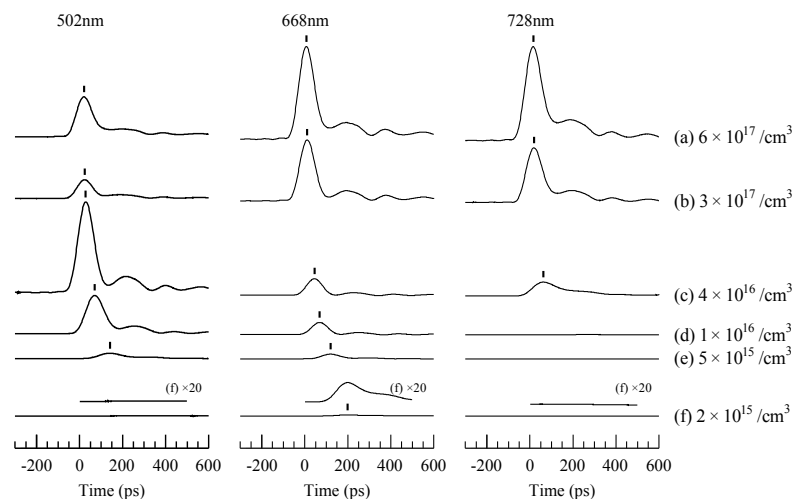


図 3. ヘリウム原子からの超放射の平均波形

強度 FEL パルス光による励起機構の扱いに起因する可能性についても議論する。

【参考文献】

[1] M. Nagasono *et al.*, Phys. Rev. Lett. 107, 193603 (2011).

3A04

ヨウ化メチル, ヨウ化ウラシルの XFEL による内殻多光子多重イオン化と その後の超高速電荷移行

(東北大・多元研¹, University of Turku², 広大・院理³, 理研・放射光科学総合研究センター⁴, 京大・院理⁵, Kansas State University⁶, Synchrotron SOLIEL⁷, SARI, CAS⁸, SINAP, CAS⁹, POSTECH¹⁰, JASRI¹¹)

本村 幸治¹, Kukk Edwin^{1,2}, 和田 真一^{3,4}, 永谷 清信^{4,5}, 福澤 宏宣^{1,4}, Mondal Subhendu¹, 立花 徹也¹, 伊藤 雄太¹, 古賀 亮介³, 酒井 司⁵, 松波 健司⁵, Rudenko Artem⁶, Nicolas Christophe⁷, Liu XiaoJing⁷, Miron Catalin⁷, Zhang Yizhu⁸, Jiang Yuhai⁸, Chen Jianhui⁹, Mailam Anand¹⁰, Kim Dong Eon¹⁰, 登野 健介¹¹, 犬伏 雄一⁴, 初井 宇記⁴, 矢橋 牧名⁴, 八尾 誠⁵, 上田 潔^{1,4}

XFEL-induced deep inner-shell multi-photon multiple ionization and subsequent ultrafast charge migration in iodomethane and 5-iodouracil molecules

(IMRAM, Tohoku Univ.¹, Univ. of Turku², Hiroshima Univ.³, RIKEN SPring-8 Center⁴, Kyoto Univ.⁵, Kansas State Univ.⁶, Synchrotron SOLEIL⁷, SARI, CAS⁸, SINAP, CAS⁹, POSTECH¹⁰, JASRI¹¹)

K. Motomura¹, E.Kukk^{1,2}, S. Wada^{3,4}, K. Nagaya^{4,5}, H. Fukuzawa^{1,4}, S. Mondal¹, T. Tachibana¹, Y. Ito¹, R. Koga³, T. Sakai⁵, K. Matsunami⁵, A. Rudenko⁶, C. Nicolas⁷, X.-J. Liu⁷, C. Miron⁷, Y. Zhang⁸, Y. H. Jiang⁸, J. Chen⁹, A. Mailam¹⁰, D. Kim¹⁰, K. Tono¹¹, Y. Inubushi⁴, T. Hatsui⁴, M. Yabashi⁴, M. Yao⁵, and K. Ueda^{1,4}

自己増幅自発放射 (SASE) 型の自由電子レーザー (FEL) の発展に伴い, 極短波長領域でのレーザー光を利用することが可能となり, その波長は X 線領域まで到達している. 日本にも理研播磨研究所に X 線自由電子レーザー (XFEL) 施設 SACLA が建設され[1], ユーザー運転が開始された. 本研究では SACLA から得られる光子エネルギー 5.5 keV の X 線レーザーパルスを集光して, ヨウ化メチル, ヨウ化ウラシルに照射し, 生成するイオンの運動量を 3 次元運動量分光計を用い測定した. 分子に照射された高強度の X 線レーザーパルスは, 多光子吸収とオージェ過程によって, 両分子に含まれるヨウ素原子を, 非常に高い価数までイオン化することが可能である. これによって生じた電荷は, 速やかに分子全体に拡散し, クーロン爆発を引き起こす. 測定されたフラグメントイオンの運動量から分子の構造と電荷の移行を研究した.

実験はビームライン BL3, 実験ハッチ EH3 にて行った. XFEL 光は EH3 に常設されている K-B ミラー集光システムにより集光して反応チャンバーに導入され, 集光点において XFEL 光は試料と交差する. 3 次元運動量分光計にはディレイライン位置敏感検出器が備えてあり, 飛行時間だけでなく位置の情報も検出が可能である. 反応領域を通過した XFEL 光はベリリウム窓を介して大気中に設置した PIN フォトダイオードに導入して, XFEL 各ショットにおける光強度データを同時に得た.

測定されたそれぞれのイオンの運動量から, 単一の分子から放出されたイオン組を選別する事ができる. 図 1 にヨウ化メチルのイオンの組み合わせごとの

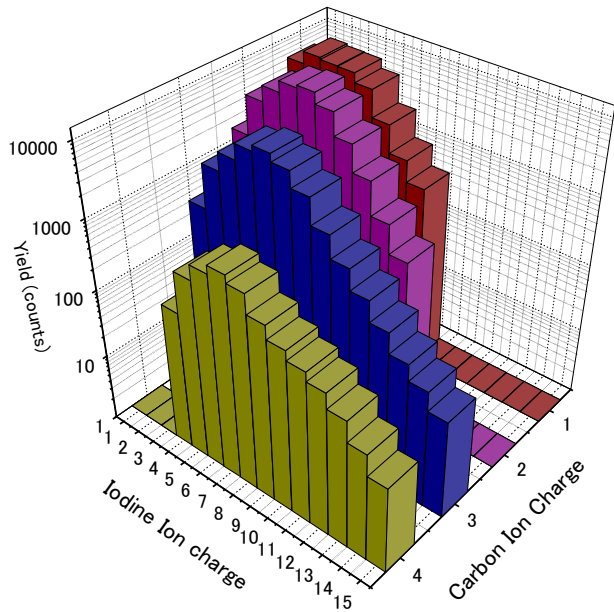


図1：イオンの収量分布（ヨウ化メチル）

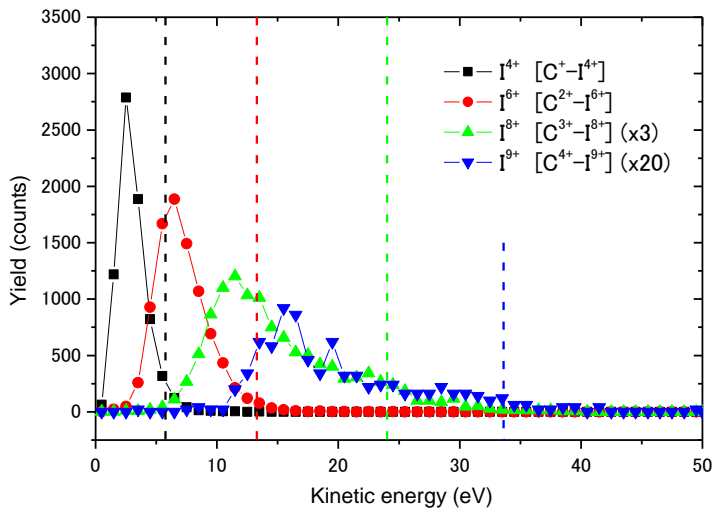


図2：フラグメントイオンの運動エネルギー。
点線は計算値で同色の実験値に対応。
(ヨウ化メチル)

収量を示す。最も価数が多い電荷状態は C^{4+} , I^{15+} の組で、この時同時に生じた水素イオンを考慮に入れると、最大22価の分子イオンが生じていることを意味する。また各イオン対におけるヨウ素の運動エネルギーを図2に示す。ランダムに電子を配置して計算した運動エネルギーの値と比べて観測されたエネルギーは小さい。これは電荷が非常に高速に拡散していることを示している。

講演では、測定されたフラグメントイオンの価数分布、運動エネルギー、角度分布等の実験結果を示し、分子イオンの解離、電荷移行について議論する。

本研究は文部科学省のX線自由電子レーザー利用推進研究課題およびX線自由電子レーザー重点戦略研究課題、理化学研究所のSACLA利用装置提案課題として援助を受け行われました。

参考文献

[1] T. Ishikawa *et al.*, Nature Photonics **6**, 540 (2012).

X線および電子線散乱を用いた分子内電子運動と 電子励起ダイナミクスの研究

(東北大・多元研) ○渡邊 昇

X-ray and electron scattering studies on electronic structures and electronic excitation dynamics of molecules

(IMRAM, Tohoku University) ○Noboru Watanabe

【序】分子の性質の多くは、その内に存在する電子の運動によって強く支配されている。HOMO(最高被占有軌道)や LUMO(最低空軌道)といった個々の分子軌道の形が分子の反応性を決定づけることは、フロンティア軌道理論が端的に示すところであるし、また、クーロン斥力に起因した電子間の運動相関(電子相関)が様々な物性の発現にしばしば顕著な影響を与えることも知られている。分子の性質を論ずる上での電子運動の重要性から、その詳細な理解は分子科学における中心的課題となってきた。特に分光学的な手法に基づく電子状態研究は活発であり、数多の研究成果が報告されてきている。しかしながら、分子のエネルギー準位に関しては分光研究により膨大な知見が蓄積されてきたものの、個々の分子軌道の形状であるとか、電子相関の起源である電子同士の斥け合いといったことまで実験的に観測しようと思うと、励起エネルギーやイオン化エネルギーなどの“エネルギー”だけではなく何らかの実験パラメータの追加が必要となる。状態のエネルギー値だけでは、電子の分布やその運動相関までは分らないからである。ここで、分子との衝突によって X 線や高速電子が散乱される過程を考えてみる。すると、入射 X 線(電子線)から標的分子へのエネルギー移行に加えて散乱前後の運動量変化も生じるため、“エネルギー”だけでなく“運動量”までもが現象を規定するパラメータとなっていることに気づく。つまり、X 線や電子線の散乱実験によれば散乱断面積の運動量依存性という観点からも標的電子構造を論じることが可能になる。本発表では、運動量依存性を利用した分子の電子状態研究について、我々のこれまでの研究成果[1]の中から主に以下の三つのトピックスを取り上げ、紹介したい。

【X線散乱を用いた電子相関の研究】 如何に電子相関の効果を十分に取り入れるかという問題は、現代の量子化学において最も重要な課題の一つとなっている。この目的のため、CI 法や多体摂動論、クラスター展開法といった多様な理論的手法が提案されてきた。しかし、そうした理論計算の評価は容易ではない。実験値の殆どは電子相関に鋭敏とはいえない一電子演算子の期待値であることから、実験による検証が難しいためである。電子相関を敏感に反映する物理量として、距離 r_{12} 離れた電子ペアの存在確率を表す電子二体分布関数 $P(r_{12})$ があげられる。実際の系では、電子間反発により近距離での電子ペアの割合が減少するのであるから、 r_{12} の小さな領域で $P(r_{12})$ が Hartree Fock 近似による計算値に比べ小さくなるという形で電子相関の効果が表れるだろう。X 線の弾性散乱と非弾性散乱の和である全散乱強度 $\sigma_{\text{ec}}(\mathbf{K})$ は、 $P(r_{12})$ とフーリエ変換により一義的關係づけられることが知られており、電子相関を実験的にみるという目的に適した物理

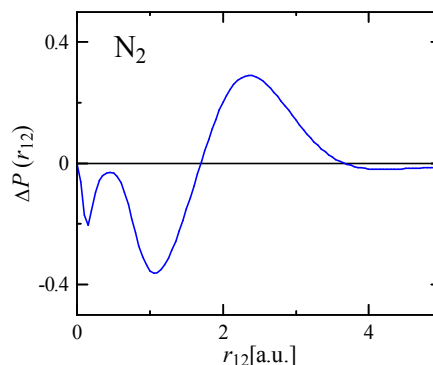


図 1. X 線散乱強度より導出した N_2 のクーロン孔

量であることがわかる。

我々は X 線散乱実験に基づき、電子相関によって電子が互いに退け合う様子を直接観測する手法の確立を試みてきた。幾つかの基本的分子について X 線全散乱強度の正確な測定とその結果を用いた二体分布関数の決定に取り組み、クーロン反発によって電子の周囲で他の電子の存在確率が減少する領域(クーロン孔)の可視化に初めて成功した(図 1)[2]。さらに、標的分子へのエネルギー移行をともなう非弾性散乱過程のみを観測する方が、弾性散乱を分離しない場合に比べてより鋭敏な電子相関のプロブと成り得ることに着目し、放射光を利用した実験から様々な分子の X 線非弾性散乱断面積を決定してきた。実験に加え、理論的波動関数を用いて X 線散乱断面積を計算する手法を開発し、実測値と理論計算との比較などから電子相関を取り扱う様々な理論的手法の得損失等を明らかにしている。

【高速電子衝突実験による分子軌道イメージング】 分子軌道は、今や物質科学の広範な分野において基礎的概念となっている。その最大の理由は、反応性など分子の性質の多くが個々の分子軌道の形によって決まることであろう。分子軌道を実験的に観測する試みの一つに電子運動量分光(EMS)がある。高速電子衝撃イオン化で生じた散乱電子と電離電子のエネルギーと角度の相関関係を同時に計測する本分光法によれば、電子軌道を特定した上で、その運動量分布を得ることができる。

EMS を用いた研究の一例として、多中心干渉効果を利用して電子波動関数の位相を調べる試み[3]について紹介したい。CF₄ の非結合性軌道を対象とした EMS 実験により、原子核の位置情報が位相因子として波動関数に現れる運動量空間表示の特質に起因した干渉パターンを求め(図 2)、その振動周期が分子構造を反映することを実証した。さらに、こうした干渉パターンの観測により、分子軌道を構成する p 原子軌道の配向をプローブできることを明らかにすることで、より進んだ分子軌道イメージング法としての EMS の発展の方向性を示した。

【電子遷移に与える分子振動の影響】 分子振動と電子運動の相関、すなわち振電相互作用が、分子の電子励起過程にしばしば顕著な影響を与えることが知られている。光学スペクトルに現れる禁制線の存在が、その端的な例といえよう。有名な Herzberg-Teller 展開によれば、振電相互作用の本質は分子振動を介した電子状態間のカップリングとして理解される。我々は、電子散乱断面積が標的分子の電子励起状態に応じて特徴的な移行運動量依存性を示す性質を利用することで、振電相互作用に起因した電子状態間のカップリングを視覚的にとらえる手法を新たに提案した[4]。本手法を用いることで、CF₄ において非対称伸縮振動を介した電子状態間のカップリングにより 3s Rydberg 遷移の強度が大幅に増大すること(図 3)を明らかにするなど、幾つかの基本的な分子の電子遷移において振電相互作用の寄与を調べている。

- 【参考文献】** [1] N. Watanabe, *Mol. Sci.* **7**, *in press*. [2] N. Watanabe *et al*, *Mol. Phys.* **102**, 649 (2004). [3] N. Watanabe, X. J. Chen, and M. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 173201 (2012). [4] N. Watanabe, D. Suzuki, and M. Takahashi, *J. Chem. Phys.* **134**, 234309 (2011).

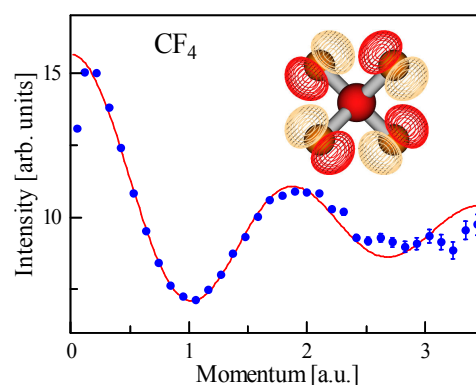


図 2. CF₄ の電子運動量分布より導出した多中心干渉パターン

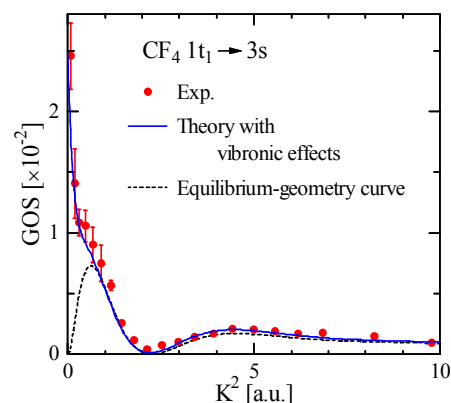
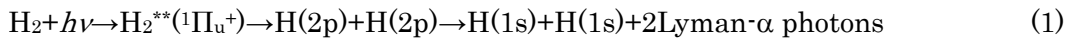


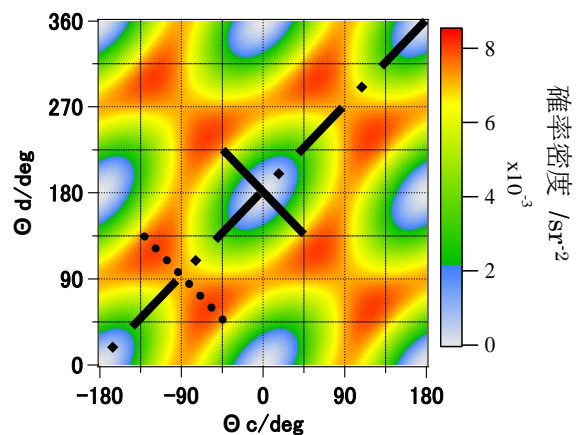
図 3. EELS 実験より求めた CF₄ の電子遷移に対する振電相互作用の寄与

水素分子の光解離により生成する Lyman- α 光子ペアの角度相関関数(東工大院化学¹⁾, 産総研²⁾, 高エネ機構物構研³⁾, 上智大理工⁴⁾)○仲西 祐子¹⁾, 穂坂 綱一¹⁾, 向後 陵子¹⁾, 中野 元善¹⁾, 熊谷 嘉晃¹⁾, 椎野 健一¹⁾,
鈴木 功^{2),3)}, 小田切 丈⁴⁾, 北島 昌史¹⁾, 河内 宣之¹⁾Angular correlation of a pair of Lyman- α photons produced in the photodissociation of H₂(Tokyo Tech¹⁾, AIST²⁾, KEK-PF³⁾, Sophia University⁴⁾)○Yuko Nakanishi¹⁾, Kouichi Hosaka¹⁾, Ryouko Kougo¹⁾, Motoyoshi Nakano¹⁾,
Yoshiaki Kumagai¹⁾, Kenichi Shiino¹⁾, Isao H. Suzuki^{2), 3)}, Takeshi Odagiri⁴⁾,
Masashi Kitajima¹⁾ and Noriyuki Kouchi¹⁾[序]我々のグループは、2 電子励起状態を経由する水素分子の光解離により、H(2p)原子ペアが生成することを確かめた[1]((1)式参照)。ここでは Lyman- α 光子ペアの同時計数測定がなされた。

さらに対称性に基づく考察から、その H(2p)原子ペアが(2)式の量子もつれ状態にあると予測した[2]。rは核間距離である。

$$|^1\Pi_u^+; r \rightarrow +\infty\rangle = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(|2p_1^a(1)\rangle \otimes |2p_0^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)\rangle \otimes |2p_0^b(1)\rangle - |2p_0^a(1)\rangle \otimes |2p_1^b(2)\rangle - |2p_0^a(2)\rangle \otimes |2p_1^b(1)\rangle \right. \\ \left. - |2p_{-1}^a(1)\rangle \otimes |2p_0^b(2)\rangle - |2p_{-1}^a(2)\rangle \otimes |2p_0^b(1)\rangle + |2p_0^a(1)\rangle \otimes |2p_{-1}^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)\rangle \otimes |2p_{-1}^b(1)\rangle \right) \quad (2)$$

量子もつれ H(2p)原子ペア生成のプロブとなるのが、放出される Lyman- α 光子ペアの角度相関関数(ACF)である。本グループの Miyagi らは、(2)式の量子もつれ状態の原子ペアに対して ACF を計算した[2]。それは図 1 に示すような強い角度異方性をもつ。その後 Jänkälä ら[3]も過程(1)により生じる Lyman- α 光子ペアの ACF を計算したが、そこに現れる異方性は、Miyagi ら[2]の予測よりもかなり弱い。ただし Jänkälä ら[3]も、Miyagi ら[2]と同様に、量子もつれ H(2p)原子ペアを考えている。我々のグループは、量子もつれ H(2p)原子ペア生成の検証とこれら二つの理論予測の検証を目的として、ACF を実測した[4,5]。ただし二つの光子検出器は、

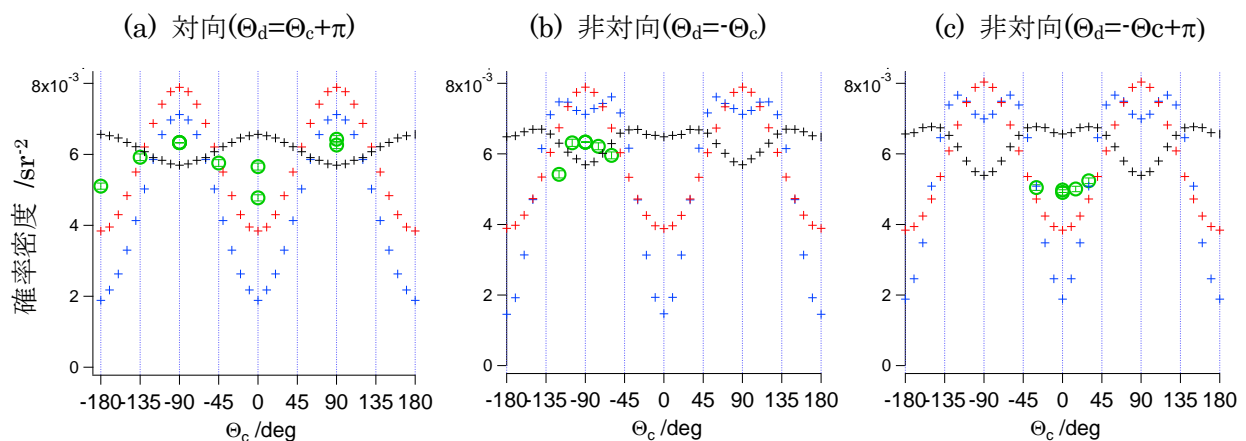


(図1)Miyagi らによる ACF の理論予測[2]。入射光に直交する平面における ACF を示す。 Θ_c と Θ_d は、入射光の偏光ベクトルから測った Lyman- α 光子放出方向の角度。

入射光に直交する面内で互いに向かい合う配置(対向配置, 図 1 の $-\cdot-\cdot-$, $\Theta_d=\Theta_c+\pi$)に限られていた。そこで今回は、対向配置に加えて、図 1 の $\cdots\cdots$ ($\Theta_d=-\Theta_c$)と $---$ ($\Theta_d=-\Theta_c+\pi$)の配置においても、ACF を測定した。

[実験] 実験は、KEK-PF のビームライン 28B にて行った。水素ガスを満たしたガスセル内に(圧力 10 mTorr)、入射光子エネルギー33.66 eV、直線偏光度 100%の放射光を導入し、過程(1)により発生した Lyman- α 光子ペアを 2 個の光子検出器 c と d で同時計数した。2 個の光子検出器はともに入射光軸に直交する面内に置かれ、入射光軸を回転軸として独立に回転する。それらの角度 Θ_c と Θ_d は入射光の偏光ベクトルから測る。2 光子同時計数率を水素ガス圧で規格化し、 Θ_c と Θ_d の関数としてプロットしたものが ACF である。

[結果]測定された ACF を図 2 に示す(\bigcirc)。 (a),(b),(c)はそれぞれ対向($\Theta_d=\Theta_c+\pi$)、非対向($\Theta_d=-\Theta_c$)、非対向($\Theta_d=-\Theta_c+\pi$)の配置における ACF である。



(図 2)ACF の実験結果(\bigcirc)と 3 種類の理論予測($+$, $+$, $+$)

青のプラス($+$)は、Miyagi ら[2]による ACF の理論予測であり、赤のプラス($+$)は Jänkälä ら[3]による ACF の理論予測である。一方、黒のプラス($+$)は、(2)式を左から 2 項ずつ区切り、各項に対して Lyman- α 光子ペアの ACF を Miyagi らと同じ手法で計算した結果である。これら 3 つの理論予測は、検出器の角度分解能でコンボリュートされている。Miyagi らと Jänkälä らは、どちらも量子もつれ H(2p)ペアを考えた。しかし、Miyagi らは、量子光学の 2 光子相関関数に基づいて ACF を計算したが、Jänkälä らは、けい光放出の双極子モーメントに基づいた。けい光強度の求め方が異なる。図 2 から分かるように、実測 ACF は、Miyagi ら[2]による予測($+$)とも、Jänkälä ら[3]による予測($+$)とも一致しない。しかしどこで山になり、どこで谷になるかは、両者と一致する。しかし黒のプラス($+$)とは、それも一致しない。以上のことから、解離生成する H(2p)ペアが(2)式の量子もつれ状態にあると推測している。しかしなぜ実測 ACF が理論予測(図 2 の $+$ と $+$)と一致しないかは不明である。3 つの配置における ACF が得られたことにより、これまでよりも厳しく理論を検証することができるようになった。

[1] T. Odagiri *et al.*, *J. Phys. B* 37, 3909 (2004), [2] H. Miyagi *et al.*, *J. Phys. B* 40, 617 (2007), [3] K. Jänkälä *et al.*, *J. Phys. B* 43, 065104 (2010), [4] T. Tanabe *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 103, 173002 (2009), [5] T. Tanabe *et al.*, *Phys. Rev. A* 82, 040101(R) (2010).

3A09

90nm 真空紫外極短パルスレーザーの開発と時間分解光電子イメージングへの応用

(¹京大院理、²理研) ○足立 俊輔¹、佐藤 元樹¹、鈴木 俊法^{1,2}

Development of a 90-nm vacuum-ultraviolet ultrashort pulse laser and its application to time-resolved photoelectron imaging

(¹Kyoto Univ., ²RIKEN) ○Shunsuke Adachi¹, Motoki Sato¹, and Toshinori Suzuki^{1,2}

[序] 真空紫外から X 線領域の極短パルス光源は、レーザー高次高調波発生や自由電子レーザーなどの新光源の出現により急速に発展しているが、強い非線形相互作用を対象としない分光実験においては、テーブルトップの高繰り返し周波数レーザー光源が有用である。当研究室では、比較的簡易なフィラメンテーション四光波混合法により、160 nm の真空紫外光を sub-20 fs のパルス幅で発生することに成功しているが、分子がカスケード的に電子緩和して電子基底状態に戻る過程を全て観測するためには、分子のイオン化エネルギーを超える光子エネルギーが必要である。そこで本研究では高調波発生を利用して、更に短波長域(90 nm)の真空紫外 1kHz 繰り返しレーザー光源を開発した。

レーザー光の高調波発生では多数の高調波成分が混合して発生されるため、何らかの手段(例えば回折格子を利用した波長分散)で特定次数の成分のみを分離して、分光研究に利用する必要がある。この単色化の過程で、元々非常に弱い高調波パルスの強度は更に大きく低下する。そこで本研究では、十分なパルスエネルギーと有効な単色化を行うため、次のような方法論を採った。まず、チタンサファイアレーザーの基本波を非線形光学結晶を用いて高効率に 3 次光に波長変換し、次に希ガス中での高調波発生を利用した波長変換により、3 次光を 9 次光に変換する。これにより高い波長変換効率を得た。また、3 次光を基本波とした波長変換では、隣接する高調波(奇数次)が 15 次光であることを利用して、高効率に 9 次光を分離した[1]。

[実験] 真空紫外高調波パルス発生系を図 1 に示す。チタンサファイア(Ti:Sa)レーザー(波長 810nm)の出力パルスを 3 次光発生系に通すことで、波長 270nm の高強度深紫外パルスが発生させ、このパルスを基本波として高調波発生を行った。高調波発生ターゲットガスには、非線形感受率の大きさや位相整合条件等を考慮してクリプトン(Kr)を用いた。発生させた高調波は、基本波に対してブリュスター角入射になるように配置した SiC 基板により分離した。Ti:Sa レーザーの 9 次光に対応する 90nm のスペクトル成分のみが得られていることを、分光器を用いて確認した。パルスエネルギーはターゲットガスの圧力に依存し、最適条件下で 0.2μJ(平均出力に直すと 0.2mW)であった。

90nm パルスと基本波 270nm パルスとを真空チャンバー中の Kr 原子(超音速原子線として真空チャンバー内に導入される)に同時に

集光し、両者の遅延時間を掃引しながら Kr イオンもしくは光電子を観測した。発生するイオン(もしくは光電子)は、レーザー集光点の周囲に配置された複数の電極が作る静電場によって加速され、

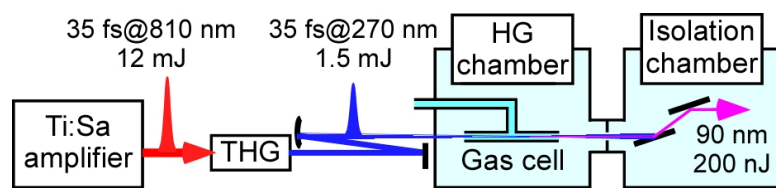


図 1. 真空紫外高調波パルス発生系. THG:3 次光発生系. HG: 高調波発生.

二次元検出器(マイクロチャンネルプレート、MCP)上に投影される。イオン測定においては、MCP から発生する電気信号をマルチチャンネルスケーラーを用いて検出する、飛行時間型検出を行った。一方光電子測定においては、速度収束型の加速電極を用いて光電子をMCPに射影し、その背面に配置された蛍光板の像を CCD カメラにより撮影する、イメージング測定を行った。得られた射影像から元の断層像を pBASEX アルゴリズムにより再構築し、光電子の三次元散乱分布(光電子運動エネルギー分布および放出角度分布)を得た。

[結果] 図2(a)に Kr イオン収量の遅延時間依存性を示す。遅延時間が正(=90nm パルスが 270nm パルスに先行する)の領域において、90nm パルスにより Kr の複数の Rydberg 状態がコヒーレントに励起されたことによる量子ビートが明瞭に表れている。また、遅延時間原点における信号強度の立ち上がりより、90nm、270nm 両パルスの相互相関時間、言い換えると本測定の時間分解能は約 60fs と見積もられる。図2(b)には、遅延時間-3ps および+200fs における、光電子散乱分布から得られた運動エネルギー分布を示した。遅延時間+200fs において光電子の運動エネルギー3.7eV、4.4eV に現れたピークはそれぞれイオン化準位 $^2P_{1/2}$ 、 $^2P_{3/2}$ に対応し、イオン収量の測定の場合と同じく、90nm パルスにより作られた Kr の Rydberg 電子の励起状態を、270nm パルスによるイオン化により観測している。そのため、光電子収量やその異方性パラメータ(放出角度分布から計算される)についても、時間的に振動することを確認した [2]。

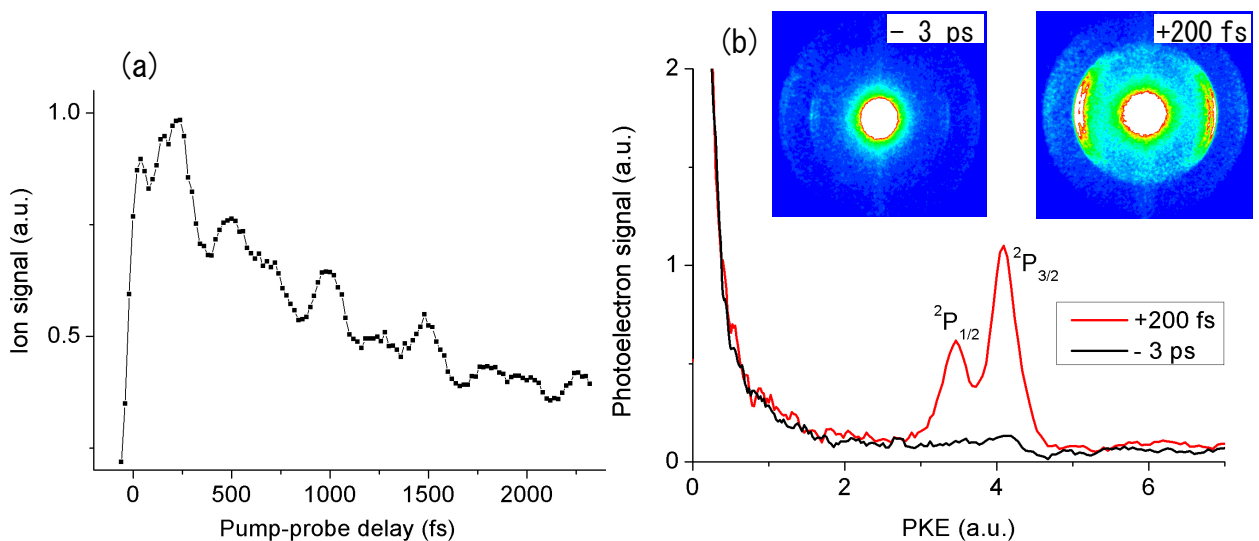


図 2. (a) Kr イオン収量の遅延時間依存性. (b) 遅延時間 -3ps および +200fs における光電子運動エネルギー分布. 挿入図はそれぞれの遅延時間における光電子射影像 (pBASEX による変換前)。

参考文献

- [1] Adachi *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 2118 (2012)
- [2] Sato *et al.*, 本討論会 4P001

3A10

時間分解電子運動量分光によるアセトンの光解離ダイナミクス

(東北大多元研) ○山崎優一、大石慶也、中澤博之、葛西裕治、高橋正彦

Photodissociation dynamics of acetone

studied by time-resolved electron momentum spectroscopy

(IMRAM, Tohoku Univ.) ○M. Yamazaki, K. Oishi, H. Nakazawa, Y. Kasai, and M. Takahashi

【序】 我々は、化学反応とは物質内電子の運動の変化が先導して起こる原子核配置の変化であると定義づけ、反応を駆動する電子運動量の変化そのものをスナップショット観測する次世代の化学反応可視化法の開発を進めてきた。本手法は、電子線コンプトン散乱を利用して分子軌道ごとの電子運動量分布（運動量空間波動関数の二乗）を観測する電子運動量分光（EMS）[1]と、超短パルス電子線技術[2]とを高度に組み合わせ、フェムト秒ポンプレーザーによる化学反応開始からの遅延時間の関数として過渡状態の EMS 測定を行う手法であり、我々はこの手法を時間分解 EMS（TREMS）と呼ぶ。現在の実験セットアップでは実験データに質的改善の余地を大きく残すものの、アセトン重水素置換体（ $(\text{CD}_3)_2\text{CO}$ ）の三体光解離反応における過渡物質内電子運動の観測に成功したので、報告する。

【実験】 実験は、我々が最近開発した TREMS 装置[3]を用いて行った。フェムト秒レーザーの出力（800 nm, 0.8 mJ, 120 fs, 5 kHz）を二つに分け、一方はポンプ光（195 nm, 0.8 μJ , 2.5 kHz）として反応の開始に用い、他方（267 nm）はフォトカソード型電子銃に照射して超短パルス電子線（1.2 keV, ~ 50 pA, 5 kHz）の生成に利用した。ポンプ光とパルス電子線の同期をとり[3]、化学反応開始からの遅延時間 Δt の後に、超短パルス電子線による TREMS 実験を行った。この際、ポンプ光の繰り返し周波数を半減させることで、光励起過程を含む EMS データ（Laser-ON）と、含まない従来の EMS データ（Laser-OFF）を同じ実験条件で交互に繰り返し積算して得た。

EMS 実験は、大きな移行運動量を伴うコンプトン散乱条件下における高速電子衝撃イオン化（ $e_0^- + M \rightarrow M_i^+ + e_1^- + e_2^-$ ）の運動学的完全実験であり、生成する非弾性散乱電子と電離電子のエネルギー E_1, E_2 と運動量 $\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2$ を同時計測法により測定する。よって、既知の入射電子のエネルギー E_0 と運動量 \mathbf{p}_0 を用いて、散乱前後のエネルギー保存則と運動量保存則から、電子束縛エネルギー E_{bind} とイオン化前の標的電子の運動量 \mathbf{p} を同時に決定できる。

$$E_{\text{bind}} = E_0 - E_1 - E_2, \quad \mathbf{p} = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_0$$

すなわち、EMS 断面積を E_{bind} と \mathbf{p} の関数として測定する。

本実験の時間分解能は光と電子の velocity mismatch [4]でほぼ決まり、約 70 ps と推定した。また、エネルギー分解能は、パルス電子線内のクーロン相互作用の影響を受けるため約 5 eV に止まっている。

【結果】 TREMS 実験で得たアセトン重水素置換体分子の電子束縛エネルギースペクトルを図 1 に示す。図 1 のスペクトルは、Laser-ON のスペクトルから Laser-OFF のデータを適当な因子 (0.95) を掛けて差し引いたもので、光励起で生成する過渡分子種の時間分解スペクトルに対応している。アセトンに 195 nm の深紫外光を照射することにより生成する S_2 Rydberg 状態は、 S_1 状態への内部転換 (13 ps) を経て、 CD_3 が逐次的に解離する (~ 5 ps) 三体解離反応を起こすことが知られている。遅延時間 $\Delta t = 0$ ps で測定したスペクトル (図 1(a)) から、HOMO の束縛エネルギー 9.8 eV のさらに低エネルギー側の約 3.5 eV の領域に、バンドの存在を見て取れる。このバンドのエネルギー位置は寿命 13 ps の S_2 状態からのイオン化遷移に矛盾ないものであり、事実、このバンドは $\Delta t = 100$ ps でのスペクトル (図 1(b)) では消失する。

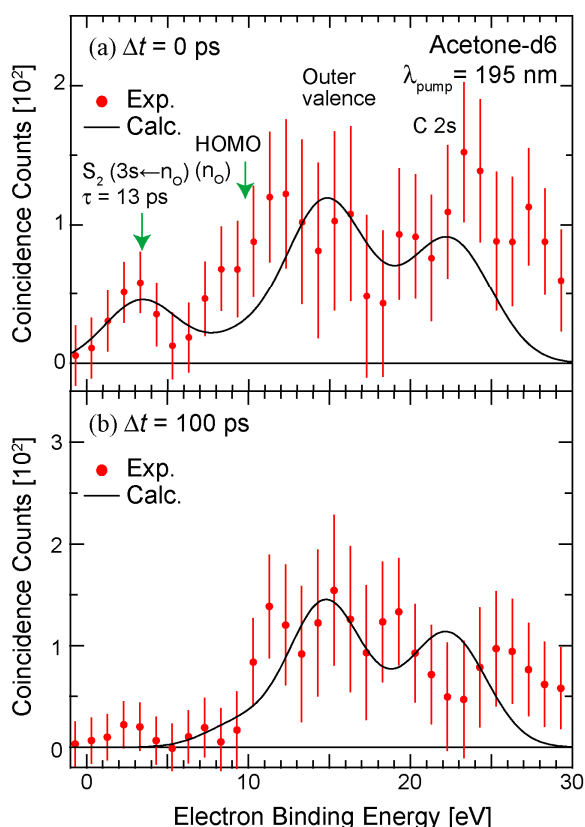


図 1. $(CD_3)_2CO$ の 195 nm 励起における TREMS 実験結果。(a) $\Delta t = 0$ ps および (b) $\Delta t = 100$ ps

基底状態のスペクトルには現れ得ないバンドは図 1(a)の 10 eV 付近においても存在する。実線は、光解離過程で生成する S_2 , S_1 状態、 CD_3CO 、 CO 、 CD_3 の理論スペクトルの重ね合わせで、それらの分子構造を振動基底状態における平衡構造に固定して得られた予備的結果である[5]。計算結果は明らかに 10 eV 付近で断面積を過小評価しており、このスペクトル強度は、反応の進行に伴い S_2 状態のフロンティア電子が各解離フラグメントに分配移動していく様をまとめて反映したものと考えて、現在、詳細なデータ解析を進めている。

以上のように、信号強度には改善すべき余地があるものの、現時点でも化学反応途中の電子運動を可視化するという当初の目的に対して一定の成果を得ることが出来た。現在、大強度の超音速分子線源を本分光装置に導入することにより、信号強度の大幅な改善を試みており、TREMS データの質的改善を図っている。

【参考文献】

- [1] M. Takahashi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **82** (2009) 751.
- [2] 例えば、H. Ihee, V. A. Lobastov, U. M. Gomez, B. M. Goodson, R. Srinivasan, C.-Y. Ruan, and A. H. Zewail, *Science* **291** (2001) 458.
- [3] M. Yamazaki, Y. Kasai, K. Oishi, H. Nakazawa, and M. Takahashi, *Rev. Sci. Instrum.* **84** (2013) 063105.
- [4] J. C. Williamson and A. H. Zewail, *Chem. Phys. Lett.* **209** (1993) 10.
- [5] 大石慶也、山崎優一、中澤博之、葛西裕治、高橋正彦、第 7 回分子科学討論会 2013 京都、3P021