

4P009

イオン画像観測装置の新奇デザインと分子ダイナミクス追跡への応用  
(分子研, 総研大) ○ 水瀬 賢太, 大島 康裕

A new charged particle imaging configuration  
and its application in molecular dynamics  
(IMS, SOKENDAI) ○ Kenta Mizuse, Yasuhiro Ohshima

【序】荷電粒子の画像観測法は気相分子のダイナミクスを研究する強力な手法の一つである。典型的な実験では、レーザーを分子に照射し、生じたイオンや光電子を2次元検出器(MCP+スクリーン+カメラ)に向かって加速し、その空間分布を2次元射影として画像化する。ここで、実際の荷電粒子は、一般には3次的に分布しており、観測した2次元画像から3次元の情報を引き出すためには、数学的処理が必要なうえ、空間分布が軸対称であることなどの条件が課され、実験データの質や実験の配置がしばしば制限されてきた。3次元分布を(2次元の位置座標)+(到達時間)として直接測定する手法(3次元画像観測)を用いれば上記の制限は解決されるが、2次元計測に比べて測定効率や画像情報の精度が低く、かつ装置が高額であるというデメリットがあった。

我々は、分子の超高速波束ダイナミクスを観測するための画像観測装置の設計・開発を行ってきたが、上記の問題のため、理想的な装置設計の方針決定に困難があった。既存の手法を根本から見直し、設計を繰り返す中で、2次元検出器を用いながら、3次元分布の情報を余分な演算なしに抽出しうる、独自の画像観測装置のデザインを着想し、実用化に至った!<sup>1</sup> 本研究により、これまでは高価かつ測定効率と精度の低い3次元検出器が必要とされていた分子の波束ダイナミクス追跡において、高効率・高精度な2次元検出器で本質部分を可視化しうることで報告する。

以下、我々が目的としていた波束ダイナミクス観測における課題とそれに対する我々の解決法を述べたのち、実験と結果を示す。

分子のダイナミクスを直接的に可視化し、実時間で追跡することはダイナミクス研究の基本的目的である。通常気相分子のアンサンブルはランダムに配向、運動しているため、観測したいダイナミクスを可視化することは容易でない。近年研究の進むコヒーレント制御法を適用し、分子集団が揃って運動している状況を実現すれば、画像観測法によって、観測したい運動を可視化できるはずである。分子の回転に関しては、強レーザー場の偏光面に分子がトルクを感じることを利用した制御法が確立され、回転方向まで含めた制御が達成されている。この手法では、分子回転の軸はレーザーの進行方向と一致するため、回転軸方向に検出器を配置することが困難である(レーザー光が検出器に入射してしまう)。そのため、検出器を分子回転軸に垂直に配置する手法がしばしばとられるが(図1 模式図)、2次元検出器では、例えば図1のように、左右どちらを向いている分子でも同一の画像を与えるため、回転波束の明瞭な観測が不可能となる。

我々は装置設計の中で、検出器に向かう途中のイオンを、紙面を読む方向から観測すれば、レーザーの進行方向(回転軸)から回転を観測できることに気付いた(図1, New window)。この基本概念をもとに装置を製作し、N<sub>2</sub>分子のクーロン爆発画像観測実験を行った。

【実験】装置は図1の New window の位置に、2次元検出器 (MCP/スクリーン/カメラ) と、対向する平行平板パルス電極を設置したものである。超音速ジェット中の  $N_2$  分子にフェムト秒レーザー(400 nm, 100 fs, 0.3 mJ) を照射し、クーロン爆発過程で生じた  $N^{m+}$  イオンを光の進行と垂直方向に加速した。目的イオンが検出器前方に到達した時点で高速パルス高電圧を電極に印加し、初期加速方向と直交した電場によって検出器に射影した。スクリーン上の蛍光画像をレンズカップルした USB カメラによって撮像した。画像データは PC に転送され、画像処理により、イオン由来の輝点の重心座標のみが抽出・記録される。50,000 イオン程度の信号を積算し、分子の空間分布の測定とした。回転波束イメージングについては、上記クーロン爆発イメージングを円偏光で行うことで全角度方向( $2\pi$ )の分子をモニターできる probe とし、波束を生成する直線偏光 pump パルス (800 nm, 120 fs, 0.18 mJ) やパルス列と組み合わせ、pump 光照射後空間分布の変化を追跡する pump-probe 実験を行った。

#### 【結果と考察】(1) $N_2$ 分子のクーロン爆発イメージング

図2にクーロン爆発で生じた  $N^{3+}$  の画像を示す。原子イオンが偏光方向に放出されていること、360度にわたり、全方向の分子を観測できていることが分かる。

#### (2) $N_2$ 分子の回転波束イメージング

図3に  $N_2$  の回転波束ダイナミクスのスナップショット(一部)を示す。ここでは、角度に依存した輝度情報を極座標で表示している。Pump 光照射前(-2001 fs)は等方的(円)であった空間分布が、回転波束生成によって時間的に変化していることが観測された。ある周期で分子軸の整列の様子を示しており、Dooley らの3次元計測を用いた先行実験<sup>2</sup>に類似の結果を得た。

図3のダイナミクスは1発の直線偏光 pump 光に誘起されるものであり、左右の回転が同程度に含まれているため、古典的回転のようには認識できない。分子の回転制御について、複数パルスを適切な時間差と偏光状態で照射することで、回転方向を含めた高度な波束制御が可能である。<sup>3</sup> 講演では、新装置および回転波束生成-観測実験の詳細を報告する。

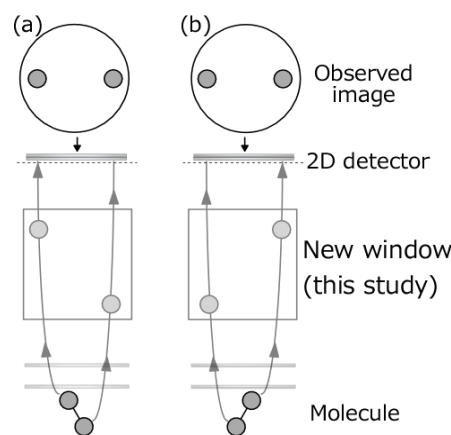


図1 典型的な画像観測(上方の検出器利用)、および本研究で提案する手法の模式図。回転制御、イオン化用レーザーは紙面に垂直に入射し、回転面は紙面と考える。New window の導入により、(a), (b)両者を区別しうる画像観測が可能となる。

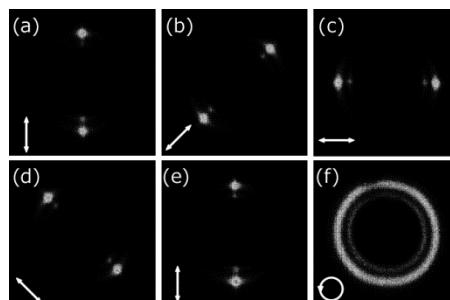


図2 ランダムに配向した  $N_2$  分子に対するクーロン爆発( $N^{3+}$ )画像。照射したレーザー光の偏光状態を合わせて示す

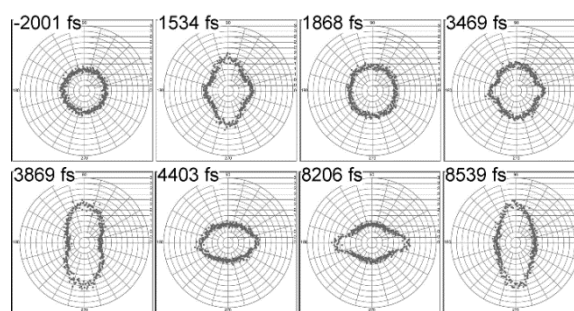


図3 直線偏光 pump パルスに誘起された  $N_2$  分子回転波束ダイナミクスのスナップショット例。Pump 光の偏光は図の上下方向である

1. K. Mizuse & Y. Ohshima, 第29回化学反応討論会 1P26.
2. P.W. Dooley et al., *Phys. Rev. A* **2003**, 68, 023406
3. K. Kitano, H. Hasegawa, Y. Ohshima, *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 103, 223002.