

超高速光電子回折法の開発

(高エネルギー加速器研究機構・物構研¹, 立命館大・理工², 東京大・院理³,
 京都大・量子理工学教育研究センター⁴, 日本原子力開発機構・量子ビーム応用研究部門⁵)
 ○中嶋 享¹, 寺本 高啓², 峰本 紳一郎³, 間嶋 拓也⁴, 赤木 浩⁵, 和田 健¹, 柳下 明¹

Development of Ultrafast Photoelectron Diffraction

(High Energy Accelerator Research Organization¹, Ritsumeikan University²,
 The University of Tokyo³, Kyoto University⁴, Japan Atomic Energy Agency⁵)

○Kyo Nakajima¹, Takahiro Teramoto², Shinichiro Minemoto³, Takuya Majima⁴,
 Hiroshi Akagi⁵, Ken Wada¹, Akira Yagishita¹

【序】

超高速時間スケールでの分子の幾何学的構造を決定するために、X線自由電子レーザー(XFEL)の大強度・超短パルスを用いたポンプ-プローブ法によるX線光電子回折(XPD)測定は有望な手法である。この手法では、原子の内殻で生成した光電子波と近傍の原子で弾性散乱した波による干渉効果が支配的となる100 eV程度以上の運動エネルギーでXPD画像を測定することが重要である[1]。また、気相分子の構造を決定するためにはサンプル中の分子をあらかじめ配列・配向しておくことが不可欠である。本研究では、XFELを用いてXPD測定を行うために、これまでに構築してきた光電子およびイオンの運動量画像測定装置を用いて、レーザー配列させたI₂分子からのI 2p光電子回折像をXFELパルスをプローブ光として初めて測定することに成功した。

【実験】

図1に実験装置の概略図を示す。実験装置は主として、対向する2つのvelocity map imaging spectrometer (VMI)と超音速パルス分子ビーム、分子を配列させるためのNd:YAGレーザーで構成される。超音速パルスビームは~0.04 barのI₂サンプルガスと35 barのヘリウムキャリアガスの混合ガスをEven-Lavieバルブから真空チャンバー中に導入して生成する。Nd:YAGレーザーパルス(時間幅~10 ns)は相互作用領域で~80 μmのスポットサイズに集光させ、超音速パルスビーム中のI₂分子を断熱的に配列制御する。

光電子と解離イオンの2次元運動量画像はフォスファースクリーン付きのmicro-channel plate (MCP)を備えたVMIで検出する。フォスファースクリーン上の光電子画像はXFELパル

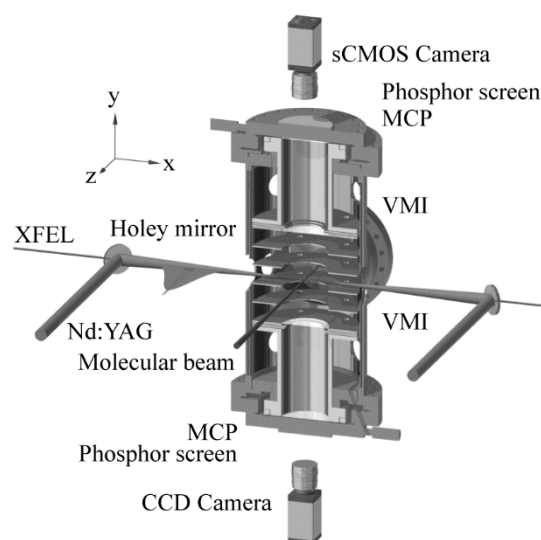


図1. VMI分光器の概略図。並進する光学レーザーとXFELパルスはVMI中心で超音速分子ビームと交差する。

スに同期 (30 Hz) した sCMOS カメラで測定し、解離イオン画像は同様に CCD カメラで測定する。XFEL 実験に先立って VMI の動作確認のため、Xe 3d 光電子の 2 次元運動量画像を KEK Photon Factory のアンジュレーター軟 X 線放射光を用いて測定した。その結果、開発した VMI は運動エネルギー 100~150 eV の光電子に対して最適化されていることを確認した。

XFEL 実験は理化学研究所播磨研究所の SPring-8 Angstrom Compact Free-Electron Laser (SACLA) で行った。プローブ光である XFEL パルスの光子エネルギーを 4697 eV とすることにより、運動エネルギー 140 eV の I 2p 光電子を生成した。分子配列用の Nd:YAG レーザーのオン・オフで、配列した I₂ 分子およびランダム配向した I₂ 分子の I 2p 光電子の XPD 画像の測定を行った。

【結果と考察】

図 2 に Nd:YAG レーザーの偏光ベクトルの向きを XFEL の偏光ベクトルの向きと一致させた場合の I 2p 光電子とイオンの 2 次元運動量画像を示す。イオン画像の中心部分には Nd:YAG レーザーによって生成した解離 I⁺ イオンが現れており、その周辺の領域が XFEL パルスによって生成した解離イオン対の分布である。解離イオン対の分布は、Nd:YAG レーザーをオーバーラップさせないランダム配向した I₂ 分子の場合と明らかに異なっており、I₂ 分子が Nd:YAG レーザーの偏光方向に沿って配列している。一方、光電子画像の中心部は Auger 遷移に伴う shake-off 過程で生成された低エネルギー電子によるもので、外側のリングの領域が I 2p 光電子由来のものである。XFEL パルスの光子エネルギーのバンド幅 ($\Delta E \sim 24$ eV) および方位角分布により I 2p 光電子のリングはぼやけてはいるが、これが光電子の 2 次元回折像である。実際、ランダム配向した I₂ 分子の光電子画像とは異なる分布を示している。始状態として縮退の無い軌道を選び、分子の配列度を向上し、バンド幅が狭い軟 X 線領域の XFEL を利用すれば、2 次元回折像に濃淡の干渉パターンを直接観測することが出来るであろう。

現在、得られた I 2p 光電子回折像に多重散乱 X 線光電子回折理論を適用した解析を試みている。本講演ではこれらの超高速光電子回折法の開発状況について報告する。

【謝辞】

理化学研究所 SACLABL3 における本研究の XFEL 実験は、SACLA 利用研究課題として実施いたしました(課題番号 2013B8022、2014A8012)。

【参考文献】

[1] M. Kazama *et al.*, Phys. Rev. A **87**, 063417 (2013).

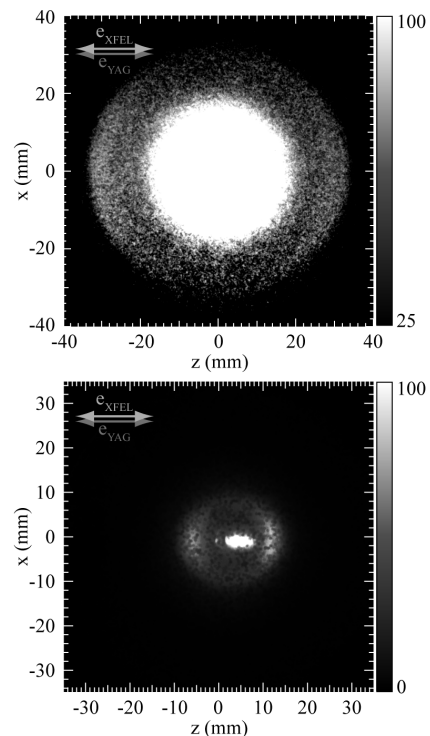


図 2. レーザー配列した I₂ 分子からの I 2p 光電子(上図)および解離イオン(下図)の 2 次元運動量画像。Nd:YAG レーザーと XFEL パルスの偏光方向をそれぞれ矢印で示す。