

テラヘルツ波アシステッド電子散乱を用いた
フェムト秒気体電子回折法の数値シミュレーション
(東大院・理) ○歸家令果, 山内 薫

**Numerical simulation of femtosecond gas electron diffraction
by THz-wave assisted electron scattering**

(School of Science, The Univ. of Tokyo) ○Reika Kanya and Kaoru Yamanouchi

【序】動的過程にある孤立分子の幾何学的構造変化を原子スケールの空間分解能とフェムト秒の時間分解能で測定することは分子科学における重要な課題の一つであり、超短パルス電子線による電子回折法やX線自由電子レーザーによるX線回折法、再衝突電子によるレーザー誘起電子回折法などの手法が提案されている[1]。我々は、レーザーアシステッド電子散乱過程を光ゲートとして利用することによって、10 fs を切る時間分解能を達成できるレーザーアシステッド電子回折 (laser-assisted electron diffraction; LAED) 法を提案し[2]、フェムト秒レーザーパルスが照射された瞬間の CCl_4 分子の電子回折像を実際に測定することによって、LAED 法の有用性を示した[3]。

本研究では、LAED 法をさらに発展させたテラヘルツ波アシステッド電子回折 (THz-wave assisted electron diffraction; TAED) 法を提案する。TAED 法では、半サイクルテラヘルツ波を電子回折信号のストリーク電場として用いるため、ポンプ光とプローブ光 (テラヘルツ波) との遅延時間を掃引することなく、化学結合の解離などの動的過程にある気体分子の電子回折像をフェムト秒の時間分解能を持つ一連のコマ送り画像の形で撮影することが可能となる。そこで、広帯域パルス光によるレーザーアシステッド電子散乱過程を理論的に定式化し、 Cl_2 分子の光解離過程をモデルとした数値シミュレーションを行った。その結果、TAED 法を用いれば 10 fs を切る時間分解能で電子回折信号の取得が可能であることが示された。

【理論】連続光源によるレーザーアシステッド電子散乱過程の標準理論である Kroll-Watson 理論 [4] を広帯域パルス光でも適用できるように拡張した。直線偏光したパルス電場 $\hat{\mathbf{e}}E(t)$ のもとで波数ベクトル \mathbf{k} の電子が標的原子・分子と衝突し、波数ベクトル \mathbf{k}' へと散乱される過程を考える。Kroll-Watson 理論と同様に低周波数近似と半古典近似を適用し、微分散乱断面積を

$$\frac{d\sigma}{dE d\Omega} = \frac{|\mathbf{k}'|}{|\mathbf{k}|} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi\hbar T} \left| 4\pi^2 \hbar m_e \sum_n \sqrt{\frac{2\pi i m_e}{e|s_{\parallel}| E(t_n)}} \exp\left\{i\left(\frac{\Delta E}{\hbar} t_n - \frac{es_{\parallel}}{m_e c} \int_{-\infty}^{t_n} dz A(\tau)\right)\right\} T_{el}(\tilde{\mathbf{k}}', \tilde{\mathbf{k}}; t_n) \right|^2 \quad (1)$$

と導出した (e : 素電荷, m_e : 電子質量, c : 光速, $s_{\parallel} = (\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \hat{\mathbf{e}}$, ΔE : 電子運動エネルギー変化量, $\hat{\mathbf{e}}A(t)$: ベクトルポテンシャル, T : 電子線の照射時間)。ただし, $T_{el}(\tilde{\mathbf{k}}', \tilde{\mathbf{k}}; t)$ は電磁波無しでの弾性散乱 $\tilde{\mathbf{k}}' \leftarrow \tilde{\mathbf{k}}$ の T 行列で, $\tilde{\mathbf{k}}$ と $\tilde{\mathbf{k}}'$ はそれぞれ $\tilde{\mathbf{k}} = \mathbf{k} - e\hat{\mathbf{e}}A(t)/\hbar c$, $\tilde{\mathbf{k}}' = \mathbf{k}' - e\hat{\mathbf{e}}A(t)/\hbar c$ で定義される。 t_n は電子が標的原子・分子と衝突した時刻であり, $t = t_n$ に衝突した電子は,

$$\Delta E = \frac{e\hbar A(t_n)}{m_e c} s_{\parallel} \quad (2)$$

を満たす ΔE と s_{\parallel} で規定される電子信号として検出される。式(1)より、散乱振幅は式(2)を満たす

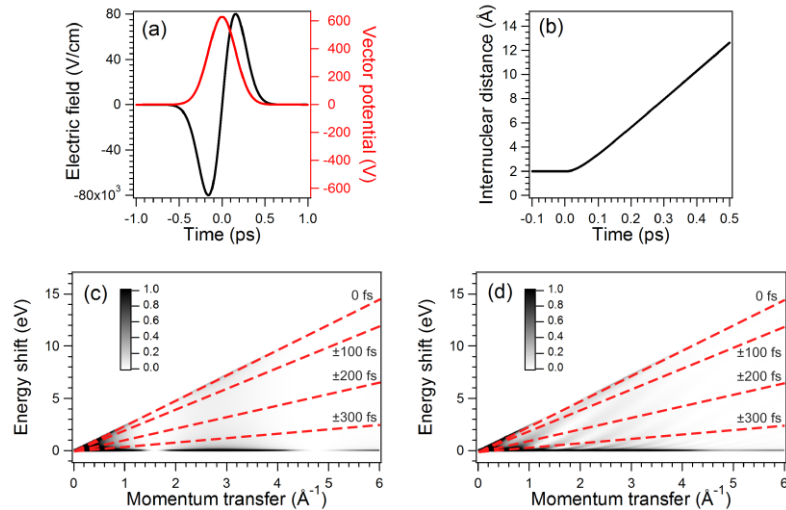


図 1. (a) 黒実線：電場波形，赤実線：ベクトルポテンシャル．(b) 核間距離の時間依存性．(c), (d) 散乱電子分布．

全ての衝突時刻 t_n からの寄与の和で与えられることが分かる．

【シミュレーションと考察】 Cl_2 原子を標的として，最大電場強度 ($|E_0|$) を 0.08 MV/cm ，ピーク周波数 ($\omega_0/(2\pi)$) を 1.0 THz とした半サイクル THz 波， $E(t) = E_0 \sqrt{e} \omega_0 t \exp(-\omega_0^2 t^2/2)$ ，による TAED 信号の数値シミュレーションを行った．なお， Cl_2 分子の分子軸は THz 波の偏光方向に固定されているとした．THz 波とベクトルポテンシャルの時間波形をそれぞれ図 1(a)の黒実線と赤実線で示す． $t = 0 \text{ fs}, \pm 100 \text{ fs}, \pm 200 \text{ fs}, \pm 300 \text{ fs}$ でのベクトルポテンシャルの大きさは，それぞれ $629, 517, 286, 107 \text{ V}$ である．図 1(c)は ΔE を縦軸に， $s_{||}$ を横軸として示した散乱電子の強度分布である． $s_{||} = 1.58 \text{ \AA}, 4.77 \text{ \AA}$ に極小を持つ電子回折パターンが現れていることが分かる．図 1(c)の赤破線は $t_n = 0 \text{ fs}, \pm 100 \text{ fs}, \pm 200 \text{ fs}, \pm 300 \text{ fs}$ において式(2)を満たす $s_{||}$ と ΔE の組を示しており，破線上の信号強度が各時刻に Cl_2 分子と衝突した電子散乱強度に相当する．また，運動エネルギー変化を起こした散乱電子強度は，弾性散乱電子強度の 10^{-3} 程度であり，TAED 信号の観測が十分に実現可能であることが示された．

次に， $t = 0$ において Cl_2 分子がフェムト秒紫外光パルスの照射によって解離性ポテンシャルに励起される場合の計算を行った．図 1(b)の実線は，古典軌道計算で得られた Cl_2 分子の核間距離の時間依存性で，図 1(d)は散乱電子の強度分布である．衝突時刻の変化に伴って電子回折パターンが変化していることが確認できる．さらに，式(2)を用いて ΔE を $|t_n|$ に変換することによって，時間分解電子回折パターンを得ることができる．静的な Cl_2 では回折パターンが変化しないのに対して，解離過程にある Cl_2 では核間距離の増大に伴って次第に回折パターンが密になることが確認された．THz 電場の強度揺らぎが 3%程度するとき，式(2)から見積もられる時間分解能は 7.9 fs 程度であることから，ポンプ光とプローブ光の遅延時間を掃引することなく 10 fs を切る時間分解能を達成できることが示された．

【謝辞】 この研究は JSPS 科研費 (26288004, 15H05696)，公益信託分子科学研究奨励森野基金の支援を受けて行われた．

- [1] J. Xu, C. I. Blaga, P. Agostini, and L. F. DiMauro, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49**, 112001 (2016).
- [2] R. Kanya, Y. Morimoto, and K. Yamanouchi, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123202 (2010).
- [3] Y. Morimoto, R. Kanya, and K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.* **140**, 064201 (2014).
- [4] N. M. Kroll and K. M. Watson, *Phys. Rev. A* **8**, 804 (1973).