

1A04

レーザー誘起再散乱電子分光によるベンゼン分子の幾何構造情報の抽出

(東北大・多元研¹、吉林大・原子分子研²、カンザス州立大・物理³)

○伊藤雄太¹、Chuncheng Wang²、Anh-Thu Le³、奥西みさき¹、Dajun Ding²、C. D. Lin³、上田 潔¹

Extraction of geometrical structure information of benzene molecules by laser-induced electron diffraction

(Tohoku Univ.¹, Jilin Univ.², Kansas State Univ.³)

○Yuta Ito¹, Chuncheng Wang², Anh-Thu Le³, Misaki Okunishi¹, Dajun Ding², C. D. Lin³, K. Ueda¹

【序】化学反応中の分子の超高速リアルタイムイメージングは、現在の科学における大きな目標の一つである。電子の再散乱現象を利用した laser induced electron diffraction (LIED) はその目標を達成する手段の一つとして期待されている。高強度赤外レーザー光 ($\sim 10^{14}$ W/cm²) を気相中の分子に照射するとトンネルイオン化により電子が放出され、その一部はレーザー電場の向きの反転に伴って進行方向を変え、親イオンと再衝突する。再衝突電子が親イオンにより後方弾性散乱されることで、親イオンの幾何構造を反映した再散乱電子が生成される。この電子の再散乱過程はレーザー電場の 1 周期 (波長 800 nm の光で約 2.7 fs) 未満の短時間で起こることから、分子の超高速ダイナミクスをフェムト秒の時間分解能で観測できることが期待される。

Chenらはquantitative rescattering (QRS) theory[1]を提唱し、実験的に測定した角度分解再散乱電子スペクトルから電子・イオン微分散乱断面積を抽出する手法を示した。LIEDを用いて分子構造をサブオングストロームオーダーで決定した最初の実験は、Blagaらによる窒素分子 (N₂) と酸素分子 (O₂) の例である[2]。次いで、Pullenらにより、アセチレン分子 (C₂H₂) の例が報告された[3]。これまでLIEDによる構造決定が報告された分子は、これらの単純な二原子分子あるいは直線分子のみである。本研究では、より複雑な分子であるベンゼン分子 (C₆H₆) にLIEDを適用し、実験結果から幾何構造を抽出できることを示す。

【実験】Ti:Sapphire レーザー(800 nm, 100 fs, 1.5 mJ, 1 kHz)の出力光を光パラメトリック増幅器(OPA)により波長 1650 nm に変換し、超高真空槽内に漏れ出し分子線として導入したランダムな配向のベンゼン分子に集光照射した。イオン化に伴い放出された電子を飛行時間型電子エネルギー分析器で検出した。 $\lambda/2$ 板を用いて入射光の偏光方向を回転させながら測定することで、エネルギースペクトルの角度分布を得た。

【結果と考察】Fig. 1に波長1650 nmのレーザー光を用いて測定したベンゼン分子の角度分解再散乱電子スペクトルから抽出した微分散乱断面積 (σ) の角度分布を再散乱角 (θ_r) に対して示す。代表例として再衝突運動量 (p_r) が2.1 a.u.の結果を示している。また、C原子とH原子の微分散乱断面積の重み付き和を原子成分 (σ_A) として示している。実験結果が原子成分に対して振動しているのが分かる。Independent atom model (IAM) では、分子の幾何構造の情報は微分散乱断面積における干渉項として表される。この干渉項を抽出するために、molecular

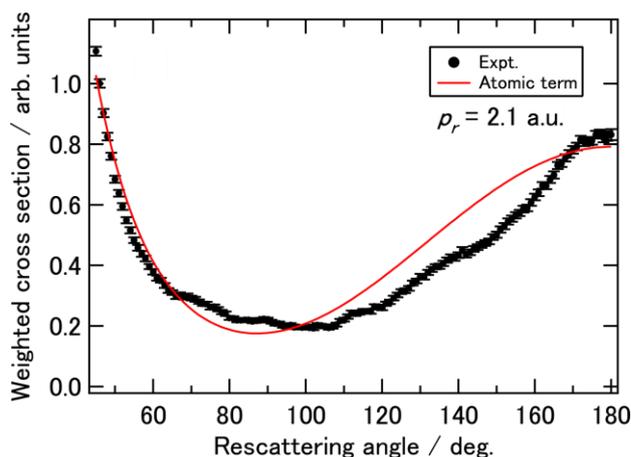


Fig. 1 ベンゼン分子の角度分解再散乱電子スペクトルから抽出した微分散乱断面積の角度分布(●: 実験結果から抽出した断面積(σ)、—: 理論的に求めた断面積の原子成分(σ_A))

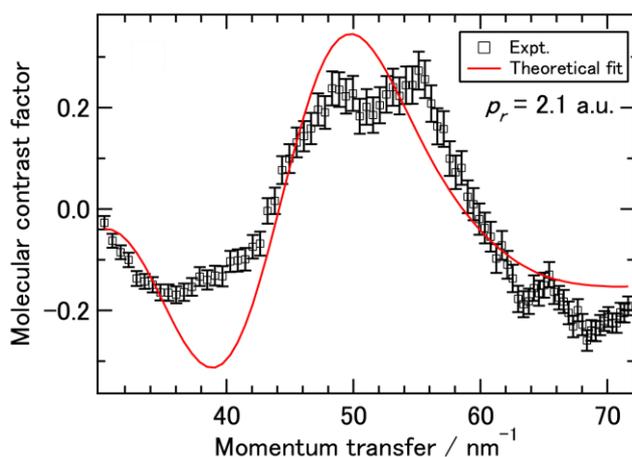


Fig. 2 ベンゼン分子の微分散乱断面積の角度分布から求めた分子散乱因子 (□: 実験的に求めた MCF、—: 理論的に求めた MCF によるフィッティング)

contrast factor (MCF) を次のように定義する。

$$MCF = \frac{\sigma - \sigma_A}{\sigma_A}$$

Fig. 2 に実験結果から抽出した MCF を運動量移行 s に対して示す。

$$s = 2p_r \sin \frac{\theta_r}{2}$$

C-C および C-H 結合長をフィッティングパラメータとして用い、理論的に MCF を求めてフィッティングした結果を合わせて示している。平衡構造における C-C および C-H 結合長がそれぞれ 139 pm と 109 pm であるのに対して、この結果における結合長は 143 pm と 126 pm であった。異なる再衝突運動量の実験結果においても同様の解析により結合長を求め、平衡構造から 10 % 程度に収まる結果が得られた。

References

- [1] Z. Chen *et al.*, Phys. Rev. A, **79**, 033409 (2009).
- [2] C. I. Blaga *et al.*, Nature **483**, 194 (2012).
- [3] M. G. Pullen *et al.*, Nat. Commun. **6**, 7262 (2015).