

## 化学反応中の原子核運動の可視化へ向けた

### 超高感度原子運動量分光の開発

(東北大多元研) ○山崎優一, 細野雅貴, 唐亜国, 高橋正彦

## Development of a highly-sensitive atomic momentum spectrometer: Towards momentum-space imaging of nuclear motions during chemical reactions

(IMRAM, Tohoku Univ.) ○Masakazu Yamazaki, Masaki Hosono, Yaguo Tang, and Masahiko Takahashi

【序】 近年の超短パルスレーザー技術の飛躍的な進歩に伴い種々の時間分解分光法が目覚ましい発展を遂げ、化学反応を実時間で追跡したいという物理化学者全体の夢の一つが現実のものとなった。そうした手法に対し我々は、分子内電子および原子核の運動の変化を直接スナップショット的に観察する、次世代の時間分解分光法の開発を進めてきている。化学反応の駆動力である電子運動の変化を可視化するため、我々は最近、(e, 2e)電子運動量分光[1, 2]とポンププローブ法を組み合わせた時間分解電子運動量分光を世界に先駆けて開発してきた[3]。その結果、現状ではデータの統計に大きな課題を残すものの、アセトン重水素置換体の $S_2$  (n, 3s)状態 (寿命 13.5 ps) を対象とした実験の成功により、短寿命分子の最外殻分子軌道のイメージングが原理的に可能であることを実証した[4]。こうした成果を受け現在、分子のもう一つの構成要素である原子核の運動の変化を動画撮影する新規時間分解分光法の開発を並行して進めている。本研究では、その技術的基盤となる超高感度原子運動量分光装置の開発について報告する。

【実験】 大きな移行運動量を伴う高エネルギー電子の準弾性散乱過程は、入射電子と分子中の特定の原子との二体衝突として記述できる[5]。したがって、衝突前に運動量  $p$  を持つ質量  $M$  の原子は、衝突により次式で表される反跳エネルギー  $E_{\text{recoil}}$  を獲得する。

$$E_{\text{recoil}} = \frac{(p+q)^2}{2M} - \frac{p^2}{2M} = \frac{q^2}{2M} + \frac{q \cdot p}{M} \quad (1)$$

ここで、 $q (= p_0 - p_1)$  は入射電子と散乱電子の運動量  $p_0$  および  $p_1$  の差で定義される移行運動量である。すなわち、散乱電子の損失エネルギー分布は、静止した原子に対する反跳エネルギー ( $q^2/2M$ ) を中心に標的原子の運動に起因したドップラー広がり (式(1)第二項) を示すようになる。このように、散乱電子のエネルギー分析

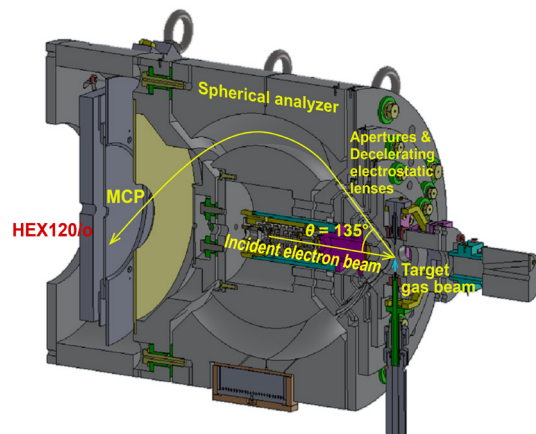


図 1. 原子運動量分光装置の概略図

から原子運動量分布のコンプトンプロファイルを得る手法をここでは原子運動量分光と呼ぶ。

本研究で開発したマルチチャンネル型原子運動量分光装置の概略を図 1 に示す。連続型入射電子線 (2 keV, 150 nA) を標的分子線と散乱点で衝突させ、散乱角 135° に準弾性的に後方散乱した電子を球型アナライザーに導きエネルギー分散させた後、一台の大型二次元検出器で検出した。球型アナライザーは散乱電子の方位角を保存するため、検出器上の検出位置からエネルギーと方位角を決定することができる。さらに、球型アナライザーは  $2\pi$  の全方位角範囲にわたって散乱電子の検出が可能のため、約 20° と限られた方位角範囲で散乱電子を観測する既存の装置[6]と比べて、飛躍的な検出効率の向上が見込まれる。

【結果】 装置の性能評価実験で得た結果の一例として、図 2 に CH<sub>4</sub> との衝突で準弾性散乱した 2 keV 電子のエネルギースペクトルを示す。図からピーク位置やバンド幅が大きく異なる 2 つのバンドの存在が見て取れる。バンド位置は平均反跳エネルギー  $q^2/2M$  に直接関係し、本実験の  $q = 22.4$  a.u. であることを考慮すると、C 原子および H 原子の平均反跳エネルギーはそれぞれ、0.3 eV および 3.7 eV となり、観測したバンドのピーク位置と一致する。一方、バンド幅は C 原子および H 原子のドップラー広がりを反映しており、原子の平均運動エネルギーの計

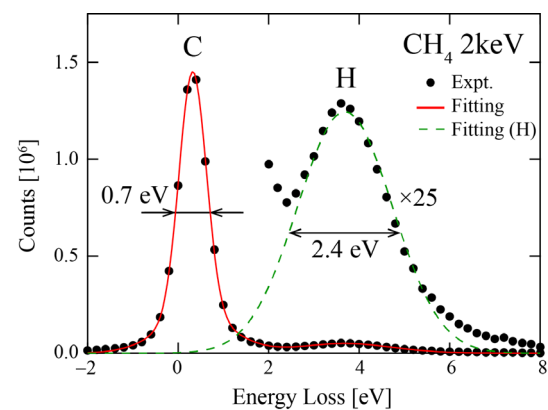


図 2. CH<sub>4</sub> により後方散乱した 2 keV 電子のエネルギースペクトル

算から分子振動が H バンドの幅に主に寄与していることが分かった。これらの観測結果は、本装置が原子運動量分光を行うための所期の性能を示すこと実証する。また、エネルギー分解能については既存装置[6]のそれにやや劣るものの、エネルギー分解能、入射電子線強度、および積算時間で規格化した計数率は少なくとも 2000 倍以上に向上していることが分かった。これは、入射電子線の超短パルス化に伴う大幅な強度低下を補うことが十分に可能な値であり、化学反応中の原子運動の可視化へ向けた大きな成果である。現在、この目的のため、本装置とポンププローブ法を組み合わせた形の装置開発を進めている。

#### 【参考文献】

- [1] M. Takahashi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **82** (2009) 751.
- [2] E. Weigold and I. E. McCarthy 1999 *Electron Momentum Spectroscopy* (New York: Kluwer-Academic).
- [3] M. Yamazaki, Y. Kasai, K. Oishi, H. Nakazawa, and M. Takahashi, *Rev. Sci. Instrum.* **84** (2013) 063105.
- [4] M. Yamazaki, K. Oishi, H. Nakazawa, C. Zhu, and M. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015) 103005.
- [5] M. Vos, M. R. Went, G. Cooper, and C. A. Chatzidimitriou-Dreismann, *J. Phys. B* **41** (2008) 135204.
- [6] M. Vos, *J. Chem. Phys.* **132** (2010) 074306.