

3P001

分子ダイナミクス観測に向けた 新規光イオン・光電子空間断層イメージング装置の設計と開発

¹東工大院・理, ²分子研
○藤本 路夢¹, 水瀬 賢太¹, 大島 康裕^{1,2}

Development of new photoion/photoelectron spatial-sliced imaging apparatus for molecular dynamics studies

○Romu Fujimoto¹, Kenta Mizuse¹, Yasuhiro Ohshima^{1,2}
¹*Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Japan*
²*Institute for Molecular Science, Japan*

【Abstract】 For visualization of molecular dynamics, we have developed a new spatial-sliced imaging technique. In this method, the central 2D section of the 3D-distributed photoion/photoelectron cloud can be selectively imaged. The spatial distribution of photofragments can be directly measured with high resolution even when it does not possess axial symmetry. As a first demonstration we carried out Coulomb explosion imaging of rotational wave packet in N₂ molecules. We have succeeded in visualizing complicated wave nature of the dynamics. This shows the capability of the present method to capture complex quantum mechanical behavior of the systems to be studied. Our new techniques can be also extended to photoelectron imaging, which gives detailed information on the electronic structure of molecules. In this presentation, we will report details of new experimental setup for photoelectron spatial-sliced imaging.

【序】 光イオン・光電子画像観測技術を利用した分子ダイナミクスの観測は、気相分子における量子現象の深い理解、ひいては化学反応機構の実験的解明に繋がる。近年では、2次元および3次元の画像観測が達成されているが、既存の2次元観測法では、イオン集団の空間分布が回転対称性を有する必要があることや、演算による再構築の際にノイズが混入するという問題があった[1]。一方、3次元観測法はより汎用性は高く、空間分布の特定は可能であるが、測定効率や画像情報の精度の低さに問題があった[2]。これらの問題を克服するため、我々は断層化されたイオン像を直接観測する新しい2次元画像観測手法を開発した[3,4]。この手法は、レーザー照射で分子から3次的に放出されたイオン雲の中心平面のみを空間的に選択し、静電場で加速飛行させた後に2次元検出器(MCP・蛍光スクリーン・CMOSカメラ)で位置検出・画像化を行うというものであり、イオンの散乱角度分布の断層投影像を高分解能かつ対称性の制約なしに測定することが可能である。我々はこの手法を用いて、時間発展する分子回転量子波束の可視化に成功した[3]。

イオンイメージングに対して光電子イメージングは、分子の電子構造に関する詳細な情報を与える強力な手法である。分子のイオン化で生じた光電子の空間分布を直接断層化して画像化できれば、非回転対称な分布にも対応でき、測定効率の向上や測定の高精度化が見込める。そこで我々は現在、上記の断層画像観測技術を応用して、光電子に対する新しい画像観測装置の設計・開発に取り組んでいる。本講演では、実験のセットアップ、開発状況、予備実験の結果について報告する。

【実験・結果】

(1) イオンイメージング (分子回転量子波束観測)

断層画像観測装置の概略をFig. 1に示す。装置の性能評価のため、既報よりも高い回転量子数 (J) 成分から構成される N_2 分子の回転量子波束の高分解能画像観測実験を行った。 J の値が高いほど波動関数の節は増加し、高分解能な測定が必要とされる。実験ではフェムト秒Ti:Sapphireレーザー (820 nm, 100 fs) の基本波をpump光とし、その第2次高調波 (407 nm, 100 fs) をprobe光とした。36 TW/cm²の直線偏光pump光を超音速ジェット中の N_2 分子に集光し回転励起を行った。生成した回転量子波束のダイナミクスは、時間遅延 Δt 後の円偏光probe光で分子のクーロン爆発を引き起こし、放出されたフラグメントイオン (N^{2+}) の角度分布を測定することで追跡した。

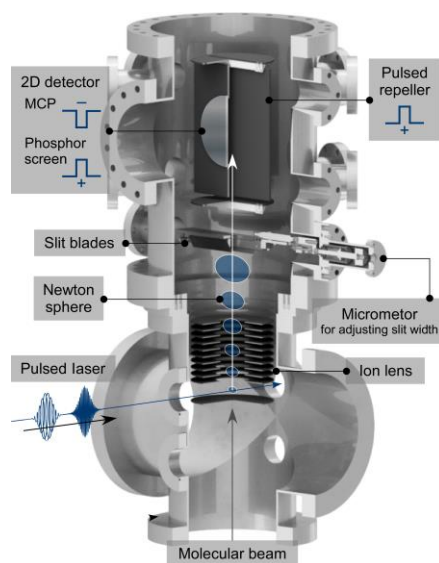


Fig. 1. Design of our imaging setup.

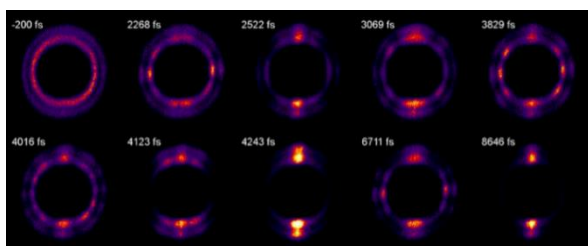


Fig. 2. N_2 molecular orientational distribution observed by 2D imaging.

Fig. 2 は、生成した N_2 の回転波束における空間配向分布の時間発展の観測結果である。観察された画像 (波動関数の2乗 $|\psi|^2$ に相当) には細かな構造が見られ、最大6個の節が確認された。このように、我々の開発した測定手法が分子ダイナミクスにおける量子力学的な波動性の観測に効果的であることを実証した。

(2) 光電子イメージング

光電子断層画像観測装置の開発にあたり、電極・飛行管・検出器等の各要素の検討を行った。既存のイオンイメージング装置に組み込まれている幅1.0 mmの固定スリットに対して、大気圧側から調節可能な新しい精密スリットを開発・導入した。このスリットは、光電子雲の中心部分を0.1~3.0 mmの幅で直接選択することができ、画像分解能および計数率の調節を可能にする。さらに、有効径127 mmの3段MCPプレート・蛍光スクリーンを保持する新しい検出器マウントを製作した。この検出器により画像解像度の向上が期待されるだけでなく、空間分解能の向上によって荷電粒子 (輝点) の位置的な重なりが減少し、信号計数率の改善が見込める。現在は、光電子の軌道に影響を及ぼす地磁気の遮蔽法を検討中である。今回設計・開発した各構成要素の性能評価のため、テスト測定を計画している。

【参考文献】

- [1] F. Rosca-Pruna, and M. J. J. Vrakking, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 153902 (2001). [2] P. W. Dooley, I. V. Litvinyuk, Kevin F. Lee, D. M. Rayner, M. Spanner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **68**, 023406 (2003). [3] K. Mizuse, K. Kitano, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, *Sci. Adv.* **1**, e1400185 (2015). [4] K. Mizuse, R. Fujimoto, N. Mizutani, and Y. Ohshima, *J. Vis. Exp.* **120**, e54917 (2017).