

希ガス原子と二原子分子の原子運動量分光： 反応中の物質内原子運動の可視化へ向けて

東北大多元研

○山崎優一，立花佑一，高橋正彦

Atomic momentum spectroscopy of rare gas atoms and diatomic molecules: Towards visualization of atomic motions during a chemical reaction

○Masakazu Yamazaki, Yuichi Tachibana, Masahiko Takahashi

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Japan

【Abstract】

We report quasi-elastic electron backscattering spectroscopy studies on rare gas atoms and diatomic molecules to develop a protocol to extract information on intramolecular atomic motion from the observed electron energy loss spectra. The observed band shape measured for He, Ne, Ar, Kr, Xe were almost indistinguishable from each other and hence we have found that the spectra of rare gas atoms can be used as the instrumental response function. Furthermore, it was found that, by using the instrumental response function, the band profiles measured for diatomic molecules can be well described by the spherically-averaged atomic momentum distribution due to molecular vibration. Based on this achievement, together with the developments of the highly-sensitive spectrometer, we are now attempting to extend this type of experiments from the static to the time-resolved regime.

【序】我々は、化学反応とは分子内電子運動の変化による原子核運動の変化であるとの観点に立ち、反応の駆動力である分子軌道形状の変化を運動量空間で実時間観測する新規手法の開発を進めてきている[1-3]。最近では、その駆動力によって誘起される原子核運動の変化を運動量空間で捉える手法の開発にも並行して取り組んでいる。その実験的基盤として着目したのが、高速電子と分子内の一つの原子とのコンプトン散乱を利用して、散乱原子の運動量分布を調べる原子運動量分光 (Atomic Momentum Spectroscopy; AMS) [4]である。しかしながら、本手法によって分子内原子運動の情報を得るためには、並進運動の寄与を実験データから取り除く必要がある。そこで本研究では、希ガス原子を対象として、標的ビームの速度分布が実測スペクトルに及ぼす影響を明らかにした。さらにその結果を踏まえ、基底状態の二原子分子のスペクトル形状を分子振動の波動関数形状と直接関係づけることを試みた。

【理論と実験方法】平面波撃力近似によれば、原子運動量分光が対象とする散乱過程は、入射電子と分子中のある一つの原子との二体衝突として記述される[4]。よって、質量 m 、運動量 p で分子内を運動する標的原子は、 $E_{\text{rec}} = q^2/2m + \mathbf{q} \cdot \mathbf{p}/m$ で表される反跳エネルギーを得る。ここで \mathbf{q} は、入射電子および散乱電子の運動量の差として定義される移行運動量である。第一項は、衝突前に静止していた原子が受ける平均反跳エネルギーに相当し、第二項は標的原子の運動量分布に起因したドップラー広がりに対応している。この反跳エネルギー分布は、入射電子のエネルギー損失として観測することができる。

実験は、我々が開発した高感度マルチチャンネル型原子運動量分光装置[5]を用いて行った。入射電子エネルギー2 keV の電子線を漏れ出し分子線と衝突させ、散乱角 $\theta =$

135°±0.4°で方位角 $\phi = -72.5^\circ \sim 72.5^\circ$ および 107.5°~252.5°の範囲に散乱した電子をスリットで選別し、球型アナライザーに導いた。アナライザーを通過した電子は、位置敏感型二次元検出器によって検出した。球型アナライザーの特性により、二次元検出器上の検出位置から散乱電子のエネルギーと散乱方位角を決定することができる。

【結果と考察】 Figure 1 は、希ガスの AMS 電子エネルギー損失スペクトルを、ピーク位置の方位角依存性を補正して方位角に対して積分して得たものである。図から、希ガスのバンド形状が標的原子に依存しないことが見て取れる。図中の青の実線は、平均速度が最も大きな He に対して漏れ出し原子線の速度分布を考慮して得た理論的スペクトルであり、その線幅は実験分解能に比べて無視できるほど小さく、実験結果と矛盾がない。これらの結果から、希ガス原子のスペクトルは装置関数として利用できることが分かった。

Figure 2 は、H₂ および N₂ の AMS スペクトルを、Fig. 1 と同様にして得たものである。希ガスの場合と異なり、二原子分子のバンドは各分子に固有の幅を示している。図中の破線は、調和振動子の運動量空間波動関数の二乗振幅で与えられる原子運動量分布を、ランダムな分子軸の方向に対して空間平均したものであり[6]、それを先の希ガスの実験で得た装置関数で畳み込んだ理論的スペクトルが赤の実線である。こうして得た理論スペクトルはいずれの分子についても実験結果を良く再現していることが見て取れる。H₂ と N₂ のバンド形状の違いは、振動波動関数の形状（振動数）の違いを直接反映しており、よって、本手法によって分子振動による原子運動を抽出できることを、強く示唆する結果が得られた。

【結論】 本研究によって、標的原子分子の並進運動が原子運動量分光の実験データに及ぼす影響を調べ、希ガス原子のスペクトル形状が装置関数として利用できることを明らかにした。さらにその装置関数を用いることで、二原子分子のスペクトル形状を分子振動に起因した原子運動量分布（すなわち、振動波動関数の二乗振幅の形状）と直接結びつけることに成功した。この成果を受けて現在、不安定過渡状態の分子内原子運動を運動量空間で実時間追跡するための時間分解型 AMS の開発を進めている。

【参考文献】

- [1] M. Yamazaki, Y. Kasai, K. Oishi, H. Nakazawa, M. Takahashi, *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 063105 (2013).
- [2] M. Yamazaki, K. Oishi, H. Nakazawa, C.-Y. Zhu, M. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 103005 (2015).
- [3] M. Yamazaki, Y. Tang, M. Takahashi, *Phys. Rev. A* **94**, 052509 (2016).
- [4] M. Vos, G. Cooper, C. A. Chatzidimitriou-Dreismann, *Inst. Phys. Conf. Ser.* **183**, 81 (2005).
- [5] M. Yamazaki, M. Hosono, Y. Tang, M. Takahashi, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 063103 (2017).
- [6] E. B. Karlsson, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **694**, 286 (2012).

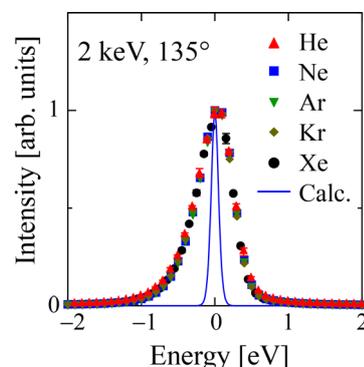


Fig. 1. Comparison of AMS spectra between rare gas atoms

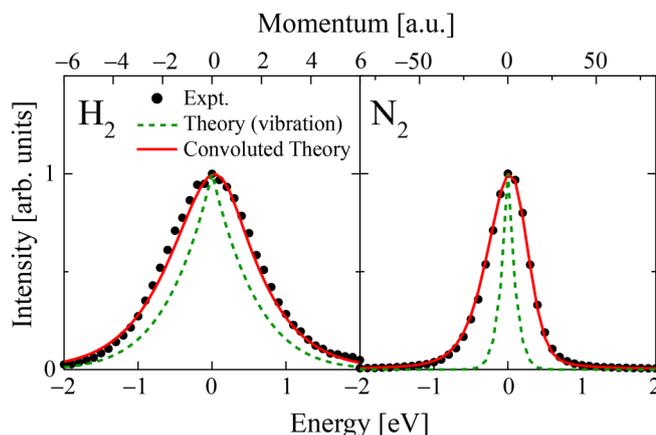


Fig. 2. AMS spectra of H₂ and N₂.