

原子運動量分光を用いた二原子分子の振動波動関数形状の観測

¹東北大学多元物質科学研究所
○立花佑一¹, 山崎優一¹, 高橋正彦¹

Observation of shapes of vibrational wave functions of diatomic molecules by using atomic momentum spectroscopy

○Yuichi Tachibana¹, Masakazu Yamazaki¹, Masahiko Takahashi¹

¹ *Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University*

【Abstract】 Recently, it has been shown that scattering of keV-electron with a large value of momentum transfer $|q|$ can be used to observe electron-atom Compton profile. Here, the Compton profiles measured for a molecular target represent projection of the momentum distributions of the constituent atoms onto the direction of q . By extending this technique, called atomic momentum spectroscopy (AMS), to its time-resolved version, we aim to observe temporal evolution of the momentum distributions of atoms involved in a decaying system or to measure intramolecular forces acting on the atoms in real time. To this end, however, there is an issue to be settled in advance; one must need a protocol to see intramolecular atomic motions by excluding effect of translational motion of the target molecule. For this purpose, we have conducted a series of AMS experiments on rare gas atoms, which have translational motion only, and tested the validity of the protocol with AMS experimental data on diatomic molecules.

【序】 化学反応の実時間観測という目標に向けて、これまでに様々な手法が開発されてきている。例えば時間分解振動分光、時間分解電子線・X線回折などの手法により分子の構造変化や化学結合の切断、生成を観測することが可能となってきた。そこで我々は、このような反応の駆動力たる、分子内原子に働く力を実時間計測できる新規分光法の開発を目指し、分子内原子の運動量分布を観測できる原子運動量分光(AMS)を時間分解分光法へと展開することを試みている。これによって、運動量の期待値の時間微分として分子内原子に働く力を実時間計測できると期待される。

原子運動量分光では、大きな移行運動量 q を伴う高速電子の準弾性後方散乱過程を利用する。この散乱過程は入射電子と分子内のある1つの原子との二体衝突としてよく記述できるため、原子の質量を M 、運動量を p とすると電子のエネルギー損失は、 $E_{\text{loss}} = q^2/2M + q \cdot p/M$ で与えられる[1]。よってエネルギー損失スペクトルを測定することで分子内原子の運動量分析を行うことができる。しかし、ここで得られる運動量には分子の並進・回転・振動運動の寄与が含まれていると考えられ、我々の目的のためには実験結果から分子の内部運動の運動量分布のみを抽出する必要がある。本講演ではこの課題に対する取り組みを発表する。

【実験方法】 実験装置[2]の概略を Fig.1 に示す。2 keV の入射電子線を、ガスノズルから噴射した標的ガス(希ガス原子、二原子分子)と散乱点で衝突させ、散乱角 135° 方向に準弾性散乱した電子のみを球型アナライザーに導いてエネルギー分散させた後、二次元検出器で検出する。本装置は標的ガスの進行方向を 0° として、方位角 0° から 72.5° 、 107.5° から 252.5° 、 287.5° から 360° に散乱した電子を一度に捕集することができる。これによって、検出効率の大幅な向上を実現したとともに、散乱方位角に分

けたAMS測定が可能となっている。この装置を用いてまず、内部運動をもたない希ガス原子(He, Ne, Ar, Kr)を対象にAMS実験を行い並進運動が実験結果に与える影響を調べた。そこで得られた知見を二原子分子の実験結果の解析に利用した。

【結果・考察】希ガスの実験の結果、Heより重い原子 (Ne, Arおよび Kr) では並進運動の寄与は無視できるほど小さく、特にスペクトル形状が質量に依存しないことが分かった。これは、Heを除く希ガスの実測スペクトルを、装置関数として利用できることを示唆している。この装置関数を二原子分子の内部運動の運動量分布の抽出に利用した。

本研究では、二原子分子のAMSスペクトルを分子振動に対する原子運動量分布に、装置関数と回転運動の寄与を表すガウス関数を畳み込んだ形で表した。ここで、振動運動の原子運動量分布は、基底状態調和振動子の運動量空間波動関数を二乗し、 q 方向に射影した成分を空間平均して得られる[3]。Figure 2の黒丸は、 H_2 および N_2 の振動数をパラメータとして実測スペクトルに対してフィッティングし、得られた振動運動の原子運動量分布のみを抽出して示したものである。こうして実験的に得られた分布は、 H_2 および N_2 の振動数の実測値 4401 cm^{-1} , 2358 cm^{-1} を用いて計算した理論的運動量分布 (図中の赤線) と非常に良く一致している。この結果は、まだ予備的ではあるものの、原子運動量分光によって、分子の内部運動の運動量分布を抽出可能であることを強く示しているとともに、希ガスの実験結果を装置関数として用いた我々のアプローチの妥当性を実証している。今後は、調和振動子の波動関数を仮定せずに内部運動を抽出できる一般的な手法を確立していくとともに、時間分解原子運動量分光の実現に向けた装置開発を進めていく。

【参考文献】

[1] M. Vos, M. R. Went, G. Cooper, and C. Chatzidimitriou-Dreismann, *J. Phys. B* **41**, 135204 (2008).
 [2] M. Yamazaki, M. Hosono, Y. Tang, and M. Takahashi, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 063103 (2017).
 [3] E. B. Karlsson, *Nucl. Instrum. Methods B* **694**, 286 (2012).

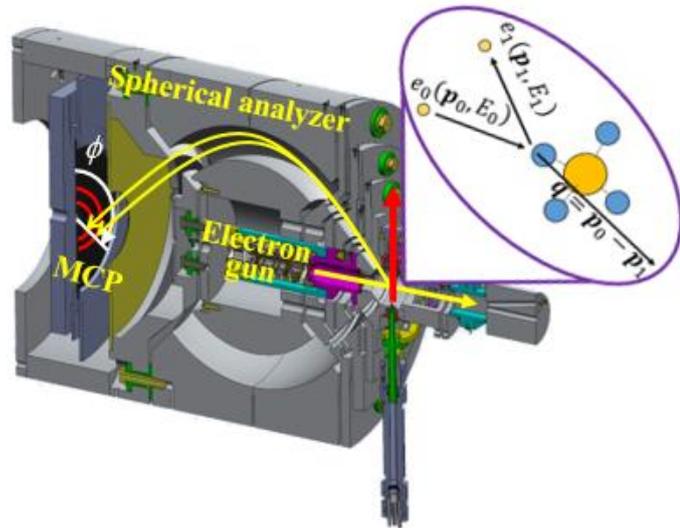


Fig. 1. Experimental setup for atomic momentum spectroscopy

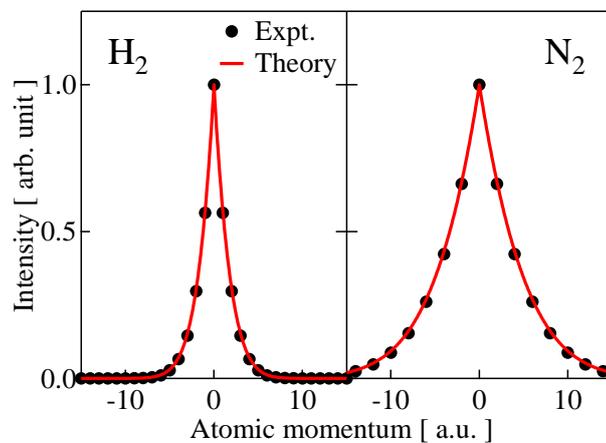


Fig. 2. Extracted momentum distributions of H_2 , N_2