

平成 30 年 5 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13615

研究課題名(和文) レーザー支援電子運動量分光の開発による光と物質の相互作用の研究

研究課題名(英文) Development of laser-assisted electron momentum spectroscopy for understanding interaction between strong laser field and matter

研究代表者

高橋 正彦 (TAKAHASHI, MASAHIKO)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：80241579

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：近年の超短パルスレーザー技術の発展により、原子分子の内部で電子が感じる電場と同程度以上の強い電場をもつ光を作ることが次第に可能となり、強光子場下における超高速分子ダイナミクスの研究が活発化している。本研究の目的は、そうした新しい形の「光と物質との相互作用」の本質的理解を与える新しい実験手法、すなわちレーザー支援電子運動量分光を開発することである。この目的を達成するため、理論計算ならびに時間分解電子運動量分光に関する種々の実験技術の改良を様々に行い、レーザー支援電子運動量分光実験を具現するための確たる指針を得るにことに成功した。

研究成果の概要(英文)： Through recent advances in laser technology, it has become feasible to create strong laser field, which is comparable with the electric field that a bound electron feels in matter, and various kinds of researches regarding ultrafast molecular dynamic in such strong laser field has been activated. The objective of this project is to develop laser-assisted electron momentum spectroscopy that is expected to provide more complete understanding of interaction between strong laser field and matter. For this purpose, many theoretical calculations as well as development of several experimental techniques have been attempted. As a result, this project has successfully provided concrete experimental conditions and guidelines for improvements in experimental techniques, required to realize laser-assisted electron momentum spectroscopy in the near future.

研究分野：物理化学

キーワード：化学物理 原子分子物理 電子線散乱

### 1. 研究開始当初の背景

研究代表者は1992年度の東北大学への着任を機に、高速電子の物質によるコンプトン散乱で生成する非弾性散乱電子と電離電子の同時計測を行う(e,2e)電子運動量分光の研究に着手した。占有分子軌道一つ一つの空間的形状を運動量空間波動関数の二乗振幅として観測できるという本分光のユニークな特色を分子科学の広範な分野で活用することを目指し、信号強度の5桁以上の向上を果たした一連の同時計測画像観測法の開発 [ *Meas. Sci. Tech.* **22**, 075602 (2011) ] の成果を順次踏まえ、より進んだ電子運動量分光研究を進めてきた。近年では、超短パルス電子線を励起源とする電子運動量分光、すなわち時間分解電子運動量分光の開発 [ *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 063105 (2013) ] を行い、光化学反応の起点となる短寿命励起分子の最高占有分子軌道のオービタルイメージングに世界で初めて成功した [ *Phys. Rev. Lett.* **114**, 103005 (2015) ]。一方、近年の超短パルスレーザー技術の発展により、原子分子の内部で電子が感じる電場と同程度以上の強い電場をもつ光を作ることが次第に可能となり、そうした強光子場下における超高速分子ダイナミクスの研究が活発化していた。この分野への電子運動量分光の展開に向けて、研究代表者らは理論的準備を進め、レーザー電場下の原子分子の電子構造と波動関数の形状を観測する電子運動量分光、すなわちレーザー支援電子運動量分光の原子を対象とした場合の散乱理論の開発を行った [ *Phys. Rev. A* **82**, 023410 (2010) ]。以上の研究代表者らの経験と実績を踏まえ、レーザー支援電子運動量分光研究の体現を目指す本計画の提案に至った。

### 2. 研究の目的

光子場強度が摂動領域を超えてある一定の大きさになると、原子分子の電子状態が光子場と結合したドレスト状態と呼ばれる、光の衣をまとった状態が形成されると考えられている。ドレスト状態の概念に従えば、レーザー電場下の分子の原子核のダイナミクスはドレスト状態の断熱ポテンシャル上での核波束の運動として理解できる。事実、極めて短い時間スケールでの分子構造変化などドレスト状態の生成を示す研究結果が、数多く報告されている。本研究の目的は、そうした高強度レーザー科学の基礎的概念たるドレスト状態の価電子から内殻電子までの電子構造全体と個々の波動関数の形状の実験観測を行い、近年のレーザー技術の進展によりもたらされた、新しい形の「光と物質の相互作用」の本質的理解に挑むことである。

一方で、申請書にも記したように、上記の研究目的の実現には幾つかの技術的諸問題を克服しなければならない。単純系ですらその完全解明に至るには申請研究期間を超えた年月が必要であると覚悟している。これが、本挑戦的萌芽研究に応募した理由である。

### 3. 研究の方法

実験面では、図1に概念的に示す、現有の時間分解電子運動量分光装置を転用した。

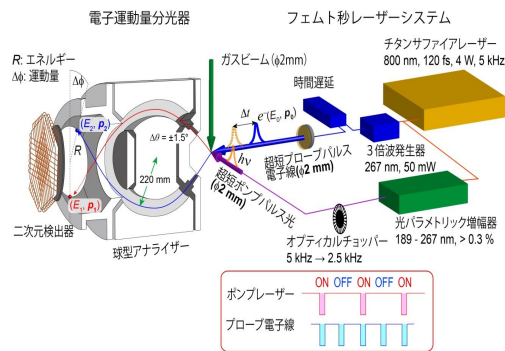


図1：時間分解電子運動量分光装置

この装置は、以下の7つの設備から成る。

- 真空チェンバー
- 真空排気ポンプ
- 標的ガスビーム
- ポンプパルスレーザー
- プローブパルス電子線
- 電子運動量分光器
- 多次元同時計測電子回路

これらのうち、 - と - は、図1に概念的に示す、現有の時間分解電子運動量分光装置をそのまま転用した。ポンプパルスレーザーは、ドレスト状態生成用レーザーとして用いるため、プローブパルス電子線と同期して用いる。ここでは、5kHz チタンサファイアレーザーの出力 800 nm、120 fs 幅、0.8mJ の 90% をおよそ 0.1mm<sup>2</sup> に集光して用いるケースIと、90% を波長変換して用いるケースIIの二つのセットアップを準備した。前者はドレスト状態が確実に形成される 10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup> レベルの強い光子場を得る目的に用いる。後者は強度に関しては比較的弱くなる半面、光子エネルギーが大きい利点を活用してより大きな強度のプローブパルス電子線を用いることが可能となる。

標的ガスビームに関しても、時間分解電子運動量分光装置の直径 2mmφ の分子線を与える分子線源ガスノズルをそのまま転用するケースIと、幅 0.1-0.2mm、高さ 2mm のシート状の形状を傾けた形の新規ビーム源の製作を伴うケースIIの二つのセットアップを準備した。後者は、空間電荷効果によりパルス内の電子数密度に上限のある超短パルス電子線のビーム強度とある一定の標的分子数を確保して信号強度を担保しつつ、光と電子線の速度の違いに起因するポンプ・プローブの時間分解能の劣化を解消してパルス電子線の時間幅 1ps でネットの時間分解能が決まるようにするためである。

他方、理論面では、研究代表者らの原子を対象としたレーザー支援電子運動量分光理論 [ *Phys. Rev. A* **82**, 023410 (2010) ] を用いて、様々な実験条件で計算を行った。

#### 4. 研究成果

本研究計画初年度は、実験基盤となる時間分解電子運動量分光装置が建物の東日本大震災耐震改修工事により稼働不可の状態であったため、「レーザー支援電子運動量分光」の散乱断面計算を主として行った。次年度以降には実験研究を開始した。それら理論的成果と実験的成果を順に示す。

##### (1) 理論的成果

計算は図2に示す symmetric non-coplanar 配置で行った。配置(a)ではレーザー光の偏向方向が入射電子方向と並行の場合 ( $LP_{\parallel}$ ) に、配置(b)では垂直の場合 ( $LP_{\perp}$ ) に、それぞれ散乱角が共に 45 度でエネルギーが互いに等しい二電子を検出する際の電子運動量分光断面積に対応する。

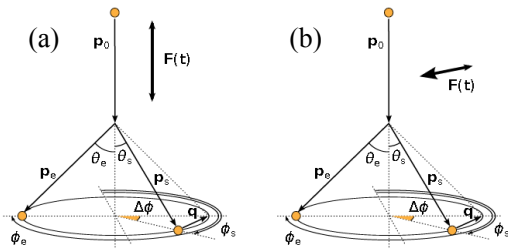


図2: symmetric-noncoplanar 配置。  
(a) 平衡配置、(b) 垂直配置

その結果の一例を図3-6に示す。これらはそれぞれ電子運動量分光検出の際のイオン終状態が  $He^+$  イオンの  $n=2$  励起状態のサブレベル  $2s, 2p_0, 2p_1$  準位への遷移を対象として、入射電子エネルギー6 keV およびレーザー光のエネルギー1.55 eV の条件下で、光子場の強さ  $I$  が  $5 \times 10^{11}, 1 \times 10^{11} W/cm^2$  の2つの場合のレーザー支援電子運動量分光断面積の運動量 ( $q$ ) 依存性、電子運動量分布を理論計算したものである。図3は、レーザー光子場と結合していない場合 ( $N=0$ )、図4-6は、一光子と結合した場合 ( $N=1$ ) の結果である。そして、後者が本研究課題でその観測を体現しようとするドレスト状態運動量空間波動関数の二乗振幅確率密度分布に相当する。

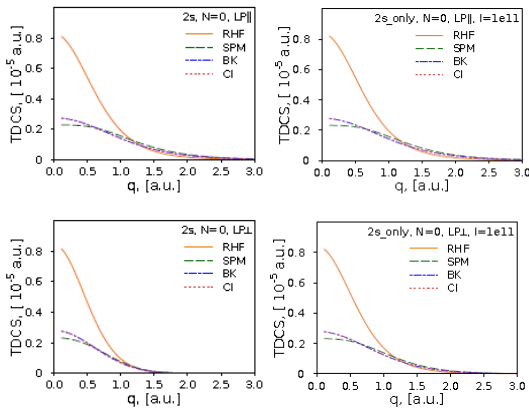


図3: He 2s 準位のレーザー支援電子運動量分布。左側が  $I=5 \times 10^{11}$ 、右側が  $I=1 \times 10^{11} W/cm^2$

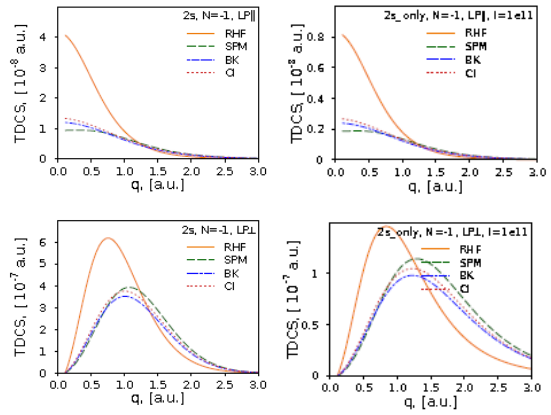


図4: He 2s 準位のレーザー支援電子運動量分布。左側が  $I=5 \times 10^{11}$ 、右側が  $I=1 \times 10^{11} W/cm^2$

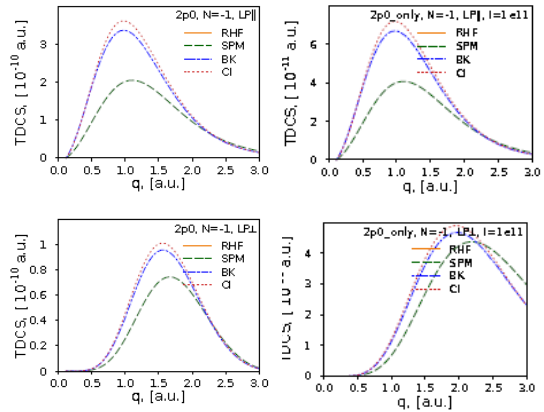


図5: He 2p<sub>0</sub> 準位のレーザー支援電子運動量分布。左側が  $I=5 \times 10^{11}$ 、右側が  $I=1 \times 10^{11} W/cm^2$

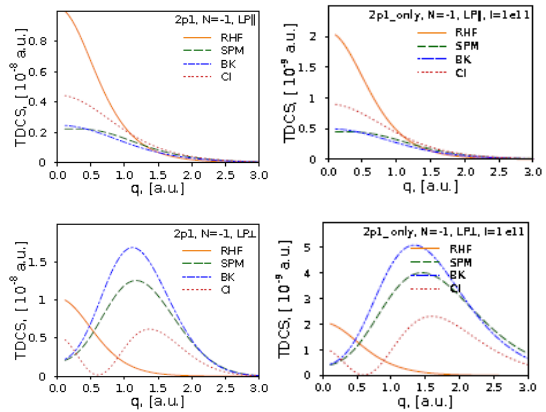


図6: He 2p<sub>1</sub> 準位のレーザー支援電子運動量分布。左側が  $I=5 \times 10^{11}$ 、右側が  $I=1 \times 10^{11} W/cm^2$

図3と図4の比較から、光子場強度が  $10^{11} W/cm^2$  のオーダーの場合、ドレスト状態の断面積強度はおよそ桁程度小さいこと、そしてドレスト状態の断面積強度は光子場強度におよそ比例して増加するだろうことが見て取れる。一方、図4-6の比較から、ドレスト状態の波動関数の形状はレーザー光の偏向方向に依存して強い異方性を持つだろうことが分かる。



## (2) 実験的成果

レーザー支援電子運動量分光の信号強度は、レーザー光、標的ガスビーム、および入射電子線の3つのビーム強度の積に比例する。一方で、ドレスト状態は結合する光子数を反映して、光子エネルギー分だけエネルギー的に分離したピークがイオン化エネルギースペクトル上に現れると期待される。したがって、ドレスト状態の検出には装置のネットのエネルギー分解能が光子エネルギーと同程度あるいはそれ以下であることが要求される。さらに、ドレスト状態はパルスレーザー場がある時にのみ存在する瞬時的な性格を有するので、使用するレーザーパルス幅と同程度の装置の時間分解能も必要とする。そこで、本研究では以下の3つの項目に関する設備を新たに整備した。

### ドレスト状態生成用レーザー光源

現有の時間分解電子運動量分光装置では、使用するレーザーおよび電子線のパルス幅がそれぞれ 0.1 ピコ秒および 1 ピコ秒であるのに対し、各ビーム径を 2mmφとした場合の装置時間分解能は±35 ピコ秒である。この時間分解能の劣化はレーザー光と電子線の速度差に起因し、この問題を克服するため、図7に概念的に示すように、回折格子を用いたレーザー波面チルト設備を整備した。これにより時間分解能を一桁改善できる。

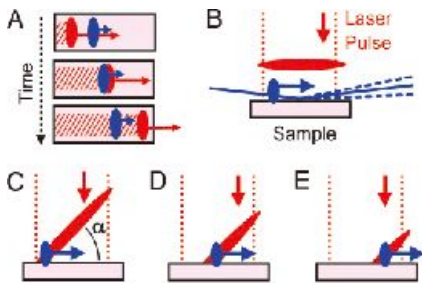


図7: レーザー波面チルト法の概念図

### 標的ガスビーム源

マイクロキャピラリプレート(MCP)をノズル先端部に取付けた形の標的ガスビーム源を作成した。MCPにスリット状マスクを取付け、角度的に傾いたシート状の標的ガスビームを生成することにより、装置の時間分解能をさらに一桁改善することが可能となる。

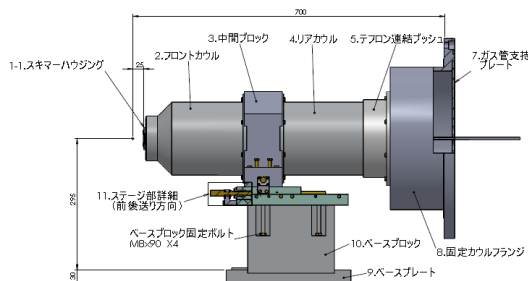


図8: シート状超音速標的ガスビーム源

### 入射電子線パルス源

入射電子線パルスは、厚さ 40 nm の銀薄膜を蒸着したサファイア基盤の背後からレーザー基本波の3倍波(256 nm)を入射し、光電効果で生成する光電子 packets を加速して得る。そこで、レーザーの空間強度分布を均一化し、従前と比較しておよそ2倍の強度のプロープ電子線パルスを生成可能とした。

以上の現有の設備および本研究で新規整備した設備を様々に組み合わせる実験を行った。その一例を、図9にアセトン分子の第二励起状態の時間分解電子運動量分光で得たイオン化エネルギースペクトルを示す。

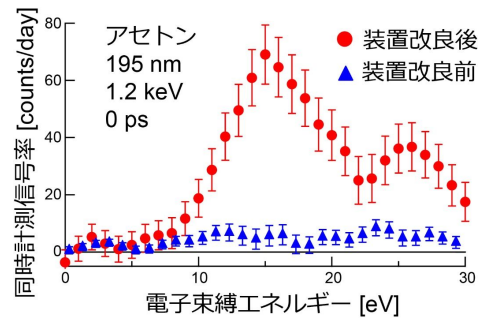


図9: アセトン第二励起電子状態の時間分解電子運動量分光イオン化エネルギースペクトル

図9から、電子運動量分光実験強度が従前と比較して桁違いに大きいことが分かる。これは上記の種々の装置開発の成果である。一方で、レーザー支援電子運動量分光過程によるピークを明確には得ることはできなかった。他方で、将来的にレーザー支援電子運動量分光を実現するために必要な実験条件の詳細とそれを体現するための各種実験技術改良の指針を得たことは大きな成果である。例えば、現有のセットアップでは原子よりも空間的異方性を持つ二原子分子を対象とする方が実験観察は容易になることが分かり、さらには現状と比較して一桁程度強いレーザー光子場を用いれば「レーザー支援電子運動量分光」は具現化できるとの力強い理論的予測も得た。これは、現有のレーザーと比較して数十倍の強度を出力可能な市販の最先端レーザーで実現可能な数値である。

## (3) 本研究のまとめ

本研究は近年の大強度レーザー開発でもたらされた新しい形の「光と物質との相互作用」の本質的理解を与える「レーザー支援電子運動量分光」の実現に挑んだ。その結果、奇しくも申請書にも記した通りに幾つかの技術的諸問題をさらに克服しなければならないことが分かったが、一方で「レーザー支援電子運動量分光」を将来的に実現するための実験技術に関して確たる基盤・改良指針を与えた。以上のように、本挑戦的萌芽研究の趣旨にかなう一定の成果を得たと判断できる。

5. 主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 14 件)

N. Watanabe, S. Yamada, M. Takahashi  
“Stereodynamics of electron-induced dissociative ionization of N<sub>2</sub> studied by (e, e<sup>+</sup>ion) spectroscopy”  
Physical Chemistry Chemical Physics, **20**, 1063-1071 (2018), 査読有  
DOI:10.1039/c7cp06753d  
M. Yamazaki, S. Nakayama, C.Y. Zhu, M. Takahashi  
“Theoretical analysis of the time-resolved binary (e, 2e) binding energy spectra on three-body photodissociation of acetone at 195 nm”  
Journal of Physics: Conference Series, **875**, 012004-1-012004-6 (2017), 査読有  
DOI:10.1088/1742-6596/875/2/012004  
N. Watanabe, S. Yamada, M. Takahashi  
“Molecular-frame electron-scattering experiment on the dipole-forbidden 2σ<sub>g</sub> → 1π<sub>g</sub> transition of N<sub>2</sub>”  
Physical Review A, **95**, 060702(R)-1-060702(R)-5 (2017), 査読有  
DOI:10.1103/PhysRevA.95.060702  
M. Yamazaki, M. Hosono, Y. Tang, M. Takahashi  
“Development of multi-channel apparatus for electron-atom Compton scattering to study the momentum distribution of atoms in a molecule”  
Review of Scientific Instruments, **88**, 063103-1-063103-7 (2017), 査読有  
DOI:10.1063/1.4986459  
F. Morini, N. Watanabe, M. Kojima, M. S. Deleuze, M. Takahashi  
“Influence of molecular vibrations on the valence electron momentum distributions of adamantane”  
The Journal of Chemical Physics, **146**, 094307-1-094307-10 (2017), 査読有  
DOI:10.1063/1.4977060  
Y. Tang, X. Shan, S. Niu, Z. Liu, E. Wang, N. Watanabe, M. Yamazaki, M. Takahashi, X. Chen  
“Electron momentum spectroscopy investigation of molecular conformations of ethanol considering vibrational effects”  
The Journal of Physical Chemistry A, **121**, 277-287 (2017), 査読有  
DOI:10.1021/acs.jpca.6b10009  
N. Watanabe, K. Katafuchi, M. Yamazaki, M. Takahashi  
“Interference effects on (e, 2e) electron momentum profiles: a comparative study for CCl<sub>4</sub> and CF<sub>4</sub>”  
The European Physical Journal D, **70**,

268-274 (2016), 査読有  
DOI:10.1140/epjd/e2016-70516-7  
M. Yamazaki, Y. Tang, M. Takahashi  
“Ionization propensity and electron momentum distribution of the toluene S<sub>1</sub> excited state studied by time-resolved binary (e, 2e) spectroscopy”  
Physical Review A, **94**, 052509-1-052509-5 (2016), 査読有  
DOI:10.1103/PhysRevA.94.052509  
Y. Tang, X. Shan, J. Yang, S. Niu, Z. Zhang, N. Watanabe, M. Yamazaki, M. Takahashi, X. Chen  
“Vibrational Effects on Electron Momentum Distributions of Outer-Valence Orbitals of Oxetane”  
The Journal of Physical Chemistry A, **120**, 6855-6863 (2016), 査読有  
DOI:10.1021/acs.jpca.6b06706  
N. Watanabe, M. Yamazaki, M. Takahashi  
“Relationship between interference pattern and molecular orbital shape in (e, 2e) electron momentum profiles of SF<sub>6</sub>”  
Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **209**, 78-86 (2016), 査読有  
http://dx.doi.org/10.1016/j.elspec.2016.04.004  
F. Morini, N. Watanabe, M. Kojima, M. S. Deleuze, M. Takahashi  
“Electron momentum spectroscopy of dimethyl ether taking account of nuclear dynamics in the electronic ground state”  
The Journal of Chemical Physics, **143**, 134309-1-134309-11 (2015), 査読有  
DOI:10.1063/1.4931918  
Z. Yang, P. Duffy, Q. Zhu, M. Takahashi, F. Wang  
“Theoretical study of valence orbital response to guanine tautomerization in coordinate and momentum spaces”  
Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, **48**, 205101-1-205101-11 (2015), 査読有  
DOI:10.1088/0953-4075/48/20/205101  
H. Teramoto, M. Toda, M. Takahashi, H. Kono, T. Komatsuzaki  
“Mechanism and Experimental Observability of Global Switching Between Reactive and Nonreactive Coordinates at High Total Energies”  
Physical Review Letters, **115**, 093003-1-093003-5 (2015), 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.093003

[学会発表](計 82 件)

Masahiko Takahashi  
(招待講演) “Towards visualizing the driving principle of a chemical reaction by time-resolved high-energy electron impact

spectroscopies”  
Fifth International Meeting on Frontiers of Physics, 2017.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Towards visualizing the driving principle of a chemical reaction by time-resolved high-energy electron impact spectroscopies”

The Ninth RIES-CIS Symposium, 2017.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Present status and future prospect of a new real-time spectroscopic complex using high-energy electron scattering”

International Symposium on (e, 2e), Double Photo-ionization, and Related Topics 2017.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Development of a real-time spectroscopic complex using high-energy electron scattering for studying photochemical reaction dynamics”

EMN summer meeting 2017.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Towards time-resolved imaging of electron and nuclear motions in momentum space”

Stereodynamics (Stereodynamics 2016), 2016.

Masakazu Yamazaki, Masahiko Takahashi

(招待講演) “Recent progress towards time-resolved imaging of molecular orbitals in momentum space”

12th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP12), 2016.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Progress towards time-resolved imaging of molecular orbitals and nuclear motions in momentum space”

International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (MPS 2016), 2016.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Towards time-resolved imaging of electron and nuclear motions in momentum space”

The 6th China-Japan-Korea Joint Seminar on Atomic and Molecular Processes in Plasma (AMPP2016), 2016.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Towards time-resolved imaging of electron and nuclear motions in momentum space”

6th International Workshop on the Physics at EBITs and Advanced Research Light Sources (PEARL 2016), 2016.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Progress in (e, 2e) electron momentum spectroscopy: From the static to the time-resolved regime”

68th Annual Gaseous Electronics

Conference / 9th International Conference on Reactive Plasmas / 33rd Symposium on Plasma Processing, 2015.

Masakazu Yamazaki, Masahiko Takahashi

(招待講演) “Towards making the molecular orbital movies by time-resolved (e, 2e) electron momentum spectroscopy”

International Symposium on (e, 2e), Double Photo-ionization, and Related Topics 2015, 2015.

Masahiko Takahashi

(招待講演) “Progress in (e, 2e) electron momentum spectroscopy: From the static to the time-resolved regime”

XXIX International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (XXIX ICPEAC), 2015.

[図書](計 0 件)

該当なし

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

該当なし

取得状況(計 0 件)

該当なし

[その他]

ホームページ

<http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/takahashi-m/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高橋 正彦 (TAKAHASHI, MASAHIKO)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号: 80241579

### (2) 研究分担者

該当者なし

### (3) 連携研究者

渡邊 昇 (WATANABE, NOBORU)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号: 90312660

山崎 優一 (YAMAZAKI, MASAKAZU)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号: 00533465

### (4) 研究協力者

Chaoyuan Zhu (CHAOYUAN, ZHU)

台湾国立交通大学(台湾)・教授

Konstantin Kouzakov (KONSTANTIN KOUZAKOV)

モスクワ大学(ロシア)・准教授