

平成 21 年 5 月 29 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2007～2008

課題番号：19750003

研究課題名（和文） 強レーザー場電子散乱によるドレスト状態測定

研究課題名（英文） Observation of light dressed states by electron scattering in intense laser fields

研究代表者

歸家 令果 (KANYA REIKA)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：10401168

研究成果の概要：

強光子場中の分子ダイナミクスに対するドレスト状態（光と分子が強く結合した状態）の寄与を解明することを目的として、分子のドレスト状態の特性を直接観測するための分子 - 電子散乱実験装置の開発を行った。開発した装置の性能評価実験と電子軌道シミュレーション計算を行った結果、目標とする強レーザー場特有の電子散乱現象を初めて観測するために必要な装置性能を満たすことが確認された。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,700,000	0	1,700,000
2008年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	480,000	3,780,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：分子動力学・強光子場科学

1. 研究開始当初の背景

光と分子の相互作用を摂動として取り扱えない強光子場中の分子ダイナミクスは、光と分子が強く結びついた“ドレスト状態”という描像によって記述される。このドレスト状態は、光との強い相互作用による電子状態（および光子数状態）のコヒーレントな重ね合わせにより形成される。分子の電子状態間の共鳴波長はその核配置によって大きく変化するため、ドレスト状態における電子状態の構成比率は分子構造に強く依存する。特に、レーザー場強度が 10^{12} - 10^{14} W/cm²の領域では、

共鳴的な電子状態の結合が支配的であるため、特定の核配置におけるドレストポテンシャルの偽交差が分子ダイナミクスを決定する。また、この偽交差をレーザーによって制御することが強光子場による反応制御のための有力な手段と考えられており、これを実験的に測定することは反応制御の観点からも重要である。しかし、強光子場中のドレスト状態はフェムト秒レーザーパルス内でのみ存在し、核ダイナミクスを決定づけている電子状態の共鳴的結合は、核波束がポテンシャル偽交差を通過する僅かな時間帯で起こ

るため、これをプローブすることは非常に困難であり、解離生成物イオンの運動量分布からドレスト状態生成や偽交差の存在を類推するに留まっていた。強光子場中でのダイナミクスの本質を理解し、さらにそれを制御するためには、ドレスト状態の性質を直接観測する実験手法の開発が必須であった。

本研究では Laser Assisted Electron Scattering (以下、LAES) と呼ばれる強レーザー場中で特徴的な原子・電子散乱過程を利用することによって、ドレスト状態の特性を観測する実験手法を開発できるという着想に至り、この手法を用いて、強光子場中での分子のドレスト状態とダイナミクスとの相関を解明することを目指した。LAES 過程とは、電子が原子によって散乱される際、散乱電子が光子エネルギーの整数倍のエネルギーを獲得あるいは損失する現象で、強レーザー場の存在下でのみ現れる。これまでに、高強度 CO₂ レーザーによる中赤外域レーザー場中での LAES 過程の観測が報告されているが、過去の実験のレーザー場条件(波長: 10.6 μm、強度: ~10⁹ W/cm²)では、ターゲット原子はドレスト状態を形成していなかった。一方、理論研究によって、(a) ターゲット原子がドレスト状態にあるとき、その LAES 散乱角度分布の小角散乱成分に特異的なピークが現れること、そして、(b) 共鳴的ドレスト状態にある場合、そのピーク強度が 10² 倍以上増大すること、が報告されていた。

そこで、近赤外域の高強度フェムト秒レーザー場(波長: 800 nm、強度: > 10¹² W/cm²)によって生成されたドレスト状態分子に対して、高速電子線による LAES 過程の実現を計画した。電子エネルギー分析器で光子吸収した散乱電子を選別し、その散乱角度分布(特に小角散乱成分)を観測すれば、分子のドレスト状態をプローブする強力な手法になるという着想を基に本研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究では“強光子場中の分子ダイナミクスに対するドレスト状態の寄与を明らかにするために、分子のドレスト状態の特性を直接観測できる実験手法の開発”を行う。

具体的な達成目標は、以下の三点である。

- (1) 高強度フェムト秒レーザー光によって引き起こされる LAES 過程の観測装置を開発し、これを初めて測定する。
- (2) LAES 過程による光子吸収散乱電子の小角散乱分布測定を行い、本手法がドレスト状態のプローブとして有用であることを実証する。
- (3) 本手法で得られた知見をもとに、強光子場中の原子・分子ダイナミクスを解明する。

3. 研究の方法

(1) フェムト秒 LAES 装置の開発

開発したフェムト秒 LAES 装置は平成 19 年度、および、平成 20 年度上半期に開発した初期型と、平成 20 年度下半期に開発した改良型に大別される。初期型装置の全体構成を図 1 に示す。電子銃から放出された電子はエネルギーフィルターを通して単色化され、ガス試料に照射される。試料は CW ノズルから噴出される。ここで、電子線の進行方向とガスの噴出方向、および、レーザー光の進行方向は互いに直交する。レーザーの偏光方向はガスの噴出方向と平行である。偏光方向に散乱された電子のみをスリットで切り出し、エネルギー分析器に入射させる。エネルギー分析器により分散された電子を蛍光スクリーン付マイクロチャンネルプレートによって二次元検出し、蛍光スクリーンの像を高感度冷却 CCD カメラで測定する。

初期型装置での電子ビーム源はブラウン管用の電子銃とエネルギーフィルターとして用いる半球型電子エネルギー分析器に、静電レンズ、偏向板等を追加したものである。電子銃から放出された電子は半球型電子エネルギー分析器で $E < 0.8$ eV に単色化された後、1 keV まで加速され、静電レンズ、偏向板を経てガス試料に入射する。レーザーと同期したパルス電圧を偏向板に印加することにより、電子線をパルス化し、レーザー場が無い時間帯の余分な電子発生を抑え、S/N の向上を図る。

超短パルスによる LAES 過程はレーザー場の存在時間が短いため、1 ショットあたりの信号強度が非常に小さい。本研究では高繰り返し高強度のモード同期チタンサファイアレーザー(繰り返し: 5 kHz, エネルギー: 1 mJ/pulse, パルス幅: 30 fs) を使用して、5 kHz の高繰り返し測定によりこの問題を克服する。更に、電子エネルギー分析器にトロイ

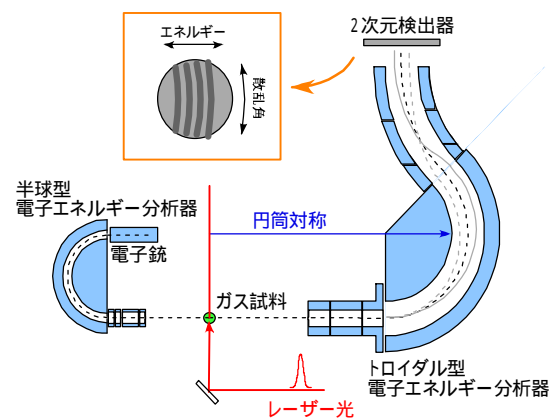


図 1: フェムト秒 LAES 観測装置図(平成 19 年度・20 年度上半期の構成)。

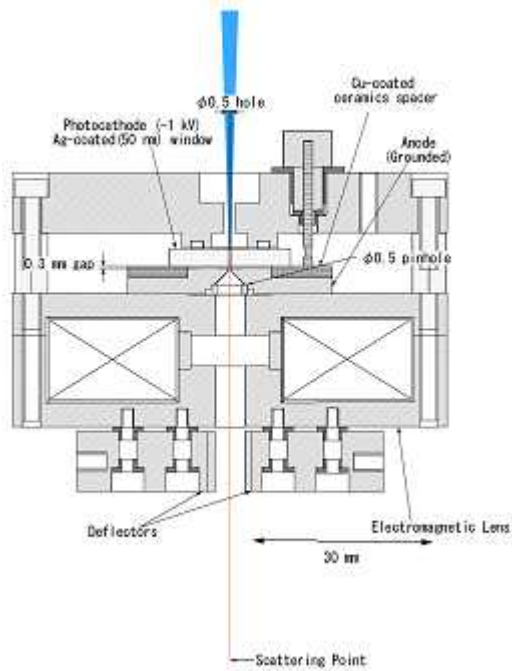


図 2: 光陰極型パルス電子銃図。

ダル型エネルギー分析器を用いて散乱電子の検出効率の向上を行う。この分析器は散乱電子の一部をスリット(図1の紙面垂直方向)で切り出し、紙面垂直方向の散乱電子角度分布を損わずに、紙面水平方向に関してエネルギー分散させるエネルギー分析器である(図1参照)。したがって、二次元検出器上にエネルギー分布と角度分布が同時に現れるため、エネルギーや角度を掃引する必要が無いという利点があり、積算時間の大幅な短縮が期待される。光子エネルギーが 1.55 eV 程度であることを考慮し、分析器の分解能を 0.8 eV 程度に抑え、代わりに捕集効率の増大(〜3%)に重点を置いて使用する。これにより、格段に高い検出効率が達成され、超短パルスによる LAES 過程の観測が可能になる。

(2) 超短パルス電子銃の製作

レーザー光が存在しない時間帯でのバックグラウンド信号を更に抑制し、S/N の向上を図るために、改良型のフェムト秒 LAES 装置では、単色電子源部分(電子銃・半球型電子エネルギー分析器)を光陰極電子銃(図2)に変更して、入射電子線を超短パルス化した。この電子銃では、LAES 発生用の高強度レーザーパルス(800 nm)と光学遅延によって同期した三倍波レーザーパルス(267 nm)を光陰極に照射することによって光電子を発生させる。光陰極は銀コートされた光学窓(膜厚約 50 nm)で、三倍波レーザーパルスは裏面から集光される。生成した光電子は 33 kV/cm の強電場で直ちに 1 keV まで加

速される。電子発生用のレーザー光は、レーザーシステムのパルス圧縮器手前に設置したビームサンプラーによって取り出されているため、パルス時間幅は 10^2 ps 程度であり、電子パルスの時間幅とエネルギー幅が空間電荷効果によって増大するのを最小限に抑えている。

(3) フェムト秒 LAES 過程の観測とドレスト状態測定

フェムト秒 LAES 装置の開発後、Ar などの希ガスを試料として用いて LAES 過程の観測を目指した。

4. 研究成果

平成 19 年度は、初期型装置の組み上げを完了し、テスト実験を実施して装置性能を評価した。ファラデーカップによる電子線強度測定から、熱電子銃を用いた単色電子線源は当初の予定通り約 $1 \mu\text{A}$ の電子線を発生できることが分かった。また、電子線と各種アパーチャー、スリット、電子エネルギー分析器等のアライメントを行い、電子銃から出射された電子が検出器まで到達できることを確認した。Ar ガスを試料として、弾性散乱電子の角度分布測定を行い、電子エネルギー分析器等の電極へ印加する電圧の最適値を求めた。散乱電子の捕集限界は散乱角 $\pm 15^\circ$ であり、小角散乱領域に現れるドレスト状態形成を示す信号を観測するには十分な性能であることが確認された。また、得られた弾性散乱電子のエネルギー幅(図3)から、装置全体のエネルギー分解能は当初の目標を上回る約 0.4 eV であることが分かった。観測さ

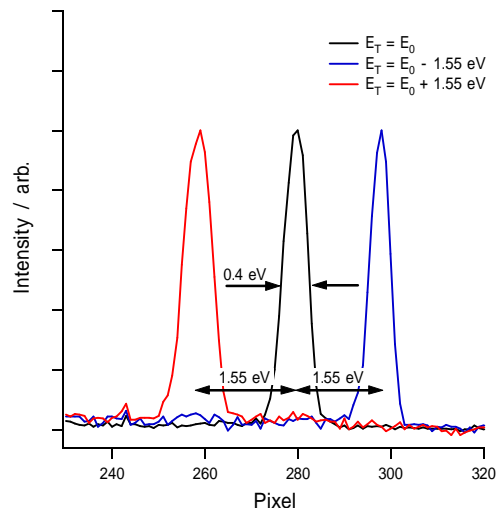


図 3: Ar による弾性電子散乱画像の断面図(横軸はエネルギー分散方向に対応。熱電子銃を用いた単色電子線源を利用)。トロイダル分析器の設定エネルギーを、黒線: 入射電子エネルギー(E_0)、赤線: $E_0 + 1.55$ eV、青線: $E_0 - 1.55$ eV、に設定。

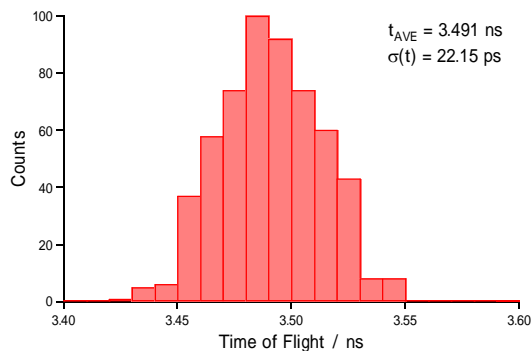


図 4: 電子線軌道シミュレーションによる散乱領域までの飛行時間分布。

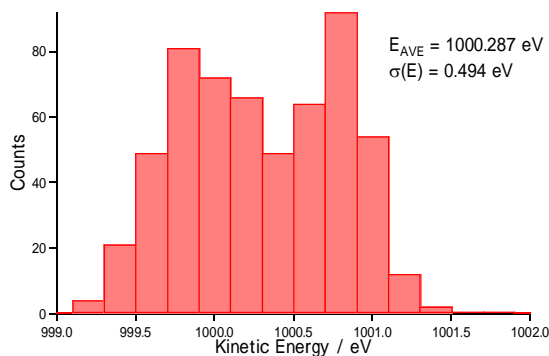


図 5: 電子線軌道シミュレーションによる散乱領域での電子の運動エネルギー分布。

れた弾性散乱電子のエネルギー分布の裾の広がりは非常に小さく、中心エネルギーから波長 800 nm の一光子分(1.55 eV)シフトしたエネルギー値での分布は殆どゼロであった。開発する実験手法では強レーザー場中で散乱されて光子エネルギーを吸収した散乱電子の微小な信号を捕らえる必要があるが、この結果は光子エネルギー吸収電子を明確に選別して観測可能であることを示している。

平成 20 年度は、初期型 LEAS 装置に対する予備実験や改良型装置の開発を行った。

まず、マイクロチャンネルプレートを用いた電子線パルスの時間幅計測から、電子線のパルス時間幅が約 40 ns であることが分かった。また、微小信号の高精度観測を目指して、電子散乱画像の計数法観測のためのデータ取り込みシステムを構築した。そして、散乱電子の計数法測定から背景信号の強度は弾性散乱信号の約 10^{-3} 程度であることが分かった。観測対象となる信号強度は弾性散乱信号の約 2×10^{-6} 程度と見積られるため、観測する信号は背景信号の約 2×10^{-3} 程度と考えられる。そのため、目的の信号を観測するためには非常に高い S/N 比が必要になるが、実際の測定では電子線の強度不足のため、観測対象となる信号の有無を判別するほどの S/N 比が得られなかった。

そこで、電子線強度の向上と電子線パルス幅の短縮による背景信号の軽減を目的として、光陰極型超短パルス電子銃を新たに設計・製作した。製作した電子銃についての電子線軌道シミュレーションを行った結果を図 4, 5 に示す。従来の電子銃よりも電子線強度で約 20 倍、背景信号とのコントラスト比で約 400 倍の向上が見込まれ、光電場内電子散乱法の実現に十分な性能を持つことが示された。

現段階では、LAES 過程の観測には至っていないが、観測に成功した後は、Ar などの希ガスを試料として、LAES 小角散乱測定を行い、ドレスト状態形成によって小角散乱領域に現れるピーク構造のレーザー場強度依存性、波長依存性を測定し、非共鳴的なドレスト状態の特性を調べる予定である。次に、 O_2 , H_2 , D_2 , CS_2 などの分子を試料とし、希ガスの場合と同様に LAES 小角散乱を測定し、共鳴的ドレスト状態形成による小角散乱ピーク強度の増大を観測し、共鳴を生み出す電子状態の特性、および、結合する光子数などの情報の抽出を目指す。

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 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

6. 研究組織

(1) 研究代表者

歸家 令果

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：10401168

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者