

論文の内容の要旨

論文題目 Ultrafast laser-assisted electron scattering and its application: ultrafast response of charge distribution in Xe and instantaneous geometrical structure of CCl₄

(超高速レーザーアシステッド電子散乱とその応用：Xe 原子内電荷分布の超高速応答と CCl₄ の瞬時的分子構造)

氏 名 森本 裕也

I. 序

レーザー場中での電子と原子の衝突によって、電子の運動エネルギーは、散乱前に比べて光子エネルギー ($h\nu$) の整数倍だけ変化する。この散乱過程は、レーザーアシステッド電子散乱 (laser-assisted electron scattering、以下 LAES と省略) 過程と呼ばれている。1976 年に初観測が報告されて以来、LAES 過程の観測には、連続発振レーザーやマイクロ秒レーザーが用いられてきたが、我々は最近、超短パルスレーザーを用いた LAES 過程の観測に初めて成功した。LAES 過程はレーザー場存在下でのみ起こるため、超短レーザーパルスによって誘起される LAES 過程を利用することで、原子や分子における超高速現象を 10 fs 以下という高い時間分解能で観測することが可能となる。

本研究では、高強度フェムト秒レーザーパルスを用いて、Xe および CCl₄ による LAES 過程の散乱角度分布の観測を行った。そして、得られた散乱角度分布とシミュレーション結果を比較することで、LAES 過程を用いれば、レーザー場によって誘起された原子内電荷密度の超高速応答の観測、および、レーザーパルス照射時の気体分子の瞬時的な幾何学的構造の決定が可能であることを実証した。

II. 高強度レーザー場中での Xe 原子内電荷分布の超高速応答

原子が高強度レーザー場に晒されると、原子内の電荷分布はレーザー電場に応答して、超高速で振動する。これまでの理論的な研究によって、LAES 信号の小角散乱に、原子内電荷分布の超高速振動を反映した特徴的なピーク構造が現れることが予想されている。しかしながら、これまでの LAES 過程の研究では、比較的低い強度 ($\leq 10^9 \text{ W/cm}^2$) のレーザーしか用いられなかったため、原子内電荷分布の超高速振動に由来するピーク構造を観測することはできなかった。本研究では、高強度レーザー場中 ($I = 1.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、 $\tau = 970 \text{ fs}$ 、 $\lambda = 800 \text{ nm}$) での Xe 原子による LAES 過程を観測することによって、原子内電荷密度分布の超高速振動に由来するピーク構造の観測に初めて成功した。

実験装置の概略を図 1 に示す。光電陰極型電子銃で生成された電子パルスは、1,000 eV まで加速される。加速された電子パルスは散乱点にて、Xe 原子線および高強度レーザーパルスと直交する。散乱電子の運動エネルギー (E) および散乱角度 (θ) は、トロイダル型静電エネルギー分析器によって分解される。

運動エネルギーごとに散乱角度分布を積分して得た、散乱電子の運動エネルギースペクトルを図 2 に示す。エネルギースペクトルの強度は、弾性散乱 ($\Delta E = 0$) のピーク強度で規格化されている。 $\Delta E = \pm \hbar \nu$ (1.55 eV) および $\Delta E = \pm 2\hbar \nu$ (3.10 eV) に、LAES 過程の信号が観測された。次に、図 3 に $\Delta E = +\hbar \nu$ における LAES 信号の散乱角度分布を赤丸で示す。 $\theta < 0.5^\circ$ の散乱角度範囲において、明確なピーク構造が観測された。観測されたピーク構造が原子内電荷分布の超高速振動に由来する信号であることを確認するため、シミュレーションとの比較を行った。まず、原子内電荷分布の超高速振動が考慮

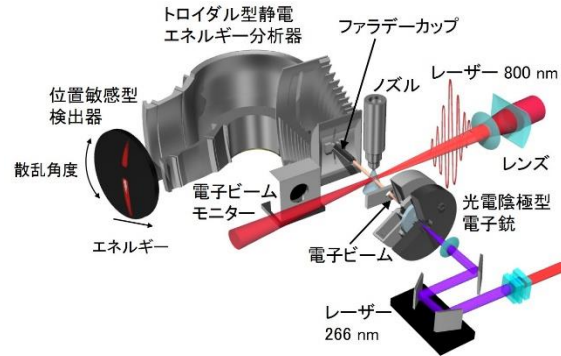


図 1. 実験装置の概略図

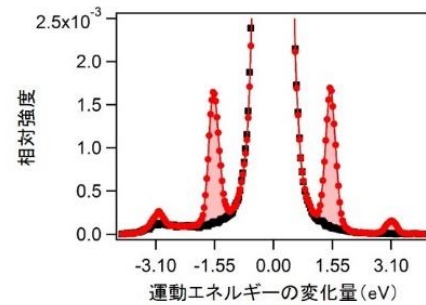


図 2. Xe によって散乱された電子の運動エネルギースペクトル。赤丸がレーザー場中で散乱された電子のエネルギースペクトル、黒四角が背景信号を表す。

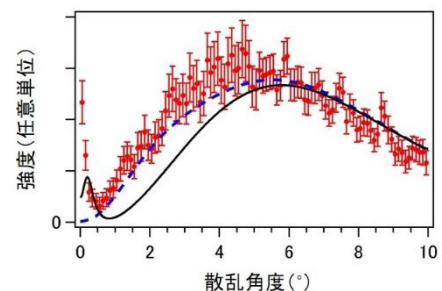


図 3. Xe による LAES 信号 ($\Delta E = +\hbar \nu$) の散乱角度分布。赤丸が実験結果、黒実線が Zon のモデルに基づいたシミュレーション結果、青破線が Kroll-Watson 近似によるシミュレーション結果を表している。

されていない Kroll-Watson 近似を用いて散乱角度分布を計算した。図 3 中に破線で示したシミュレーション結果には、ピーク構造は現れなかった。次に、原子内電荷分布の超高速振動による効果を近似的に取り込んだ Zon のモデルを用いて、シミュレーションを行った。図 3 に実線でその結果を示している。このシミュレーションでは、小角散乱に明確なピーク構造が現れた。この結果は実験結果と整合しており、LAES 信号の小角散乱に観測されたピーク構造が、原子内電荷分布の超高速振動に由来していることが確認された。

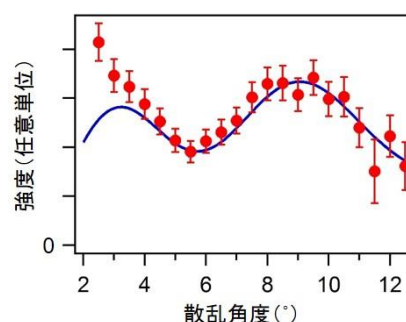


図 4. CCl_4 による LAES 信号 ($\Delta E = +h\nu$) の散乱角度分布。赤丸が実験結果、実線がシミュレーション結果を表している。

III. フェムト秒分子イメージングのためのレーザーアシステッド電子回折法

気体電子回折法は、気体分子の幾何学的構造を 0.01 \AA の精度で決定できる有用な手法である。我々は最近、気体分子の瞬時的な幾何学的構造をフェムト秒の時間分解能で決定するために、レーザーアシステッド電子回折 (laser-assisted electron diffraction、以下 LAED と省略) 法と呼ばれる超高速気体電子回折法を提案した。LAED 法では、LAES 過程を超高速ゲートとして利用することによって、レーザーパルスの時間幅内での気体電子回折パターンを取得することができる。従って、LAED 法を用いたポンプ・プローブ実験では、従来の超短電子パルスを利用した手法よりも 2 桁以上も高い、 10 fs の時間分解能を達成することができる。本研究では、フェムト秒レーザーパルス ($I = 6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 、 $\tau = 520 \text{ fs}$ 、 $\lambda = 800 \text{ nm}$) を用いて、 CCl_4 による LAES 信号の散乱角度分布を計測することによって、LAES 過程の散乱角度分布に現れる気体電子回折パターンの観測に初めて成功した。

図 4 に 1 光子分だけ運動エネルギーが変化した ($\Delta E = +h\nu$) LAES 信号の散乱角度分布を赤丸で示す。観測された散乱角度分布には、 $\theta = 5.5^\circ$ 付近で極小、 $\theta = 9.0^\circ$ 付近で極大を示す明瞭な電子回折パターンが観測された。観測された電子回折パターンが CCl_4 の幾何学的構造に由来することを裏付けるために、数値シミュレーションとの比較を行った。シミュレーションには、LAES 過程の散乱角度分布を与える Kroll-Watson 近似と、気体電子回折法において回折パターンの計算に用いられる独立原子モデルを用いた。また、 CCl_4 の構造パラメーターには、 295 K で観測された既報の値を使用した。図 4 に実線で示したシミュレーション結果は、実験結果を良く再現している。この一致は、LAED 法によって、分子の瞬時的な幾何学的構造を決定できることを示している。

IV. まとめと将来展望

本研究では、高強度フェムト秒レーザーパルスによって誘起される LAES 過程を利用することによって、原子内電荷分布の超高速応答の観測や気体分子の瞬時的な幾何学的構造の決定が可能であることを示した。この LAES 過程を利用した超高速計測手法を (e,2e) 過程の観測に応用することによって、高強度レーザー場下での原子軌道や分子軌道の運動量分布を調べることが可能となると期待される。しかしながら、高強度フェムト秒レーザーパルスによって誘起される、レーザーアシステッド (e,2e) 過程を観測するためには、(e,2e) 信号を極めて高い感度で検出する必要があるため、未だその観測例は報告されていない。

レーザーアシステッド (e,2e) 過程の観測に向けて、本研究では図 5 に示す装置の開発を行った。本装置の大部分は、本研究において独自に設計、製作したものである。本装置の感度は、従来のスキャン型 (e,2e) 分析器と比較して 3 桁程度高く、レーザーアシステッド (e,2e) 過程の信号を、我々の過去の LAES 過程の観測実験と同程度のカウントレート (0.01 count/sec) で観測することが可能である。

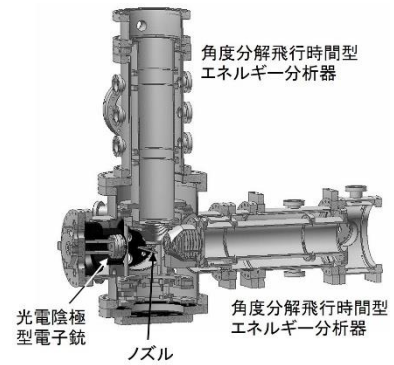


図 5. レーザーアシステッド (e,2e) 過程の観測に向けて開発した装置