

## 電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡の開発による 物質内電子移動の可視化

Visualization of electron transfer in matter with a time-resolved  
reaction microscope for electron Compton scattering

高橋 正彦 (TAKAHASHI MASAHIKO)

東北大学・多元物質科学研究所・教授



### 研究の概要

研究代表者らが世界に先駆けて開発した、物質内電子の運動量分布を3次元的に与える手法に近年その進歩が著しい超短パルス電子線技術を高度に導入することにより、物質内電子運動が化学反応を先導する形で時々刻々変化していく様をスナップショット撮影する、新規分光法を開発する。これにより、従来とは異なる観点から、単分子の動的過程の解明を目指す。

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：励起分子素過程

### 1. 研究開始当初の背景

化学反応を実時間で観測したいという物理化学者全体の夢は、超短パルスレーザーの発展によって現実のものとなりつつある。これまで、振動分光による官能基の振動数変化、超短パルス電子線回折による核位置の変化、あるいは吸収・発光分光や光電子分光による電子状態変化等の観測を通じて、化学反応途中の系を追跡する試みがなされてきた。しかし、化学反応を一般に先導する物質内電子の変化そのものを観測する研究はなかった。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、化学反応を先導する形で起こる物質内電子の運動の変化、すなわち過渡系電子波動関数が運動量空間において時間発展する様をスナップショット的に観察する手法を開発することである。これにより、励起エネルギー移動や異性化反応等単分子の動的過程に対して従来とは異なる視点から研究を行う運動量分光の構築を試みる。

### 3. 研究の方法

本研究で開発する手法は、超短パルスポンプレーザーにより単分子を光励起した後、ポンプパルスからの遅延時間の関数として、3-30 keVの超短パルス電子線を反応途中の系に照射し、これにより起こるコンプトン散乱過程をプローブとして過渡状態にある物質内電子運動量分布を観測する。

### 4. これまでの成果

本研究の年次計画は、計5年の研究期間を、電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡装置の構成設備を各々整備する第I期(平成20-21年度)、それら設備を組み合わせるシステムとして立ち上げる第II期(平成22年度)、そして基礎・応用実験を行う第III期(平成23-24年度)の3つのフェイズに分けて研究を進めるものである。

本研究で開発する電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡は、

- (1) メイン真空チェンバー
- (2) 大型排気ポンプ
- (3) 超音速分子線源
- (4) 極短パルスポンプレーザー
- (5) 超短パルス電子線源
- (6) 全方位角 $2\pi$ 型(e, 2e)電子分光器
- (7) 全立体角 $4\pi$ 型イオン分光器
- (8) 多次元同時計測電子回路

の8つの設備から成る。これまで、上記の年次計画に従って研究を推進してきた。すなわち、(1)、(5)-(8)を新規開発、(2)と(3)は研究室保有のものを転用、(4)は市販品を購入するなどして(1)-(8)の構成設備を整備し、第III期(平成23-24年度)で行う基礎・応用実験に向けて、主として以下に記すような予備的研究を重ねてきた。

計画初年度である平成20年度には、電子用およびイオン用二次元検出器を購入し、動作確認を行うと共に、インピーダンスマッチングを徹底的に図る等により出力高速信号

のパルス波形、振幅、バックグラウンドノイズとのS/B比を大幅に改善した。加えて、既存のものと同型同サイズで散乱二電子がとりうる方位角領域( $2\pi$ )をほぼすべてカバーする(e, 2e)電子分光器を開発し、また荷電粒子のトラジェクトリーシミュレーションで得た知見をもとにイオン分光器の設計、開発を行った。

平成 21 年度では、真空メインチェンバー(D1400mm×W1600mm×H900mm)を総アルミ材で製作した。チェンバー内部には $\mu$ メタルを取り付け、精密電子分光を行うための磁場遮蔽(1 mGauss 以下)を行った。これに既存の超音速分子線源チェンバーを組み合わせ、また 3410 L/s, 2300 L/s, 1500 L/s, 420 L/s のターボ分子ポンプを差動排気ポンプとして設置することにより、電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡チェンバーをシステムとして完成させた。これと並行して、計 23 個の高速信号を並列処理する多次元同時計測電子回路を開発した。これを前年度に整備した(e, 2e)電子分光器と組み合わせ、取り回しが比較的容易な研究室保有の比較的小型のチェンバー用いて、電子検出効率の向上に関する研究を徹底的に行った。その結果、本研究の具現化に前提としていた検出効率の数十倍もの改善に成功した。

平成 22 年度には、サファイア基板上に銀薄膜(厚みは約 40 nm)を蒸着したフォトカソードをベースとする超短パルス電子銃を開発した。また励起用 Nd:YLF レーザー、フェムト秒再生増幅器システム、および第 3 高調波発生器を購入し、これと前年度に購入したフェムト秒レーザーを組み合わせ、超短パルス電子銃用の励起源として整備を行った。さらに、併せて別途整備した小型チェンバーを用いて性能評価実験を開始し、すでに強度に関しては所期の目標を上回る結果を得ている。一方で、本研究で最終的に目指すピコ秒オーダーの時間分解能を得るため、超大型(e, 2e)分光器の開発に着手し、近々に完成予定である。他方、前年度より進めていたレーザー電場下の電子線コンプトン散乱の理論の基礎開発を終え、その成果を Phys. Rev. A 誌等で発表した[発表論文リスト#3, 5]。これは、本研究の実験結果の解釈に理論的裏付けを与えるものである。

以上のように、電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡装置の構成設備を開発するための期間 3 年を順調に終えることができた。すなわち、平成 23 年からの 2 年間で挑戦する「化学反応を先導する形で起こる物質内電子運動の変化の時間分解観測」実験のための基礎・土台作りを概ね所期の目標通りに完了した。

## 5. 今後の計画

平成 23 年度早期にオプティカルパラメトリックアンプシステムの購入を予定しており、これにより、電子線コンプトン散乱の時間分解反応顕微鏡装置はシステムとして完成する。

まずは気相単純分子を対象として、約 30 ピコ秒の分解能で、時間分解反応顕微鏡実験を開始する。これにより、システムの複合的最適化を図る。その後、所期の目標であるピコ秒オーダーの時間分解能を目指して、装置改良を順次果たしていく。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. N. Watanabe and M. Takahashi  
Carbon 1s electron momentum spectroscopy of CF<sub>4</sub>  
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 44,  
(5 pages) (2011), in press.
2. 山崎優一、渡邊昇、高橋正彦  
物質内電子運動の可視化法の開発と反応性・機能性の起源の解明  
マテリアルインテグレーション 24,  
(5 ページ) (2011), 印刷中.
3. K. A. Kouzakov, Yu. V. Popov, and M. Takahashi  
Theory of laser-assisted electron momentum spectroscopy: Beyond the Volkov wave Born approximation  
Journal of Physics: Conference Series 288, 012009 (5 pages) (2011).
4. D. B. Jones, M. Yamazaki, N. Watanabe, and M. Takahashi  
Electron-impact ionization of the water molecule at large momentum transfer above the double-ionization threshold  
Phys. Rev. A 83, 012704 (8 pages) (2011).
5. K. A. Kouzakov, Yu. V. Popov, and M. Takahashi  
Laser-assisted electron momentum spectroscopy  
Phys. Rev. A 82, 023410 (14 pages) (2010).
6. 山崎優一、渡邊昇、高橋正彦  
(e, 2e)電子運動量分光の過去、現在、そして未来  
原子衝突研究協会誌 7, 4-26 (2010).
7. M. Takahashi  
Looking at molecular orbitals in three-dimensional form: From dream to reality  
Bull. Chem. Soc. Jpn. 82, 751-777 (2009).
8. N. Watanabe and M. Takahashi  
Double electron excitation dynamics studied by (e, 2e) electron momentum spectroscopy  
AIP Conference Proceedings 1150, 78-83 (2009).
9. N. Watanabe and M. Takahashi  
Electron impact ionization-excitation and double-ionization dynamics of He at large momentum transfer  
Journal of Physics: Conference Series 194, 012018 (8 pages) (2009).

ホームページ等

[http://www.tagen.tohoku.ac.jp/modules/www85/index.php?content\\_id=48](http://www.tagen.tohoku.ac.jp/modules/www85/index.php?content_id=48)