

研究終了報告書

「光ドレスト高速電子線散乱によるzepto秒遅延時間測定」

研究期間:2020年11月～2024年3月

研究者: 歸家令果

1. 研究のねらい

本研究課題の目的は、独自に考案した電子散乱実験手法を用いて、zepto秒オーダーの散乱遅延時間を誤差 ± 5 zp 程度の精度で計測し、超高速現象の計測限界を3桁以上向上させることによって、zepto秒科学を一気に切り拓くことである。そして、この目的を達成するために、「電子エネルギーシェアリング干渉法」という新たな実験手法を創出する。

電子エネルギーシェアリング干渉法では、光学におけるスペクトルシェアリング干渉法の原理を電子-原子散乱における散乱振幅に対して応用する。つまり、複素散乱振幅のフーリエ成分 $f(E, \mathbf{s})$ とシェアリングエネルギー ε だけエネルギーシフトしたフーリエ成分 $f(E+\varepsilon, \mathbf{s})$ を干渉させれば、異なるエネルギー間の散乱振幅の位相差 $\phi(E+\varepsilon, \mathbf{s}) - \phi(E, \mathbf{s})$ が得られる。(ただし、 \mathbf{s} は散乱角度によって規定される運動量移行ベクトルである。)

実際の電子エネルギーシェアリング干渉実験は、近赤外域の円偏光レーザーパルスによるレーザーアシステッド電子散乱 (laser-assisted electron scattering; LAES) 過程の計測を用いて行う。LAES 過程とは、レーザー場中で電子が原子によって弾性散乱された結果、散乱電子エネルギーが入射電子エネルギーから光子エネルギーの整数倍だけ変化する現象である。円偏光レーザーを用いて LAES 過程を誘起したとき、入射電子エネルギー E_i 、散乱電子エネルギー E_f 、運動量移行ベクトル \mathbf{s} が特定されると、電子が原子と衝突した際のエネルギーが二通り (E_1, E_2) に限られ、電子エネルギーシェアリング干渉が成立することを既に見出しており、右回り円偏光と左回り円偏光での散乱電子信号の差を測定することによって、散乱過程における遅延時間に相当する Wigner 遅延時間 $\tau_w = 2\hbar[\phi(E+\varepsilon, \mathbf{s}) - \phi(E, \mathbf{s})] / \varepsilon$ を計測できることを理論的に確認済みである。

本研究課題では、独自に考案した電子エネルギーシェアリング干渉法を実現することによって、「衝突過程における時間遅れ」というこれまでに測定し得なかった物理量を初めて計測し、zepto秒領域の科学を開拓することをねらう。

2. 研究成果

(1) 概要

1-1. 円偏光 LAES 信号の数値シミュレーション

右回り円偏光による LAES 信号と左回り円偏光による LAES 信号との間のわずかな強度差を検出しやすい実験条件を前もって検討するために、LAES 信号の数値シミュレーションを実施した。散乱点におけるレーザービーム径やパルス幅、レーザー光強度など様々なレーザー光条件での LAES 信号のエネルギー分散角分布を計算し、信号強度差の検出に最適な実験条件を精査した。

1-2. 波長板制御システムの構築

電動ステージに設置した $\lambda/4$ 板の光学軸を自動制御するプログラムを作成し、その動作確

認を実施した。また、光学軸の角度情報を個々の散乱電子信号に紐づけするために、角度情報を遅延時間信号に変換し、散乱電子信号とともに信号取込ボードへと入力する計測システムを構築し、その動作を確認した。さらに、偏光状態を精密に規定して LAES 過程を観測するために、偏光状態計測システムを構築した。偏光計測の結果、最も円偏光に近い偏光状態において、右回り円偏光と左回り円偏光との楕円率の違いは計測限界以下であることが判明し、遅延時間測定誤差は 30 zs 以下に抑えられることを示した。

1-3. 高感度 LAES 観測装置の開発

角度分解飛行時間型電子分析器で得られる二次元検出位置 (x, y) と飛行時間 (t) からなるデータセットから、二次元散乱角 (θ, φ) と散乱電子の運動エネルギー E_f を決定する校正方法を確立した。校正の結果、LAES 観測装置全体のエネルギー分解能は <0.3 eV であり、散乱角 $2^\circ < \theta < 12^\circ$ の範囲で角度校正できていることを確認した。

1-4. 関連研究の進展

超短パルスレーザー場中においてヘリウム液滴中の光電子が LAES 多重散乱を起こして加速されていく機構を解明するための数値シミュレーションを実施し、オーストリアの研究グループの実験結果を再現することに成功した。

また、単一サイクル THz 波によって誘起される LAES 過程の初観測に成功し、単一サイクル光パルスの超広帯域性に起因する連続的なエネルギースペクトルの出現や上方下方散乱強度の非対称性を検証した。

レーザーアシステッド(e, 2e)過程を散乱電子と放出電子の同時計測によって初めて観測し、原子軌道の光ドレスト効果の出現を確認した。

高感度の捕捉イオン電子回折観測装置を開発し、イオントラップに捕捉された CCl_3^+ イオンに電子線を照射することによって、 CCl_3^+ イオンの電子回折像の測定に成功した。

共鳴散乱過程をポンプ-プローブ計測によって実時間計測する手法を考案し、数値シミュレーションによって実現可能性を検証した。

(2) 詳細

2-1. 円偏光 LAES 信号の数値シミュレーション

Wigner 遅延時間を計測するためには、右回り円偏光による LAES 信号と左回り円偏光による LAES 信号との間のわずかな強度差 (ΔI_{RL}) を測定しなければならないため、長時間の積算が必要となる。そこで、信号強度の差が現れやすい実験条件を前もって検討するために、LAES 信号の数値シミュレーションを用いて、散乱点におけるレーザービーム径やパルス幅、レーザー光強度など様々なレーザー光条件での LAES 信号のエネルギー分散散乱角度分布を計算し、Wigner 遅延時間測定に最適な実験条件を決定した。

最適条件における LAES 信号は図 1(a)に示すような散乱角 6.0° 付近に極大をもつ散乱角度分布となっ

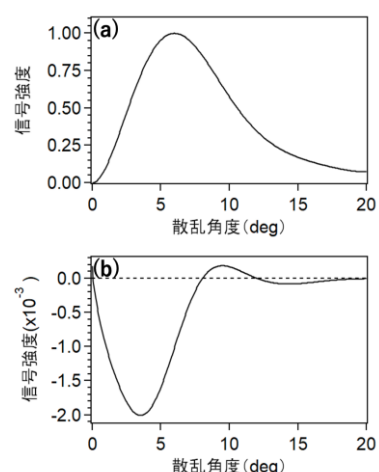


図 1. 散乱角度分布の計算結果. 信号強度は LAES 信号の極大値で規格化.

た。図 1(b)は ΔI_{RL} の角度分布を示す。 ΔI_{RL} は最大で LAES 信号の極大値の 0.2%程度であることが確認できる。Wigner 遅延時間は ΔI_{RL} から求められるため、LAES 信号を誤差 0.2%程度で計測できれば Wigner 遅延時間の測定が可能となることが示された。

2-2. 波長板制御システムの構築

本研究課題では、右回り円偏光と左回り円偏光との信号強度の差を精密に計測するために、30 秒毎に円偏光の向きを交互に変えながら、散乱電子信号の長時間積算を実施する。真のゼロ次 $\lambda/4$ 板を電動回転ステージ(Thorlabs 社製 DDR25/M)に設置し、LabVIEW 上で電動回転ステージを制御するプログラムを開発し、その動作確認を実施した。また、光学軸の角度情報を個々の散乱電子信号に紐づけするために、角度情報を遅延時間信号に変換し、散乱電子信号とともに信号取込ボードへと入力する計測システムを組み上げ、動作を確認した。

偏光状態を精密に規定して LAES 過程を観測するために、偏光状態計測システムを構築した。構築した偏光計測システムでは、レーザーシステムの出光を消光比 $10^5 : 1$ のグラン-レーザー偏光子で高精度の直線偏光とした後、真のゼロ次 $\lambda/4$ 板で円偏光状態に変換する。得られた光パルスを偏光計測するために第二のグラン-レーザー偏光子(消光比 $10^5 : 1$)を設置し、偏光子の角度を回転させて透過光強度をパワーメーターで測定した。

最も円偏光に近い偏光状態での偏光計測の結果を図 2 に示す。最も円偏光に近い偏光状態において、長軸成分と短軸成分の強度の違いは 4%程度であり、右回り円偏光と左回り円偏光との楕円偏光率の違いは計測限界($\pm 1 \text{ mW}$)以下であることが判明し、LAES 信号の数値シミュレーションによって遅延時間測定の誤差は散乱角度 6° において 30 zs 以下に抑えられることが示された。さらに、上方散乱と下方散乱の非対称性を抽出する解析方法を導入することによって、楕円偏光率に起因する遅延時間測定の誤差を 0.03 zs 以下に抑制できることが判明した。

2-3. 高感度 LAES 観測装置の開発

以前から開発を進めてきた角度分解飛行時間型電子分析器を備えた高感度 LAES 観測装置¹⁾の較正方法を確立した。

はじめに、様々な入射電子エネルギーで弾性散乱測定を実施し、図 3 のように各検出位置において飛行時間(t)と散乱電子の運動エネルギー E_t との関係を決する。また、弾性散乱電子を用いてマスクパターンの影絵(図 4)を測定することによって二次元検出位置(x ,

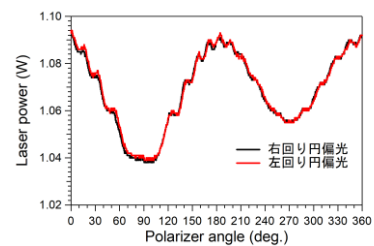


図 2. 透過光強度の偏光子角度依存性. 黒線:右回り円偏光, 赤線:左回り円偏光.

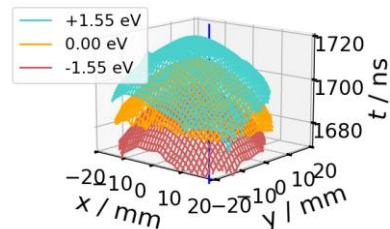


図 3. (x, y, t)と E_t との関係. 青線、黄線、赤線はそれぞれ $E_t = 1000 + 1.55 \text{ eV}$, 1000 eV , $1000 - 1.55 \text{ eV}$ の結果を表す.

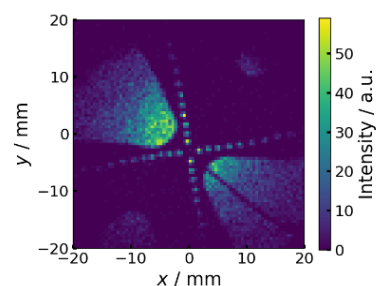


図 4. マスクパターンの影絵.

y)と E_f から二次元散乱角 (θ, φ) へ変換した。この較正の結果、LAES 観測装置全体のエネルギー分解能は <0.3 eV であり、散乱角 $2^\circ < \theta < 12^\circ$ の範囲で問題なく角度校正できていることを確認した。

高感度 LAES 観測装置の散乱点に金ワイヤーを設置し、電子線によるワイヤーの影絵と近赤外レーザー光によるワイヤーの影絵を測定することによって、電子線とレーザー光の散乱点での空間的に重ね合わせを確保した。さらに、電子線パルスとレーザーパルスとの遅延時間を変化させて、電子線によるワイヤーの影絵の変化を測定した。この変化の遅延時間依存性から電子線パルスとレーザーパルスとの時間的な重なりを確保することができた。これらの成果によって、zepto秒の散乱遅延時間を計測するための予備実験が全て完了した。

2.4. その他の関連成果

2.4-1. ヘリウム液滴中の LAES シミュレーション

Wigner 遅延時間測定の将来的な凝縮相への展開を目指して、グラーツ工科大(オーストリア)の M. Koch らのグループ、および、ウィーン工科大(オーストリア)の M. Kitzler-Zeiler と超流動ヘリウム液滴中の LAES 過程に関する共同研究を開始した。

超短パルスレーザー場中においてヘリウム液滴中の光電子が LAES 多重散乱によって加速されていく機構を解明するための数値計算プログラムを開発した。開発したプログラムではモンテカルロ法をもとにして、 10^7 個の電子トラジェクトリーを計算した。ADK 理論によるイオン化確率と Kroll-Watson 理論による LAES 過程の微分散乱断面積を利用することによって、レーザー場中で光電子が放出され、LAES 過程によってその運動エネルギーが増加していく様子を時々刻々計算することに成功した。図 5 にヘリウム液滴内の In 原子からの光電子スペクトルの実験値(赤丸印)と計算値(青実線)を示す。実験で得られた高エネルギー光電子が良く再現できていることが確認され、これらの高エネルギー光電子がヘリウム原子との LAES 過程によって生成していることが示された。この成果は、ヘリウム液滴中の LAES 過程の初観測として論文発表された²⁾。

さらに、フェムト秒レーザーパルスの照射時間内での光電子のトラジェクトリー解析を進め、光電子が各 LAES イベントによってエネルギーの増減を繰り返して最終的なエネルギーに達していく様子を解明した。これらの数値シミュレーションによって解明されたヘリウム液滴内の LAES 過程の時間発展は、オーストリアの研究グループの実験結果と合わせて論文発表された³⁾。

2.4-2. THz 波アシステッド電子散乱過程の初観測

単一サイクル THz 波によって誘起される LAES 過程を世界で初めて観測した⁴⁾。観測した THz 波アシステッ

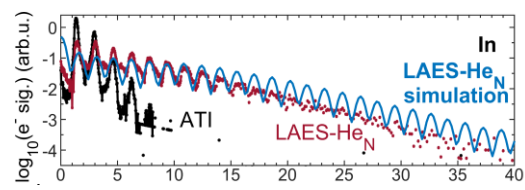


図 5. ヘリウム液滴内の In 原子からの光電子スペクトル。赤丸印:実験値, 青実線:シミュレーション結果, 黒丸印:孤立 In 原子からの光電子スペクトル(実験値)。

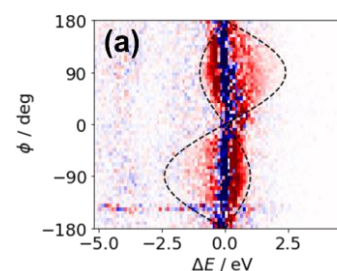


図 6. THz 波アシステッド電子散乱信号。横軸は散乱電子のエネルギー変化量, 縦軸は方位散乱角を示す。青色は THz 波照射による信号強度の減少, 赤色は信号強度の増加を示す。

ド電子散乱信号を図 6 に示す。単一サイクル光パルスの超広帯域性に起因して連続的なエネルギースペクトルが現れるとともに、上方散乱信号($0^\circ < \varphi < 180^\circ$)と下方散乱($-100^\circ < \varphi < 0^\circ$)で散乱信号強度の非対称性を観測した。これらの結果は、超広帯域レーザーパルスによって誘起される LAES 過程において理論的に予想されていた特徴的な現象が実際に現れることを示している。

2-4-3. レーザーアシステッド(e, 2e)過程の初観測

レーザーアシステッド(e, 2e)過程を散乱電子と放出電子の同時計測によって初めて観測した⁵⁾。図 7 に示すように散乱電子と放出電子のエネルギー和スペクトルの 985.4 eV の場所に一光子増加のレーザーアシステッド(e, 2e)信号が現れている。得られた信号強度は、原子軌道の光ドレスト効果を考慮しない数値シミュレーションより二倍程度強く、強レーザー場によって原子軌道が歪められている効果が表れていると考えられる。

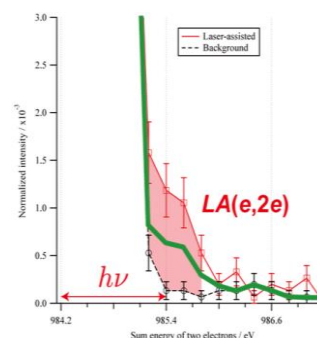


図 7. 散乱電子と放出電子のエネルギー和スペクトル。黒:レーザー光無し, 赤:レーザー光有り, 緑線:数値シミュレーション。

2-4-4. 分子イオンに対する捕捉イオン電子回折法の成功

中性孤立分子の幾何学的構造は電子回折法によって精密に測定されてきたが、分子イオンに対する電子回折法はこれまで実現されておらず、分子イオンの構造を直接的に測定できる一般的な手法はこれまで存在していなかった。巨大なクラスターイオンをイオントラップに捕捉して、電子線照射によって電子回折像を撮影する捕捉イオン電子回折法はこれまでに実現されていたが、散乱断面積が小さい分子イオンに対して捕捉イオン電子回折法が適用されることはなかった。そこで、高感度の捕捉イオン電子回折観測装置を開発し、イオントラップに捕捉された CCl_3^+ イオンに電子線を照射することによって、 CCl_3^+ イオンの電子回折像の測定に成功した⁶⁾。本成果は、分子イオンの電子回折像測定に世界で初めて成功したものであり、分子イオンの構造測定への道を切り拓くものである。

2-4-5. 共鳴散乱過程の数値シミュレーション

LAES 過程を利用することによって、共鳴散乱過程をポンプ-プローブ法で実時間計測する手法を考案した。ポンプ-プローブ信号の数値シミュレーションの結果、衝突誘起の超高速過程のフェムト秒実時間測定が十分に可能であることが示された。

3. 今後の展開

現時点で、当初の目標である電子エネルギーシェアリング干渉法による Wigner 遅延時間測定の一歩手前まで到達しており、今後 1 年以内にzeptosecond領域の散乱遅延時間測定を実現し、論文発表したいと考えている。電子エネルギーシェアリング干渉法は、定常状態描像で捉えられてきた散乱問題に対して、時間という概念を頭わにもたらず実験手法であり、今後 5 年程度で非弾性散乱過程における電子相関の遅延時間への影響や共鳴散乱過程における準安定状態の寿命計測等へと展開していき、時間依存の衝突物理学を開拓していく。

当初計画では想定されていなかった展開として、(1) 螺旋運動電子線のキラル分子による散乱

過程における不斉効果の研究, (2) 円偏光場中の赤外円偏光場電子衝突による模擬星間氷でのアミノ酸不斉合成, (3) 超高感度捕捉イオン電子回折装置の開発, が挙げられる。項目(1)の研究は電子エネルギーシェアリング干渉法と同様の実験によって実現が可能であり、今後数年程度での成果が期待される。項目(2)の研究については、既に都立大での競争的資金(2023-2025年度・研究費総額 ¥30,000,000)の獲得に成功しており、予想通りの成果を挙げることができれば、生命のホモキラリティーの謎を解明できる可能性がある。項目(3)については、散乱電子の高感度測定を追求していった果てに生まれた研究展開であり、質量選別されたイオン分子種の精密構造測定というこれまでに不可能であった新たな研究展開に繋がるものである。

4. 自己評価

2021年に都立大理学部化学科で起こった火災事故の影響によって、都立大への実験装置移設が1年間延期されたことは、本研究課題の目標達成において極めて大きな障害となった。その結果、現時点で電子エネルギーシェアリング干渉法による Wigner 遅延時間測定には至っていないという事実があり、本研究課題の成果に対する自己評価としては、低い評価を付けざるを得ないと考えている。しかし、予備実験や数値シミュレーションは順調に進んでおり、今後1年以内には当初の目標は達成できると考えている。また、研究期間内に開始した新たな研究展開であるヘリウム液滴中でのLAES過程の研究は、研究期間内で論文を2報発表しており、時間分解計測などの更なる展開も進行中である。さらに、キラル分子による散乱素過程の研究や模擬星間氷でのアミノ酸不斉合成の研究、超高感度捕捉イオン電子回折装置の開発など、今後十年、二十年かけて取り組んで行くべき新たな研究展開の方針も生まれ、自分自身としては極めて実り多い研究期間であったと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 6件

1. “Angle-resolved time-of-flight electron spectrometer designed for femtosecond laser-assisted electron scattering and diffraction,” M. Ishikawa, K. Ishida, R. Kanya, K. Yamanouchi, <i>Instruments</i> 7 , 4-1-15 (2023).
2. “Observation of laser-assisted electron scattering in superfluid helium”, L. Treiber, B. Thaler, P. Heim, M. Stadlhofer, R. Kanya, M. Kitzler-Zeiler, M. Koch, <i>Nature Communications</i> 12 , 4204-1-7 (2021).
3. “Observation of laser-assisted electron-impact ionization in ultrashort intense laser fields”, T. Hiroi, Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, <i>Physical Review A</i> 104 , 062812-1-10 (2021).

(2)特許出願

研究期間全出願件数： 0 件(特許公開前のものも含む)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)
該当なし。