

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 22 年 5 月 13 日現在

研究種目：若手研究 (A)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19684021
 研究課題名 (和文)
 高強度 X 線レーザー照射によるクラスタープラズマの内殻電離ダイナミクス
 研究課題名 (英文) Innershell ionization dynamics in a high-intensity x-ray laser and cluster interaction
 研究代表者
 難波 慎一 (NAMBA SHINICHI)
 広島大学・大学院工学科・助教
 研究者番号：00343294

研究成果の概要 (和文)：

高強度 X 線レーザー (波長：13.9 nm、光子エネルギー：89.2 eV、集光強度： 1×10^{10} W/cm²) をキセノンクラスターに照射し、内殻電子の光電離過程を解明することを行った。相互作用により発生するイオンと電子を計測することにより、高強度 X 線にさらされた物質では、これまでに見えない物理現象が出現することを世界で初めて突き止め、さらにそのメカニズムを解明した。本成果は、X 線を用いた非線形光学現象の解明や新しい物性診断技術法の開発へ応用できると期待されている。

研究成果の概要 (英文)：

The interaction of Xe clusters with a soft x-ray laser pulse having a wavelength of 13.9 nm and an intensity of up to 2×10^{10} W/cm² was investigated. The corresponding laser photon energy was sufficiently high to photoionize Xe 4*d* inner-shell electrons. It was found that Xe³⁺ ions became the dominant final ionic product. Possible mechanisms responsible for the enhancement of the double Auger transition probability in x-ray laser and cluster interaction are clarified.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	10,900,000	3,270,000	14,170,000
2008年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
総計	17,800,000	5,340,000	23,140,000

研究分野：プラズマ物理

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ基礎

キーワード：X 線レーザー、クラスター、内殻電離、非線形光学現象

1. 研究開始当初の背景

究極のレーザーとも呼ばれる "X 線レーザー" は、物理・化学をはじめ、物質・材料科学

や生命科学、医学などに革新的研究手段を提供するものとして大きな期待が寄せられてきた。申請者はこれまでに様々な手法によるプラズマ励起 X 線レーザー開発に従事し、ようやく最近になって X 線レーザーを利用できるまでその性能を高めることに成功した。この X 線レーザーの最大の特徴は、X 線領域の汎用光源である放射光と比較して実に 10^6 倍と格段に高い強度を有している点にある。それ故放射光では実現できない X 線領域での物質との非線形光学効果などが出現する可能性があり、X 線レーザーが切り開く新しい物性研究が今始まろうとしている。

申請者はこれまで開発を進めてきた X 線レーザー(波長:13.9nm, 強度: $\sim 1 \times 10^{11}$ W/cm²)をキセノン(Xe)クラスターに照射し、その相互作用の解明を行ってきた。この実験が非常にユニークであると認められた点は、光子エネルギーが Xe 内殻電離を誘起するのに十分高く、且つ、光電離断面積が非常に大きいことにある。そのため、電離が最外殻電子から起こるのではなく、内殻電子の電離から始まるという、“内殻電離誘起プラズマ”の発生が可能となる。

これまでの研究成果として、X 線レーザー・Xe クラスター相互作用で発生する内殻電離状態(4d 電子空孔)の崩壊過程が放射光での同様の実験結果とは大きく異なることを明らかにしてきた。具体的には、X 線レーザーを用いた場合、3 価イオンが生成される”2 重オージェ崩壊過程”(同時、あるいは、逐次的に 2 つのオージェ電子が放出される過程)が支配的であることを明らかにした。さらに、この 2 重オージェ崩壊確率はクラスターサイズ、及び、X 線レーザー強度に大きく依存することも判明した。このことは、高強度 X 線にさらされたクラスター中で何らかの非線形光学効果や高密度プラズマに起因する電子エネルギー準位構造の変化などが生じている可能性を示唆しているが、測定はイオン飛行時間分解装置のみを用いており、その原因の特定には至っていない。

2. 研究の目的

本研究課題では、高強度 X 線レーザー・Xe クラスター相互作用に伴う”内殻電離誘起プラズマ”という特異な環境下で、何故 2 重オージェ遷移による内殻電子崩壊確率が増大するのか、という内殻電離ダイナミクスを明らかにすることを目的とする。具体的には、内殻電離過程、及び、その崩壊過程に大きな影響を及ぼす可能性がある以下の 3 つの現象に着目し、どの過程が支配的であるかを特定することにより内殻電離プラズマにおける 2 重オージェ崩壊過程の増大メカニズム解明を試みる。

(1) X 線レーザー照射により生成されるクラスタープラズマは温度が数 10eV であるのに対し、密度は固体程度(10^{22} cm⁻³)と非常に高い(超強結合プラズマ)。この高密度に起因する遮蔽効果により Xe³⁺イオンの電離閾値が低下すると、Xe 4d⁻¹準位から Xe³⁺イオンへ崩壊できる状態数(崩壊ルート)が増えることになり、実効的に 2 重オージェ崩壊確率が上昇する。

(2) X 線レーザーの光子エネルギー 89.2eV は、内殻電離サテライト準位への励起エネルギー(86eV 付近に分布)とかなり近い。最近の放射光実験によりこのサテライト準位から Xe³⁺イオンへ崩壊する遷移確率が大きいことが判明している。従って、もし X 線レーザーでサテライト準位へ選択的に共鳴光励起されれば、Xe³⁺イオンが支配的であるという実験結果の説明が可能となる。

(3) クラスター内で放出された電子はフォノンとの相互作用により数ピコ秒でエネルギー緩和する。従って、クーロン場の下クラスター内を動くこの低速電子は別の原子に帰属する電子とも相互作用することになる。そもそも 2 重オージェ過程は電子-電子相関に起因すると考えられているため、クラスターという環境下で束縛電子はより強く、長時間電子相関を受けることになる。その結果として 2 重オージェの遷移確率が高くなる。

3. 研究の方法

本研究は日本原子力研究開発機構・光子科学センターにて開発を長年進めてきた X 線レーザー発生装置を用いて実験を行う。そのため、一部の Xe クラスター生成実験、及び、その特性評価を除いては、原子力機構にて実験を行った。以下に、具体的な実験手順・内容について述べる。

(1) シドニー大学と国際共同研究にて開発を進めてきた超音速クラスタービーム源の高性能化をまず広島大学にて行った。具体的には、これまで使用してきた電磁バルブを高背圧でも動作でき、さらに高速応答可能なものに変更することで、より幅広い大きさのキセノンクラスターを発生させた。経験式から評価されるクラスターサイズは数個から 10^6 atoms /cluster であった。また、シーディングと呼ばれるヘリウムでキセノンを希釈する方法を用いることで、さらに大きなクラスターを発生させることも試みた。一方、クラスタービームの特性評価(ガスの時間的空間的密度分布)は、高速イオンゲージを用いて計測した。

(2) コヒーレント X 線レーザーは高強度ピコ秒ガラスレーザーを銀スラブターゲットに照射して発生する、いわゆるプラズマ励起方式を採用しており、代表的な特性としては波長 13.9 nm (光子エネルギー: 89.2 eV)、パルス幅 ~ 8 ps、エネルギー < 500 nJ である。なお、発振はシーディング部とアンプ部プラズマ別に発生させるダブルターゲット方式であり、これによりフルコヒーレンスを実現している。このレーザーを Mo/Si 多層膜球面鏡で数ミクロン程度まで集光し(強度: $\sim 1 \times 10^{11}$ W/cm²)、Xe クラスタに照射した。プラズマによる背景光の除去には、ジルコニウムフィルタを用いた。一方、ショットごとのレーザーのビーム形状、及び、照射エネルギーはクラスタービームとの相互作用領域を透過してきた X 線レーザーを軟 X 線 CCD カメラで直接検出することにより決定した。

(3) 原子力機構側担当者により、X 線レーザーの高繰り返し化を目指したスラブアンプ式のガラスレーザーの開発が行われた。これにより、従来 1 ショット/15 分とかなり繰り返しが悪かった X 線レーザーを 0.1 Hz まで高めることができ、微弱信号である電子計測データの積算が可能となった。

(4) 上述の高繰り返し化レーザーを用いる際には、真空容器内の残留ガス圧が問題になる。その対策として、従来用いていた真空容器をより大型の超高真空容器へと変更した。さらに、真空度を上げるためにターボ分子ポンプの増設を行った。到達真空度は電子計測に十分な 10^{-6} Pa 程度である。

(5) イオン計測には飛行時間型質量分析器 (TOF-MS) を採用し、発生するキセノンのイオン価数、クラスター形状、及び、運動エネルギーの計測を行った。一方、電子計測には単純な飛行時間分解型の電子エネルギー分解装置を用い、エネルギーの分布関数を評価した。ただし、イオン計測と異なり、電子の場合には引き出し電極を使えないため、検出効率が極めて悪いという欠点がある。そのため、MCP のサイズを従来用いて来た 18mm 径から 42mm 径のものに変更し、大幅な検出効率の改善を図った。

4. 研究成果

(1) クラスタ源・計測系の動作確認、及び、X 線レーザーとの相互作用の比較という意味で、超短パルス高強度チタンサファイアレーザー(波長 800 nm, パルス幅 60 fs, 10 Hz, 集光強度 10^{15} W/cm²)をキセノンクラスターターゲットに照射する実験をまず行った。その結果、Xe¹²⁺イオン以上の多価

イオンが発生していることが判明した。さらに、その時のエネルギーは 10 keV 以上にも達しており、クラスターのクーロン爆発がはっきりと観測できた。以上のことから、クラスター源と検出器である飛行時間分析器が良好に動作することが確認できた。

(2) 今回新たに開発したキセノンクラスタービーム源を用いることにより、これまで以上に大きなクラスターを発生させて、高強度軟 X 線レーザーとの相互作用実験を行った。また、孤立系である単一キセノン原子に対応するデータも比較のために取得した。その結果、クラスターサイズとともに Xe³⁺イオンの発生効率が大幅に上昇することが判明し、これまで得られていた結果を支持するデータがより明確に得られた。このことは前述のように、相互作用により Xe クラスタ内ではダブルオージェ崩壊過程に伴う Xe 4d¹内殻電離状態から 3 価イオンが発生する脱励起の遷移確率が高くなることを意味する。

(3) X 線レーザー・クラスター相互作用をシミュレーションするプログラムを開発し、発生するイオンの見積もりを行った。その結果、電子衝突過程や荷電交換反応を考慮しても、実験で得られる結果をうまく再現することができず、ダブルオージェ崩壊過程の確率が増大することが数値計算からも示された。

(4) 発生するイオン種のクラスターサイズ、及び、レーザー強度依存性を実験的に詳細に調べたところ、ダブルオージェ遷移確率の増大メカニズムの候補としては、研究目的で掲げた理由の(1)が最も有力であると判断した。つまり、高強度 X 線により多数の原子の中の内殻電子が同時に光電離されて強結合プラズマが発生し、その結果として、高密度効果による電子エネルギー構造の変化が生じる、というものである。

(5) これを支持するデータを得るために、電子飛行時間 (TOF) 計測により電子のエネルギー分布関数を決定した。TOF データから電子エネルギー分布関数を評価した結果、光電子やオージェ電子に付随する鋭いスペクトルピークは観測されず、低エネルギー側では 5 eV 程度の Maxwell 分布に近いようなエネルギー分布であることが判明した。このことは、低温高密度である強結合プラズマが発生していることを意味しており、正に上記(3)で述べた仮定が正しいことが判明した。

(5) さらに、電子エネルギー分布関数を詳細に調べると 20~55 eV 付近までは比較的平坦な分布となるが、60 eV を過ぎると急激に分布は減少することも明らかとなった。この分布関数の平坦度と 60 eV 付近のカットオフはクラスターサイズが大きいほど顕著となったが、このような現象は原子過程の観点からは説明することはできない。特に、60eV もの電子が存在することは何らかの加熱機構が働いていることを示唆しているが、残念ながら本研究課題の範囲内ではその原因を特定することはできなかったため、今後の課題としたい。

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 15 件、)

- ① “Spatially-resolved spectroscopic study of arcjet helium plasmas expanding through a rectangular shaped converging-diverging nozzle”, S. Namba, N. Yashio, K. Kozue, K. Nakamura, T. Endo, K. Takiyama and K. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.* **48**, 116005 (2009). (査読有り)
- ② “Intensity and polarization of laser-induced fluorescence due to forbidden excitation of He atoms immersed in an electric field in plasmas”, K. Takiyama, S. Furukawa, S. Namba, T. Oda, and K. Kawasaki, *Phys. Rev. E*, **79**, 026402 (2009). (査読有り)
- ③ “Transition from Thermal to Recombining Plasma in a Free Expanding Arc Jet Plasma Generator”, S. Namba, K. Nakamura, K. Yashio, S. Furukawa, K. Takiyama, K. Sato, *J. Plasma and Fusion Res. Series*, **8**, pp. 1348-1352 (2009). (査読有り)
- ④ “Effect of Disalignment due to Electron Collision on Laser-Induced Fluorescence Polarization Spectroscopy for Measuring Electric Field in Plasmas”, S. Furukawa, S. Namba, K. Takiyama, T. Oda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, pp. 8570-8575 (2008). (査読有り)
- ⑤ “軟X線レーザー照射によるXeクラスターの内殻電離過程”, 難波慎一, *プラズマ核融合学会誌*, Vol. **84**, No. 7, pp. 439-442 (2008). (査読有り)

- ⑥ “Characterization of out-of-band radiation and plasma parameters in laser-produced Sn plasmas for extreme ultraviolet lithography light sources”, S. Namba, S. Fujioka, H. Sakaguchi, H. Nishimura, Y. Yasuda, K. Nagai, N. Miyana, Y. Izawa, K. Mima, K. Sato, K. Takiyama, *J. Appl. Phys.*, **104**, 013305 (2008). (査読有り)
- ⑦ “Absolute evaluation of out-of-band radiation from laser-produced tin plasmas for extreme ultraviolet lithography”, H. Sakaguchi, S. Fujioka, S. Namba, H. Tanuma, H. Ohashi, S. Suda, M. Shimomura, Y. Nakai, Y. Kimura, Y. Yasuda, H. Nishimura, T. Norimatsu, A. Sunahara, K. Nishihara, N. Miyana, Y. Izawa, K. Mima, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 111503 (2008). (査読有り)
- ⑧ “Enhancement of Double Auger Decay Probability in Xenon Clusters Irradiated with a Soft-X-ray Laser pulse”, S. Namba, N. Hasegawa, M. Nishikino, T. Kawachi, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Tanaka, Y. Ochi, K. Takiyama and K. Nagashima, *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 043004 (2007). (査読有り)

[学会発表] (計 5 件)

- ① Spatially-resolved spectroscopic study of arcjet helium plasmas expanding through a rectangular shaped converging-diverging nozzle, S. Namba, et al., アメリカ物理学会プラズマ分科, 2009年11月, アメリカ・アトランタ
- ② S. Namba, 他, Transition from thermal to recombining plasma in a free expanding arc jet plasma generator, International Congress on Plasma Physics, 2008年9月8日~12日, 日本 福岡市
- ③ S. Namba, 他, Time-of-Flight Measurements of Ion and Electron from Xenon Clusters Irradiated with a Soft X-ray Laser Pulse, X-Ray Laser 2008, 2008年8月17日~22日, 英国 ベルファスト
- ④ S. Namba, 他, Photoionized Xeon Cluster Plasmas Generated by a Soft X-ray Laser Pulse,

5th International Conference on
Inertial Fusion Sciences and
Applications, 2007年9月9-14日,
Kobe, Japan

- ⑤ 難波慎一他, コヒーレント X 線レーザ
照射によるキセノクラスターの光
吸収・電離過程の解明,
日本原子力研究開発機構 第8回光量
子科学研究シンポジウム, 2007年6月
4-5日, 京都府木津川市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

難波 慎一 (NAMBA SHINICHI)
広島大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号 : 00343294

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し