

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23600006

研究課題名(和文)自由電子レーザー利用実験に向けた金属・半導体クラスター源の開発

研究課題名(英文)Development of Metal/Semiconductor Cluster Sources Dedicated for Free Electron Laser Experiments

研究代表者

永谷 清信(Nagaya, Kiyonobu)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：30273436

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円、(間接経費) 1,260,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、自由電子光源の利用技術開発、特に試料導入技術の開発を行った。試料導入装置として、超音速ジェットを用いた希ガス巨大クラスター源および、高融点元素クラスター源を開発した。高融点元素クラスター源としては、ナノ秒のパルス幅を持つ高強度YAGレーザーを用いるレーザーアブレーション型の装置および電磁パルスバルブを用いた高温液体ジェット装置(最大試料温度200度)を製作して、性能評価を進めた。パルスクラスター源を用いて、電子分光、ポンプ-プローブ計測、小角X線散乱など、FELから得られる高強度短波超パルス光を用いた物性評価技術の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：We have constructed pulsed beam sources for producing giant rare-gas cluster and metal/semiconductor clusters dedicated for free electron laser (FEL) experiments. For giant rare-gas cluster, we have adopted supersonic jet type cluster source which has specially designed expansion nozzle. For metal/semiconductor elements, laser ablation type cluster source and liquid jet type source have been developed. Laser ablation source consists of intense pulse YAG laser, rotating sample disk and pulsed gas jet valve, that can produce relatively small cluster of non-volatile elements. High temperature liquid jet source has been designed to produce droplet of high temperature (up to 200 oC) liquid by modifying solenoid valve source. We are testing performance of apparatus for the use of FEL experiments such as electron spectroscopy, pump-probe measurements, x-ray scattering experiment, etc.

研究分野：不規則系物理

科研費の分科・細目：量子ビーム

キーワード：自由電子レーザー クラスター

1. 研究開始当初の背景

近年の短波長領域の自由電子レーザー (FEL) の開発により、コヒーレント光と物質の相互作用についての新たな研究領域が拓かれた。光源の特徴である高強度、短パルス性、高い干渉性を活かして、原子・分子の多光子イオン化や、分子の超高速分光による反応ダイナミクスの解明、さらには単分子の X 線回折による構造決定といった研究が可能となると期待されている。

本研究で取り上げるクラスターは原子分子と凝縮系を橋渡しする系であり、サイズ依存性を詳細に検討することで、原子から凝縮系に至る物質と光の相互作用について包括的な理解が得られると期待される。特に、真空中に孤立したクラスターではエネルギー散逸の経路が限られており、放出される全ての粒子を観測する事で光吸収から緩和に至る反応経路を詳細に検討できると期待される。申請者のグループは EUV-FEL を利用するクラスター研究を既に開始しており、極紫外領域における原子・分子や希ガス・クラスターと FEL の相互作用に関する研究で成果を上げてきている。これまでの研究から、最も単純なクラスターである希ガスのクラスターでさえも、FEL との相互作用に際して単純な原子の集合としては理解できないことが明らかとなっている。即ち、FEL 照射による多数の光子の吸収によって電子・イオンプラズマ (ナノプラズマ) が生成し、その中で電子・イオン相関がクラスターのダイナミクスに強く影響する事が示唆されている。

しかしながらこれまでの自由電子レーザーを用いるクラスター研究は、主にサンプル調整の容易さから希ガス・クラスターに関する報告がほとんどであり、更に興味深い系である、非局在電子を有する金属クラスターや、共有結合による強い異方的構造を有する半導体クラスターなどについては手つかずの状態である。

2. 研究の目的

本研究では、自由電子光源の利用技術開発、特に試料導入技術の開発を目的とした。既存の希ガス・クラスター生成装置の改良を進めると共に、金属・半導体のクラスター研究を可能とするパルス・クラスター源を開発し、極紫外、X 線の自由電子レーザー (EUV-FEL, X-FEL) から得られるフェムト秒コヒーレントパルスを用いた実験を実施する。興味深い物質である金属や半導体のクラスターについては、試料の性質に合わせて、種々の試料導入方法を検討し、レーザーアブレーション型、液体ジェット型などの試料源の開発と試験を行う。いずれのクラスターにおいても、クラスターサイズ依存性や光強度依存性の計測、あるいは時分割計測を通して FEL とクラスターの相互作用を明らかにする。最終的には、融解に際して半導体・金属

転移が期待されるシリコンやカルコゲンのクラスターについて、ポンプ・プローブ計測を用いた時分割コヒーレント X 線回折を実現しうる実験技術及び装置の開発を目指す。近赤外レーザーによってクラスターの相転移を誘起し、XFEL で電子構造のスナップショットを取得することで、クラスターの相転移に伴うフェムト秒からピコ秒スケールでの構造や電子状態の変化の実験的な解明が期待される。

3. 研究の方法

研究は EUV-FEL や XFEL と既存の分子・クラスター源を用いた FEL 利用技術開発と、金属・半導体クラスター専用クラスター源の開発を平行して進めた。FEL は同波長帯域の既存光源とくらべて、高輝度・コヒーレント光・短パルスと言った特徴を持ち、その高度利用技術そのものを確立する必要がある。本研究では FEL を用いる物性解析技術として、分子や希ガス・クラスターを対象として電子分光技術、X 線散乱技術、ポンプ・プローブ計測技術などの開発を進めた。

一方で、興味深い物質として、光誘起構造変化が期待される液体シリコンや液体カルコゲンが挙げられる。これらの物質は常温で固体であり、このような高融点試料のクラスターあるいは液滴ビームを生成可能な試料源として、1. レーザーアブレーションを用いるクラスター源および 2. 高温液体ビームの製作を進めた。

4. 研究成果

日本で稼働を始めた FEL 施設である SCSS 試験加速器及び、SACLA で FEL 利用実験技術の開発を進めた。試料としては主に希ガス・クラスターと分子を用い、SCSS 試験加速器では光子エネルギーが 20eV 程度の極紫外 FEL、SACLA では 5keV 以上の光子エネルギーを持つ硬 X 線の FEL による物性解析技術と共に、これに供するための試料導入方法の検討を進めた。試験実験では主にパルス電磁バルブを用いた既存の希ガス・クラスター生成装置を利用した。

SCSS の極紫外レーザー実験では、主に FEL を用いる電子分光計測技術の開発とポンプ・プローブ技術の開発を進めた。顕著な成果としては、高強度の極紫外 FEL をネオンクラスターに照射することで、新規な電子緩和過程が誘起されることを見出した (論文 7, 9)。さらにネオンクラスターについてポンプ・プローブによる時分割計測を実施し、緩和過程のダイナミクスについても一定の知見を得ることに成功した (学会発表 10 等)。SACLA の X 線 FEL 利用実験では主に小角 X 線散乱実験技術と、これに供するナノ粒子生成技術の開発を進めた。SACLA で最大サイズ 10^8 原子程度のクラスターを生成して、小角 X 線散乱パターンを取得することに成功した。

難揮発性試料の導入装置として、レーザー

アブレーション（アブレーション装置）を用いたクラスター源と高温液体分子線源の製作を進めた。アブレーション装置では、高出力のYAGレーザーの基本波を固体の試料表面に照射し、生成した試料プラズマに希ガスジェットを吹き付けることで、高融点金属などでもクラスター生成が可能である。このためのYAGレーザーを整備するとともに、真空中でレーザー照射野に新しい試料表面を連続的に供給するための駆動装置を設計・製作して動作試験を進めている。これとは独立に、FEL利用実験を通して、SACLAからのXFELを用いたX線散乱による構造解析には、クラスターサイズとして $1\mu\text{m}$ 近くの巨大な粒子の生成が必要であることが明らかとなったため、巨大クラスター生成装置を開発した。希ガスクラスターについては、既存の電磁パルスバルブを用いる超音速ジェット型の装置を改良して直径数百nm程度の巨大クラスターを生成可能とするノズル形状などの改良を加え、SACLAでの小角X線散乱実験で評価を行った。さらに、この電磁パルス装置を改良して200度程度の液体を導入可能な高温液体装置の設計・製作して動作試験を進めた。

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10件）

“Doubly resonant three-photon double ionization of Ar atoms induced by an EUV free-electron laser”, E. V. Gryzlova, Ri Ma, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, K. Ueda, A. N. Grum-Grzhimailo, N. M. Kabachnik, S. I. Strakhova, A. Rouz’ee, A. Hundertmark, M. J. J. Vrakking, P. Johnsson, K. Nagaya, S. Yase, Y. Mizoguchi, M. Yao, M. Nagasono, K. Tono, T. Togashi, Y. Senba, H. Ohashi, M. Yabashi, and T. Ishikawa, Phys. Rev. A84 (2011) 063405. 査読有

“Charge and Energy Transfer in Ar core-Ne shell clusters irradiated by Free Electron Laser Pulses at 62 nm”, A. Sugishima, H. Iwayama, H. Murakami, K. Nagaya, M. Yao, H. Fukuzawa, X.-J. Liu, K. Motomura, K. Ueda, N. Saito, L. Foucar, A. Rudenko, M. Kurka, K.-U. Kühnel, J. Ullrich, A. Czasch, R. Doerner, R. Feifel, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Togashi, H. Kimura, and H. Ohashi, Phys. Rev. A 86 (2012) 033203. 査読有

“Deep inner-shell multiphoton absorption by intense x-ray free-electron laser pulses”, H. Fukuzawa, S.-K. Son, K.

Motomura, S. Mondal, K. Nagaya, S. Wada, X.-J. Liu, R. Feifel, T. Tachibana, Y. Ito, M. Kimura, T. Sakai, K. Matsunami, H. Hayashita, J. Kajikawa, P. Johnsson, M. Siano, E. Kukk, B. Rudek, B. Erk, L. Foucar, E. Robert, C. Miron, K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Katayama, T. Hatsui, T. Kameshima, M. Yabashi, M. Yao, R. Santra, and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 173005. 査読有

“Photoelectron Angular Distributions for Two-photon Ionization of Helium by Ultrashort Extreme Ultraviolet Free Electron Laser Pulses”, R. Ma, K. Motomura, K.L. Ishikawa, S. Mondal, H. Fukuzawa, A. Yamada, K. Ueda, K. Nagaya, S. Yase, Y. Mizoguchi, M. Yao, A. Rouz’ee, A. Hundertmark, M.J.J. Vrakking, P. Johnsson, M. Nagasono, K. Tono, T. Togashi, Y. Senba, H. Ohashi, M. Yabashi, and T. Ishikawa, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.46 (2013) 164018. 査読有

“Frustration of photoionization of Ar nanoplasma produced by extreme ultraviolet FEL pulses”, H Iwayama, K. Nagaya, M Yao, H Fukuzawa, X-J Liu, G Pruemper, K Ueda, K Motomura, K. Ueda, N Saito, A Rudenko, L Foucar, M Nagasono, A Higashiya, M Yabashi, T Ishikawa, H Ohashi and H Kimura. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.46 (2013) 164019. 査読有

“Photoelectron angular distributions for two-photon sequential double ionization of xenon by ultrashort extreme ultraviolet free electron laser pulses”, S Mondal, R Ma, K Motomura, H Fukuzawa, A Yamada, K. Nagaya, S Yase, Y Mizoguchi, M Yao, A Rouz’ee, A Hundertmark, M J J Vrakking, P Johnsson, M Nagasono, K Tono, T Togashi, Y Senba, H Ohashi, M Yabashi, T Ishikawa, I P Sazhina, S Fritzsche, N M Kabachnik and K Ueda, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.46 (2013) 164022. 査読有

“Unusual Under-threshold Ionization of Neon Clusters Studied by Ion Spectroscopy”, K. Nagaya, A. Sugishima, H. Iwayama, H. Murakami, M. Yao, H. Fukuzawa, X.-J. Liu, K. Motomura, K. Ueda, N. Saito, L. Foucar, A. Rudenko, M. Kurka, K.-U. Kühne, J. Ullrich, A. Czasch, R. Dörner, R. Feifel, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Togashi, H. Kimura, and H. Ohashi. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.46 (2013) 164023. 査読有

“Sequential multiphoton multiple ionization of atomic argon and xenon irradiated by x-ray free-electron laser pulses from SACLA”, K. Motomura, H. Fukuzawa, S-K. Son, S. Mondal, T. Tachibana, Y. Ito, M. Kimura, K. Nagaya, T. Sakai, K. Matsunami, S. Wada, H. Hayashita, J. Kajikawa, X-J. Liu, R. Feifel, P. Johnsson, M. Siano, E. Kukk, B. Rudek, B. Erk, L. Foucar, E. Robert, C. Miron, K. Tono, Y. Inubushi, T. Hatsui, M. Yabashi, M. Yao, R. Santra, K. Ueda, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.46 (2013) 164024. 査読有

“Crossover in the Photo-ionization Processes of Ne Clusters with Increasing EUV-FEL Intensity”, S. Yase, K. Nagaya, Y. Mizoguchi, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, Ri Ma, K. Ueda, N. Saito, M. Nagasono, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, and Y. Senba, Phys. Rev. A 88, 043203 (2013). 査読有

“Pulse delay effect in angular distribution of near-threshold EUV+IR two-photon ionization of Ne”, S. Mondal, H. Fukuzawa, K. Motomura, T. Tachibana, K. Nagaya, T. Sakai, K. Matsunami, S. Yase, M. Yao, S. Wada, H. Hayashita, N. Saito, C. Callegari, K. Prince, C. Miron, M. Nagasono, K. L. Ishikawa, A. K. Kazansky, N. M. Kabachnik and K. Ueda, Phys. Rev. A 89, 013415 (2014). 査読有

[学会発表](計14件)

会議名: International workshop DyNano2011 “Structure and Dynamics of Nano-objects using short wavelength radiation”
場所: Kyoto, Japan
発表日時: 3-7 Oct. 2011
発表題目: “Dynamics of multiple photoionization of rare-gas clusters caused by intense EUV-FEL pulses”
発表者氏名: K. Nagaya, Kyoto U.

会議名: JSPS-DFG Bilateral Seminar”
場所: Kyoto, Japan
発表日時: 10 Oct. 2011
発表題目: “Cluster experiments at SCSS: present status and perspective”
発表者氏名: K. Nagaya, Kyoto U.

会議名: Satellite workshop of 2nd Japanese-German Presidents’ Conference
場所: Kyoto, Japan
発表日時: 28 Mar. 2012

発表題目: Multiple ionization, electronic decay and charge migration in clusters
発表者氏名: K. Nagaya, Kyoto U.

会議名: 物理学会 秋季大会
場所: 富山大学
発表日時: 2011年9月24日
発表題目: 「EUV-FELによるクラスターの多重イオン化とダイナミクス」
発表者氏名: 永谷清信

会議名: 物理学会 秋季大会
場所: 横浜国立大
発表日時: 2012年9月18日-21日
発表題目: 「極紫外自由電子レーザー照射により誘起される希ガスクラスターの励起子モット転移II」
発表者氏名: 永谷清信、八尾誠、八瀬哲志、酒井司、松波健司、溝口悠里、福澤宏宣、本村幸治、立花哲也、Subhend Mondal、山田綾子、Ri Ma、上田潔、齋藤則生、Arnaud Rouzee、Axel Hundermark、Marc Vrakking、Per Johnsson、和田真一、Kevin Prince、Carlo Callegari、Catalin Miron、永園充、登野健介、富樫格、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳

会議名: 物理学会第68回年次大会
場所: 広島大学 東広島キャンパス
発表日時: 2013年3月26日-29日
発表題目: 「EUV-FEL光励起により誘起されるネオンクラスターでの resonant ICD とナノプラズマ形成」
発表者氏名: 永谷清信、八尾誠、松波健司、酒井司、福澤宏宣、本村幸治、立花哲也、Subhend Mondal、上田潔、和田真一、齋藤則生、Kevin Prince、Carlo Callegari、Catalin Miron、永園充

会議名: 第26回放射光学会年会・放射光化学合同シンポジウム、
場所: 名古屋大学 (名古屋千種区不老町)
発表日時: 2013年1月12日-14日
発表題目: 「EUV-FEL照射によるXe クラスターの多価イオン化とナノプラズマ生成のダイナミクス」
発表者氏名: 永谷清信、酒井司、松波健司、八瀬哲志、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、上田潔、和田真一、林下弘憲、齋藤則生、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳

会議名: XXVIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions
場所: Lanzhou, China
発表日時: 24-30 July, 2013
発表題目: “Nano-plasma Formation and Thermal Electron Emission of Neon Clusters Induced by Extreme Ultraviolet Free

Electron Laser Pulses”

発表者氏名：K. Nagaya, S. Yase, Y. Mizoguchi, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, R. Ma, K. Ueda, N. Saito, A. Rouzee, A. Hundertmark, M. Vrakking, P. Johnsson, M. Nagasono, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, Y. Senba

会議名：XXVIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions

場所：Lanzhou, China

発表日時：24-30 July, 2013

発表題目：“Electron Spectroscopic Study of Multiple Photoionization Processes of Xe Clusters by Intense EUV-FEL Pulses”

発表者氏名：K. Nagaya, K. Matsunami, T. Sakai, S. Yase, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, K. Ueda, S. Wada, H. Hayashita, N. Saito, M. Nagasono, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, Y. Senba

会議名：VI International Symposium on Atomic Cluster Collisions (ISACC 2013)

場所：Wuhan-Chongqing, China

発表日時：18-23 July, 2013

発表題目：“Dynamics of multiple photoionization of rare-gas clusters caused by intense EUV-FEL pulses”

発表者氏名：K. Nagaya

会議名：38th International conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics

場所：Hefei, China

発表日時：12-19 July, 2013

発表題目：“EUV-pump - NIR-probe experiments of xenon cluster”

発表者氏名：T. Sakai, K. Matsunami, K. Nagaya, S. Yase, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, K. Ueda, S. Wada, H. Hayashita, N. Saito, M. Nagasono

会議名：第27回放射光学会年会・放射光化学合同シンポジウム、

場所：広島国際会議場（広島県広島市）

発表日時：2014年1月11日

発表題目：「EUV-FEL パルス照射によるネオン・クラスターのナノプラズマ化とダイナミクス計測」

発表者氏名：永谷清信、西山俊幸、八尾誠、松波健司、酒井司、福澤宏宣、本村幸治、立花哲也、上田潔、和田真一、富樫格

会議名：軟X線光化学研究会、

場所：SPring8 上坪講堂（兵庫県佐用郡）

発表日時：2014年2月1日

発表題目：「SCSS 試験加速器による希ガスクラスターからのナノプラズマ生成とダイナ

ミクス」

発表者氏名：永谷清信、酒井司、西山俊幸、松波健司、八瀬哲志、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、立花哲也、上田潔、和田真一、林下弘憲、齋藤則生、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳

会議名：SPring-8 利用ワークショップ
--SPring-8 とユーザーのさらなる連携を目指して

場所：SPring8 上坪講堂（兵庫県佐用郡）

発表日時：2014年2月1日

発表題目：「SACLA のフェムト秒 XFEL パルスによる原子・分子・クラスターの多光子吸収ダイナミクス」

発表者氏名：永谷清信

6. 研究組織

(1) 研究代表者

永谷 清信 (NAGAYA Kiyonobu)

京都大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：30273436