

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 2 月 26 日現在

機関番号：13201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K17728

研究課題名(和文) 重元素多価イオンの帯域放射特性を応用したレーザー生成プラズマ光源のスペクトル制御

研究課題名(英文) Spectrum control of laser-produced plasma light sources applying the band emission characteristic of multiply charged high-Z ions

研究代表者

大橋 隼人(OHASHI, Hayato)

富山大学・教養教育院(五福)・講師

研究者番号：60596659

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では電子ビームエネルギーを制御することで生成可能なイオン価数の上限を制御できるイオン源「電子ビームイオントラップ」と大型ヘリカル装置を用いて、重元素多価イオンの発光スペクトルを測定することにより、プラズマ解析に有用な未知の原子データ(軟X線～極端紫外領域の遷移波長等)を実験的に取得した。(対象重元素：ビスマス、鉛、金、レニウム、ジルコニウム、ゲルマニウム、ガリウム)
軟X線～極端紫外領域の光源候補であるレーザー生成プラズマは照射条件によりその発光パターンが多様に変化するが、本研究ではダブルパルス法を用いることで、より最適な条件を見出す発光スペクトル制御が可能であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では複数の重元素について多くの未知の原子データやプラズマの最適発光条件を取得することに成功した。本成果はプラズマの解析に大きく貢献できるものであり、光源としての実用化に寄与するものである。また、同元素を工業利用する際にも基礎原子データとして役立つものである。一方、レーザー生成プラズマの発光スペクトル制御がダブルパルス法により可能なことが示され、調整可能なパラメーターが増えたことで、光源としてより効率的なプラズマ発光の最適条件を見出すことが可能となった。

研究成果の概要(英文)：In this study, we measured emission spectra of multiply charged high-Z ions using an ion source named an electron beam ion trap, which can control the maximum charge state of ions in the source by controlling the electron beam energy, and also the Large Helical Device to acquire useful unknown atomic data such as a transition wavelength in the soft x-ray region to extreme ultraviolet for the analysis of plasma emission. Target elements were bismuth, lead, gold, rhenium, zirconium, germanium and gallium.

The emission pattern of laser-produced plasma, which is a light source candidate in the soft x-ray to extreme ultraviolet region, changes in various ways depending on the irradiation conditions. We demonstrated the possibility of spectral control by using dual laser pulses to find more optimum conditions.

研究分野：多価イオン物理

キーワード：多価イオン レーザー生成プラズマ 光源 軟X線～極端紫外 電子ビームイオントラップ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

科学実験において高出力光源を必要とする手法は数多あり、その光源波長や出力、光源自体の利便性は様々である。しかし、軟 X 線～極端紫外(EUV)領域ほどの高エネルギー光子の波長で高出力の光源となると、シンクロトロン放射光や超短パルスレーザーの非線形波長変換による高次高調波があるが、これらは装置規模が大型であったり、高度なレーザー技術が必要となるため、広い意味での利用率は低く、大学や研究所の一研究室レベルで軟 X 線～EUV 領域の光源を所有することは困難な状況にある。この波長領域の高出力光源を小型化し利便性を上げることができれば、一研究室レベルで行える実験の幅が飛躍的に向上する。例えば、軟 X 線顕微鏡は水の窓領域の光を用いることで、生体分子を生かしたまま細胞の反応機構や病気の発生機構、タンパク質の構造異常等を解明することができるため、生命科学分野から大きな期待が寄せられている。しかし、シンクロトロン放射光を用いても 1 パルスあたりのエネルギーが小さいため、多重ショットを駆使して試料撮影を行っており、適切な高効率高出力かつ簡便な卓上型軟 X 線光源がないために大型装置を使わざるを得ず、研究時間と手法が極めて限定されてしまっているのが現状である。また、X 線吸収微細構造解析用光源等としての用途もあり、コンパクトな軟 X 線～EUV 領域の高出力光源の開発は、様々な分野の研究者に大きなブレイクスルーをもたらすことになる。

2. 研究の目的

重元素レーザー生成プラズマ(LPP)の帯域放射特性を原子物理学的に明らかにし、生成条件によりスペクトル制御可能な軟 X 線～EUV 領域用のコンパクトな高効率高出力光源を実現することで、今まで該当波長領域の光源として大型放射光施設等を必要としていた科学実験の利便性を、実験室レベルで飛躍的に向上させることを目的とする。レーザーから水の窓領域(波長 2.3～4.4 nm)の軟 X 線へのエネルギー変換効率が 0.1%以上となる光源を開発することが一目標である。また、この帯域放射はプラズマ中の重元素多価イオンの $n = 4 - n = 4$ 遷移によるものであるが、これらの系は相対論効果・電子相関の寄与が顕著に現れるため既存の計算モデルで再現することが難しい。本研究では光源候補である LPP の放射特性だけでなく、そのプラズマを構成する多価イオンの原子データを取得することで、計算モデルへフィードバックし、原子物理計算モデルの改良にも貢献する。

3. 研究の方法

(1) 電子ビームイオントラップを用いた重元素多価イオン分光

電子ビームイオントラップ(Electron Beam Ion Trap, EBIT)は電子ビームエネルギーを制御することで生成可能なイオン価数の上限を制御できるイオン源である。光源候補であるプラズマは複数の価数の多価イオンが混在するため、最適なプラズマからの発光を制御するためには各価数の多価イオンの原子データが重要となるが、重元素多価イオンの原子データは乏しいため、軟 X 線～EUV、可視領域の発光を複数の分光器で同時測定を行った。常温で固体の試料は、減圧下で昇華する錯体を用いるか、最大 1700 まで加温可能な高温セルによって蒸気圧を制御することにより EBIT へ導入した。

(2) 重元素レーザー生成プラズマ分光

重元素を標的としたレーザー生成プラズマの発光をレーザー照射条件(波長 1064 nm, パルス幅 150 ps の Nd:YAG レーザー)を変化させて分光器で測定することで、最適なプラズマ生成条件の調査を行った。

(3) 大型ヘリカル装置プラズマ分光

ジルコニウムを用いた磁場閉じ込めプラズマを生成し、電子温度が変化の中で発光スペクトルを測定することで、水の窓領域における最適な発光条件の調査を行った。

Flexible Atomic Code を用いた原子データ計算

重元素多価イオンの原子データは乏しいため、測定データは Flexible Atomic Code (FAC) を用いた遷移波長や遷移確率の計算により解析を行った。

4. 研究成果

(1) 電子ビームイオントラップを用いた重元素多価イオン分光()

ビスマス(原子番号 $Z = 83$), 鉛($Z = 82$)

生物細胞のフラッシュ写真撮影を行う水の窓領域(波長 2.3～4.4 nm)の光源候補元素

主量子数 n が同じ $n = 4 - n = 4$ 遷移に対応する数千の輝線スペクトルが限られた波長領域に集中する Unresolved Transition Array (UTA) が複数価数で 4 nm 付近に集中するため、複数価数が混在するプラズマからの発光としては効率的な発光が得られていると考えられる。本研究で用いた小型 EBIT では該当価数の高価数多価イオンは生成できないが、LPP はプラズマ生成から消失までの発光を考慮する必要があるため、レーザー生成プラズマを光源として利用する場合はプラズマ発生から消失までの発光の時間積分となるため、対象波長領域では狙っている価数の多価イオンの主量子数 n が同じ $n = 4 - n = 4$ 遷移に対応する UTA 放射だけでなく、より価数の低い多価イオンからの主量子数が異なる状態間の遷移に対応する発光の寄与も考慮しなければならない。FAC 計算によれば約 4 nm 付近に集中する $n = 4 - n = 4$ 遷移とは別の低価数イオン(ビ

スマス 16~32 価, 鉛 11~36 価)の発光を検証したところ, 4f-5g, 4f-6g および 5s-5p 遷移と同定できる発光が観測された。また, 最外殻電子が 4f および 5s 軌道の幾つかの価数において内殻励起状態の 4f-5g および 5s-5p 遷移も観測された。

一方, 基底状態の最外殻電子配置が $4f^{14}$ となるネオジム様イオンでは 4f-5g 遷移の発光が弱く観測されたためシミュレーション計算を行ったところ, プラズマ中のネオジム様イオンにおける占有率が第一励起状態の $4f^{13}5s$ 状態が 44%, 基底状態の $4f^{14}$ 状態が 1%となった。このため, イラスト線である 4f-5g 遷移が弱く観測されたと考えられる。この現象はポピュレーショントラップ(Population Trapping)と呼ばれ, プロメチウム様イオンにおいて基底状態の $4f^{14}5s$ 状態よりも第一励起状態の $4f^{13}5s^2$ 状態の方がプラズマ中で多く生成されるということが報告されているが, 本研究ではネオジム様イオンでも同様のポピュレーショントラップが生じていることが実験的に観測された。これらの結果は時間発展する LPP のシミュレーション計算を行う上で重要な情報である。

ゲルマニウム($Z = 32$), ガリウム($Z = 31$)

軟 X 線 ~ EUV 領域の中間層である 7 nm 付近の光源候補元素

波長領域 4~16 nm において小型 EBIT 内の多価イオンの最高価数がゲルマニウムで 8~15 価, ガリウムで 8~14 価のとき, 3d-4f, 3d-4p および 3p-3d 遷移に相当する発光ラインが観測された。 $n = 3 - n = 4$ 遷移に対応する UTA 放射が異価数で発光ピークはずれるものの 6~8 nm 付近の発光強度が相対的に大きくなった。 $n = 4 - n = 4$ 遷移で 7 nm 付近の候補元素はガドリニウム($Z = 64$)やテリビウム($Z = 65$)であるが, より軽元素が光源材料となれば入力パワーが抑えられる利点も考えられるので, エネルギー変換効率は落ちるが必要な発光強度によっては $n = 1$ 遷移も UTA 光源として検討し得る。

金($Z = 79$), レニウム($Z = 75$)

ポピュレーショントラップおよび電気八重極子遷移の原子番号依存性

最外殻電子が $4f^{14}$ 状態または $4f^{14}5s$ 状態になる価数において, 過去に多価タングステン($Z = 74$)イオンで観測された電気八重極子(E3)遷移の 4f-5s 遷移に対応する発光ラインが金では観測されず, 一方, レニウムでは観測され, その禁制遷移の強い原子番号依存性が実証された。

(2) 重元素レーザー生成プラズマ分光

東口武史教授グループ(宇都宮大学)によってビスマス($Z = 83$)およびジルコニウム($Z = 54$)の LPP を, 波長 1064 nm, パルス幅 150 ps または 10 ns のプリパルス(<15 mJ) およびパルス幅 150 ps のメインパルス(250 mJ)の Nd:YAG レーザーを用いたダブルパルス法で生成し, 水の窓領域(2.34~4.38 nm)における発光のレーザー照射条件依存性を調査した。ダブルパルスが何れもパルス幅 150 ps でパルス遅延時間が約 5 ns の時に, メインパルスのみの方に比べてビスマス LPP で約 30%, ジルコニウム LPP で約 18%, 水の窓領域における発光強度が増幅されることが確認された。また, 発光スペクトル形状に顕著なパルス遅延時間依存性やプリパルス幅依存性が観測されたことから, ダブルパルス法によって LPP 光源の発光特性が制御できることが実証され, 最適条件下では光源サイズ $30 \times 60 \mu\text{m}^2$ で光子数 3.8×10^{14} photons/sr が得られた。これらの結果とビスマス標的を原子密度 7.5%の泡状標的にした際の発光スペクトルから, 極端紫外光源のスズ($Z = 50$)に比べてビスマスの自己吸収係数は小さく, 光学的に薄いことが確認された。

(3) 大型ヘリカル装置プラズマ分光

核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)を用いてジルコニウム($Z = 40$)プラズマを生成し, 電子温度が変化しながら発光スペクトルを測定することで水の窓領域における最適な発光条件の調査を行った。14~21 価のジルコニウムイオンが主に水の窓領域の発光に寄与するため, 電子密度 10^{13} cm^{-3} のジルコニウムプラズマでは電子温度 80~180 eV が最適な発光条件であることが示された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 4 件)

H. Ohashi, H. Hara, B. Li, P. Dunne, G. O'Sullivan, A. Sasaki, C. Suzuki, N. Tamura, H. A. Sakaue, D. Kato, I. Murakami, T. Higashiguchi, *Electron temperature optimization for efficient water-window soft x-ray emission from discharge-produced highly charged zirconium ions*, Journal of the Optical Society of America B, **36** 3555-3561 (2019), 査読有, <https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.003555>

G. Arai, H. Hara, T. Hatano, T. Ejima, W. Jiang, H. Ohashi, S. Namba, A. Sunahara, A. Sasaki, M. Nishikino, G. O'Sullivan and T. Higashiguchi, *Intense water-window soft x-ray emission by spectral control using dual laser pulses*, Optics Express, **26** 27748-27756 (2018), 査読有, <https://doi.org/10.1364/OE.26.027748>

H. Hara, H. Kawasaki, T. Tamura, T. Hatano, T. Ejima, W. Jiang, H. Ohashi, S. Namba,

A. Sunahara, A. Sasaki, M. Nishikino, G. O'Sullivan and T. Higashiguchi, *Emission of water-window soft x-rays under optically thin conditions using low-density foam targets*, Optics Letters, **43** 3750-3753 (2018), 査読有,
<https://doi.org/10.1364/OL.43.003750>

H. Ohashi, H. Hara, G. Arai, T. Hatano, T. Ejima, C. Suzuki, S. Namba, A. Sasaki, M. Nishikino, G. O'Sullivan and T. Higashiguchi, *Spectral dynamics of soft X-ray emission in dual-laser-produced medium-Z plasma*, Applied Physics B, **124** 193 (2018), 査読有,
<https://doi.org/10.1007/s00340-018-7061-3>

[学会発表](計3件)

H. Ohashi, H. Hara, B. Li, P. Dunne, G O'Sullivan, A. Sasaki, C. Suzuki, N. Tamura, H. A. Sakaue, D. Kato, I. Murakami and T. Higashiguchi, *Characteristics of water-window soft X-ray emission from bismuth plasmas*, 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (AAPPS-DPP2018) Ishikawa Prefectural Bunkyo Hall, Kanazawa, Japan, November 12nd-17th, 2018.

石見良太, 大橋隼人, 坂上裕之, *EBITを用いた多価Biイオンの軟X線分光*, 原子衝突学会第42回年会, 上智大学四谷キャンパス, 9月8日~9日, 2017年.

H. Ohashi, H. Hara, G. Arai, Y. Kondo, T.-H. Dinh, B. Li, P. Dunne, G. O'Sullivan, N. Nakamura, H. A. Sakaue, D. Kato, I. Murakami and T. Higashiguchi, *Emission spectroscopy of laser-produced and electron beam ion trap plasmas with high-Z elements in extreme ultraviolet and soft x-ray region*, 10th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications (ICAMDATA2016), Gunsan Saemangeum Convention Center (GSCO), Gunsan, Republic of Korea, Sep. 25th-29th, 2016.

6. 研究組織

(1) 研究協力者

研究協力者氏名：東口 武史
ローマ字氏名：HIGASHIGUCHI Takeshi
所属研究機関名：宇都宮大学
部局名：工学研究科
職名：教授
研究者番号(8桁)：80336289
研究協力者氏名：坂上 裕行
ローマ字氏名：SAKAUE Hiroyuki
所属研究機関名：核融合科学研究所
部局名：ヘリカル研究部
職名：助教
研究者番号(8桁)：40250112

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。