

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 23 日現在

機関番号：15401  
 研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2010～2012  
 課題番号：22340174  
 研究課題名（和文） プラズマ励起軟 X 線レーザー照射による原子・クラスターの非線形 X 線吸収過程  
 研究課題名（英文） Nonlinear x-ray absorption processes in atom and cluster irradiated with a plasma x-ray laser  
 研究代表者  
 難波 慎一（NAMBA SHINICHI）  
 広島大学・大学院工学研究院・准教授  
 研究者番号：00343294

### 研究成果の概要（和文）：

高強度プラズマ X 線レーザーと物質との相互作用、特に、非線形 X 線吸収現象を電子分光により明らかにすることを目的として実験を行った。ここで、X 線レーザーの発振波長は 13.9 nm であり、Xe 原子の場合には 4d 内殻電子を光電離することができるため、内殻電離誘起強結合プラズマが発生する。本研究では原子・クラスターを対象とし、この非線形光学効果の寄与、及び、発生するプラズマの特性を明らかにした。

### 研究成果の概要（英文）：

In order to elucidate the interaction between intense plasma x-ray laser pulse and matters (atom/cluster), especially the nonlinear photo-absorption process, the electron spectrum is observed. The laser wavelength is 13.9 nm, by which the 4d inner electrons of Xe atom can be photo-ionized, resulting in the strongly coupled plasma. In this study, we investigate the influence of the non-linear processes and characterize the peculiar plasma.

### 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
2011 年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
2012 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
総計	12,700,000	3,810,000	16,510,000

研究分野：プラズマ科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：プラズマ X 線レーザー、クラスター、非線形光学効果、強結合プラズマ

#### 1. 研究開始当初の背景

X 線レーザーは究極のレーザーとも呼ばれ、物理・化学をはじめ、物質・材料科学や医学、生命科学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いる。

申請者らは長年、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、利用実験に供するレベルの装置開発に成功した。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第 3 世代シンクロトロン放射光と比較して実に  $10^6$  倍と格段に高いピーク輝度であるため、放射光では実現できない X 線領域での非線形光学効果が観測できる可能性がある点にある。

この特徴を活かし、研究代表者である難波は平成 19-21 年度科研費・若手研究(A)にて、

軟X線レーザー(波長:13.9 nm, 89.2 eV, 強度:  $2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>) をキセノン(Xe)クラスターに照射し、その相互作用を解明する実験を行った。クラスターを照射対象とした理由は2つある。まずはX線自由電子レーザー(X-FEL)で生体高分子の構造解析を行う実験が計画されているが、この分子を模擬するのにクラスターは適しているためである。2つ目の理由は、波長98 nmのVUV-FELをXeクラスターに照射する実験がドイツで行われ、その結果がNature誌に掲載され大きな衝撃・議論を巻き起こしたためである。ここで、申請者が行った実験の最大の特徴は、VUV-FELレーザー波長と比べて格段に波長が短く、さらに、内殻電離の光電離断面積が最も大きくなる点にある。つまり、イオン化が最外殻電子からではなく、内殻電子から進行するというユニークさにある。実験の結果、軟X線レーザーにさらされたクラスター中ではダブルオージェ過程の遷移確率が上昇することを初めて見出し、その成果をPhys. Rev. Lett.誌にて報告した。

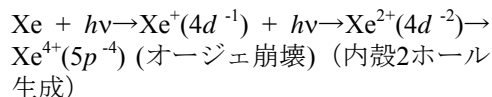
そして現在、申請者らはX線レーザー・物質相互作用に関するより困難な研究課題である“X線非線形光学現象の解明”に挑戦する段階にきた。

## 2. 研究の目的

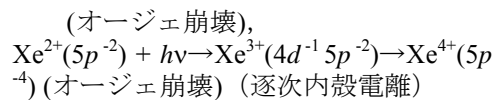
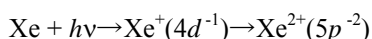
究極のレーザーとも呼ばれるX線レーザーを用いた様々な基礎物理実験や物性研究がここ数年精力的に行われており、申請者らも国際的に優れた研究成果を発表してきた。

本研究課題では、高強度軟X線レーザー( $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>以上)を物質に照射することにより、従来観測不可能であった非線形物理現象を世界で初めて観測することを目的とする。ここで、対象とする物質は内殻電離閾エネルギーが低く、放射光においても比較的良好に研究されているXe原子、Xeクラスターである。具体的に明らかにする研究内容は以下の2つである。

- (1) X線レーザーとXe原子の相互作用に伴う非線形X線吸収のひとつである、原子内殻2ホールの生成を試みる。反応式としては、



である。オージェ過程は非常に速い緩和過程(数フェムト秒)であるため、この2ホール生成は高強度レーザーを用いて初めて実現可能となる。一方、この内殻ホールに競合するのは次の逐次的な内殻電離である。



この場合も最終的な多価イオンはXe<sup>4+</sup>と同じであるが、電子・電子相関により検出される電子エネルギーは2つの過程で異なる。そのため、高分解で電子エネルギーを計測することにより、その起源を識別することが可能となる。

- (2) X線レーザー・Xeクラスター相互作用によって生成される内殻電離による強結合クラスタープラズマ中では多体衝突再結合と呼ばれるリードベルグ原子が関与する新しいX線吸収過程が出現することが理論的に予測されている。したがって、本研究では発生する強結合プラズマ中での電子エネルギー分布を計測し、この再結合過程が実際に生じているのかを実験的に明らかにする。

## 3. 研究の方法

本研究は日本原子力研究開発機構関西研究所で開発されたX線レーザーを用いる。これは高温高密度レーザー生成プラズマ中での過渡励起法により発振する。ターゲットは銀であり4p-4d遷移を利用する。発振波長は13.9 nm、光子エネルギー89.2 eV、パルス幅~7 ps、エネルギー100 nJ以上である。

実験に先立って、原子力機構側担当者である岸本・長谷川が中心となって、X線レーザーの高強度化を行った。具体的には、Mo/Si多層膜凹凸鏡ペアからなるシュバルツシルト光学系を用いてX線レーザーを回折限界付近まで集光する方法と集光サイズは小さくできないが光子数を稼げるMo/Si球面鏡を用いる方法の2つを採用した。目標とする集光強度は $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>以上である。一方、従来は20分に1ショットと極めて繰り返しが低かったためSN比が高いデータ取得が困難であった。さらにデータの再現性チェックも限定されていた。そのため本研究ではレーザー発振の高繰り返し化も試みた。その結果、レーザー出力を安定させたまま0.1 Hzまで高めることに成功した。

Xe原子を相互作用領域に定常的に導入す

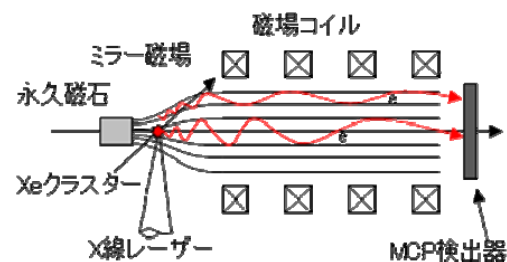


図1. 磁気ボトル型電子分光器の概略図。

るために超高真空バリアブルリークバルブを用いた。またポンプの負荷を下げたまま高真空のまま電子計測ができるよう電磁バルブを用いたパルス原子ビームも併用した。一方、Xeクラスターは、高圧ガスを真空中へ断熱自由膨張させる際に発生するファンデルワールスクラスタである。本研究ではクラスタリング効率を高めるために、シーディングと呼ばれる技術(ヘリウム希釈法)を採用した。

計測には2種類の電子分光器を用いた。初年度は単純な飛行時間型(TOF)分光器と2年目以降の磁気ボトル型電子分光器である。この磁気ボトル分光器は、電子の捕集効率がほぼ100%で、且つ、高分解であるという特徴がある。さらに、飛行時間分解型であるためシングルショットでの計測が可能となり、本実験には不可欠な装置である。本研究ではX線レーザー照射に伴う非線形光学現象を調べると並行して磁気ボトル型電子分光器の設計・製作、及び、性能試験を行った。図1に分光装置の概略図を示す。電子捕集効率を高めるために最も重要なミラー磁場配位は、荷電粒子軌道解析ソフトであるTRICOMPを用いたシミュレーションにより決定した。

レーザービームパターンと発生する電子・多価イオンとの相関についても調べた。というのも用いたX線レーザーはビームパターンがショット毎に異なるため、ホットスポットがある場合には電子エネルギー、多価イオン密度分布に何らかの影響を及ぼす可能性があるためである。したがって、相互作用チャンバを透過したX線レーザーを軟X線CCDカメラにて計測し、それらの相関についても調べられる。

X線レーザーポンプ・IRプローブ法によるクロスコリレーション(cross correlation)実験を行い、X線レーザーのパルス幅計測を行う際の光学系の配置図を図2に示す。IRレーザーパルスはX線レーザー発生用のガラスレーザー(パルス幅2 ps)を分岐させたものであるため、両パルスの時間同期は完全に取れている。

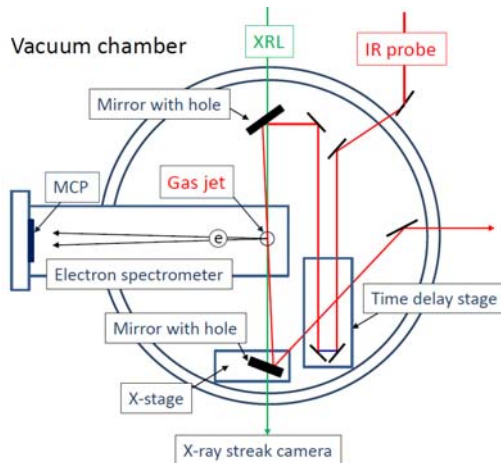


図2 ポンプ・プローブ分光での光学系。

#### 4. 研究成果

まず2番目の目的に関する実験を行った。具体的には、高強度X線レーザー・Xeクラスター相互作用によってナノサイズの強結合クラスタープラズマの発生を試みた。この際、強結合プラズマ中で多体衝突再結合過程が生じているのかどうかを電子スペクトル解析から調べた。計測器としてはシンプルな飛行時間型電子分光器を用いた。図3は計測されたTOFスペクトルである。また、理論的に予測されるスペクトルも示す。クラスターサイズが小さい時には光電子・オージェ電子に由来するピークがはっきりと観測できるのに対し、サイズが大きくなるとそれらは見られなくなるのが分かる。図4には電子エネルギー分布関数にしたものを示す。ここで赤点はレーザー強度が5 GW/cm<sup>2</sup>、青は10 GW/cm<sup>2</sup>の時のデータで、電子温度はそれぞれ6.5 eV、10 eVと評価することができた。電子密度に関してはレート方程式を解くことにより、レーザー照射直後は2×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>と評価された。これらの値からカップリングパラメータΓを計算したところ、Γ<sub>ee</sub> = 0.31、Γ<sub>ei</sub> = 0.35であった。したがって、発生するプラズマは強結合プラズマの性質を示すことが明らかとなった。

次に、多体衝突再結合について調べた。ここで、図5に多体衝突再結合の模式図を示す。低温高密度強結合プラズマ中では電子・イオン相関によりイオンの周りに多数の電子を見出す確率が高くなる(図(a)では3電子)。その結果、多体衝突再結合により、1つの電子がリードベルグ状態となり(図(b))、残り2つの電子が余剰

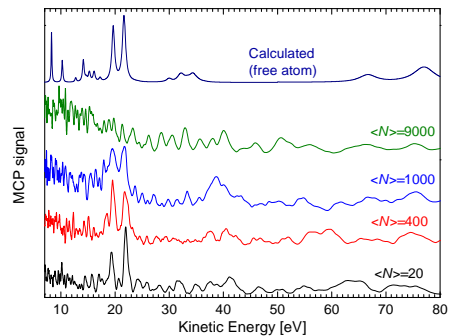


図3. 電子のTOFスペクトル。

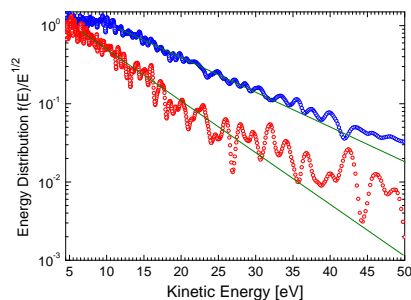
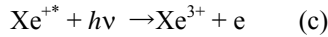
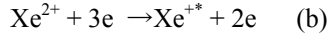


図4. 電子エネルギー分布関数。

エネルギーを受け取る(弱結合プラズマにおける3体衝突再結合に相当)。最終的に、このリードベルグ原子はX線を吸収し、再度イオン化状態となる(図(c))。この一連のサイクルが繰り返された結果、電子加熱が生じる。本研究の場合、図(b)、(c)の反応式は、



と表される。ここで、リードベルグ状態( $\text{Xe}^{+*}$ )はサハ・ボルツマン平衡にあると考えられるので、電子エネルギー分布は光子エネルギーを閾値とし、且つ、励起準位エネルギーを反映した不連続な状態になることが予想される(実際には緩和過程のため明確なピークは現れないが、その傾向は観測できると考えられる)。

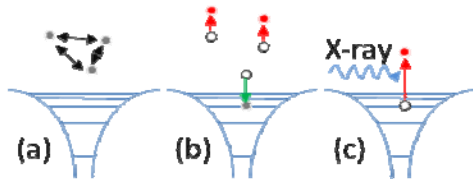


図 5. 多体衝突再結合の概念図。

前出のように、実験では得られた電子温度が 10 eV 程度であり、且つ、電子スペクトルにはこの過程に起因するものを観測することができなかった。したがって、本研究での条件では多体衝突再結合による電子加熱は支配的にはなり得ないことが分かった。この過程が寄与するのはさらにレーザー強度が高くなった場合( $10^{14} \text{ W/cm}^2$  以上)と考えられる。

次に一番目の目的である 2 ホール実験をターゲットをクラスターから Xe 原子に変更して行った。本研究課題中には残念ながら X 線レーザー集光強度を十分高めることができなく、 $\text{Xe}^{4+}$  イオンを発生させるには至らなかった。この 2 ホール実験を行うにはフェムト秒で且つ集光強度が  $10^{15} \text{ W/cm}^2$  を遙かに超える X 線自由電子レーザー(XFEL)を用いる以外方法はないであろう。

したがって本研究では、2 ホール実験を諦め、ポンプ・プローブ分光法によるクラスタープラズマの特性評価のための基礎実験を行った。具体的には、X 線ポンプ IR プローブ分光を採用し X 線レーザーのパルス幅を cross correlation により導出した。この方法では X 線を吸収後、さらに余分に IR 光を吸収、あるいは、放出することによりサイドバンドが出現することを利用する。つまり、Above threshold ionization (ATI)と同じ原理である。ポンプ・プローブ法を試みたところ、強烈な IR 光が迷光となり、オージェ電子のサイドバンドスペクトルを観測することができなかった。そのため、光電子スペクトルピーク付近に出る IR2 光

子吸収スペクトルを計測することにした。両パルスのタイミングを 2 ps ステップで変えることによりスペクトル強度を計測したところ、X 線レーザーのパルス幅は 6 ps 程度であることが判明した。この値は X 線ストリークカメラで得られた 7 ps とほぼ同じであり、ポンプ・プローブ分光が成功したといえる。今後、この手法を強結合クラスタープラズマの物理解明に役立てる予定である。

## 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 18 件)

1. "Characterization of a microhollow cathode discharge plasma in helium or air with water vapor", D. Fukuhara, S. Namba, et al., *Plasma Sci. Technol.* **15**, pp.129-132 (2013) (査読有).
2. "Spectroscopic measurement of shock waves in an arcjet plasma expanding through a conical nozzle", K. Kozue, G. Kumakawa, S. Namba, T. Endo, K. 他 3 名, *Plasma Source and Technology* **15**, pp.89-92 (2013)(査読有).
3. "Effect of cathode length on electrical characteristics of a micro hollow cathode discharge in helium", T. Yamasaki, S. Namba, K. Takiyama and N. Nojima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 066001 (2012) (査読有).
4. "Picosecond soft-X-ray laser interferometer for probing nanometer surface structure", Y. Ochi, K. Terakawa, N. Hasegawa, M. Yamamoto, T. Tomita, 他 6 名, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51** 016601 (2012) (査読有).
5. "Imaging of Ablation Dynamics by Soft X-Ray Laser", 富田卓朗, 長谷川登, 錦野将元, 河内哲哉, 末元徹, レーザー研究 **40** pp. 592-597 (2012) (査読有).
6. "Electron spectra of xenon clusters irradiated with a laser-driven plasma soft x-ray laser pulse", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, 他 3 名, *Phys. Rev. A*, **84**, 053202 (2011) (査読有).
7. "Emission spectroscopy of a microhollow cathode discharge plasma in helium water gas mixtures", S. Namba, T.Yamasaki, Y.Hane, D.Fukuhara, K.Kozue, 他 1 名, *J. Appl. Phys.* **110**, 073307 (2011) (査読有).
8. "Nanoscale surface modifications and formation of conical structures at aluminum surface induced by single shot exposure of soft x-ray laser pulse", M. Ishino, A. Y. Faenov, M. Tanaka, N. Hasegawa, M. Nishikino, 他 13 名, *J. Appl. Phys.* **109**, 013504 (2011) (査読有).

9. "Generation of strongly coupled Xe cluster nanoplasmas by low intensive soft x-ray laser irradiation", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Nishikino, T. Kawachi, AIP Proceedings 1465, pp.69-73.(2011) (査読有).
  10. "Flash imaging of fine structures of cellular organelles by contact x-ray microscopy with a high intensity laser plasma x-ray source", M. Kado, M. Ishino, M. Kishimoto et al., Proc. SPIE 8139, 81390O (2011) (査読無).
  11. "Development of a specimen holder combined with ultra thin film laser plasma x-ray source for compact contact-type soft x-ray microscope to observe hydrated living biological cells", M. Ishino, M. Kado, K. Shinohara, Y. Yamamoto, M. Kishimoto, 他 6 名, Proc. SPIE **8139**, 81390R (2011) (査読無).
  12. "Development of single shot soft x-ray contact microscopy system for nano--scale dynamics measurement of living biological specimen", M. Kishimoto, M. Kado, M. Ishino, T. Tamutsu, K. Yasuda, K. Shinohara, AIP Proceedings 1465 (2011) pp.43-47 (査読無).
  13. "Two-dimensional spatial temperature and density measurements in an arcjet plasma expanding through a slit nozzle", K. Kozue, S. Nakamitsu, S. Namba, T. Endo, 他 3 名, Plasma and Fusion Research, **6**, 2406054 (2010) (査読有).
  14. "Intensity Correlation Measurement System by Picosecond Single Shot Soft X-ray Laser", M. Kishimoto, K. Namikawa, K. Sukegawa, H. Yamatani, N. Hasegawa 他 2 名, Rev. Sci. Instrum. **81**, 013905 (2010) (査読有).
  15. "Application of Laser Produced Plasma K $\alpha$  X-ray Probe in Radiation Biology", M. Nishikino, K. Sato, N. Hasegawa, M. Ishino, S. Ohshima, Y. Okano, 他 5 名, Rev. Sci. Instrum. **81**, 20266217 (2010) (査読有).
  16. " $\gamma$ -H2AX and Phosphorylated ATM Focus Formation in Cancer Cells after Laser Plasma X Irradiation", K. Sato, M. Nishikino, Y. Okano, S. Ohshima, N. Hasegawa, 他 5 名, Radiation Research **174**, pp.436-445 (2010) (査読有).
  17. "Observation of organelles in Leydig cells by contact soft X-ray microscopy with a laser plasma X-ray source", M. Kado, M. Ishino, T. Tamotsu, K. Yasuda, M. Kishimoto, M. Nishikino, Y. Kinjyo, K. Shinohara, AIP Proceedings 1365 (2010) pp.3490-3492 (査読無).
  18. "Observations of the intense soft x-ray emissions from ultrathin Au films irradiated with high contrast laser pulses", M. Ishino, M. Kado, M. Nishikino, K. Shinohara, S. Tamotsu, M. Kishimoto, 他 4 名, Proc. SPIE **7589**, 75891B (2010) (査読無).
- [学会発表] (計 12 件)
1. "磁気ボトル型電子分光器を用いた X 線レーザーと Xe ガス相互作用に伴う電子スペクトル計測", 難波慎一, 長谷川登, 岸本牧 他, 日本物理学会年会, 2013.3.26-29, 広島県東広島市
  2. "アークジェットプラズマにおける衝撃波の分光計測", 難波慎一, 電気学会プラズマ/パルスパワー合同研究会, 2011.12.15~17, 神奈川 横浜市
  3. "Electron spectra of Xe atom irradiated with a soft x-ray laser pulse", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, et al., 13<sup>th</sup> Symposium on Advanced Photon Research, 2012.11.15-16, 京都府木津川市
  4. "Emission Spectroscopy of a microhollow cathode discharge plasma in air-water gas mixtures", D. Fukuhara, S. Namba et al., 8<sup>th</sup> General scientific assembly of the asia plasma and fusion association, 2011.11.1-4, 中国 桂林
  5. "Observation of shock wave in an arcjet plasma expanding through a conical nozzle", K. Kozue, G. Kumakawa, H. Terasawa, S. Namba et al., 8<sup>th</sup> General scientific assembly of the asia plasma and fusion association, 2011.11.1-4, 中国 桂林
  6. "Electron energy distribution in an x-ray laser and Xenon cluster interaction", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, et al., 第 12 回光量子科学研究シンポジウム, 2011.5.30~31 京都府木津川市
  7. "Xenon cluster plasma generated with a laser-driven soft x-ray laser pulse", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto et al., 17<sup>th</sup> Atomic processes in plasmas, 2011.7.19-21, Velfast UK.
  8. "高強度 X 線レーザー照射による キセノンクラスターの内殻電離ダイナミクス", 難波慎一, 核融合科学研究所分光研究会, 2011.2.2-3 岐阜県多治見市
  9. "Energy spectra of photo- and Auger electrons generated by a soft x ray laser and Xe cluster interaction", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Nishikino, T.

- Kawachi, International Conference of x-ray lasers 2010, 2010.6.30-7.4, Gwangju, Korea.
10. “Source development and novel applications of laser-driven plasma X-ray lasers in JAEA”, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Nishikino, M. Ishino, T. Imazono, 他 18 名, International Conference of x-ray lasers 2010, 2010.6.30-7.4, Gwangju, Korea.
  11. “Observation of organelles in Leydig cells by contact soft X-ray microscopy with a laser plasma X-ray source”, M. Kado, M. Ishino, T. Tamotsu, K. Yasuda, M. Kishimoto, 他 3 名, 10th International Conference on X-Ray Microscopy, 2010.8.16-20, Chicago, USA.
  12. “Application of laser plasma x-ray beam in radiation biology”, M. Nishikino, K. Sato, N. Hasegawa, M. Ishino, T. Kawachi, 他 4 名, International Conference of x-ray lasers 2010, 2010.6.30-7.4, Gwangju, Korea.

[図書] (計 1 件)

1. 『身近なエネルギー利用のしくみ』, 第 2 章 3 節「プラズマの力でクリーンな環境を作る－空気清浄機－」, pp. 42-53, 広島大学次世代エネルギープロジェクト研究センター編, 難波慎一 広島大学出版会

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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

### (2) 研究分担者

岸本 牧 (KISHIMOTO MAKI)  
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹  
研究者番号：40360432

長谷川 登 (HASEGAWA NOBORU)  
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究員  
研究者番号：50360409

### (3) 連携研究者

なし