

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：63903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760051

研究課題名(和文)自由電子レーザー励起によるレーザープラズマ光源の研究開発

研究課題名(英文)Development of laser-produced plasma light source with free electron laser

研究代表者

岩山 洋士 (IWAYAMA, Hiroshi)

分子科学研究所・極紫外光研究施設・助教

研究者番号：50584570

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：極紫外自由電子レーザーを照射された希ガス・クラスターおよびヘリウム原子からの蛍光スペクトルを測定した。アルゴンクラスターでは、波長51nmの入射光よりも短い波長の蛍光を観測した。これは、ナノプラズマ化したクラスター内で生成した多価イオンがプラズマ電子を捕獲することで、励起多価イオンが生成していると考えられる。またヘリウム原子の蛍光では、原子密度に対して非線形な増幅を観測した。

研究成果の概要(英文)：We have measured fluorescence spectra of rare-gas clusters and helium atoms irradiated intense extreme-ultraviolet free-electron laser pulse. For Argon clusters, we observed rich structure at fluorescence wavelength shorter than incident FEL wavelength of 51nm. It is suggested that multiply charged ions recapture plasma-electrons in nanoplasma of the Argon cluster. For He gas, we found that fluorescence intensities nonlinearly increase with increasing the He atomic density.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：原子 クラスター 自由電子レーザー 蛍光 プラズマ

1. 研究開始当初の背景

自由電子レーザー (FEL) の発展により、極紫外光領域 (EUV) から X 線領域に及ぶ短波長領域の高強度コヒーレント光が利用可能になった。この新しい光源は、高輝度、短パルス、高干渉性を持ち合わせ、結晶化が難しい分子の構造解析など新しい科学技術をもたらしつつある。

EUV-FEL および X-FEL の利用研究の 1 つとして超短パルス性を活かした pump-probe 法によるフェムト秒スケールでの光化学反応追跡が期待される。この pump-probe 実験では、pump 光と probe 光をフェムト秒の精度で同期させる必要がある。それを実現するため、通常 1 つのパルス光から pump 光と probe 光を発生させる。可視または赤外レーザー光による pump-probe 実験では、高次高調波発生によって、光エネルギーが入射光の奇数倍となる高次光を発生させ、pump 光または probe 光として利用している。この発生法においては、光電場による電子の加速が重要な機構であるため、可視光に比べ桁違いに波長が短い EUV-FEL または X-FEL から高次光を発生させることは難しい。そのため、新しい原理に基づいた光源の開発が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、EUV-FEL 光を試料に照射し多数の励起原子を生成することで、高強度の蛍光を発生させる技術を開発する。特に、励起原子集団からの超蛍光現象に着目して研究を行った。超蛍光と呼ばれる現象は、量子光学効果の一種であり、励起原子が集団的に蛍光を放出するため起こる。観測されるパルス光は、励起原子密度に強く依存し、レーザー光のように高い指向性とコヒーレンスを有する。このように高密度の励起原子を準備し、その集団的緩和である超蛍光現象によって、高い指向性を有する超短パルス光を発生させる。

これまでに我々は、ヘリウムガスセルに EUV-FEL 光 (波長 53.7nm) を照射することで、高密度の励起ヘリウム原子 (1s3p) を生成し、1s2p 状態への緩和に対応する波長 501nm の超蛍光の観測に成功している。本研究課題では、高密度の励起多価イオンまたは励起ヘリウム原子を生成し、極紫外光領域の高強度の蛍光または超蛍光現象の観測を目指す。

3. 研究の方法

実験は、SCSS 試験加速器の極紫外自由電子レーザーを利用して行われた。この施設では、パルスエネルギー 30 μ J、パルス幅 100fs、繰り返し周波数 30Hz の極紫外レーザー光を発生させる。入射波長 51nm を利用した。蛍光実験の装置概要を図 1 に示す。パルスエネルギー

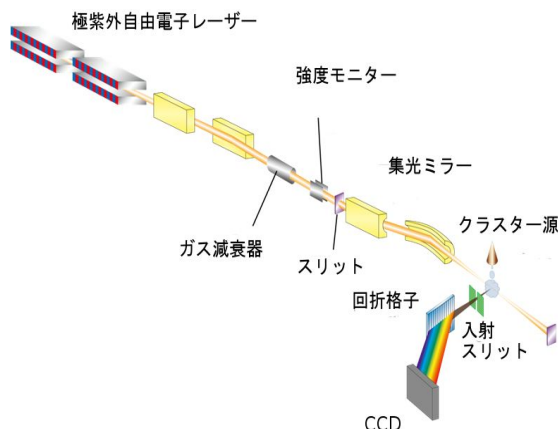


図 1. 実験装置概要図。

ギーは集光ミラー上流のイオン収量径にて計測される。極紫外レーザー光は、集光ミラーによって直径 12 μ m に集光され、その結果光強度は最大 3×10^{13} W/cm² に達する。

極紫外レーザー光を照射された試料からの蛍光は、真空光学社製の平面結像型斜入射分光器を用いて計測された。計測波長範囲は 10nm から 100nm であり、分解能は 300 程度であった。

(1) アルゴン・クラスター

アルゴン・クラスターは、極紫外レーザー光と同期したパルスノズルを用いて、超音速ジェット法にて生成した。クラスター・サイズは Hagen の経験則よりアルゴンガスの圧力を変えることで、調節した。

(2) ヘリウム原子

ガスセルを用いて、高密度のヘリウム気体を試料とし、1s3p 励起ヘリウム原子からの蛍光緩和 (波長 53.4nm) の観測を行った。平面結像型斜入射分光器は、入射光軸上に配置し、蛍光強度のヘリウム原子密度依存性を

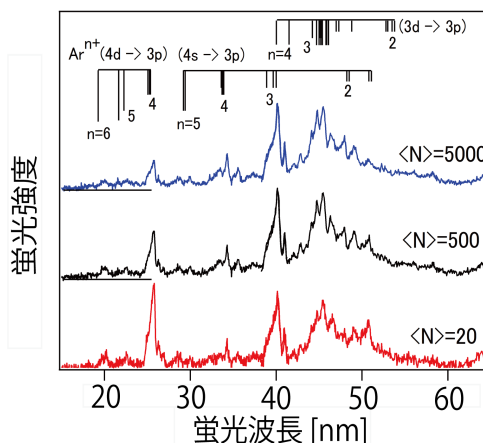


図 2. アルゴン・クラスターの蛍光スペクトル。クラスターサイズ $\langle N \rangle \sim 20, 500, 5000$ atoms / cluster. 入射 FEL 波長 51nm.

計測した。

4. 研究成果

(1) アルゴン・クラスター

図2にアルゴン・クラスターの蛍光スペクトルを示す。入射 EUV-FEL 波長は 51nm で、光強度は $3 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ である。蛍光スペクトルには、多くのピークが見られ、それぞれは励起多価イオンの蛍光に対応する。特に、入射波長 51nm よりも短い波長の蛍光が観測されており、非線形光学効果が起きていることを示している。また入射波長 54nm でも同様の蛍光スペクトルが得られ、強い入射波長依存性は見られなかった。これは、共鳴励起によって励起状態が形成されているわけではなく、多価イオンがプラズマ電子を再捕獲することで励起多価イオンが生成していることを示している。この結果は、以前のイオン計測の結果と一致している。

もっとも短い蛍光波長は 20nm であり、励起 6 価イオン Ar^{6+} に対応する。同様のレーザー条件で孤立 Ar 原子が最大 6 価イオンまで生成することを考えると、クラスター内でも同様の多価イオンが生成していることを示している。また小さいサイズのクラスターほど、短波長の蛍光の割合が高かった。これはクラスター表面で、励起多価イオンが生成していることを示す。

蛍光の非線形光学効果を調べるために、蛍光強度の光強度依存性を調べた。その結果、短波長の蛍光ほど、非線形性が強いことが分かった。このことは、より高い多価イオン生成のために、より多光子吸収が必要なことに対応していると考えられる。

このようなクラスターサイズ依存性・レーザー強度依存性を詳細に解析することで、アルゴンクラスターの蛍光過程を解析した。その結果、高強度 EUV-FEL 光中のクラスターは多段の光子吸入によって多価イオン化し、その後、強いクーロン引力が働くことで、次第に光電子がクラスターから抜け出すことができず、ナノプラズマ化していると考えら

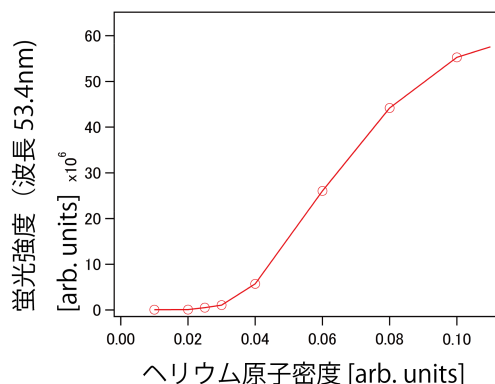


図3. 蛍光強度 (波長 53.4nm) のヘリウム原子密度依存性.

れる。特に、クラスターを形成することで、局所的にバルクと同じ密度、すなわち 10^{22}cm^{-3} の密度であり、また短波長領域では光電場に寄る電子加熱エネルギー ponderomotive energy が 10meV 程度以下なため、プラズマ温度が 1eV 程度である。その結果、このプラズマはイオンとプラズマがつよく結合した強結合プラズマ状態であり、効率的な電子・イオン再結合によって高密度の励起多価イオンが生成されているのだと考えられる。

(2) ヘリウム原子

図3は 1s3p 励起状態からの 53.4nm の蛍光強度の He 原子密度依存性を示す。通常の蛍光過程では、蛍光強度は励起種密度、すなわち原子密度に比例する。しかし、本実験では、強い非線形な増大が観測された。これは、超蛍光が起こっていることが考えられる。より詳細に調べるためには蛍光過程の時間構造を調べる必要があり、これは今後の課題である。

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 4件)

J.R. Harries, M. Nagasono, H. Iwayama, E. Shigemasa, Toward coherent control of SASE pulses using propagation through helium gas at wavelengths corresponding to double excitation, 査読有、46 巻、2013、164021-1 - 164021-5

E. Shigemasa, M. Nagasono, H. Iwayama, J.R. Harries, L. Ishikawa, Resonant-enhanced three-photon single ionization of Ne by ultrashort extreme-ultraviolet pulses, J. Phys. B, 査読有、46 巻、2013、164020-1 - 164020-5

H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, H. Fukuzawa, X-J. Liu, G. Prumper, K. Motomura, K. Ueda, N. Saito, A. Rudenko, L. Foucar, M. Nagasono, A. Higashiyama, M. Yabahi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, Frustration of photoionization of Ar nanoplasma produced by extreme ultraviolet FEL pulses, J. Phys. B, 査読有、46 巻、2013、164019-1 - 164019-6

H. Iwayama, M. Nagasono, J.R. Harries and E. Shigemasa, Demonstration of up-conversion fluorescence from Ar clusters in intense free-electron-laser fields, Optical Express, 査読有、20 巻、2012、23174-23179

[学会発表](計 6件)

岩山洋士、極紫外自由電子レーザーによるヘリウム原子の集団的蛍光、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 27 ~ 30 日、神奈川

岩山洋士、繁政英治、内殻励起した酸素分子の解離ダイナミクスの研究、第 27 回放射光学会年会、2014 年 1 月 11-13 日、広島

岩山洋士、繁政英治、内殻イオン化による準安定な二価酸素分子イオンの生成、原子衝突学会第 38 回年会、2013 年 11 月 16-17 日、和光

岩山洋士、Collective spontaneous emission of He gas irradiated by intense EUV-FEL pulses、ISWAMP2 (Intense Field, Short Wavelength Atomic and Molecular Processes)、2013 年 7 月 20 ~ 22 日、Xi'an (China)

岩山洋士、石川理沙、繁政英治、オージェ電子・イオン同期計測による内殻イオン化した C₄H₅F₃O₂ 分子の解離過程の研究、第 26 回日本放射光学会年会、2013 年 1 月 12-14 日、名古屋

岩山洋士、永園充、James Harries、繁政英治、EUV 自由電子レーザー照射 Ar クラスターの電荷再結合、日本物理学会秋季学会、2012 年 9 月 18 ~ 21 日、横浜

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩山 洋士 (IWAYAMA, Hiroshi)
分子科学研究所・極紫外光研究施設・助教
研究者番号：50584570

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし