

原子衝突学会誌「しょうとつ」  
2020年1月15日発行  
第17巻第1号

原 子 衝 突 学 会 誌

しょうとつ

Journal of Atomic Collision Research

Vol.17 Issue1

2020

**解説（第19回若手奨励賞受賞研究）**

極紫外光領域における高強度レーザー光照射による  
希ガスクラスターの光吸収過程および緩和過程の研究

岩山洋士

原子衝突学会賛助会員（五十音順）

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド（IOP 英国物理学会出版局）

Institute *of* **Physics**

<http://journals.iop.org/>

アドキャップバキュームテクノロジー株式会社



<http://www.adcap-vacuum.com>

有限会社イーオーアール



**Electronics Optics Research Ltd.**

<http://www.eor.jp/>

イノベーションサイエンス株式会社



<http://www.innovation-science.co.jp/>

株式会社オプティマ

Optima Corp.

<http://www.optimacorp.co.jp/>

クリムゾン インタラクティブ プライベート リミテッド

**enago**<sup>™</sup>

<http://www.enago.jp/>

<http://ulatus.jp/>

<http://www.voxtab.jp/>

コスモ・テック株式会社



<https://www.cosmotec-co.jp/>

株式会社サイエンス ラボラトリーズ



**株式会社 サイエンス ラボラトリーズ**

<http://www.scilab.co.jp/>

真空光学株式会社

**真空光学株式会社** - Vacuum & Optical Instruments -

<http://www.shinku-kogaku.co.jp/>

スウェージロック・ジャパン

**Swagelok**

<http://www.swagelok.co.jp>

スペクトラ・フィジックス株式会社



A Newport Company

<http://www.spectra-physics.jp/>

ソーラボジャパン株式会社



<http://www.thorlabs.jp/>

ツジ電子株式会社



ツジ電子株式会社

<http://www.tsujicon.jp/>

株式会社東京インスツルメンツ



<http://www.tokyoinst.co.jp/>

株式会社ナバテック

真空機器の未来と歩む



<http://www.navatec.co.jp/>

仁木工芸株式会社



仁木工芸株式会社



<http://www.nikiglass.co.jp/>

伯東株式会社



<http://www.g5-hakuto.jp/>

丸善雄松堂株式会社



<https://kw.maruzen.co.jp/kousei-honyaku/>

株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション



<http://www.labo-eq.co.jp/>

原 子 衝 突 学 会 誌

# しょうとつ

第 17 卷 第 1 号



THE ATOMIC COLLISION  
SOCIETY OF JAPAN

## 目 次

---

解説（第 19 回若手奨励賞受賞研究） 極紫外光領域における高強度レーザー光照射による 希ガスクラスターの光吸収過程および緩和過程の研究	岩山洋士	... 4
第 27 回原子衝突セミナーのお知らせ	行事委員会委員長	... 14
「しょうとつ」原稿募集	編集委員会事務局	... 15
ユーザー名とパスワード		... 15

---

## 極紫外光領域における高強度レーザー照射による 希ガスクラスターの光吸収過程および緩和過程の研究

岩山 洋士

分子科学研究所 UVSOR 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中 38

iwayama@ims.ac.jp

令和元年 7 月 31 日原稿受付

自己増幅自発放射型の自由電子レーザーの発展により、極紫外光領域の高強度レーザーが利用可能になった。希ガスクラスターはクラスターサイズを容易に制御することができ、孤立原子とバルク固体とのギャップを埋めるために、重要な役割を果たす。我々は、極紫外光領域の高強度レーザー照射された希ガスクラスターから放出されるイオンおよび蛍光のエネルギー計測をすることで、光吸収過程および緩和過程といった基礎的な相互作用について実験的研究を行ってきた。本稿では、それらの結果・考察について紹介する。

### 1. はじめに

2000 年台後半になると、自己増幅自発放射型 (SASE: Self-Amplified Spontaneous Emission) の自由電子レーザー (FEL: Free Electron Laser) が開発され、波長 100 nm 以下で光強度  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> を超えるような高強度のレーザー光が利用できるようになった [1, 2]。また 2009 年にはアメリカの LCLS [3] で、2011 年には日本の SACLA [4] が X 線領域においてサブ mJ、数フェムト秒のレーザー発振が実現し、極紫外光 (EUV: Extreme UltraViolet) 領域から X 線領域における高強度レーザー光の利用が可能となった。

これら短波長高強度レーザー光の出現は、ナノ粒子やタンパク質 1 分子の構造解析やフェムト秒スケールの構造ダイナミクスの研究などさまざまな応用が期待されるが、高強度極紫外または

X 線レーザーパルス光は試料を光パルス時間幅よりも短いフェムト秒スケールで光損傷させる可能性が指摘されていた [5]。そのため得られた回折像などの実験データが光損傷の影響を受けているのかを正しく評価する必要があり、物質と高強度レーザー場による光エネルギーの吸収および光損傷過程を理解することが大事である。

我々は、希ガスクラスター [6, 7] を研究対象とし、EUV-FEL 照射による光吸収および解離過程について研究を進めてきた。希ガスクラスターは温度や圧力を制御することでそのクラスターサイズを数個から数万個程度に自由に制御することができ、その構造は正二十面体で対称性が高く、試料分子のサイズ効果を調べるうえで重要な試料である。実際、筆者の知る限り、波長 100 nm 以下のドイツおよび日本の自由電子レーザーを利用した初めての実験報告は、ともに希ガスクラ

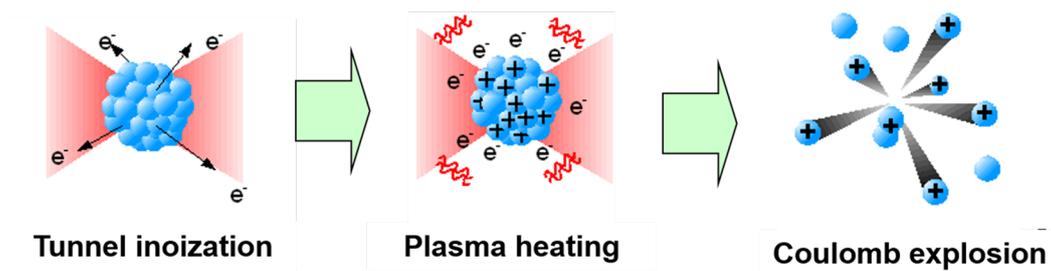


図 1: 赤外光領域における高強度レーザー照射された希ガスクラスターの模式図。

スターの実験報告 [8, 9] であった。

高強度レーザーと希ガスクラスタースとの相互作用の研究は、赤外・可視光領域において精力的に研究されてきた [10–17]。図 1 に高強度赤外レーザー光照射された希ガスクラスタースの光吸収および解離過程の模式図を示す。赤外光・可視光領域での高強度レーザー光の特徴として、強い光電場によるトンネルイオン化およびプラズマ加熱が挙げられる。光強度  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> ではレーザー光がつくる光電場は  $10$  V/Å にもおよび、これは水素イオンが  $1$  Å 離れた位置でのクーロンポテンシャルによる電場に匹敵する。そのためこのような高強度レーザー場中の原子のポテンシャルは強く歪められ、束縛電子はトンネルイオン化される。放出された電子は、この強い光電場によって加速・振動運動し、その時の電子の平均運動エネルギーはポンドロモティブエネルギー (ponderomotive energy) と呼ばれ、

$$U_p[\text{eV}] = 9.33 \times 10^{-20} I [\text{W/cm}^2] \lambda^2[\text{nm}^2]$$

で与えられる。ここで  $U_p$  は入射波長  $\lambda$  の 2 乗に比例することに注意すべきである。例えば波長  $800$  nm, 光強度  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> では、光電場中の電子の平均運動エネルギーは  $60$  eV に達する。クラスタースの場合、光電場中の電子はクラスタースサイズで振動しクラスタース内の原子と何度も衝突することでさらに多くのエネルギーをクラスタースに与える。これはプラズマ加熱と呼ばれ、物質に非常に多くのエネルギーを付与することが知られている [10, 11]。その結果、クラスタースは極めて激しくイオン化され、イオン間のクーロン反発力によって MeV 領域に達する高エネルギーのイオン [14, 15] が放出されるほど激しくクーロン爆発する。

短波長領域における  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> を越え非線形光学効果が無視できない高強度レーザー光の応用を考えた時、このプラズマ加熱による効率的なイオン化が起こるか否かは試料損傷の観点で非常に興味を持たれた。波長  $100$  nm (光子エネルギー約  $12$  eV) を切るような短波長領域になるとポンドロモティブエネルギー  $U_p$  が波長に対して 2 乗で急激に小さくなるが、一方、1 光子のエネルギーが  $10$  eV を超え始めると多くの原

子・分子の価電子の第一イオン化エネルギーよりも高くなり、1 光子吸収による光イオン化が可能となる。また X 線領域に至っては内殻電子の光イオン化が可能となるなど、赤外光、極紫外光、X 線領域と波長領域ごとに高強度レーザー光と物質との支配的となる相互作用は異なり、光吸収および光損傷の効果は自明ではない。

高強度短波長レーザー光による試料損傷を理解するためには、プラズマ加熱および 1 光子イオン化の寄与を評価する必要がある。我々は、EUV-FEL 光を照射された希ガスクラスタースからの解離イオンおよび蛍光のエネルギーを計測することにより、希ガスクラスタースがどの程度イオン化されたかを研究してきた。本稿では光吸収およびその後のクラスタース内の電荷再分配や電子・イオン再結合といった電荷ダイナミクスについて、実験的に研究を進めてきた結果を紹介する [18–21]。

## 2. 解離イオンの運動エネルギー計測実験

EUV-FEL 光を照射された希ガスクラスタースから放出された解離イオンの運動エネルギーは、クーロン爆発直前のクラスタースの全電荷数を直接反映する。本章では、COLTRIMS スペクトロメーター [22, 23] を用いてクラスタースからの解離イオンの運動エネルギー分布を計測することにより、クラスタースの光吸収過程および電荷分布について議論する。

### 2.1. 実験装置概要

図 2 にイオン運動量計測装置およびクラスタース源、EUV-FEL 光の概念図を示す。本イオン計測器は主に共同研究者の東北大学多元研の上田グループによって開発された。本実験では観測対象として、アルゴンおよびキセノンクラスタースを用い、著者は主に希ガスクラスタース源の開発を担当した。クラスタースビームは、スキマーを經由して COLTRIMS スペクトロメーターに導入され EUV-FEL 光に照射される。実験装置の詳細については文献 [18] を参照していただき、ここでは簡単に述べるに留める。実験は理研播磨研究所内に建設された SCSS 試験加速器 [2] からの

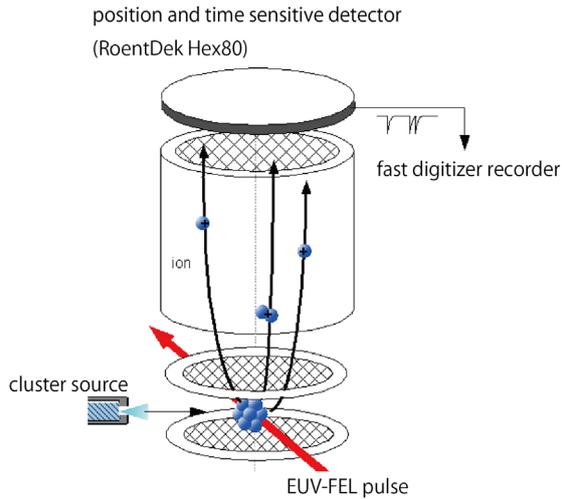


図 2: イオン運動エネルギー計測装置の概念図. クラスタ源からの希ガスクラスタは EUV-FEL 光に照射され, その解離イオンは多段の静電加速電極により位置・時間敏感型検出器に引き込まれる.

EUV-FEL 光を用いた. FEL 波長は 61 nm および 51 nm を使い, FEL 光パルス幅は 100 fs 程度である.

アルゴンおよびキセノン高圧ガスをノズルから真空チャンバー内に吹き出し, 超音速ジェット法により希ガスクラスタ  $\text{Ar}_N$  および  $\text{Xe}_N$  を生成した. 平均クラスタサイズ  $\langle N \rangle$  はノズル内ガス圧およびノズル温度を調整することで制御し, その平均クラスタサイズは Hagena [24, 25] のスケーリングパラメーター

$$\Gamma^* = k(d[\mu\text{m}])^{0.85}(P_0[\text{mbar}])(T_0[\text{K}])^{-2.2875}$$

を用いて求められる. ここで  $d$  はノズル径,  $P_0$  はノズル内のガス圧,  $T_0$  はノズル温度 (ガス温度),  $k$  は凝縮パラメーターであり元素ごとに違い, アルゴンでは  $k = 1646$ , キセノンでは  $k = 5554$  [25] である. 平均クラスタサイズ  $\langle N \rangle$  はスケーリングパラメーター  $\Gamma^*$  を使って, 経験式に

$$\langle N \rangle = 33 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35}$$

で求めた.

光照射によって生じたイオンは多段の静電場によって加速され delay-line 型の位置・時間敏感

イオン検出器 (RoentDek 社製 Hex80) に引き込まれる. 検出信号は電子回路を用いた NIM や TTL 信号変換することなく高速デジタイザ (Acqiris 社製 DC282 x2) で信号波形ごと保存した. その後 PC 上で信号波形解析することで 1 shot あたり 100 個程度までのイオンを検出信号間の不感時間なし [26] での計測を可能とし, イオンごとに飛行時間  $T$  および検出位置  $(X, Y)$  を求めた. 検出された  $(X, Y, T)$  より放出イオンの運動量は,

$$P_x = \frac{mX}{T}$$

$$P_y = \frac{mY}{T}$$

$$P_z = qE(T_0 - T)$$

で求めた. ここで  $m, q$  はイオンの質量および電荷で,  $E$  は引き込み電場の強さ,  $T_0$  は運動エネルギーがないときのイオンの飛行時間である. また, 解離イオンの運動エネルギーは  $(P_x^2 + P_y^2 + P_z^2)/2m$  より求めた.

## 2.2. 低強度レーザー/クラスタサイズ小

最初に, 弱いレーザー強度  $1.3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$  を用いたアルゴンクラスタ  $\text{Ar}_N$  ( $\langle N \rangle = 10\text{--}600$ ) の実験例を紹介する. このレーザー強度では, 孤立アルゴン原子に対しては 1 光子吸収により  $\text{Ar}^+$  イオンが観測されるが, 多光子過程が起こらず多価イオン  $\text{Ar}^{2+}$  ( $Z \geq 2$ ) が観測されなかった.

図 3 にアルゴンクラスタ  $\text{Ar}_N$  ( $\langle N \rangle = 600$ ) からの解離イオンの飛行時間 (TOF: Time-Of-Flight) 質量スペクトルと,  $\langle N \rangle = 10, 150, 600$  の解離イオンの検出器上のイオンイメージを示す. 残留ガス由来の  $\text{H}_2\text{O}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}_2^+$  イオンなどを除けば, 主な解離イオンは  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Ar}_2^+$ ,  $\text{Ar}_3^+$  などの 1 価イオンであり, 解離イオンの TOF ピークは幅広い成分が観測された. また  $\text{Ar}^+$  にはシャープな成分も観測されているが, これはクラスターストーム中の凝縮しなかった孤立アルゴン原子由来である. また多価イオン  $\text{Ar}^{2+}$  ( $Z \geq 2$ ) は観測されず, クラスタサイズが大きくなるに連れ解離イオンイメージが大きくなり, クラスタのクーロン爆発がより激しくなっていることがわかる.

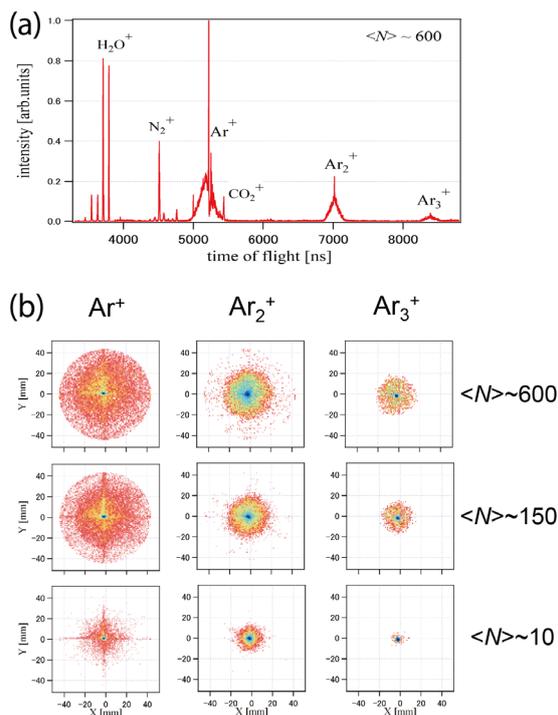


図 3: (a) EUV-FEL 光 ( $\lambda \sim 61 \text{ nm}$ ,  $I = 1.3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) 照射されたアルゴンクラスター  $\text{Ar}_N$  の飛行時間スペクトル ( $\langle N \rangle = 600$ ). (b) 解離イオン  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Ar}_2^+$ ,  $\text{Ar}_3^+$  のイオン検出器上のイメージ ( $\langle N \rangle = 10, 150, 600$ ).

図 4 に  $\text{Ar}^+$  イオンの放出運動エネルギー分布およびその平均運動エネルギーを示す. クラスターサイズが大きくなるに連れ平均運動エネルギーは増加するが, クラスターサイズ  $\langle N \rangle = 300, 600$  では次第にあまり変化しなくなる様子が観測された. また赤外光領域の高強度レーザー光の実験では, MeV 領域までの高エネルギーイオンが観測されるが, 極紫外光領域ではたかだか数  $10 \text{ eV}$  程度であることを考えると, 赤外光領域で見られる効率的なプラズマ加熱の寄与はほとんどなく, 光吸収はかなり弱いことを示す.

次に, 得られた解離イオンの運動エネルギー分布から分子動力学シミュレーションにより希ガスクラスターの全電荷数を議論する. 極紫外光領域では, 光電場加速による電子の運動エネルギーポンドロモティブエネルギー  $U_p$  は小さく, 波長  $61 \text{ nm}$ , 光強度  $10^{11} \text{ W/cm}^2$  では, わずか  $5 \times 10^{-5} \text{ eV}$  である. 一方, 1 光子のエネルギーはアルゴンのイオン化エネルギーを超えており, 吸

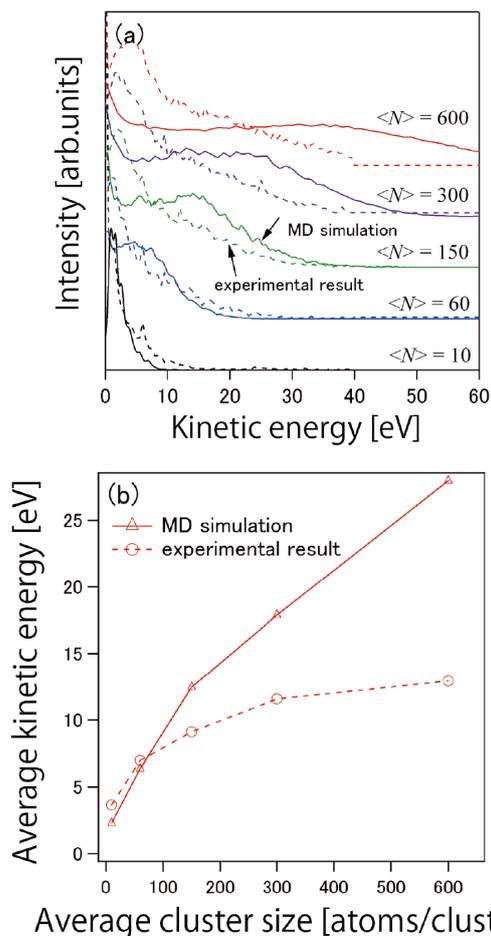


図 4: アルゴンクラスター  $\text{Ar}_N$  ( $\langle N \rangle = 10-600$ ) からの解離イオン  $\text{Ar}^+$  の実験値および分子動力学シミュレーションによる (a) 運動エネルギー分布および (b) 平均運動エネルギーの比較.

収断面積も  $36 \text{ Mbarn}$  [27] と大きい. そこでクラスター内の個々のアルゴン原子サイトが 1 光子吸収による光イオン化するとして, 希ガスクラスター内の全電荷数, すなわちイオン数を見積もる. 例えば,  $\langle N \rangle = 10$  および  $600$  ではそれぞれ平均  $1.4$  および  $84 \text{ ions/cluster}$  と見積もられる. クラスターサイズが大きくなるに連れ複数のイオンを内包するが, クラスターの全電荷数(イオン数)と放出イオンの運動エネルギーの関係を明らかにするために, アルゴンクラスターのクーロン爆発の分子動力学シミュレーションを行った. ここで, クラスターサイズ分布は  $\log\text{-normal}$  分布とし, 集光 FEL 光はガウシアン分布を持つとした [18]. 図 4 に解離イオンの運動エネルギーの実験スペ

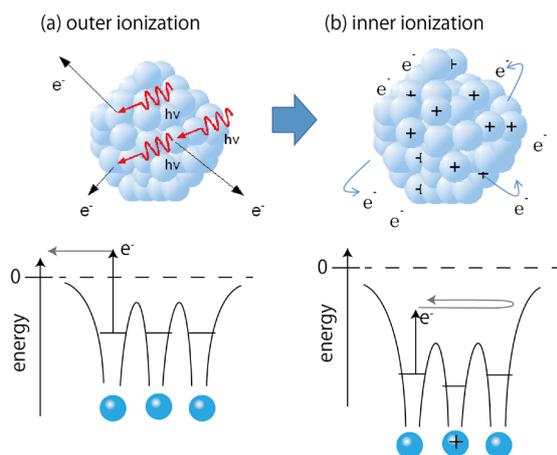


図 5: (a) 外側イオン化 (outer ionization) および (b) 内側イオン化 (inner ionization) の概念図.

クトルとシミュレーションの比較を示す. 小さいクラスターサイズ  $\langle N \rangle = 10, 60$  では解離イオンの運動エネルギー分布および平均運動エネルギーをシミュレーションはよく再現できた. この結果は, クラスター内の個々のアルゴン原子サイトが光イオン化し, 多数の  $\text{Ar}^+$  イオンを内包するアルゴンクラスターが形成しクーロン爆発していると仮定したことが正しかったことを示す. また, プラズマ加熱の効果は無視することと矛盾しない. しかしクラスターサイズが大きくなるに連れ, シミュレーションは実験結果よりも運動エネルギーを過大に評価してしまう結果が得られた. これは, 実際のクラスターの全電荷数が個々のアルゴン原子サイトの吸収断面積から見積もられる吸収光子数よりも小さく, クラスター全体の多価イオン化が飽和していることを示している.

ここで, 希ガスクラスターのイオン化について図 5 に示した外側イオン化 (outer ionization) と内側イオン化 (inner ionization) [27] の概念を用いて我々の実験結果を解釈する. 外側イオン化はアルゴン原子サイトが光イオン化後, 光電子はすぐにクラスターから離れていくが, 内側イオン化は光吸収アルゴン原子サイトからは離れるがクラスターから離れることができず, プラズマ電子としてアルゴンクラスターに束縛される. アルゴン原子のイオン化エネルギーが  $15.7 \text{ eV}$  であり光エネルギーが  $20 \text{ eV}$  程度であることを考えると, 光電子の運動エネルギーは  $4 \text{ eV}$  程度しかなく, 多

段の外側イオン化によって多価イオン化したクラスターが強いクーロン引力ポテンシャルを形成し, 次第に光電子の運動エネルギーが低下してクラスターから離れられなくなる. その後, 内側イオン化が進むことで多数の光電子がクラスターに束縛されナノスケールのプラズマが形成される. 一方, 我々のシミュレーションではプラズマ電子は取り扱っていないため, 実験値とシミュレーションが一致しなくなったと考えられる. このような多段のアルゴン原子の光イオン化によって外側イオン化が進行することで光電子の運動エネルギーが徐々に低下する様子は, ドイツのグループによって直接観測された [29].

我々の実験結果は, 次のように解釈できる. アルゴンクラスターは最初個々のアルゴン原子サイトの外側イオン化によってクラスター内に多数のイオンが生成される. しかし, 次第に強くクーロンポテンシャルが形成されるため, 光電子がクラスターから離れなくなり, 内部イオン化によりナノプラズマ化する. レーザー強度  $1.3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ , 波長  $61 \text{ nm}$  では, 赤外光領域でしばしば観測されるような激しい光電場によるプラズマ加熱は観測されなかった.

### 2.3. 高強度レーザー/クラスターサイズ大 [20]

次に, 高強度レーザーによるキセノンクラスター内の電荷再分配について紹介する. 使用した波長  $52 \text{ nm}$ , レーザー強度  $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  では, 孤立キセノン原子に対して非線形光学効果による多価イオン化が観測された. 対応するポテンシャルエネルギー  $U_p$  は  $5 \text{ meV}$  であり, アルゴンクラスター同様プラズマ加熱の効果は無視できる. またキセノンクラスターを用いたのは, アルゴンよりもキセノン原子間のファンデルワールス力が強く, 容易に  $\langle N \rangle = 10000$  を超える大きなクラスターサイズを作ることができるためである.

EUV-FEL 光照射された孤立キセノン原子およびクラスターからの解離イオンの飛行時間スペクトルを図 6 に示す. 孤立キセノン原子では多段の 1 光子および多光子吸収により最大 4 価まで多価イオンが観測された. 一方, キセノンクラスターでは主な解離イオンは 1 価イオン  $\text{Xe}^+$ ,  $\text{Xe}_2^+$  であ

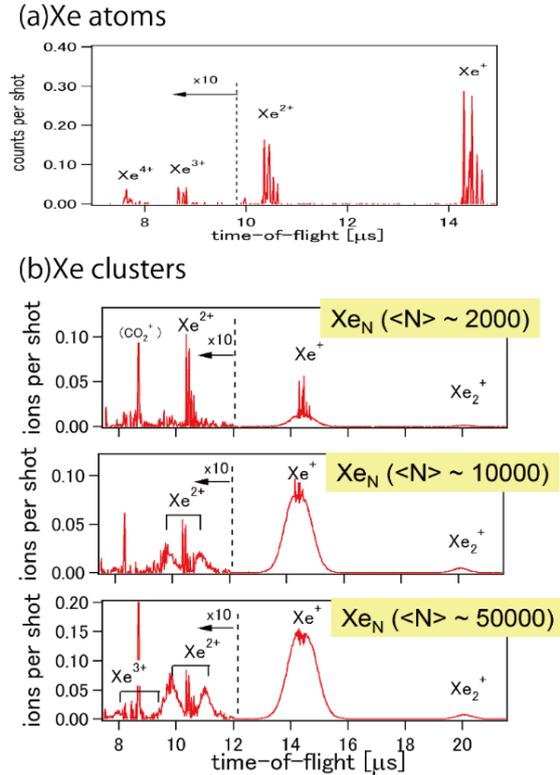


図 6: EUV-FEL 光 ( $\lambda \sim 52$  nm,  $I = 2 \times 10^{13}$  W/cm $^2$ ) 照射された (a) 孤立キセノン原子および (b) キセノンクラスター  $\text{Xe}_N$  ( $\langle N \rangle = 2000, 10000, 50000$ ) の飛行時間スペクトル。

った。  $\langle N \rangle = 2000$  では運動エネルギーも持つ解離多価イオンは観測されず、  $\langle N \rangle = 10000$  では 2 価イオン、  $\langle N \rangle = 50000$  では 3 価イオンまでが観測された。ここで飛行時間スペクトルにおいて 2 価イオン、 3 価イオンのピークが分裂しているのは、解離多価イオンが大きな運動エネルギーを持っており、スペクトロメーター軸に対して垂直に放出されたイオンはイオン検出器をはずれてしまうためである。クラスターにおける解離多価イオン生成量は明らかにクラスターサイズ依存性を持っており、1 原子過程とは異なる、クラスター全体としての電荷ダイナミクスを反映していると考えられる。

図 7 にクラスターサイズ  $\langle N \rangle = 50000$  における解離イオン  $\text{Xe}^+$ 、  $\text{Xe}_2^+$ 、  $\text{Xe}^{2+}$  の運動エネルギー分布を示す。1 価イオン  $\text{Xe}^+$ 、  $\text{Xe}_2^+$  は数 eV の低エネルギー成分をもつが、2 価イオン  $\text{Xe}^{2+}$  は平均 50 eV くらいのエネルギーを持っており、低エネルギー成分はほとんどない。解離イオンの運

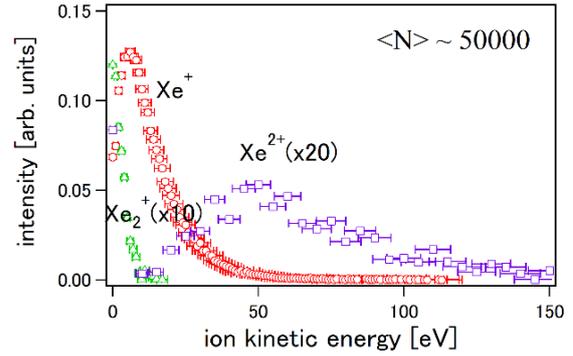


図 7: キセノンクラスター  $\text{Xe}_N$  ( $\langle N \rangle \sim 50000$ ) から放出された解離イオン  $\text{Xe}^+$ 、  $\text{Xe}_2^+$ 、  $\text{Xe}^{2+}$  の運動エネルギー分布。

動量ベクトルを解析すると、イオンの放出方向は等方的であり、クラスター内の電荷分布は等方的であると考えられる。そのためクラスター中心のイオンの受ける力は等方的なクーロン力により打ち消し合うため放出運動エネルギーはほぼ 0 となり、一方、表面のイオンは最も加速されるため最もエネルギーが高い。そのため、低エネルギーのイオンほどクラスター内部から、高エネルギーのイオンほどクラスター表面から生じている。2 量体  $\text{Xe}_2^+$  はクラスター中心原子サイト近くで、2 価イオン  $\text{Xe}^{2+}$  はクラスター表面原子サイトに生じていることを示している。

2 価イオン生成メカニズムについて、多価イオン化したクラスターのクーロンエネルギーの観点から考察する。電荷  $+Q$  をクラスター内に分配するとき、(i) クラスター内に  $Q$  個の 1 価イオン原子サイトがある場合と、(ii)  $(Q-2)$  個の 1 価イオン原子サイトと 1 個の 2 価イオン原子サイトがある場合について考える。(i) の場合、最も安定な電荷分布は均一にクラスター内に分布することであるため、すべて 1 価イオン原子サイトの場合のクラスターのエネルギー  $E_1$  は、イオン化ポテンシャルも考慮して原子単位系で書くと、

$$E_1 = \frac{3}{5} \frac{Q^2 e^2}{R} + Q I_1$$

と書ける。ここで  $R$  はクラスターの半径であり、 $I_1$  は Xe から  $\text{Xe}^+$  への第一イオン化エネルギーである。

(ii) の場合、  $(Q-2)$  個の 1 価イオン原子サイト

はクラスター内に均一に分布しており、2価イオンが表面原子サイトにいる場合が最もエネルギーが低く、そのエネルギーは、

$$E_2 = \frac{3(Q-2)^2 e^2}{5R} + \frac{2(Q-2)e^2}{R} + (Q-1)I_1 + I_2$$

と書ける。ここで  $I_2$  は  $\text{Xe}^+$  から  $\text{Xe}^{2+}$  への第二イオン化エネルギーである。単純な計算よりおおよそ  $Q > 100$  で  $E_1 > E_2$  となり、2価イオンが存在したほうがエネルギー的に低下する。このとき  $E_1 > E_2$  より、次の不等式が得られる。

$$\frac{2(Q-2)e^2}{R} > 5(I_2 - I_1) - 12 \frac{e^2}{R}$$

この左辺は、クラスター表面原子サイトでの2価イオンのクーロンポテンシャルを表す。このクーロンポテンシャルエネルギーは、クーロン爆発によってほとんど運動エネルギーに変換される [30]。そのため右辺は2価イオンの運動エネルギーを特徴づけるエネルギーである。 $\langle N \rangle = 50000$  に対しておおよそ 50 eV であり、確かによく実験値と一致する。同様にネオンクラスターおよびアルゴンクラスターにおいても、2価イオンの運動エネルギーをイオン化エネルギー  $I_1$ ,  $I_2$  およびクラスター半径  $R$  より見積もると、実験値をよく再現する結果が得られた [20]。この一致は、2価イオンがクラスター内で存在できるためには、クーロンエネルギーが安定である必要があることを示している。ここで2価イオン生成過程は、孤立原子同様にクラスター内の原子サイトが多光子過程によって生成していると考えられる。ナノプラズマ内の原子サイトの多価イオン化については、次節の発光スペクトルにより明らかにする。

以上、キセノンクラスターの実験をまとめると、クーロンエネルギーが最小になるように電荷移行などのダイナミクスにより電荷が再分配され、クーロンエネルギーが安定である場合に2価イオンがクラスター表面原子サイトに生成されることを示している。これは赤外光領域とは異なり、光電場によるプラズマ加熱 ( $\sim 5$  meV) がほとんどなく、イオンのクーロンポテンシャルが電荷移行やプラズマ電子のダイナミクスに対して支配的であるためと考えられる。

### 3. 蛍光測定

前節では孤立原子では多光子吸収により多価イオン化するが、希ガスクラスターからの解離イオンは主に1価の解離イオンを放出する結果が得られた。クーロン爆発直前には原子サイトは1価イオン化しているが、一時的にクラスター内の原子サイトが多光子過程によって多価イオンとなり、その後プラズマ電子の再捕獲や周囲の原子サイトへ電荷再分配することで1価イオンになっている可能性がある。特にプラズマ電子は光電場によるプラズマ加熱がないため低エネルギーであり、多価イオンと効率的に再結合が可能である。電荷移行またはプラズマ電子・イオン再結合によって励起原子が生成されていれば、その電子状態を反映した蛍光スペクトルが得られるはずである。そこで我々は、ナノプラズマからの蛍光を測定することにより、クーロン爆発する前のナノプラズマ内原子サイトの電子状態を特定し、多価イオンの生成、また電子・イオン再結合による励起多価イオン生成過程に関する情報を得ることを目的に蛍光実験を行った。

#### 3.1. 実験装置概要

実験装置の詳細については、文献 [21, 31] を参照していただき、ここでは簡単に述べるに留める。図8に本実験で利用した発光分光器の概念図を示す。著者は主にクラスター源を含む装置全体の設計に関与した。実験はこれまでの実験同様に SCSS 試験加速器にてアルゴンガスおよびアルゴンクラスターに対して行った。光子エネルギーはアルゴン原子のイオン化ポテンシャル

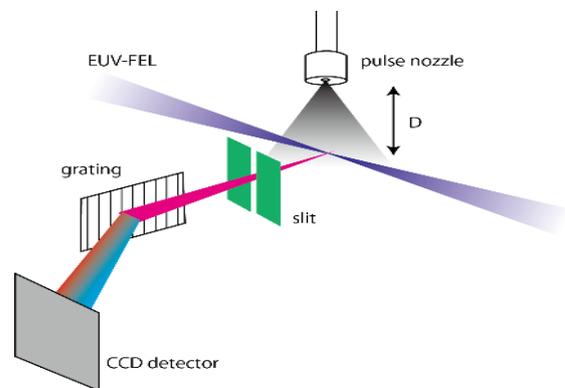


図8: アルゴンクラスター源および斜入射分光器概念図。

15.6 eV よりも高い光子エネルギーである 24 eV (波長  $\lambda \sim 51$  nm). レーザー強度は  $3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> であり, 孤立アルゴン原子に対しては Ar<sup>6+</sup> まで観測されているが, アルゴンクラスターについては 2 価イオン Ar<sup>2+</sup> までしか観測されていない [19, 32]. ナノプラズマ化したアルゴンクラスターからの蛍光は, 真空光学社製の平面結像型射入射分光器を用いて計測された. 分光器軸は FEL 入射光軸に対して垂直であり, 偏光方向に対して平行である. EUV 蛍光は収差補正型回折格子 (溝本数 600 lines/mm) で分散され, CCD カメラ (Andor 社製 DO420BN) によって検出される. この分光器の計測範囲は, 波長 10–100 nm であり, 波長分解能  $\lambda/\Delta\lambda$  は 300 程度であった. アルゴンクラスターは EUV-FEL 光と同期したパルスノズル (ノズル径 500  $\mu$ m) を用いて, 超音速ジェット法により生成した. 平均クラスターサイズはノズル内のアルゴンガスの圧力を変えることで調整し, Hagen の経験則によって平均サイズを求めた.

### 3.2. 蛍光測定 [21]

高強度レーザー光は強い電離作用を持っているため, 高密度アルゴンガスに対してはもはや孤立アルゴン原子とは言えずマクロなプラズマを形成し発光する. そのため, マクロなプラズマとナノプラズマ化した孤立した希ガスクラスターからの発光とを区別する必要がある. そこでノズルから照射位置までの距離  $D$  を変え, 原子密度を変えながら発光強度を測定し, 断熱膨張によって次第にクラスターが成長すると発光強度がどのように変化するかを調べた. 図 9 にノズル・相互作用領域までの距離  $D$  に対して, 原子密度で規格化した発光強度の依存性を示す.  $D < 1$  mm では発光強度はあまり強くなく, 1–5 mm の間に発光強度が 2 桁ほど増大していることがわかる. この 1–5 mm の領域は, 試料アルゴンガスが断熱膨張による冷却によりクラスター形成される領域である. そのためクラスターが形成されたことで発光強度が著しく増加したと考えられる. また 5 mm 以上で発光強度が増加しないのは, 原子密度が十分低下しクラスターの成長が止まっていることに対応する. このノズル間

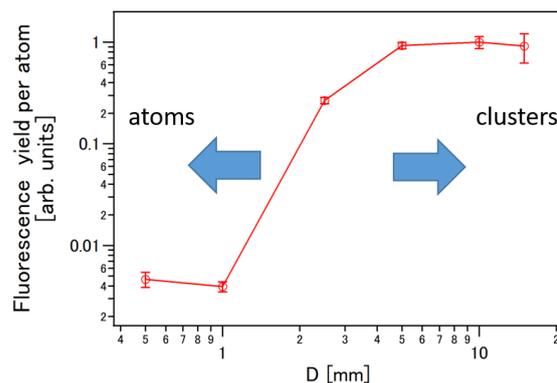


図 9: EUV-FEL 光 ( $\lambda \sim 51$  nm,  $I \sim 3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) 照射された試料ガスからの原子密度で規格化された発光強度のノズル距離依存性.

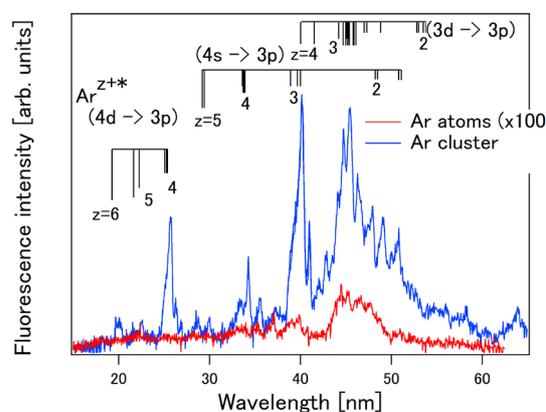


図 10: アルゴン原子集団 ( $D = 1$  mm) およびアルゴンクラスター Ar<sub>N</sub> ( $D = 10$  mm,  $\langle N \rangle = 500$ ) からの発光スペクトル.

距離依存性は, 10 mm 離せば十分クラスターが成長しており, 十分原子密度が減少することで孤立アルゴンクラスターとみなすことができることを示す.

図 10 にクラスター形成前のマクロなアルゴンプラズマ ( $D = 1$  mm) とクラスター形成後のアルゴンナノプラズマ ( $D = 10$  mm) からの蛍光スペクトルを示す. 蛍光スペクトルには多くのピークが観測されており, NIST のデータベースによるとそれぞれのピークは励起多価イオンからの蛍光に対応している. 孤立原子集団では, 主に 3 価イオン以下の発光がほとんどであるのに対して, ナノプラズマ化したアルゴンクラスターでは 6 価までの発光が観測された. ここで注目すべき点は, 入射波長 51 nm よりも短波長の蛍光が観測されて

いることである。入射 FEL 波長を 54 nm にしてもほぼ同じ構造の蛍光スペクトルが得られ、顕著な波長依存性はみられなかった。この結果は、励起多価イオンは入射光による共鳴励起によって生成していないことを示す。また解離イオンが主に 1 価であることを考えると、ナノプラズマ内で生成した多価イオン原子サイトは電荷移行またはプラズマ電子を再捕獲することで励起多価イオン状態を生成している。

入射光 51 nm に対して観測された最も短い蛍光波長は 20 nm であり、励起 6 価イオンからの蛍光緩和に相当する。同様の EUV-FEL 光照射条件において孤立アルゴン原子が最大 6 価イオンまで生成していることから [32], 20 nm の蛍光の観測はクラスター内でも多光子吸収による内側イオン化により同様の多価イオンが生成していることを示している。

本実験により、希ガスクラスターの原子サイトは孤立原子と同様に多価イオンが生成され、プラズマ電子とイオンが再結合することで、励起多価イオンを効率的に生成していることが明らかになった。

#### 4. まとめ

最後に、EUV-FEL 光照射された希ガスクラスターから放出された解離イオンおよび蛍光のエネルギー測定実験により得られた光吸収および緩和についての描像を簡潔に述べる。

低レーザー強度  $1.3 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>、波長 61 nm を照射されたアルゴンクラスターは、1 光子のエネルギーがイオン化エネルギーを超えているため、クラスター内の個々の原子サイトが 1 光子イオン化する。その結果、クラスターが多数のイオンを内包する形で多価イオン化する。しかし、多価イオン化が進むに連れ、クラスターは強いクーロン引力ポテンシャルをつくり、光電子はクラスターから離れられなくなる。結果、光電子は光吸収原子サイトからは離れられるがクラスターからは離れられなくなり、クラスターはナノスケールのプラズマ化するが、効率的なプラズマ加熱は起こらず、孤立アルゴン原子同様に解離イオンはすべて 1 価イオンであった。

一方で孤立原子に対して非線形光学効果に

よる多価イオン化が起こる高レーザー強度 ( $I > 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) では、ナノプラズマ内では一時的に孤立原子と同様にクラスター内の原子サイトは多価イオン化する。しかし、多価イオン原子サイトは、プラズマ電子や電荷移行によりクラスター内でエネルギーが安定化するように電荷再分配する。その結果、解離イオンはほとんど 1 価であり、クラスターサイズが大きくなると、クーロンエネルギーが安定化することでクラスター表面原子サイトから 2 価イオンが放出され始める。

極紫外光領域では非線形光学効果が起こるほどの高強度レーザー強度 ( $I > 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) であっても、プラズマ電子の光電場による加速は弱く、赤外光領域で見られた効率的なプラズマ加熱は観測されず、レーザー強度  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 程度では激しい光損傷は起こらないと言える。

本稿では極紫外光領域での光吸収および緩和について解説したが、X 線領域でのクラスターの光吸収および緩和過程について興味がある読者は、文献 [33, 34] を参照してほしい。X 線領域では内殻電子が放出されるため、オージェ電子放出が起こり、EUV 領域とはまた違った振る舞いを行い、また興味深い。このように希ガスクラスターは、赤外・極紫外・X 線領域と様々な波長領域において高強度レーザー光と物質との相互作用を研究するうえで重要な役割を果たしている。

#### 謝辞

本稿で紹介した研究は、故八尾誠教授(京都大学)、上田潔教授(東北大)、繁政英治准教授(分子研)との共同研究である。ここに感謝の意を表す。また査読者には、度重なる丁寧な査読、また多数の有益なコメントをいただいたことに対して感謝いたします。

#### 参考文献

- [1] W. Ackermann *et al.*, Nat. Photon. **1**, 336 (2007).
- [2] T. Shintake *et al.*, Nat. Photon. **2**, 555 (2008).
- [3] P. Emma *et al.*, Nat. Photon. **4**, 641 (2010).
- [4] T. Ishikawa *et al.*, Nat. Photon. **6**, 540 (2012).
- [5] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert and J. Hajdu, Nature **406**, 752 (2000).

- [6] R. L. Johnston, *ATOMIC AND MOLECULAR CLUSTERS* (Taylor & Francis, Oxford, 2002).
- [7] H. Haberland, *Clusters of Atoms and Molecules: Theory, Experiment, and Clusters of Atoms* (Springer-Verlag, Berlin, 1994).
- [8] H. Wabnitz *et al.*, *Nature* **420**, 482 (2002).
- [9] H. Fukuzawa *et al.*, *Phys. Rev. A* **79**, 031201(R) (2009).
- [10] H. M. Milchberg *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2364 (1988).
- [11] D. F. Price, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 252 (1995).
- [12] V. Kumarappan, M. Krishnamurthy and D. Mathur, *Phys. Rev. A* **67**, 043204 (2003).
- [13] Th. Fennel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 143401 (2007).
- [14] T. Ditmire *et al.*, *Nature* **386**, 54 (1997).
- [15] M. Hirokane *et al.*, *Phys. Rev. A* **69**, 063201 (2004).
- [16] A. McPherson *et al.*, *Nature* **370**, 631 (1994).
- [17] T. Ditmire *et al.*, *Nature* **398**, 489 (1999).
- [18] H. Iwayama *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 134019 (2009).
- [19] H. Iwayama *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 164019 (2013).
- [20] H. Iwayama *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 161001 (2010).
- [21] H. Iwayama *et al.*, *Phys. Rev. A* **91**, 021402(R) (2015).
- [22] R. Dörner *et al.*, *Phys. Rep.* **330**, 95 (2000).
- [23] J. Ullrich *et al.*, *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1463 (2003).
- [24] O. F. Hagena and W. Obert, *J. Chem. Phys.* **56**, 1793 (1972).
- [25] R. Kambach, M. Joppien, J. Stapelfeldt, J. Wörmer and T. Möller, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 2838 (1993).
- [26] K. Motomura *et al.*, *Nucl. Instrum. Method. Phys. Res. A* **606**, 770 (2009).
- [27] J. A. R. Samson and W. C. Stolte, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **123**, 265 (2002).
- [28] Ch. Siedschlag and J. M. Rost, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 043402 (2004).
- [29] C. Bostedt *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 133401 (2008).
- [30] Md. R. Islam, U. Saalman and J. M. Rost, *Phys. Rev. A* **73**, 041201(R) (2006).
- [31] H. Iwayama *et al.*, *Opt. Express* **20**, 23174 (2012).
- [32] K. Motomura *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 221003 (2009).
- [33] Y. Kumagai *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 223201 (2018).
- [34] Y. Kumagai *et al.*, *Phys. Rev. X* **8**, 031034 (2018).

---

## 2019 年度 役員・委員会

### 会長

城丸春夫（首都大学東京）

### 幹事

平山孝人（立教大学）〔副会長〕

彦坂泰正（富山大学）

吉井裕（量子科学技術研究開発機構）

土田秀次（京都大学）

松本淳（首都大学東京）

### 運営委員

東俊行（理化学研究所）

加藤大治（核融合科学研究所）

土田秀次（京都大学）

平山孝人（立教大学）

松本淳（首都大学東京）

石井邦和（奈良女子大学）

金安達夫（九州シンクロトロン光研）

木野康志（東北大学）

鵜飼正敏（東京農工大学）

田沼肇（首都大学東京）

彦坂泰正（富山大学）

間嶋拓也（京都大学）

吉井裕（量子科学技術研究開発機構）

大橋隼人（富山大学）

歸家令果（東京大学）

中井陽一（理化学研究所）

### 常置委員会

編集委員会 委員長：彦坂泰正（富山大学）

行事委員会 委員長：土田秀次（京都大学）

広報渉外委員会 委員長：吉井裕（量子科学技術研究開発機構）

顕彰委員会 委員長：平山孝人（立教大学）

庶務委員会 委員長：松本淳（首都大学東京）

---

編集委員 大橋隼人, 岡田邦宏, 金安達夫, 北島昌史,  
中井陽一, 彦坂泰正, 松田晃孝, 森下亨



しょうとつ 第17巻 第1号 (通巻92号)

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2020

<http://www.atomiccollision.jp/>

発行: 2020 年 1 月 15 日

配信: 原子衝突学会事務局 <[acr-post@bunken.co.jp](mailto:acr-post@bunken.co.jp)>