

コヒーレント X 線レーザー照射によるキセノンクラスターの 光吸収・電離過程の解明

Photoabsorption and photoionization in Xe clusters irradiated with coherent x-ray laser

難波慎一¹⁾, 長谷川登²⁾, 岸本牧²⁾, 錦野将治²⁾, 助川鋼太²⁾, 山谷寛²⁾, 河内哲哉²⁾, 田中桃子²⁾, 越智義浩²⁾, 永島圭介²⁾

Shinichi NAMBA¹⁾, Noboru HASEGAWA²⁾, Maki KISHIMOTO²⁾, Masaharu NISHIKINO²⁾, Kouta SUKEGAWA²⁾, Hiroshi YAMATANI²⁾, Tetsuya KAWACHI²⁾, Momoko TANAKA²⁾, Yoshihiro OCHI²⁾, and Keisuke NAGASHIMA²⁾

¹⁾広島大学, ²⁾原子力機構

高強度 X 線レーザーを多数の原子の集合体である希ガスクラスター照射し、その相互作用を明らかにする実験を行っている。今回はイオン飛行時間分解計測に加え、電子エネルギー分布を計測し、内殻電離ダイナミクスを調べたので報告する。

キーワード : X 線レーザー, クラスタープラズマ, 内殻電離, オージェ過程

1. 目的

本研究の目的は、原子力機構が開発を進めてきたプラズマ励起軟 X 線レーザー($\lambda=13.9$ nm) とキセノン(Xe)クラスターの相互作用を明らかにすることにある。ここで重要なのは、波長 13.9 nm (光子エネルギー: 89.2 eV) では Xe 4d 内殻電子を光電離する過程が最も大きな反応断面積を持つということである。つまり、従来のように電離が最外殻電離から発生するのではなく、より原子核との結び付きが強い内殻電子からイオン化が始まることになる。通常この内殻励起状態(Xe 4d¹) は数フェムト秒のオーダーでオージェ脱励起するため、Xe²⁺イオンが最も多く発生することが放射光の実験で報告されている。これまでの実験で、放射光と比較して格段にピーク輝度が高い軟 X 線レーザーを Xe クラスタースに照射すると、Xe³⁺の生成効率が最も高くなることが判明している。このことは、内殻電離の脱励起過程としてダブルオージェ崩壊(光電子 1 個、オージェ電子 2 個が放出される)が支配的であることを意味している[1]。

したがって平成 19 年度下半期では上半期に引き続き、電子エネルギー分布を飛行時間分解計測法により決定し、高輝度 X 線にさらされたクラスター中において何故ダブルオージェ遷移確率が大きくなるのかについて調べたので報告する。

2. 方法

本実験に使用した X 線レーザーは、銀プラズマを媒質とする過渡励起方式によって発生するプラズマ励起 X 線レーザー (波長: 13.9 nm, 光子エネルギー: 89.2 eV, パルス幅: ~7 ps) である。Xe クラスタースは超音速ノズルから高圧ガスを断熱自由膨張させることにより生成した。Hagena による経験式から評価した平均クラスターサイズは数 100~10⁵ atoms/cluster である。X 線レーザーは Mo/Si 多層膜球面鏡で集光され、ノズル出口から 20 cm 下流にて Xe クラスタースに照射した。集光位置での X 線レーザー強度は最高で 2×10^{10} W/cm² であり、ショット毎に軟 X 線 CCD カメラを用いて決定した。なお、相互作用により吸収される光子数は非常に少ないと考えられるため (1%以下)、強度減衰の補正は行っていない。

生成される多価イオン、及び、そのエネルギーは飛行時間分解分析装置(Time-Of-Flight Mass Spectrometry: TOF-MS)を用いて計測した。また、内殻電離により発生する電子のエネルギー分布を測定するために、高速 MCP をイオン TOF 分析装置と対向するように取り付けた。電子計測では地磁気程度の弱磁場でも電子軌道が大きく曲げられるため、電子の検出効率が著しく低下する。したがって、フライトチューブ内は強磁性体で磁気シールドを施した。なお、上半期ではガスジェット噴射中に真空容器内のガス密度が大幅に上昇し、荷電粒子計測に悪影響を及ぼす可能性があることが判明した。そこで下半期では大型超高真空対応の真空容器を新たに製作し、大排気量ポンプを取り付けることで相互作用領域のガス圧上昇を抑制した。

一方、クラスタースジェット中にはクラスタリングしなかった多数の原子が含まれており、それら

から放出される電子は主にレーザー偏光方向に放出されると考えられる。それに対し、クラスターからの電子は等方的に放出されると考えられる。したがって、各計測器はレーザー偏光方向に対して90度方向に取り付け、クラスターから放出される電子の寄与のみを計測することにした。

3. 研究成果

高強度X線レーザー・Xe クラスター相互作用一特に内殻電離を伴う光吸収過程一を解明するためにこれまではイオン TOF を中心に計測を行った。その結果、Xe クラスター内では、ダブルオージェ崩壊過程と呼ばれる Xe $4d^1$ 内殻電離状態から Xe³⁺イオンが発生する脱励起の遷移確率が高くなることを見いだした。このような現象は放射光を用いた原子を標的とした実験では観測されていない。このダブルオージェ遷移確率増大メカニズムを解明するために、今回は電子 TOF 計測を中心に実験を行った。

電子エネルギー分布関数を評価した結果、光電子やオージェ電子に付随するスペクトルピークは観測されず、Maxwell 分布に近いようなエネルギー分布であることが判明した。バルクターゲットから電子が弾性・非弾性散乱を被らずに表面から脱出できるおおよその距離は 1 nm であり、クラスターサイズは本実験の場合数 nm 程度以下であるため、このエネルギー緩和により熱化したエネルギー分布となったとは考えにくい。この結果は、最近ドイツの FLASH X線自由電子レーザー(レーザー波長: 32.8 nm, パルス幅: 25 fs, 強度: 5×10^{13} W/cm²) をアルゴンクラスターに照射した実験で得られた結果[2]と良く一致している。この原因として最も有力とされているのは、クラスター内部での高密度効果に伴うイオン化ポテンシャル(IP)の低下、および、それによって一層促進されるイオン化、である。実際、この解釈は量子論的電離・励起係数を考慮した分子動力学法による数値計算からも指示されている[3]。

一方、我々は本実験条件下で光電離・電子衝突電離を考慮した Xe 原子から Xe⁴⁺イオンまでのレート方程式を解いた結果、クラスター内の原子は約 10%電離されることが分かった[4]。ここで(1) Xe クラスター内の原子数密度は 10^{21} cm⁻³ 以上であること、(2) レーザー電場による電子振幅・振動エネルギーは極めて小さく衝突加熱が寄与しないためプラズマ温度は数 eV 程度となること、を考えれば強結合クラスタープラズマが発生することになる[5]。

以上のことから次のような結論に達した。まず、高強度 X線レーザー照射下でクラスターは光電離により強結合プラズマとなり、Xe³⁺イオンを電離するための IP が低下する。Xe³⁺イオンの IP が数 eV 低下した場合、内殻電離状態である Xe $4d^1$ から Xe³⁺準位への脱励起可能な遷移チャンネルが増えることになり、結果としてダブルオージェ遷移確率 (Xe³⁺イオン生成効率) の増大につながる。実際、孤立原子系では $4d^1_{3/2}$ からは Xe³⁺イオン($5p^3$)の $^4S_{3/2}$, $^2D_{3/2, 5/2}$, $^2P_{1/2, 3/2}$ の 5 つの準位への脱励起チャンネルがエネルギー的に可能であるのに対し、 $4d^1_{5/2}$ からは $^2D_{5/2}$, $^2P_{1/2, 3/2}$ のみが許容されている。このわずか 2 つの準位の差により、Xe²⁺/Xe³⁺イオン生成比が $4d^1_{3/2}$ に対しては~3.5、 $4d^1_{5/2}$ に対しては~5.0 と大きく異なる[6]。

4. 結論

高強度 X線レーザー・Xe クラスター相互作用で Xe 内殻ホール($4d^1$)崩壊過程としてダブルオージェ遷移が支配的となることが明らかにされており、電子 TOF 計測からこの原因を特定することを試みた。電子エネルギー分布関数は Maxwell 分布で良く近似でき、強結合クラスタープラズマが発生していることが判明した。そのため Xe³⁺イオンの IP が低下し、Xe $4d^1$ から Xe³⁺準位への脱励起可能な遷移チャンネルが増え、結果としてダブルオージェ遷移確率 (Xe³⁺イオン生成効率) の増大することが予想される。今後、レーザー強度、及び、クラスターサイズを変化させて、分布関数がどのように変化していくのかを調べる予定である。

5. 引用(参照)文献等

- [1] S. Namba *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 043004 (2007).
- [2] C. Bostedt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **100**, 133401 (2008).
- [3] I. Georgescu *et al.*, Phys. Rev. A **76**, 043203 (2007).
- [4] S. Namba *et al.*, J. Phys. Conf. Series. (to be published).
- [5] C. Jungreuthmayer *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **38** 3029 (2005).
- [6] T. Luhmann *et al.*, Phys. Rev. A **57**, 282 (1998).