

筑波大学大学院博士課程

数理物質科学研究科博士論文

博士（工学）

レーザークラスター相互作用  
による単色X線生成

林 由紀雄

ナノサイエンス・ナノテクノロジー専攻



# 目次

<b>1</b>	<b>序章</b>	<b>1</b>
1.1	レーザープラズマ X 線源について . . . . .	1
1.2	高強度超短パルスレーザー開発と応用の歴史 . . . . .	3
1.3	プラズマ及びレーザーの基礎 . . . . .	5
1.4	本章のまとめ . . . . .	7
<b>2</b>	<b>利用した超高強度短パルスレーザーの特性及びその調整</b>	<b>8</b>
2.1	J-KAREN レーザーの出力 . . . . .	10
2.2	J-KAREN レーザーのレーザー波長分布 . . . . .	11
2.3	J-KAREN レーザーの空間スペクトル . . . . .	12
2.4	J-KAREN レーザーのコントラスト . . . . .	13
2.5	レーザーパルス幅の最適化 . . . . .	14
2.6	軸外し放物面鏡による集光 . . . . .	15
2.7	本章のまとめ . . . . .	17
<b>3</b>	<b>レーザークラスター X 線生成実験の背景及び実験セットアップ</b>	<b>18</b>
3.1	レーザークラスター X 線生成実験の背景 . . . . .	18
3.2	実験室及び実験チャンバー . . . . .	19
3.3	クラスターノズル . . . . .	19
3.4	クラスターノズル制御機構 . . . . .	19
3.5	粒子線計測器 . . . . .	20
3.6	本章のまとめ . . . . .	25
<b>4</b>	<b>Three Stage ノズルを用いた X 線発生実験の結果</b>	<b>26</b>
4.1	X 線 CCD のエネルギー校正 . . . . .	26
4.2	Xe クラスターの結果 . . . . .	28
4.3	Ar クラスターの結果 . . . . .	32
4.4	Kr クラスターの結果 . . . . .	36
4.5	本章のまとめ . . . . .	38
<b>5</b>	<b>Three stage ノズルで生成されるクラスターの考察</b>	<b>39</b>
5.1	Three stage ノズルの特徴 . . . . .	39
5.2	相互作用するクラスター個数のクラスター半径依存性 . . . . .	39
5.3	クラスターサイズ評価に用いられたクラスター生成理論 (古典的核生成理論) . . . . .	40
5.4	古典的核生成理論の議論 . . . . .	42
5.5	クラスター半径の計測原理 . . . . .	44
5.6	クラスター半径計測のセットアップ . . . . .	47
5.7	クラスター半径の計測結果 . . . . .	48

5.8	本章のまとめ	50
<b>6</b>	<b>コニカルノズルでの X 線発生実験</b>	<b>51</b>
6.1	一般的なクラスター生成法	51
6.2	コニカルノズルから生成される Xe クラスターのサイズ	55
6.3	コニカルノズルでの実験結果	56
6.4	本章のまとめ	64
<b>7</b>	<b>実験結果とクラスター加熱モデルの計算結果の比較</b>	<b>65</b>
7.1	両モデルに共通するメカニズム	65
7.2	マイクロプラズマモデルの理論	70
7.3	マイクロプラズマモデルの計算結果	73
7.4	古典的軌跡モンテカルロ・シミュレーションモデル (CTMC モデル) の理論	77
7.5	CTMC モデルの主な計算結果	79
7.6	実験結果とモデル計算結果の比較	83
7.7	本章のまとめ	89
<b>8</b>	<b>レーザープラズマ X 線の応用とそのための課題</b>	<b>90</b>
8.1	クラスターサイズの計測法	90
8.2	高エネルギー X 線用計測器の開発	91
8.3	血管造影のイメージング	93
8.4	本章のまとめ	94
<b>9</b>	<b>結論</b>	<b>95</b>
	<b>参考文献</b>	<b>98</b>
<b>A</b>	<b>希ガスクラスターの性質</b>	<b>107</b>
<b>B</b>	<b>光パラメトリックチャープパルス増幅 (OPCPA)</b>	<b>110</b>
<b>C</b>	<b>レーザーパルス幅と波長の関係</b>	<b>111</b>
<b>D</b>	<b>分光結晶の種類</b>	<b>112</b>
<b>E</b>	<b>レーザーによる電子加熱 (加速)</b>	<b>113</b>
E.1	逆制動放射	113
E.2	共鳴吸収	114
E.3	真空加熱	114
E.4	ポンデロモーティブ・ポテンシャル	114
E.5	ポンデロモーティブ加速	115
E.6	レーザー航跡場加速	117

<b>F</b>	古典的核生成理論の導出	<b>119</b>
<b>G</b>	マイクロプラズマモデルの式の導出	<b>121</b>
G.1	電子加熱の式 . . . . .	121
G.2	電子振動による電離 . . . . .	122
<b>H</b>	任意の集光位置における実効体積の式の導出	<b>124</b>



# 1 序章

## 1.1 レーザープラズマ X 線源について

1895 年、レントゲンはクルックス管を用いて研究をしている時に、蛍光体の発光からこれまで知られていない未知の線、X 線を発見した。この発見以降、X 線に関する研究が精力的に行われるようになった。現在では X 線は物質中での透過吸収特性、(トムソン) 散乱特性、蛍光発光特性を利用した応用が多数存在し、生活に欠かせないツールの一つとなっている。代表的な例として透過吸収を利用した医療分野での X 線 CT、材料分野での非破壊検査、散乱特性を利用した結晶構造解析、蛍光特性を利用した蛍光 X 線分析などが挙げられる。これらの応用を支える既存の X 線源の種類は少なく、X 線発生装置、放射光施設、X 線自由電子レーザーの三種類のみである。これらの線源にはそれぞれ特徴を有しており、以下の表に記載する (Table 1.1)。

Table 1.1 X 線源の種類と特徴

装置名	パルス光/連続光	コスト	コヒーレンス性	単色性
X 線発生装置	連続光	低コスト	数百万~ 一千万円	悪い (分光要)
放射光施設	連続光	高コスト	千億円	悪い (分光要)
X 線自由電子レーザー	パルス光	数百億円	高い	良い

さて近年、物性物理の分野では短パルスの X 線源が待望されるようになってきた。なぜなら結晶が高速で相転移する事がわかってきたためである。例えばわずか 1 ps ( $10^{-12}$  s) の時間内に  $\text{VO}_2$  がパルスレーザー照射により金属的な性質 (ルチル構造の結晶構造) から絶縁物質 (単斜構造) に変化する事を確認されている<sup>4)</sup>。1 ps の極めて短い時間内で金属から絶縁体に又は絶縁体から金属にスイッチングできるこの性質はデバイス応用にも繋がる研究対象であり、原子の動きをリアルタイムで観察することは物理的にも興味深い研究対象である。このような高速ダイナミクスを観測可能な X 線源は X 線自由電子レーザーのみである。しかし X 線自由電子レーザーの建設費だけでも数百億円であり、量産される可能性は極めて低い。それ故、限られたごく少数の研究者しかこの自由電子レーザーを使えていない状態である。

これの解決方法として近年、超短パルスレーザーとターゲットプラズマの相互作用 (レーザープラズマ相互作用) を利用し、既存の X 線発生源と異なる装置構成で X 線を生成する手法が注目されている。この手法では ps の短パルスかつ keV 以上の高エネルギー単色 X 線を発生する事が可能で、既存の X 線源で ps の短パルスが生成可能な X 線自由電子レーザーと比べると格段に低コスト (1 億円程度) であることから、魅力的な光源といえよう。X 線生成効率の向上やレーザーショット毎の X 線生成強度の安定性などの課題が残っているが、これらを克服できればコンパクトな短パルス X 線源として普及すると思われる。既にレーザープラズマ相互作用で生成した単色 X 線を用いた研究は試験的に開始されている。例として X 線構造解析<sup>5)</sup>、時間分解 X 線吸収分光<sup>6)</sup>、蜘蛛の位相コントラストイメージング<sup>7)</sup>などを挙げる事が出来る。

レーザープラズマ相互作用のためのターゲットとして比較的良く用いられてきたのは固体ターゲットであった。固体ターゲット材質や厚さ、レーザー集光条件を最適化する事により、比較的高い強度

の X 線が生成する事が出来る（固体中は原子が密に配列された構造をとるので、レーザーでターゲット内に生成された高エネルギー電子は周囲の原子と電離や励起を高い頻度で起こす。その結果、制動放射 X 線に加えて高強度の特性 X 線が発生する）。8 keV の Cu  $K_{\alpha}$  や 22.1 keV の Ag  $K_{\alpha}$  はもちろん原子番号が 74 と高い W  $K_{\alpha}$  X 線の生成までが既に報告されている<sup>8)</sup>。ところが固体ターゲットを用いた場合、レーザー照射によって飛散した塵（デブリ）の一部がレーザー光学機器に付着する事がある。光学機器へのデブリ付着は、光学機器の面精度低下を意味するので、反射率などの光学性能の低下をもたらす。さらにデブリ物質がレーザー光を高効率で吸収し、この光の熱で光学機器を損傷する事も知られている。そのため固体ターゲットを用いた場合、定期的な光学機器のデブリ除去が欠かせない。

この固体ターゲットに代わるターゲットとしてクラスターガスターゲットを用いるアイデアは約 20 年前 Rhodes 等により提案された<sup>9,10)</sup>。使用しているターゲットは元々ガスであるので固体ターゲットで見受けられるデブリがほとんど生じない。光学機器の反射率の低下、損傷が起こらないメンテナンスフリーの光源である。またガスを断熱冷却して得られるクラスターは、クラスターサイズは小さいものの固体と同じ原子配列をとるのでレーザーをクラスターに集光照射すれば、固体ターゲットのような高強度の X 線生成が期待出来る。実際は Ar クラスターではレーザーから Ar K 殻 X 線へのエネルギー変換効率は  $\sim 10^{-4}$  と固体ターゲットと較べても遜色のない変換効率が確認されている<sup>11)</sup>。

本論文ではデブリフリーのクラスターターゲットに注目し、レーザークラスター相互作用による短パルス単色 X 線源の開発を目的としている。これまで様々なクラスターターゲットがレーザークラスター相互作用に試みられてきたが、私は Xe クラスターに着目した。Xe ターゲットは化学的に安定で取り扱いやすい希ガスの一つであり、30 keV と非常に高いエネルギーの Xe K 殻 X 線が生成可能である。この高いエネルギーゆえに結晶構造解析はもちろん、イメージングにも応用出来る魅力的な光源である。しかし Ar K 殻 X 線, Kr K 殻 X 線に関してはレーザークラスター相互作用で生成されているにも関わらず、Xe K 殻 X 線生成の報告例は一つとして存在しなかった。Xe クラスターでの研究が行われていないわけではなく、例えば約 4 keV の Xe L 殻 X 線の生成に関してはかなり詳細に調べている<sup>12)</sup>。私は Ar や Kr K 殻 X 線のように Xe K 殻 X 線も生成可能であると考えた。ただし Xe K 殻のイオン化ポテンシャルは Ar や Kr に較べて高い点を考慮して、 $5 \times 10^{18} - 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> と高いレーザー強度で実験を試みている。

本論文のもう一つの目的は先ほど述べたクラスター相互作用による X 線生成メカニズムの解明である。これまで Ar K 殻や Xe L 殻など数 keV の X 線の結果を元に研究されており、Xe K 殻 X 線は もちろん 12.4 keV と Xe K 殻 X 線よりエネルギーが低い Kr K 殻 X 線<sup>13)</sup> ですらメカニズムに関して満足な説明が出来ていない状況である。本論文ではこの Xe K 殻 X 線生成を中心に、同族の Ar, Kr クラスターでの実験結果を議論する事で、X 線生成メカニズムに関する新たな知見を取得し、X 線生成メカニズムの解明を目指す。

私は日本原子力研究開発機構で勤務しているが、福島県沖地震を境に原子力に対し世間から厳しい目が向けられている。しかし廃炉技術など避けて通れない重要な原子力研究課題、社会還元可能な研究課題は残っており今後とも研究を推進する必要がある。原子力政策大綱では量子ビームテクノロジーを原子力研究として定めている。私は量子ビームテクノロジーの一環と位置付けて本研究を実施し、得られた成果をもとに社会に貢献する事を目指している。



## 1.2 高強度超短パルスレーザー開発と応用の歴史

超短パルスレーザーの研究は約 30 年前、フェムト秒 ( $10^{-15}$  s) の超短パルスレーザーを Fork 等が開発に成功した事に始まる<sup>14)</sup>。このレーザーは、それまで不可能であった原子と電子のレベルで起こる超高速現象の観測を可能にしている。この超短パルスレーザーは急速に普及し現在では光通信や医療など様々な分野で利用されている。

しかし高強度と短パルスが両立したレーザーの実現には更なる技術革新が必要であった。一般にレーザー光を増幅する時は、まずレーザー増幅媒質を励起レーザーで励起する事で、増幅媒質の反転分布（励起準位の電子の方が基底準位の電子より多い状態）をつくる。その後にレーザー光を増幅媒質に入射すると、反転分布から光が誘導放出される。この原理で短パルスレーザーをレーザー増幅媒質で増幅しようとしても、レーザー増幅媒質の光学的破壊閾値強度（約  $10 \text{ GW/cm}^2$ ）を超えてしまい損傷するからであった。この問題を解決したのが Mourou 等<sup>15)</sup> である。彼らはレーザーに波長分布がある事に注目した。まず回折格子での回折光の波長分散効果を利用して光路差を作りレーザーのパルス幅を広げ、破壊閾値強度以下に下げる工夫を施した。次にこの閾値強度以下のレーザー光をレーザー増幅媒質に入射しレーザー出力の増幅を行った。最後に回折格子で先ほどと逆の操作を施して元のパルス幅に戻す技術を発明し、高強度かつ短パルスのレーザーの開発を成功させた。この方法はチャープパルス増幅法 (CPA 法) と呼ばれている。この方法が発明された事により高強度超短パルスレーザーがアメリカやヨーロッパ、日本などに整備され研究が行われるようになった。いくつかの

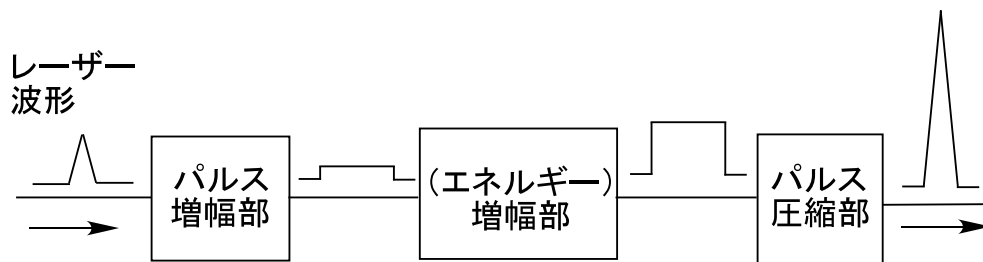


Fig. 1.1 チャープパルス増幅法.

有望な応用研究が検討されてきたが、そのうちの 하나가超短パルス高出力レーザーを用いた高エネルギー電子加速である。CPA 法の開発以前から Dawson、Tajima<sup>16)</sup> は超短パルス高出力レーザーとガスタargetの相互作用で生じるプラズマ波が電子加速の電場として利用できると予言していた。既存の加速器では加速管の絶縁破壊の可能性から加速勾配に限界があり、加速距離を長く取る必要があるが、この方法では加速器が大型になる事が避けられなかった。他方 Dawson らの方法は（理論的には）加速勾配の限界が存在しないプラズマを扱っているので、高い加速勾配が生成及び利用可能である事から加速器の小型化に寄与する可能性が期待された。実際、CPA 法が開発された後、電子加速器の 17 MeV 電子をプラズマ波で 100 MeV まで加速出来たとの報告がされている<sup>17)</sup>。さらにこの研究を進めていく中で、プラズマ中の一部の電子がプラズマ波で加速される事が発見された。これは、レーザーとターゲットのみで高エネルギー電子生成が可能になった事を意味し、新しい電子加速器と

して注目されるようになった。近年は単色性の高い電子生成がレーザープラズマで発生出来る事<sup>18-20)</sup>が明らかになり、現在まで電子加速の研究は精力的に行われている。

これまで主にアメリカのローレンス・リバモア研究所、スタンフォード大学やヨーロッパのラザフォード・アップルトン研究所 (イギリス)、フランス応用工学研究所、エコールポリテクニック高強度レーザー応用研究所 (フランス)、マックス・プランク研究所 (ドイツ)、大阪大学などで高強度短パルスレーザーの開発や応用研究が実施されてきた。現在、ヨーロッパで高繰り返し<sup>20)</sup>の 200 PW (2 kJ, 10 fs, 1 shot/min) の超高強度超短パルスレーザーの開発が計画されている。日本においては大阪大学でエクサワット ( $10^{15}$  W) レーザーを開発し、利用を開始している。さらに近年は Table 1.2 のようにアジアの諸外国でも高強度短パルスレーザーの開発や応用研究に開始しているため、この研究分野での競争が熾烈化しつつある<sup>21)</sup>。

Table 1.2 アジアにおける高強度 Ti:Sa レーザー研究の拠点.

研究所	国名	レーザー出力	パルス幅
APRI/GIST	韓国	30 TW	27 fs
KAIST	韓国	1.1 PW	30 fs
TIFR	インド	20 TW	30 fs
RRCAT	インド	150 TW	30 fs
SIOM	中国	850 TW	30 fs
CAEP	中国	300 TW	30 fs
IOP/CAS	中国	720 TW	30 fs
NCU	台湾	100 TW	30 fs

### 1.3 プラズマ及びレーザーの基礎

次章以降でプラズマを扱う前に基礎となる物理量をここでは説明する。

#### 1.3.1 臨界密度とスキンドープス

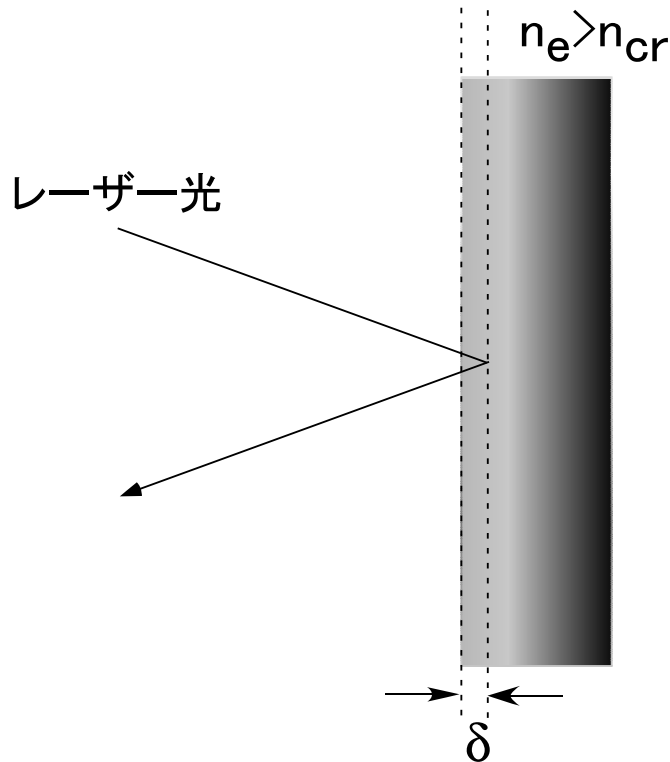


Fig. 1.2 スキンドープス.

プラズマ中の電離電子がある平衡位置から変位すると、周囲の電子から電子を元に戻して電荷的中性を保とうとする電場が生じる。その結果、平衡位置を中心とした粒子の振動が起こる。これをプラズマ振動という<sup>22)</sup>。イオンは電子より  $10^3$  倍以上（水素イオンでも約 1800 倍）重いのでほとんど動かず、実質的には電子のみが振動を行う。このプラズマ振動の周波数  $\omega_p$  は電子密度  $n_e$ 、電子質量  $m_e$ 、電荷  $e$  を用いて

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n_e e^2}{m_e}} \quad (1.1)$$

このプラズマに周波数  $\omega$  の電磁波を入射すると、電磁波の波数は変調される。プラズマ中での電磁波の波数  $k_p$  は

$$\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k_p^2 \quad (1.2)$$

$x$  方向に進行している電磁波は  $\exp(i \cdot k_p \cdot x) = \exp(i \cdot \sqrt{\omega^2 - \omega_p^2} \cdot x/c)$  の形をしているので、プラズマ中を侵入できる条件は  $\omega \geq \omega_p$  である ( $c$ :光速)。ここで等号が成立する時の電子密度を臨界密

度  $n_{cr}$  と呼ぶ。

$$n_{cr} = \frac{m_e \omega^2}{4\pi e^2} \quad (1.3)$$

これらの式より臨界密度より電子密度が低い場合は、電磁波の波数  $k_p$  が実数の値をとるためプラズマ中に侵入出来る事がわかる。しかし臨界密度より電子密度が高い場合は、電磁波の波数  $k_p$  が虚数のためほとんど侵入出来なくなる。侵入距離  $\delta$  はせいぜい  $|k_p \delta| = 1$  程度である。式 (1.2) 式を用いて計算すると

$$\delta = \frac{c}{\sqrt{\omega_p^2 - \omega^2}} \quad (1.4)$$

この  $\delta$  をスキンドープと呼ぶ。臨界密度より高い電子密度のプラズマ (Overdense plasmas) を扱う上で重要なパラメータである。

Ti:Sa レーザー ( $\lambda = 800$  nm) の場合、 $1 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  の Overdense plasmas で  $\delta = 59$  nm、 $1 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$  の Overdense plasmas で  $\delta = 17$  nm になる (臨界密度  $n_{cr} = 1.74 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ )。

またプラズマ中での電磁波の屈折率  $N$  は電子密度  $n_e$  と臨界密度  $n_{cr}$  を用いて次のように表される。

$$N = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{cr}}} \quad (1.5)$$

Overdense plasmas のとき屈折率は虚数の値をとる。

### 1.3.2 デバイ長

プラズマ内では電子及びイオンの電荷分布が存在するため、電氣的ポテンシャルが働く。プラズマ中心からの距離  $x$  における電氣的ポテンシャル  $\phi(x)$  は

$$\phi(x) = \phi_0 \exp(-|x|/\lambda_D) \quad (1.6)$$

ここで  $\phi_0$  はプラズマ中心でのポテンシャル、 $\lambda_D$  はデバイ長<sup>22)</sup> と呼ばれ次の式で表わされる。

$$\lambda_D \equiv \sqrt{\frac{k_B T_e}{4\pi n_e e^2}} \quad (1.7)$$

$k_B$  : ボルツマン定数,  $T_e$  : 電子温度,  $n_e$  : 電子密度

式 (1.6) からデバイ長より十分長い所ではポテンシャルがほとんど 0 になり、プラズマの影響が無視できる事が、デバイ長より十分短い所ではポテンシャルが有意な値をとり、プラズマの影響が無視できない事が判る。このようにデバイ長はプラズマの影響を特徴付けるパラメータである。

## 1.4 本章のまとめ

- 一般に X 線源として X 線発生装置、放射光施設、X 線自由電子レーザーが知られている。このうち比較的容易に利用できるのは X 線発生装置のみであるが、この装置は高速相転移のリアルタイム測定など高速現象の観察に適さないという問題があった。
- 新しいレーザー増幅法であるチャープパルス法が Morou により開発された。回折格子でパルス幅を広げられたレーザーの出力を増幅し、回折格子で元のパルス幅に戻す方法である。この方法を用いた超短パルス高出力レーザーが海外や国内で製造され、利用研究が進められている。これまではアメリカ、ヨーロッパ、日本で研究されていたが、近年は中国や韓国、インドなどでも行われはじめている。
- レーザー開発当初は電子加速への応用が試みられていたが、現在では X 線生成などの利用研究も精力的に行われている。クラスターと超短パルス高出力レーザーの相互作用で生成される X 線は、デブリフリー、高強度の特徴に加え、短パルスの特徴も有しているため高速現象の観察に応用できる可能性を秘めている。
- Xe K 殻 X 線生成に関しては成功事例がなく、関連する知見や生成メカニズムに関しては未だほとんど判っていない状態である。このような状況を踏まえ、Xe K 殻 X 線の生成を本論文の目標として設定した。また Ar K 殻 X 線や Kr K 殻 X 線生成実験を通じて希ガスクラスターからの X 線生成に関する知見の取得も目標に据えた。
- その他に研究を行う上で欠かせない基礎知識（スキンドepsやデバイ長）についても説明した。

## 2 利用した超高強度短パルスレーザーの特性及びその調整

2003年に日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所（原子力機構 関西研）では CPA 法を駆使した PW 級の高強度超短パルスレーザー：J-KAREN レーザーが整備されている<sup>23)</sup>。その後も光パラメトリック増幅（OPCPA）や可飽和吸収体の導入、ガラスレーザーの冷却方法等の高度化<sup>24-26)</sup>を行ってきた。その結果、より高品質のレーザービームを長時間安定に発生する事が可能になった。この高品質レーザービームを用いて様々なレーザープラズマ相互作用の実験を原子力機構 関西研で行われている。近年では、相対論的ドップラー効果を利用した短波長コヒーレント光源の生成<sup>27)</sup>、レーザー航跡場を応用した 2 パルスレーザー法による準単色電子ビームの安定生成<sup>28)</sup>、新しいメカニズムによる高次高調波生成<sup>29)</sup>、40 MeV 陽子ビームの生成<sup>30,31)</sup> などの実験結果が得られている。

更に小型の超短パルス高出力レーザー：JLITE-X レーザー<sup>32)</sup> も原子力機構関西研に設置されている。このレーザーは J-KAREN レーザーよりもコンパクトで、少人数でレーザー調整及び実験が可能である。主に JLITE-X レーザーの予備実験の目的で利用されている。この二つの超短パルス高出力レーザーの特徴を Table 2.1 にまとめておく。

Table 2.1 J-KAREN レーザーと JLITE-X レーザーの特徴.

レーザー 名称	J-KAREN (結晶励起)	J-KAREN (ガラス励起)	JLITE-X
レーザー波長	820 nm	820 nm	820 nm
エネルギー	1.2 J	5 J	0.16 J
パルス幅	30 fs	30 fs	35 fs
ピーク出力	40 TW	150 TW	4.5 TW
繰り返し数	10 Hz	1 shot/30 分	10 Hz
その他の 特徴	高コントラスト ( $10^{12}$ )	高コントラスト ( $10^{12}$ )	小型 (2 m x3 m)



Fig. 2.1 J-KAREN レーザー全体図.

次に Xe K 殻 X 線生成実験で利用した J-KAREN レーザー (Fig. 2.1) について議論する。初段には発振器としてフェムトレーザーズ社製 レーザーシステム Femto Power Compact Pro を用いている。この発振器から生成されるレーザービームはメカニカルシャッターによりレーザー繰り返し率を 10 Hz まで下げられる。その後、可飽和吸収体によりフラットトップの構造を有する空間プロファイルのビームに整形される。このビームはパルス増幅器でパルス幅を拡大されてから、J-KAREN レーザーの特徴である光パラメトリック増幅という手法 (Appendix. B) によりレーザービームは予備増幅される。続いて前置増幅器、主増幅器でレーザービームは増幅される。最後にパルス圧縮器でパルスを縮めると短パルス高出力光が得られる。

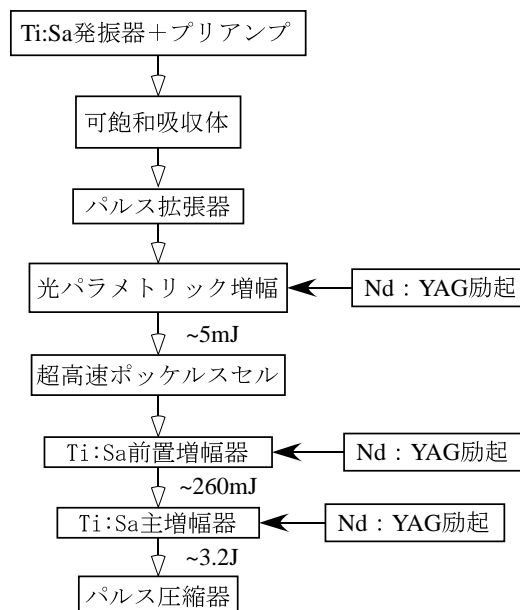


Fig. 2.2 J-KAREN レーザーの構造.

## 2.1 J-KAREN レーザーの出力

パルス拡張器でパルス幅を広げられたレーザービームは、光パラメトリック増幅器で 5 mJ、前置増幅器で 260 mJ まで増幅された後、主増幅器に伝送される。この主増幅器では最大 6 台の YAG レーザー (6.5 J) により Ti:Sa 結晶が励起され、反転分布が形成されている。各結晶の近くには、その結晶を取り囲むように複数枚の反射ミラーが設置されている。反射ミラーを用いてレーザービームが結晶に入射される毎にレーザービームが増幅され、最終的に約 3.2 J のレーザービームが生成出来る。

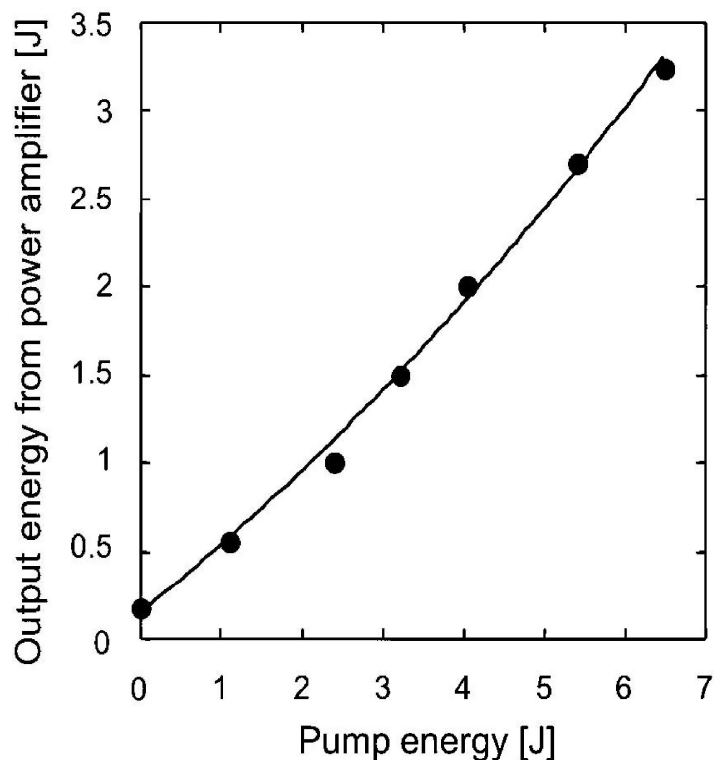


Fig. 2.3 J-KAREN レーザーの出力.<sup>26)</sup>

大口径のパワーメータで計測された J-KAREN レーザーでの増幅の様子を Fig. 2.3 に示す。YAG レーザーの励起台数毎にプロットしており、YAG レーザーの励起台数の増加とともに出力が高くなっていく事が確認できる。

注) 反転分布： 反転分布とは低い状態より励起状態が多い状態を指す。J-KAREN レーザーでは YAG 二倍波 (532 nm) で Ti:Sa 結晶を励起し反転分布がつくられる。反転分布状態でレーザー光が入射されると励起状態の電子が入射レーザー光と同じ位相、波長の光を誘導放出するので、入射レーザー光の出力が増幅される。



## 2.2 J-KAREN レーザーのレーザー波長分布

一般にレーザーの波長は有限の波長幅を有していて、特にレーザーの短パルス化に対してはこの波長幅が重要である。というのはレーザーの波長幅はパルス幅と密接な関係にあり、波長幅  $\Delta\lambda$  が狭いと短パルス光が得る事ができないからである。レーザー波形の時間分布をガウス分布と仮定すると時間幅  $\Delta t$  と角周波数幅  $\Delta\omega (= 2\pi c\Delta\lambda/\lambda^2)$  は以下の関係で制限される (Appendix C 参照)。

$$\Delta t \cdot \Delta\omega \geq 4 \ln 2 \sim 2.77 \quad (2.1)$$

ここで  $c$  は真空中の光速を示す。Ocean Optics 製分光器で計測された主増幅器直後でのレーザー波長分布を Fig. 2.4 に示す。波長は 760 nm から 800 nm にかけて直線的に強度は上昇していき、800 - 840 nm ではフラットに近い強度を有し、850 nm 近傍で急激に減少していく様子が確認できる。仮に時間幅  $\Delta t = 40$  fs とすると  $\Delta\lambda \geq 25$  nm の波長幅が必要になる。波長幅は約 40 nm であり、40 fs のパルス圧縮に必要な波長幅より大きい事が判る。

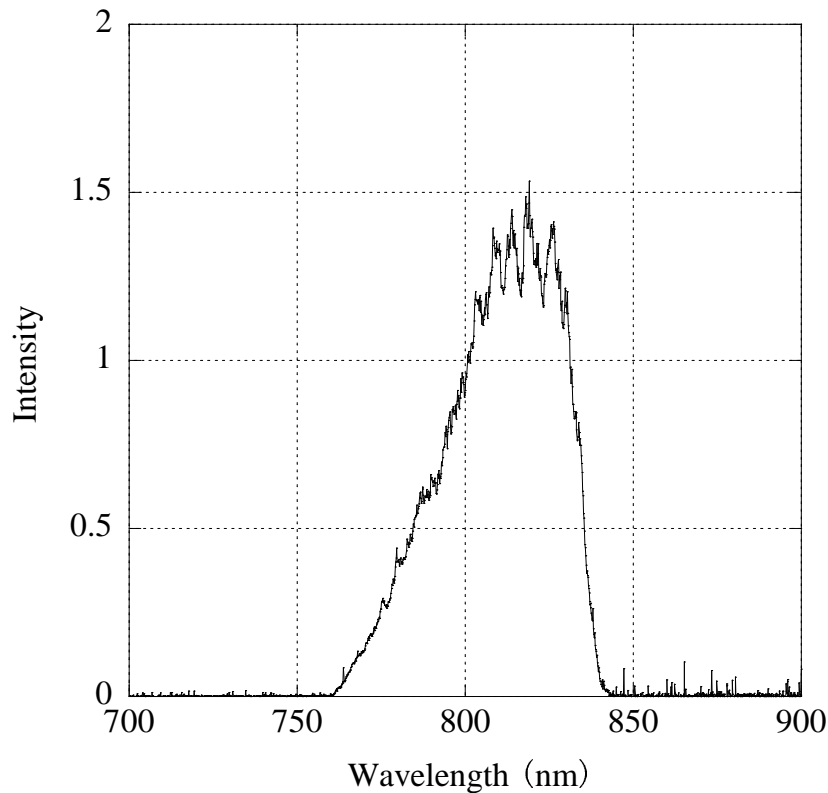


Fig. 2.4 J-KAREN レーザーの波長分布.

### 2.3 J-KAREN レーザーの空間スペクトル

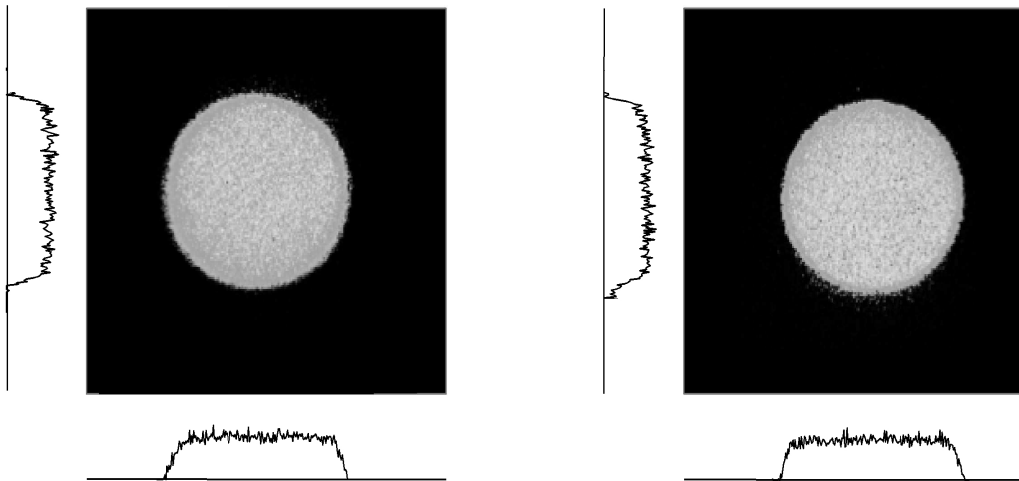


Fig. 2.5 J-KAREN レーザーの空間分布.<sup>26)</sup>

レーザー伝送には光学ミラーを用いるが、この光学ミラーには損傷閾値が存在する。そこで高出力レーザーの場合、この閾値を越えないよう空間的に均一な強度を有するビームが求められる。未集光時の J-KAREN レーザーの空間スペクトルを Fig. 2.5 に例示する。左は前置増幅後の空間分布、右は主増幅後の空間分布であるが、どちらも空間的に均一な強度プロファイル（フラットトップのプロファイル）を有している事が判る。レーザー増幅用の結晶を冷却する事で、結晶内での増幅率を一様に保ち、かつ増幅部より上流の可飽和吸収体を利用してフラットトップのプロファイルが得られている。

注) 可飽和吸収体: 可飽和吸収体 (Saturable Absorber) は、低強度入射光は高い吸収性能を有するのに対し、高強度入射光に対しては吸収体としての能力が飽和した結果、低い吸収性能を有する（ほとんど透過させる）物質である。連続光が可飽和吸収体中を伝搬するとき光損失が大きく無視できないが、高強度のパルスレーザーの状態では、光損失は小さくなりパルス発振状態が促進される。発振器のレーザー光をこの可飽和吸収体を通過させると、メインパルスはほとんどそのままメインパルス以外の低強度パルスのみを効果的に吸収する。その結果、高コントラスト比（メインパルスとプリパルスの強度比）のレーザー光を得る事が出来る。また空間フィルタリング効果により、可飽和吸収体後の空間パターンの改善を図っている

## 2.4 J-KAREN レーザーのコントラスト

3次のクロスコリレータで計測したパルス圧縮後の J-KAREN レーザーの時間波形を Fig. 2.6 に示す<sup>33)</sup>。メインピークのレーザー強度は 200 ps 以上前のレーザー強度に較べて  $10^{12}$  倍以上と高いコントラストを有していることが判る。

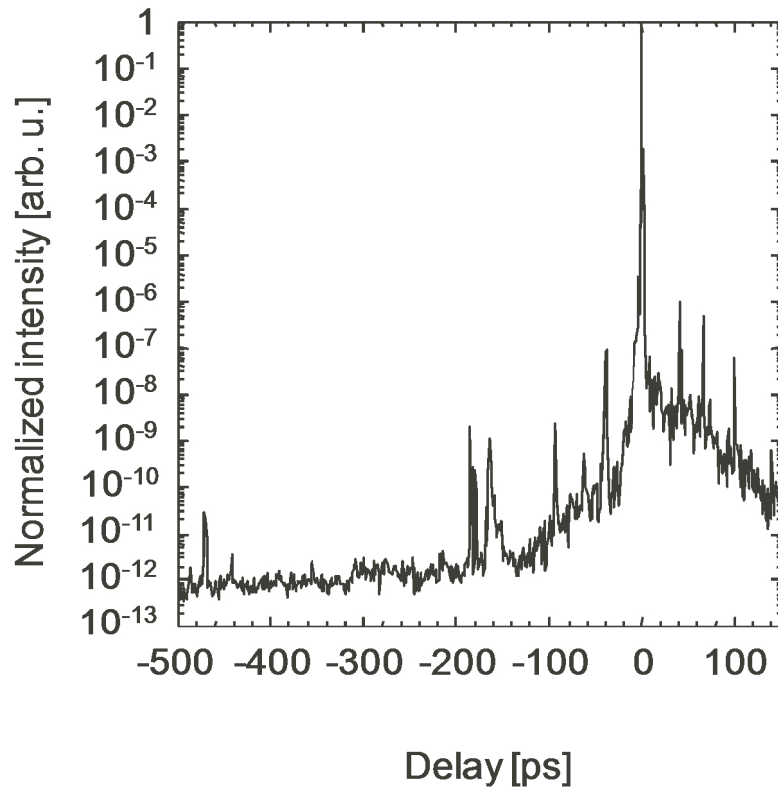


Fig. 2.6 J-KAREN レーザーのコントラスト.<sup>33)</sup>

メインパルスより 200 ps 以上時間的に速いレーザー光の強度が強い場合、ターゲットとの相互作用で高温プラズマを生成させる。この高温プラズマは時間とともに拡散するため、遅れて到着したメインピークはほぼ真空に近い極めて薄いプラズマとしか相互作用出来なくなる。前述の可飽和吸収体は、メインパルス以外の成分を低く抑える役割を果たしている。加えて光パラメトリック増幅 (Appendix. B) という手法を初段の増幅器に使用している事が、高コントラストのレーザーを実現可能にしている。

## 2.5 レーザーパルス幅の最適化

伝送された圧縮前の Ti:Sa レーザー光はピコ秒のパルス幅を有しており、パルス圧縮器の中にある回折格子の調整で数十 fs のパルス幅に整形される。今回の実験時に実験チャンバー内で計測した圧縮されたレーザー光の時間特性例を Fig. 2.7 に示す。横軸は時間、縦軸は圧縮されたレーザー光の強度を表している。

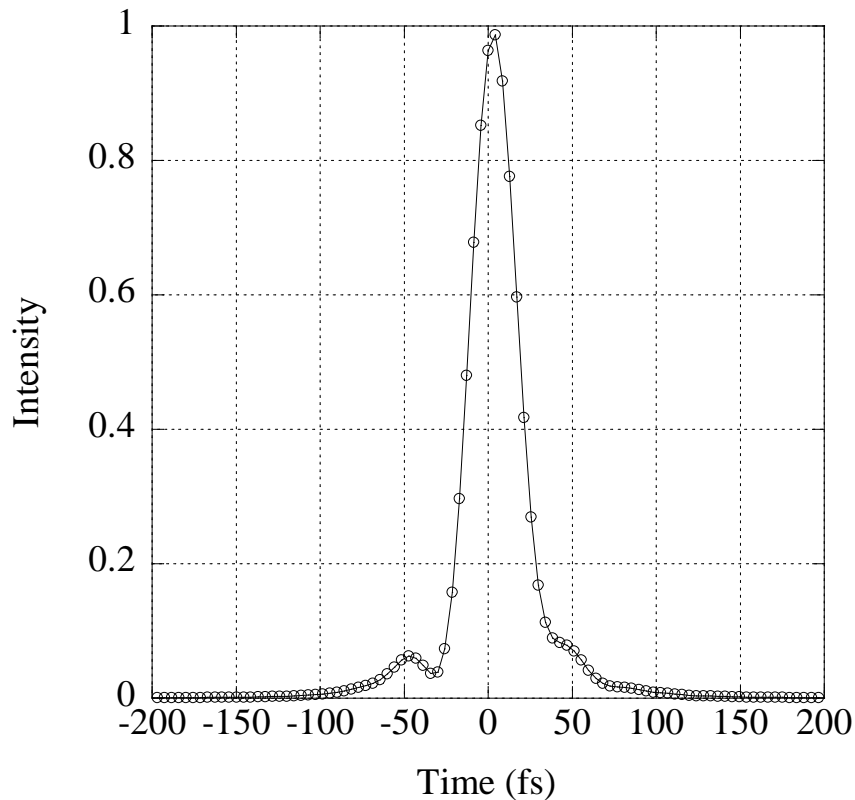


Fig. 2.7 レーザーパルス幅特性.

パルス幅計測にはオートコリレータ等が用いられている。時刻  $t = 0$  fs を中心に 35 fs (FWHM) のパルス幅を有するパルス光に圧縮されている事が確認できる。その他に  $t = -50$  fs にパルス圧縮洩れに由来する小さなピーク (メインピークとの強度比: 約 7%) が観測されている。この小さいピークにより生成されたプラズマが拡散されるが、わずか 50 fs 後にメインパルスが到達するのでそれほど影響はないと思われる。

注) オートコリレータ

オートコリレータ内ではパルス幅を測定したいレーザー光が 2 本に分けられる。この 2 本のレーザー光が 2 倍波結晶に入射されると 2 倍波の光が放出されるので、光検出器でこの強度を計測される。2 倍波の強度は結晶に入射したレーザー強度の平方根に比例する。そこで 2 本のレーザー光の光路差を変えて、2 倍波光強度の光路差依存性を計測する事でレーザーのパルス幅情報が取得出来る。

## 2.6 軸外し放物面鏡による集光

軸外し放物面鏡をレーザー進行方向にステージで駆動させて、実験チャンバー内の集光特性最適集光位置を調べている。計測時はレーザー光をレーザー用フィルター等で減光させた状態で、レンズ及び CCD 等で構成される像転送系でデータ取得している。レーザー集光特性の軸外し放物面鏡位置依存性に関するデータの一例を Fig. 2.8 に紹介する。

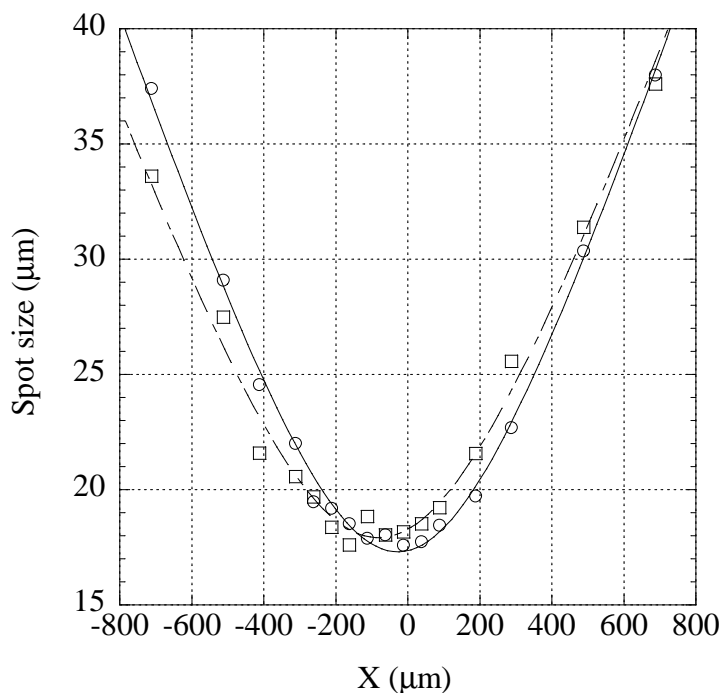


Fig. 2.8 集光特性.

位置  $x$  での  $y$  方向のビームサイズは  $D_y(x) \equiv 2\sigma_y$  で定義する。ここで  $\sigma_y$  は

$$\sigma_y^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} (y + y_0)^2 I(y, z) dy dz}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(y, z) dy dz} \quad (2.2)$$

$w_0$ : 最小ビームサイズ、 $\lambda$ : レーザー波長、 $I(y, z)$ : レーザー強度

理想的なガウシアンビームであれば、 $D_y(x)$  は  $1/e^2$  レーザービーム半径に一致する。 $M^2$  は理想的なレーザー伝播のずれを表す因子でレーザーの性質を特徴づける重要なパラメータである ( $M^2 \geq 1$ )。  $z$  方向のビームサイズ  $D_z(x)$  についても同様に定義できる。このレーザー伝播の式を用いて、Fig. 2.8 を Fitting した結果、 $y$  方向、 $z$  方向のビームサイズ  $D_y(x), D_z(x)$  に対して以下のように近似出来る事が判った。

$$D_y(x) = 17.305 \sqrt{1 + \left[ \frac{3.2350 \times 0.8 \times (x + 28.068)}{17.305^2 \pi} \right]^2} \quad (2.3)$$

$$D_z(x) = 17.919 \sqrt{1 + \left[ \frac{3.1276 \times 0.8 \times (x + 81.843)}{17.919^2 \pi} \right]^2} \quad (2.4)$$

この式より  $y$  方向の最小ビームサイズ、 $M^2$  はそれぞれ  $17.305 \mu\text{m}$ 、 $3.2350$  と求められる。同様に  $z$  方向の最小ビームサイズ、 $M^2$  は  $17.919 \mu\text{m}$ 、 $3.1276$  の値が得られた。

また最小集光位置でのビームプロファイルを図 2.9 に例示する。ここでレーザー光が強い場所ほど、白色に近くなるよう画像処理している。ビームサイズは  $17.5 \mu\text{m} \times 18 \mu\text{m}$  と評価されるが、非対称で複雑な分布を有していることがわかる。これは集光や伝送に利用している鏡の面精度、レーザー光のビームプロファイル等に起因していると考えられる。

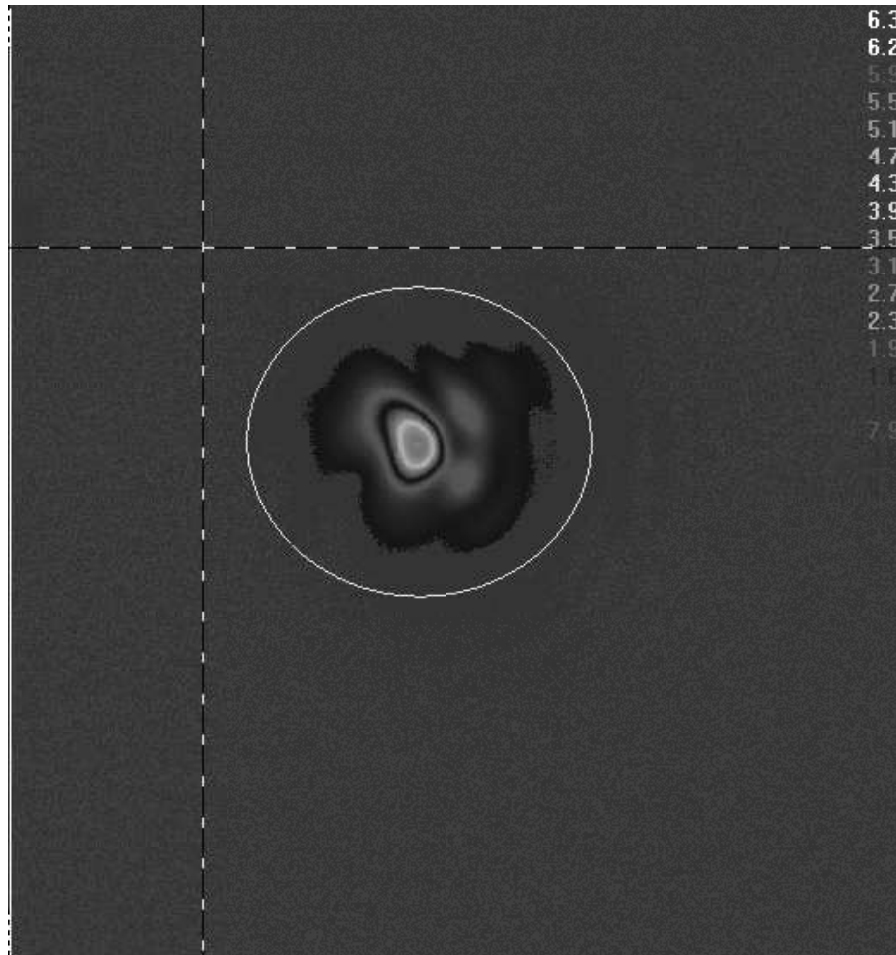


Fig. 2.9 最小集光径.

一般的に、最小ビームサイズ  $w_0$  は次の式で求められる。

$$w_0 = \frac{2\lambda FM^2}{\pi} \quad (2.5)$$

ここで  $F$  は光学機器の F ナンバーと呼ばれ、今回の実験では  $F = 9$  である。計算するとビームサイズは最小で約  $14.4 \mu\text{m} \times 14.9 \mu\text{m}$  になり、測定値に近い値が求められる。

## 2.7 本章のまとめ

- この章では実験で利用した超短パルス高出力レーザーでの応用例に関して紹介を行った。
- 整備されている2つの超短パルス高出力レーザー J-KAREN レーザーシステムと JLITE-X レーザーシステムを説明した。前者はレーザーのエネルギーが高い点及び高コントラスト性、後者はコンパクト性に特徴がある。
- 前者の J-KAREN レーザーシステムの装置構成について図を交えて説明を行い、システムの写真を示した。
- J-KAREN レーザー出力の YAG レーザー励起台数依存性について示し、主増幅部で最大 3.2 J の出力が得られる事を確認した。
- レーザー光を 40 fs までパルス圧縮するためには、25 nm 以上の波長幅が必要である。パルス圧縮前のレーザー波長スペクトル計測を行ない十分な波長幅 (40 nm) を有する事を確認している。さらに、パルス圧縮器で圧縮したところ J-KAREN レーザーのパルス幅は約 35 fs になる事が判った。
- 光学機器の損傷閾値以下に抑えるため、高強度レーザーは空間的に様な強度分布を有するトップハット構造が望ましい。集光前のレーザー強度の空間分布を調べ、トップハットの構造を有する事を確認した。
- メインパルスより時間的に前に高強度プリパルスが存在すると、メインパルスはターゲットと効果的に相互作用できないことがある。そこで一般にレーザープラズマ相互作用ではレーザーに高いコントラスト性が求められる。J-KAREN レーザーの場合、 $10^{12}$  以上のコントラスト性があることを示した。
- $F/9$  の軸外し放物面鏡で J-KAREN レーザー集光特性を調べた所、集光後のレーザー強度分布はガウシアン分布ではなく、非対称なレーザー集光プロファイルである事が計測で明らかになった。このときのビームサイズは最小で  $17.5 \mu\text{m} \times 18 \mu\text{m}$  であった。またレーザー伝播の様子についても観測した。

### 3 レーザークラスター X 線生成実験の背景及び実験セットアップ

#### 3.1 レーザークラスター X 線生成実験の背景

超短パルス高出力レーザーとクラスターの相互作用を初めて実験により試みたのは Rhodes 等<sup>9)</sup>である。彼らはレーザー照射により極めて高い価数の Kr, Xe イオン生成を確認し、電子のコヒーレント運動により電離が進行するモデル、コヒーレント電離モデルで理解を試みた。他方、Ditmire 等は Ar クラスターを用いて X 線生成を行い、逆制動放射による電子加熱をベースにしたモデル、マイクロプラズマモデルで議論を行った<sup>34)</sup>。Ar クラスターに関しては多くの研究がなされており、様々な知見が得られている例えば、発生した Ar K 殻 X 線のパルス幅はレーザーパルスとほぼ等しい事が確認されている<sup>35)</sup>。

Kr に関しては Rohdes 等の研究を皮切りに Kr L 殻、M 殻に関する研究はその後多く行われていたが、レーザークラスター相互作用による Kr K 殻 X 線生成が確認されるまで約 10 年後の時間を要している<sup>13)</sup>。その後も Kr K 殻 X 線生成の報告例はわずか数例程度<sup>1,11,36)</sup>と少なく、X 線生成メカニズムに関する議論はほとんど行われていない状況である。ただ Kr K 殻 X 線の応用研究などは開始されており、この X 線源を用いた蜻蛉の位相コントラストイメージング像が取得されている<sup>11)</sup>。Xe K 殻 X 線生成に至ってはこれまで一つとして報告例がなかった。しかし Xe も Kr も Ar と同じ希ガスであり化学的な性質は似ており、原子間に介在する力（ファンデルワールス力）など共通部分が多い。そのような理由から Ar K 殻と同じようなメカニズムで Kr, Xe K 殻 X 線が生成出来ると考えるに至った。Xe を手始めに Kr, Ar 希ガスで K 殻 X 線生成を試み、X 線生成メカニズムに関する知見取得を試みた。



Fig. 3.1 レーザープラズマ用実験室.



### 3.2 実験室及び実験チャンバー

J-KAREN レーザーの Ti:Sa 光 (820 nm) はレーザー室から、利用実験用の実験室に導かれる。この実験室にはパルス圧縮器が設置されていて、Ti:Sa 光はここで最短で 30 - 40 fs にパルス圧縮される。パルス圧縮された Ti:Sa 光は空気放電 (エア・ブレイクダウン) を起こすほどのレーザー強度を有しているため、パルス圧縮器より下流ではターボ分子ポンプで  $10^{-3}$  Pa 以下の真空状態を保っている。レーザーはこの真空チャンバー内を伝送され、実験チャンバーにまで導かれる。実験チャンバー内には非対称な形状を有する 4 inch の金コート軸外し放物面鏡が設置されている。この鏡は電動ステージに固定されているので、遠隔操作によりレーザー光の集光位置や集光径を調整する事が出来る。

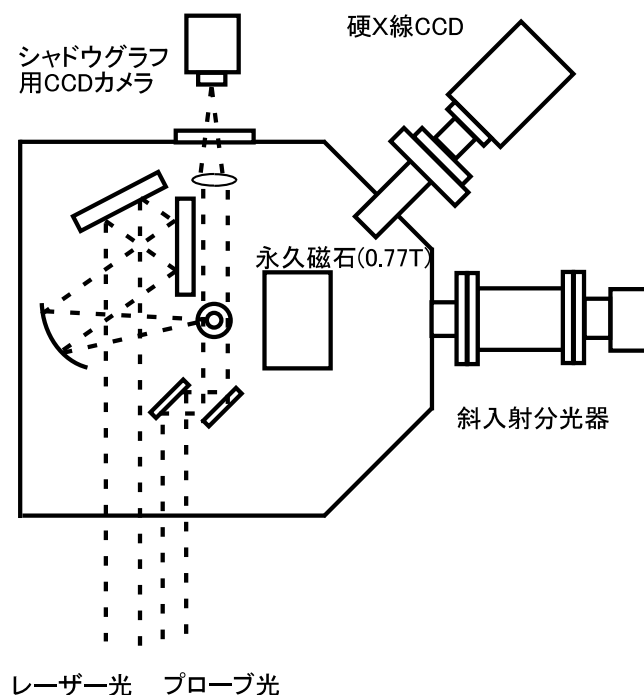


Fig. 3.2 X線発生実験のセットアップ.

### 3.3 クラスタノズル

2種類のクラスタノズルをX線生成実験で使用した。一つは Three stage ノズルで、形状に関しては5.4節に、実験結果や考察に関しては4、7章に記載している。もう一つはコニカルノズルで実験結果や考察は6、7章に記載している。これらのノズルは次の制御機構により制御される。

### 3.4 クラスタノズル制御機構

クラスタ生成のためのガスは実験チャンバーの近くに用意され、ガス配管を通じてチャンバー内のクラスタ生成用ノズルに導かれる。ノズルは電動ステージに固定されているので、放物面鏡同様に遠隔で位置調整を行える。ノズルの背圧はガス配管に付けられたレギュレータで、ガスの噴出はガスバルブのコントローラにより制御される。実験時にはレーザーが照射する数 100  $\mu$ sec 前にガスバ

ルブを開にし、約 1 msec ほどの噴出時間中にレーザーとクラスターを相互作用させている。

### 3.5 粒子線計測器

一般にレーザークラスター相互作用で生成される X 線のパルス幅は一般に数 ps 以下<sup>35)</sup> で、X 線計測器の時間分解能 ( $\geq$  ns) より格段に短い。レーザープラズマ X 線をそのまま X 線計測器で測定しても、複数の光子を分離出来ないで極めて高い波高値のパルスを 1 個出力するだけである。

このようなレーザープラズマ X 線のエネルギースペクトル測定する方法として二つの方法が知られている。一つは結晶で Bragg 条件を利用して分光された X 線を X 線計測器で検出する方法 (結晶分光法) である。Bragg 条件により X 線エネルギー  $h\nu$  が決まるので、計測器の信号出力を  $h\nu$  で割った値は X 線強度に対応する (実際には検出器の検出効率など補正が必要であるが)。この方法は、エネルギー分解能の点で優れている反面、回折強度が低いという欠点を有する。また基本波の反射に加えて、高次反射も計測器に入射してしまう問題もある。

$$n\lambda = 2d_n \sin \Theta \quad (3.1)$$

もう一つの方法は分光することなく、X 線フィルターで計測器への入射光子数を 1 個以下に制限する方法である。X 線計測器で検出された信号は X 線エネルギーに対応する。この方法はシングルフォトンカウンティング法と呼ばれている。利点としては、計測器の検出効率が高いので、結晶分光法では観測できない X 線強度に対しても計測できる事である。ただし、1 個の X 線計測器では 1 個の光子のデータしか得られないので、エネルギースペクトルを取得するためには多数の計測器を並べて使用する事が必要である。次に述べる硬 X 線 CCD (Charge Coupled Device) は分光せずに X 線計測を行うために利用される。

#### 3.5.1 硬 X 線 CCD

硬 X 線 CCD は二次元的に並べられた複数のシリコン半導体素子で X 線を検出する。X 線が素子内で光電効果を起こし光電子に変換される。この光電子は素子の空乏層で光電子のエネルギーに比例した数の電子対 (電子-正孔) をつくるので、この電子対の数  $N$  を計測する事により X 線のエネルギー情報を得る事が出来る<sup>37)</sup>。シリコンの場合、 $W$  値 (電子対を 1 個作るのに要するエネルギー) が約 3.65 eV と小さいので、 $h\nu = 8$  keV の X 線に対し、 $N \sim 2200$  個の電子対が生成される。他方、エネルギー分解能を決定づける電子対の個数のばらつき (FWHM)  $\Delta N$  は、ファノ因子  $F = 0.13$  を用いて

$$\Delta N = 2.35 \times \sqrt{NF} = 40 \quad (3.2)$$

エネルギー分解能  $h \cdot \Delta\nu / (h \cdot \nu)$  を計算すると

$$\frac{h \cdot \Delta\nu}{h \cdot \nu} = \frac{\Delta N}{N} = \frac{40}{2200} = 1.8 \% \quad (3.3)$$

半導体検出器と並んでよく X 線計測に利用される NaI 検出器では  $h\nu = 8$  keV の X 線に対しエネルギー分解能が約 40 % である<sup>38)</sup>。このようにシリコン半導体検出器は非常に高いエネルギー分解能

を有している。ただしシリコンは半導体の中では原子番号が小さく、Xe K 殻 X 線のような高エネルギー X 線に対する検出効率は高くない事が予想される。そこで Xe K 殻 X 線を想定し、29.7 keV の硬 X 線 CCD の応答特性を電磁カスケードモンテカルロコード EGS4<sup>39)</sup> で評価した。Fig. 3.3 がその結果であり、1.5 % と低いながらも、硬 X 線 CCD は約 30 keV に全吸収ピークをつくる事が判る。また全吸収ピークから僅かにずれたエネルギー (1.74 keV) にもピークが存在している。CCD 素子内で生成された光電子が、CCD 素子と相互作用して Si K 殻 X 線を生成する。この Si K 殻 X 線が素子内で再度相互作用せず素子から逃げ出すため、Si K 殻 X 線 (1.74 keV) の分だけ低エネルギー側にピークが観測されると考えられる。

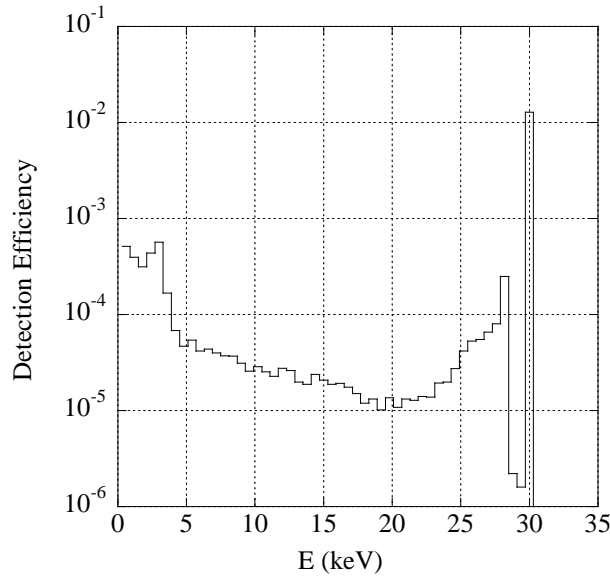


Fig. 3.3 Xe K 殻 X 線に対する X 線 CCD の応答関数.

さらに、約 3keV で急激に応答関数が変化しているのはコンプトン散乱<sup>37)</sup> による効果だと考えられる。コンプトン散乱とは高エネルギー X 線と電子の衝突によって生じる現象である。この衝突によりエネルギー  $E_X$  の入射 X 線のエネルギーが角度  $\theta$  の方向に散乱されると、エネルギーは  $E_X^*$  に減少する。減少したエネルギーは電子に付与される。

$$E_X^* = \frac{E_X}{1 + (1 - \cos \theta) \cdot E_X / (m_e c^2)} \quad (3.4)$$

$$E_e = E_X - E_X^* = \frac{E_X \cdot (1 - \cos \theta)}{m_e c^2 + E_X \cdot (1 - \cos \theta)} E_X \quad (3.5)$$

$m_e$  : 電子の静止質量、 $c$  : 光速、 $E_e$  : 散乱後の電子の運動エネルギー

Xe K 殻 X 線がコンプトン散乱した場合、散乱電子の運動エネルギー  $E_e$  は最大で 3.1 keV になる事が判る。約 3 keV で応答関数が急激に変化している現象は、この散乱電子のみ計測器で検出したからと考えられる (この場合、散乱 X 線は計測器と相互作用することなく、検出器外にエスケープする)。

12.6 keV の Kr K 殻 X 線についても応答関数を計算した結果を Fig. 3.4 に示す。Kr K 殻 X 線の検出効率は 15 % に近い事が確認できる。その他に約 11 keV に Si K 殻 X 線のエネルギー分 (1.74 keV)、エネルギーが低いところにピークが観測される。またコンプトン散乱電子の最大エネルギーは 0.6 keV

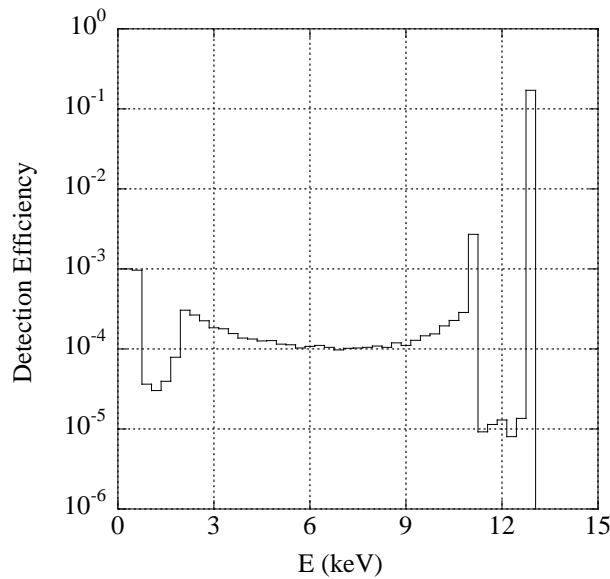


Fig. 3.4 Kr K 殻 X 線に対する X 線 CCD の応答関数.

になるので、このエネルギー近傍で応答関数は急激に変化している。Si K 殻 X 線に相当するエネルギーで応答関数が高くなる事も見て取れる。

上記のモンテカルロ計算により Xe K 殻 X 線、Kr K 殻 X 線のいずれもシャープな全吸収ピークで X 線 CCD の応答を近似できることが確認できた。

私はシングルフォトンカウンティング法で X 線 CCD による X 線スペクトル計測を行っている。仮にクラスターへのレーザー・1 ショットで X 線 CCD の一素子にエネルギー  $h \cdot \nu$  が付与されたとする。この時シングルフォトンカウンティング法では素子へのエネルギー付与が 1 個の光子によるものとし、さらにこの素子に欠損なく光子エネルギーが 100 % 付与されていると仮定する。すると Fig. 3.5 のように横軸に付与エネルギー、縦軸にイベント数として各 CCD 素子の測定結果をプロットすれば X 線エネルギースペクトルを反映したデータを得る事が出来る。注意すべき重要な点は適切な X 線フィルターを用いて各素子への入射個数を一個以下に制限する事である。

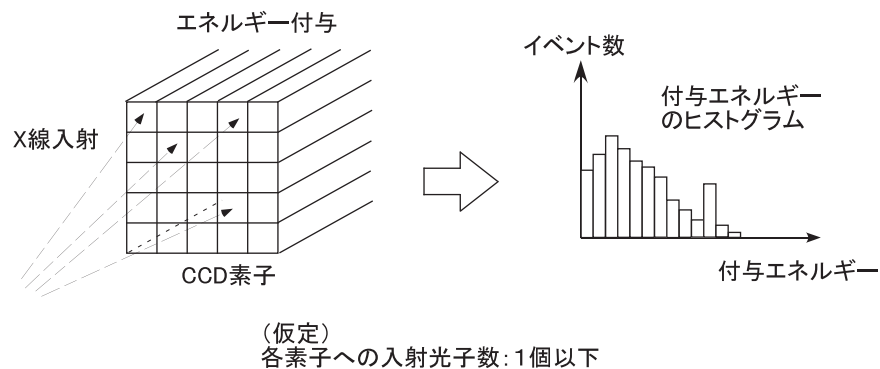


Fig. 3.5 フォトンカウンティング法.

### 3.5.2 結晶分光器

数 keV 以上の X 線の波長は原子半径程度であり ( $\text{\AA}$  オーダー)、X 線回折条件により分光する事が出来る。Bragg 条件は X 線回折の必要条件でしかなく、分光結晶の結晶構造によって式 (3.1) の Bragg 条件を満たしても X 線回折を起こさない禁制反射が存在する<sup>40)</sup>。禁制反射をイメージするため簡単な例を考えてみよう。Fig. 3.6 のように原子面 1 と原子面 3 のからの反射の光路差が丁度、一波長に等しいとする。しかしこの二つの原子面の丁度真中に、原子面 2 があれば、原子面 1 との光路差が半波長になり、二つの反射光は打ち消しあう。そのため Bragg 条件を満足しているにも関わらず有意な反射が観測出来なくなる。

さて結晶は結晶性の極めて高く完全結晶とみなせるものと、結晶性が若干悪いモザイク結晶に分類される。単色性を重視する場合には完全結晶の代表例であるシリコン単結晶 (反射幅  $\Delta\theta =$  数秒-10 秒) を、X 線強度を重視する場合には雲母などモザイク結晶を利用される。結晶の代表例及びその特性を Appendix D に記す。

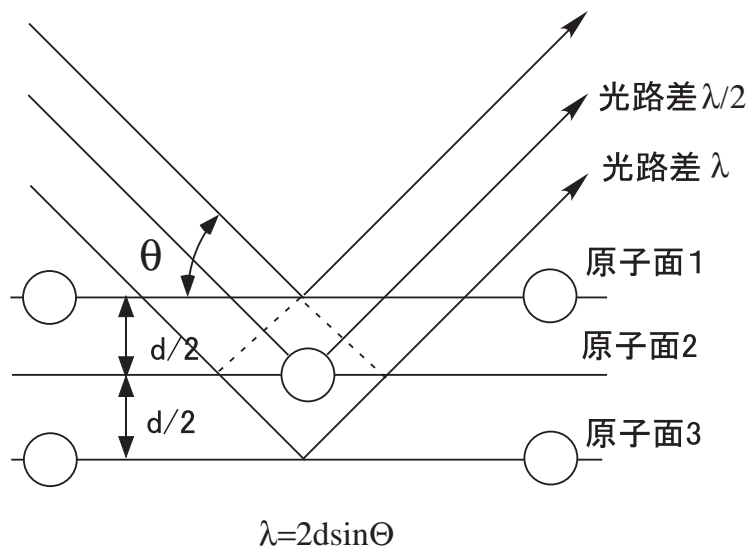


Fig. 3.6 禁制反射.

私は曲率半径  $R=150$  mm の湾曲雲母結晶を用いて分光及びサジタル方向の集光を行い、軟 X 線 CCD(Andor 製 DX420-BN) にて検出した<sup>41,42)</sup>。光源点 (レーザー集光位置) から結晶までの距離  $a$ 、中心エネルギーの反射角  $\theta$  及び結晶と検出器の距離  $b$  を調整する事で測定エネルギー領域を選択した。サジタル方向の集光条件は

$$a = R \cos(90 - \theta) = R \sin \theta \quad (3.6)$$

$$b = R \cos(90 - \theta) / \cos(180 - 2\theta) = -R \sin \theta / \cos(2\theta) \quad (3.7)$$

この計測器のエネルギー分解能  $\Delta\lambda$  は  $\lambda/\Delta\lambda \sim 7000$  である。この計測器で凡そ 2 - 6 keV の X 線を計測する事が出来る。

### 3.5.3 電子スペクトロメータ

一様な磁場中  $B$  に直交して速度  $v$  の電子が入射すると、ローレンツ力  $F$  を電子は受ける。遠心力との釣り合いにより電子の軌道半径  $R_{Lar}$  を用いて

$$F = ev \times B = \frac{m_e v^2}{R_{Lar}} \quad (3.8)$$

この式から

$$R_{Lar} = \frac{m_e v}{eB} = \frac{m_e c}{eB} \beta \quad (3.9)$$

ここで  $m_e$  は電子の静止質量、 $c$  は光の速さで、 $\beta \equiv v/c$  を用いた。

相対論的電子の運動エネルギー  $E_e$  は

$$E_e = \frac{m_e c^2}{\sqrt{1 - \beta^2}} - m_e c^2 \quad (3.10)$$

式 (3.9) を用いて  $\beta$  を消去すると軌道半径  $R_{Lar}$  を求める事が出来る。

$$R_{Lar} = \frac{m_e c}{eB} \sqrt{1 - \left( \frac{m_e c^2}{m_e c^2 + E_e} \right)^2} \quad (3.11)$$

運動エネルギー  $E_e$  を有する電子は、一様な磁場  $B$  により曲率半径の円  $R_{Lar}$  に添って軌道を曲げられる。 $x$  軸方向から電子が磁場に入射した場合、磁石による電子の  $x$  軸からの変移を測定し、電子のエネルギーを計測する装置である。

電子エネルギーの計測には、この磁石に加えてコリメータ、蛍光板とカメラを利用する (Fig. 3.7 参照)。コリメータを通過した電子は磁石で曲げられながら蛍光板と相互作用する。この時の蛍光板の発光位置 ( $x$  軸からの変移量) を CCD で観測し電子スペクトルに換算する。

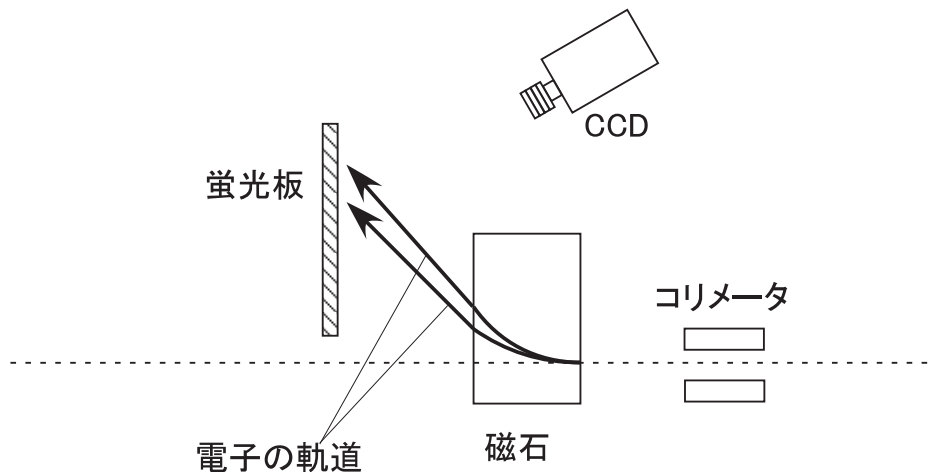


Fig. 3.7 電子スペクトロメータ.

### 3.6 本章のまとめ

- レーザークラスター X 線実験の歴史や背景に関して説明し、Xe K 殻 X 線生成の報告例が存在しない事、その生成メカニズムも不明な点がある事を合わせて議論した。
- J-KAREN レーザーの利用研究が行われる実験室及び実験チャンバーを写真、図で示した。室内にはレーザー伝送用ビームラインが整備され、このビームラインを通じてレーザーは実験チャンバーに導かれる。
- ビームライン、実験チャンバーは真空ポンプにより真空状態に保たれている。
- クラスター生成用ノズルや集光ミラーは実験室外から遠隔で調整する事が出来る。レーザーとほぼ同時してノズルのバルブを開き、両者を相互作用させる。
- 高エネルギー用 X 線のエネルギースペクトル計測には硬 X 線 CCD が用いられている。Xe K 殻 X 線, Kr K 殻 X 線に対する応答関数を電磁カスケードモンテカルロコードで計算し、それぞれ 1.5 % 程度、15 % 程度の全吸収ピークで近似できることを確認した。またシングルフォトンカウンティング法を用いると各 CCD 素子の付与エネルギーに対するヒストグラムより X 線エネルギースペクトルを取得できる事を示した。
- 分光用湾曲結晶と計測用軟 X 線 CCD で構成された結晶分光器も利用している。計測可能な X 線エネルギーは最大数 keV と低いが、 $\Delta\lambda/\lambda \sim 7000$  と高いエネルギー分解能を有している。
- 磁石によって曲げられる電子の軌道は、電子の運動エネルギーに依存する。電子スペクトロメータではこの電子の軌道を計測して電子の運動エネルギー情報を得る。

## 4 Three Stage ノズルを用いた X 線発生実験の結果

2004 年に Issac 等はシンプルな円錐ノズルを用いて Kr K 殻 X 線生成実験を試みている<sup>13)</sup>。その結果、パルス幅 300 fs のレーザーを  $2.6 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度で Kr クラスタに照射し、明瞭な Kr K 殻 X 線生成に成功している。彼らはこの実験でのクラスタ半径は半径 18 nm と推測している。

私は大型のクラスタが期待される Three stage ノズルを有していたので、Kr からの高エネルギー単色 X 線はもちろん Xe 殻 X 線も生成出来るのではないかと思いついた。そもそもこのノズルでは、非常に高いイオン生成 (10 - 20 MeV/核子のイオン) に小型レーザー (JLITE-X レーザー) との相互作用で成功している事<sup>43,44)</sup> もあり、粒子線生成に適したノズルであると当初考えられた。そこでこの Three stage ノズルと超短パルス高出力レーザー (JLITE-X や J-KAREN レーザー) を用いて実験を開始した。

### 4.1 X 線 CCD のエネルギー校正

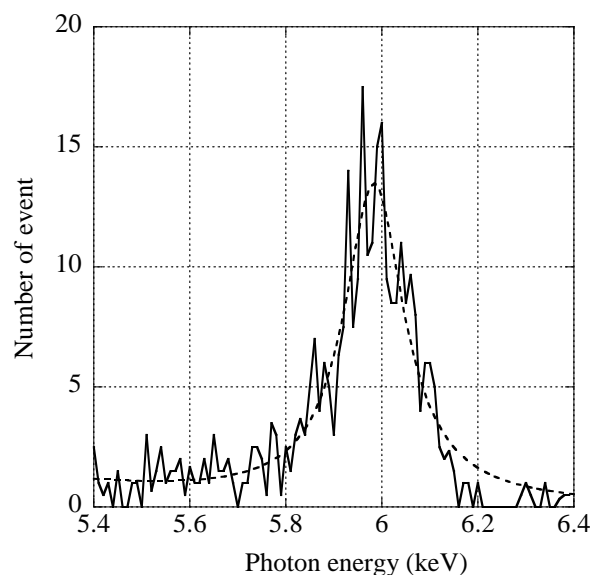


Fig. 4.1 Fe<sup>55</sup> 線源でのエネルギー校正.

初めに校正用線源 Fe<sup>55</sup> を用いて X 線 CCD のエネルギー校正を実施した。空気での X 線の吸収を軽減するため、この線源を CCD に近づけた状態で数時間データ取得した。シングルフォトンカウンティング法で解析した結果、Fig. 4.1 の様なスペクトルを取得した。実線は生データ、点線はガウス分布での Fitting Curve を表す。約 6 keV のピークはこの線源から放出される X 線 (Mn K<sub>α</sub> 線) である。このようにエネルギーが既知の線源でエネルギー校正を実施した後、レーザークラスタ実験にこの X 線 CCD を利用した。



X線 CCD でエネルギースペクトル取得する上で重要な点はこれまでも述べてきたシングルフォトンカウント法が（近似的に）適用出来る事である。CCD 像を例に説明する。Fig. 4.2 の上の画像は X 線 CCD のほとんどの素子に X 線のエネルギー付与がなされている場合である。この場合は各素子と相互作用した X 線光子は複数個と考えられ、シングルフォトンカウンティング法で解析するのは適切でない。仮に CCD 素子に光子一個相互作用する確率が 80 %だとすると光子二個が素子と相互作用する確率は 64 %になり、2/3 程度の素子が複数個と相互作用していると解釈できる。シングルフォトンカウンティングは、素子と相互作用する光子が少ない事が望ましい。しかし実験時間も考慮すると各素子への相互作用する X 線光子数は 0.1 個程度に抑えてシングルフォトンカウントするのが現実的であると思われる。相互作用する X 線光子を減らす方法としては、X 線 CCD と線源の距離を遠ざける方法、X 線 CCD に低エネルギーカットのフィルターを施す方法が考えられる。

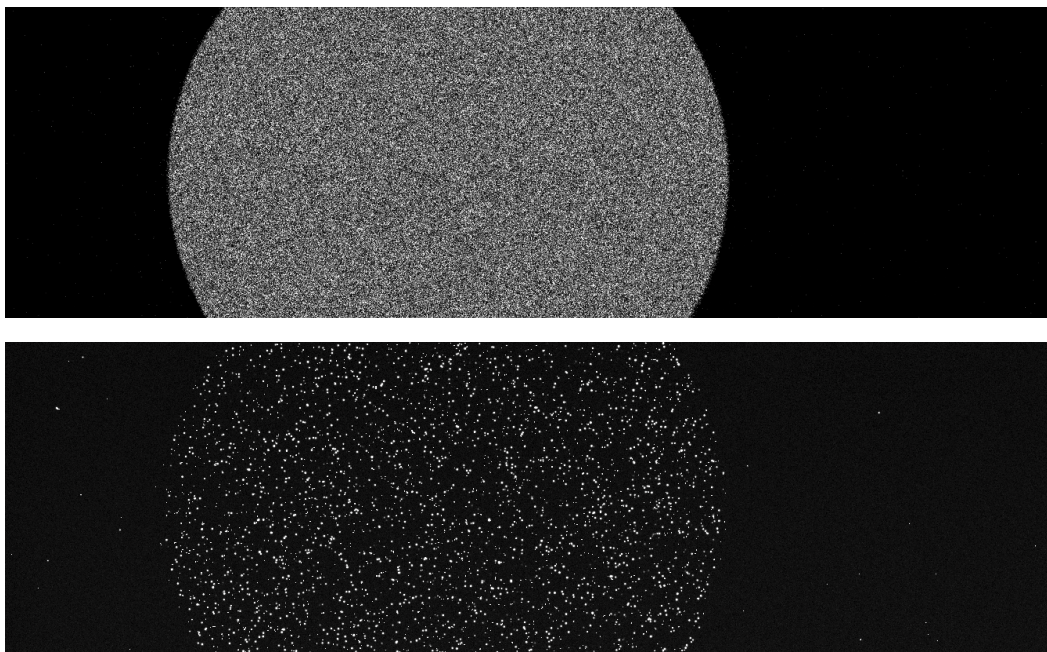


Fig. 4.2 X 線 CCD イメージ.

下は Al フィルター 260  $\mu\text{m}$  を施して測定した例である。低エネルギー成分はフィルターで吸収されるため、素子への付与はまばらである。エネルギー付与はフィルターを透過した高エネルギー X 線 (10 keV 以上の X 線) に由来すると考えられる。このように CCD で計測する場合は素子への付与の様子を確認した上でエネルギースペクトルの測定を行う事が求められる。

## 4.2 Xe クラスターの結果

これまで Xe K 殻 X 線の生成には誰一人として成功していなかった理由として以下の事が考えられる。

- 1) 生成される Xe K 殻 X 線の強度が弱く、計測が難しい。
- 2) X 線 CCD 計測器の検出効率が低い (Xe K 殻 X 線の検出効率 1.5 %)
- 3) 低エネルギーカット用の適切なフィルターを用意されていなかった可能性。この場合シングルフォトンカウンティング法が適用できず、Xe K 殻 X 線のピークがブロードなスペクトルに埋没する。

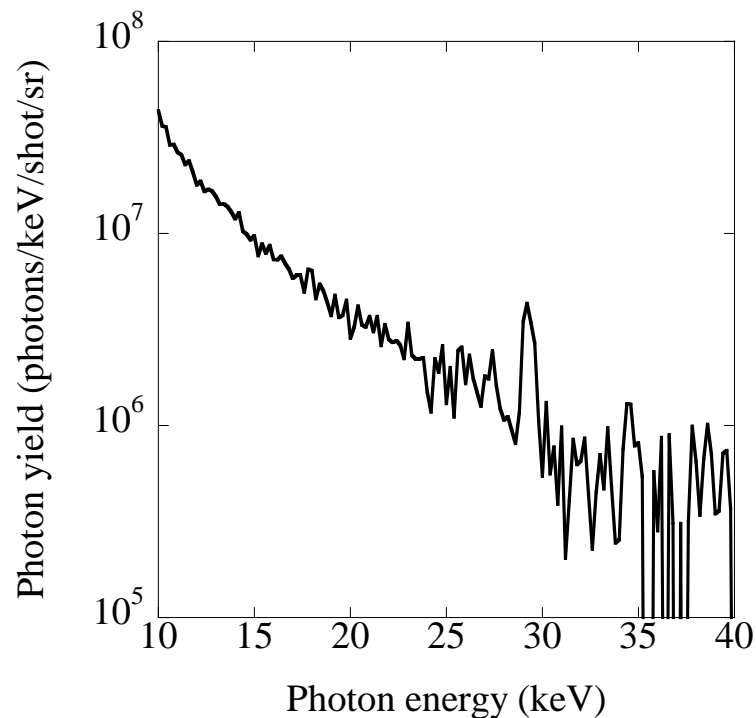


Fig. 4.3 Xe クラスターでの典型的な X 線エネルギースペクトル.<sup>2)</sup>

そこで私は Three stage ノズルで大型のクラスターを生成させる事で Xe K 殻 X 線生成効率の向上を試みた。また多数回、同一条件で実験することで低検出効率でも、計測可能であると考えた。Al 260  $\mu\text{m}$  のフィルターを用いることで低エネルギー X 線をカットし、Xe K 殻 X 線のシングルフォトンカウンティング法が適用できる状態をつくった。ピークレーザー強度は  $10^{19} \text{ W/cm}^2$ 、ノズルの背圧は 3.4 MPa の条件で J-KAREN レーザーをクラスターと同期して照射した。平均の X 線エネルギースペクトルを Fig. 4.3 に示す<sup>2)</sup>。X 線エネルギーの増加とともに減衰していく成分は、制動放射 X 線だと考えられる。計測では最大 40 keV まで広がった制動放射 X 線が見受けられる (実際には 40 keV 以上の X 線も生成しているが、X 線の検出効率が 0.11 % 未満と低いため、計測出来なかったと想像される)。式 (7.16) を考慮すると、この制動放射 X 線はクラスター内の電子温度を反映していると考えられる。この制動放射 X 線に加えて、有意に見える 30 keV 近傍に見える明瞭なピークこそが Xe K 殻 X 線である。

X線 CCD の Xe K 殻 X 線に対する検出効率は約 1.5 % と低いため、1 回のレーザーショットで得られた X 線エネルギースペクトルは粗く、Xe K 殻 X 線のピークは観測出来なかった。しかしここで諦めず 100 回ショットしたところ平均の X 線エネルギースペクトルがなめらかになり、世界初のレーザープラズマ Xe K 殻 X 線生成の確認に繋がったと考えている。

#### 4.2.1 X線のクラスター条件依存性

X線スペクトルのクラスター条件に対する依存性を確認するため、ノズル背圧を0.42 MPaと一桁近くまで下げて実験を試みた。ここでピークレーザー強度は前と一緒で $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>である。ただし、X線の強度が下がる事を想定し、Al 260  $\mu$ mのフィルターを外してX線CCDで計測を行った。得られたスペクトルをFig. 4.4に示す。背圧3.4 MPaの場合は10 keVでのX線強度が $10^7$  photons/keV/srのオーダーだったのに対し、0.42 MPaに下げると同一エネルギーでのX線強度が $10^5$  photons/keV/srのオーダーと二桁程度低下している事が判る。また4.1 keVのXe L $\alpha$  X線、4.4 keVのXe L $\beta$  X線がはっきりと確認できるが約30 keVのXe K殻X線に関しては検出出来なかった。その他に約15 keVまで制動放射X線が広がっているがFig. 4.3のときと較べると傾きが急になっている事が明らかになった。これは電子温度が下がった事を意味している。

背圧の減少とともにクラスター半径が小さくなり、X線の生成効率が下がったと考えられる。尚、5.4 keVに見える小さなピークはCr K $\alpha$  X線、6.4 keV近傍のピークはFe K $\alpha$  X線であり、加熱されたプラズマ電子の一部がThree stage ノズルと相互作用することで生成したと考えられる。

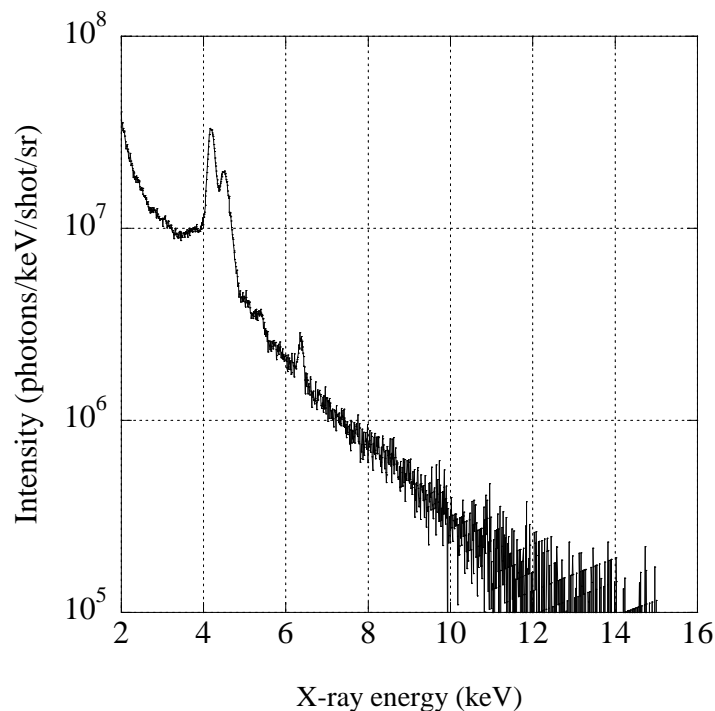


Fig. 4.4 背圧を0.42 MPaに下げた時のエネルギースペクトル.

#### 4.2.2 レーザーパルス幅依存性

Xe K 殻 X 線の生成強度に依存するパラメータとしてノズル背圧の他にレーザーのパルス幅が挙げられる。パルス幅を長くするとレーザーのピーク強度は下がるが長時間レーザーとクラスターが相互作用するので高い X 線強度が期待出来る。他方、パルス幅が短い場合、相互作用時間は短いが高いピークレーザー強度の存在により X 線強度のエンハンスが見込める。

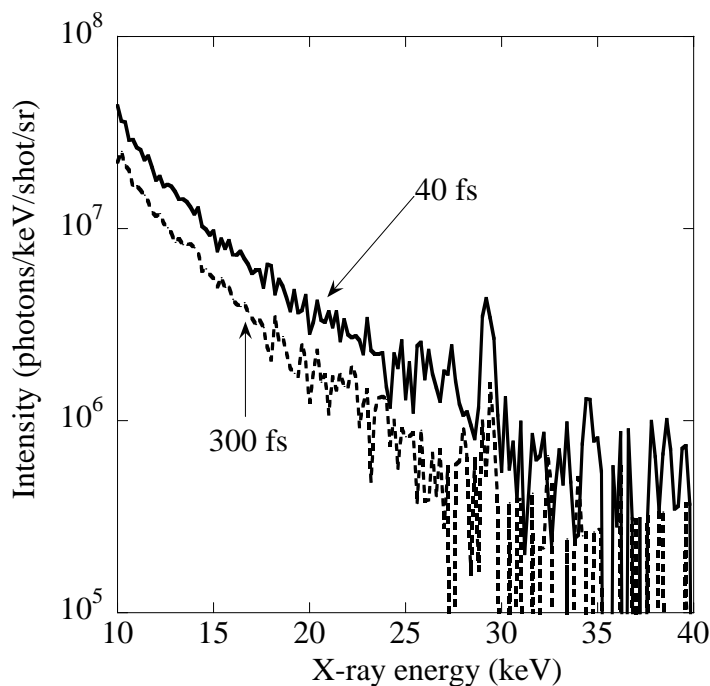


Fig. 4.5 X 線エネルギースペクトルのパルス幅依存性.<sup>2)</sup>

この実験では背圧を 4.1 MPa, レーザーエネルギー 1 J, レーザー集光径を固定して 40 fs のレーザーのパルス幅のとき、ピークレーザー強度は  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> に相当する。まずはパルス幅 40 fs ( $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>) で 20 ショットしたところ Xe K 殻 X 線の生成を確認できた (Fig. 4.5)。Xe K 殻 X 線の強度、制動放射 X 線のスペクトルは 3.4 MPa の時と良く似ている事が判る。次に J-KAREN レーザーのパルス圧縮器に設置されている回折格子の間隔を微調し、レーザーパルス幅を約 300 fs ( $1.33 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) に広げた。先ほどと同じように 20 ショット実施したところ同図の波線で示されたエネルギースペクトルが得られた。パルス幅 40 fs とパルス幅 300 fs のデータを比較すると明らかに、40 fs の方が Xe K 殻 X 線及び制動放射 X 線の強度が強い事が判る。

また 300 fs の場合は、40 fs に較べて X 線強度は半分程度に下がっているが、両方で電子温度にそれほど違いが見受けられないことも判る (制動放射線のエネルギースペクトルを Maxwell 分布で Fitting した時の温度は電子温度に一致する)<sup>45)</sup>。尚、この結果に関しては 7.6.4 節で議論を行う。

### 4.3 Ar クラスターの結果

X線エネルギーが 3 keV と Kr, Xe に較べてエネルギーの低い Ar K 殻 X 線生成についても試みている。小型の超短パルス高出力レーザーの JLITE-X を使用し、Three stage ノズルで背圧 6.2 MPa で生成させた Ar クラスターと相互作用させている。レーザーエネルギー 0.12 J, パルス幅 40 fs であった。集光には  $f/22$  の軸外し放物面鏡を用いており、ビームウエスト半径 (ベストフォーカス位置での集光半径) は凡そ  $11.2 \mu\text{m}$  と推定される。このベストフォーカスからガスノズルが設置されているステージをレーザー軸方向に 2.4 mm 移動させて実験を開始した。X線 CCD には  $100 \mu\text{m}$  の Be 窓を付けて測定を行った。レーザー 1 ショットのデータであるが Ar K 殻 X 線に由来する 3 keV 近傍のピークが明瞭に観測される事がわかる。この Ar K 殻 X 線のピークに加えて、ブロードな制動放射 X 線が観測されている。

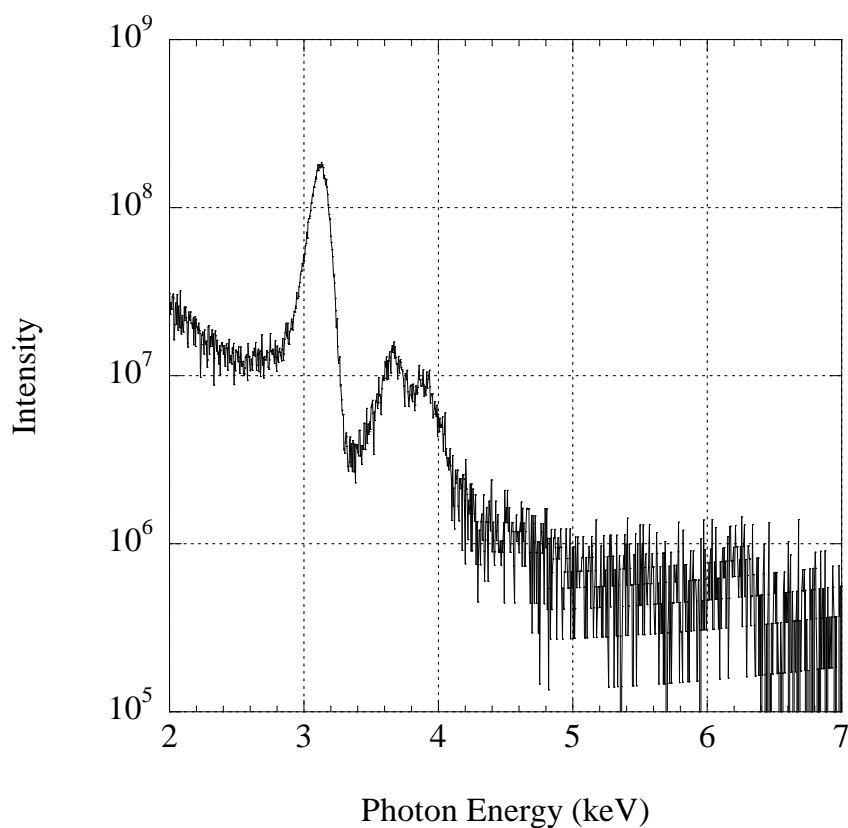


Fig. 4.6 Ar クラスターでの典型的な X 線エネルギースペクトル.

### 4.3.1 集光位置依存性

次にノズルが設置された駆動ステージをレーザー進行方法に対し前後に移動させてレーザーショットを行い X 線強度のレーザー集光位置依存性を調べた。測定で得られた各位置での Ar K 殻 X 線の強度を Fig. 4.7 にプロットしている。ノズル位置以外の条件は固定しており、Three stage ノズルの背圧は 6.2 MPa、レーザーエネルギーは 0.12 J、パルス幅は 40 fs である。興味深いのはベストフォーカスの位置 ( $x = 0$  mm) から  $x = \pm 2-3$  mm の方向に向かうにつれて X 線強度が上がる点である。これは単純にレーザー強度が高いほど、X 線強度が強くなる訳ではない事を示している。 $x = \pm 2-3$  mm の位置以降は、 $x = \pm 5$  mm の方向に向かうにつれて X 線強度は下がっていく事も確認できる。

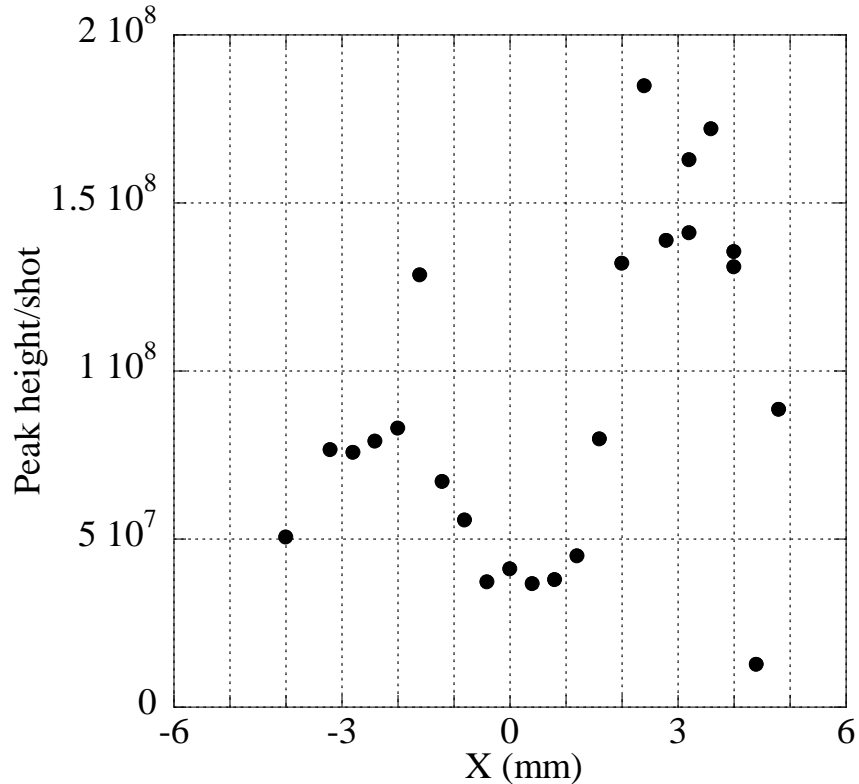


Fig. 4.7 Ar K 殻 X 線の集光位置依存性.

この現象に関しては 7.6.2 節で議論する。

### 4.3.2 背圧依存性

今回はレーザーエネルギーが 1 J と高い J-KAREN レーザーをベストフォーカスから 2.2 mm 離れた位置に集光し、レーザーとクラスターの相互作用で生成される Ar K 殻 X 線の強度を測定した。パルス幅は 40 fs である。まずノズルの背圧 6.1 MPa で測定したところ JLITE-X の時と比べて約 1 桁、強度が高くなった (Fig. 4.8 参照)。J-KAREN レーザーのエネルギーは JLITE-X に比べて大きいので、生成される X 線強度も強くなったと考えられる。

この測定ではさらに 6 keV 過ぎにピークがはっきり確認出来る。これは、CCD の同一素子に 2 個 Ar K 殻 X 線が相互作用した結果、Ar K 殻 X 線エネルギーの 2 倍のエネルギー位置にピークをつくったと考えられる。

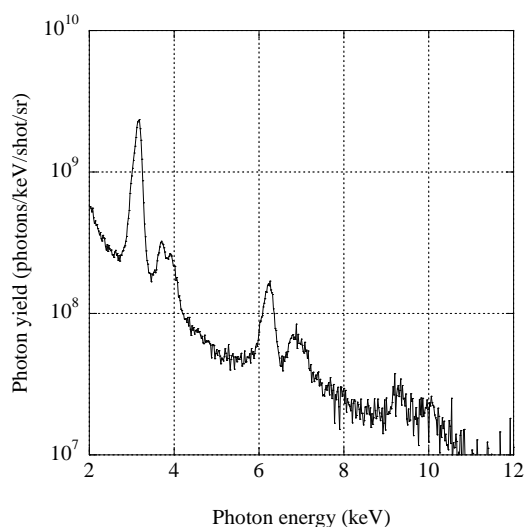


Fig. 4.8 Ar 6.1 MPa.

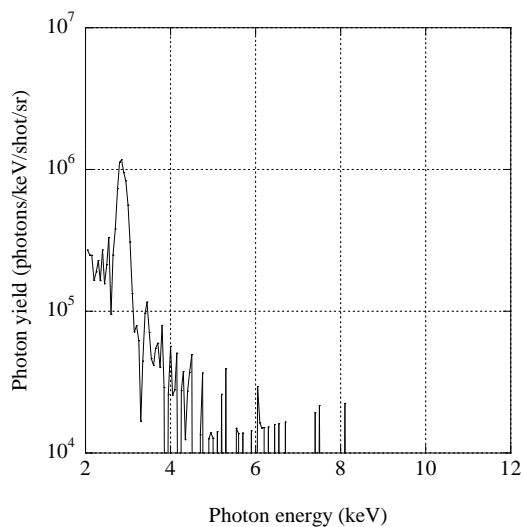


Fig. 4.9 Ar 2.1 MPa.

これまで Three stage ノズルで 4 MPa より低い背圧での Ar K 殻 X 線生成は報告されていなかった。そこで今回はレーザー条件を固定したまま、ノズルの背圧を 2.1 MPa に減圧し、背圧依存性を調べてみた。すると僅かに観測出来る程度にまで Ar K 殻 X 線の強度は激減した (Fig. 4.9 参照)。強度は 6.1 MPa の時と比べて 1/1000 以下、先ほどの JLITE-X での結果に比べても 1/100 程度の値である。ただし電子温度はそれほど変化していないように見える。



### 4.3.3 電子スペクトルのガス種依存性

電子スペクトロメータを用いて、X線と共に生成する電子のエネルギースペクトルを試みた。J-KAREN レーザーを用い、ピークレーザー強度は  $1 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$  で実験を行っている。ガス種依存性を見るため、He ガスは 6 MPa、Ar ガスは 5 MPa の背圧で Three stage ノズルを用いて測定を行った。計測した X 線 CCD の生データを Fig. 4.10 に示す。レーザーとガスにより生じるレーザー航跡場相互作用 (Appendix E.6) では MeV をはるかに超える電子を生成する事が出来る。He では電子エネルギーの増加とともにゆるやかに電子強度は減衰する傾向を有しており、使用した電子スペクトロメータのエネルギー上限値である 60 MeV においても有意に観測された。他方、Ar の場合はエネルギーとともに急激に減衰し、最大エネルギーは約 20 MeV と低い事がわかる。

ただし 1 MeV を超える運動エネルギーを有する高エネルギー電子は Ar クラスターの外に即座に飛び出すので、Ar K 殻 X 線生成にはあまり寄与しないと考えられる (He の電子準位は K 殻のみで、電子の遷移が伴う K 殻 X 線が存在しない)。むしろこの高エネルギー電子は周辺の物質 (例えばノズルや実験チャンバー等) と相互作用し、制動放射 X 線やその物質の特性 X 線を放出すると考えられる。

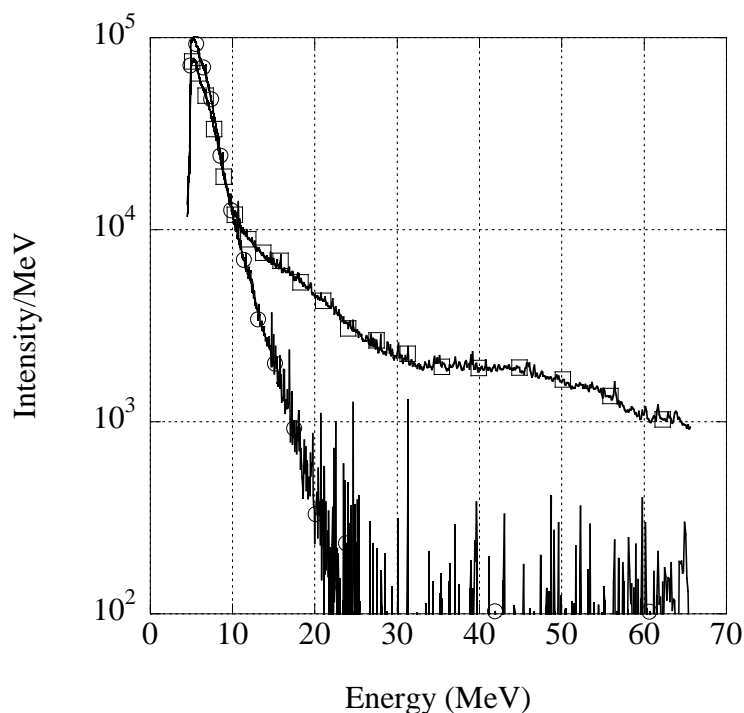


Fig. 4.10 ガス種による電子エネルギーの違い.Ar(丸付き線)、He(四角付き線).

さてこれらの電子加速のメカニズムは以下のように解釈される。Ar からの電離電子はレーザー航跡場を形成し、さらに一部の電子がこの航跡場の加速位相にうまくのり加速される。しかしクラスターが航跡場をせきとめるため、約 20 MeV までしか加速できなかったと考えている。He ガスの場合はクラスター化しない事が知られている。そのため、Ar のようにクラスターでせき止められる事無く加速できた結果最大 60 MeV の電子が観測されたと考えられている。同様な結果及び電子加速メカニズムは他の論文で議論されている<sup>46)</sup>。

## 4.4 Kr クラスターの結果

### 4.4.1 Kr クラスターでの背圧依存性

Three stage ノズルで生成させた Kr クラスターに  $8 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  のピークレーザー強度で小型超短パルス高出力レーザー JLITE-X を照射し Kr K 殻 X 線の生成も試みている<sup>1)</sup>。3.5 MPa の背圧をかけ、X 線 CCD で 100 ショットしたときの平均エネルギースペクトルが Fig. 4.11 である。13 keV 近傍に明確に見えるピークが Kr K 殻 X 線である。3.1 MPa と少し背圧を下げてみたがそれほど X 線強度に変化は見られなかった (Fig. 4.12 参照)。3.5 MPa の時と較べてデータが粗いのは、20 ショットの平均スペクトルを示しているためである。さらに背圧を下げて 2.0 MPa にしたところ、X 線強度は 3.5 MPa の時に較べて、強度は約 4 割に減少する事が判った (Fig. 4.13 参照)。

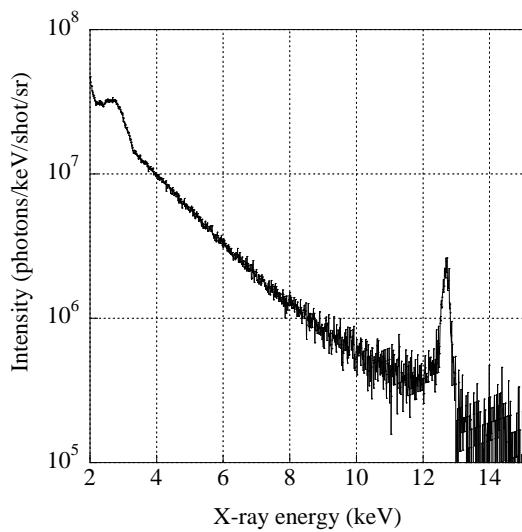


Fig. 4.11 3.5 MPa でのエネルギースペクトル.

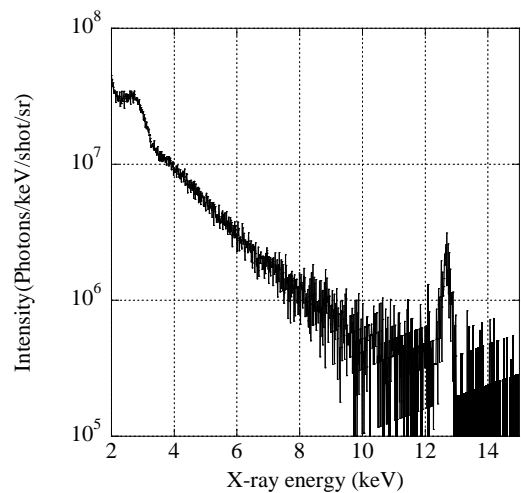


Fig. 4.12 3.1 MPa でのエネルギースペクトル.

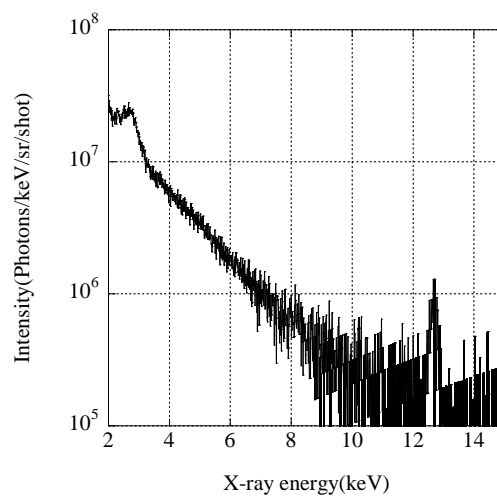


Fig. 4.13 2.0 MPa でのエネルギースペクトル.

#### 4.4.2 Kr クラスターのイオン化

これまでは X 線エネルギースペクトルや電子エネルギースペクトルの測定結果を紹介してきた。その他、クラスター X 線相互作用を理解するためのデータとして、イオン化状態の計測を試みている。

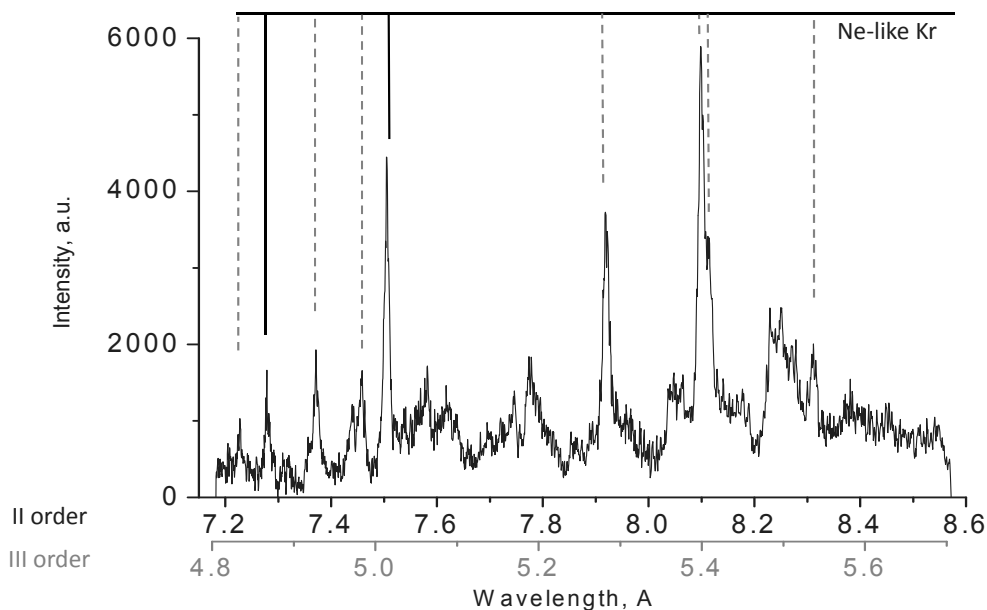


Fig. 4.14 Ne-like Kr (J-KAREN).

多価に電離したイオンでは正に帯電しているため、電氣的に中性な原子準位が変調を受ける。この帯電状態で電離や励起が起これると、電離状態に特有の単色光が放出される。J-KAREN レーザーをベストフォーカスから +2.2 mm ずらした状態で、背圧 2.6 MPa, パルス幅 40 fs, レーザーエネルギー 1 J ( $2 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>) で実験を行い、結晶分光器で観測を行った。結晶分光器で得られた結果を Fig. 4.14 に示す。電離状態を示す単色光を実線 (二倍波  $\lambda_2 = 2d \sin \theta/2$ )、点線 (三倍波  $\lambda_3 = 2d \sin \theta/3$ ) で示している。X 線のデータベースを利用した結果<sup>47)</sup>、Ne 様イオン (Kr<sup>+26</sup>) まで電離が進行している事が確認された。尚、この結果に関しては 7.6.3 節で検討を行う。

Table 4.1 Ne 様イオンからの電磁波スペクトル.

波長 (Å)	4.81	4.95	4.98	5.28	5.41	5.54	7.27	7.50
遷移	5d-2p	4p-2s	5s-2p	4d-2p	4s-2p	4s-2p	3s-2p	3s-2p

## 4.5 本章のまとめ

- この章では Three stage ノズルを用いた実験の結果について報告した。まず約 6 keV の単色 X 線 (Mn K<sub>α</sub> 線) を有する Fe<sup>55</sup>線源を用い X 線 CCD のエネルギー校正を行った。
- シングルフォトンカウンティング法が適応出来るケース、出来ないケースを X 線 CCD の測定例を挙げて説明した。シングルフォトンカウンティング法に必要な条件 (X 線 CCD の X 線検出確率 ≤ 0.1 photons/pixel) について議論し、X 線フィルターの利用や線源からの距離で調整を行う事を説明した。
- Xe クラスタに関して  
ピークレーザー強度 10<sup>19</sup> W/cm<sup>2</sup> でノズル背圧 3.4 MPa で生成させた Xe クラスタを相互作用させた。その結果、ブロードなエネルギースペクトルを有する制動放射 X 線に加えて、30 keV 近傍に明瞭な Xe K 殻 X 線のピークを観測することが出来た。  
パルス幅依存性を調べるため 40 fs から 300 fs で X 線発生実験を行ったところ、Xe K 殻 X 線の強度が減少することもわかった。  
ノズル背圧を 0.42 MPa に下げたところ X 線スペクトルは最大 15 keV と低くなり Xe L 殻 X 線のみ観測された。
- Ar クラスタに関して  
背圧 6.2 MPa で生成した Ar クラスタにレーザーを照射し、約 3 keV の Ar K 殻 X 線生成を確認できた。  
X 線のレーザー集光位置依存性を調べた所、レーザー集光位置をベストフォーカスから少しレーザー進行方向にずらした方が Ar K 殻 X 線強度が強くなる結果を確認できた。  
背圧依存性を調べるため 6.1 MPa から 2.1 MPa に下げると Ar K 殻 X 線強度が 10<sup>-3</sup> 以下に激減することが明らかになった。  
Ar クラスタと He ガスでの電子エネルギー分布を電子スペクトロメータで計測した。その結果、Ar クラスタで最大 20 MeV の電子生成だったのに対し、He ガスでは同一レーザー条件で最大 60 MeV の電子が確認された。
- Kr クラスタに関して  
Kr K 殻 X 線の背圧依存性を調べ、背圧を 3 MPa から 2 MPa に下げると K 殻 X 線強度が低下することを確認した。また結晶分光器で計測した結果、ピークレーザー強度 2 × 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup> においてレーザークラスタ相互作用により Ne 様イオン (Kr<sup>+26</sup>) が生成していることが分かった。

## 5 Three stage ノズルで生成されるクラスターの考察

### 5.1 Three stage ノズルの特徴

前章の実験では Fig. 5.1 の特殊な構造を有する Three stage ノズルを用いてクラスター生成を行ってきた。このノズルには General Valve 製ソレノイドバルブが取り付けられており、ガスの噴出及び停止をこのバルブ開閉で制御する。Three stage ノズルは全長 75 mm、1'st stage では内径は 0.5 mm

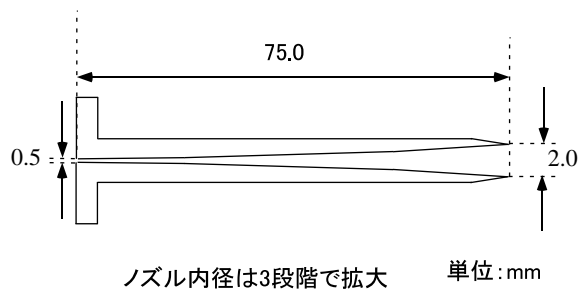


Fig. 5.1 Three stage ノズル.

から 0.7 mm、2'nd stage で 0.8 mm、3'rd stage で 2.0 mm まで拡大される構造を有する。流体力学計算と古典的核生成理論に基づいて設計され、6 MPa の背圧で  $0.76 \mu\text{m}$  の Ar クラスタが生成出来ると計算で予想されている<sup>48)</sup>。

### 5.2 相互作用するクラスター個数のクラスター半径依存性

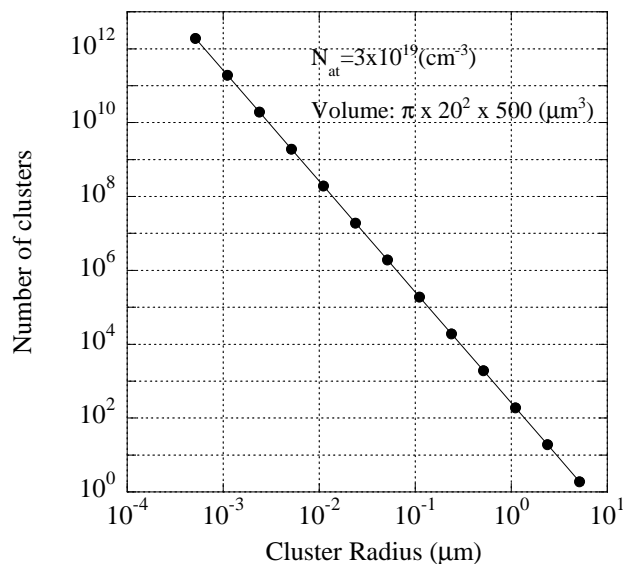


Fig. 5.2 Ar クラスタ数と Ar クラスタ半径の関係.

Three stage ノズルを用いた時、レーザーと相互作用するクラスターの個数を評価してみる。Three stage ノズルでの背圧 3 MPa のケースを考える。論文のデータより Ar 原子密度を  $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$

とする<sup>48)</sup>。レーザービーム径、レイリー長を考慮して、レーザーと相互作用する領域を直径  $40 \mu\text{m}$ 、奥行  $0.5 \text{ mm}$  と仮定する。エリア内の原子全てがクラスター形成に寄与し、かつクラスターサイズは均一とする。すると簡単に計算出来、得られた結果を Fig. 5.2 に図示する。相互作用するクラスター数はクラスターサイズに依存する。

クラスター半径が  $100 \text{ nm}$  以下ではクラスター個数は  $10^5$  程度かそれ以上になり、計測結果は多数のレーザークラスター相互作用の平均情報である事が理解できる。その他、レーザーと相互作用する全原子を用いて一個のクラスターを生成させても、その半径は  $6 \mu\text{m}$  程度である事が判る。ただし希ガスクラスターの結合力であるファンデルワールス力が弱い力である事を考えると、半径  $6 \mu\text{m}$  のクラスター生成は極めて難しいものと思われる。

### 5.3 クラスターサイズ評価に用いられたクラスター生成理論 (古典的核生成理論)

ノズルに入射されたガスは流体として振舞う中で冷却され続けて凝固点に達し、一部の原子はクラスターを形成するようになる。クラスター形成はある結晶核にファンデルワール力で次々と周囲の原子が引き寄せられるという描像で理解できる。クラスター形成を評価する方法として Three stage ノズルでは、理論的にクラスター径を求めている。まずはクラスター形成を理論的に取り扱う方法を説明する。一般に気体を急激に冷却して出来た場合、自由エネルギーは、Fig. 5.3 のようになっていると考えられる<sup>49)</sup>。あるクラスター径 (臨界半径  $R_{cri}$ ) で自由エネルギーが最大になるため、クラスター径の成長が起こるためにはこのピークを越えた結晶核が必要である。このクラスター成長の条件について式 (5.1) を用いて詳しく議論してみよう。

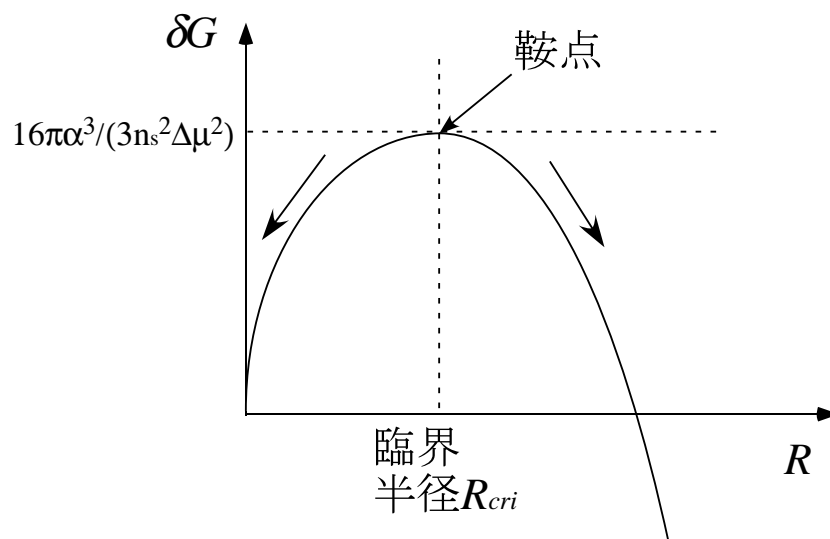


Fig. 5.3 ポテンシャル曲線.

$$\delta G(R) = -\frac{4 \cdot \pi}{3} R^3 \cdot n_s \cdot \Delta \mu + 4\pi \cdot R^2 \cdot \alpha \quad (5.1)$$

$R$  : クラスター半径,  $n_s$  : 原子密度,  $\Delta \mu$  : 個液の化学ポテンシャル差,  $\alpha$  : 表面張力

$\delta G(R)$  はギブスの自由エネルギーで、クラスター体積に依存する第一項 ( $R^3$ ) とクラスター表面積に依存する第二項 ( $R^2$ ) からなる。一般にクラスター表面の原子は、内部の原子に比べ結合が不足している分、不安定である。そのため右辺第二項のように表面積が多いほど自由エネルギーが高くなる。他方、内部の原子は安定なため、体積が大きいほど自由エネルギーを下げる。このようにギブスの自由エネルギーは、表面積と体積の寄与で理解する事が出来る。

式 (5.1) を微分し、零と置くと、臨界半径  $R_{cri}$  が求まる。

$$R_{cri} = \frac{2 \cdot \alpha}{n_s \cdot \Delta\mu} \quad (5.2)$$

初期時に (偶発的に) 臨界半径より大きなクラスターが出来れば、クラスターが大きい方がエネルギー的に安定なため更に成長していくことができる。

理想気体の場合は過飽和度 (圧力と飽和圧力の比)  $S$ 、温度  $T$ 、ボルツマン定数  $k_B$  を用いて

$$\Delta\mu = -k_B T \ln S \quad (5.3)$$

この臨界半径におけるギブスの自由エネルギーは式 (5.1) に式 (5.2) と上の式を代入して

$$\delta G(R = R_{cri}) = \frac{16\pi}{3} \frac{\alpha^3}{(n_s k_B T \ln S)^2} \quad (5.4)$$

上記の議論で臨界半径がクラスター生成の重要なパラメータである事は明らかになったが、これだけではクラスター成長過程を定量的に評価できない。そこでクラスター成長機構を動力的見地から議論した古典的核生成理論 (Classical Nucleation Theory, CNT) を用いる (Appendix. F 参照)。この理論では構成原子数  $N$  のクラスターの密度  $n(N)$  は以下の式に従うと考えた<sup>49)</sup>。

$$\frac{\partial}{\partial t} n(N) = n(N-1) \cdot R_+(N-1) - n(N) \cdot R_+(N) - n(N) \cdot R_-(N) + n(N+1) \cdot R_-(N+1) \quad (5.5)$$

$R_+(N)$  : 単位時間に大きさ  $N$  のクラスターが  $N+1$  に変化する速度

$R_-(N)$  : 単位時間に大きさ  $N$  のクラスターが  $N-1$  に変化する速度

詳細釣り合いの条件等の仮定の後、核生成速度 (単位時間あたりに生成される臨界半径より大きいクラスターの個数)  $J_s$  を以下のように求めている。式 (5.4) を考慮すると、核成長速度  $J_s$  は表面張力  $\alpha^3$  が指数関数の中に入っているため、表面張力に強く依存する特徴を有している。

$$J_s \sim n(1)R_+(N_c) \sqrt{-\frac{\delta G^{(2)}(N_c)}{2\pi k_B T}} \exp \left[ -\frac{\delta G(N_c)}{k_B T} \right] \quad (5.6)$$

ここで  $N_c$  は臨界サイズのクラスターを構成する原子の数である。臨界半径より大きいクラスターは周囲の原子を引き寄せて、より大きいクラスターへと成長し続ける。しかしある程度大きくなると周囲に原子が存在しなくなり、クラスターの成長は止まる。成長したクラスターのサイズ計算は、この理論と流体力学を組み合わせる方法が提案されている<sup>48)</sup>。

## 5.4 古典的核生成理論の議論

一般に K 殻 X 線はクラスター内の電離電子がクラスター内のイオンの K 殻電子を電離または励起する事により生ずると考えられる。クラスター内の電離電子 1 個が電離または励起する確率は的であるイオンの数に比例するはずである。そこでクラスター半径が大きいほど、X 線強度が高くなると解釈することが出来る。しかし臨界密度以上のプラズマにおけるレーザー伝播距離はスキンドeps程度であり、スキンドeps以上の半径を有するクラスターでは効果的な電子加熱が出来ない。それ故、スキンドeps程度 (~ 数 10 nm) が X 線生成に最適な厚さと考えるのが自然である。

驚いた事に Three stage ノズルでは 6 MPa で、スキンドepsより遥かに大きいクラスター径にも関わらず、X 線強度が最大になると説明されている<sup>50)</sup>。計算で求められた Ar クラスター半径  $R_{cl}$  と過去の Ar K 殻 X 線強度の関係を Fig. 5.4 に記載した。この時の実験条件はレーザー強度  $3 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, パルス幅 30 fs で結晶分光器により Ar K 殻 X 線の強度を計測している。私はこの結果をよりどころにクラスター径が大きいほど、X 線強度が高くなる事を期待し、大きなクラスターが生成可能な Three stage ノズルでクラスター X 線生成を行ってきた。

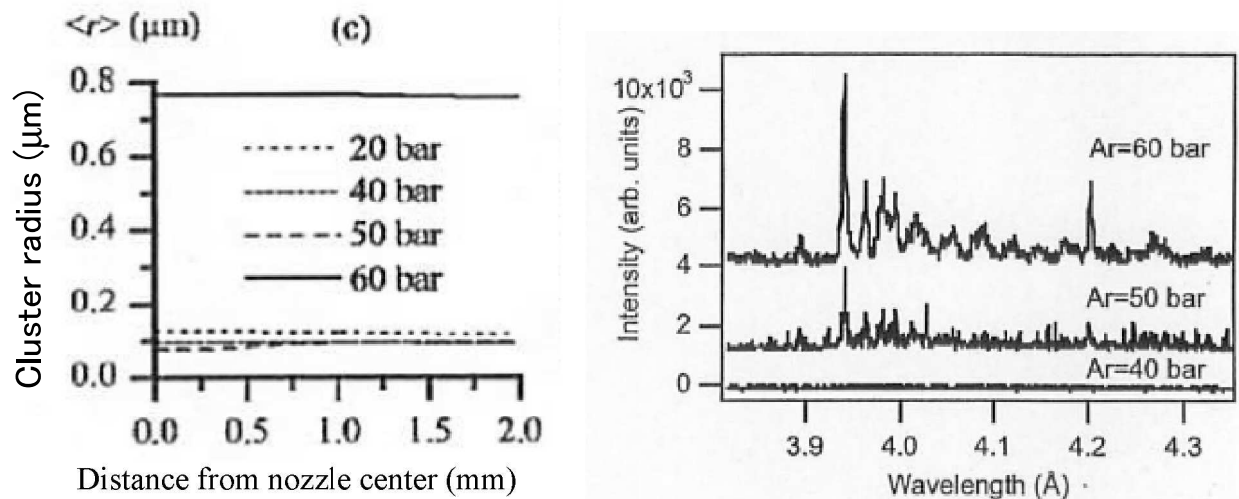


Fig. 5.4 X 線強度とクラスター半径の Ar 背圧依存性.<sup>48,50)</sup>

しかし改めてこの図を眺めてみると、Ar K 殻 X 線強度とクラスター半径の相関が悪いことに気づく。計算では 4 - 5 MPa では、クラスター半径はほとんど一定で、5 → 6 MPa 間で  $0.09 \rightarrow 0.76 \mu\text{m}$  に劇的に変化する。他方、Ar K 殻 X 線強度は 4 MPa ではほとんど観測されていないのに対し、5 MPa では有意な強度の Ar K 殻 X 線が計測されている。Ar K 殻 X 線がレーザーとクラスターの相互作用で生成されると考えた場合、クラスター径もレーザー条件もほとんど変わらない 4 MPa と 5 MPa で K 殻 X 線強度がこれほど異なる事は極めて不自然である。

この不自然の原因を調べるために、まずはクラスター径の計算方法について検討を行った。クラスター形成過程を取り扱うためには、マクロな系を取り扱う流体力学に加えてミクロな現象を取り扱う理論が確かに必要である。そこで Three stage ノズルでのクラスター生成計算では流体力学の他に 5.3 節で説明した古典的核生成理論が用いられている。古典的核生成理論によれば定常核生成率は表



面張力に大きく依存する (式 (5.6) 参照)。表面張力の値の選定は極めて重要で、Hagena Equation(式 (6.20)) で有名な Hagena は Table 5.1 を例示し、この理論の問題点について言及している<sup>51)</sup>。 $S$  は過飽和度、 $\alpha$  は表面張力であり、計算で求められた臨界クラスターサイズ  $N_c$ 、ギブスの自由エネルギー  $\delta G$ 、定常核生成率  $J_s$  が表に記載されている。ここで温度は  $T = 40$  K の場合を取扱っている。この表からわかるように過飽和度や表面張力に  $N_c$ 、 $\delta G$ 、 $J_s$  は大きく依存している事がわかる。例えば過飽和度  $S = 10^2$ 、表面張力  $\alpha$  が  $0.0250$  N/m から  $0.0174$  N/m と 30% 変化するだけで、定常核生成率  $J_s$  は  $7.0 \times 10^{-23} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  から  $3.7 \times 10^{11} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  と実に 34 桁も変化する。それ故、この理論を用いてクラスター生成の定性的な議論を行うのは可能だが、定量評価には適さないと論文ではコメントしている。

Table 5.1 古典的核生成理論の計算例 (Hagena の論文<sup>51)</sup> より引用).

$S$	$10^2$	$10^3$	$10^4$	$10^2$	$10^3$	$10^4$	$10^2$	$10^3$	$10^4$
$\alpha$ (N/m)	$N_c$			$\delta G/(k_B T)$			$J_s (\text{m}^{-3} \text{ s}^{-1})$		
0.0250	51	15	6	117	52	29	$7.0 \times 10^{-23}$	$1.5 \times 10^8$	$1.2 \times 10^{20}$
0.0200	26	7	3	60	27	15	$4.8 \times 10^2$	$1.6 \times 10^{19}$	$1.9 \times 10^{26}$
0.0174	17	5	2	40	18	10	$3.7 \times 10^{11}$	$1.3 \times 10^{23}$	$2.9 \times 10^{28}$

その他にも、分子動力学計算と古典的核生成理論を比較した結果、桁で合わない事が報告されている<sup>52)</sup>。古典的核生成理論は定性的な議論やクラスター生成過程の理解に非常に有益であるが、定量評価に用いるにはかなり問題がある。しかし古典的核生成理論に代わる決定的な手法はいまだ存在しない。このような理由から私は計算でクラスター半径を求める方法を諦め、クラスター半径を計測する事を試みた。

## 5.5 クラスタ半径の計測原理

粒子にレーザー光を照射すると、粒子により散乱光が生成される。この散乱光には粒子による位相変調が生じるため、光の干渉効果による強度分布の散乱角依存性が観測出来る。干渉効果によって生じる散乱光強度分布は、光の波長  $\lambda$  と粒子直径  $D$  の比に依存している<sup>53)</sup>。

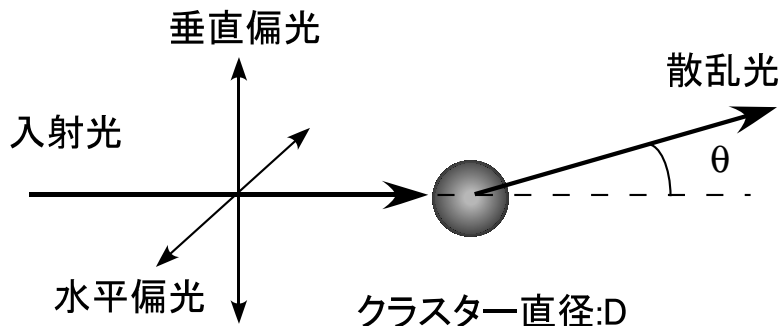


Fig. 5.5 粒子によるレーザー光の散乱.

$$\alpha \equiv \frac{\pi D}{\lambda} \quad (5.7)$$

$\alpha \gg 1$  : 幾何学的散乱

$\alpha \approx 1$  : Mie 散乱

$\alpha \leq 1$  : Rayleigh 散乱

本研究で利用するレーザー光の波長は 532 nm (YAG レーザーの 2 倍波) でクラスタ半径は  $1 \mu\text{m}$  以下と考えられるので、Rayleigh 散乱又は Mie 散乱で議論出来る。

Rayleigh 散乱の場合、散乱角  $\theta$  への散乱強度  $I(\theta)$  は以下の式で表現出来る。

$$I(\theta)/I_0 = \begin{cases} \pi^4 D^6 / (4r^2 \lambda^4) \times (m^2 - 1) / (m^2 + 1) & \text{垂直偏光} \\ \pi^4 D^6 / (4r^2 \lambda^4) \times (m^2 - 1) / (m^2 + 1) \cdot \cos^2 \theta & \text{水平偏光} \end{cases} \quad (5.8)$$

$I_0$  : 入射強度、 $r$  : 距離、 $m$  : 屈折率

式より散乱強度はクラスタ直径  $D$  の 6 乗に比例する事が明らかである。そのため、径の小さいクラスタほど散乱強度が弱くなる傾向がある。規格化された強度分布は、クラスタ径に依存しない事も確認される。これは波長がクラスタ径より十分大きく、クラスタによる位相変調がほとんど無視できるためである。

他方 Mie 散乱の場合、散乱角  $\theta$  への散乱強度  $I(\theta)$  は

$$I(\theta)/I_0 = \begin{cases} \lambda^2 / (4\pi^2 r^2) \cdot i_1(\theta, m, \alpha) & \text{垂直偏光} \\ \lambda^2 / (4\pi^2 r^2) \cdot i_2(\theta, m, \alpha) & \text{水平偏光} \end{cases} \quad (5.9)$$

$$i_1(\theta, m, \alpha) = \left| \sum_{\nu=1}^{\infty} \frac{2\nu+1}{\nu(\nu+1)} [a_{\nu} \cdot \Pi_{\nu}(\cos \theta) + b_{\nu} \cdot \tau_{\nu}(\cos \theta)] \right|^2 \quad (5.10)$$

$$i_2(\theta, m, \alpha) = \left| \sum_{\nu=1}^{\infty} \frac{2\nu+1}{\nu(\nu+1)} [b_{\nu} \cdot \Pi_{\nu}(\cos \theta) + a_{\nu} \cdot \tau_{\nu}(\cos \theta)] \right|^2 \quad (5.11)$$

$\Pi_{\nu}, \tau_{\nu}$  はルジャンドル陪関数  $P_{\nu}^1$  で表現出来る。

$$\Pi_{\nu}(\cos \theta) = \frac{P_{\nu}^1(\cos \theta)}{\sin \theta} \quad (5.12)$$

$$\tau_{\nu}(\cos \theta) = \frac{dP_{\nu}^1(\cos \theta)}{d\theta} \quad (5.13)$$

$a_{\nu}, b_{\nu}$  は1次のリカティ・ベッセル関数  $\phi_{\nu}$ 、2次のリカティ・ベッセル関数  $\xi_{\nu}$  及びこれらを組み合わせた式  $\xi_{\nu} = \phi_{\nu} + i \cdot \xi_{\nu}$  を用いて

$$a_{\nu}(\alpha, m) = \frac{\phi'_{\nu}(m\alpha) \cdot \phi_{\nu}(\alpha) - m \cdot \phi_{\nu}(m\alpha) \cdot \phi'_{\nu}(\alpha)}{\phi'_{\nu}(m\alpha) \cdot \xi_{\nu}(\alpha) - m \cdot \phi_{\nu}(m\alpha) \cdot \xi'_{\nu}(\alpha)} \quad (5.14)$$

$$b_{\nu}(\alpha, m) = \frac{m \cdot \phi'_{\nu}(m\alpha) \cdot \phi_{\nu}(\alpha) - \phi_{\nu}(m\alpha) \cdot \phi'_{\nu}(\alpha)}{m \cdot \phi'_{\nu}(m\alpha) \cdot \xi_{\nu}(\alpha) - \phi_{\nu}(m\alpha) \cdot \xi'_{\nu}(\alpha)} \quad (5.15)$$

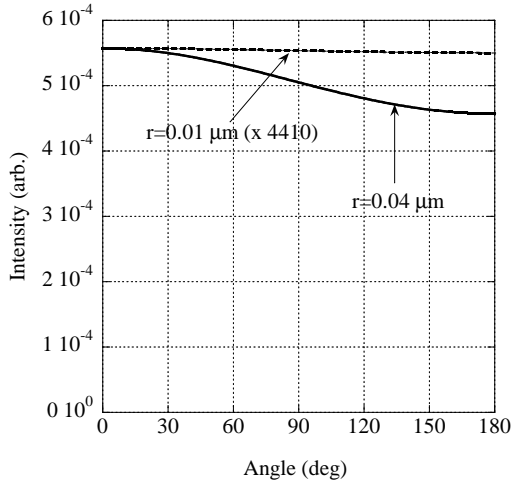


Fig. 5.6 Rayleigh 散乱の例.

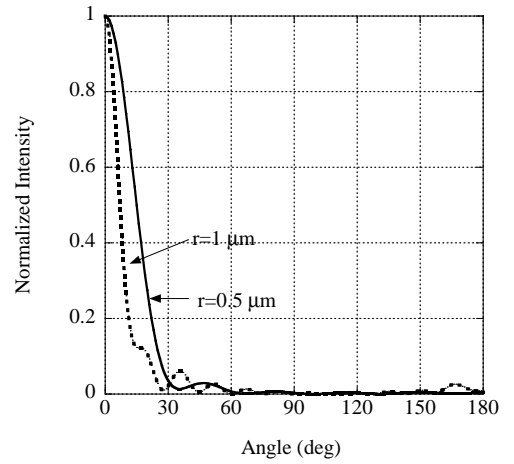


Fig. 5.7 Mie 散乱の例.

ちなみにリカティ・ベッセル関数は1次と2次の球ベッセル関数  $j_{\nu}, n_{\nu}$ 、1次と2次のベッセル関数  $J_{\nu+1/2}, N_{\nu+1/2}$  を用いて次のように書ける。

$$\phi_{\nu}(\alpha) = \alpha \cdot j_{\nu}(\alpha) = \sqrt{\frac{\pi\alpha}{2}} \cdot J_{\nu+1/2}(\alpha) \quad (5.16)$$

$$\xi_{\nu}(\alpha) = -\alpha \cdot n_{\nu}(\alpha) = -\sqrt{\frac{\pi\alpha}{2}} \cdot N_{\nu+1/2}(\alpha) \quad (5.17)$$

Fig. 5.6 から明らかになるように Rayleigh 散乱に近づくほど等方的になる特徴がある。またクラスター1ヶ当たりの散乱強度はクラスター半径の6乗に比例する。他方、Mie 散乱の例を Fig. 5.7 に示す。クラスター半径が増加するほど指向性は高くなる。

一般にノズルでの断熱膨張により生成されたクラスターのサイズは単一ではなく、分布を持つ。このサイズ分布  $f(N)$  は次の式に従うと考えられる ( $N$ :クラスター内の原子数)<sup>54)</sup>。

$$f(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma N}} \cdot \exp\left[-\frac{(\ln N - \mu)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (5.18)$$

$\mu = \overline{\ln N}$  : 対数スケールでの平均、 $\sigma$  : 対数スケールでの標準偏差

実験データとの計算の比較時には、このような分布を仮定することが必要である。さらに、Rayleigh 散乱の場合、クラスターサイズの 6 乗に散乱強度は比例するので、測定結果は大半径のクラスターの散乱強度に強く依存する点も考慮すべきである。

## 5.6 クラスタ半径計測のセットアップ

クラスタ径の計測のセットアップを Fig. 5.8 に示す。入射レーザーには YAG レーザーの二倍波 (532 nm) を用いる。このレーザーの基本波は波長 1064 nm で非線形結晶により二倍波に変換されている。このレーザーは窓付きフランジを通じてチャンバー内に導入される。チャンバー内はスクロールポンプで真空状態が保たれて、ノズルはチャンバー中心軸上に設置される。チャンバー中心を軸に面内回転するステージがあり、この回転ステージにフォトマル計測器を固定されている。ステージの駆動、ノズルのバルブ開閉、フォトマルの電圧印加は外部入出力端子を通じて、チャンバー外から制御する。またこの端子を通じてフォトマルの信号出力データもオシロスコープやパソコンに転送される。

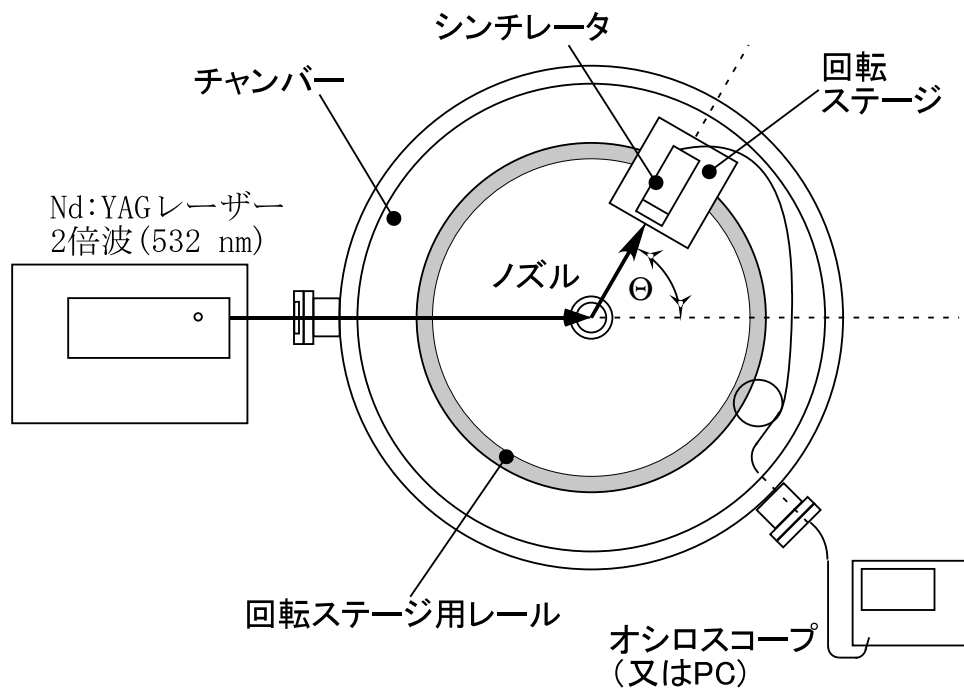


Fig. 5.8 粒子径計測.

レーザー導入とクラスタ生成を同時に行い、散乱光をフォトマル計測器で検出する。回転ステージを駆動させることで、散乱強度の角度依存性のデータ取得が可能になる。

## 5.7 クラスタ半径の計測結果

実験では散乱光のばらつきを抑えるため、同一条件で8回繰り返し計測を行っている。フォトマル計測器の印加電圧は一定にしておき、散乱光の強度が強い場合は光学フィルターで減光した。

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{N\alpha}{3\epsilon_0} \quad (5.19)$$

$N$ : 単位体積当たりの原子数、 $\alpha$ : 分極率、 $\epsilon_0$ : 真空での誘電率

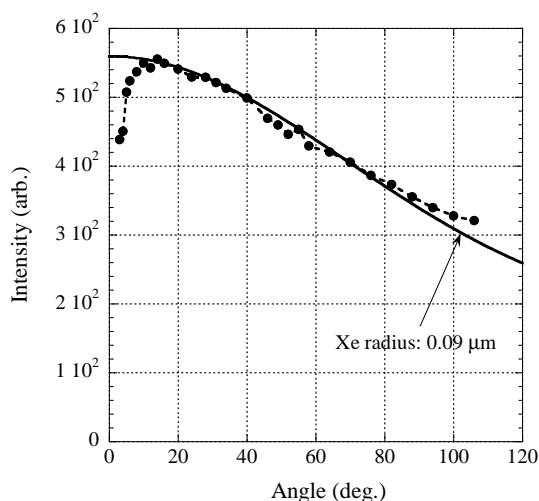


Fig. 5.9 Xe 2.0 MPa.

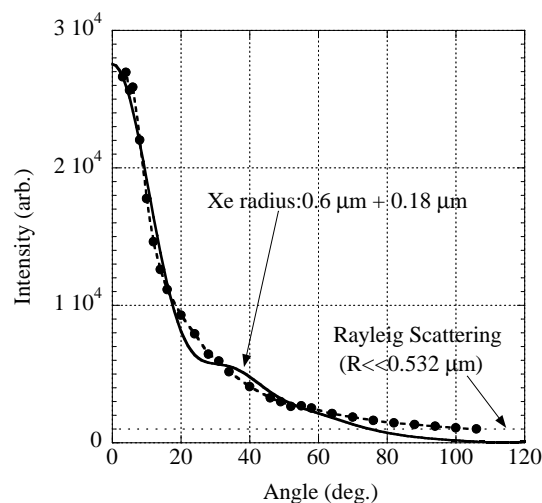


Fig. 5.10 Xe 4.0 MPa.

上の Lorentz-Lorenz の式<sup>55)</sup> と標準状態での Xe 屈折率  $n_0 = 1.00070665$  (for 532 nm) から Xe クラスタの屈折率を  $n = 1.35$  と算出した。背圧  $2 \times 10^4$  mbar と  $4 \times 10^4$  mbar での散乱分布をそれぞれ Fig. 5.9, Fig. 5.10 に示す。測定結果を波線、簡易プログラムで fitting した結果を图中、実線でプロットした。背圧  $2 \times 10^4$  mbar の時は比較的等方的な分布をしている事が判る。これは Rayleigh 散乱の特徴であり、クラスタ径はレーザー波長に較べて小さい事が予想される。他方、 $4 \times 10^4$  mbar の時の強度分布は指向性を有しており、Mie 散乱が起こっていると解釈できる。Fitting Curve で求められたクラスタ径 (測定値) と理論計算で求められたクラスタ径<sup>48)</sup> を表に記載した。理論では

Table 5.2 クラスタ半径の結果.

背圧	$2 \times 10^4$ (mbar)	$4 \times 10^4$ (mbar)
平均クラスタ半径 (計算値) <sup>48)</sup>	$0.37 \mu\text{m}$	$0.04 \mu\text{m}$
クラスタ半径 (測定値)	$0.09 \mu\text{m}$	$0.6 + 0.18 \mu\text{m}$

背圧を上げるとクラスタ径が劇的に小さくなる傾向があるが、測定値はむしろ逆の傾向を示した。それぞれの背圧でのクラスタ径の値も理論と測定で異なっている。両者の比較により、理論計算が必ずしも正しくない事をこの測定により確認する事が出来た。

ここで X 線生成にスキンドeps程度のサイズのクラスタについて少し言及する。散乱計測法では大型のクラスタの散乱強度が強くなる傾向がある (Rayleigh 散乱の場合はクラスタ半径の 6 乗

に比例, 式 (5.8) 参照)。そのためクラスター径が均一でなく、小型から大型まで分布していると、大型のクラスターの散乱に測定結果が支配される。X 線生成に最適と考えられるスキンドeps程度のクラスターは生成しているが、散乱計測では大型のクラスターの信号に埋もれて明瞭に分析出来なかったと考えている。測定結果をよく見ると高角度でも散乱強度が有意な値を持っているが、これは Rayleigh 散乱の成分である。この成分の一部は、スキンドeps程度のサイズのクラスターが寄与していると考えている。

## 5.8 本章のまとめ

- Three stage ノズルの形状は内径が  $0.5 \mu\text{m}$  から  $2.0 \mu\text{m}$  まで三段階に拡大し、全長  $75 \text{ mm}$  である。流体力学と古典的核生成理論にもとづいて製作された事を説明した。
- レーザーと相互作用するクラスター数をクラスター半径の関数として見積もった。
- クラスターサイズ計算に利用されている古典的核生成理論を議論した。クラスター成長はギブスの自由エネルギー  $\delta G$  に強く依存する事、 $\delta G$  は表面張力の 3 乗に比例することを紹介した。
- Three stage ノズルの過去の実験データをもとに Ar クラスター半径（計算）と Ar K 殻 X 線強度の相関を調べた。その結果、クラスター径がほぼ一定なのにも関わらず、Ar K 殻 X 線強度が桁で変化している事が確認された。
- クラスターサイズ計算の結果の妥当性を確認するため、古典的核生成理論について詳しく調べてみた。すると Hagena は古典的核生成理論では表面張力が数十%変化しただけで、核成長率が  $10^{33}$  倍になるケースを紹介し、定量評価には適さないとコメントしている事を確認できた。また分子動力学計算を用いたクラスター計算結果は古典的核生成理論の結果と一致しない事を示した論文も存在することがわかった。
- クラスターサイズを調べる方法としてレーザー散乱計測法を説明した。クラスター径がレーザー波長程度より十分小さい場合は Rayleigh 散乱、クラスター径が波長程度か大きい場合は Mie 散乱で散乱結果を解釈することが出来る。
- レーザー散乱計測に用いたクラスター径計測のセットアップについて説明した。YAG 二倍波が真空中のチャンバーに導入され、クラスターで散乱される。この散乱強度の角度分布はフォトマルで計測される。
- レーザー散乱計測を行った結果、背圧  $2 \times 10^4 \text{ mbar}$  では半径  $0.09 \mu\text{m}$ 、 $4 \times 10^4 \text{ mbar}$  では半径  $0.6 \mu\text{m}$  と  $0.18 \mu\text{m}$  の Xe クラスターが計測された。一方、古典的核生成理論では  $2 \times 10^4 \text{ mbar}$  で半径  $0.37 \mu\text{m}$ 、 $4 \times 10^4 \text{ mbar}$  で半径  $0.04 \mu\text{m}$  の結果を得ている。それ故、測定結果は計算結果とは一致しない事が明らかになった。

クラスターの径はスキンドepsよりかなり大きい値を示している。ただしスキンドeps程度のクラスターは存在しないのではなく、散乱強度が弱いため計測できなかったと考えられる。



## 6 コニカルノズルでの X 線発生実験

Three stage ノズルでは、100 nm から極めて小さい径まで幅広いサイズのクラスターが生成されることが考えられる。これでは X 線生成に最適なクラスターサイズを調べるのが難しい。そこで平均クラスターサイズを容易に制御できるコニカルノズルを用いてクラスターサイズと X 線生成の関係を調べる事を試みる。その前にまずコニカルノズル内での流体（クラスター構成原子）の振る舞いを議論する。

### 6.1 一般的なクラスター生成法

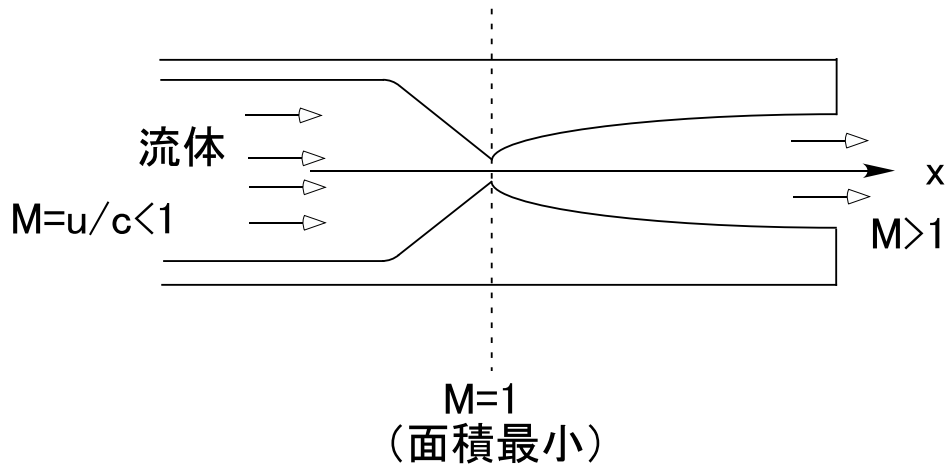


Fig. 6.1 Laval nozzle.

クラスターを生成するには構成原子を融点以下に冷却する必要がある。代表的な生成方法として音速ノズルや Laval ノズルやコニカルノズルを用いて断熱冷却する方法が挙げられる。

そこでノズル内でのガスの流れを考えてみる。ノズル内のガスの流れを  $x$  方向の 1 次元圧縮性流体で近似し、さらにガスは理想気体の状態方程式に従うと仮定する。さらに流体の粘性を無視し、流体は等エントロピー流れに従うと考える。すると流体の支配方程式は以下のようなになる<sup>56)</sup>。

$$\text{気体の状態方程式} : \frac{dp}{p} = \frac{d\rho}{\rho} + \frac{dT}{T} \quad (6.1)$$

$$\text{連続の式 (質量保存の式)} : \frac{d\rho}{\rho} + \frac{du}{u} + \frac{dA}{A} = 0 \quad (6.2)$$

$$\text{運動方程式} : u du + \frac{dp}{\rho} = 0 \quad (6.3)$$

$$\text{等エントロピーの式 (エネルギー保存則)} : \frac{dp}{p} - \gamma \frac{d\rho}{\rho} = 0 \quad (6.4)$$

ここで  $p$  : 圧力,  $\rho$  : 密度,  $T$  : 温度,  $u$  : 流速,  $\gamma$  : 比熱比,  $A = A(x)$  : ノズル内径の断面積である。

音速  $a \equiv \sqrt{dp/d\rho}$  を用いると (6.3) は

$$u du = -\frac{dp}{\rho} = -\frac{dp}{d\rho} \frac{d\rho}{\rho} = -a^2 \frac{d\rho}{\rho} \quad (6.5)$$

マッハ数  $M = u/a$  を用いると

$$\frac{d\rho}{\rho} = -M^2 \frac{du}{u} \quad (6.6)$$

式 (6.2) に代入して

$$\frac{du}{u} = \frac{1}{M^2 - 1} \frac{dA}{A} \quad (6.7)$$

今度は式 (6.6) に代入して

$$\frac{d\rho}{\rho} = -\frac{M^2}{M^2 - 1} \frac{dA}{A} \quad (6.8)$$

この式を式 (6.4) に代入することで

$$\frac{dp}{p} = -\frac{\gamma \cdot M^2}{M^2 - 1} \frac{dA}{A} \quad (6.9)$$

上の 2 式を状態方程式の式 (6.1) に代入し

$$\frac{dT}{T} = -\frac{(\gamma - 1) \cdot M^2}{M^2 - 1} \frac{dA}{A} \quad (6.10)$$

音速  $a \equiv \sqrt{dp/d\rho} = \sqrt{\gamma RT}$  を用いると

$$2 \frac{da}{a} = \frac{dT}{T} \quad (6.11)$$

上の 2 式から

$$\frac{da}{a} = -\frac{(\gamma - 1) \cdot M^2}{2 \cdot (M^2 - 1)} \frac{dA}{A} \quad (6.12)$$

次にマッハ数の関係式より

$$\frac{dM}{M} = \frac{du}{u} - \frac{da}{a} \quad (6.13)$$

式 (6.7), 式 (6.12) を上の式に代入し

$$\frac{dM}{M} = \frac{2 + (\gamma - 1) \cdot M^2}{2 \cdot (M^2 - 1)} \frac{dA}{A} \quad (6.14)$$

比熱比  $\gamma$  が 1 より大きい点を考慮すると (単原子の場合  $\gamma = 5/3$ , 二原子分子の場合  $\gamma = 7/5$ )、この式より断面積変化による流速変化は亜音速 ( $M < 1$ ) と超音速 ( $M > 1$ ) で異なる事が判る。亜音速

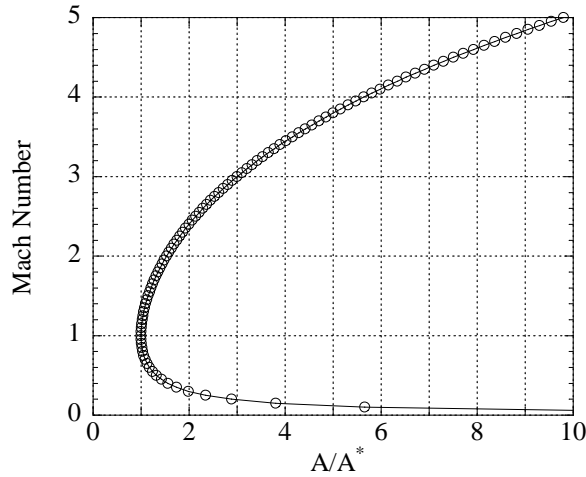


Fig. 6.2 Mach 数と断面積比の関係 ( $\gamma = 5/3$ ) .

流れを超音速流れに変化させるためには、スロートを有するノズルが有用である。亜音速流れをスロートで音速にまで加速させれば、スロート後では断面積の増加とともに超音速まで加速される。

式 (6.14) を積分すると、臨界状態  $M = 1$  における断面積  $A^*$  を用いて任意の断面積  $A$  におけるマッハ数  $M$  を求めることができる。単原子の場合の結果を Fig. 6.2 に示す。

$$\frac{A}{A^*} = \frac{1}{M} \left[ \frac{2 + (\gamma - 1) \cdot M^2}{\gamma + 1} \right]^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}} \quad (6.15)$$

マッハ数  $M$  が明らかになれば、流速  $u = 0$  での温度  $T_0$ 、圧力  $p_0$ 、密度  $\rho_0$  を用いて、任意の位置での温度  $T$ 、圧力  $p$ 、密度  $\rho$  を以下の式で算出することが出来る。

$$\frac{T_0}{T} = 1 + \frac{\gamma - 1}{2} M^2 \quad (6.16)$$

$$\frac{p_0}{p} = \left( 1 + \frac{\gamma - 1}{2} M^2 \right)^{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} \quad (6.17)$$

$$\frac{\rho_0}{\rho} = \left( 1 + \frac{\gamma - 1}{2} M^2 \right)^{\frac{1}{\gamma - 1}} \quad (6.18)$$

尚、ノズルから放出された圧縮性流体は円錐状に広がっていく (マッハコーン)。この円錐の開き半角  $\alpha$  とマッハ数  $M$  は

$$\sin \alpha = \frac{1}{M} \quad (6.19)$$

で関係づけられる<sup>57)</sup>。

### 6.1.1 Hagen equation

コニカルノズルや Laval ノズルにより生成されるクラスターのサイズを見積もる方法として、実験データを元にした以下の式を Hagen は提唱している<sup>58)</sup>。これらのノズルを用いた場合、クラスター内の平均原子数  $\bar{N}$  は Hagen パラメータ  $\Gamma^*$  を用いて見積もる事が出来る。

$$\bar{N} = 33 \cdot \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35} \quad (10^3 < \Gamma^* < 10^4) \quad (6.20)$$

Hagen パラメータ  $\Gamma^*$  は背圧  $P$ 、周囲の温度  $T_0$ 、ノズルのスロート径  $\Phi$ 、ノズルの開き半角  $\alpha$  及び比例定数  $k$  で計算できる。

$$\Gamma^* = k \cdot \frac{P[\text{mbar}]}{(T_0[\text{K}])^{2.29}} \cdot \left( \frac{0.74 \cdot \Phi[\mu\text{m}]}{\tan \alpha} \right)^{0.85} \quad (6.21)$$

$$k = \begin{cases} 1646 & \text{Ar} \\ 2890 & \text{Kr} \\ 5554 & \text{Xe} \end{cases} \quad (6.22)$$

平均クラスターサイズ  $\bar{N}$  がわかれば、ウィグナー・ザイツ半径  $R_{ws}$  から平均のクラスター半径  $\bar{R}_{cl}$  はすぐに求まる。<sup>59)</sup>

$$\bar{R}_{cl} = \bar{N}^{1/3} \times R_{ws} \quad (6.23)$$

Table 6.1 ウィグナー・ザイツ半径.

	Ar	Kr	Xe
$R_{ws}$ [nm]	0.240	0.257	0.273

原子番号が大きいほど、比例係数  $k$  が大きくなっている事がわかる。それ故、背圧が一定の場合、原子番号が高いほどクラスター半径が大きくなる。この式は非常に有用であるが得られるのは平均クラスター半径のみである事に注意する必要がある（クラスター半径の分布やクラスター化していない原子の割合に関する情報は得られない）。

最近、パラメータ  $\Gamma^* < 10^5$  における比較的大きいクラスターサイズに関する報告がなされている<sup>60)</sup>。この結果によれば  $T_0$ ,  $\Phi$ ,  $\alpha$  依存性を僅かに変えた修正 Hagen パラメータ  $\Gamma^{**}$  及び式 (6.25) でクラスターを構成する平均原子数  $\bar{N}$  を見積もる事が出来る。

$$\Gamma^{**} = k \cdot \frac{P[\text{mbar}]}{(T_0[\text{K}])^{2.3}} \cdot \left( \frac{0.74 \cdot \Phi[\mu\text{m}]}{\tan \alpha} \right)^{0.8} \quad (\Gamma^{**} < 10^5) \quad (6.24)$$

$$\bar{N} = \exp[-12.83 + 3.51 \times (\ln \Gamma^{**})^{0.8}] \quad (6.25)$$

クラスター半径は先ほど同じように式 (6.23) を用いれば求まる。

## 6.2 コニカルノズルから生成される Xe クラスターのサイズ

コニカルノズルは修正された Hagen の式 (式 (6.25)) でクラスター半径を推定する事が出来る。実験に使用したコニカルノズルのスロート内径は 0.5 mm、出口内径は 1 mm である。前節までの式を用いて、Xe クラスター半径の背圧依存性を計算した結果を Fig. 6.3 に示す。

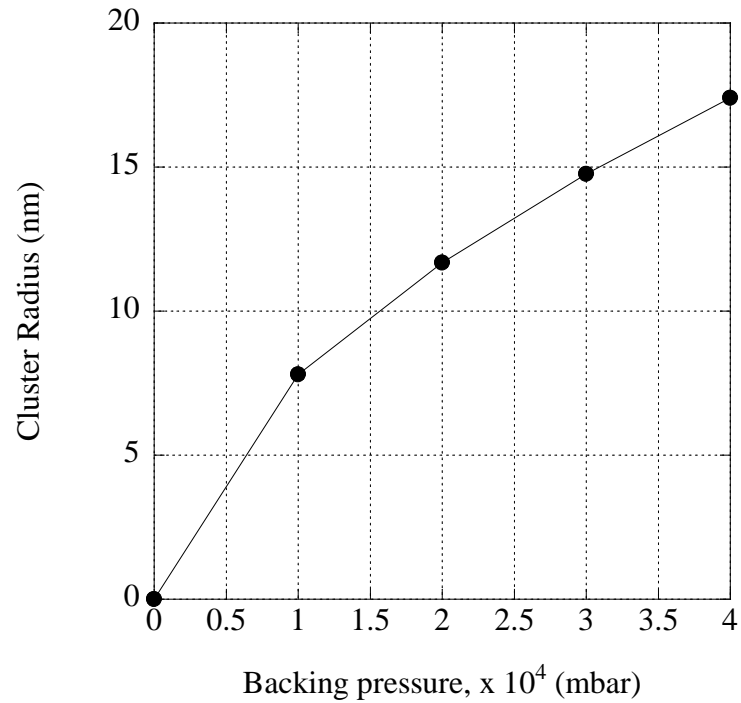


Fig. 6.3 クラスター半径の背圧依存性.

背圧が高いほどクラスター半径は増加し、 $2 \times 10^4$  mbar 以上の背圧では Xe クラスター半径が 10 nm を超える事が確認できる。

### 6.3 コニカルノズルでの実験結果

まず、レーザー進行方向 ( $X$  軸方向) でベストフォーカス位置から  $X \mu\text{m}$  離れた場所でのピークレーザー強度  $I$  [ $\text{W}/\text{cm}^2$ ] を調べた。レーザーのパルス幅、レーザーのビームプロファイル、レーザーエネルギーを測定し、ピークレーザー強度を見積もった。 $X = 0 \mu\text{m}$  近傍では  $1 \times 10^{19} \text{ W}/\text{cm}^2$  のピークレーザー強度が得られることがわかる。

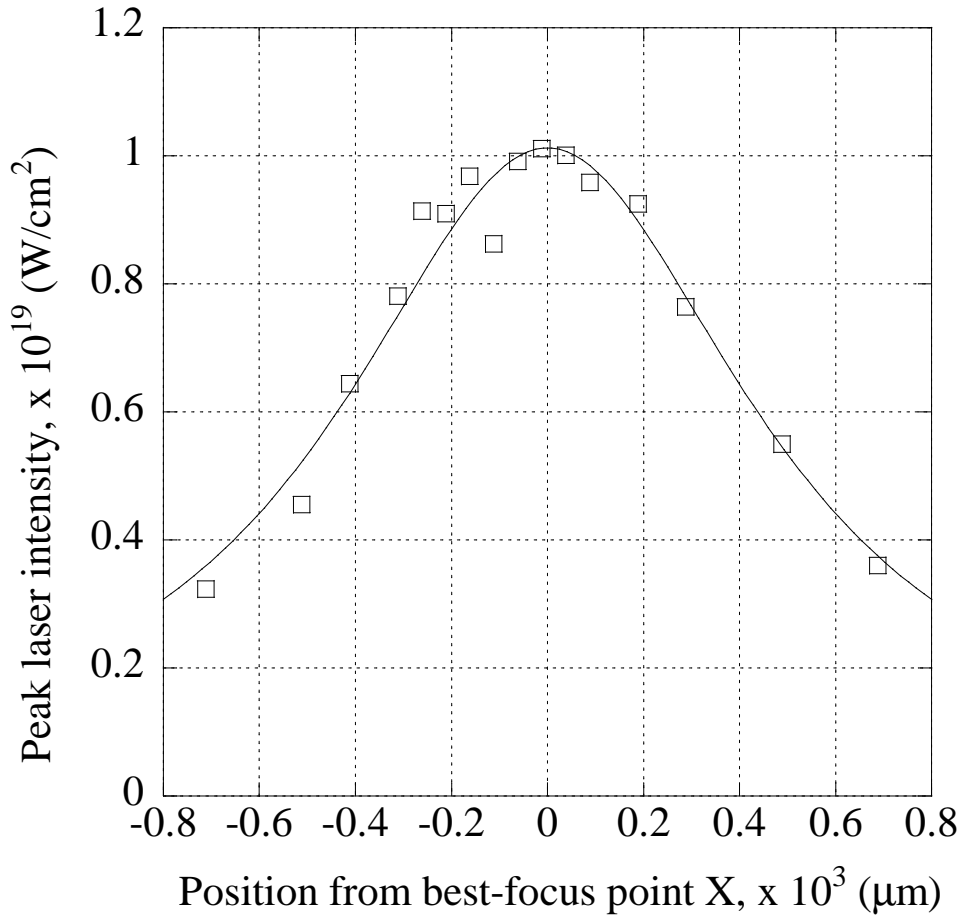


Fig. 6.4 ピークレーザー強度依存性.<sup>3)</sup>

ピークレーザー強度  $I$  と位置  $X$  に関して以下の関係式で近似できる事が判る。

$$I = \frac{5.0 \times 10^{21}}{\pi} \cdot \left[ 12.57^2 + 1.1693^2 \times \left( \frac{0.8 \cdot X(\mu\text{m})}{12.57 \cdot \pi} \right)^2 \right]^{-1} (\text{W}/\text{cm}^2). \quad (6.26)$$

### 6.3.1 Xe クラスタサイズ依存性

ノズルをベストフォーカス位置から  $250 \mu\text{m}$  ずらし、X 線強度のクラスタ半径依存性を調べた。ピークレーザー強度は約  $9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  に相当する。ノズル背圧を  $1 \times 10^4 - 4 \times 10^4 \text{ mbar}$  の範囲で制御させて、半径  $8 \text{ nm}$  から  $17 \text{ nm}$  の Xe クラスタを生成させている。

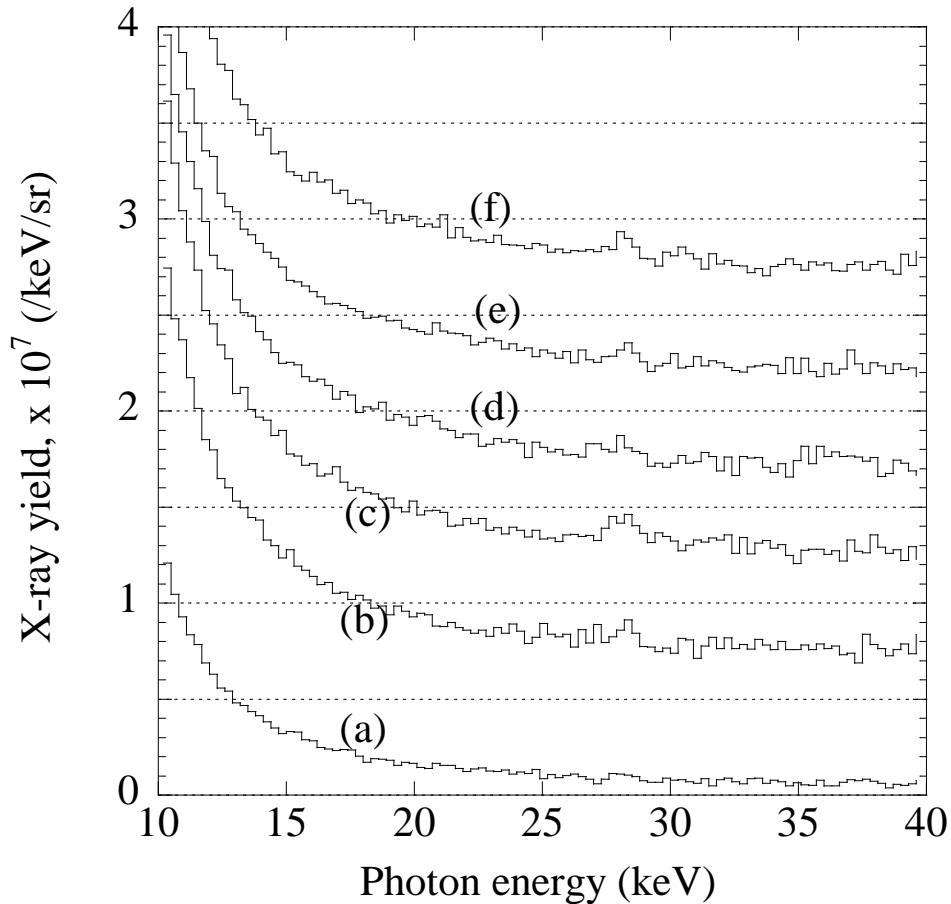


Fig. 6.5 コニカルノズルでの実験結果,  $9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . (a)  $R_{Cl}=8 \text{ nm}$ ; (b)  $R_{Cl}=12 \text{ nm}$ ; (c)  $R_{Cl}=13 \text{ nm}$ ; (d)  $R_{Cl}=15 \text{ nm}$ ; (e)  $R_{Cl}=16 \text{ nm}$ ; (f)  $R_{Cl}=17 \text{ nm}$ .<sup>3)</sup>

その結果を Fig. 6.5 にプロットした。クラスタ半径が  $12 \text{ nm}$  より大きい時は明瞭に Xe K 殻 X 線によるピークを観測する事が出来た。またこのピークの X 線強度やブロードなスペクトル (制動放射 X 線) は、 $12 - 17 \text{ nm}$  のクラスタ半径でさほど変化がない事が判る。他方、 $8 \text{ nm}$  とクラスタ半径を下げると Xe K 殻 X 線が確認できなくなった。Xe K 殻 X 線の強度が弱く、制動放射 X 線のスペクトルに埋もれてしまったと思われる。

さて X 線のエネルギースペクトルを Maxwell 分布で Fitting する事によりプラズマ電子の温度が得られる事が知られている<sup>45)</sup>。

$$f(E) = \frac{A_e}{T_e^{1.5}} \cdot \sqrt{E} \cdot \exp(-E/T_e), \quad (6.27)$$

$E$  は X 線エネルギー、 $A_e$  は X 線強度に関する定数、 $T_e$  は電子温度である。そこで上記の Maxwell 分布で Fitting し、得られた温度を Table 6.2 に記載する。

Table 6.2 各サイズのクラスターで生成された制動放射 X 線のデータ.<sup>3)</sup>

Cluster radius (nm)	8	12	13	15	16	17
Temperature (keV)	9.6	16.2	16.8	11.8	12.3	13.5
$A_e/10^8$ in Eq. (6.27)	0.9	2.1	2.4	2.2	2.1	2.3

クラスター半径 12 nm 以上では 10 keV をゆうに超える電子温度が観測されるが、8 nm では電子温度は 10 keV を下回っている。クラスター半径をさらに小さくすると、さらに電子温度が下がる事が予想されている。Xe K 殻 X 線生成には Xe K 殻電子の励起エネルギー程度の電子温度を持つプラズマ電子が最適であると考えられる。Xe K 殻電子の励起エネルギーは約 35 keV である。そこでクラスター半径が 12 nm 以上の方が電子温度が励起エネルギーに近く、Xe K 殻 X 線生成に適している事が判る。



ノズル位置をベストフォーカスから  $500 \mu\text{m}$  ずらして、実験を行った結果を今度は紹介する。ピークレーザー強度は  $5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  (Fig. 6.4 参照) で、クラスター半径は  $12 \text{ nm}$  と  $13 \text{ nm}$  の条件で計測を行った。

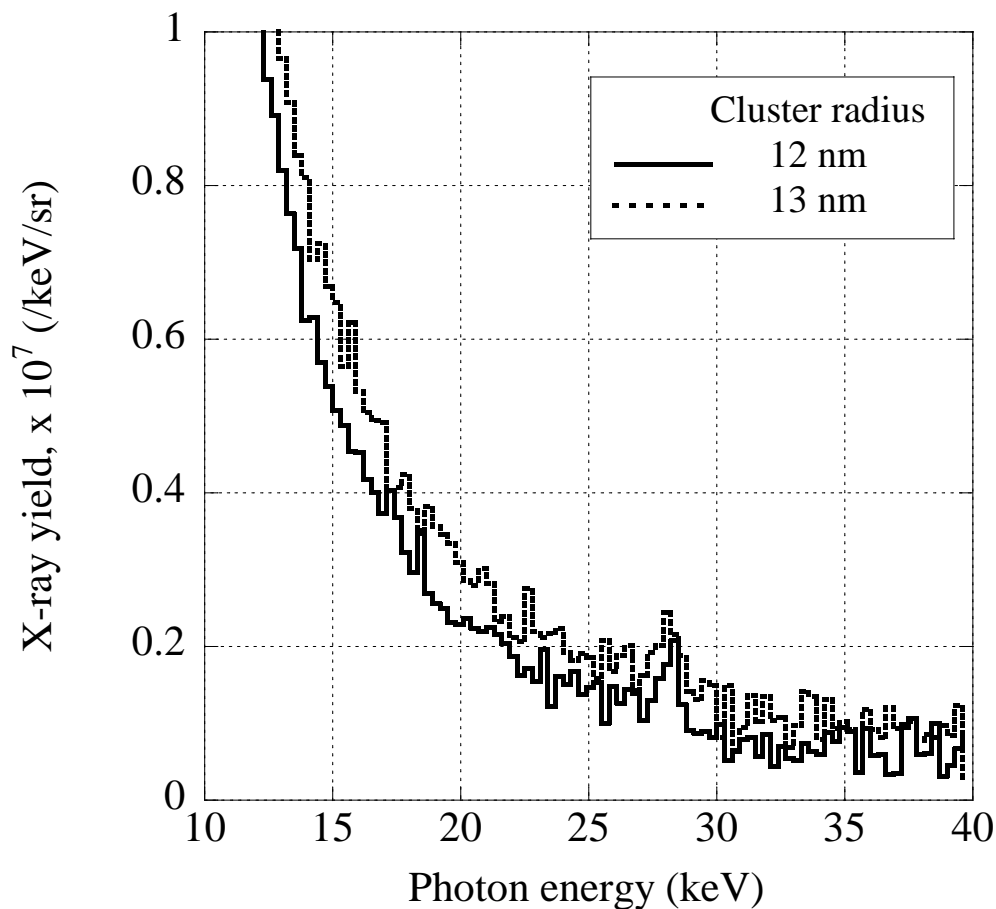


Fig. 6.6 コニカルノズルでの実験結果,  $5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ .<sup>3)</sup>

Xe K 殻 X 線強度はクラスター半径  $12 \text{ nm}$  で  $6.5 \times 10^5 \text{ sr}^{-1}$ ,  $13 \text{ nm}$  で  $6.2 \times 10^5 \text{ sr}^{-1}$  とクラスター半径依存性はほとんど見受けられなかった (Fig. 6.6 参照)。電子温度  $T_e$  及び X 線強度に関連する定数  $A_e$  はそれぞれクラスター半径  $12 \text{ nm}$  の時  $8.2 \text{ keV}$  と  $1.5 \times 10^8$ ,  $13 \text{ nm}$  の時  $9.1 \text{ keV}$  と  $1.7 \times 10^8$  であった。ピークレーザー強度が  $9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  の時に較べて、電子温度が下がっている事が判る。ピークレーザー強度が下がった分、レーザークラスター相互作用による電子加熱効果が低下したものと考えられる。

ピークレーザー強度が  $9 \times 10^{18}$ 、 $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> の時におけるクラスター半径依存性についてまとめてみると Fig. 6.7 のようになった。図中、四角は  $9 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>、黒丸は  $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> の場合を表している。

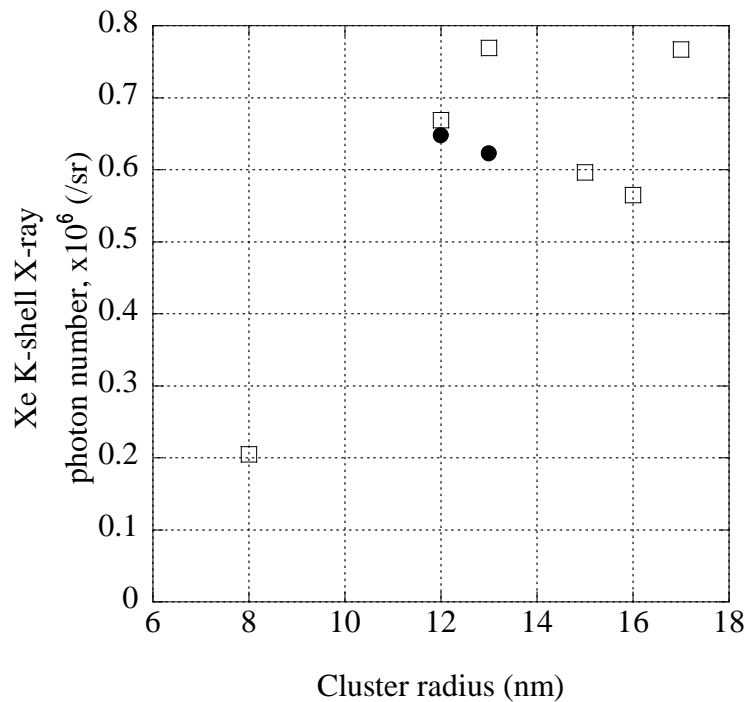


Fig. 6.7 クラスタサイズ依存性、四角： $9 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>、黒丸： $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>.<sup>3)</sup>

クラスター半径が 8 nm から 12 nm に増加すると、Xe K 殻 X 線強度が増加し、12 - 17 nm では強度が飽和か寧ろ減少する傾向を示している

レーザーが高密度プラズマ中を侵入出来る距離（スキンドeps）は 10 - 30 nm 程度であり、X 線生成の最適クラスター半径はこのスキンドepsで決まっていると考えられる。相対論効果を考慮するとスキンドeps  $\delta$  は以下の式で記述される。<sup>61)</sup>

$$\delta = \frac{c\sqrt{\gamma}}{\omega_p} = 5.31 \times 10^5 \cdot \sqrt{\frac{\gamma}{n_e[\text{cm}^{-3}]}} \quad [\text{cm}], \quad (6.28)$$

$$\gamma = \sqrt{1 + 3.613 \times 10^{-19} \cdot I[\text{W/cm}^2] \cdot \lambda^2[\mu\text{m}^2]}, \quad (6.29)$$

$c$ :光の速度、 $\gamma$ :Lorentz 因子、 $\omega_p$ :プラズマ周波数、 $n_e$ :プラズマ密度、 $I$ :ピークレーザー強度、 $\lambda$ :レーザー波長。

ここでプラズマ密度を  $3.5 \times 10^{23}$  cm<sup>-3</sup>、ピークレーザー強度を  $9 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> と仮定すると、スキンドepsは 12 nm になる。この値は Fig. 6.7 の結果に対応しており、スキンドepsが X 線生成効率と密接に関係している事を示唆している。

また後で述べる CTMC モデルを用いた Ar K 殻 X 線の計算結果では、クラスター半径の増加とともに X 線強度が上昇するが、30 nm 近傍で強度は飽和し、それ以上では徐々に下がる傾向が確認されている (7.4 節 参照)。今回の測定結果は CTMC モデルの結果と傾向が似ている事が判る。

### 6.3.2 レーザー強度依存性

より低いピークレーザー強度でのスペクトルを調べる実験も行われている。これまでと同様 J-KAREN レーザーを用いているが、集光特性が少し異なっている。この時の実験でのピークレーザー強度依存性については Fig. 6.8 にプロットしている。

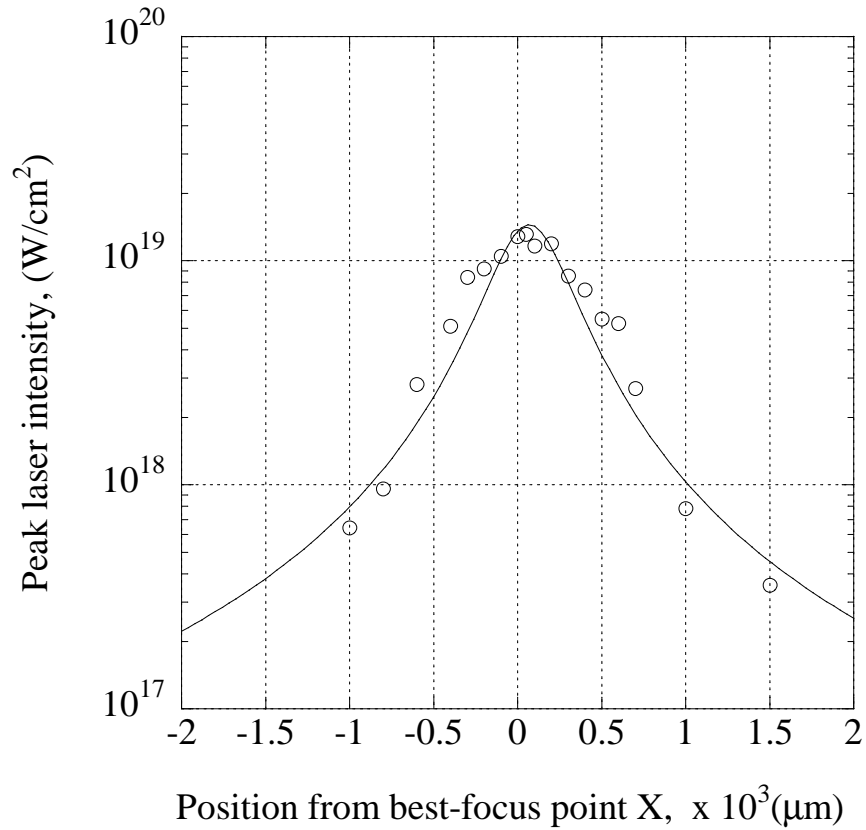


Fig. 6.8 コニカルノズルの集光強度.<sup>3)</sup>

この依存性は以下の関数で近似できる事が判る。

$$I(X) = \frac{4 \times 10^{21}}{\pi} \left[ 9.3813^2 + 1.3393^2 \times \left( \frac{0.8 \times (X - 68.385)}{9.3813 \cdot \pi} \right)^2 \right]^{-1} [\text{W/cm}^2] \quad (6.30)$$

図中、実測値を白丸で、近似式を実線で表示している。ベストフォーカス位置でのピークレーザー強度は  $1 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$  を越える。

実験ではノズル位置  $X=-2000 \mu\text{m}$  で実施しており、Fig. 6.8 よりピークレーザー強度は  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  と推定される。ここでノズル背圧から Xe クラスタ半径は  $13 \text{ nm}$  と推測されている。

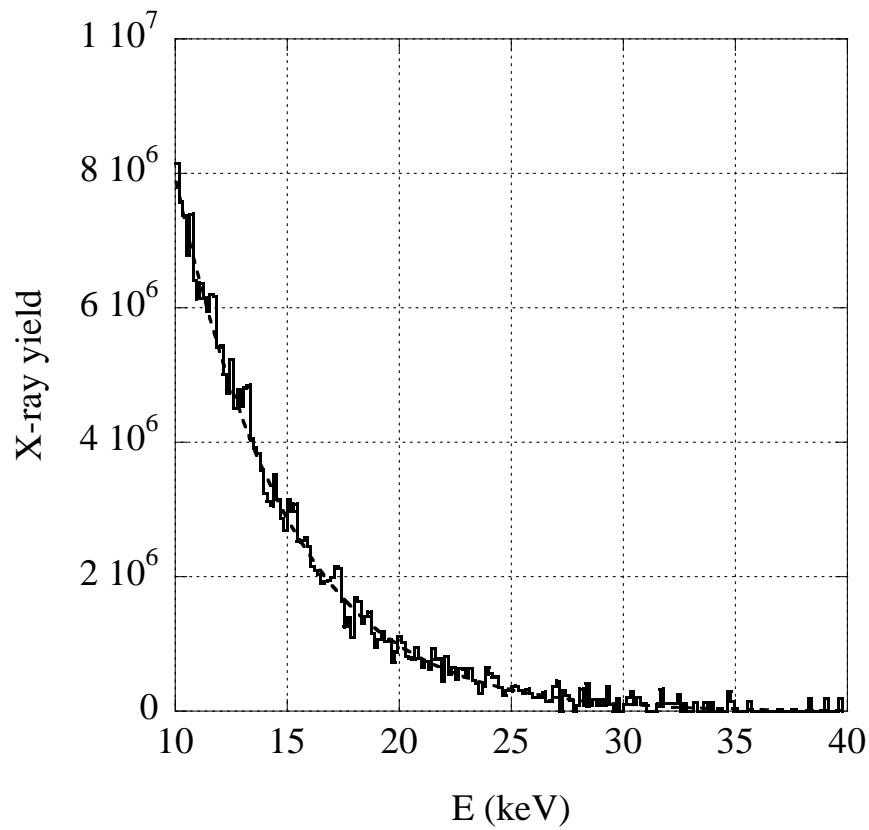


Fig. 6.9 コニカルノズルでの実験結果,  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ 、実線：生データ、波線：Fitting curve.<sup>3)</sup>

硬 X 線 CCD で測定した X 線エネルギースペクトルを Fig. 6.9 に示す。X 線エネルギーの増加とともに X 線強度は急激に下がっていく傾向が観察できるが、Xe K 殻 X 線のピークは確認できなかった。Maxwell 分布で Fitting したところ、電子温度は約  $4 \text{ keV}$  に相当する。電子が十分加熱出来ていないので、Xe K 殻 X 線が生成出来なかったと考えられる。

このように電子温度はレーザー強度に強く依存する事が確認できた。この電子加熱が Xe K 殻 X 線生成に重要であり、より効果的な電子加熱法の模索が今後の重要な課題であろう。

クラスター半径 13 nm における Xe K 殻 X 線強度のピークレーザー強度依存性をまとめたのが Fig. 6.10 である。ピークレーザー強度が  $9 \times 10^{18}$  から  $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> に下がると Xe K 殻 X 線の強度は少し低下する。ピークレーザー強度をさらに下げて  $2 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> にすると、X 線強度はバックグラウンド程度になり、Xe K 殻 X 線は有意には観測されなくなった。この結果より、Xe K 殻 X 線生成のレーザー閾値強度は  $2 \times 10^{17}$  と  $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> の間に存在する事が明らかになった。

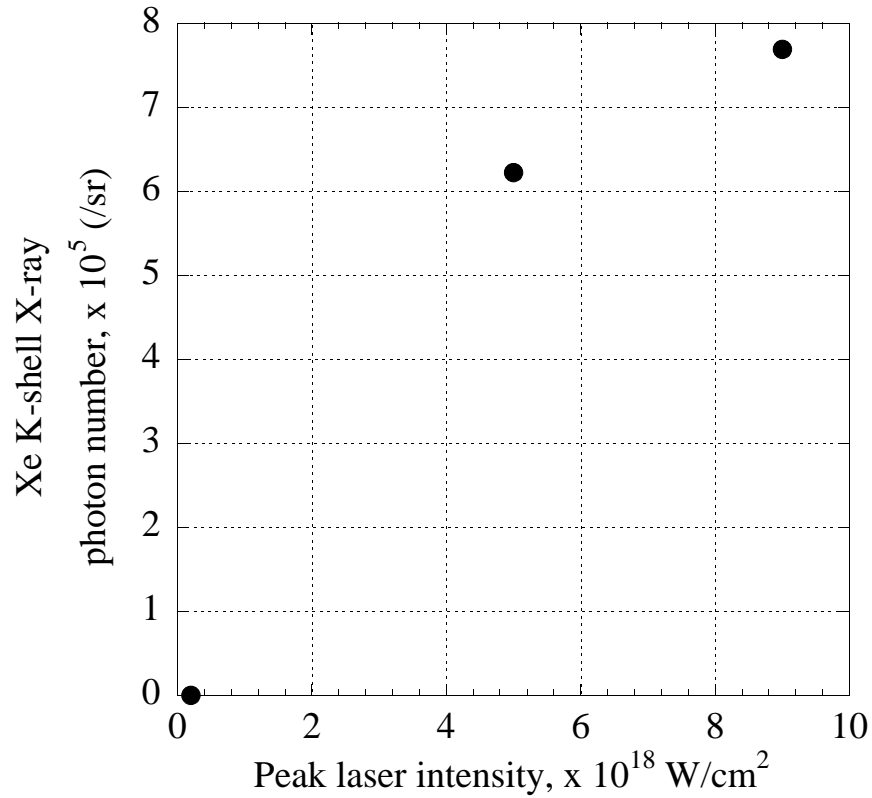


Fig. 6.10 ピークレーザー強度依存性: クラスター半径 13 nm.<sup>3)</sup>

## 6.4 本章のまとめ

- ノズル内での希ガスの流れに対し、圧縮性流体力学を用いて理解を試みた。超音速流れをつくるためにはノズル内部にスロートを持つ必要があることを明らかにした
- コニカルノズルで生成されるクラスターサイズに対する経験式を説明した。ガス種、温度、背圧、ノズルスロート径、ガスの拡がり半角から、クラスター半径が求められる。
- 経験式を用いて、使用するコニカルノズルでは背圧  $4 \times 10^4$  mbar で半径約 17 nm の Xe クラスタが生成できることがわかる。
- コニカルノズルで生成させた Xe クラスタをピークレーザー強度  $9 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> で相互作用させた。Xe クラスタ半径 8 nm の時は、電子温度 9.6 keV の制動放射 X 線は観測されたが、Xe K 殻 X 線の強度は  $2.0 \times 10^5$  sr<sup>-1</sup> と低い。12 nm にクラスター半径を増加させると、電子温度 16.2 keV の制動放射 X 線に加えて Xe K 殻 X 線強度は  $6.7 \times 10^5$  sr<sup>-1</sup> まで高くなった。さらに 15 - 17 nm にまで増加させると、電子温度は 11.8 - 13.5 keV、Xe K 殻 X 線強度は  $(5.6 - 7.7) \times 10^5$  sr<sup>-1</sup> の範囲内で変動した。この傾向は 12 nm のスキンドepsを考慮する事で説明する事が出来る。
- ノズル位置を移動させてピークレーザー強度  $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> で相互作用を試みた。半径 12 nm の時、電子温度 8.2 keV、Xe K 殻 X 線強度は  $6.5 \times 10^5$  sr<sup>-1</sup> で、13 nm では、電子温度 9.1 keV、Xe K 殻 X 線強度は  $6.2 \times 10^5$  sr<sup>-1</sup> であった。
- ピークレーザー強度  $2 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> に下げたところ、電子温度は 4 keV とかなり低く、Xe K 殻 X 線は全く観測されなかった。これまでの結果より Xe K 殻 X 線生成のレーザー閾値強度は  $2 \times 10^{17}$  と  $5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> の間に存在すると考えられる。

## 7 実験結果とクラスター加熱モデルの計算結果の比較

レーザーとクラスターの相互作用を取扱ったクラスターモデルは複数存在する<sup>62-64</sup>)。これらのモデルの内、代表的なモデルであるマイクロプラズマモデルを用いて実験データの理解を試みる。またその他のモデルとして古典的軌跡モンテカルロシミュレーションモデル (Classical Trajectory Monte Carlo Simulation Model, CMTC モデル) を取り上げる。この CMTC モデルはマイクロプラズマモデルより複雑であり、計算は容易ではないが幸い Deiss 等が Ar クラスターに関してかなり詳細に計算を行っているので彼らの結果を元に私の実験結果の理解を試みる<sup>65</sup>)。両モデルの違いは、ほとんど電離電子の加熱メカニズムに集約され、電離過程及び X 線生成の断面積に関して違いは見受けられない。まずこの共通部分について言及する。

### 7.1 両モデルに共通するメカニズム

#### 7.1.1 イオン化のメカニズム

高強度のレーザーがターゲットと相互作用すると、ターゲット中の電子が電離される事がこれまでの研究で明らかにされている。主な電離メカニズムとして多光子電離とトンネル電離、電子衝突電離が知られており、まずは多光子電離から説明を行う。

##### 7.1.1.1 多光子電離

超短パルス高出力レーザーを物質に照射すると、極めて短い時間に複数のレーザー光子が 1 原子と相互作用する事が起こりうる。その結果、レーザー光子 1 個のエネルギー  $h\nu$  はイオン化ポテンシャル  $I_p$  に満たなくても、複数の光子エネルギーを受け取って電離する事が出来る。これを多光子電離と呼ぶ (Fig. 7.1 参照)。複数個の光子エネルギーを「極めて短い時間内に」受け取る事が重要で短パルスレーザーに特有の電離過程と考えられる。

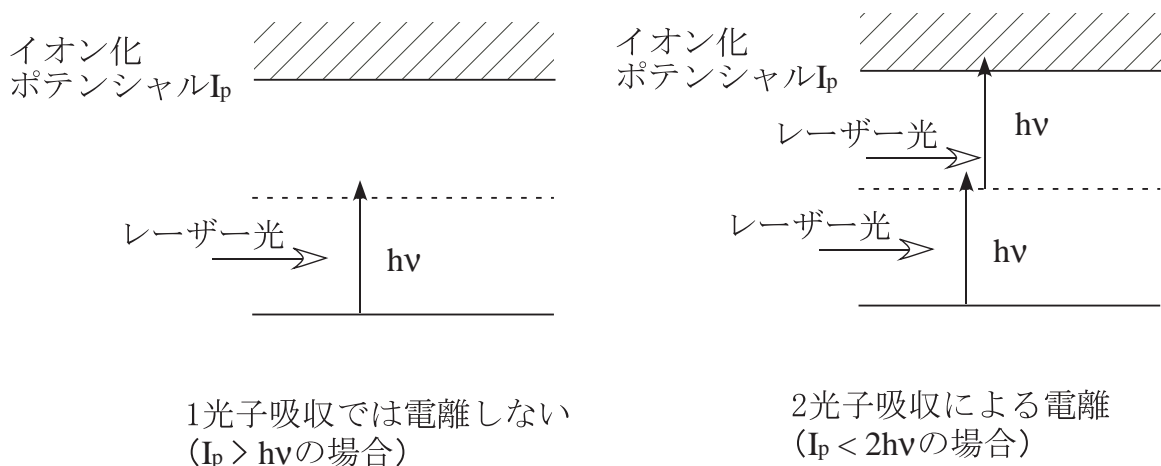


Fig. 7.1 多光子電離.

##### 7.1.1.2 トンネル電離

レーザー強度  $I$  が十分高い場合は、レーザー電場  $E$  によって電離が促進される。レーザー強度とレーザー電場は次のように関係にある。

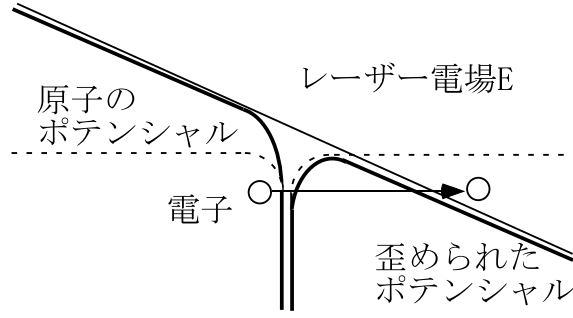


Fig. 7.2 トンネル電離.

$$E[\text{V/m}] = 2.746 \times 10^3 \sqrt{I[\text{W/cm}^2]} \quad (7.1)$$

式 (7.1) を用いるとレーザー強度  $I = 6.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  はレーザー電場  $E = 7 \times 10^{10} \text{ [V/m]}$  に相当する。この電場は原子内の電子が感じる電場と同程度である。そこでこのような高強度のレーザーを物質中に照射すると、物質の電離ポテンシャルはレーザー電場で歪められ、Fig. 7.2 のようなトンネル効果により電離が進行する。これをトンネル電離と呼ぶ。

トンネル電離は Ammosov, Delone, Krainov 等により導かれた ADK 理論を用いて理解する事が出来る<sup>66)</sup>。この理論によればレーザー電場によるトンネル電離速度  $W_{ADK}$  を以下のように与えている。

$$W_{ADK} = \omega_A \cdot C_{n^*}^2 \cdot f(l, m) \cdot I_p \left[ \frac{3 \cdot E}{\pi \cdot (2 \cdot I_p)^{3/2}} \right]^{1/2} \times \left[ \frac{2 \cdot (2 \cdot I_p)^{3/2}}{E} \right]^{2n^* - |m| - 1} \cdot \exp \left[ -\frac{2 \cdot (2 \cdot I_p)^{3/2}}{3 \cdot E} \right] \quad (7.2)$$

$$C_{n^*} = \left( \frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} \cdot \frac{1}{(2\pi n^*)^{1/2}} \quad (7.3)$$

$$f(l, m) = \frac{(2l+1) \cdot (l+|m|)!}{2^{|m|} \cdot |m|! \cdot (l-|m|)!} \quad (7.4)$$

$$n^* = Z \cdot (2 \cdot I_p)^{-1/2} \quad (7.5)$$

$\omega_A$ : 角振動数 ( $= 4.1 \times 10^{16} \text{ [s}^{-1}\text{]}$ )、 $I_p$ : 原子単位系でのイオン化ポテンシャル、 $E$ : 原子単位系でのレーザー電場、 $l$ : 方位量子数、 $m$ : 磁気量子数、 $Z$ : イオン価数

トンネル電離の極端なケースとして以下のバリアー抑制電離が存在する。レーザー電場 (レーザー強度  $I$ ) が更に高くなると電離ポテンシャルは電子の準位より低くなる。そのため電離が劇的に進行するようになる。バリアー抑制電離の条件は

$$I[\text{W/cm}^2] \geq 4.0 \times 10^9 \cdot \frac{I_p^4[\text{eV}]}{Z^2} \quad (7.6)$$



これまで説明したトンネル電離と多光子電離のうち、どちらの電離過程が支配的かを評価する指標がケルディッシュパラメータ  $\gamma$ <sup>67)</sup> である。

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p [\text{eV}]}{2 \cdot U_p [\text{eV}]}} \quad (7.7)$$

$\gamma \geq 1$  多光子電離が支配的  
 $\gamma \leq 1$  トンネル電離が支配的

ここで  $U_p$  はレーザー波長  $\lambda$ 、レーザー強度  $I$  を用いて

$$U_p [\text{eV}] = 9.34 \times I [10^{14} \text{W/cm}^2] \times \lambda^2 [\mu\text{m}^2] \quad (7.8)$$

### 7.1.1.3 電子衝突電離

多光子電離やトンネル電離に加えて、電離電子がさらに電離を促進させるメカニズムが存在する。(トンネル電離や多光子電離などにより生成された) 電離電子は物質中を自由に動き回る中でレーザー電場により加熱される。加熱された電子は、原子中の束縛電子と衝突し、束縛電子を叩き出す事により更に電離を促進させる。運動エネルギー  $E_e$  (eV) の電離電子が電子衝突電離するときの電離速度  $W_e$  は Lotz<sup>68)</sup> により与えられている。

$$W_e = a_i \cdot q_i \cdot \frac{\ln(E_e/I_p)}{E_e \cdot I_p} \quad (7.9)$$

$a_i = 4.5 \times 10^{-14} [\text{cm}^2 \cdot \text{eV}^2]$ ,  $q_i$  は  $i$  殻に存在する電荷

運動エネルギー  $E_e$  が  $I_p$  のオーダー程度の時、電離速度が高くなる事がこの式より確認できる。

これまでに紹介した多光子電離、トンネル電離、電子衝突電離を介して電離は進行していく。時刻  $t$  における  $i$  価イオンの存在確率を  $N(i, t)$  とすると、時刻  $t + dt$  での存在確率  $N(i, t + dt)$  は次の式で計算できる。

$$N(i, t + dt) = N(i, t) + [W(i-1, t) \cdot N(i-1, t) - W(i, t) \cdot N(i, t)]dt \quad (7.10)$$

$W(i, t)$  : 時刻  $t$  での  $i$  価から  $(i+1)$  価への励起速度

### 7.1.2 電子励起及び電離による X 線生成

前述の過程で生成した電離電子は逆制動放射などのメカニズム（Appendix .E 参照）により、加熱される。内殻原子の励起エネルギー（電離エネルギー）より高い運動エネルギーを有する加熱電子がターゲット中に存在すると、この電離電子が他の内殻電子を励起（電離）する事が出来る。この空いた内殻準位に外殻電子が遷移する際、余ったエネルギーを特性 X 線として放出する（Fig. 7.3 参照）。

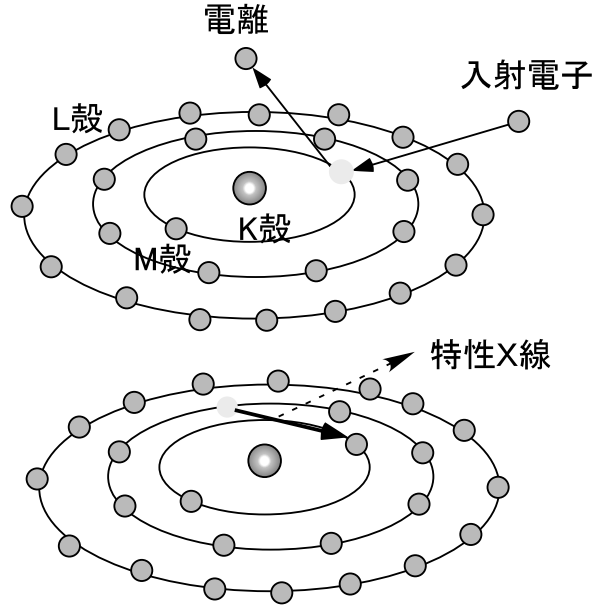


Fig. 7.3 特性 X 線の生成原理.

加熱電子が電子温度  $T_e$  の Maxwell 分布で記述できると仮定すると、電子衝突による準位  $m$  から準位  $n$  への励起速度  $C_{mn}[\text{s}^{-1}]$ <sup>69)</sup> は

$$C_{mn} = 1.58 \times 10^{-5} \cdot n_e \cdot f_{mn} \cdot T_e^{-1/2} \cdot E_{mn}^{-1} \cdot \exp(-E_{mn}/T_e) \cdot G_{mn} \quad (7.11)$$

$$f_{mn} = 1.96 \cdot \frac{q_n^4 \cdot q_m^2}{n^5 \cdot m^3} \cdot \left[ \frac{q_n^2}{n^2} - \frac{q_m^2}{m^2} \right]^{-3} \quad (7.12)$$

$$G_{mn} = 0.19 \cdot \left[ 1 + 0.9 \cdot \left[ 1 + \frac{n \cdot (n - m)}{20} \left[ 1 + \left( 1 - \frac{2}{Z} \right) \cdot \frac{E_{mn}}{T_e} \right] \right] \cdot \exp\left(\frac{E_{mn}}{T_e}\right) \cdot E_i\left(\frac{E_{mn}}{T_e}\right) \right] \quad (7.13)$$

$m$  : 主量子数、 $n$  : 主量子数、 $E_{mn}$  : 準位  $m$  から準位  $n$  への励起エネルギー、  
 $n_e$  : 電子密度、 $q_m$  : 主量子数  $m$  の電子が感じる電荷、 $q_n$  : 主量子数  $n$  の電子が感じる電荷、  
 $f_{mn}$ : 吸収振動子強度、 $G_{mn}$ : Gaunt 因子

$$E_i(z) = \int_1^{\infty} \frac{\exp(-zx)}{x} dx \quad (7.14)$$

$E_i(z)$  は解析的には解く事ができないが、近似式を用いる事が出来る<sup>70)</sup>。

また電子衝突による電離速度  $I_{z,n}$  は Lotz の式 (式 (7.9)) に電子エネルギー分布 (Maxwell-Boltzmann 分布) を考慮した式で見積もる事が出来る<sup>68)</sup>。

$$I_{z,n} = 3 \times 10^{-6} \cdot n_e \cdot \frac{E_i(E_{z,n}/T_e)}{E_{z,n} \cdot \sqrt{T_e}} \quad (7.15)$$

$z$  : イオンの価数、 $n$  : 主量子数、 $E_{z,n}$  :  $n$  準位からの電子の電離エネルギー

電離及び励起確率は電子温度  $T_e$ 、電子密度  $n_e$ 、状態の持続時間に強く依存している。それ故、高強度の特性 X 線を生成させるために求められる条件は、高い電子密度を有するクラスター内で電離エネルギー  $E_{z,n}$  (又は励起エネルギー  $E_{mn}$ ) 程度の電子温度を長時間持続させる事と解釈できる。

特性 X 線に加えて、プラズマ中の電子は自由自由遷移により広いエネルギースペクトルを有する制動放射 X 線を生成する。このエネルギースペクトルは以下の式で評価出来る<sup>71)</sup>。

$$J_{ff}d\nu^* = \frac{32\pi}{3} \cdot \left( \frac{2\pi}{3m_e k_B T_e} \right)^{1/2} \cdot \frac{Z^2 e^6}{m_e c^3} \times n_i \cdot n_e \cdot \exp\left(-\frac{h\nu^*}{k_B T_e}\right) d\nu^* \text{ [erg/cm}^3\text{/s]} \quad (7.16)$$

$\nu^*$ : 光の振動数、 $h$  : プランク定数

上記の式より明らかなように制動放射 X 線のエネルギースペクトルは  $\exp[-h\nu^*/(k_B T_e)]$  に比例する。そこで制動放射 X 線のエネルギースペクトルから電子温度  $T_e$  の情報を引き出す事が出来る。

## 7.2 マイクロプラズマモデルの理論

Ditmire 等はクラスターを Drude モデルに従うような誘電率をもつマイクロプラズマと仮定し、このプラズマ内で生じる電子加熱やプラズマ膨張を評価するモデル、マイクロプラズマモデルを提唱している<sup>34,72)</sup>。

ここでは様々な電子加熱メカニズム (Appendix E 参照) のうち、逆制動放射のメカニズムにより電子にエネルギーを付与されると仮定する。クラスター内で単位体積あたりに逆制動放射により電子に付与されるエネルギーは次の式で記述できる<sup>73)</sup>。

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \vec{E} \cdot \frac{\partial(\epsilon \cdot \vec{E})}{\partial t} \quad (7.17)$$

$U$ : 単位体積あたり電子に付与されるエネルギー、 $t$ : 時間、 $\vec{E}$ : クラスター内での電場ベクトル、 $\vec{D}$ : クラスター内での電束密度ベクトル、誘電率: $\epsilon$

クラスター内の電場ベクトルをレーザー進行方向のベクトル  $\vec{x}$  を用いて  $\vec{E} = [(E \cdot e^{i\omega t} + E^* \cdot e^{-i\omega t})/2] \cdot \vec{x}$  と書き換えると

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \frac{\omega}{8\pi} \text{Im}[\epsilon] \cdot |E|^2 \quad (7.18)$$

クラスター半径がレーザー波長より十分短い場合を考えると、クラスター内では一様な電場  $E$  を受けると考えられる<sup>74)</sup>。真空中でのレーザー電場  $E_0$  を用いて

$$E = \frac{3}{|2 + \epsilon|} \cdot E_0 \quad (7.19)$$

またクラスターを Drude モデルに従うような誘電体と仮定し、誘電率  $\epsilon$  を次のように置く。

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega \cdot (\omega + i \cdot \nu)} \quad (7.20)$$

$\nu$ : 電子とイオンの衝突周波数、 $\omega_p$ : プラズマ周波数、 $\omega$ : レーザー周波数

これらの式を組み合わせると、1 電子が単位時間に受け取るエネルギー  $\frac{\partial U_e}{\partial t}$  は波長  $\lambda$ 、集光強度  $I$  を用いて次式で表現できる (Appendix G.1 参照)。

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} [\text{MeV/ps/electron}] = 3.52 \times \frac{9 \cdot (\nu/\omega)}{(n_e/n_{cr} - 3)^2 + 9(\nu/\omega)^2} \times \lambda [\mu\text{m}] \times I [10^{16} \text{W/cm}^2] \quad (7.21)$$

ここで  $n_e$ 、 $n_{cr}$  はそれぞれ電子密度、臨界密度を示している。

この式より電子密度  $n_e = 3 \cdot n_{cr}$  のとき分母が最小になり、共鳴的に電子がレーザーエネルギーを受け取れる事が確認できる。また単位時間あたりに電子が受け取るエネルギーはレーザー強度に比例する事もわかる。

この加熱特性をイメージするために Fig. 7.4 に例を示した。衝突周波数  $\nu$  がレーザー周波数  $\omega$  の 0.5、1、2 倍の 3 ケースを示している。共鳴条件 ( $n_e = 3n_{cr}$ ) において電子に共鳴的にエネルギー付与されるが、単位時間当たりの付与エネルギーは衝突周波数に反比例することが確認できる。さらに共鳴条件以外では衝突周波数  $\nu$  が大きい方がエネルギー付与は高くなる傾向がある。衝突周波数  $\nu$  が

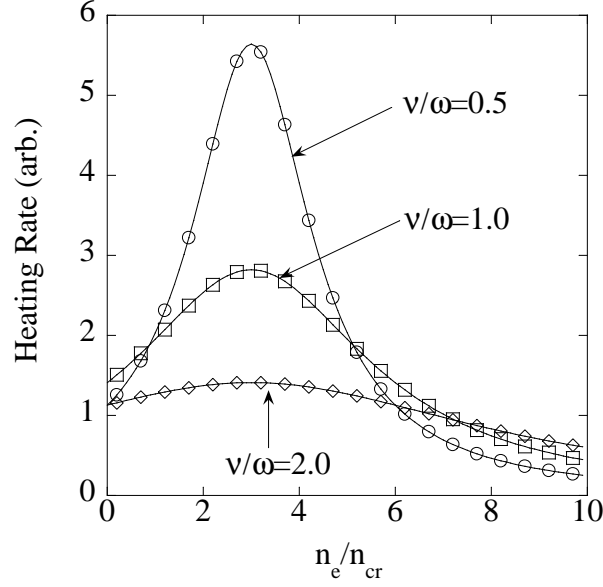


Fig. 7.4 電子の加熱速度例.

小さい時は、電子イオン衝突が起こりにくいのでエネルギー付与されにくいからである。反対に  $\nu$  が大きいときは電子イオン衝突が頻繁に起こるのでエネルギー付与されやすいと理解できる。

この衝突周波数  $\nu$  は、電子の振動速度  $v_{osc}$  と熱速度  $v_{kt}$  に依存して変化する<sup>75)</sup>。振動速度はレーザー電場によって周期的振動する電子の速度でレーザー電場  $E$  を用いて、 $v_{osc} = e \cdot E / (m_e \omega)$  と書くことが出来る。熱速度は電子が逆制動放射によって運動エネルギーを得たことに起因する速度で電子温度  $T_e$  と  $v_{kt} = \sqrt{3k_B T_e / m_e}$  の関係にある ( $k_B$ : ボルツマン定数、 $m_e$ : 電子の静止質量)。この2つの速度の大小により衝突周波数は以下のように変化する。

$$\nu = \frac{4}{9} \left( \frac{2\pi}{3} \right)^{1/2} \frac{Z^2 e^4 n_i}{m_e^{1/2} (k_B T_e)^{3/2}} \ln \Lambda \quad v_{kt} \gg v_{osc} \quad (7.22)$$

$$\nu = \frac{16Z^2 e n_i m_e \omega^3}{E_0^3} \left( \ln \left[ \frac{e E_0}{2m_e \omega v_{kt}} \right] + 1 \right) \ln \Lambda \quad v_{kt} \ll v_{osc} \quad (7.23)$$

$Z$ : イオン価数、 $n_i$ : イオン密度、 $\ln \Lambda$ : クーロン対数

さてクラスターは流体的な力とクーロン反発により膨張する。膨張によって変化するクラスター半径  $r$  は次の式で得られる。

$$\frac{\partial^2 r}{\partial t^2} = \frac{3}{n_i m_i r} \cdot \left( n_e k_B T_e + \frac{Q^2 e^2}{8\pi r^4} \right) \quad (7.24)$$

$Q$ : クラスターから飛び出した電子の総数、 $m_i$ : イオン質量

さらにクラスターが膨張するとクラスターの表面積が増加するため、電子温度を下げようとする効果が働く。

$$\frac{\partial T_e}{\partial t} = -2 \frac{T_e}{r} \frac{\partial r}{\partial t} \quad (7.25)$$

またクラスター内で生成された高エネルギー電子の一部は、束縛エネルギー  $K_{esc}$  を振り切ってクラスター外に逃げ去る。単位時間あたりに逃げ去る電子数  $W_{FS}$  を次式で評価する。

$$W_{FS} = \frac{2\sqrt{2\pi}n_e}{(m_e \cdot k_B T_e)^{1/2}} (K_{esc} + k_B T_e) \exp\left[-\frac{K_{esc}}{k_B T_e}\right] \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4r} (12r^2 - \lambda_e^2) & \lambda_e < 2r \\ 4r^2 & \lambda_e > 2r \end{cases} \quad (7.26)$$

$$K_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{r} \quad (7.27)$$

$\lambda_e$  は電子の平均自由行程で Spitzer の公式を用いる<sup>76)</sup>。

$$\lambda_e = \frac{(k_B T_e)^2}{4\pi n_e (Z+1) e^4 \ln \Lambda} \quad (7.28)$$

電離メカニズムとしては、式 (7.2) で表わされるトンネル電離に加えて以下の過程を考慮している。電子温度  $T_e$  の電子による電子衝突電離の速度  $I_{co}$  は

$$\begin{aligned} I_{co} &= 6.7 \times 10^7 \cdot n_e \times \frac{a_i \cdot q_i}{I_p \cdot (k_B T_e)^{1/2}} \int_{I_p/k_B T_e}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx \\ &= \frac{6.7 \times 10^7 \cdot n_e \cdot a_i \cdot q_i}{I_p \cdot (k_B T_e)^{1/2}} \cdot E_i(k_B T_e / I_p) \end{aligned} \quad (7.29)$$

ここで  $E_i(z)$  は式 (7.14) で定義された関数、 $q_i$  は  $i$  殻に存在する電荷、 $a_i = 4.5 \times 10^{-14} [\text{cm}^2 \cdot \text{eV}^2]$  である。

レーザー電場によって電離電子が振動する事によって、電子衝突電離が起こりうる。振動速度  $v_{osc}$  の電子による電子衝突電離の速度  $I_{las}$  は以下の式で近似される (Appendix G.2 参照)。

$$\begin{aligned} I_{las} &= \frac{n_e}{2} \cdot \frac{a_i q_i}{\pi I_p} \cdot \left(\frac{1}{m_e U_p}\right)^{1/2} \\ &\times \left[ \left(3 - \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \frac{I_p^2}{U_p^2}\right) \ln \left[ \frac{1 + \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}}{1 - \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}} \right] - \left(\frac{7}{2} - \frac{3}{8} \frac{I_p}{U_p}\right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right] \end{aligned} \quad (7.30)$$

なお  $U_p$  は式 (7.8) で与えられている。

このモデルでは上記の式を組み合わせる事により、時間とともに電離していく過程や電子加熱の様子を調べる事が出来る。

### 7.3 マイクロプラズマモデルの計算結果

マイクロプラズマモデルではクラスターの膨張により共鳴条件（電子密度が臨界密度の3倍： $n_e = 3n_{cr}$ ）になったとき、逆制動放射により効果的に電子にエネルギー付与される。この加熱電子がK殻電子を励起（または電離）した後、外殻電子がK殻に遷移した際に単色のK殻X線が放射される。しかしレーザーのパルス幅が短かすぎると、共鳴条件に達した時刻には既にレーザーはクラスターを過ぎ去っていて電子がエネルギーをほとんど受け取る事が出来ない。反対にレーザーのパルス幅が長すぎると、共鳴条件時に到達するレーザー強度が弱く僅かしか逆制動放射でエネルギーを受け取れない。この共鳴条件に到達する時間はプラズマの膨張速度で決まるが、初期のクラスターサイズに関係している。そのためクラスターでの単色X線生成においてレーザーのパルス幅と初期クラスターサイズは重要なパラメータと考えられる。

#### 7.3.1 Ar クラスターの計算結果

マイクロプラズマモデルを用いArクラスターに対し1原子当たりのX線生成効率の計算を試みた。レーザー強度は  $1 \times 10^{15} - 1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 、レーザーのパルス幅 60 fs で評価した。

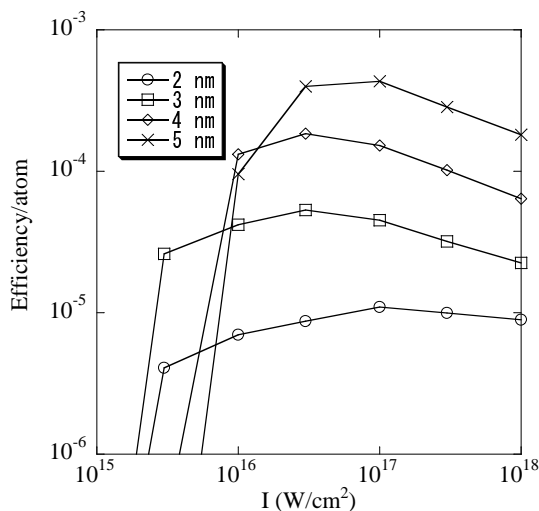


Fig. 7.5 Ar クラスター半径: 2 - 5 nm.

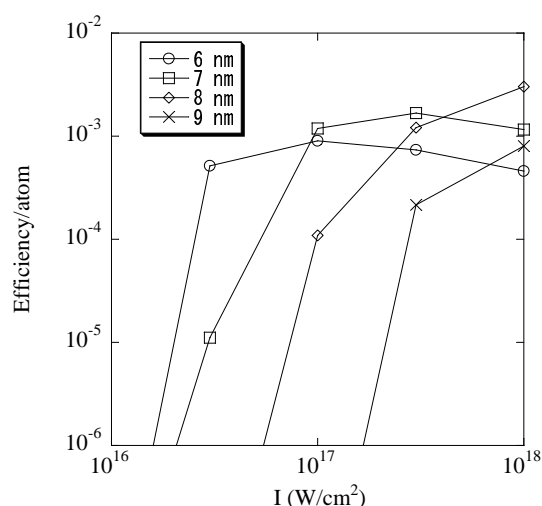


Fig. 7.6 Ar クラスター半径: 6 - 9 nm.

両図よりX線生成に必要なレーザー強度の閾値強度が存在する事が判る。例えば、クラスター半径6 nm のとき、レーザー強度が  $1 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  を下回っていると閾値より低いためX線はほとんど生成できない。この閾値強度はクラスター半径が増大するほど、高くなる事が図より示されている。(例えば5 nm のクラスター半径では閾値強度は  $7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  であるのに対し、9 nm では  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  と高くなっている。) またレーザー強度が高い場合、クラスター半径が大きいほど、X線生成効率が高くなる傾向も図より確認できる。

### 7.3.2 Kr クラスターの計算結果

Kr クラスターのイオン化の価数について検討を行った。レーザー強度は  $2 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>、レーザーのパルス幅は 60 fs、クラスター半径は 5 nm とした。

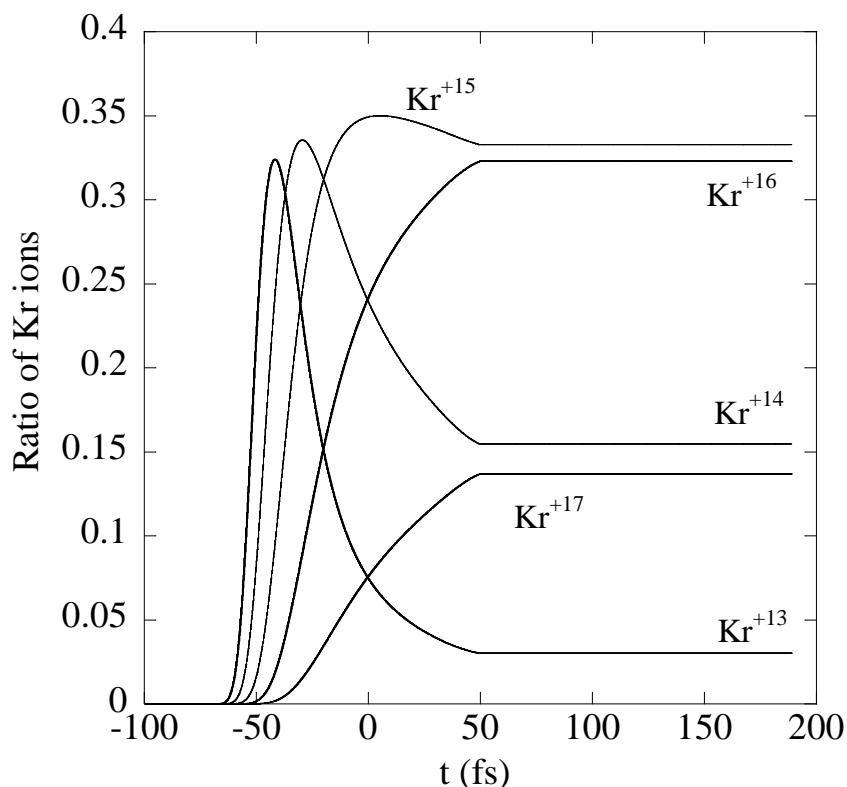


Fig. 7.7 Kr クラスターのイオン化.

トンネル効果、電子衝突により電離するものとし、それぞれの電離速度を式 (7.2), 式 (7.29) 及び式 (7.30) で求め、イオン化の進行をレート方程式に従って計算した。その結果を Fig. 7.7 に示す。時刻  $t = 0$  fs はレーザーのピークがクラスターに到達する時刻を表している。

レーザーの裾の電場によりイオン化が開始され、クラスター内の電離電子は時間とともに徐々に加熱される。時刻  $t = -70 \sim -60$  fs 頃には  $\text{Kr}^{+13}$  イオンが電子衝突等により生成し始める。時間の経過とともにイオン化はさらに進み、 $t = 0$  fs 近傍で  $\text{Kr}^{+15}$  イオンの存在比が最大になる。この時点ではまだ電子密度が高く、逆制動放射の共鳴条件を満足していない。

さらに時間が経過すると電子の加熱及びクーロン爆発によりクラスター半径が徐々に膨らんでいくので電子密度が下がっていく。 $t = 50$  fs 近傍で共鳴条件に達し電離電子が急激に加熱されると、クラスターは劇的に膨張し電子密度は急激に減少する。衝突断面積は電子密度に比例するので、その後は電子衝突はほとんど生じなくなる。またレーザーのピークが既に通過しているため、トンネル電離も有意におこらず電離の進行が停止する。マイクロプラズマモデルによれば上記の機構で +13 - +17 価の Kr イオンが生成するという結果が得られた。



### 7.3.3 Xe クラスターの計算結果

Xe K 殻 X 線生成効率のクラスターサイズ依存性についてマイクロプラズマモデルで計算を行った。ここでレーザー出力及びレーザー集光径を固定し、レーザーパルス幅 60 fs、レーザー強度  $6.67 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> のケースとレーザーパルス幅 300 fs、レーザー強度  $1.67 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> のケースに対し調べた。

どちらのケースでも共通している点は K 殻 X 線生成効率はクラスター半径に大きく依存する事である。60 fs のときはクラスター半径 6 nm で K 殻生成効率は最大になった後、クラスター半径のさらなる増加は急激な Xe K 殻 X 線生成効率を減少させ、半径 8 nm 以上ではほとんど Xe K 殻 X 線が生成できなくなることが確認できる (Fig. 7.8)。一方、300 fs のときは数 nm ではほとんど生成しない事、数十 nm で生成効率が最大になることがわかる。

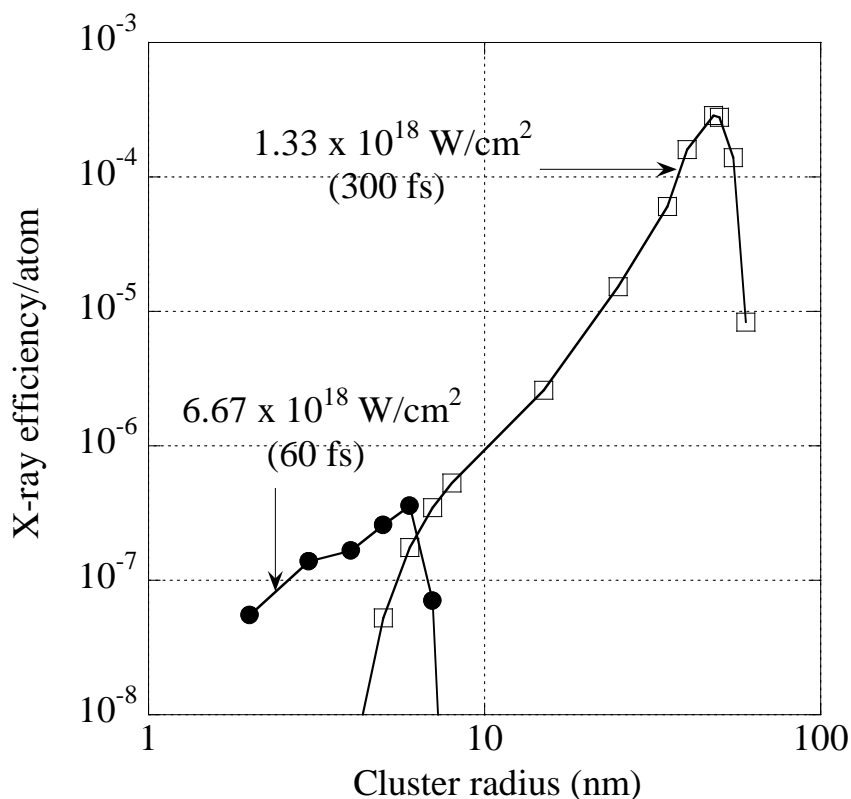


Fig. 7.8 Xe K 殻 X 線効率のクラスター半径依存性、パルス幅 60 fs と 300 fs の場合.

次にレーザー照射強度は  $4 \times 10^5 \text{ J/cm}^2$  と一定にしてレーザーパルス幅を変化させた。各レーザーパルス幅での最適なクラスター半径とそのときの Xe K 殻 X 線生成効率をマイクロプラズマモデルで計算し図にプロットしている。

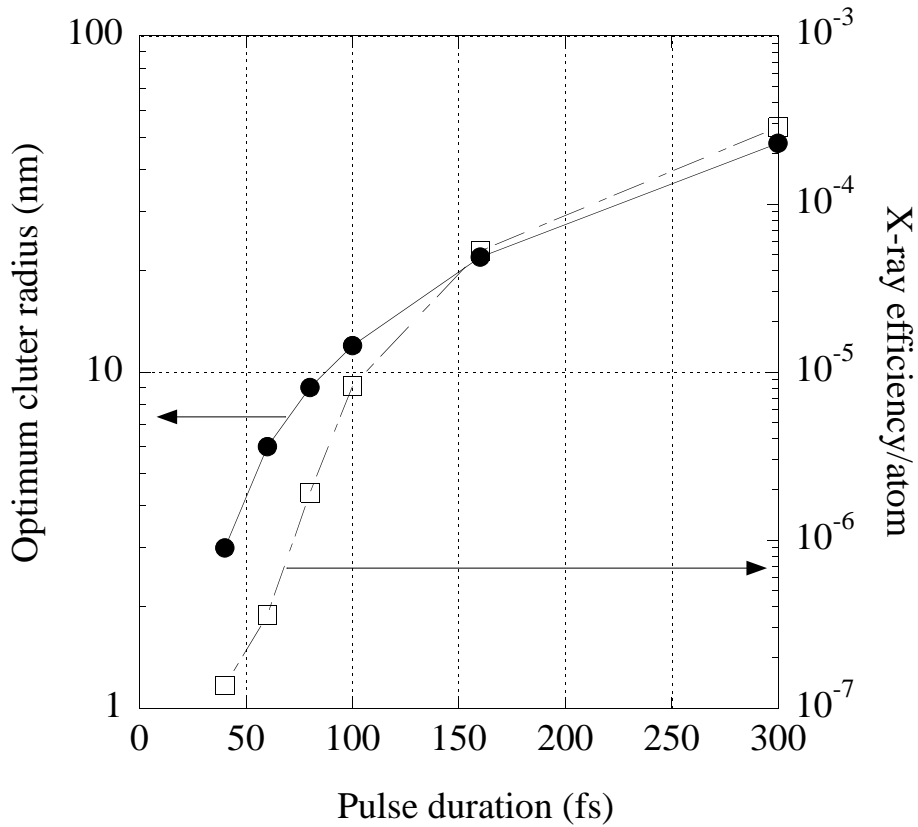


Fig. 7.9 Xe K 殻 X 線生成効率のパルス幅依存性.

レーザーパルス幅を 60 fs から 100 fs まで上げたところ、最適クラスター半径と Xe K 殻 X 線生成効率は急激に増加することが確認できる (Fig. 7.9)。100 fs 以上ではレーザーパルス幅の増加とともに緩やかに最適クラスター半径と Xe K 殻 X 線生成効率は増加していく。

このようにマイクロプラズマモデルに従えば、レーザーパルス幅が 100 fs 以上と長い方が高強度の Xe K 殻 X 線生成が得られる結果になった。

## 7.4 古典的軌跡モンテカルロ・シミュレーションモデル (CTMC モデル) の理論

古典的軌跡モンテカルロ (Classical Trajectory Monte Carlo) ・シミュレーションモデル、略して CTMC モデルと呼ばれ、電子イオン衝突や電子電子衝突など周囲の粒子の寄与をモンテカルロ法で近似してクラスター相互作用を評価する手法である<sup>65,77)</sup>。

クラスター半径はレーザー波長より十分短い場合を考え、クラスター内で感じるレーザー電場  $\vec{E}_L(t)$  は一様と近似し、次の式を用いている。

$$\vec{E}_L(t) = E_0 \cdot \sin(\omega t) \cdot \sin^2\left(\frac{\pi t}{2\sqrt{2}\tau}\right) \cdot \vec{x} \quad (7.31)$$

$t$  : 時間、 $E_0$  : 最大電場、 $\omega$  : レーザー周波数、 $\tau$  : パルス幅、 $\vec{x}$  : レーザー進行方向のベクトル

クラスター内での電荷分布により誘発される電場  $\vec{E}_{mean}(r, t)$  に関しては Poisson 方程式、電子やイオンの運動は下記の Langevin 方程式から求める。

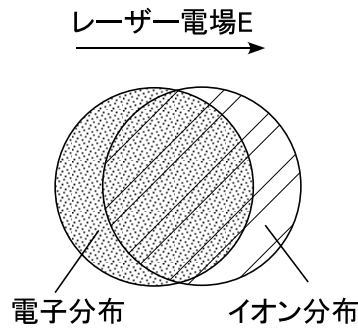


Fig. 7.10 レーザー電場による電子分布の重心位置の変位 : CTMC モデル.

$$m_e \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} = -e\vec{E}_L(t) - e\vec{E}_{mean}(r, t) + \vec{K}_{stoc} \left( r, \frac{\partial r}{\partial t}, t \right) \quad (7.32)$$

$$m_i \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} = q(t) \cdot \vec{E}_L(t) + q(t) \cdot \vec{E}_{mean}(r, t) \quad (7.33)$$

$m_e$  : 電子の静止質量、 $\vec{r}$  : 位置ベクトル、 $e$  : 電子の電荷、 $\vec{K}_{stoc}$  : 電子イオン衝突や電子電子衝突で受ける力、 $m_i$  : イオンの静止質量、 $q(t)$  : イオンの電荷

確率的相互作用  $\vec{K}_{stoc}(r, \frac{\partial r}{\partial t}, t)$  のうち電子-イオン衝突に関しては Salvat 等に求められたモデル<sup>78)</sup>、電子-電子衝突についても Nambu によって提案された小角散乱の式<sup>79)</sup> を用いて計算している。空間をメッシュで分割し、微小時間  $\Delta t$  間隔で計算を実施する事により、Ar K 殻 X 線の生成強度を求められている。

電離電子はイオンより軽いので、レーザー電場によって容易に移動しクラスター内での分極が起こる (Fig. 7.10 参照)。この分極は新たな電場  $\vec{E}_{mean}(r, t)$  を誘発し、この誘発電場と元のレーザー電場  $\vec{E}_L(t)$  により電離電子が加速される。レーザー電場の向きは周期的に変わるので、この電離電子はクラスター内を往復運動する。この往復運動で電離電子が K 殻電子を電離又は励起した結果、Ar K 殻 X 線が放出される。

レーザーの集光径  $w_0$  のみを変えた場合、ある閾値  $I_{th}$  以上のレーザー強度  $I$  と相互作用する Ar 原子数に Ar K 殻 X 線生成強度がほぼ比例するという結果がこのモデル計算から得られている（レーザー出力及びレーザーパルス幅  $\tau$ 、クラスター半径は一定）。ちなみにこの原子数は以下の実効体積 (Effective Volume)  $V_{eff}$  の式 (Appendix H 参照) と Ar 原子密度から求める事が出来る。

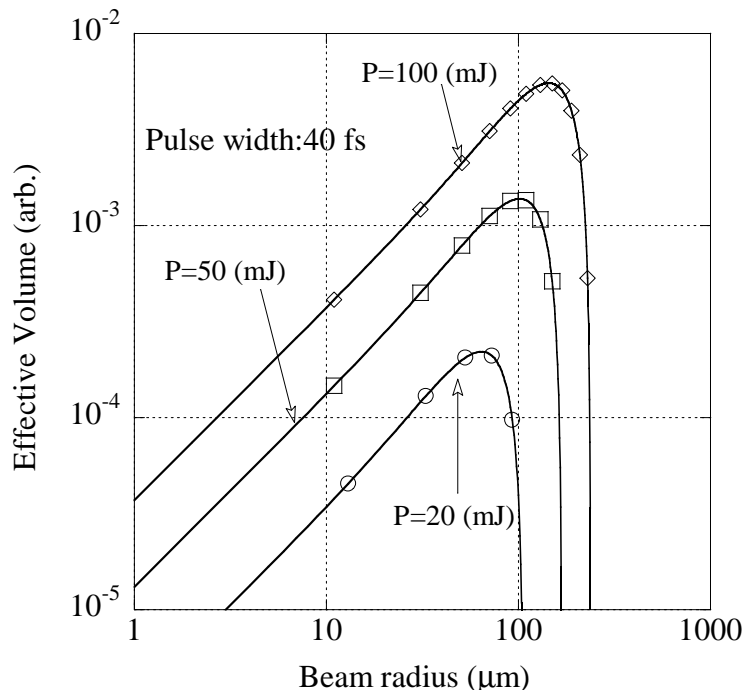


Fig. 7.11 実効体積の計算例、 $P=20, 50, 100$  mJ、 $I_{th}=1.4 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>.

$$V_{eff} = \frac{(\pi w_0^2)^2}{\lambda} \left[ \frac{2}{9} \left( \frac{I}{I_{th}} - 1 \right)^{3/2} + \frac{4}{3} \left( \frac{I}{I_{th}} - 1 \right)^{1/2} - \frac{4}{3} \arctan \left( \frac{I}{I_{th}} - 1 \right)^{1/2} \right] \quad (7.34)$$

$w_0$  : レーザーの集光径、 $I$  : レーザー強度、 $I_{th}$  : Ar K 殻 X 線生成の閾値強度

この実効体積をの集光径依存性をイメージするため、例を Fig. 7.11 に示す。レーザーパルス幅 40 fs、閾値強度  $I_{th} = 1.4 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>、レーザー出力  $P$  は 20、50、100 mJ の場合を示している。レーザー強度  $I$  が閾値強度  $I_{th}$  より十分高い時は実効体積はビーム径  $w_0$  に比例し、ビーム径が十分大きくレーザー強度  $I$  が閾値強度  $I_{th}$  近傍で急激に実効体積が減少しはじめる。その結果、閾値強度  $I_{th}$  より少し高いレーザー強度で実効体積が最大になる。

CTMC モデル計算では超短パルス高出力レーザーによる Ar イオン化についても議論がなされている<sup>65)</sup>。低レーザー強度での計算結果は実験結果と少しい離する傾向がある事が報告されている。例えば  $4.3 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>、パルス幅 56 fs において Ar<sup>+9</sup> イオンが主に生成するとの計算結果を Deiss は得ているが、実験では主として Ar<sup>+12</sup> - Ar<sup>+13</sup> イオンが観測されている。このような食い違いも報告されている例もあるが、他のクラスターモデルに較べれば比較的实验と計算結果の一致は良い。

## 7.5 CTMC モデルの主な計算結果

次に Deiss 等が行った CTMC モデルの結果を紹介する。このモデルを取り上げる理由の一つとして、レーザー強度やクラスター半径、レーザーパルス幅などのパラメータに対し系統的に計算がなされている点が挙げられる。またパルス幅 56 fs の条件での計算が少なくないが、私が使用していたレーザーのパルス幅に近い事も理由に挙げられる。さらに最大 100 nm のクラスター半径とスキンドープより大きいクラスターまで取扱っているため、クラスター相互作用に関して有益な議論を展開出来ると考えている。

### 7.5.1 X 線強度のクラスターサイズ依存性及びレーザー強度依存性

一般にクラスターサイズが小さい場合、サイズの増加とともに X 線強度が高くなる事が幾つかの実験により確認されている<sup>80)</sup>。

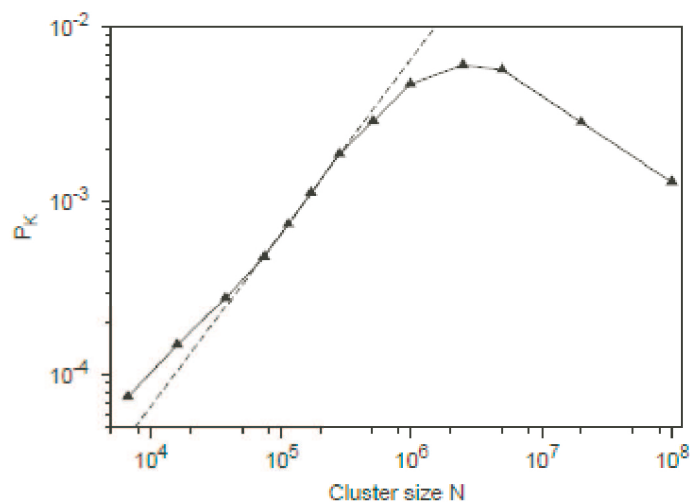


Fig. 7.12 Ar K 殻 X 線のクラスターサイズ依存性.<sup>65)</sup>

それに対し CTMC モデルの計算結果では Ar K 殻 X 線生成に最適なクラスターサイズがある事を示している (Fig. 7.12 参照)。Ar 原子 1 個当たりの X 線生成効率  $P_K$  を縦軸に、平均クラスターサイズ (クラスター内の平均原子数)  $\bar{N}$  を横軸としてプロットされている。レーザー強度は  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, レーザーパルス幅は 56 fs に固定し、Ar クラスターサイズ  $\bar{N}$  は  $10^4$  から  $10^8$  の範囲で計算している。クラスターサイズが小さい間は、クラスターの増大とともに X 線生成効率  $P_K$  は高くなっていく。そして Ar クラスターサイズ  $\bar{N}$  が  $2 \times 10^6$  (~ 半径 30 nm) 近傍になると生成効率  $P_K$  が最大になり、これ以降では X 線生成効率  $P_K$  が減少していく様子が判る。

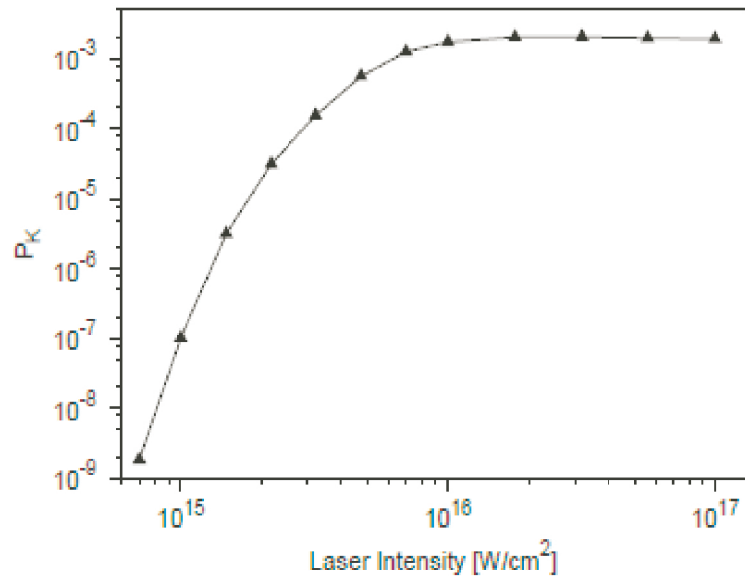


Fig. 7.13 Ar K 殻 X 線生成効率のレーザー強度依存性.<sup>65)</sup>

Ar 原子 1 個当たりの X 線生成効率  $P_K$  は、レーザー強度  $I$  にも依存する。クラスター数  $\bar{N} = 2.8 \times 10^5$ 、レーザーパルス幅 61 fs の条件での X 線生成効率  $P_K$  のレーザー強度依存性をプロットしたのが Fig. 7.13 である。同図で明らかなように、X 線生成効率  $P_K$  はレーザー強度の増加とともに高くなるが、レーザー強度  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  以上では一定値に収束する。その他に生成効率  $P_K$  はレーザーパルス幅  $\tau$  も依存するので  $P_K = P_K(\bar{N}, I, \tau)$  と書くことが出来る。

### 7.5.2 X線強度のパルス幅依存性

Ar K 殻 X 線生成強度のレーザーパルス依存性について計算されている結果を示す<sup>65)</sup>。クラスターサイズ  $\bar{N}$  は  $3.7 \times 10^4$ 、レーザー強度  $I$  は  $2 \times 10^{14} - 3 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  の範囲で、レーザーのパルス幅  $\tau$  は 56 fs (四角)、140 fs (丸)、570 fs (三角) の場合について CTMC モデルで計算されている。ただしレーザーの集光径を固定しているため、レーザーエネルギーは一定ではない事 (レーザー強度とパルス幅の積に比例する事) に注意する必要がある。さらに彼らの実験結果についても 56 fs (中抜き四角)、140 fs (中抜き丸)、570 fs (中抜き三角) で Fig. 7.14 にプロットしている。

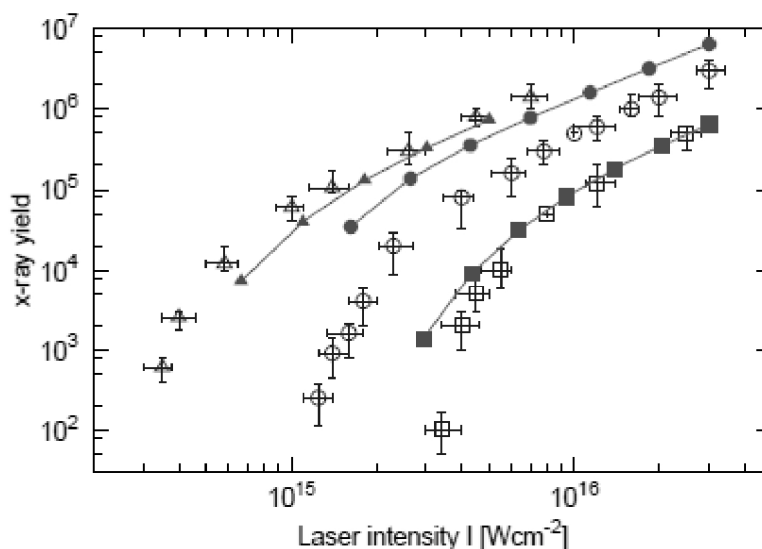


Fig. 7.14 Ar K 殻 X 線強度のレーザーパルス幅依存性 : 56、140、570 fs.<sup>65)</sup>

図より計算結果が実験結果と比較的良好な一致を示している事が判る。特にレーザー強度の増加とともに X 線強度が高くなっていく傾向は、実験と計算で非常に似通っている。次にレーザー強度が同じであればレーザーパルス幅が長いほど、Ar K 殻 X 線の生成強度は高くなる事が確認できる。

その他に Ar K 殻 X 線の生成強度に対し、閾値強度  $I_{th}$  が存在する事も確認できる。この閾値強度はレーザーのパルス幅  $\tau$  に依存するので  $I_{th} = I_{th}(\tau)$  と書ける。例えば 56 fs のパルス幅の場合は閾値強度  $I_{th}$  は約  $3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  なのに対し、570 fs では  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  程度になり、パルス幅が長いほど閾値強度が小さくなる事が図より見て取れる。

### 7.5.3 Ar K 殻 X 線生成の最適レーザーパルス幅の評価

CTMC モデルを用いて Ar K 殻 X 線生成に最適なレーザーパルス幅  $\tau$  を以下のように評価されている<sup>65)</sup>。レーザー出力 20 mJ、レーザー集光径は一定とし、クラスターサイズは  $\bar{N} = 5.1 \times 10^5$  のケースを取り扱っている。

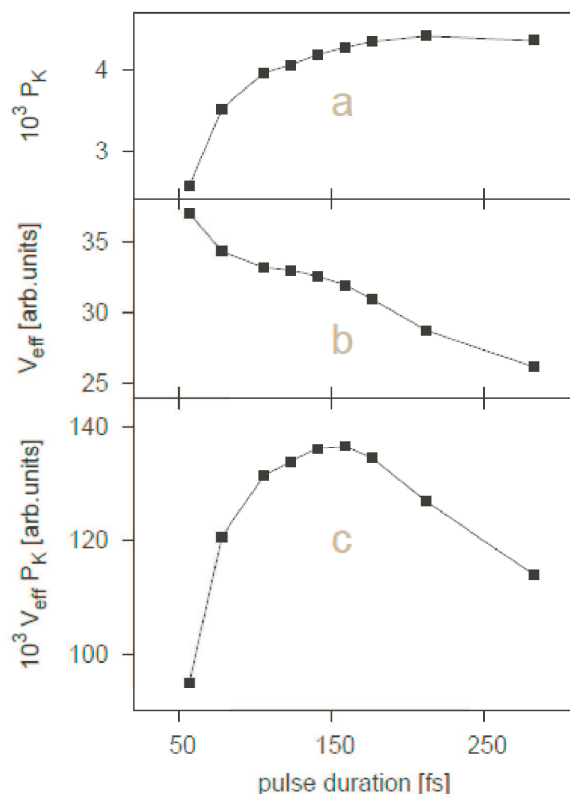


Fig. 7.15 Ar K 殻 X 線生成に最適なレーザーパルス幅の評価結果.<sup>65)</sup>

各レーザーパルス幅  $\tau$  での原子 1 個当たりの X 線生成効率  $P_K$  は、CTMC モデルに基づいて計算され Fig. 7.15 a) のようになる。パルス幅 56 fs のときは X 線生成効率が低く、パルス幅の増大とともに X 線生成効率は増加し 200 fs で飽和する傾向が見える。

ここで閾値強度  $I_{th}$  以上のレーザー強度を受けた Ar クラスターが Ar K 殻 X 線が生成出来ると仮定すると、X 線生成可能な原子の数は前述の実効体積  $V_{eff}$  (式 (7.34)) に比例する。閾値強度  $I_{th}(\tau)$  のレーザーパルス幅依存性を考慮して、実効体積を計算した結果が Fig. 7.15 b) に示されている。レーザーのパルス幅が長くなるほど、実効体積が減少していく傾向が確認できる。

クラスターからの X 線強度は原子 1 個当たりの生成効率  $P_K$  と実効体積の積で見積もる事ができる。その結果を Fig. 7.15 c) に示す。50 fs からパルス幅が大きくなるにつれて生成効率  $P_K$  の効果により X 線強度が高くなり、約 150 fs 近傍で効率は最大になる。さらにレーザーパルス幅が長くなると実効体積の効果により減少していく。CTMC モデルではこのように原子 1 個当たりの生成効率  $P_K$  と実効体積で Ar K 殻 X 線生成に最適なパルス幅を導いており、この計算結果は実験結果と一致すると説明される。



## 7.6 実験結果とモデル計算結果の比較

この節では私が実験で得られた結果に関してこの章で取り上げた二つの計算モデルを用いて、理解する事を試みる。

### 7.6.1 クラスタサイズと X 線強度の関係

6章で議論したように今回私はコニカルノズルで生成された Xe クラスタを用いて、Xe K 殻 X 線生成の実験を試みている。このノズルで生成されたクラスタの半径は半実験式で評価出来るので、Xe K 殻 X 線強度のクラスタ半径依存性を議論することが可能である。半径 8 nm の Xe クラスタに対しピークレーザー強度  $9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  で照射した所、Xe K 殻 X 線の生成強度は  $2.0 \times 10^5 \text{ sr}^{-1}$  であった。しかしクラスタの半径  $R_{cl}$  をスキンドープス  $\delta$  程度である 12 - 17 nm に増加させると Xe K 殻 X 線の生成強度は  $5.7 \times 10^5 - 7.7 \times 10^5 \text{ sr}^{-1}$  に増加する事が確認されている (Fig. 6.7 参照)。

一方マイクロプラズマモデルで計算すると、Xe クラスタ半径が 7 nm 以上で Xe K 殻 X 線の生成効率は激減する結果が得られており、今回の実験結果の傾向と異なる事が確認できる (Fig. 7.8 参照)。

またマイクロプラズマモデルで求めると半径 8 nm のクラスタで Ar K 殻 X 線生成の閾値強度は  $1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  以上と見積もられている。しかし Chen 等の実験では半径 8 nm のクラスタに  $5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  以下の強度でレーザー照射しても十分に Ar K 殻 X 線生成する事が示されている<sup>81)</sup>。このようにマイクロプラズマモデルで計算される結果は、実験結果との一致が良くないことがわかる。

次に CMTC モデルと実験結果の対比を試みる。ただし Xe K 殻 X 線生成の CMTC 計算は行われていないので Ar K 殻 X 線生成の CMTC 計算結果を代用する。CMTC モデルでは集光強度  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  でクラスタ半径が増加するにつれて Ar K 殻 X 線生成効率は増加し、スキンドープス程度である約 30 nm (クラスタサイズ:  $2 \times 10^6$  個) で最大になる (Fig. 7.13 参照)。このようにクラスタ半径が小さいときはクラスタ半径の増加とともに X 線生成効率が増加し、スキンドープス程度で X 線生成効率が飽和する CMTC モデルの計算結果は Xe K 殻 X 線生成の実験結果と一致している。

Table 7.1 X 線生成強度の最適クラスタ半径  $R_{cl}$  の比較.

	最適条件
実験結果	$R_{cl} \sim \delta$
マイクロプラズマモデル	$R_{cl} \leq 7 \text{ nm} \leq \delta$
CTMC モデル	$R_{cl} \sim \delta$

## 7.6.2 X線強度の集光位置依存性

今回の実験では数 mm デフォーカスの時に Ar K 殻 X 線強度が最大になる事が確認されている (Fig. 4.7 参照)。CTMC モデルを用いてこの Ar K 殻 X 線強度の集光位置依存性について理解を試みる。レーザークラスター相互作用で生成される X 線の強度は X 線生成が可能なクラスターの数と X 線生成効率の積で求まる。CTMC モデルでの結果から閾値強度  $I_{th}$  より十分高いレーザー強度  $I$  では、X 線生成効率は一定になる事が明らかになっている。そこで簡単化のため閾値強度  $I_{th}$  より高いレーザー強度  $I$  の場合、X 線生成効率は一定と近似する。また原子密度は一定とする。すると Ar K 殻 X 線の生成強度は X 線生成が可能なクラスターの数にレーザー強度が閾値強度より高く、且つクラスターが存在する領域の体積、すなわち実効体積  $V_{eff}(I > I_{th})$  に比例する。レーザーとクラスターの相互

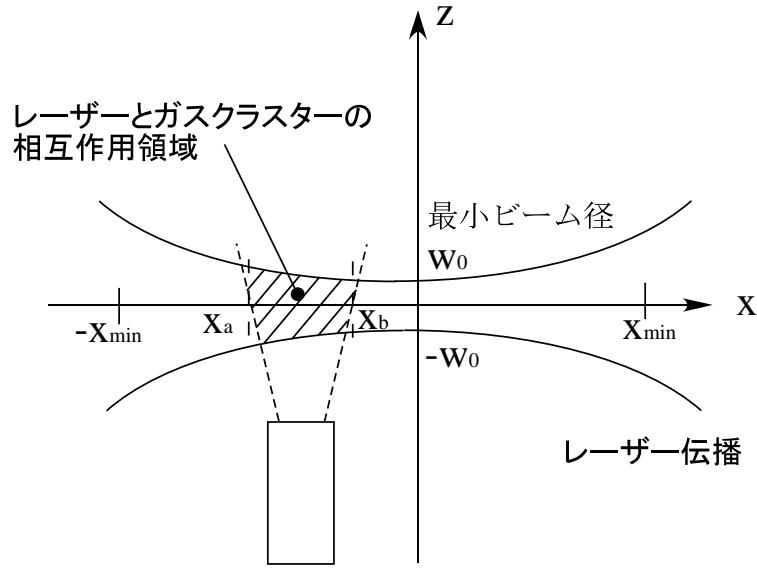


Fig. 7.16 レーザーとクラスターの相互作用.

作用の様子を Fig. 7.16 に示す。レーザーは  $x$  軸方向に進行するものとし、クラスターガスの軸方向の噴出領域を  $[x_a, x_b]$  とする。この場合、実効体積  $V_{eff}(I > I_{th})$  は以下の式で与えられる (Appendix. H 参照)。

$$\begin{aligned}
 V_{eff}(I > I_{th}) = & \frac{\pi w_0^2}{2} \left[ (x_b - x_a) + \frac{\lambda^2(x_b^3 - x_a^3)}{3\pi^2 w_0^4} \right] \ln \left( \frac{I_0}{I_{th}} \right) \\
 & - \left( \frac{\lambda^2 x_b^3}{6\pi w_0^2} + \frac{\pi w_0^2 x_b}{2} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{\lambda x_b}{\pi w_0^2} \right)^2 \right] + \frac{\lambda^2 x_b^3}{9\pi w_0^2} + \frac{2\pi w_0^2 x_b}{3} - \frac{2\pi^2 w_0^4}{3\lambda} \tan^{-1} \left( \frac{\lambda x_b}{\pi w_0^2} \right) \\
 & + \left( \frac{\lambda^2 x_a^3}{6\pi w_0^2} + \frac{\pi w_0^2 x_a}{2} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{\lambda x_a}{\pi w_0^2} \right)^2 \right] - \frac{\lambda^2 x_a^3}{9\pi w_0^2} - \frac{2\pi w_0^2 x_a}{3} + \frac{2\pi^2 w_0^4}{3\lambda} \tan^{-1} \left( \frac{\lambda x_a}{\pi w_0^2} \right)
 \end{aligned} \tag{7.35}$$

$w_0$ : 最小ビーム半径、 $x_a, x_b$ : クラスターが存在する領域の  $x$  座標 ( $x_a \leq x_b$ )、 $I_0$ : ベストフォーカスでのレーザー強度、 $I_{th}$ : X 線生成に必要な閾値強度、 $\lambda$ : レーザー波長

集光位置から十分離れると、ビーム径が大きくなりすぎて、レーザー強度は閾値強度  $I_{th}$  を下回り Ar K 殻 X 線生成が出来なくなる。x 軸上で丁度、閾値強度  $I_{th}$  に一致する場所を  $x_{min}$  と置く。そして  $|x_a|, |x_b| \leq x_{min}$  の条件を課している。

$$x_{min} = (\pi w_0^2 / \lambda) \sqrt{I_0 / I_{th} - 1} \quad (7.36)$$

前述の式を使って、実験時の実効体積を見積もってみる。実験ではレーザー出力 0.12 J、レーザーパルス幅 40 fs で  $F/22$  の集光ミラーを用いた。またクラスターノズルから噴出されたクラスター（ガス）は 1.5 mm 上方（z 方向）でレーザーと相互作用させたので、この位置でのクラスター粒子の拡散も考慮した。さらに閾値強度  $I_{th} = 6.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  と置いた。

上記の条件で式 (7.35) を用いて得られた実効体積の結果を Fig. 7.17 に示す。x = 0 mm のベストフォーカスから離れるに従って実効体積すなわち X 線強度が高くなり、x = 3 - 4 mm でピークをつくり、それより x が大きくなると強度が弱くなり、x = 7 mm で強度は 0 に近づく。計算された実効体積は Ar K 殻 X 線の位置依存性の特徴をとらえており、定性的にはこのモデルで理解する事が出来る。

$x \geq 4 \text{ mm}$  で実験値と計算値が少しずれているが、これは原子 1 個当たりの X 線生成効率を一定と近似した事に起因する。レーザー強度が閾値強度に近づくにつれて、1 原子当たりの X 線生成効率は下がっていく事象は Fig. 7.13 でも確認されている。このような X 線生成効率の補正を行えば両者の値は近づくと考えられる。

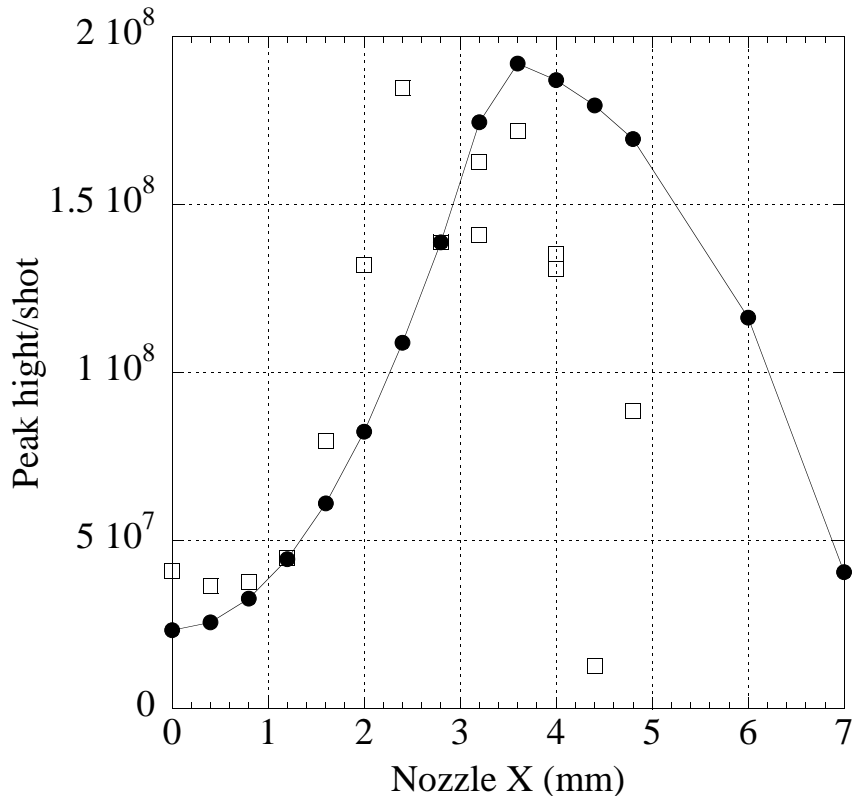


Fig. 7.17 X 線生成強度と実効体積の比較、四角：X 線生成強度、黒丸：実効体積.

### 7.6.3 イオン化状態の評価

今回、Kr イオン化実験を実施しており、その測定データは Fig. 4.14 に示した。Three stage ノズルを利用し、レーザー強度  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅 40 fs の条件下で行われた。エネルギー分解能の高い結晶分光器で X 線分光した結果、最大+26 価の Kr イオン (Ne 様イオン) を確認している。この Ne 様イオンのイオン化ポテンシャル  $I_p$  は約 1200 eV に相当する。

この結果をマイクロプラズマモデルを用いて、Kr イオン化の時間変化を評価した所、主に+14 - +17 価 (平均+15 価) にイオンが分布する結果が得られている (Fig. 7.7 参照)。+15 価 (+17 価) のイオン化ポテンシャルは 520 eV (610 eV) である。計算結果は実測値に較べて明らかに過小評価しており、マイクロプラズマモデルは実測に合うモデルとは言い難い。

CTMC モデルを用いた Kr のイオン化状態の計算結果は残念ながら存在しない。ただ幸いな事に Ar クラスタに関しては CTMC モデルの計算結果と実験結果が報告されているので、両者の比較により CTMC モデルの計算の妥当性に関して調べる<sup>65)</sup>。計算及び実験条件は  $6 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅 61 fs、クラスタサイズは  $5.1 \times 10^5$  と報告されている。

両者の結果を Fig. 7.18 に図示する。横軸はイオンの価数、縦軸はイオン化の存在確率を示している。実験データでは+14 価の Ar イオンを中心とした価数分布をとっている事が確認できる。一方、CTMC モデル計算では+12 価の Ar イオンを中心とした価数分布になり、2 価ほど過小評価する事が確認できる。イオン化ポテンシャルは+14 価では 760 keV なのに対し、+12 価では 620 keV と 140 eV ほど異なる。逆制動放射や真空加熱など様々な電子加熱モデルが存在するが、これらの効果が CTMC モデルに考慮されていない事が過小評価の要因として挙げられる。ただそれでも、Kr イオン化の結果を考慮する限り、マイクロプラズマモデルよりは CTMC モデルの方が実験結果に近いと考えられる。

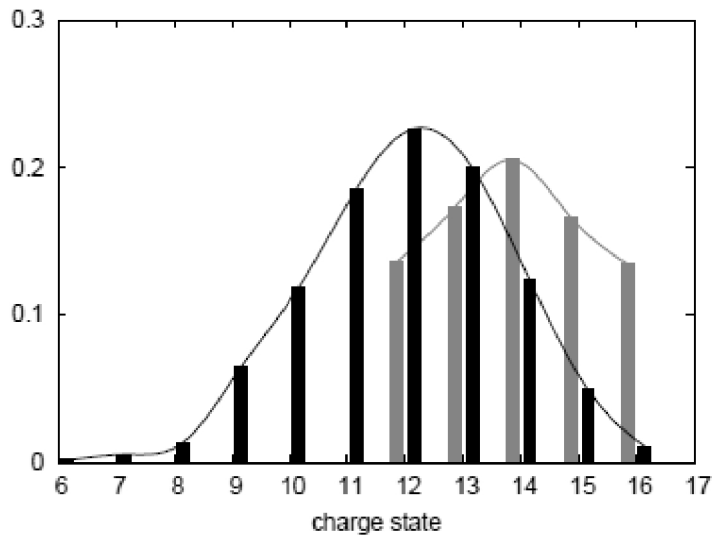


Fig. 7.18 Ar イオン化 : CTMC モデル (黒)、実験 (グレー) .<sup>65)</sup>

#### 7.6.4 レーザーパルス幅依存性

Ar K 殻 X 線強度のレーザーパルス幅依存性に関しては 7.5.3 節で Deiss 等の CTMC 計算結果を紹介した。Fig. 7.15 では X 線生成効率がレーザーパルス幅に依存し、約 140 fs で最大になる事を示している。彼らは、さらに X 線強度のレーザーパルス幅依存性を調べ以下のようなデータを取得している<sup>65)</sup>。ここではレーザーエネルギー及びレーザー集光径は固定し、レーザーのパルス幅のみ変化させて計測している。

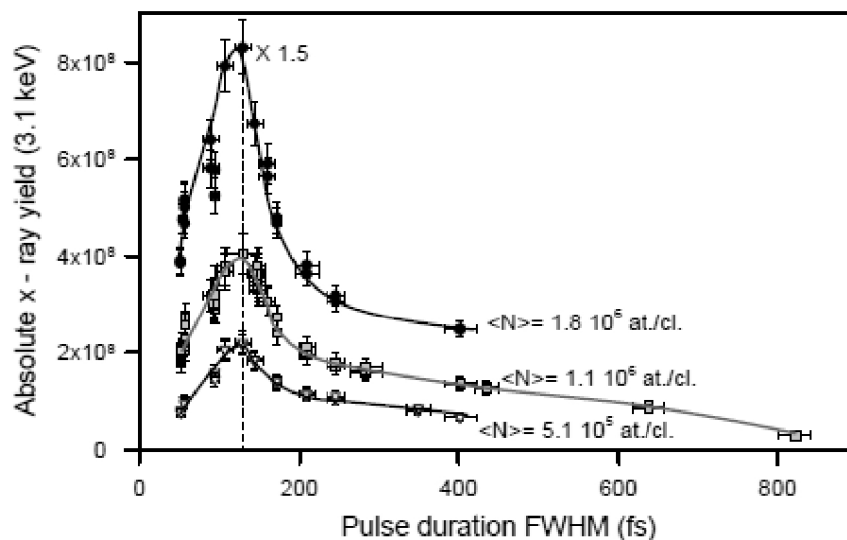


Fig. 7.19 レーザーパルス幅依存性.<sup>65)</sup>

クラスターサイズを  $5.1 \times 10^5$  (半径 19 nm) から  $1.8 \times 10^6$  (半径 29 nm) に変えても、最適レーザーパルス幅は約 140 fs と一定値をとる事が確認できる。この最適パルス幅は計算で得られた結果とほとんど一致している。

他方、マイクロプラズマモデルでは同様の実験条件で最適パルス幅は約 400 fs との計算結果が得られている<sup>82)</sup> ので、Ar K 殻 X 線のパルス幅依存性の実験結果はマイクロプラズマモデルでの計算結果で説明できない事がわかる。

次に Xe K 殻 X 線生成のレーザーパルス幅依存性について少し述べたい。レーザーパルス幅 40 fs の方が 300 fs の時より Xe K 殻 X 線生成強度が高い事を今回実験で確認している (Fig. 4.5 参照)。マイクロプラズマモデルを用いて計算するとパルス幅 60fs の方が、300 fs の時より X 線生成効率は高くなる条件はクラスター径が 10 nm 以下と求まる。しかしレーザー散乱法の結果からクラスターサイズは 10 nm より大きい成分が支配的であるので、Xe クラスターに対してもマイクロプラズマモデルと実験結果の整合性は良くない。

尚、CTMC モデルによる Xe K 殻 X 線のパルス幅依存性評価は、基礎データ (Xe K 殻 X 線生成効率、閾値強度の計算データ) が揃っていないため議論出来なかった。

### 7.6.5 その他のメカニズム（ポンドロモーティブポテンシャル）に関する考察

このサブセクションでは、ポンドロモーティブポテンシャルによって K 殻 X 線生成が起こっている可能性について議論してみる。そこでクラスター内及び近傍のプラズマ電子がポンドロモーティブポテンシャル  $U_p$  に相当するエネルギーを受け取ると仮定する。このポンドロモーティブポテンシャルは以下の式で記述できる (Appendix E.4)。

$$U_p = 9.3 \times 10^{-14} I \cdot \lambda^2 \quad (7.37)$$

ここで  $U_p$  は eV 単位でのポンドロモーティブポテンシャル、 $I$  は  $\text{W}/\text{cm}^2$  単位でのピークレーザー強度、 $\lambda$  は  $\mu\text{m}$  単位でのレーザー波長を表す。

もしこのポテンシャルにより X 線生成が起こるのならば、K 殻 X 線生成のレーザー閾値強度は「電子の結合エネルギーが電子の運動エネルギー  $U_p$  に等しい」時のレーザー強度として理解される。そこで式 (7.37) を用いて予想される閾値強度を求め、その結果を Table 7.2 に記載した。

Table 7.2 K 殻 X 線生成のレーザー強度閾値.

	Binding energy of K-shell (keV)	Threshold laser intensity	
		by ponderomotive potential ( $\text{W}/\text{cm}^2$ )	by measurement ( $\text{W}/\text{cm}^2$ )
Ar	4	$7 \times 10^{16}$	$2.9 \times 10^{15}$ <sup>65,77)</sup>
Kr	14	$2 \times 10^{17}$	$\leq 2 \times 10^{16}$ <sup>13)</sup>

ポンドロモーティブポテンシャルを仮定すると Ar K 殻 X 線では閾値強度は  $7 \times 10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$  と求められ、Kr K 殻 X 線では  $2 \times 10^{17} \text{ W}/\text{cm}^2$  の値が得られる。しかし Prigent 等<sup>65,77)</sup> は Ar K 殻 X 線生成の閾値強度が  $2.9 \times 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$  である事、Issac 等<sup>13)</sup> は  $2 \times 10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$  で Kr K 殻 X 線生成が出来る事を実験にて確認している。これらの値はポンドロモーティブポテンシャルで求められる閾値強度より 1 桁以上低い事から、ポンドロモーティブポテンシャルのみでは K 殻 X 線生成を理解出来ない事が判る。

## 7.7 本章のまとめ

- 本章ではまず X 線生成に必要な電離過程について議論した。複数のレーザー光子を吸収して電離する多光子電離、レーザー電場で原子のポテンシャルの低下が誘発するトンネル電離、レーザーにより加熱された電離電子がさらなる電離を促進させる電子衝突電離などが挙げられる。これらの電離過程が競合し、Overdense plasmas（電子密度  $n_e$  が臨界密度  $n_{cr}$  より高い状態）が生み出される。これらの電離過程に関しては多くの研究が報告されており、そのうち代表的な評価方法に関して説明を行った。

次にクラスター内での電子加熱に関しては様々なモデルが提案されていることを紹介した。その中で代用的なモデルである「マイクロプラズマモデル」と「CMTCモデル」を取り上げ、実験結果等と比較した。

- X 線強度のクラスター半径依存性  
コニカルノズルを用いて生成させた半径 12 - 17 nm の Xe クラスターをピークレーザー強度  $9 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> で照射し、Xe K 殻 X 線生成を確認出来ている。マイクロプラズマモデルでは Xe クラスターの半径が 10 nm 以上では K 殻 X 線が生成しない結果になり、実験結果と一致しない。Ar クラスターについてであるが、CMTC モデルを用いて半径が大きくなるほど X 線強度が高くなり、半径約 30 nm で X 線強度が最大になる計算結果を Deiss が報告している。この計算結果の類推により今回の Xe K 殻 X 線の実験結果を理解する事ができる。
- X 線強度の集光位置依存性  
Ar クラスターの結果ではベストフォーカス位置から少し離れたレーザー照射位置で X 線強度が最大になる現象が見出されている。CMTC モデルでは実効体積効果（X 線生成可能なクラスターの数がレーザー集光径に依存する効果）により、この現象を説明する事が出来る。
- その他  
Kr クラスターでの実験では、Kr<sup>+26</sup>(Ne 様イオン) の測定結果が観測されている。また Xe K 殻 X 線強度のレーザーパルス幅依存性を調べたところ、パルス幅 60 fs（ピークレーザー強度  $6.67 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>）の方がパルス幅 300 fs ( $1.33 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) より Xe K 殻 X 線強度が強い事が確かめられた。これらの現象はマイクロプラズマモデルでは説明する事が出来なかった。CTMC モデルでも電離過程に関して若干過少評価する傾向が見受けられたが、これは電子加熱モデルがシンプルすぎるためだと思われる。古典吸収などその他の加熱メカニズムもモデルに含めれば実験結果に近づくのではないか。パルス幅依存性に関しては CTMC モデルでは十分に比較できるデータが揃っておらず、実験結果に合うかどうか議論出来なかった。

## 8 レーザープラズマ X 線の応用とそのための課題

### 8.1 クラスタサイズの計測法

CTMC モデルよりレーザークラスター相互作用で生成される X 線強度はクラスターサイズに依存する事が示されている。しかし Three stage ノズルで生成されたクラスターは数 100 nm から小さいクラスターまで存在すると考えられるし、コニカルノズルで生成したクラスターについても分布を持つと思われる。そこでノズルで出来るクラスターのサイズを計測することが大きな意味を持つ。スキンドeps程度を考慮すると数 nm 以上のクラスター径が計測できる方法を必要とする。幾つかの方法について検討を行ってみた。

(1) レーザー散乱法 今回は YAG 2 倍波 (532 nm) を用いて粒子サイズ計測を行った。しかしクラスター半径 20 nm で散乱強度分布は等方的 (Rayleigh 散乱) になるので、20 nm 以下のクラスターを識別することは難しい。一般に市販されているレーザーで短波長の CO<sub>2</sub> レーザー (193 nm) に変えても、20 nm よりレーザー波長が約 10 倍長いので Rayleigh 散乱になり、20 nm 以下 (スキンドeps程度かそれ以下) のサイズのクラスターを識別することは難しい。

(2) X 線小角散乱法 X 線小角散乱法は硬 X 線をクラスターに照射し、クラスター内原子での X 線回折によりクラスター径を計測する方法である。クラスター内の原子は空間周期性を有しているので、結晶による X 線回折と同様に Bragg 角に回折ピークが現れる。クラスター径が大きくなるほどこの回折ピークの半値全幅は小さくなり、クラスター径を反映している。

(3) 飛行時間型粒子計測器 クラスタをレーザーでイオン化させた後、電場  $E$  で加速させる。加

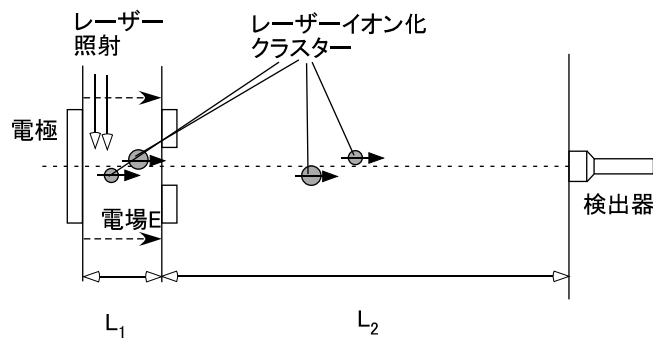


Fig. 8.1 飛行時間型粒子計測器.

速度は質量  $M$  に反比例するので、電場を過ぎた後の速度も質量に依存する。簡単な計算のもと、飛行時間  $t$  は以下の式に従う事がわかる。

$$t = \left( \frac{L_2}{2L_1} + 1 \right) \sqrt{\frac{2ML_1}{qE}} \quad (8.1)$$

$L_2$ : 加速後の飛行距離、 $L_1$ : 加速電場内での飛行時間、 $q$ : 電荷



これらの方法のうち、特に（２）や（３）の方法を用いればクラスター径の分布は観測出来ると考えられる。

## 8.2 高エネルギー X 線用計測器の開発

Xe K 殻 X 線のような高エネルギー X 線に対しては、Si 素子で構成される X 線 CCD 検出器では低検出効率という問題が存在する。これを改善する方法として CdTe や Ge 等の素子を 2 次元に並べて X 線計測器を製作する事が考えられる。両素子とも原子番号が高いので、Si 素子に比べ高い検出効率が期待できる。また CdTe では 1.44 eV、Ge では 0.67 eV のバンドギャップを有する半導体なので、高いエネルギー分解能が得られる。

そこで Xe K 殻 X 線に対する両検出器の応答関数を電磁カスケードコードで評価を行った。一般的な X 線 CCD のサイズを考慮して、検出素子（空乏層）は厚さ 50  $\mu\text{m}$  と仮定すると、次のように応答することがわかった。約 30 keV の Xe K 殻 X 線の全吸収ピークは 20-35 % と高く、シリコンの場合

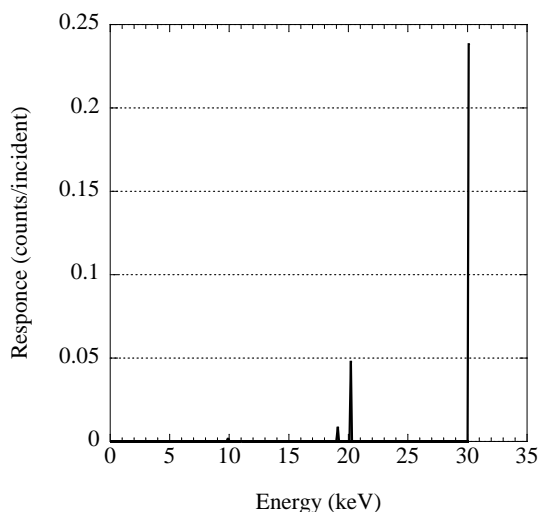


Fig. 8.2 Ge 半導体検出器の場合.

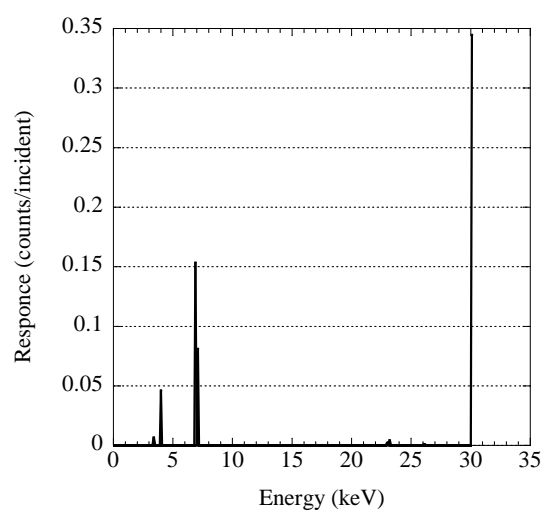


Fig. 8.3 CdTe 半導体検出器の場合.

合に較べて約 10 倍検出効率が向上する。

ただし全吸収ピークからそれぞれ検出器組成の特性 X 線のエネルギー（Ge K 殻 X 線 9.9, 11.0 keV, Cd K 殻 X 線 23.0, 26.1 keV）を差し引いた位置にもピークが形成される事が確認された。

このピークの形成に関しては計測器が X 線の減衰長（X 線強度が物質中で  $e^{-1}$  倍に減衰するのに要する厚さ）を用いて理解出来る。<sup>83)</sup> 検出器への X 線入射で生成された光電子が検出部の Cd や Ge 原子の K 殻電子を電離（励起）する際、外殻電子の遷移により K 殻 X 線が放出される事が起こりうる。しかし Fig. 8.4 からわかるように Cd K 殻 X 線 (23.0 keV) に対する CdTe の減衰長は 120  $\mu\text{m}$ 、Ge K 殻 X 線 (9.9 keV) に対する Ge の減衰長は 50  $\mu\text{m}$  と検出素子のサイズ（厚さ 50  $\mu\text{m}$ ）と同程度かむしろ大きい。それ故、放出された K 殻 X 線はかなりの確率で計測器と相互作用することなく、検出器外に逃げる。その結果、この特性 X 線のエネルギー分、低エネルギーのピークが生成される。

このように CdTe 半導体や Ge 半導体は高検出効率であるが X 線スペクトルの解析時には応答特性を考慮する事が求められる。

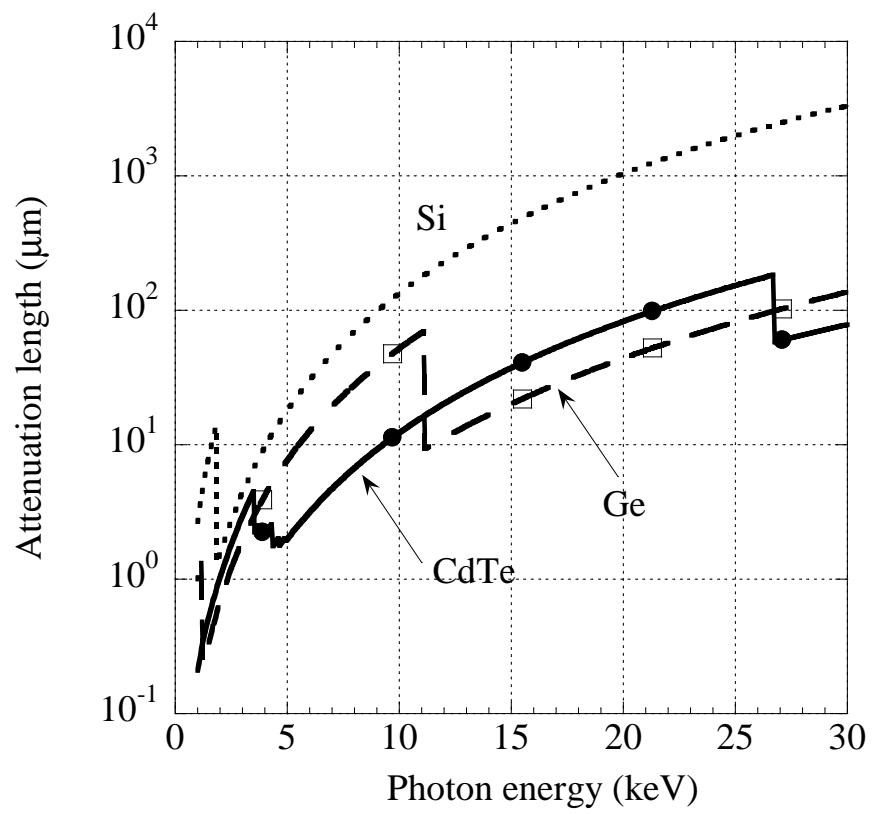


Fig. 8.4 X線の減衰長.

### 8.3 血管造影のイメージング

医療で使用される血管造影法では造影剤を患者に血管から注入される。造影剤には低エネルギー X 線が透過しにくいヨウ素が含まれており、X 線画像処理により血流の様子を診断出来る。

さて物質は電磁波のある波長近傍で急激に吸収効率が変化する事が知られている。これを吸収端と呼ぶ。この吸収端の波長、すなわちエネルギーは物質に固有であり、吸収端エネルギーより X 線エネルギーが高いところでは、吸収されやすく低エネルギーでは吸収されにくい傾向がある。血管造影剤に使われるヨウ素は 33.2 keV に K 吸収端を有している。この吸収端は Xe  $K_{\beta}$  X 線 (33.6 keV) の直近に存在するので、Xe  $K_{\beta}$  X 線はヨウ素により効果的に容易に吸収される。他方、Xe  $K_{\alpha}$  X 線 (29.7 keV) は K 吸収端より低エネルギー側に位置し、吸収されにくい (Fig. 8.5 参照)。それ故、Xe  $K_{\alpha}$  X 線と Xe  $K_{\beta}$  X 線の差分イメージングを取得できれば、ヨウ素に関する情報をより詳細に引き出す事が出来るはずである。現時点では、Xe  $K_{\beta}$  X 線は観測されていないが、今後、Xe  $K_{\beta}$  X 線の生成に成功すれば医療に応用出来るはずである。

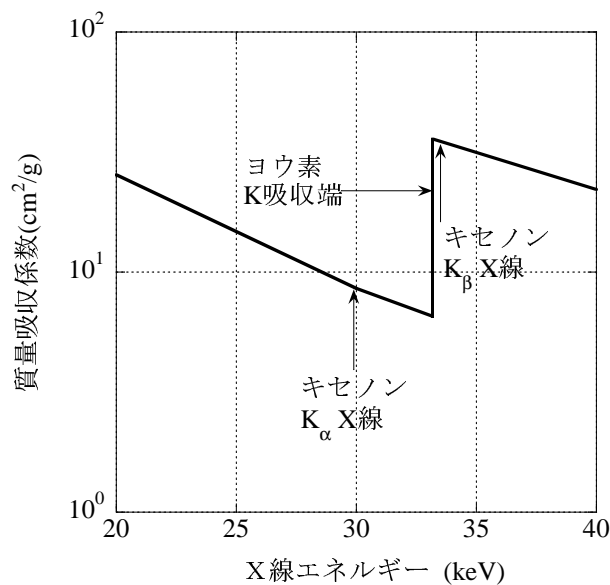


Fig. 8.5 ヨウ素の質量吸収係数.

#### 8.4 本章のまとめ

- 今後、Xe K 殻 X 線生成の研究を続ける上で、必要と思われる点について言及した。レーザー散乱法はある程度大きいサイズのクラスターを観測するのに適している。数十 nm 程度のクラスター径の計測には、レーザー散乱法より X 線回折法の方が適している。また飛行時間型計測器もクラスター径の計測に利用可能である。これらをうまく使い分ければ、ノズルで生成されたクラスター分布を正確に計測できる。
- 生成された Xe K 殻 X 線を高効率で検出出来る計測器として特に CdTe、Ge 検出器を提案した。高検出効率かつ高エネルギー分解能を備えた強力な計測器になると思われる。ただし、検出部で生成した X 線のエネルギー分、低エネルギー側にピークが形成される点を考慮してデータ解析する必要がある。
- Xe K 殻 X 線の応用に関して議論した。血管造影剤のモニタリングはこの X 線の特徴を上手くいかせる有望な応用研究であると考えている。

## 9 結論

- レーザークラスター相互作用を利用した X 線生成は近年、理論や実験により研究されるようになってきた。高い X 線生成効率が見込め、かつ使用する光学機器の損傷を引き起こすデブリが発生しない利点を有しているためである。しかし研究対象に偏りがあり、3.1 keV の Ar K 殻 X 線、3.1 keV の Xe L 殻 X 線と比較的低エネルギーの X 線に関しては数多くの研究が行われているのに、約 30 keV の Xe K 殻 X 線については全く手が付けられていない状態であった。私は未着手の Xe K 殻 X 線の生成を試み、生成条件を調べその生成メカニズムの理解について研究を行ってきた。この章では研究により得られた結果を記載する。
- レーザークラスター相互作用に必要なレーザーには日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所に整備された J-KAREN レーザーが主に利用された。 $10^{12}$  と高いコントラスト性に特徴があり、最大出力 3.2 J の超短パルス高出力レーザーである。パルス圧縮によりパルス幅が 40 fs、 $F/9$  軸外し放物面鏡で  $17.5 \times 18 \mu\text{m}^2$  まで集光出来る事を確認している。
- 真空ポンプにより真空が保たれた実験チャンバーにレーザーが導入され、ノズルで作成されたクラスターと相互作用する。シングルフォトンカウンティング法による X 線計測のために硬 X 線 CCD を手配し、この CCD の Xe K 殻 X 線に対する応答特性もモンテカルロ計算により前もって評価した。
- ピークレーザー強度  $10^{19} \text{ W/cm}^2$  で Three stage ノズルで作成されるクラスターと相互作用させたところ明瞭に Xe K 殻 X 線の生成を確認することが出来た。またレーザーのパルス幅を 40 fs から 300 fs に広げたところ、Xe K 殻 X 線の強度は半減した。
- Ar K 殻 X 線の場合、0.1 J の小型レーザーを最小集光径まで絞った状態より、ビーム径を少しデフォーカスにした方が生成強度は高くなった。また背圧を 6 MPa から 2 MPa に下げると Ar K 殻 X 線強度は約三桁小さくなった。
- レーザーをデフォーカスさせ、ピークレーザー強度  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  で Kr クラスターとレーザーと相互作用させると Kr K 殻 X 線が確認できた。また結晶分光器で Ne 様イオン ( $\text{Kr}^{+26}$ ) という非常に高い価数の Kr イオンが計測できた。
- Three stage ノズルでつくられるクラスター径は、流体力学と古典的核生成理論で計算された結果を引用していた。しかし生成された X 線強度とクラスター径の相関がほとんどないことが判り、クラスター径の計算方法について検討を行った。幾つかの文献では古典的核生成理論に問題があることが指摘されている事が確認された。
- Three stage ノズルで生成された Xe クラスターに YAG レーザー (2 倍波、532 nm) を照射し散乱強度を計測した。背圧  $2 \times 10^4 \text{ mbar}$  では Rayleigh 散乱、 $4 \times 10^4 \text{ mbar}$  では Mie 散乱が支配的で、古典的核生成理論の計算結果と一致しない事が明らかになった (計算値は  $2 \times 10^4 \text{ mbar}$  で  $0.37 \mu\text{m}$ 、 $4 \times 10^4 \text{ mbar}$  で  $0.09 \mu\text{m}$ )。

- コニカルノズルで半径 8 - 17 nm 以下の Xe クラスターを生成させて、ピークレーザー強度及びクラスター半径依存性を調べた。 $9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  の時、半径 8 nm ではほとんど Xe K 殻 X 線は確認できなかったが、12 - 13 nm, 15 - 17 nm では高強度の Xe K 殻 X 線が確認された。 $5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  ではクラスター半径 12, 13 nm のどちらでも高強度の Xe K 殻 X 線が生成していた。しかし  $2 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  まで下がると Xe K 殻 X 線が見えなくなり、Xe K 殻 X 線のピークレーザー強度依存性が確認できた。
- X 線強度のクラスターサイズ依存性、集光位置依存性の結果は CTMC モデルで理解することが出来る。電離過程に関しては少し過少評価する傾向が見受けられたが、これはモデルがシンプルなためだと思われる。古典吸収などその他の加熱メカニズムもモデルに含めれば実験結果に近づくのではないかと期待される。他方、マイクロプラズマモデルでは実験結果をあまりうまく説明できなかった。特にレーザーのパルス幅が短い場合、加熱時間も短くなり過少評価する傾向がある。
- 血管造影剤にはヨウ素が含まれているが、このヨウ素の K 吸収端のエネルギー (33.2 keV) は Xe  $K_{\alpha}$  X 線 (29.8 keV) と Xe  $K_{\beta}$  X 線 (33.6 keV) のエネルギーの間に位置している。それ故、近い将来 Xe K 殻 X 線は血管造影用のイメージングに利用されると期待している。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、東京電機大学工学部赴任でお忙しいにも関わらず、多大なる御指導そして御協力を頂きました西川 正 教授、貴重なお時間を割いていただいた後藤 秀樹 准教授に心より感謝いたします。また様々な指摘、助言をして下さいました山田 啓作 教授、舛本 泰章 教授、都倉 康弘 教授、白石 賢二 専攻長に感謝いたします。また事務手続き等で支援をしていただいた筑波大学 ナノサイエンス・ナノテクノロジー専攻事務室の木川田 代美氏にも感謝します。更に職場で多くの助言をしていただいた日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 森 道昭 副主任 研究員、高強度レーザーに関して多くの助言や資料を提供していただいた原子力機構 桐山 博光 副主任研究員、岡田 大 研究員、研究を支援して頂いた原子力機構 関西研 神門 正城 グループ リーダー、Alexander Pirozhkov 副主任研究員、小瀧 秀行 副主任研究員、Anatoly Faenov 研究員、Tatiana Pikuz 研究員にも感謝いたします。最後に J-KAREN レーザーの運転でお世話になった下村 拓也氏、中井 善基氏、田上 学氏、岡本 征洋氏、金沢 修平氏、近藤 修司氏 にも感謝します。

## 参考文献

### (主要文献)

- 1) Y. Hayashi, Y. Fukuda, A. Y. Faenov, M. Kando, K. Kawase, T. A. Pikuz, T. Homma, H. Daido, and S. V. Bulanov. Intense and reproducible  $K_{\alpha}$  emissions from micron-sized Kr cluster target irradiated with intense femtosecond laser pulses. *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 49, p. 126401, 2010.
- 2) Y. Hayashi, A. S. Pirozhkov, M. Kando, Y. Fukuda, A. Faenov, K. Kawase, T. Pikuz, T. Nakamura, H. Kiriyaama, H. Okada, and S. V. Bulanov. Efficient generation of Xe K-shell x rays by high-contrast interaction with submicrometer clusters. *Opt. Lett.*, Vol. 36, No. 9, p. 1614, 2011.
- 3) Y. Hayashi, A. S. Pirozhkov, M. Kando, K. Ogura, H. Kotaki, H. Kiriyaama, H. Okada, H. Gotoh, and T. Nishikawa. Xe K-shell X-ray generation using conical nozzle and 25 TW laser. Accepted by *Laser Part. Beams*.

### (その他の参考文献)

- 4) A. Cavalleri, Cs. Tóth, C. W. Siders, J. A. Squier, F. Ráksi, P. Forget, and J. C. Kieffer. Femtosecond structural dynamics in  $\text{VO}_2$  during an ultrafast solid-solid phase transition. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 87, No. 23, p. 237401, 2001.
- 5) C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P.-A. Albouy, J.-P. Geindre, P. Audebert, J.-C. Gauthier, E. Forster, J.-L. Martin, and A. Antonetti. Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature*, Vol. 390, No. 4, p. 490, 1997.
- 6) H. Nakano, Y. Goto, P. Lu, T. Nishikawa, and N. Uesugi. Time-resolved soft x-ray absorption spectroscopy of silicon using femtosecond laser plasma x rays. *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 75, No. 16, p. 2350, 1999.
- 7) L. M. Chen, M. Kando, J. Ma, H. Kotaki, Y. Fukuda, Y. Hayashi, I. Daito, T. Homma, K. Ogura, M. Mori, A. S. Pirozhkov, J. Koga, H. Daido, S. V. Bulanov, T. Kimura, T. Tajima, and Y. Kato. Phase-contrast x-ray imaging with intense Ar  $K_{\alpha}$  radiation from femtosecond-laser-driven gas target. *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 90, No. 21, p. 211501, 2007.
- 8) H. S. Park, D. M. Chambers, H. K. Chung, R. J. Clarke, R. Egleton, E. Giraldez, T. Goldsack, R. Heathcote, N. Izumi, M. H. Key, J. A. King, J. A. Koch, O. L. Landen, A. Nikroo, P. K. Patel, D. F. Price, B. A. Remington, H. F. Robey, R. A. Snavely, D. A. Steinman, R. B. Stephens, C. Stoeckl, M. Storm, M. Tabak, W. Theobald, R. P. J. Town, J. E. Wickersham,



- and B. B. Zhang. High-energy  $K_\alpha$  radiography using high-intensity, short-pulse lasers. *Phys. Plasmas*, Vol. 13, No. 5, p. 056309, 2006.
- 9) K. Boyer, B. D. Thompson, A. McPherson, and C. K. Rhodes. Evidence for coherent electron motions in multiphoton X-ray production from Kr and Xe clusters. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 27, No. 18, p. 4373, 1994.
  - 10) A. McPherson, T. S. Luk, B. D. Thompson, K. Boyer, and C. K. Rhodes. Multiphoton-induced X-ray emission and amplification from clusters. *Appl. Phys. B*, Vol. 57, No. 5, p. 337, 1993.
  - 11) L. Zhang, L. M. Chen, D. W. Yuan, W. C. Yan, Z. H. Wang, C. Liu, Z. W. Shen, A. Faenov, T. Pikuz, I. Skobelev, V. Gasilov, A. Boldarev, J. Y. Mao, Y. T. Li, Q. L. Dong, X. Lu, J. L. Ma, W. M. Wang, Z. M. Sheng, and J. Zhang. Enhanced  $K_\alpha$  output of Ar and Kr using size optimized cluster target irradiated by high-contrast laser pulses. *Opt. Exp.*, Vol. 19, No. 7008, p. 25812, 2011.
  - 12) K. Kondo, A. B. Borisov, C. Jordan, A. McPherson, W. A. Schroeder, K. Boyer, and C. K. Rhodes. Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 30, No. 11, p. 2707, 1997.
  - 13) R. C. Issac, G. Vieux, B. Ersfeld, E. Brunetti, S. P. Jamison, J. Gallacher, D. Clark, and D. A. Jaroszynski. Ultra hard x rays from krypton clusters heated by intense laser fields. *Phys. Plasmas*, Vol. 11, No. 7, p. 3491, 2004.
  - 14) R. L. Fork, B. I. Green, and C. V. Shank. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 38, No. 9, p. 671, 1981.
  - 15) D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Commun.*, Vol. 56, p. 219, 1985.
  - 16) T. Tajima and J. M. Dawson. Laser Electron Accelerator. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 43, No. 4, p. 267, 1979.
  - 17) M. Kando, H. Ahn, H. Dewa, H. Kotaki, T. Ueda, M. Uesaka, T. Watanabe, H. Nakanishi, A. Ogata, and K. Nakajima. Experimental results of laser wakefield acceleration using a femtosecond terawatt laser pulse. *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 38, p. L967, 1999.
  - 18) S. P. D. Mangles, C. D. Murphy, Z. Najmudin, A. G. R. Thomas, J. L. Collier, A. E. Dangor, E. J. Divall, P. S. Foster, J. G. Gallacher, C. J. Hooker, D. A. Jaroszynski, A. J. Langley, W. B. Mori, P. A. Norreys, F. S. Tsung, R. Viskup, B. R. Walton, and K. Krushelnick. Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions. *Nature*, Vol. 431, No. 7008, p. 535, 2004.

- 19) C. G. R. Geddes, Cs. Toth, J. van Tilborg, E. Esarey, C. B. Schroeder, D. Bruhwiler, C. Nieter, J. Cary, and W. P. Leemans. High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding. *Nature*, Vol. 431, No. 7008, p. 538, 2004.
- 20) J. Faure, Y. Glinec, A. Pukhov, S. Kiselev, S. Gordienko, E. Lefebvre, J.-P. Rousseau, F. Burgy, and V. Malka. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, Vol. 431, No. 7008, p. 541, 2004.
- 21) 植田憲一. アジアの先端レーザー研究施設. レーザー研究, Vol. 38, No. 9, p. 661, 2010.
- 22) 内田岱二郎訳. プラズマ物理入門. 丸善, 東京, 昭和 52 年.
- 23) M. Aoyama, K. Yamakawa, Y. Akahane, J. Ma, N. Inoue, H. Ueda, and H. Kiriyama. 0.85-PW, 33-fs Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, Vol. 28, No. 17, p. 1594, 2003.
- 24) H. Kiriyama, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, M. Tanoue, A. Akutu, S. Kondo, S. Kanazawa, H. Okada, T. Motomura, H. Daido, T. Kimura, and T. Tajima. High-contrast, high-intensity laser pulse generation using a nonlinear preamplifier in a Ti:sapphire laser system. *Opt. Lett.*, Vol. 33, No. 7, p. 645, 2008.
- 25) H. Kiriyama, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasao, M. Tanoue, S. Kanazawa, D. Wakai, F. Sasao, H. Okada, I. Daito, M. Suzuki, S. Kondo, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, A. Yokoyama, H. Daido, S. Kawanishi, T. Kimura, and T. Tajima. High temporal and spatial quality petawatt-class Ti:sapphire chirped-pulse amplification laser system. *Opt. Lett.*, Vol. 35, No. 10, p. 1497, 2010.
- 26) H. Kiriyama, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasao, M. Tanaka, Y. Ochi, M. Tanoue, H. Okada, S. Kondo, S. Kanazawa, A. Sagisaka, I. Daito, D. Wakai, F. Sasao, M. Suzuki, H. Kotaki, K. Kondo, A. Sugiyama, S. V. Bulanov, P. R. Bolton, H. Daido, S. Kawanishi, J. L. Collier, C. H. Gomez, C. J. Hooker, K. Ertel, T. Kimura, and T. Tajima. High-spatiotemporal-quality petawatt-class laser system. *Appl. Opt.*, Vol. 49, No. 11, p. 2105, 2010.
- 27) M. Kando, A. S. Pirozhkov, K. Kawase, T. Zh. Esirkepov, Y. Fukuda, H. Kiriyama, H. Okada, I. Daito, T. Kameshima, Y. Hayashi, H. Kotaki, M. Mori, J. K. Koga, H. Daido, A. Ya. Faenov, T. Pikuz, J. Ma, L.-M. Chen, E. N. Ragozin, T. Kawachi, Y. Kato, T. Tajima, and S. V. Bulanov. Enhancement of photon number reflected by the relativistic flying mirror. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 103, No. 23, p. 235003, 2009.
- 28) H. Kotaki, I. Daito, M. Kando, Y. Hayashi, K. Kawase, T. Kameshima, Y. Fukuda, T. Homma, J. Ma, L.-M. Chen, T. Zh. Esirkepov, A. S. Pirozhkov, J. K. Koga, A. Faenov, T. Pikuz, H. Kiriyama, H. Okada, T. Shimomura, Y. Nakai, M. Tanoue, H. Sasao, D. Wakai, H. Matsuura, S. Kondo, S. Kanazawa, A. Sugiyama, H. Daido, and S. V. Bulanov. Electron

- optical injection with head-on and countercrossing colliding laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 103, No. 19, p. 194803, 2009.
- 29) A. S. Pirozhkov, M. Kando, T. Zh. Esirkepov, P. Gallegos, H. Ahmed, E. N. Ragozin, A. Ya. Faenov, T. A. Pikuz, T. Kawachi, A. Sagisaka, J. K. Koga, M. Coury, J. Green, P. Foster, C. Brenner, B. Dromey, D. R. Symes, M. Mori, K. Kawase, T. Kameshima, Y. Fukuda, L. Chen, I. Daito, K. Ogura, Y. Hayashi, H. Kotaki, H. Kiriyaama, H. Okada, N. Nishimori, T. Imazono, K. Kondo, T. Kimura, T. Tajima, H. Daido, P. Rajeev, P. McKenna, M. Borghesi, D. Neely, Y. Kato, and S. V. Bulanov. Soft-X-ray harmonic comb from relativistic electron spikes. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 108, No. 13, p. 135004, 2012.
- 30) K. Ogura, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov, T. Tanimoto, A. Sagisaka, T. Z. Esirkepov, M. Kando, T. Shizuma, T. Hayakawa, H. Kiriyaama, T. Shimomura, S. Kondo, S. Kanazawa, Y. Nakai, H. Sasao, F. Sasao, Y. Fukuda, H. Sakaki, M. Kanasaki, A. Yogo, S. V. Bulanov, P. Bolton, and K. Kondo. Proton acceleration to 40 MeV using a high intensity, high contrast optical parametric chirped-pulse amplification/Ti:sapphire hybrid laser system. *Opt. Lett.*, Vol. 37, No. 14, p. 2868, 2012.
- 31) Y. Fukuda, A. Ya. Faenov, M. Tampo, T. A. Pikuz, T. Nakamura, M. Kando, Y. Hayashi, A. Yogo, H. Sakaki, T. Kameshima, A. S. Pirozhkov, K. Ogura, M. Mori, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, A. S. Boldarev, V. A. Gasilov, A. I. Magunov, T. Yamauchi, R. Kodama, P. R. Bolton, Y. Kato, T. Tajima, H. Daido, and S. V. Bulanov. Energy increase in multi-MeV ion acceleration in the interaction of a short pulse laser with a cluster-gas target. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 103, No. 16, p. 165002, 2009.
- 32) M. Mori, A. Pirozhkov, M. Nishiuchi, K. Ogura, A. Sagisaka, Y. Hayashi, S. Orimo, A. Fukumi, Z. Li, M. Kado, and H. Daido. Development of beam-pointing stabilizer on a 10-TW Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser system JLITE-X for laser-excited ion accelerator research. *Laser Phys.*, Vol. 16, No. 7, p. 1092, 2006.
- 33) H. Kiriyaama, T. Shimomura, H. Sasao, Y. Nakai, M. Tanoue, S. Kondo, S. Kanazawa, A. S. Pirozhkov, M. Mori, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, M. Kando, S. V. Bulanov, K. Nagashima, M. Yamagiwa, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, T. Tajima, and N. Miyanaga. Temporal contrast enhancement of petawatt-class laser pulses. *Opt. Lett.*, Vol. 37, No. 16, p. 3363, 2012.
- 34) T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik, R. W. Falcone, and M. D. Perry. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters. *Phys. Rev. A*, Vol. 53, No. 5, p. 3379, 1996.
- 35) F. Dorchies, F. Blasco, C. Bonte, T. Caillaud, C. Fourment, and O. Peyrusse. Observation of subpicosecond X-ray emission from laser-cluster interaction. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 100, No. 20, p. 205002, 2008.

- 36) N. L. Kugland, P. Neumayer, T. Doppner, H.-K. Chung, C. G. Constantin, F. Girard, S. H. Glenzer, A. Kemp, and C. Niemann. High contrast Kr gas jet  $K_{\alpha}$  x-ray source for high energy density physics experiments. *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 79, No. 10, p. 10E917, 2008.
- 37) 木村逸郎, 阪井 英次訳. G.F.Knoll 放射線計測ハンドブック 第3版. 日刊工業新聞社, 東京, 2001.
- 38) 菊田惺志. X線回折・散乱技術 上. 東京大学出版会, 東京, 1992.
- 39) W. R. Nelson, H. Hirayama, and D. W. O. Rogers. The EGS4 code system. *Stanford Linear Accelerator Center Report SLAC-265*, 1985.
- 40) 松村源次郎訳. 新版 カリティ X線回折要論. アグネ社, 東京, 1980.
- 41) F. Blasco, C. Stenz, F. Salin, A. Ya. Faenov, A. I. Magunov, T. A. Pikuz, and I. Yu. Skobelev. Portable, tunable, high-luminosity spherical crystal spectrometer with an x-ray charge coupled device, for high-resolution x-ray spectromicroscopy of clusters heated by femtosecond laser pulses. *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 72, No. 4, p. 1956, 2001.
- 42) S. B. Hansen, K. B. Fournier, A. Ya. Faenov, A. I. Magunov, T. A. Pikuz, I. Yu. Skobelev, Y. Fukuda, Y. Akahane, M. Aoyama, N. Inoue, H. Ueda, and K. Yamakawa. Measurement of  $2l-nl'$  x-ray transitions from  $\sim 1\mu\text{m}$  Kr clusters irradiated by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. E*, Vol. 71, No. 1, p. 016408, 2005.
- 43) Y. Fukuda, A. Ya. Faenov, M. Tambo, T. A. Pikuz, T. Nakamura, M. Kando, Y. Hayashi, A. Yogo, H. Sakaki, T. Kameshima, A. S. Pirozhkov, K. Ogura, M. Mori, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, A. S. Boldarev, V. A. Gasilov, A. I. Magunov, T. Yamauchi, R. Kodama, P. R. Bolton, Y. Kato, T. Tajima, H. Daido, and S. V. Bulanov. Energy increase in multi-MeV ion acceleration in the interaction of a short pulse laser with a cluster-gas target. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 103, No. 16, p. 165002, 2009.
- 44) Y. Fukuda, H. Sakai, M. Kanasaki, A. Yogo, S. Jinno, M. Tambo, A. Ya. Faenov, T. A. Pikuz, Y. Hayashi, M. Kando, A. S. Pirozhkov, T. Shimomura, H. Kiriya, S. Kurashima, T. Kamiya, K. Oda, T. Yamauchi, K. Kondo, and S. V. Bulanov. Identification of high energy ions using backscattered particles in laser-driven ion acceleration with cluster-gas targets. Accepted by *Radiat. Meas.*
- 45) G. H. McCall. Calculation of X-ray bremsstrahlung and characteristic line emission produced by a Maxwellian electron distribution. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 15, p. 823, 1982.
- 46) Y. Fukuda, Y. Akahane, M. Aoyama, Y. Hayashi, T. Homma, N. Inoue, M. Kando, S. Kanazawa, H. Kiriya, S. Kondo, H. Kotaki, S. Masuda, M. Mori, A. Yamazaki, K. Yamakawa, E. Yu. Echkina, I. N. Inovenkov, J. Koga, and S. V. Bulanov. Ultrarelativistic

- electron generation during the intense, ultrashort laser pulse interaction with clusters. *Phys. Lett. A*, Vol. 363, No. 1-2, p. 130, 2007.
- 47) 例えば <http://spectr-w3.snz.ru/index.phtml>.
- 48) A. S. Boldarev, V. A. Gasilov, A. Ya. Faenov, Y. Fukuda, and K. Yamakawa. Gas-cluster targets for femtosecond laser interaction: Modeling and optimization. *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 77, No. 8, p. 083112, 2006.
- 49) 上羽牧夫編. 結晶成長のしくみを探る その物理的基礎 結晶成長のダイナミクス 2巻. 共立出版, 東京, 1994.
- 50) Y. Fukuda, Y. Akahane, M. Aoyama, N. Inoue, H. Ueda, Y. Kishimoto, K. Yamakawa, A. Y. Faenov, A. I. Magunov, T. A. Pikuz, I. Y. Skobelev, J. Abdallah, G. Csanak, A. S. Boldarev, and V. A. Gasilov. Generation of X rays and energetic ions from superintense laser irradiation of micron-sized Ar clusters. *Las. Part. Beams*, Vol. 22, No. 03, p. 215, 2004.
- 51) O. F. Hagena. Condensation in free jets: Comparison of rare gases and metals. *Z. Phys. D - Atoms, Molecules and Clusters*, Vol. 4, No. 3, p. 291, 1987.
- 52) K. K. Tanaka, H. Tanaka, T. Yamamoto, and K. Kawamura. Molecular dynamics simulations of nucleation from vapor to solid composed of Lennard-Jones molecules. *J. Chem. Phys.*, Vol. 134, No. 20, p. 204313, 2011.
- 53) レーザー学会編. レーザーハンドブック 第2版. オーム社, 東京, 2005.
- 54) S. Schutte and U. Buck. Strong fragmentation of large rare gas clusters by high energy electron impact. *Int. J. Mass Spectrom.*, Vol. 220, No. 2, p. 183, 2002.
- 55) 砂川重信. 理論電磁気学 第3版. 紀伊国屋出版, 東京, 1999.
- 56) 松尾一泰. 圧縮性流体力学—内部流れの理論と解析. 理工学社, 東京, 1994.
- 57) S. Semushin and V. Malka. High density gas jet nozzle design for laser target production. *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 72, No. 7, p. 2961, 2001.
- 58) O. F. Hagena. Cluster ion sources (invited). *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 63, No. 4, p. 2374, 1992.
- 59) V. P. Krainov and M. B. Smirnov. Cluster beams in the super-intense femtosecond laser pulse. *Physics Reports*, Vol. 370, No. 3, p. 237, 2002.
- 60) O. G. Danylchenko, S. I. Kovalenko, and V. N. Samovarov. Experimental verification of the Hagena relation for large clusters formed in a conical nozzle. *Tech. Phys. Lett.*, Vol. 34, No. 12, p. 1037, 2008.

- 61) M. Milosavljevic and E. Naker. Weibel filament decay and thermalization in collisionless shocks and gamma-ray burst afterglows. *Astrophys. J.*, Vol. 641, p. 978, 2006.
- 62) V. P. Krainov and M. B. Smirnov. Charge composition of a cluster plasma upon irradiation of large atomic clusters by the field of a superatomic femtosecond laser pulse. *J. Exp. Theor. Phys.*, Vol. 94, No. 4, p. 745, 2002.
- 63) C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson, and P. J. Barty. Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters. *Phys. Rev. A*, Vol. 55, No. 2, p. 1182, 1997.
- 64) I. Last and J. Jotner. Dynamics of the Coulomb explosion of large clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, Vol. 62, No. 1, p. 013201, 2000.
- 65) C. Deiss. *Simulation of the dynamics of laser-cluster interaction*. PhD thesis, Vienna University of Technology, 2009.
- 66) M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions by an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, Vol. 64, p. 1191, 1986.
- 67) L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, Vol. 20, p. 1307, 1965.
- 68) W. Lotz. Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Z. Phys.*, Vol. 216, No. 3, p. 241, 1968.
- 69) R. C. Elton. in *Methods of Experimental Physics, Plasma Physics 1*, Chapt. 4, edited by H. R. Griem and R. H. Lovberg Academic, New York, 1970.
- 70) M. Itou, T. Yabe, and S. Kiyokawa. Collisional-radiative and average-ion hybrid models for atomic processes in high-Z plasmas. *Phys. Rev. A*, Vol. 35, No. 1, p. 233, 1987.
- 71) Y. B. Zeldvoich and Y. P. Raizer. *Physics of Shock waves and High Temperature Hydrodynamic Phenomena*. Academic press, New York, 1966.
- 72) J. S. Zweiback. *Resonance Effects in Laser Cluster Interactions*. PhD thesis, Univ. California, 1999.
- 73) L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Electrodynamics of Continuous Media*. Pergamon, Oxford, 1984.
- 74) J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, New York, 1975.
- 75) V.P. Silin. Nonlinear high-frequency plasma conductivity. *Sov. Phys. JETP*, Vol. 20, p. 1510, 1965.
- 76) L. Spitzer. *Physics of Fully Ionized Gases*. John Wiley and Sons Inc, New York, 1967.

- 77) C. Prigent, C. Deiss, E. Lamour, J. P. Rozet, D. Vernhet, and J. Burgdorfer. Effect of pulse duration on the x-ray emission from Ar clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, Vol. 78, No. 5, p. 053201, 2008.
- 78) F. Salvat and R. Mayol. Elastic scattering of electrons and positrons by atoms. Schrodinger and Dirac partial wave analysis. *Comp. Phys. Commun.*, Vol. 74, p. 358, 1993.
- 79) K. Nanbu. Theory of cumulative small-angle collisions in plasmas. *Phys. Rev. E*, Vol. 55, No. 4, p. 4642, 1997.
- 80) V. Kumarappan, M. Krishnamurthy, D. Mathur, and L. C. Tribedi. Effect of laser polarization on x-ray emission from  $\text{Ar}_n$  ( $n = 200 - 10^4$ ) clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, Vol. 63, No. 2, p. 023203, 2001.
- 81) L. M. Chen, F. Liu, W. M. Wang, M. Kando, J. Y. Mao, L. Zhang, J. L. Ma, Y. T. Li, S. V. Bulanov, T. Tajima, Y. Kato, Z. M. Sheng, Z. Y. Wei, and J. Zhang. Intense high-contrast femtosecond K-shell x-ray source from laser-driven Ar clusters. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 104, No. 21, p. 215004, 2010.
- 82) S. Micheau, H. Jouin, and B. Pons. Modified nanoplasma model for laser-cluster interaction. *Phys. Rev. A*, Vol. 77, p. 053201, 2008.
- 83) 例えば [http://henke.lbl.gov/optical constants/](http://henke.lbl.gov/optical_constants/).
- 84) 宇野良清, 津屋昇, 森田章, 山下次郎訳. Charles Kittel 固体物理学入門. 丸善, 東京, 昭和 63 年.
- 85) O. Echt, K. Sattler, and E. Recknagel. Magic numbers for sphere packings: Experimental verification in free xenon clusters. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 47, No. 16, p. 1121, 1981.
- 86) 近藤保, 市橋正彦. クラスタ入門. 裳華房, 東京, 2010.
- 87) J. Jortner. Cluster size effects. *Z. Phys. D*, Vol. 24, No. 3, p. 247, 1992.
- 88) W. L. Kruer. *The physics of Laser Plasma Interactions*. Westview Press, 2003.
- 89) F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 59, No. 1, p. 52, 1987.
- 90) 杉原亮, 西田靖, 小方厚編. 超小型加速器. アイピーシー, 東京, 平成 10 年.

# Appendix



## A 希ガスクラスターの性質

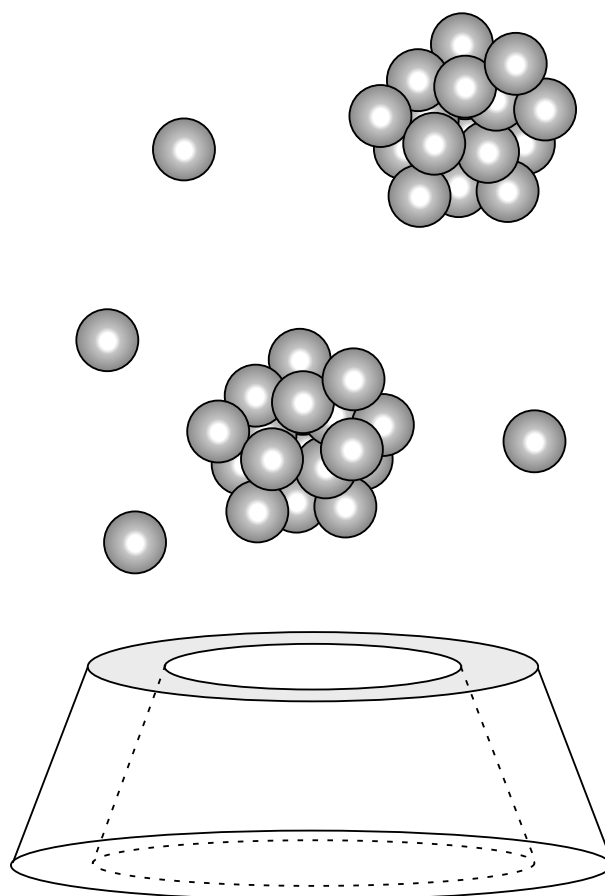


Fig. A.1 クラスターイメージ.

He ガスを除くと希ガスは、冷却を行う事によりクラスター化させる事が出来る。希ガス原子の電子の静電ポテンシャルは、殻の電荷の静電ポテンシャルによって打ち消されるためイオン結晶のような強い力は希ガス原子間には働かない。しかし原子が互いに双極子モーメントを誘発することで、原子間に電氣的な力が働き、凝集状態（クラスター状態）が生成可能になる。この時、原子間に作用する結合はファンデルワールス結合（Van der Waals binding）と呼ばれる。一般に結晶状態を作るために働く力にはイオン結合、金属結合、共有結合があるが、ファンデルワールス結合が最も弱い結合である。

希ガスの結晶は透明で絶縁体の性質を有し、大型のクラスターでは面心立方構造をとる。面心立方構造とは立方格子の各頂点および各面の中心に原子が位置する構造で、最も高い原子の充填率（約74%）を誇る。原子番号が大きいほど原子半径が大きくなるので、最近接原子間距離も必然的に大きくなる。また原子番号が高いほど融点が高くなる傾向を有しているため、一般的にクラスターの生成しやすい順に並べると Xe, Kr, Ar, Ne になる。これらの性質を下表にまとめておく。

さてファンデルワールス結合の場合、距離  $R$  離れた2原子間に働くポテンシャルエネルギーはレナード・ジョーンズ・ポテンシャル (Lennard-Jones potential)  $U(R)$  によって説明する事が出来る<sup>84)</sup>。

Table A.1 希ガスの特性.

	最近接 原子間距離 (Å)	融点 (K)	イオン化 ポテンシャル (eV)	$\epsilon$ (erg)	$\sigma$ (Å)
Ne	3.13	24	21.56	$50 \times 10^{-16}$	2.74
Ar	3.76	84	15.76	$167 \times 10^{-16}$	3.40
Kr	4.01	117	14.00	$225 \times 10^{-16}$	3.65
Xe	4.35	161	12.13	$320 \times 10^{-16}$	3.98

$$U(R) = 4\epsilon \times \left[ \left( \frac{\sigma}{R} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{R} \right)^6 \right] \quad (\text{A.1})$$

ここで  $\epsilon, \sigma$  は定数で単位はそれぞれ erg, Å。

クラスターが  $N$  個の原子で構成されているとすれば、総ポテンシャルエネルギー  $U_{total}$  は

$$U_{total} = 2N\epsilon \times \left[ \sum_{i \neq j} \left( \frac{\sigma}{r_{i,j}R} \right)^{12} - \sum_{i \neq j} \left( \frac{\sigma}{r_{i,j}R} \right)^6 \right] \quad (\text{A.2})$$

ここで  $R, r_{i,j}R$  はそれぞれ最近接原子間距離、原子  $i$ , と原子  $j$  間の距離を表す。クラスター状態ではこの総ポテンシャルが最小になると考えられる。このときの最近接原子間距離を  $R_0$  と置くと

$$\frac{dU_{total}}{dR} = -2N\epsilon \times \left[ \frac{12}{R_0^{13}} \cdot \sum_{i \neq j} \left( \frac{\sigma}{r_{i,j}} \right)^{12} - \frac{6}{R_0^7} \cdot \sum_{i \neq j} \left( \frac{\sigma}{r_{i,j}} \right)^6 \right] = 0 \quad (\text{A.3})$$

面心立方構造の原子配置では、以下の2式はそれぞれ一定値に収束する事が判っている。

$$\sum_{i \neq j} \left( \frac{1}{r_{i,j}} \right)^{12} = 12.13188 \quad (\text{A.4})$$

$$\sum_{i \neq j} \left( \frac{1}{r_{i,j}} \right)^6 = 14.45392 \quad (\text{A.5})$$

この2式を式 (A.3) に代入すると以下の結果を得る。

$$\frac{R_0}{\sigma} = \left( \frac{12.13188 \times 12}{14.45392 \times 6} \right)^{1/6} = 1.09 \quad (\text{A.6})$$

このようにレナード・ジョーンズ・ポテンシャルを仮定した結晶モデルでは最近接原子間距離と  $\sigma$  の比は 1.09 になる。Table A の結果は測定によって得られたものであるが  $R_0/\sigma$  はどの希ガスの場合もほとんど 1.10 であり、レナード・ジョーンズ・ポテンシャルのモデルで説明が出来る事が判る。

ただし、面心立方構造をとるのはクラスターが十分大きい場合であり (クラスターサイズ  $10^3$  個以上)、クラスターが小さい場合は、異なる原子配置をとる。Echt はキセノンクラスターを生成させ、その質量スペクトルを計測している<sup>85)</sup>。その結果、ある特定のクラスターサイズ (クラスター構成原子の数) が選択的に生成しやすくなることを発見した。選択的に生成しやすくなるクラスターサイズの事は魔法数と呼ばれている。クラスター構成原子間に働く力や電子配置に魔法数は依存するが、

希ガスクラスタの場合原子数  $N=13, 55, 147, \dots$  である。一般に表面にある希ガス原子は、真空と接しているため結合が内部原子に較べて不十分であり、エネルギー的に不安定である。魔法数の発現は出来るだけ表面原子を少なくエネルギー的に安定な正二十面体構造をとりたがるためである。正二十面体構造を取るのに必要な原子数を計算すると、希ガスクラスタの魔法数  $N_{magic}$  を次式で表現する事が出来る<sup>86)</sup>。

$$N_{magic} = \frac{1}{3}(10K^3 - 15K^2 + 11K - 3) \quad (K = 2, 3, \dots) \quad (\text{A.7})$$

更にクラスタサイズによって融点やイオン化ポテンシャルが異なる事が知られており、非常に面白い性質を有している。原子数  $N$  で構成される希ガスクラスタの場合、イオン化ポテンシャル  $I_p(N)$  はバルクのイオン化ポテンシャル  $I_p(\infty)$  と Table A の定数  $A$  を用いて以下の関係式が成立する。<sup>87)</sup>

$$I_p(N) = I_p(\infty) + A \cdot N^{-1/3} \quad (\text{A.8})$$

Table A.2 イオン化ポテンシャルのクラスタサイズ依存性.

	Ar	Kr	Xe
A (eV)	1.20	1.10	1.41

## B 光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)

光パラメトリック増幅とは、高いコントラスト比を実現しながらレーザー増幅する手法の一つである。非線形結晶に波長  $\lambda_{pump}$ , 波数ベクトル  $\mathbf{k}_{pump}$  のポンプレーザー光を正常光 (シグナル光)  $\lambda_{signal}, \mathbf{k}_{signal}$  と異常光 (アイドラー光)  $\lambda_{idler}, \mathbf{k}_{idler}$  に分かれる。

$$\frac{1}{\lambda_{pump}} = \frac{1}{\lambda_{signal}} + \frac{1}{\lambda_{idler}} \quad (\text{B.1})$$

次の位相整合条件により、入射光と非線形結晶のなす角度で常光と異常光の波長を調整する事が出来る。

$$\mathbf{k}_{pump} = \mathbf{k}_{signal} + \mathbf{k}_{idler} \quad (\text{B.2})$$

これを光パラメトリック効果という。そこで非線形光学結晶に強いポンプ光とともに弱いシグナル光を入射すると、アイドラー光の他にポンプ光からエネルギーをもらって増幅したシグナル光が発生する。OPCPA ではポンプ光のエネルギーをシグナル光に変換する原理のため、ポンプ光が存在する時間しかレーザー増幅が行われない。そこで短パルスのポンプ光を用いれば、(不要な光の混入がほとんど起こらず)、コントラスト性の高いレーザー光を得る事が出来る。

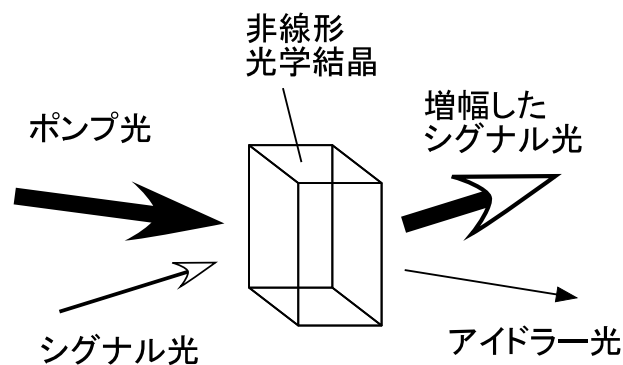


Fig. B.1 光パラメトリック増幅法.

J-KAREN レーザーでは OPCPA 結晶には非線形光学定数の高い BBO( $\beta$ バリウムポレイト) 結晶を 2 個用いている。結晶サイズは  $7 \times 7 \times 19.5 \text{ mm}^3$  で不要な光の発生を防止するため、結晶表面に AR コーティングを施している。ポンプレーザーには Q スイッチ Nd:YAG レーザー (Spectra-Physics 製 Quanta-Ray Pro-230-10) の二倍波 (532 nm) を用い 9.7 ns 最大 208 mJ で結晶を励起させている。その結果 5 mJ まで増幅したプリパルス成分の低いレーザー光が得られる。また OPCPA で得られる波長域が広い事 ( $\geq 100 \text{ nm}$ ) もこの OPCPA の特徴である。

## C レーザーパルス幅と波長の関係

パルス幅  $\tau$ 、中心周波数  $\omega_L$  のレーザーの電場  $E(t)$  の時間分布は以下のガウス分布に従うものとする。

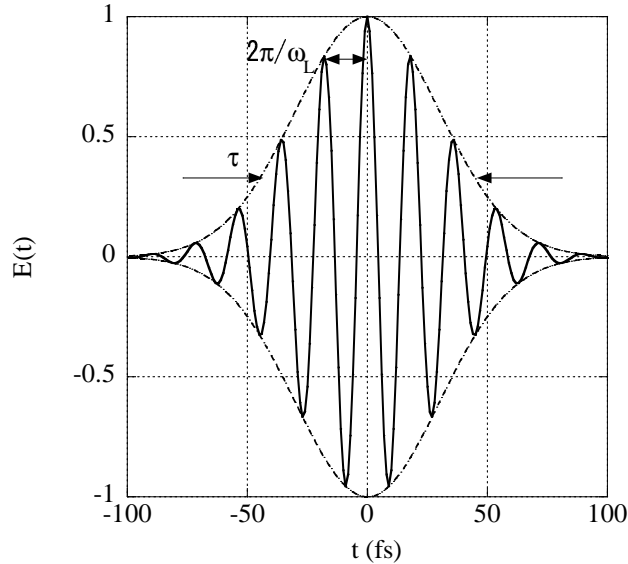


Fig. C.1 レーザー電場の時間プロファイル。

$$E(t) = \frac{E_0}{\pi} \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \cdot \exp(-i\omega_L t) \quad (\text{C.1})$$

この式をフーリエ変換すると周波数分布  $E(\omega)$  の式を得る。

$$E(\omega) = \frac{1}{(2\pi)^{1/2}} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \cdot \exp(i\omega t) dt = E_0 \cdot \exp\left(-\frac{\tau^2(\omega - \omega_0)^2}{2}\right) \quad (\text{C.2})$$

それぞれの強度は  $I(t) = E(t) \cdot E^*(t)$ 、 $I(\omega) = E(\omega) \cdot E^*(\omega)$  であるので、それぞれの半値全幅  $\Delta t$ 、 $\Delta\omega$  を求めると

$$\Delta t = 2\tau\sqrt{\ln 2} \quad (\text{C.3})$$

$$\Delta\omega = 2\frac{\sqrt{\ln 2}}{\tau} \quad (\text{C.4})$$

これらの半値幅の積をとると、一定値になることがわかる。

$$\Delta t \cdot \Delta\omega = 4 \ln 2 \sim 2.77 \quad (\text{C.5})$$

この式はパルス幅と周波数幅の相関関係を表している。式 (C.5) からパルス幅  $\tau$  を短くするためには、周波数の半値全幅  $\Delta\omega$  を大きくしなければいけない事が理解できる。ただしこの関係は理想的なレーザープロファイルの時であり、実際には両者の積は 2.77 より大きくなる事に注意しておく必要がある。

## D 分光結晶の種類

Table D.1 分光結晶.<sup>38)</sup>

結晶名	結晶の完全性	結晶系	格子間距離 (Å)	反射面
シリコン (Si)	完全	立方晶系	3.135	111
ゲルマニウム (Ge)	完全	立方晶系	3.266	111
インジウムアンチモン (InSb)	完全	立方晶系	3.709	111
パイロリティック・グラファイト (PG)	モザイク	六方晶系	3.354	0002
フッ化リチウム (LiF)	モザイク	立方晶系	2.014	200
$\alpha$ -水晶 (SiO <sub>2</sub> )	モザイク	六方晶系	3.336	10 $\bar{1}$ 0
エチレンジアミン四酢酸 (EDDT)	モザイク	単斜晶系	4.402	020
リン酸二水素アンモニウム (ADP)	モザイク	正方晶系	5.324	101
ペンタエリトリトール (PET)	モザイク	正方晶系	4.38	002
フタル酸タリウム (TAP)	モザイク	斜方晶系	12.88	001
フタル酸ルビジウム (RAP)	モザイク	斜方晶系	13.06	001
フタル酸カリウム (KAP)	モザイク	六方晶系	13.316	1010

## E レーザーによる電子加熱（加速）

電離した電子はレーザーによりエネルギーを受け取り、加熱される。この加熱メカニズムとして複数のレーザープラズマ相互作用による電子加熱メカニズムが知られており、以下で紹介する。ただし、実際には電子加熱はこれらのうちの一つのメカニズムのみで行われるのではなく、複数のメカニズムが同時に起こっていると考えられる。

### E.1 逆制動放射

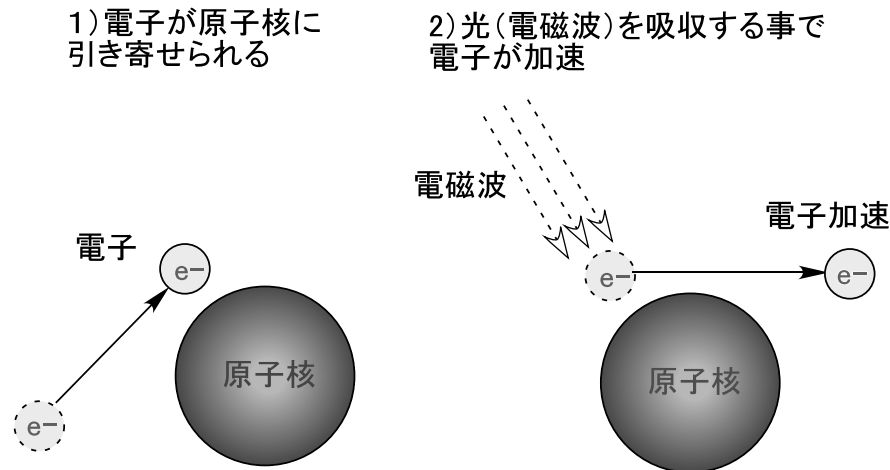


Fig. E.1 逆制動放射.

電荷  $Q$  の荷電粒子が定常電場  $\vec{E}$  を感じると、力  $\vec{F} = Q\vec{E}$  が荷電粒子に働き、軌道を曲げられる。その際に放射される X 線（電磁波）は制動放射 X 線と呼ばれている。逆に強い電磁波が存在する状態で荷電粒子が原子に引き寄せられると、その粒子はその電磁波を吸収して加速される。この現象は制動放射の逆過程に相当する事から逆制動放射と呼ばれている (Fig. E.1 参照)<sup>88)</sup>。電磁波の電場によって運動していた電子がイオンで散乱されるとき、電子の並進エネルギーが熱エネルギーに変換されると解釈する事もできる。この逆制動放射の（単位長さ当たりの）吸収係数  $K_a$  は一般に次の式で記述できる。

$$K_a = 3.05 \times 10^{-54} \times \frac{z^2 \cdot n_i \cdot n_e \cdot \ln \Lambda \cdot (\lambda_0 [\mu\text{m}])^2}{(T_e [\text{keV}])^{3/2} \cdot (1 - n_e/n_{cr})^{1/2}} [\text{cm}^{-1}] \quad (\text{E.1})$$

$z$ :イオンの電荷,  $n_i$ :イオン密度,  $n_e$ :電子密度,  $T_e$ :電子温度,  $\ln \Lambda$ :クーロン対数

式から明らかなように吸収係数は  $n_e = n_{cr}$  の時に最大になる。また電子温度  $T_e$  が高いほど、吸収率が低くなる傾向がある。

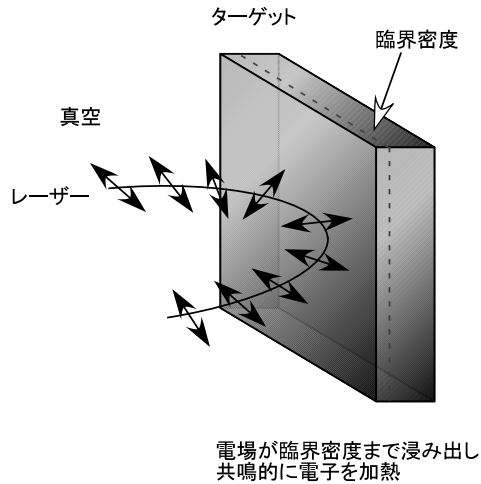


Fig. E.2 共鳴吸収.

## E.2 共鳴吸収

一般にプラズマにある入射角  $\theta$  でターゲットに照射したレーザー光は臨界密度以下の場所（反射点）で屈折効果により曲げられ、反射されてしまう。ところが密度スケール長  $L$  が短い場合、反射点において P 偏光のレーザー電場が内部に染み込む。この染み込んだ電場が臨界密度の電子を共鳴的に加熱するメカニズムである (Fig. E.2 参照)<sup>88)</sup>。

この共鳴吸収の最適条件は、レーザー周波数  $\omega$ 、光の速度  $c$  を用いて

$$\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right)^{1/3} \cdot \sin \theta = 0.8 \quad (\text{E.2})$$

## E.3 真空加熱

固体ターゲットに極めて短いパルス幅のレーザーが入射した場合、レーザーの上流部（裾）でほとんどプラズマが生成できず、レーザーが固体と直接相互作用する。レーザーがその電場により固体中表面近傍の電子を引き剥がして真空側に引き出す。引き出された電子は真空中でレーザー電場で加熱された後、固体中に打ち込まれる (Fig. E.3 参照)。これを真空加熱という<sup>89)</sup>。これはレーザー強度  $I$  が非常に高く ( $I > 10^{18} \text{ W/cm}^2$ )、短パルスでプラズマが十分に生成できない場合に支配的な電子加熱メカニズムである。

## E.4 ポンデロモーティブ・ポテンシャル

レーザー電場によりプラズマ電子は振動エネルギーを受け取る。このエネルギーはポンデロモーティブポテンシャルと呼ばれている。電子の静止質量  $m_e$ 、レーザー電場  $E_0$ 、レーザー周波数  $\omega_0$   $e$  : 単位電荷とする。このときレーザー電場中での電子の速度  $v$  は時間  $t$  を用いて

$$m_e \frac{dv}{dt} = eE_0 \sin \omega_0 t \quad (\text{E.3})$$



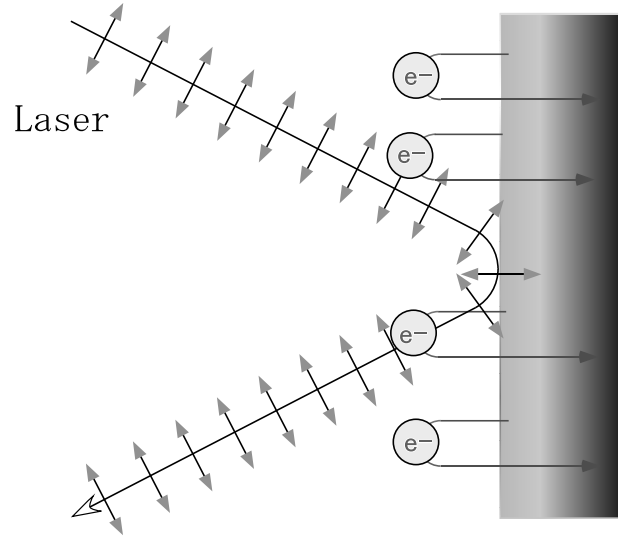


Fig. E.3 真空加熱.

時間に対して積分すると

$$\frac{dx}{dt} = \frac{eE_0}{m_e\omega_0} \cos \omega_0 t \quad (\text{E.4})$$

そこでこの電子の平均エネルギーは

$$U_p = \frac{m_e}{2} \left[ \frac{dx}{dt} \right]_{Ave}^2 = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e\omega_0^2} \quad (\text{E.5})$$

レーザー強度  $I$  はレーザー電場を用いて以下のように表せる事を考慮すると

$$I = \epsilon c E_0^2 \quad (\text{E.6})$$

$\epsilon$ : 真空中の誘電率、 $c$ : 光の速度

$$U_p[\text{eV}] = 9.3 \times 10^{-14} I[\text{W/cm}^2] \lambda^2[\mu\text{m}] \quad (\text{E.7})$$

## E.5 ポンデロモーティブ加速

プラズマ中の電子はレーザー電場、磁場によって力を受けて運動する。レーザー強度が十分高い時は、時間平均をとってもキャンセルできない力（エネルギー）が電子に付与される。これをポンデロモーティブ力（ポンデロモーティブエネルギー）と呼ぶ<sup>90)</sup>。

以下ではポンデロモーティブ力の式を導出する。

プラズマ中の電子は以下の運動方程式に従って運動すると考える。ここで  $\vec{v}$ 、 $\vec{E}$ 、 $\vec{B}$  はそれぞれ電子の速度ベクトル、レーザー電場、レーザー磁場を表す。

$$m_e \frac{d\vec{v}}{dt} = m_e \left[ \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} \right] = -e(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (\text{E.8})$$

電子の運動を振動成分  $\vec{v}_{os}$  とそれ以外の成分  $\vec{v}$  に分ける。

$$\vec{v} = \vec{v}_{os} + \delta\vec{v} \quad (\text{E.9})$$

すると1次の項は次のようになる。

$$m_e \frac{\partial \vec{v}_{os}}{\partial t} = -e\vec{E} \quad (\text{E.10})$$

残った2次の項は次のように書ける。

$$m_e \frac{\partial \delta\vec{v}}{\partial t} = -m_e(\vec{v} \cdot \nabla)\vec{v}_{os} - e(\vec{v}_{os} \times \vec{B}) \quad (\text{E.11})$$

ここでベクトルポテンシャル  $\vec{A}$ ,  $\vec{a}$  を定義する。

$$\vec{B} \equiv \nabla \times \vec{A}, \quad \vec{E} \equiv -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad (\text{E.12})$$

$$\vec{a} \equiv \frac{e\vec{A}}{m_e c} \quad (\text{E.13})$$

式 (E.10), 式 (E.12) を見比べる事により

$$\vec{v}_{os} = c \cdot \vec{a} \quad (\text{E.14})$$

この式とベクトルポテンシャルの定義式より、式 (E.11) を書き直すと

$$m_e \frac{\partial \delta\vec{v}}{\partial t} = -m_e c^2 [(\vec{a} \cdot \nabla)\vec{a} + \vec{a} \times (\nabla \times \vec{a})] \quad (\text{E.15})$$

ベクトル解析の公式を用いて整理すると

$$m_e \frac{\partial \delta\vec{v}}{\partial t} = -m_e c^2 \nabla \left( \frac{\vec{a}^2}{2} \right) \quad (\text{E.16})$$

時間平均をとると

$$m_e \frac{\partial \delta\vec{v}}{\partial t} = \begin{cases} -m_e c^2 \nabla(a_0^2/2) & \text{円偏光} \\ -m_e c^2 \nabla(a_0^2/4) & \text{直線偏光} \end{cases} \quad (\text{E.17})$$

右辺はポンデロモーティブ力（動重力）と呼ばれ、時間平均でキャンセルできない力である。この力により電子はポンデロモーティブエネルギーを得る事が出来る。

尚、 $a_0$  はレーザー強度  $I$  及びレーザー波長  $\lambda$  を用いて以下の様に記述できる<sup>90)</sup>。

$$a_0 = 0.85 \times 10^{-9} \cdot \lambda[\mu\text{m}] \cdot I^{1/2}[\text{W}/\text{cm}^2] \quad (\text{E.18})$$

## E.6 レーザー航跡場加速

ポンドロモーティブ力は外力となり、プラズマ中の電子は強制振動を誘発する。プラズマ振動の電子密度  $n_1$ 、時間  $t$ 、電子密度  $n_0$ 、ポンドラモーティブ力  $\vec{F}_p$  を用いてレーザーによるプラズマ波の励起を以下の式で記述できる。

$$\frac{\partial^2 n_1}{\partial t^2} + \omega_p^2 n_1 = \frac{n_0}{m_e} \nabla \cdot \vec{F}_p \quad (\text{E.19})$$

プラズマの位相速度  $v_p$  を用いて  $\eta \equiv x - v_p t$  と置く。すると円偏光の場合ポンドロモーティブポテンシャル  $\phi_p$ ,  $k_p = \omega_p/v_p$  を用いて

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial \eta^2} + k_p^2 \phi = -k_p^2 \phi_p = k_p^2 m_e c^2 a_0^2 / (2e) \quad (\text{E.20})$$

この方程式の解は

$$\phi(r, \eta) = k_p \int_{\eta}^{\infty} \sin[k_p(\eta - \eta')] \phi_p d\eta' \quad (\text{E.21})$$

ガウス分布のビームプロファイルを考えると

$$a(r, \eta) = a_0 \exp[-r^2/(2\sigma_r^2) - \eta^2/(2\sigma_x^2)] \quad (\text{E.22})$$

進行方向のレーザー電場及び半径方向の電場は

$$eE_z(r, \eta) = -e \frac{\partial \phi}{\partial x} = \frac{\sqrt{\pi} m_e c^2 k_p^2 a_0^2 \sigma_x}{4} \exp\left(-\frac{r^2}{\sigma_r^2} - \frac{k_p^2 \sigma_x^2}{4}\right) [C(\eta) \cos(k_p \eta) - S(\eta) \sin(k_p \eta)] \quad (\text{E.23})$$

$$eE_r(r, \eta) = -e \frac{\partial \phi}{\partial r} = -\frac{\sqrt{\pi} m_e c^2 k_p a_0^2 \sigma_x r}{\sigma_r^2} \exp\left(-\frac{r^2}{\sigma_r^2} - \frac{k_p^2 \sigma_x^2}{4}\right) [C(\eta) \sin(k_p \eta) + S(\eta) \cos(k_p \eta)] \quad (\text{E.24})$$

ここで  $C(\eta)$ ,  $S(\eta)$  は

$$C(\eta) = 1 - \text{Re} \left[ \text{erf} \left( \frac{\eta}{\sqrt{2}\sigma_x} - i \frac{k_p \sigma_x}{\sqrt{2}} \right) \right] \quad (\text{E.25})$$

$$S(\eta) = \text{Im} \left[ \text{erf} \left( \frac{\eta}{\sqrt{2}\sigma_x} - i \frac{k_p \sigma_x}{\sqrt{2}} \right) \right] \quad (\text{E.26})$$

$\text{erf}(y)$  は誤差関数で

$$\text{erf}(y) \equiv \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y \exp(-\dot{y}^2) d\dot{y} \quad (\text{E.27})$$

ここで  $\psi \equiv k_p x - \omega_p t$  及びレイリー長  $x_R$  を用い、 $C(\eta) \sim 2$ ,  $S(\eta) \sim 0$  と近似する。

するとレーザー進行方向に働く電場  $E_x(r, x, t)$  は

$$eE_x(r, x, t) = \frac{\lambda_L}{\lambda_p} \cdot \frac{k_p \sigma_x}{x_R [1 + (x/x_R)^2]} \frac{e^2 \Omega_0 P}{\sqrt{\pi} m_e c^2} \times \exp\left(-\frac{k_p^2 \sigma_x^2}{4}\right) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(x)}\right) \cos \psi \quad (\text{E.28})$$

動径方向に働く電場  $E_r(r, x, t)$  は

$$eE_r(r, x, t) = \frac{r}{x_R} \cdot \frac{2k_p \sigma_x}{x_R [1 + (x/x_R)^2]} \frac{e^2 \Omega_0 P}{\sqrt{\pi} m_e c^2} \times \exp\left(-\frac{k_p^2 \sigma_x^2}{4}\right) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(x)}\right) \sin \psi \quad (\text{E.29})$$

$k_p$  : プラズマ波数、 $x$  : レーザー進行位置、 $\sigma_x$  : ビーム長さ、 $x_R$  : レイリー長、  
 $e$  : 電荷、 $\Omega_0$  : 真空での抵抗、 $P$  : ピークパワー、 $\lambda$  : レーザー波長、 $\lambda_p$  : プラズマ波長、  
 $r$  : レーザー軸からの距離、 $\omega(x)$  : ビーム半径

軸方向の電場  $E_x(r, x, t)$  の位相速度はほぼ光速であるので、光速に近い速度でレーザー進行方向に運動している電子は一定の電場を長時間感じる事ができる。それ故、光速に近い電子をうまく加速電場に乗せてやれば、電子をさらに加速（高エネルギー化）する事が出来る<sup>90)</sup>。

## F 古典的核生成理論の導出

$$\frac{\partial}{\partial t}n(N) = n(N-1) \cdot R_+(N-1) - n(N) \cdot R_+(N) - n(N) \cdot R_-(N) + n(N+1) \cdot R_-(N+1) \quad (\text{F.1})$$

$R_+(N)$  : 単位時間に大きさ  $N$  のクラスターが  $N+1$  に変化する速度

$R_-(N)$  : 単位時間に大きさ  $N$  のクラスターが  $N-1$  に変化する速度

まずは平衡状態での  $n_{eq}(N)$  を考え、次の詳細釣り合い条件を課す。

$$n_{eq}(N) \cdot R_+(N) = n_{eq}(N+1) \cdot R_-(N+1) \quad (\text{F.2})$$

更にギブスの自由エネルギー  $n_{eq}(N)$  を用いて、次のように仮定する。

$$n_{eq}(N) \sim n_{eq}(1) \exp\left(-\frac{G(N)}{k_B T}\right) \quad (\text{F.3})$$

式 (F.2) 式に代入すると  $R_-(N+1)$  は

$$R_-(N+1) = \frac{n_{eq}(N)}{n_{eq}(N+1)} R_+(N) = \exp\left(-\frac{G(N) - G(N+1)}{k_B T}\right) R_+(N) \quad (\text{F.4})$$

これを式 (F.1) に代入することで

$$\frac{\partial}{\partial t}n(N) = \frac{\partial}{\partial N} \left[ R_+(N) \left( \frac{1}{k_B T} \frac{dG(N, T)}{dN} n(N, t) + \frac{\partial}{\partial N} n(N, t) \right) \right] \quad (\text{F.5})$$

さてクラスターの成長は定常である場合を考える。すると前の式より流速  $J(N) = J_s = \text{Const.}$  は

$$J_s = \left[ R_+(N) \left( \frac{1}{k_B T} \frac{dG(N, T)}{dN} n(N, t) + \frac{\partial}{\partial N} n(N, t) \right) \right] \quad (\text{F.6})$$

この式を解くと

$$n(N) = J_s \exp\left[-\frac{G(N)}{k_B T}\right] \int_N^\infty \frac{\exp(-G(N_x)/(k_B T))}{R_+(N_x)} dN_x \quad (\text{F.7})$$

$G(N_x)$  に比べて  $R_+(N_x)$  の変化が小さい事を考慮し、 $R_+(N_x)$  を積分の外に出す

$$G(N_x) = G(N_c) + \frac{1}{2} \frac{d^2 G}{dN^2} \Big|_{N_c} (N_x - N_c)^2 + \frac{1}{6} \frac{d^3 G}{dN^3} \Big|_{N_c} (N_x - N_c)^3 + \dots \quad (\text{F.8})$$

これを式 (F.7) に入れると

$$\begin{aligned} n(N) &\sim J_s \cdot \exp\left[-\frac{G(N)}{k_B T}\right] \cdot \frac{\exp(G(N_c)/(k_B T))}{R_+(N_c)} \\ &\times \int_{-\infty}^\infty \exp\left[\frac{1}{2k_B T} \frac{d^2 G}{dN^2} \Big|_{N_c} (N_x - N_c)^2\right] dN_x \end{aligned} \quad (\text{F.9})$$

次のガウス積分の公式を用いる。

$$\int_{-\infty}^{\infty} \exp(-ay^2) dy = \sqrt{\frac{\pi}{a}} \quad (\text{F.10})$$

式 (F.9) に代入し

$$n(N) \sim \frac{J_s}{R_+(N_c)} \exp\left[\frac{G(N_c) - G(N)}{k_B T}\right] \sqrt{-\frac{2\pi k_B T}{G^{(2)}(N_c)}} \quad (\text{F.11})$$

この式で  $N = 1$ ,  $G(N) = G(1) = 0$  とおくと定常核生成率  $J_s$  は

$$J_s \sim n(1)R_+(N_c) \sqrt{-\frac{G^{(2)}(N_c)}{2\pi k_B T}} \exp\left[-\frac{G(N_c)}{k_B T}\right] \quad (\text{F.12})$$

## G マイクロプラズマモデルの式の導出

### G.1 電子加熱の式

クラスター内での誘電率  $\epsilon$  は Drude モデルを用いて

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu)} \quad (\text{G.1})$$

単位時間、単位体積当たりの電子が受け取るエネルギーは以下の式で記載できるので

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (\text{G.2})$$

クラスター内の電場をレーザー進行方向のベクトル  $\vec{x}$  を用いて  $\vec{E} = [(E \cdot e^{i\omega t} + E^* \cdot e^{-i\omega t})/2] \cdot \vec{x}$  と表現すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial U}{\partial t} &= \frac{1}{4\pi} \cdot \frac{E \cdot e^{i\omega t} + E^* \cdot e^{-i\omega t}}{2} \times \frac{\partial}{\partial t} \epsilon \cdot \left( \frac{E \cdot e^{i\omega t} + E^* \cdot e^{-i\omega t}}{2} \right) \\ &= \frac{i\epsilon\omega}{16\pi} \times (E \cdot e^{i\omega t} + E^* \cdot e^{-i\omega t}) \cdot (E \cdot e^{i\omega t} - E^* \cdot e^{-i\omega t}) = \frac{\omega}{8\pi} \times \ln[\epsilon] \cdot |E|^2 \end{aligned} \quad (\text{G.3})$$

クラスターは一様な誘電体と仮定すると、内部での電場を以下のように記載できる。

$$E = \frac{3}{|\epsilon + 2|} \cdot E_0 \quad (\text{G.4})$$

式 (G.1) を用いると  $|\epsilon + 2|^2$  は

$$\begin{aligned} |\epsilon + 2|^2 &= \left| 3 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu)} \right|^2 = \left| 3 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \nu^2)(\omega - i\nu)} \right|^2 = \left| 3 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu^2} + i \frac{\omega_p^2 \nu}{\omega^2(\omega^2 + \nu^2)} \right|^2 \\ &= \left( 3 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu^2} \right)^2 + \frac{\omega_p^4 \nu^2}{\omega^4(\omega^2 + \nu^2)^2} = \frac{(3\omega - \omega_p)^2 + 9\omega^2 \nu^2}{\omega^2(\omega^2 + \nu^2)} \end{aligned} \quad (\text{G.5})$$

一方  $\ln[\epsilon]$  は

$$\ln[\epsilon] = \ln \left[ 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu)} \right] = \ln \left[ 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \nu^2)}(\omega - i\nu) \right] = \frac{\omega_p^2 \nu}{\omega(\omega^2 + \nu^2)} \quad (\text{G.6})$$

式 (G.4), 式 (G.5), 式 (G.6) を用いると式 (G.3) は

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{9\omega}{8\pi} \times \frac{\omega^2(\omega^2 + \nu^2)}{(3\omega - \omega_p)^2 + 9\omega^2 \nu^2} \times \frac{\omega_p^2 \nu}{\omega(\omega^2 + \nu^2)} |E_0|^2 = \frac{9}{8\pi} \times \frac{\omega^2 \omega_p^2 \nu}{(3\omega - \omega_p)^2 + 9\omega^2 \nu^2} |E_0|^2 \quad (\text{G.7})$$

1 個の電子が受け取るエネルギー  $U_e$  は

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \frac{1}{n_e} \frac{\partial U}{\partial t} = \frac{n_{cr}}{n_e} \times \frac{1}{n_{cr}} \frac{\partial U}{\partial t} = \frac{1}{n_{cr}} \times \frac{\omega^2}{\omega_p^2} \frac{\partial U}{\partial t} \quad (\text{G.8})$$

式 (G.7) を代入すると

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \frac{\omega}{8\pi n_{cr}} \times \frac{9(\nu/\omega)}{(\omega_p^2/\omega^2 - 3)^2 + 9(\nu/\omega)^2} |E_0|^2 \quad (\text{G.9})$$

レーザー電場  $E_0$  はレーザー強度  $I[\text{W}/\text{cm}^2]$  と以下の関係にあり,

$$I[\text{W}/\text{cm}^2] = 1.33 \times 10^{-7} E_0^2[\text{V}^2/\text{m}^2] \quad (\text{G.10})$$

また  $1[\text{V}/\text{m}] = 3.33 \times 10^{-5}[\text{statV}/\text{cm}]$  なので

$$E_0[\text{statV}/\text{cm}] = 3.33 \times 10^{-5} \sqrt{\frac{I[\text{W}/\text{cm}^2]}{1.33 \times 10^{-7}}} = 9.13 \times 10^{-2} \sqrt{I[\text{W}/\text{cm}^2]} \quad (\text{G.11})$$

臨界密度  $n_{cr}[\text{cm}^{-3}] = 1.11 \times 10^{21}/(10^4 \times \lambda[\mu\text{m}])^2$ 、周波数  $\omega = 2\pi \times (3 \times 10^{10})/(10^4 \times \lambda[\mu\text{m}])$  であるので、これらを式 (G.9) 式に代入すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial U_e}{\partial t} &= \frac{1}{8\pi} \times \frac{2\pi \times (3 \times 10^6)}{\lambda[\mu\text{m}]} \times \frac{\lambda^2[\mu\text{m}^2]}{1.11 \times 10^{13}} \times \frac{9(\nu/\omega)}{(\omega_p^2/\omega^2 - 3)^2 + 9(\nu/\omega)^2} \times (9.13 \times 10^{-2})^2 I[\text{W}/\text{cm}^2] \\ &= 5.63 \times 10^{-10} \times \frac{9(\nu/\omega)}{(\omega_p^2/\omega^2 - 3)^2 + 9(\nu/\omega)^2} \times \lambda[\mu\text{m}] \cdot I[\text{W}/\text{cm}^2] \end{aligned} \quad (\text{G.12})$$

$1[\text{erg}] = 6.24 \times 10^{11}[\text{eV}]$  を用いて、 $U_e$  を  $[\text{eV}]$  単位に直すと

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} [\text{MeV}/\text{ps}] = 3.52 \times 10^{-16} \times \frac{9(\nu/\omega)}{(\omega_p^2/\omega^2 - 3)^2 + 9(\nu/\omega)^2} \times \lambda[\mu\text{m}] \cdot I[\text{W}/\text{cm}^2] \quad (\text{G.13})$$

## G.2 電子振動による電離

電子振動による衝突電離速度は次の式で計算出来る。

$$W_{las} = \frac{2n_e}{\pi} \int_{\phi_{min}}^{\pi/2} \sigma_i \frac{eE}{m_e \omega} \sin \phi d\phi \quad (\text{G.14})$$

電子衝突の断面積は Lotz の式を用い、 $U_p$  は次の関係式を用いる。

$$U_p[\text{eV}] \equiv \frac{m_e}{4} \left( \frac{eE}{m_e \omega} \right)^2 = 9.3 \cdot I[10^{14} \text{W}/\text{cm}^2] \cdot \lambda^2[\mu\text{m}] \quad (\text{G.15})$$

さらに  $E_e = 2U_p \sin^2 \phi$ ,  $I_p = 2U_p \sin^2 \phi_{min}$  と置くと

$$W_{las} = n_e \frac{a_i q_i}{\pi I_p} \left( \frac{1}{m_e U_p} \right)^{1/2} \int_{I_p}^{2U_p} \frac{\ln(E_e/I_p)}{E_e} \times \frac{dE_e}{\sqrt{1 - E_e/(2U_p)}} \quad (\text{G.16})$$

$I_p \sim E_e$  として、 $\ln(E_e/I_p)$  を近似すると

$$\begin{aligned} \ln(E_e/I_p) &= \ln \left( 1 - \frac{I_p - E_e}{I_p} \right) \sim \left( \frac{I_p - E_e}{I_p} \right) + \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{I_p - E_e}{I_p} \right)^2 \\ &= \frac{3}{2} - 2 \frac{E_e}{I_p} + \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{E_e}{I_p} \right)^2 \end{aligned} \quad (\text{G.17})$$



式 (G.16) の積分の項を計算すると

$$\begin{aligned}
I_a &= \int_{I_p}^{2U_p} \frac{\ln(E_e/I_p)}{E_e} \times \frac{dE_e}{\sqrt{1 - E_e/(2U_p)}} \\
&= \int_1^{2U_p/I_p} \frac{\ln x}{I_p \cdot x} \times \frac{I_p dx}{\sqrt{1 - I_p \cdot x/(2U_p)}} \\
&\sim \int_1^{2U_p/I_p} \left( \frac{3}{2x} - \frac{2}{x^2} + \frac{1}{2x^3} \right) \times \frac{dx}{\sqrt{1 - I_p \cdot x/(2U_p)}}
\end{aligned} \tag{G.18}$$

$\alpha \equiv 2U_p/I_p$  と置くと

$$I_a \sim \int_1^\alpha \left( \frac{3}{2x} - \frac{2}{x^2} + \frac{1}{2x^3} \right) \times \frac{dx}{\sqrt{1 - x/\alpha}} = \frac{3}{4}I_1 - I_2 + \frac{1}{4}I_3 \tag{G.19}$$

$$I_n \equiv \int_1^\alpha \frac{1}{x^n} \times \frac{dx}{\sqrt{1 - x/\alpha}} \tag{G.20}$$

$$I_1 = \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - 1/\alpha}}{1 - \sqrt{1 - 1/\alpha}} \right) \tag{G.21}$$

$$I_2 = \sqrt{1 - \frac{1}{\alpha}} + \frac{1}{2\alpha} \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - 1/\alpha}}{1 - \sqrt{1 - 1/\alpha}} \right) \tag{G.22}$$

$$I_3 = \left( \frac{3}{4\alpha} + \frac{1}{2} \right) \sqrt{1 - \frac{1}{\alpha}} + \frac{3}{8\alpha^2} \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - 1/\alpha}}{1 - \sqrt{1 - 1/\alpha}} \right) \tag{G.23}$$

式 (G.21), 式 (G.22), 式 (G.23) を式 (G.19) に代入すると

$$\begin{aligned}
I_a &\sim \left( \frac{3}{2} - \frac{1}{\alpha} + \frac{3}{16\alpha^2} \right) \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - 1/\alpha}}{1 - \sqrt{1 - 1/\alpha}} \right) + \left( -\frac{7}{4} + \frac{3}{8\alpha} \right) \sqrt{1 - \frac{1}{\alpha}} \\
&= \frac{1}{2} \left[ \left( 3 - \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \frac{I_p^2}{U_p^2} \right) \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}}{1 - \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}} \right) - \left( \frac{7}{2} - \frac{3}{8} \frac{I_p}{U_p} \right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right]
\end{aligned} \tag{G.24}$$

$$\begin{aligned}
W_{las} &= n_e \cdot \frac{a_i \cdot q_i}{2\pi \cdot I_p} \left( \frac{1}{m_e \cdot U_p} \right)^{1/2} \times \\
&\quad \left[ \left( 3 - \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \frac{I_p^2}{U_p^2} \right) \cdot \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}}{1 - \sqrt{1 - I_p/(2U_p)}} \right) - \left( \frac{7}{2} - \frac{3}{8} \frac{I_p}{U_p} \right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right]
\end{aligned} \tag{G.25}$$

## H 任意の集光位置における実効体積の式の導出

一般にレーザー強度プロファイル  $I$  は次の式で表現することができる。ここで  $I_0$ ,  $\omega_0$  はベストフォーカス位置でのレーザー強度、ビーム半径で  $x_R$  はレイリー長、 $\omega_x$  は位置  $x$  におけるビーム半径を意味する。

$$I = I_0 \left( \frac{\omega_0}{\omega_x} \right)^2 \exp \left[ -2 \left( \frac{r}{\omega_x} \right)^2 \right] \quad (\text{H.1})$$

$$\omega_x = \omega_0 \sqrt{1 + \frac{x^2}{x_R^2}} \quad (\text{H.2})$$

レーザーと相互作用する領域の  $x$  座標を  $[x_a, x_b]$  とする (ただし  $x_a \leq x_b$ )

レーザー強度比  $A \equiv I/I_0$  と置く。すると  $x$  軸上でレーザー強度が  $AI_0$  になる位置は上 2 式より

$$x_{r=0} = x_R \sqrt{\frac{1-A}{A}} = x_R \sqrt{\frac{I_0}{I} - 1} \quad (\text{H.3})$$

そのため  $x_a, x_b$  は以下の条件が課される。

$$|x_a|, |x_b| \leq x_{r=0} \quad (\text{H.4})$$

またレーザー強度が  $AI_0$  になる時の半径を  $r(A)$  とすると式 (H.1) より

$$r(A) = \omega_x \sqrt{\frac{1}{2} \ln \frac{\omega_0^2}{A\omega_x^2}} \quad (\text{H.5})$$

そこでレーザー強度比が  $A^*$  以上の領域の体積  $V_{eff}(A > A^*)$  を求めよう。

$$\begin{aligned} V_{eff}(A > A^*) &= \int_{x_a}^{x_b} \int_0^{r(A^*)} 2\pi\omega dr dx = \int_{x_a}^{x_b} \pi r(A^*)^2 dx = \int_{x_a}^{x_b} \pi \frac{\omega_x^2}{2} \ln \frac{\omega_0^2}{A^*\omega_x^2} dx \\ &= \frac{\pi}{2} \ln \left( \frac{\omega_0^2}{A^*} \right) \int_{x_a}^{x_b} \omega_x^2 dx - \frac{\pi}{2} \int_{x_a}^{x_b} \omega_x^2 \ln(\omega_x^2) dx = \frac{\pi}{2} \ln \left( \frac{\omega_0^2}{A^*} \right) I_1 - \frac{\pi}{2} I_2 \end{aligned} \quad (\text{H.6})$$

式を見やすくするため  $I_1, I_2$  を定義する。

$$I_1 \equiv \int_{x_a}^{x_b} \omega_x^2 dx = \int_{x_a}^{x_b} \omega_0^2 \left( 1 + \frac{x^2}{x_R^2} \right) dx = \omega_0^2 \left[ (x_b - x_a) + \frac{x_b^3 - x_a^3}{3x_R^2} \right] \quad (\text{H.7})$$

$$I_2 \equiv \int_{x_a}^{x_b} \omega_x^2 \ln(\omega_x^2) dx = \int_{x_a}^{x_b} \left( \omega_0^2 + \frac{x^2\omega_0^2}{x_R^2} \right) \ln \left( \omega_0^2 + \frac{x^2\omega_0^2}{x_R^2} \right) dx \quad (\text{H.8})$$

すると  $V_{eff}(A > A^*)$  は以下のように書き直せる。

$$V_{eff}(A > A^*) = \frac{\pi\omega_0^2}{2} \left[ (x_b - x_a) + \frac{x_b^3 - x_a^3}{3x_R^2} \right] \ln \left( \frac{\omega_0^2}{A^*} \right) - \frac{\pi}{2} I_2 \quad (\text{H.9})$$

$I_2$  を  $g \equiv \omega_0 x / x_R$  を用いて書き換えると

$$\begin{aligned}
I_2 &= \frac{x_R}{\omega_0} \int_{\omega_0 \cdot x_a/x_R}^{\omega_0 \cdot x_b/x_R} (\omega_0^2 + g^2) \ln(\omega_0^2 + g^2) dg \\
&= x_R \omega_0 \int_{\omega_0 \cdot x_a/x_R}^{\omega_0 \cdot x_b/x_R} \ln(\omega_0^2 + g^2) dg + \frac{x_R}{\omega_0} \int_{\omega_0 \cdot x_a/x_R}^{\omega_0 \cdot x_b/x_R} g^2 \ln(\omega_0^2 + g^2) dg
\end{aligned} \tag{H.10}$$

公式集より次の2式が成立する事が判っているので

$$\int^{\frac{\omega_0 \cdot x}{x_R}} \ln(\omega_0^2 + g^2) dg = \frac{\omega_0 x}{x_R} \ln \left[ \omega_0^2 + \left( \frac{\omega_0 x}{x_R} \right)^2 \right] - \frac{2\omega_0 x}{x_R} + 2\omega_0 \tan^{-1} \left( \frac{x}{x_R} \right) \tag{H.11}$$

$$\int^{\frac{\omega_0 \cdot x}{x_R}} g^2 \ln(\omega_0^2 + g^2) dg = \frac{\omega_0^3 x^3}{3x_R^3} \ln \left[ \omega_0^2 + \left( \frac{\omega_0 x}{x_R} \right)^2 \right] - \frac{2\omega_0^3 x^3}{9x_R^3} + \frac{2\omega_0^3 x}{3x_R} - \frac{2\omega_0^3}{3} \tan^{-1} \left( \frac{x}{x_R} \right) \tag{H.12}$$

式 (H.11), 式 (H.12) を式 (H.10) に用いると

$$\begin{aligned}
I_2 &= \frac{x_R \omega_0^2}{3} \left[ \frac{x_b^3}{x_R^3} \ln \left( \omega_0^2 + \frac{\omega_0^2 x_b^2}{x_R^2} \right) - \frac{2x_b^3}{3x_R^3} + \frac{3x_b}{x_R} \ln \left( \omega_0^2 + \frac{\omega_0^2 x_b^2}{x_R^2} \right) - \frac{4x_b}{x_R} + 4 \tan^{-1} \left( \frac{x_b}{x_R} \right) \right] \\
&\quad - \frac{x_R \omega_0^2}{3} \left[ \frac{x_a^3}{x_R^3} \ln \left( \omega_0^2 + \frac{\omega_0^2 x_a^2}{x_R^2} \right) - \frac{2x_a^3}{3x_R^3} + \frac{3x_a}{x_R} \ln \left( \omega_0^2 + \frac{\omega_0^2 x_a^2}{x_R^2} \right) - \frac{4x_a}{x_R} + 4 \tan^{-1} \left( \frac{x_a}{x_R} \right) \right]
\end{aligned} \tag{H.13}$$

式 (H.9) に式 (H.13) と式 (H.7) を代入して  $x_R = \pi\omega_0^2/\lambda$  を用いると

$$\begin{aligned}
V_{eff}(A > A^*) &= -\frac{\pi\omega_0^2}{2} \left[ (x_b - x_a) + \frac{\lambda^2(x_b^3 - x_a^3)}{3\pi^2\omega_0^4} \right] \ln(A^*) \\
&\quad - \left( \frac{\lambda^2 x_b^3}{6\pi\omega_0^2} + \frac{\pi\omega_0^2 x_b}{2} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{\lambda x_b}{\pi\omega_0^2} \right)^2 \right] + \frac{\lambda^2 x_b^3}{9\pi\omega_0^2} + \frac{2\pi\omega_0^2 x_b}{3} - \frac{2\pi^2\omega_0^4}{3\lambda} \tan^{-1} \left( \frac{\lambda x_b}{\pi\omega_0^2} \right) \\
&\quad + \left( \frac{\lambda^2 x_a^3}{6\pi\omega_0^2} + \frac{\pi\omega_0^2 x_a}{2} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{\lambda x_a}{\pi\omega_0^2} \right)^2 \right] - \frac{\lambda^2 x_a^3}{9\pi\omega_0^2} - \frac{2\pi\omega_0^2 x_a}{3} + \frac{2\pi^2\omega_0^4}{3\lambda} \tan^{-1} \left( \frac{\lambda x_a}{\pi\omega_0^2} \right)
\end{aligned} \tag{H.14}$$

ただし  $|x_a|, |x_b| \leq x_{r=0}$  である。これが任意の位置での実効体積の式である。

上記の特殊なケースとして閾値強度  $I_{th}$  以上の全領域の体積を求めると ( $x_b = x_{r=0}$ ,  $x_a = -x_{r=0}$  と置いて)、Deiss 等が用いた実効体積の式を得る事が出来る。

$$V_{eff}(I_0 > I_{th}) = \frac{(\pi\omega_0^2)^2}{\lambda} \left[ \frac{2}{9} \left( \frac{I_0}{I_{th}} - 1 \right)^{3/2} + \frac{4}{3} \left( \frac{I_0}{I_{th}} - 1 \right)^{1/2} - \frac{4}{3} \arctan \left( \frac{I_0}{I_{th}} - 1 \right)^{1/2} \right] \tag{H.15}$$

## 付 図

1.1	チャープパルス増幅法. . . . .	3
1.2	スキンドeps. . . . .	5
2.1	J-KAREN レーザー全体図. . . . .	9
2.2	J-KAREN レーザーの構造. . . . .	9
2.3	J-KAREN レーザーの出力. <sup>26)</sup> . . . . .	10
2.4	J-KAREN レーザーの波長分布. . . . .	11
2.5	J-KAREN レーザーの空間分布. <sup>26)</sup> . . . . .	12
2.6	J-KAREN レーザーのコントラスト. <sup>33)</sup> . . . . .	13
2.7	レーザーパルス幅特性. . . . .	14
2.8	集光特性. . . . .	15
2.9	最小集光径. . . . .	16
3.1	レーザープラズマ用実験室. . . . .	18
3.2	X 線発生実験のセットアップ. . . . .	19
3.3	Xe K 殻 X 線に対する X 線 CCD の応答関数. . . . .	21
3.4	Kr K 殻 X 線に対する X 線 CCD の応答関数. . . . .	22
3.5	フォトンカウンティング法. . . . .	22
3.6	禁制反射. . . . .	23
3.7	電子スペクトロメータ. . . . .	24
4.1	Fe <sup>55</sup> 線源でのエネルギー校正. . . . .	26
4.2	X 線 CCD イメージ. . . . .	27
4.3	Xe クラスターでの典型的な X 線エネルギースペクトル. <sup>2)</sup> . . . . .	28
4.4	背圧を 0.42 MPa に下げた時のエネルギースペクトル. . . . .	30
4.5	X 線エネルギースペクトルのパルス幅依存性. <sup>2)</sup> . . . . .	31
4.6	Ar クラスターでの典型的な X 線エネルギースペクトル. . . . .	32
4.7	Ar K 殻 X 線の集光位置依存性. . . . .	33
4.8	Ar 6.1 MPa. . . . .	34
4.9	Ar 2.1 MPa. . . . .	34
4.10	ガス種による電子エネルギーの違い.Ar(丸付き線)、He(四角付き線). . . . .	35
4.11	3.5 MPa でのエネルギースペクトル. . . . .	36
4.12	3.1 MPa でのエネルギースペクトル. . . . .	36
4.13	2.0 MPa でのエネルギースペクトル. . . . .	36
4.14	Ne-like Kr (J-KAREN). . . . .	37
5.1	Three stage ノズル. . . . .	39
5.2	Ar クラスター数と Ar クラスター半径の関係. . . . .	39
5.3	ポテンシャル曲線. . . . .	40
5.4	X 線強度とクラスター半径の Ar 背圧依存性. <sup>48,50)</sup> . . . . .	42

5.5	粒子によるレーザー光の散乱. . . . .	44
5.6	Rayleigh 散乱の例. . . . .	45
5.7	Mie 散乱の例. . . . .	45
5.8	粒子径計測. . . . .	47
5.9	Xe 2.0 MPa. . . . .	48
5.10	Xe 4.0 MPa. . . . .	48
6.1	Laval nozzle. . . . .	51
6.2	Mach 数と断面積比の関係 ( $\gamma = 5/3$ ) . . . . .	53
6.3	クラスター半径の背圧依存性. . . . .	55
6.4	ピークレーザー強度依存性. <sup>3)</sup> . . . . .	56
6.5	コニカルノズルでの実験結果, $9 \times 10^{18}$ W/cm <sup>2</sup> . (a) $R_{Cl}=8$ nm; (b) $R_{Cl}=12$ nm; (c) $R_{Cl}=13$ nm; (d) $R_{Cl}=15$ nm; (e) $R_{Cl}=16$ nm; (f) $R_{Cl}=17$ nm. <sup>3)</sup> . . . . .	57
6.6	コニカルノズルでの実験結果, $5 \times 10^{18}$ W/cm <sup>2</sup> . <sup>3)</sup> . . . . .	59
6.7	クラスターサイズ依存性、四角 : $9 \times 10^{18}$ W/cm <sup>2</sup> 、黒丸 : $5 \times 10^{18}$ W/cm <sup>2</sup> . <sup>3)</sup> . . . . .	60
6.8	コニカルノズルの集光強度. <sup>3)</sup> . . . . .	61
6.9	コニカルノズルでの実験結果, $2 \times 10^{17}$ W/cm <sup>2</sup> 、実線 : 生データ、波線 : Fitting curve. <sup>3)</sup> . . . . .	62
6.10	ピークレーザー強度依存性: クラスター半径 13 nm. <sup>3)</sup> . . . . .	63
7.1	多光子電離. . . . .	65
7.2	トンネル電離. . . . .	66
7.3	特性 X 線の生成原理. . . . .	68
7.4	電子の加熱速度例. . . . .	71
7.5	Ar クラスター半径: 2 - 5 nm. . . . .	73
7.6	Ar クラスター半径: 6 - 9 nm. . . . .	73
7.7	Kr クラスターのイオン化. . . . .	74
7.8	Xe K 殻 X 線効率のクラスター半径依存性、パルス幅 60 fs と 300 fs の場合. . . . .	75
7.9	Xe K 殻 X 線生成効率のパルス幅依存性. . . . .	76
7.10	レーザー電場による電子分布の重心位置の変位 : CTMC モデル. . . . .	77
7.11	実効体積の計算例、 $P= 20, 50, 100$ mJ、 $I_{th}=1.4 \times 10^{15}$ W/cm <sup>2</sup> . . . . .	78
7.12	Ar K 殻 X 線のクラスターサイズ依存性. <sup>65)</sup> . . . . .	79
7.13	Ar K 殻 X 線生成効率のレーザー強度依存性. <sup>65)</sup> . . . . .	80
7.14	Ar K 殻 X 線強度のレーザーパルス幅依存性 : 56, 140, 570 fs. <sup>65)</sup> . . . . .	81
7.15	Ar K 殻 X 線生成に最適なレーザーパルス幅の評価結果. <sup>65)</sup> . . . . .	82
7.16	レーザーとクラスターの相互作用. . . . .	84
7.17	X 線生成強度と実効体積の比較、四角 : X 線生成強度、黒丸 : 実効体積. . . . .	85
7.18	Ar イオン化 : CMTC モデル (黒)、実験 (グレー) . <sup>65)</sup> . . . . .	86
7.19	レーザーパルス幅依存性. <sup>65)</sup> . . . . .	87
8.1	飛行時間型粒子計測器. . . . .	90
8.2	Ge 半導体検出器の場合. . . . .	91

8.3	CdTe 半導体検出器の場合. . . . .	91
8.4	X 線の減衰長. . . . .	92
8.5	ヨウ素の質量吸収係数. . . . .	93
A.1	クラスターイメージ. . . . .	107
B.1	光パラメトリック増幅法. . . . .	110
C.1	レーザー電場の時間プロファイル. . . . .	111
E.1	逆制動放射. . . . .	113
E.2	共鳴吸収. . . . .	114
E.3	真空加熱. . . . .	115

## 付 表

1.1	X 線源の種類と特徴 . . . . .	1
1.2	アジアにおける高強度 Ti:Sa レーザー研究の拠点. . . . .	4
2.1	J-KAREN レーザーと JLITE-X レーザーの特徴. . . . .	8
4.1	Ne 様イオンからの電磁波スペクトル. . . . .	37
5.1	古典的核生成理論の計算例 (Hagena の論文 <sup>51)</sup> より引用). . . . .	43
5.2	クラスター半径の結果. . . . .	48
6.1	ウィグナー・ザイツ半径. . . . .	54
6.2	各サイズのクラスターで生成された制動放射 X 線のデータ. <sup>3)</sup> . . . . .	58
7.1	X 線生成強度の最適クラスター半径 $R_{cl}$ の比較. . . . .	83
7.2	K 殻 X 線生成のレーザー強度閾値. . . . .	88
A.1	希ガスの特性. . . . .	108
A.2	イオン化ポテンシャルのクラスターサイズ依存性. . . . .	109
D.1	分光結晶. <sup>38)</sup> . . . . .	112