

高強度 EUV, X 線自由電子レーザーによる 内殻励起状態の研究

1033018 米田研究室 大橋拓司

1 はじめに

近年の自由電子レーザー (FEL) の技術が発達により、日本でも X 線自由電子レーザー (SACLA) が 1.2Å で発振に成功し、試験加速器として建設された EUV 自由電子レーザー (SCSS) では高強度で安定に利用可能となった。これら FEL はこれまでの通常の光学レーザーでは発振が難しかった真空紫外 (VUV)、極端紫外 (EUV)、X 線領域の領域において波長可変性、超短パルス性を有するコヒーレントな光を現実のものとした。高光子エネルギー領域においても利用できる光がインコヒーレントなものからコヒーレントなレーザー光になったことにより、時間的、空間的に集光することにより、これまでない高強度な光子場が可能となり、赤外 - 可視光 - 紫外の波長帯でレーザーの出現により非線形光学を始めとする様々な物理が発展したことと同様に、多様な応用性が期待される。これら真空紫外-極端紫外以下の光では多くの金属の伝導帯のプラズマ周波数を越え、主な相互作用が自由電子の運動によるものから内殻電子の励起へと変化する。また EUV-FEL、X 線-FEL では波長チューニングにより内殻電子をフェルミ面直上に励起することが可能となる。現在金属固体をターゲットとした際、吸収長内のすべての電子を励起できる強度が実現され、実際にこれまでの研究で Sn の過飽和吸収、Ti の非線形吸収などが観測されている。[1] このような現象は金属が固体のバンド構造を保ったまま内殻電子が励起され、他の電子が原子核に強く束縛されることにより固体内部のエネルギーバンドが高エネルギー側にシフトしたと考えられている。これらの現象はこれまで不可能であった X 線領域での過飽和吸収体や超高速光スイッチと言った能動光学素子として利用できる可能性をもっている。しかし直接的な準位の変化や、従うべき詳細な物理過程は解明されていない。

なお、X 線 FEL(SACLA) での実験内容、結果については現状有意な結果を得られていないため省略し、解析の進んでいる EUV-FEL での結果について記述する。

2 目的

前述のように、高強度かつ高い光子エネルギーを持つ光により高密度に内殻電子を励起され、かつ長距離にわたり秩序性が保たれた状態を作り出すことが出来る。このことは瞬間的に物質の特性を変化させ、X 線を始めとする極短波長領域での能動光学素子として応用できる可能性を持っている。いくつかの現象はすでに計測されているが、シングルビームによる透過率測定という単純なものでダイナミックな直接測定にはいたっておらず、詳細な物理過程は現在解明されていない。

そこで EUV、X 線 FEL を用いて高密度に内殻励起された個体密度を保った物質状態を作り出し、その電子緩和過程で起こる準位の変化を観測し従うべき物理モデルを実験的にあきらかにすることを目的とする。そのため、fs - sub ps オーダーで変化する物質の物性計測手法の開発、広帯域での光学定数の計測を行う。

3 高エネルギーフォトンによる固体の内殻励起

金属など、自由電子が主となる物質に入射したレーザー光は、(1) 式で決まる臨界密度 n_c の影響を強く受ける。

$$n_c = m_e \epsilon_0 \omega^2 / e^2 \quad (m_e : \text{電子質量}) \quad (1)$$

その時の複素屈折率 n は

$$n = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \quad (n_e : \text{伝導電子密度}) \quad (2)$$

と表され、近赤外から紫外の波長域では屈折率は純虚数となり高い反射率を示す。更に波長を短くするとやがて臨界密度は金属の自由電子密度を超え、極端紫外領域にいたっては金属といえども誘電性をもった光学材料と見なせるようになる。例えばアルミニウムでは 80nm 以下の波長の光に対しては透明となる。一方相互作用では極端紫外-真空紫外以下の波長、光子エネルギーにして 10eV 以上の領域では一般に内殻電子の励起イオン化が主となる。

内殻電子をフェルミ面直上に励起することが出来れば、表面上電荷中性を保ち、かつ内殻励起によって残りの電子が原子核に強く束縛されることにより、バンド構造が変化し吸収端などが高エネルギー側にシフトすると考えられる。

また理論計算によって Li などのクラスタでクーロン爆発に対して安定に存在することが示されている。[2]

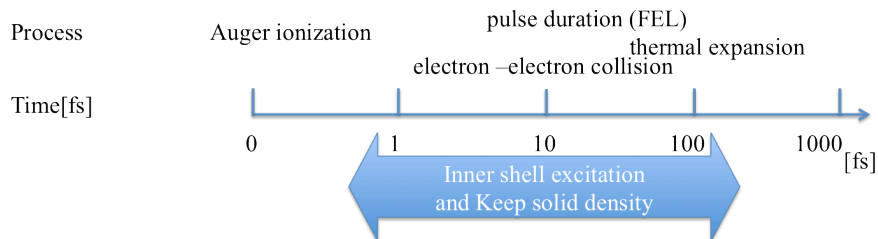


図 1: 内殻励起固体の電子緩和過程

ただし、フェルミ面直上に電子を励起し静かな状態を作ることができたとしても、その後オージェ電子の放出、特性 X 線の放出などの緩和過程が起こり、電荷中性の崩壊、電子衝突、再結合による兼ねる膨張、最終的なアブレーションは避けられないが、これらは熱過程であり励起に比べ時間を要するため、密度低下が起こる前にこの物性を活かせば応用が可能であると考えられる。内殻励起固体の電子緩和過程は図.1 のようになっている。

4 EUV-FEL を用いた内殻励起固体状態の詳細な電子緩和過程の計測

現在 EUV-FEL は Sn の飽和吸収の例 [1] のように、材質を選べば固体内のすべての原子を励起させる事ができる強度が実現されている。また、準位変化に起因すると考えられる非線型現象も観測されているが、その直接的な観測はされておらず、物理過程を説明するまでには至っていない。そこで、EUV-FEL とクロック同期された超短パルスレーザーを用いてシングルショットポンププローブシステムを構築し、電子緩和過程時に起こる数 10 から数 100fs の誘電率変化を計測するべく実験を行った。

具体的には超短パルスレーザーをサファイア結晶を用いて 450-700nm まで広がる白色光パルスを作り、ターゲットに対しておよそ 64 度の角度で入射させ、反射光を波長、偏光分解して記録し (図.2)、偏光解析により複素屈折率、複素誘電率を求めた。

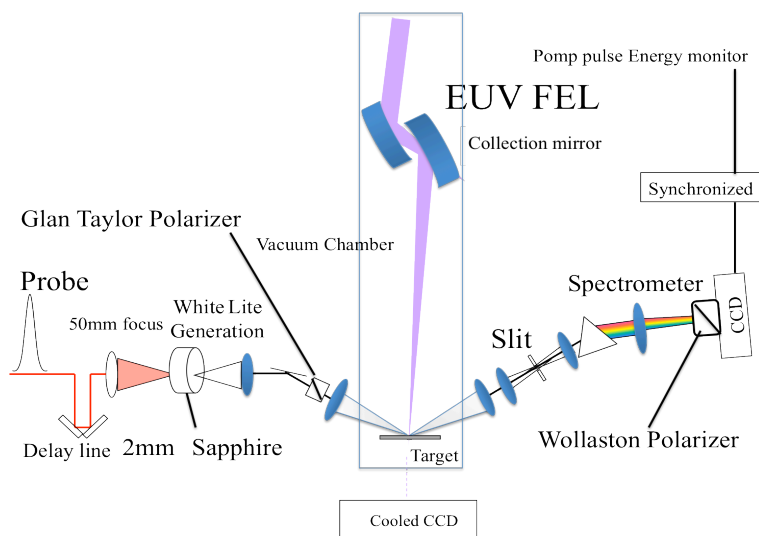


図 2: 実験システム概略図

また、ターゲットは SPM で発生させやすい可視から紫外の領域にかけて相互作用対象が自由電子によるものから、原子分極率の影響が強い領域へと明確に変化する部分があり、自由電子による影響

と原子分極による影響の両方を考察できるため、Au,Cu,Agを選定した。FELと同期レーザーはもともと別光源から発生させられたものであり、加速器のマスター周波数を分周したものと、モードロックの繰り返し周波数を同期させているが、その動機限界が200fs程度であり、数10fsの現象を計測することを考えるとこの200fsというジッターは大きすぎるが、図.3のように白色光パルスが5ps程度チャープしており、このカーブを利用することで計測を可能としている。またこのチャープカーブを利用することにより反射率、波長、時間変化の3つの要素を同時に計測することが可能となる。

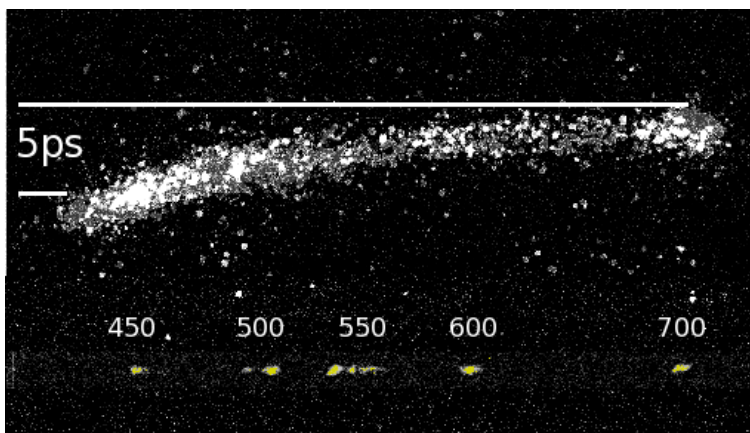


図 3: ストリークカメラによる白色パルススペクトル

図.4に Au10.4nm film に 55nm の EUV を照射した際の複素屈折率及び複素誘電率変化を示す。

490-510nm 近傍に極を持つ変化が確認できる。また時間と共に変化率が大きくなっていき、誘電率虚部が 100fs から 150fs にかけて大きく反転している様子が読み取れる。

5 考察

図.4 の変化が何に起因するものか。まず内殻から励起された電子によって自由電子が増加し変化が起こったという事が考えられる。これが自由電子によるものであれば、この結果は Drude の自由電子モデルによって近似することが可能であると考えられる。そこで、実際に Drude の自由電子のモデル (式.3-5、 j :電流密度、 σ :伝導度、 ω_c :プラズマ周波数、 γ :抵抗)

$$j = \frac{Ne^2}{m_e(\beta - i\omega)} \mathbf{E} \quad (3)$$

$$\sigma = \frac{Ne^2}{m_e(\beta - i\omega)} \quad (4)$$

$$\hat{\epsilon} \quad \hat{n}^2 = 1 + \frac{i\sigma}{\epsilon_0\omega} = 1 - \frac{Ne^2}{m_e\epsilon_0} \frac{1}{\omega(\omega + i\gamma)} = 1 - \frac{\omega_c^2}{(\omega^2 + \gamma^2)} + i \frac{\omega_c^2}{(\omega^2 + \gamma^2)} \frac{\gamma}{\omega} \quad (5)$$

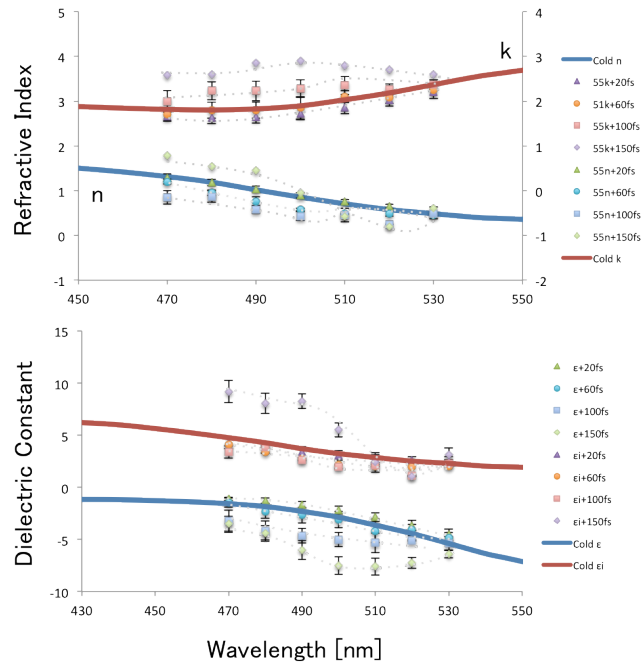


図 4: Au10.4nm-55nm EUV 照射下での複素屈折率及び複素誘電率

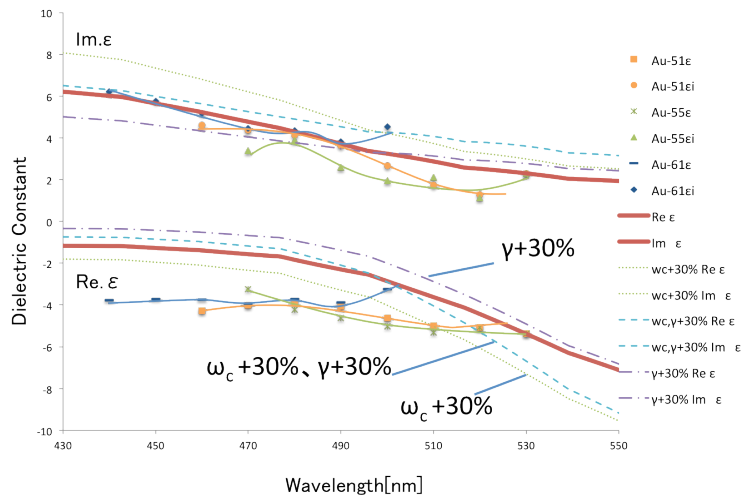


図 5: Drude model と実測値との比較

に従い、自由電子 (ω_c)、抵抗 (γ) を操作し誘電率の比較を行った (図.5)。図から分かるように自由電子による影響では広範囲に変化が起こり、更に誘電率の実部が増え、虚部が減る。もしくは逆の変化しかおこらないことから、計測された状態は電子が Localize していると考えられることができる。また 55nmEUV 照射下では 150fs のデータでは虚部が反転し Drude モデルによりよく近似することが出来る。

また内殻に開いた空孔によりバンド全体が変化したとしても局所的な変化ではなくもっと広範囲に変化が起こったと考えられる。このことから、励起された電子はフェルミ面直上に励起され、そこに新たな数 eV 程度の準位を作り出したのではないかと考えることができる。

6 まとめ

EUV-FEL を用いた実験では構築したポンププローブシステムを利用し、Au 薄膜の内殻励起状態での物性の一部を実際に測定することに成功した。しかし、Au51nm ポンプ時のピークや、変化が観測されなかった Ag との構造の違いなど未だ不明な点がほとんどであり、より詳細な物理過程を解明するため、プローブ波長のより広帯域化や時間分解能の向上などが望まれる。今後 X 線 FEL を利用しての同様のポンププローブ計測を行う予定が有り、K 殻が励起された場合の現象を調べるために、VUV まで広がる高帯域なプローブ光、1fs の時間分解能が必要となると考えられることからプローブ系の改良は必要である。

SACLA での実験は、始まったばかりであることに加え、調整運転中での実験であったためビーム強度不足やシステム側の問題などもあり、明確な変化を得るには至らなかったが、今後ビームやシステム等全てにおいて大幅なブラッシュアップが見込めるため、次回以降の実験に期待が持てる。また今後の実験システム構築のためのデータ収集という点では多数の有効な情報を得ることができた。

参考文献

- [1] Hitoki Yoneda Optics Express. Vol. 17 Issue 26, pp.23443-23448 (2009)
- [2] Hikaru Kitamura, “Cluster-model study on the K-shell excited states of crystalline lithium under intense laser irradiation” Eur. Phys. J. D 52, 147-150 (2009) DOI: 10.1140/epjd/e2009-00011-3