

## 小特集

プラズマ再結合

# 4. レーザー生成プラズマにおけるプラズマ再結合 — X線レーザー

河内 哲哉  
(理化学研究所)

Plasma Recombination in Laser-Produced Plasmas — X-Ray Laser

KAWACHI Tetsuya

*Laser Science Laboratory, The Institute of Physical and Chemical Research, Saitama 351-0196, Japan\**

(Received 17 March 1998)

### Abstract

Present status of the X-ray laser research in the recombining plasma scheme is reviewed. Additional atomic processes involving doubly excited levels which are characteristic of low temperature dense plasmas are considered. The populations of doubly excited levels hanging below a level of a singly excited ion can be assumed to be in LTE (Local Thermodynamics Equilibrium) with respect to the singly excited level population and the continuum electron density. The deexcitation from these levels may play an important role in the population kinetics of singly excited ions. We included these processes in a collisional-radiative (CR) calculation, and the calculated results were compared with experiments.

### Keywords:

recombining plasma, highly charged ions, doubly excited level, plasma spectroscopy, X-ray laser

### 4.1 はじめに

近年、軟 X 線領域での光源の重要性が高まり、シンクロトロン放射光とともに、軟 X 線レーザーの研究、開発が注目を集めている。軟 X 線領域のレーザー光を発生させる方法としては、多くの場合レーザー生成プラズマ中の多価イオンが用いられており、さらに反転分布生成の機構の違いから、電子衝突励起法と再結合プラズマ法という二種類が主として研究されている。本章で取り扱う再結合プラズマ法には、照射強度が  $10^{13} \sim 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 程度のレーザー光をターゲットに照射し多価イオンプラズマを生成し、レーザー照射後にイオンが再結合しはじめるときにイオンの励起状態間に反転分布を生成させる方法や、 $10^{17} \sim 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> の照射強度の直線

偏光したレーザー光を気体ターゲットに入射し、OFI (Optical Field Ionization) プラズマを生成し、レーザー光通過後の再結合プラズマを用いる方法がある。前者では水素様炭素のバルマ  $\alpha$  線 (18.2 nm) [1,2] や、リチウム様アルミニウムの 3d-5f 線 (10.6 nm) の増幅実験[3,4] などがあげられ、後者では理化学研究所やプリンストン大学で水素様リチウムイオンのライマン  $\alpha$  線 (13.5 nm) での増幅に成功している[5,6]。

たとえばリチウム様イオン ( $Al^{10+}$  イオン) の励起状態間 (主量子数 3 と 4 または 3 と 5 の間) の反転分布を用いる場合、軟 X 線の増幅が観測されるプラズマの電子温度は 5~10 eV、電子密度は  $10^{25}$  m<sup>-3</sup> 程度であり、実効的な核電荷が 10 程度のイオンから見たプラズマの電

\*Present Address: Advanced Photon Research Center, KANSAI Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Ibaraki 319-1195, Japan  
author's e-mail: kawachi@hikari.takai.jaeri.go.jp

子温度は極端に低くなる。したがって再結合プラズマ法を用いた軟X線レーザーの開発には、低温高密度プラズマ中でのイオンの再結合過程に関する知見が必要となる。

イオンの再結合の素過程としては、輻射再結合、三体再結合、二電子性再結合等があるが、電子密度の比較的高いプラズマでは、これらの素過程が単独にイオンの再結合を支配するというよりもむしろ、これら再結合素過程と励起状態間の衝突励起および脱励起を通じて励起準位に実効的な占有密度（以下、ポピュレーションと呼ぶ）が形成され、それらの準位から基底状態への衝突または輻射による脱励起が実質的な再結合過程となる。これは衝突輻射（CR）再結合と呼ばれており、基底状態にある原子、イオンが再結合する場合には十分に議論されている[7]。さらに、電子温度の低いプラズマでは、励起状態にあるイオンのポピュレーションが十分に大きくなり、励起イオンがプラズマ中の電子を捕獲し二電子励起状態に実効的なポピュレーションを形成する。このような状況では二電子励起状態を経由する自動電離や、衝突または輻射による脱励起過程が無視できなくなる可能性がある。

以下の章では、リチウム様アルミニウムイオンの再結合プラズマを例にとり、二電子励起状態を経由する過程の説明とそれらの励起状態ポピュレーションに対する影響を計算機シミュレーションによる結果と実験結果との比較を通して紹介する。

## 4.2 二電子励起状態を経由する過程

Fig. 1 にリチウム様アルミニウムイオンの簡単なエネルギー準位図を示す。ヘリウム様イオン ( $Al^{11+}$ ) の基底状態は、それよりもエネルギー的に低い領域にリチウム様イオン ( $Al^{10+}$ ) の Rydberg 状態  $i$  を持つ。電子温度が低く、電子密度の高い条件のもとでは、リチウム様イオンの高 Rydberg 状態は、プラズマ中の連続状態電子との衝突過程を通じてヘリウム様イオン基底状態と強く結びつき、ある準位  $i_{limit}$  よりも上の領域では、ポピュレーションがヘリウム様イオンの基底状態密度から見た局所熱力学的平衡状態 (LTE; Local Thermodynamics Equilibrium) で近似的に記述できる。ここで LTE の境界となる準位  $i_{limit}$  よりも上の準位では、主要な脱ポピュレーション過程が衝突過程で、下の準位では輻射過程となる。

リチウム様イオンの各励起状態  $i$  も自らをシリーズリミットとするような Rydberg 状態  $(i, k)$  を持つ。今の

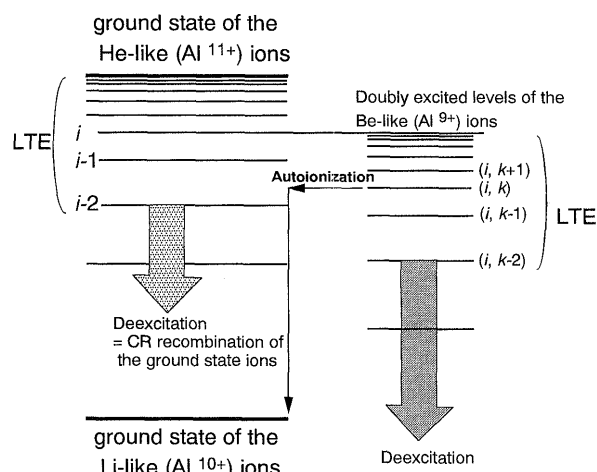


Fig. 1 Schematic energy level diagram of the lithiumlike aluminum ions and the doubly excited berylliumlike ions.

場合これらの状態はベリリウム様イオン ( $Al^{9+}$ ) の二電子励起状態となる。ここで二電子励起状態  $(i, k)$  の  $i$  および  $k$  を便宜上、各々コア電子と捕獲電子と呼ぶことにする。二電子励起状態はたいていの場合、大きな自動電離確率を持つため、密度の低いプラズマでは実効的なポピュレーションを持たないが、電子温度が低く密度の高いプラズマ（リチウム様アルミニウムイオンでは、たとえば  $T_e \sim 5$  eV,  $n_e \geq 10^{23}$  m $^{-3}$  程度）では、二電子励起状態  $(i, k)$  と連続状態電子の衝突過程による結びつきが自動電離確率よりも大きくなり、二電子励起状態に実効的なポピュレーションが形成される。そして、そのポピュレーションは近似的に励起状態イオン密度からみた LTE で記述される。ここで、リチウム様イオンの励起状態の場合と同様に、LTE の下限となる  $(i, k_{limit})$  よりも上の準位では衝突過程が主要な脱ポピュレーション過程で、下の準位では自動電離や輻射過程のような自発的な過程が主要となる。

ここで、LTE で記述できる二電子励起状態からの脱励起を考えてみる。脱励起によって二電子励起状態のポピュレーションは減少するが、その減少分は、励起イオン  $i$  が連続状態電子を捕獲することにより補給される。すなわち、励起イオンが電子を捕獲して二電子励起状態を作り、そこを経由して脱励起するというポピュレーションの流れができていく。これはリチウム様励起イオン  $i$  の付加的な脱ポピュレーション過程とみなせる。二電子励起状態からの脱励起を(1)自動電離（すなわち2つの電子が遷移する過程）、(2)コア電子の脱励起、そして(3)捕獲電子の脱励起、のように分けてみる。1番目にあげ

た、自動電離過程は、藤本、加藤によって最初に提示され、DL (Dielectronic capture and Ladderlike) 脱励起と名付けられている[8,9]。2つ目の過程のコア電子の遷移の寄与の大きさは励起準位  $i$  のポピュレーションと、その下に形成されるLTEのポピュレーションとの比で決まり、電子温度が5 eV、電子密度が  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  で、脱励起速度係수에約50%程度の増加をもたらす[10]。3番目の過程である捕獲電子の遷移は、励起イオンが連続状態電子を捕獲し、捕獲された電子が衝突、輻射を通じて脱励起していくという過程が、基底状態イオンの衝突輻射再結合過程に類似することから励起イオンのCR再結合と名付けることにする[10]。Fig. 2に、リチウム様アルミニウムイオンの  $3p^2P \rightarrow 2s^2S$  を例にとった場合の、直接の電子衝突脱励起 (太い点線)、DL脱励起 (太い実線)、そして  $3p^2P$  イオンからの衝突輻射再結合の速度係数 (一点鎖線) を示す。電子温度は5 eVを仮定している。図中の細い点線は二電子励起状態 ( $3p^2P, j$ ) のLTEの境界となる  $j$  の値を表す。電子密度の低い ( $n_e \leq 10^{23} \text{ m}^{-3}$ ) 領域では、二電子励起状態を経由する過程は大きな寄与を持たないが、 $n_e \geq 10^{24} \text{ m}^{-3}$  の領域では、とくに励起イオンの再結合過程が主要な脱ポピュレーション過程となる。

リチウム様アルミニウムの衝突輻射モデルにこれらの付加的な過程を取り入れ、低温高密度の再結合プラズマ中での励起状態のポピュレーションを計算してみた。Fig. 3は横軸を電子密度、縦軸を各ポピュレーションを統計重率、ヘリウム様イオンの基底状態密度、そして電

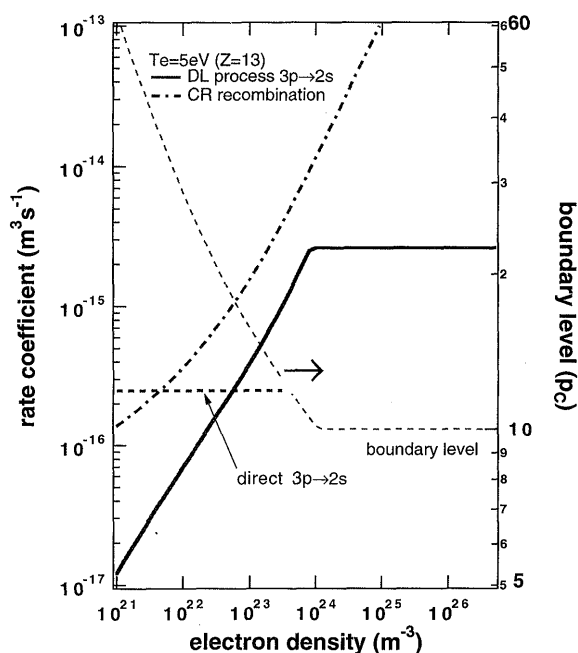


Fig. 2 The thin dotted line: the principal quantum number of the lower limit of the LTE levels of the ( $3p^2P, k$ ). The thick dotted line: direct deexcitation for the  $3p^2P \rightarrow 2s^2S$ . The thick solid line: DL deexcitation. The thick chained line: the recombination rate coefficient from an excited level. The direct deexcitation, the DL deexcitation and recombination are referred to the left hand side ordinate, and the boundary levels are in the right hand side ordinate.  $T_e = 5 \text{ eV}$  [10].

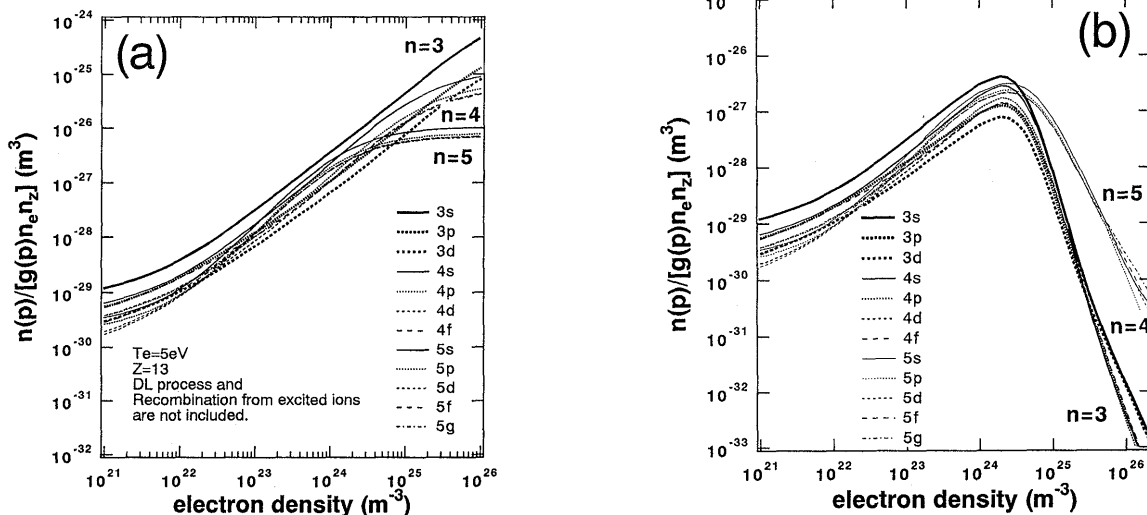


Fig. 3 The excited level populations of several excited levels of lithiumlike aluminium ions in the recombining plasma. (a) Additional processes are not included. (b) Additional processes are included [10].

Table 1 Comparison of the experimental gain coefficient with our CR-model calculation.

	Experiment			CR-model calculation ( $T_e = 8 \text{ eV}$ )	
	Rochester [5]	LULI [6]	RIKEN [7]	without additional processes	with additional processes
$n_e \text{ (m}^{-3}\text{)}$	$3.3 \times 10^{25}$		$4.0 \times 10^{25}$		
gain 3d-5f	3.5 ( $\text{cm}^{-1}$ )	1.63 ( $\text{cm}^{-1}$ )	1.5 ( $\text{cm}^{-1}$ )	absorption	1.3 ( $\text{cm}^{-1}$ )
gain 3d-4f	4.1	2.56	1.4	40 ( $\text{cm}^{-1}$ )	6.5
gain 3p-4d	4.5	1.38	1.3	18	1.9

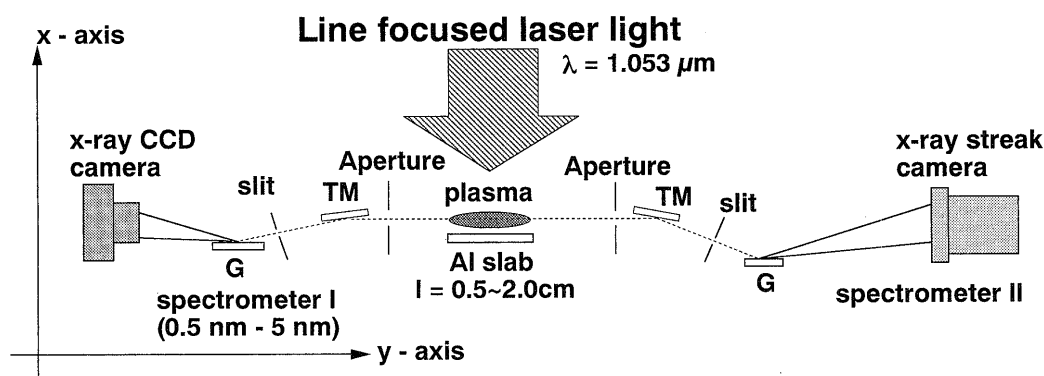


Fig. 4 The experimental set up.

子密度で割ったもので、(a) 付加的過程を取り入れてない場合、(b) 付加的過程を取り入れた場合を表す。  $n_e \geq 10^{24} \text{ m}^{-3}$  の領域では、付加的過程を取り入れることによって励起状態ポピュレーションは実効的に減少する。これはリチウム様イオンの各励起状態から二電子励起状態を経由してベリリウム様イオンへ再結合する過程による。

Table 1 は、ロチェスター (英) [11], LULI (仏) [3], および理研[4]において実験的に調べられたリチウム様アルミニウム軟 X 線レーザーの利得係数の大きさと、衝突輻射モデルによる計算結果とを比較したものである。計算に際しては、電子温度は 8 eV, 電子密度は  $3 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ , ヘリウム様イオン密度は  $1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$  を仮定している。実験的には、 $3d^2D - 4f^2F$  線 (波長 15.4 nm) と  $3d^2D - 5f^2F$  線 (波長 10.6 nm) の利得係数がほぼ同じ値となる傾向を示しているが、衝突輻射モデルで付加的な過程を取り入れない場合は、 $3d^2D - 4f^2F$  線では 10 倍程度大きく  $3d^2D - 5f^2F$  線では吸収となる。しかしながら、付加的過程を取り入れることにより、実験的な利得係数との食い違いを明らかに小さくすることができる。このことから再結合軟 X 線レーザーの媒質になるプラズマ中イオンの励起状態ポピュレーションの生成機

構には、二電子励起状態を経由する過程が実効的な働きをする可能性が高いと考えられる。

#### 4.3 リチウム様アルミニウム再結合プラズマの励起状態ポピュレーションの測定

前章で計算と実験の比較に用いた利得係数は、反転分布量すなわち 2 つの準位のポピュレーションの差を反映する量であり、直接的な比較とはいえない面を持つ。そこで、励起状態ポピュレーション分布を実験的に決定し、その分布を衝突輻射モデルの結果と比較することを試みた。

実験装置を Fig. 4 に示す。波長  $1 \mu\text{m}$  のガラスレーザー光を線集光し、1 mm 厚のアルミニウムスラプターゲットに照射した。我々の実験では、照射レーザー光は全半値幅 (FWHM) 80 ps の 16 個のパルスからなり、各パルスの時間間隔は 100 ps であった。照射エネルギーはターゲット 1 cm あたり約 4 J で、これは約  $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  の照射強度に相当する。生成した横長のアルミニウムプラズマは、その長さ方向に 2 つの斜入射分光器によって観測される。

分光器の測定波長領域は 0.5 nm から 5 nm で、再結合プラズマ中のリチウム様アルミニウムプラズマの共鳴

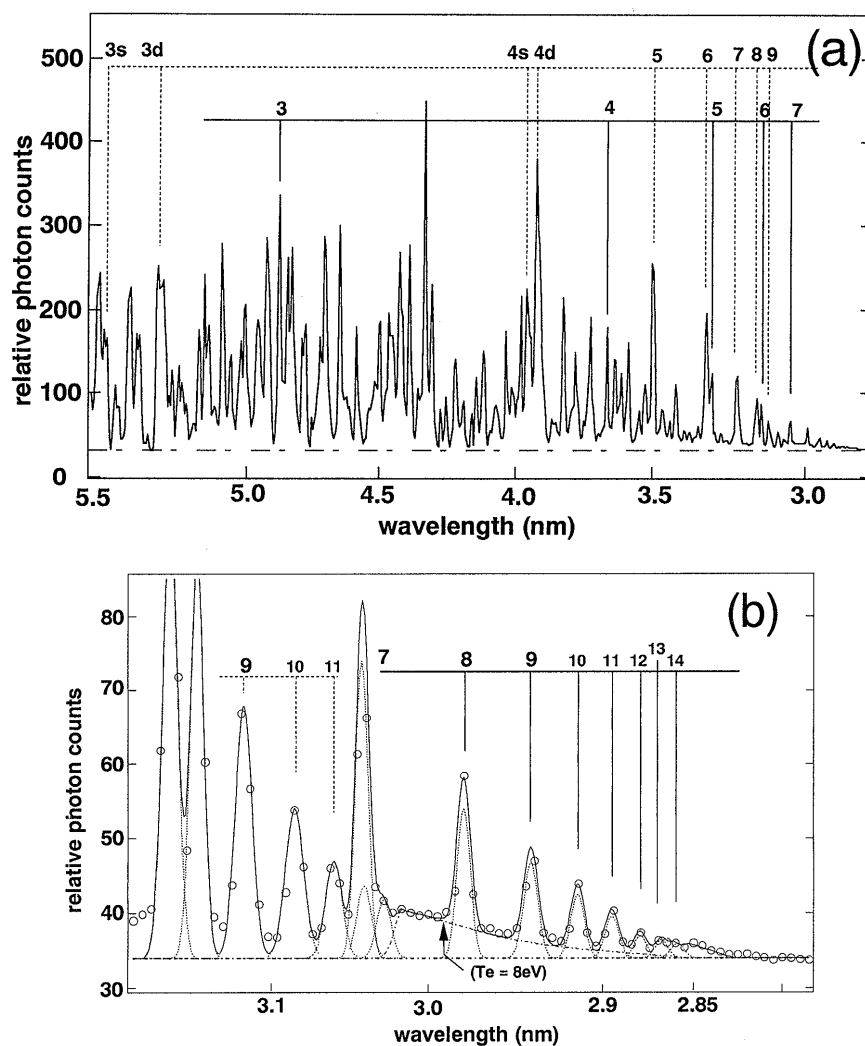


Fig. 5 Time-integrated spectrum taken by the grazing incidence spectrometer. (a) The thick chain line represents the background level we assume. The resonance and  $nd-2p$ ,  $ns-2p$  lines are marked with the solid and dotted lines, respectively. The numbers put on these lines represent the upper level. (b) The spectrum around 3.2 ~ 2.8 nm. The open circles are the experimental points, the dotted curves are the spectral lines, the thin chain curve is the recombination continuum of the blending series, and the solid curve is the superposition of the spectral lines and the recombination continuum.

線系列と下準位を  $2p^2P$  とする系列からの発光を測定することを目的とする。プラズマからの発光はトロイダルミラーによって集光され、凹面回折格子 (2,400 本/mm) によって波長分解された後、背面照射型 X 線 CCD カメラによって時間積分されて記録された。分光器の空間分解能は  $150 \mu\text{m}$ 、波長分解能は  $0.01 \text{ nm}$  であった。この測定系の相対感度は、シンクロトロン放射光 (AURORA, 立命館大学) を用いて校正を行っている。Fig. 5 (a) と (b) は分光器によって得られた時間積分スペクトラである。ターゲット長 (プラズマ長) は  $0.5 \text{ cm}$  である。横軸は波長で、縦軸は相対的な光子数を表す。

各発光線は実線と破線を用いて各々共鳴線系列と  $2p^2P$  準位を下準位とする系列とに分けて示されており、これらの線の上に付されている数字または記号は上準位の主量子数または準位を表している。

今回の実験方法では、細長い形をしたプラズマをその長さ方向から観測している。我々は、プラズマ長を  $0.5 \text{ cm} \sim 2.0 \text{ cm}$  の間で変化させ、発光線強度に対する輻射捕獲の影響を観測し、プラズマ長  $0.5 \text{ cm}$  までなら、主量子数 4 以上からの発光線に関しては、輻射捕獲の影響は十分に弱いことを確認している。

Fig. 5 のスペクトラムから上準位の相対的なポピュ

レーションを決定し、その結果を Fig. 6 に示す。横軸を各準位のイオン化ポテンシャルエネルギー、縦軸は各ポピュレーションを統計重率で割ったものである。●が実験点を表し、図中の数字は準位の主量子数を示す。さらに時間平均の電子密度、温度を各々、Inglis and Teller による方法[12]と recombination continuum の傾きから求め、約  $4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$  と約 8 eV という値を得た。この条件のもとで衝突輻射モデルによるポピュレーション分布と実験で得られた分布との比較を試みた。Fig. 6 において△と○は各々付加的な過程 (DL 脱励起と励起イオンの再結合過程) を取り入れていない場合、それらを取り入れた場合を表す。図に示されているとおり、付加的な過程を取り入れない場合は実験値と計算値は主量子数の低い領域 ( $n \leq 5$ ) で 1~3 桁異なるが、付加的な過程を取り入れた場合は計算結果は実験的に得られたポピュレーション分布をほぼ再現する。

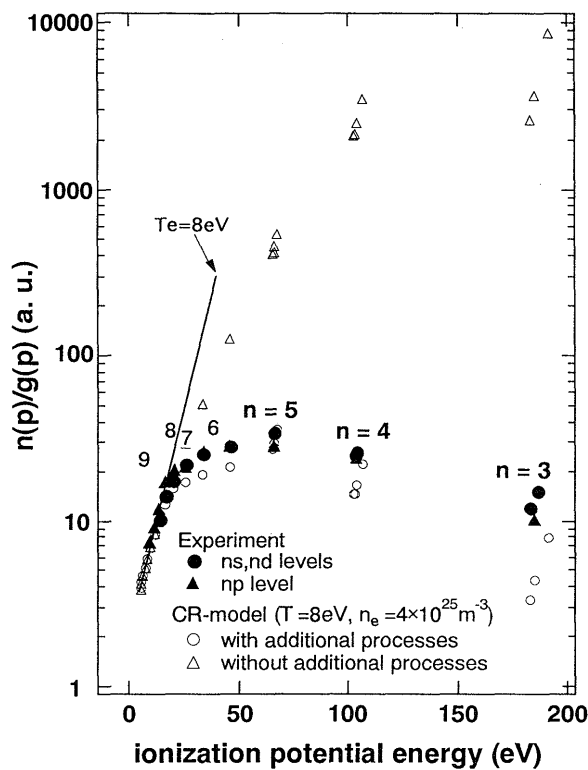


Fig. 6 Experimental and calculated excited level populations in Boltzmann plot. The closed triangles and circles are the populations of the  $np$  levels and the  $ns$  and  $nd$  levels combined, respectively. The open circles and triangles are the result of the CR-model with and without the additional atomic processes, respectively.

#### 4.4 おわりに

レーザー生成プラズマが再結合する時の励起イオンのポピュレーション生成機構についてリチウム様アルミニウムイオンを例にとり報告した。極端に電子温度が低く、電子密度の高いプラズマでは二電子励起状態を経由する再結合過程が重要な役割を担うことを計算機シミュレーションの手法と実験を通して示した。しかしながら二電子励起状態が重要だという理由と同様に三電子励起状態を始めとする多重励起状態を経由するような過程の寄与も否定できない。また、最近のレーザー技術の進歩によりレーザー光の高輝度化、短パルス化が進められ[13]、気体ターゲットの工夫により OFI 法において電子の平均運動エネルギーが低いプラズマ中に多価イオンを生成することも可能になりつつある[14]。その意味でこの種の対象の研究は始まったばかりであり、かつ今後の重要性も増すものと考えられる。

#### 参考文献

- [1] S. Suckewer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 1753 (1985).
- [2] J. Zhang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 1335 (1995).
- [3] A. Carillon *et al.*, J. Phys. B **23**, 147 (1990).
- [4] T. Kawachi *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 1863 (1997).
- [5] Y. Nagata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 3774 (1993).
- [6] D.V. Korobkin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **26**, 5206 (1996).
- [7] T. Fujimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 1561 (1980); J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 1569 (1980).
- [8] T. Fujimoto and T. Kato, Phys. Rev. Lett. **48**, 1022 (1982).
- [9] T. Fujimoto and T. Kato, Phys. Rev. A **32**, 3024 (1985).
- [10] T. Kawachi and T. Fujimoto, Phys. Rev. E **55**, 1836 (1997).
- [11] J.C. Moreno, H.R. Griem, S. Goldsmith and J. Knauer, Phys. Rev. A **39**, 6033 (1989).
- [12] D.R. Inglis and E. Teller, Astrophys. J. **90**, 439 (1939).
- [13] K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matoba, H. Takuma, C.P.J. Barty and D. Fittinghoff, Opt. Lett. **23**, 525 (1998).
- [14] K. Nagashima, T. Matoba and H. Takuma, Phys. Rev. A **56**, 5183 (1997).