

原子衝突学会誌

しょうとつ

第 12 巻
第 6 号
2015 年

- シリーズ 「多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開」
第 2 回 核融合・天体プラズマでの多価イオン原子過程研究
加藤太治, 坂上裕之, 村上泉
- シリーズ 「陽電子が拓く物質の科学」
シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」をスタートするにあたって
長嶋泰之
- シリーズ 「陽電子が拓く物質の科学」
第 1 回 ポジトロニウム-気体分子の相互作用
澁谷憲悟, 齋藤晴雄
- 解 説 (若手奨励賞受賞研究)
分子から発生する高次高調波の研究 加藤康作



**THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN**

原子衝突学会賛助会員（五十音順）

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド（IOP 英国物理学会出版局）

Institute *of* Physics

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

アステック株式会社

ASTECH
CORPORATION

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

アドキャップバキュームテクノロジー株式会社

ADCAP

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

有限会社イーオーアール



Electronics Optics Research Ltd.

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

株式会社オプティマ

Optima Corp.

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

キャンベラジャパン株式会社

A
CANBERRA

<http://www.canberra.com/jp/>

クリムゾン インタラクティブ プライベート リミテッド

enago[™]

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

<http://ulatus.jp/>

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

株式会社サイエンス ラボラトリーズ



株式会社 サイエンス ラボラトリーズ

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

真空光学株式会社

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

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

スペクトラ・フィジックス株式会社

 Spectra-Physics®
A Newport Company

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

ソーラボジャパン株式会社

 THORLABS

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

ツジ電子株式会社

 TSUJICON
ツジ電子株式会社

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

株式会社東京インスツルメンツ

 TOKYO INSTRUMENTS, INC.

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

株式会社東和計測

 Touwa
Keisoku

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

株式会社トヤマ

 TOYAMA
サイエンスをかたちにするテクノロジー

<http://www.toyama-jp.com/>

株式会社ナバテック

真空機器の未来と歩む
Navatec

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

仁木工芸株式会社



TOM J RROW

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

伯東株式会社



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

株式会社パルスパワー技術研究所



<http://www.mypj.com>

丸菱実業株式会社

丸菱実業株式会社

MARUBISHI CORPORATION

<http://www.ec-marubishi.co.jp/>

株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション



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

しょうとつ

第 12 卷 第 6 号



THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN

目 次

シリーズ「多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開」		
第 2 回 核融合・天体プラズマでの多価イオン原子過程研究	加藤太治, 坂上裕之, 村上泉	...161
シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」		
シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」をスタートするにあたって	長嶋泰之	...179
シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」		
第 1 回 ポジトロニウム-気体分子の相互作用	澁谷憲悟, 齋藤晴雄	...182
解説 (若手奨励賞受賞研究)		
分子から発生する高次高調波の研究	加藤康作	...195
原子衝突学会第 40 回年会報告	行事委員会委員長	...205
第 40 回年会優秀ポスター賞の選考結果	顕彰委員会委員長	...208
広報渉外委員会報告:公開講座	広報渉外委員会委員長	...208
第 42 回定期総会報告	庶務委員会委員長	...209
2015 年度 第 4 回運営委員会報告	庶務委員会委員長	...209
2015 年度 第 5 回運営委員会 (文書持回) 報告	庶務委員会委員長	...210
2015 年度 第 6 回運営委員会 (文書持回) 報告	庶務委員会委員長	...210
2015 年度 第 7 回運営委員会 (文書持回) 報告	庶務委員会委員長	...210
原子衝突学会 会長選挙・運営委員選挙について	2015 年度 選挙管理委員会	...211
第 17 回 原子衝突学会 若手奨励賞 募集要項	顕彰委員会委員長	...211
公益財団法人 山田科学振興財団 「2016 年度研究援助」候補者推薦について	庶務委員会委員長	...212
学会協賛学会会合のご案内	庶務委員会	
■International Conference on Low Energy Antiproton Physics のご案内		...212

「しょうとつ」原稿募集	編集委員会事務局	...213
ユーザー名とパスワード		...213

多価イオンの物理とその応用：これまでの進展と今後の展開 第2回 核融合・天体プラズマでの多価イオン原子過程研究

加藤太治^{1,2*}, 坂上裕之¹, 村上泉^{1,2}

¹ 核融合科学研究所 〒 509-5292 岐阜県土岐市下石町 322-6

² 総合研究大学院大学物理科学研究科核融合科学専攻 〒 509-5292 岐阜県土岐市下石町 322-6

*kato.daiji@nifs.ac.jp

平成 27 年 9 月 15 日原稿受付

極端紫外域での太陽コロナ観測で見つかった鉄多価イオン原子過程の問題が、大型ヘリカル装置 (LHD) を用いた分光実験により解明された。プラズマパラメータを制御できる LHD は、太陽コロナ診断に重要な鉄多価イオン分光データを提供している。国際熱核融合実験炉 (ITER) 成功の鍵を握る高温プラズマ中のタングステン多価イオン原子過程について、モデリング・実験両面から研究の進展がある。専用に開発された電子ビームイオントラップ (CoBIT) を用いて取得されたタングステン多価イオン分光データは、LHD での複雑な発光スペクトルの分析を可能にした。基底状態の磁気双極子遷移を利用したユニークなタングステン多価イオン輸送の研究も始まっている。

1. はじめに

多価イオンからの発光線の観測は、天体プラズマの理解に重要な役割を果たしてきた。太陽外層の最上層部にはコロナと呼ばれる希薄な高温プラズマが広がっている。可視域の分光スペクトルには、コロナで散乱された太陽大気下層部 (光球) の連続スペクトルの他に、コロナ中に存在する多価イオンからの輝線も重なっている。なかでも、1869 年 8 月の皆既日食で観測された 530.29 nm の波長を持つ強い輝線には逸話がある。この輝線は発見された当時には知られていどの元素のものとも同定できなかった。そのため、ヘリウムに続き太陽で「新元素」が発見されたと考えられ、コロニウムと呼ばれた (本シリーズ第 1 回でもこの逸話は紹介されている)。1942 年になって、Grotrian と Edlen により、その輝線が鉄の 13 価イオン (Fe^{13+}) の基底項準位の間に起きる磁気双極子遷移によることが確かめられた。 Fe^{13+} が生成されるためには、コロナの温度が数百万度 K に及んでいることを示している[1]。また、太陽の突発的でダイナミックな高エネルギー現象であるフレアでは、

ヘリウム様イオン (Fe^{24+}) からの K-X 線が観測されており、数千万度 K もの高温状態になっていることを示している[2]。約 6000 度 K の光球の外に広がる大気最上層部をこのような高温に保つ加熱機構は、太陽物理学における大きな謎のひとつとして残されている[3]。

X 線天文学は、宇宙に存在する強い X 線源がブラックホール (あるいは中性子星) とその伴星から成る連星系であることを明らかにした。伴星の物質がブラックホールの降着円盤に流れ込み、その重力エネルギーが X 線として解放される。伴星から周囲に放出された比較的高密度の物質は、降着円盤からの強い X 線照射により電離され、いわゆる光電離プラズマが形成される。X 線観測衛星「あすか」や「Chandra」により、白鳥座 X-3 の X 線スペクトルには 1 keV を超える電離エネルギーを持つ水素様のシリコンや硫黄イオンからのライマン線が強くてでていることが確認されている[4,5]。

天体観測によって多価イオンの電子状態に現れる際立った特徴が示された例もある。電離度が進んだ多価イオンでは軌道電子の運動

や状態に強い相対論的効果が表れる。この効果のひとつは、光の放射遷移における選択則の破れ(禁制遷移)として顕れる。有名な例として、ヘリウム様イオンの磁気双極子遷移 $1s2s^3S_1 \rightarrow 1s^2^1S_0$ は、人工衛星を使った太陽コロナの X 線観測で初めて見つかった。観測当初謎であった 2.21 nm の波長を持つスペクトル線が、実はヘリウム様酸素イオン (O^{6+}) の磁気双極子遷移であることが理論計算により確認された。スペクトル線の同定が容易でなかったのは、同遷移確率が当時の理論予測よりもずっと大きかったためである。この発見に触発されて、ビームフォイル実験などによる同遷移確率の測定が精力的に行われた[6]。これらの研究から、この遷移確率が原子番号の増加に伴って極めて急激に増加することが明らかにされた。同遷移による $1s2s^3S_1$ の寿命は、ヘリウム原子では約 3 時間であるのに対して、クリプトンの 34 価イオンになると 1 ns よりも短くなってしまふ。

多価イオンには、多重励起準位を含めると極めて膨大な数の空孔準位が存在する。そのどれかの準位とエネルギーが共鳴したときに周囲の自由電子との再結合(二電子性再結合)を起こしやすい。この二電子性再結合がプラズマ中で起こることにより、高温でのプラズマからの放射パワーが著しく増加することが知られている。現代の核融合プラズマでは 10 keV に及ぶ高温状態が達成されている。そのような高温プラズマに不純物重元素が混入すると、多価イオンとなってプラズマの自由電子と衝突し強い放射冷却を起こす。国際熱核融合実験炉 (ITER) のプラズマ対向壁にはタングステン材料が用いられる計画である。英国カラム研究所のトカマク装置 (JET) を用いて、ITER を想定したプラズマ対向壁の模擬実験が実施され、タングステン粒子の中心プラズマへの混入による軟 X 線放射が確認されている[7]。また、タングステン多価イオンの極端紫外域での発光スペクトルには 5 nm あたりに非常に強い発光線の束 (UTA: Unresolved Transition Array と呼ばれる) があることも知られている。タングステン多価イオンの蓄積

が過剰になるとこれらの強い光放射によってプラズマの放射崩壊が起こり、定常な高温プラズマを維持できない。この問題を解決することは現代の核融合研究の中でも最も重要な課題のひとつである。

多価イオン原子物理の理解の深化と、これに基づいたプラズマ中の多価イオン原子過程データは、太陽コロナや核融合プラズマ研究での最近の課題においても重要な役割を果たしている。本稿第 2 章では、多価イオンの発光線スペクトルを用いたプラズマ診断とその基礎となる衝突輻射モデルについて解説する。第 3 章では、プラズマ診断に必要な多価イオン原子過程データの実験的研究が、専用に開発された電子ビームイオントラップ (CoBIT) の登場で新たな展開をみせていることについて紹介する。第 4, 5 章では、最近核融合プラズマ研究で注目されているタングステン多価イオンについて、核融合科学研究所の大型ヘリカル装置 (LHD) を用いて行われている磁場閉じ込めプラズマ中での発光スペクトルとそれを利用したプラズマ中のタングステン挙動研究について紹介する。最後に第 6 章では、国立天文台の研究グループとの協力で行われた、太陽コロナの鉄多価イオンからの極端紫外 (EUV) 発光スペクトルの研究について紹介する。

2. プラズマ分光診断と衝突輻射モデル

多価イオンからの発光線を使って天体などのプラズマの状態を調べるプラズマ分光診断にとって、発光線とプラズマの状態との関係を調べるための分光モデルは重要な役割を担う。その分光モデルに不可欠なのが原子データである。

q 価の多価イオンの励起状態である上準位 i から下準位 j への遷移による発光線の強度(単位時間単位体積当たりの光子数)は、上準位 i のポピュレーション $n(i)$ と放射遷移確率 $A(i, j)$ 、イオンの密度 n_q の積、 $n(i)A(i, j)n_q$ で表される。ここではポピュレーションは、イオン 1 個当たりの励起状態 i の存在割合とする。

太陽コロナのような非常に希薄なプラズマからの発光線強度は、いわゆるコロナモデルで記述できる。コロナモデルでは、発光線の上準位 i のポピュレーションは、基底状態 1 から準位 i への

電子衝突励起過程と、準位 i から出るすべての放射遷移過程とが釣り合うとして、

$$C(1,i)n_e n(1) \approx \sum_{k < i} A(i,k)n(i) \quad (2.1)$$

と近似できる。従って、発光線強度は

$$I(i,j) \approx \frac{C(1,i)n_e n(1)}{\sum_k A(i,k)} A(i,j)n_q \quad (2.2)$$

と評価することができる。ここで、 $C(1,i)$ は基底状態 1 から励起状態 i への電子衝突励起速度係数、 n_e は電子密度である。

電子密度が高くなってくると、励起状態間の電子衝突過程などが重要になってくるため、それらを取り入れた衝突輻射 (CR) モデルが開発され、発光線強度の評価に用いられている。衝突輻射モデルでは、励起状態間の電子衝突励起・脱励起と放射遷移過程、励起状態からの電子衝突電離過程、励起状態への再結合過程などを考慮して、励起状態のポピュレーションの速度方程式を立て、ポピュレーションの時間変化が十分早く緩和するとした準定常状態を仮定して時間変化を 0 としてポピュレーションを求める。典型的な速度方程式は、

$$\begin{aligned} \frac{dn(i)}{dt} = & \sum_{j < i} C(j,i)n_e n(j) \\ & + \sum_{k > i} \{F(k,i)n_e + A(k,i)\}n(k) \\ & - \sum_{k > i} C(i,k)n_e n(i) \\ & - \sum_{j < i} \{F(i,j)n_e + A(i,j)\}n(i) \\ & - S(i)n_e n(i) \\ & + \{\alpha_{RR}(i) + \alpha_{DR}(i) + \alpha_{TBR}(i)n_e\}n_e n_{q+1}/n_q \\ = & 0 \end{aligned} \quad (2.3)$$

となる。ここでは、準位 i に対し、上にある準位を k 、下にある準位を j とし、 C は電子衝突励起速度係数、 F は電子衝突脱励起速度係数、 S は電子衝突電離速度係数、 A は放射遷移確率、 α_{RR} は放射性再結合速度係数、 α_{DR} は二電子性再結合速度係数、 α_{TBR} は三体再結合速度係数、 n_{q+1} は一つ上の価数 $q + 1$ のイオンの基底状態の密度を表す。この速度方程式の中の電子衝突励起・脱励起速度係数、電子衝突電離速度係数、

各再結合速度係数は、それぞれの衝突過程の断面積に対し、プラズマ中の電子の速度分布をかけて速度で積分して求めるため、プラズマの電子温度に依存する原子データである。従って、ポピュレーションは電子温度と密度に依存することになる。励起状態ごとにこのような速度方程式を立て、連立方程式を組み立てて解くことにより、励起状態のポピュレーションが求められ、発光線強度を求めることができるようになる。

この衝突輻射モデルでは、基底状態のポピュレーションは解かず、固定値 (通常は 1 を仮定) として与えて、それに対する各励起状態のポピュレーションとして解き、最終的には 1 と仮定した基底状態も含めてポピュレーションの総和が 1 になるように規格化する。基底状態のポピュレーションはプラズマの電子温度や密度の変化に応じて変化するので、別の速度方程式を立てて解く必要がある。その際、電離速度係数や再結合速度係数には、励起状態を経由した過程の寄与を加えた衝突輻射電離速度係数・再結合係数を用いる必要が生じる。本稿の第 3, 4 章で紹介するスペクトル解析にあたっては、基底状態に関するモデルには言及せず、励起状態の衝突輻射モデルによって得られる発光線強度を用いて議論を進める。

衝突輻射モデルを構築するには、式(2.3)に使われるすべての原子データが必要で、多くの励起状態を考慮すると、膨大な量となる。そのため、主量子数の大きな励起状態は、水素様レベルとして近似するなどの方法も工夫されてきた。励起状態のどこまでモデルで扱うか、微細構造レベルは分解されているか、主量子数の大きなレベルはどう扱うか、などの仮定や、モデルに用いる原子データがどのような方法で得られているかなど、様々な衝突輻射モデルが構築可能である。

そのような衝突輻射モデルにより得られる発光線強度と電子密度や温度などとの関係の信頼性は、モデルに用いる原子データの信頼性と、モデルにおける仮定の妥当性に依存する。従って、モデルの妥当性を実験などで検証することは重要である。

3. 電子ビームイオントラップを用いたタングステン多価イオンの分光計測

核融合プラズマのような高温プラズマ中では、混入(導入)された中性原子は高エネルギー電子の衝撃にさらされ、もはや原子のままでは安定に存在することができずイオン化する。しかも磁場閉じ込め装置の場合、不純物であれ、荷電粒子であれば閉じ込められることになり、常に高温の電子にさらされ1価が2価、2価が3価というように逐次電離が進み、多価イオンがプラズマ内に蓄積される。閉じ込められた多価イオンは、プラズマの温度が高くなるにつれ高電離化が進むことになり、プラズマ温度と生成多価イオンのイオン化エネルギーとの間には、密接な関係にあることは容易に理解できるであろう。また閉じ込められた多価イオンは、電子衝撃により励起状態となり、ある寿命の後、脱励起して光や電子を放出する。この光(可視光からX線にまで至る広い波長範囲の光)を観測することにより、閉じ込められているイオンの価数同定や電子状態の情報、プラズマの電子温度や密度など、またプラズマ中の粒子輸送などの情報まで得ることが可能である。

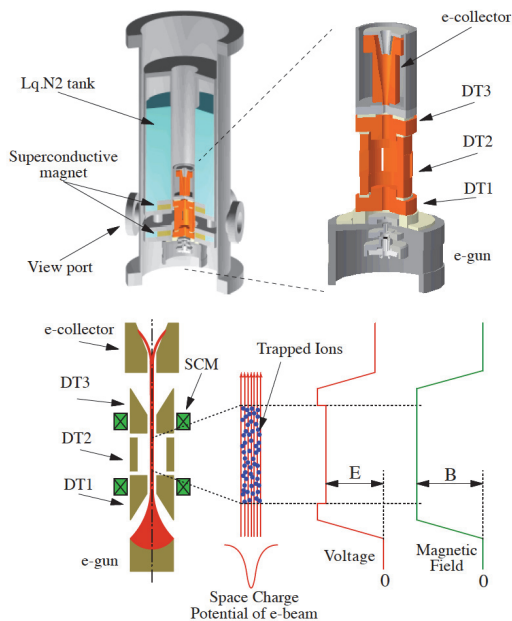


図 3-1: (上)核融合科学研究所の小型電子ビームイオントラップ (CoBIT) の概略図。装置中央部分で多価イオンを生成し、その発光を観測する。(下)CoBIT のトラップ部分のポテンシャル模式図。

ところで、第 1 章でも述べたが、近年、次期核融合装置のダイバータなどのプラズマ対向壁に用いられる材料の有力な候補として挙げられているタングステンが注目されている。重元素であるタングstenは、プラズマ対向壁として優れている反面、スパッタリングにより不純物多価イオンとしてプラズマ内部に蓄積され、放射損失によりプラズマを冷却してしまうことが指摘されている。従ってプラズマ中でのタングsten多価イオンの発光や挙動を知ることが、核融合プラズマを制御する上で非常に重要となってくる。ところが、プラズマ中の高電離化した不純物タングsten多価イオンの発光ラインの同定手法は、多電子系による放出スペクトルの複雑さ故に、未だ確立されていないのが現状である。我々は、この現状を打破するために、タングsten多価イオンの原子データの取得を目的として、独自に多価イオン源 CoBIT (Compact Electron Beam Ion Trap) [8]を開発し、タングsten多価イオンの分光学的研究を進めている。図 3-1 に CoBIT の概略図を示す。この多価イオン源は、高効率に多価イオンを生成することが可能で、トラップ領域にイオンを閉じ込め、その多価イオンからの発光を連続的に観測することができる。CoBIT はペニング様イオントラップとそれを貫く高エネルギー電子ビームから成り、その主な構成部品は、電子銃 (e-gun)、ドリフトチューブ (DT1~3)、電子コレクター (e-collector)、高温超伝導磁石 (SCM) である。ドリフトチューブは三つに分割された円筒型電極から成り、そこに井戸型ポテンシャル E を印可することによって軸方向にイオンを閉じ込める。径方向には、超伝導磁石による軸方向の強磁場 B と高密度に圧縮された電子ビームの空間電荷ポテンシャルによってイオンを閉じ込める。多価イオンの種となる原子は、ガス導入装置によりイオン源真空容器内に導入される。タングstenの場合、タングstenヘキサカルボニル ($W(CO)_6$) の昇華現象を利用し導入される。このように三次元的にトラップされたイオンが、高エネルギー電子による逐次電離を受け、多価イオンが生成される。閉じ込められたイオンは短い時間の後(価数にもよるがマイクロからミリ秒のオーダー)、電離平衡状態となり、電子エネルギーに対応する価数の

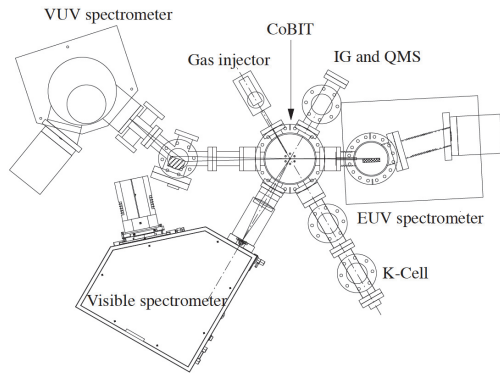


図 3-2: CoBIT に設置された専用の極端紫外 (EUV) 分光装置. その他に真空紫外 (VUV) 分光器や可視 (Visible) 分光器も設置されている.

多価イオンがトラップされ、ドリフトチューブに開けられた観測用スリットから、多価イオンと電子の衝突過程を分光学的に研究することが可能である。しかも我々は、従来の高電離多価イオンを研究対象としたEBITのように、高エネルギー(数百 keV)の電子ビームを用いず、研究対象となる太陽外層大気プラズマや磁場閉じ込めプラズマ装置などの温度に対応した数 keV から数百 eV 程度の電子エネルギーに限定し、中程度の多価イオンを生成する専用の装置とすることで、コンパクトで高温超伝導磁石を用いた液体窒素での運転を可能にした装置を作り上げた。そうすることで、テーブルトップタイプの操作性の良い、低コストの多価イオン実験装置が実現した。

CoBIT は、種々のプラズマ光源と異なり、単色電子ビームにより生成・励起された多価イオンからの発光を観測できるため、(1) 多価イオンの電離状態つまり価数 q を電子ビームエネルギーにより制御が可能、(2) 共鳴過程など(例えば二電子性再結合過程など)電子ビームエネルギーに依存した発光過程の観測が可能、(3) ドップラーシフトが無くドップラー拡がりも小さいため精密分光が可能、などの長所がある。図 3-2 に CoBIT に設置した極端紫外 (EUV) 分光器の概略図を示す。本装置には、可視、真空紫外 (VUV)、極端紫外分光器が設置されている。電子軌道の変化を伴う遷移波長は、多価イオンの価数が高くなるに従い短くなり、可視から真空紫外、極端紫外、軟 X 線波長領域へとシフトしていく。タングステン

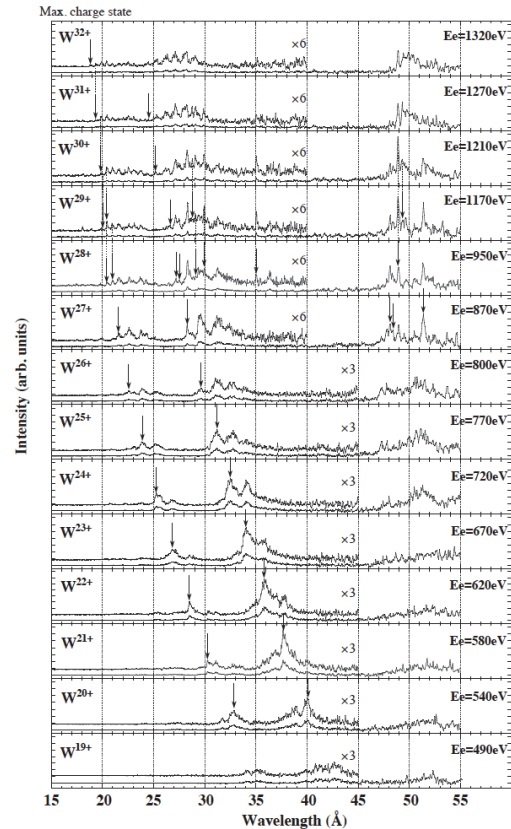


図 3-3: CoBIT で観測されたタングステン多価イオン EUV スペクトルの電子エネルギー依存性. CoBIT の電子ビームエネルギーを変化させると発光ラインが短波長側にシフトしていくが見られる。

多価イオンの場合も比較的温度の高いプラズマでは、極端紫外から軟 X 線領域の発光が顕著になってくる。我々はこの領域の発光過程を研究するために、CoBIT 専用の極端紫外分光システムを独自に開発・設計し CoBIT に設置している [9,10]。前述のように CoBIT の電子ビームは強磁場で圧縮されているため、その直径は百 μm オーダー以下になる。つまり細い線光源であり、光源をスリットと見なすことで、波長分散分光器を入射スリット無しで使用することが可能となる。回折格子に平面結像型凹面回折格子を用い、スリット位置に光源を配置することで集光レンズなしの光学的に明るい分光システムを構築することが可能となった。EUV 領域のようなレンズによる集光が困難となる短波長光には非常に有効である。

CoBIT の電子エネルギーは 100 eV から数 keV 程度まで可変で、生成されるタングステン多価イオンは W^{10+} から W^{40+} 程度まで可能である。これ

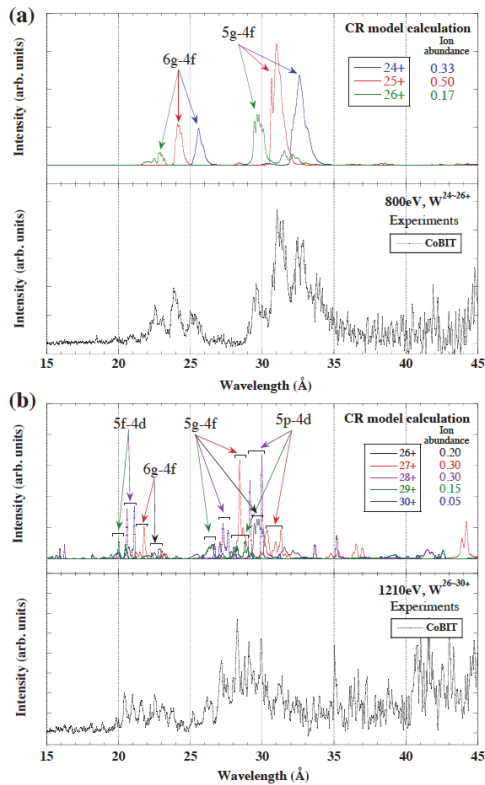


図 3-4: 電子エネルギー(a) 800 eV, (b) 1210 eV の CoBIT のスペクトルとそれぞれに対応した CR モデルにより理論計算されたスペクトル。

はちょうど LHD であれば、温度の比較的低いダイバータ・周辺プラズマから高温部分のコアプラズマ付近までで存在するタングステン多価イオンの価数に匹敵する。図 3-3 に CoBIT で観測されたタングステン多価イオンスペクトルの電子ビームエネルギー (E_e) 依存性を示す。波長は 15 ~ 55 Å の範囲で EUV 領域のスペクトルである。図から分かるように、スペクトルは強いエネルギー依存性を示す。それぞれの矢印で示した発光ピークの出現エネルギーは、タングステン多価イオンのイオン化エネルギーに関係付けられ、それらの考察から帰属イオン価数を同定することが可能であり、そのタングステンの価数を図の左側に Max. charge state として示してある。ここで、矢印の発光ピークが、電子ビームエネルギーの増加に伴い短波長側にシフトしていく様子が見てとれる。これは、多価イオンの価数増加により、同種の電子遷移でもエネルギー準位間隔が次第に広がり、遷移エネルギーが大きくなる、つまり遷移波長が短くなっていくことに起因している。

このような実験的な考察と並行して、理論的な

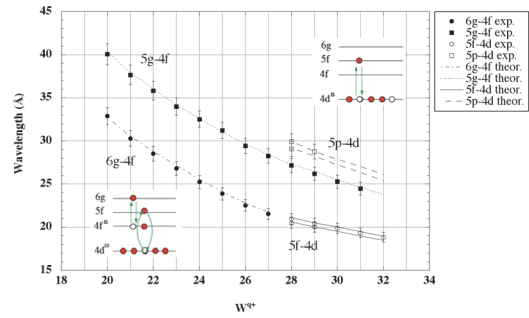


図 3-5: タングステン多価イオンにおける同定された遷移波長の価数依存性。

考察(衝突輻射モデル:第2章参照)により、これらの発光ピークの電子遷移の同定が可能である。図 3-4 (a), (b)に電子エネルギー800 eV と 1210 eV のスペクトルを示す。CoBIT のエネルギーの違いにより異なった電子遷移のピーク(6g-4f, 5g-4f, 5f-4d, 5p-4d)が表れている。CoBIT のデータと衝突輻射モデルによる計算結果を同定されたタングステン多価イオンの価数で比較したものが図 3-5 である。それぞれの実験値が理論値と非常に良く一致しており、しかも W^{28+} で 4f 電子が無くなり閉殻構造となることで、異なる励起遷移チャンネルが開いていることがよくわかる。

以上のように我々は CoBIT を用い、タングステン多価イオンの発光スペクトル情報を得ることが

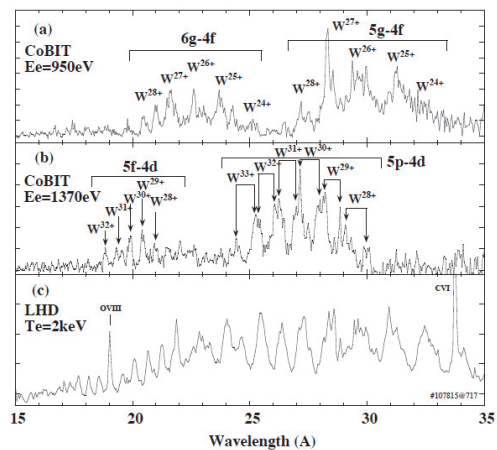


図 3-6: (a), (b)はそれぞれ電子エネルギー950 eV, 1370 eV の CoBIT で測定されたスペクトル。CoBIT で同定した発光線に対応したピークが LHD のスペクトルに表れている。(c)は核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)にタングステンペレットを入射したときの EUV スペクトル。電子エネルギーは 2 keV。

できた[11]. これらを用い、核融合装置における複雑なスペクトルの解析を行っていく。プラズマの電子エネルギーはマックスウェル分布しており、プラズマからの発光スペクトルは、これら CoBIT の異なった単色電子ビームエネルギーでのスペクトルの重ね合わせで表現することが可能である。図 3-6 (c)は LHD へのタングステンペレット入射時の典型的なスペクトルで電子温度 $T_e = 2 \text{ keV}$ である。図 3-6 (a), (b)に CoBIT で測定された電子エネルギー $E_e = 950 \text{ eV}, 1370 \text{ eV}$ でのスペクトルを示す。これらを比較すると CoBIT で表れるピークが LHD のスペクトルに表れるピークにそれぞれ対応していることがわかる。プラズマからのスペクトル線は単純に価数で並んでいるのではなく、多くの価数のしかもいろいろな遷移が重なった複雑なスペクトル線であることが、この CoBIT のデータとの比較により明らかになってきた。このようなプラズマからの複雑なスペクトル線の詳細な同定は、CoBIT の登場によって初めて可能となった。

以上のように、プラズマ中の多価イオンの解析に非常に有効なツールである多価イオン源 CoBIT は、我々共同研究グループが独自に開発したオリジナルの実験装置であり、この比較的低いエネルギー領域(100 eV~数 keV)では現在世界をリードしている[12,13]. 我々NIFS の共同研究グループは、その重責を十分理解し、より精度のよい系統的な多価イオン分光データを提供していくことを心がけている。

4. LHD を用いたタングステン多価イオンの極端紫外分光計測

LHD は Large-Helical-Device の略称で、1998 年から実験を始めた世界最大のヘリカル型磁場閉じ込めプラズマ実験装置である(図 4-1). 捩れた円環(ドーナツ)状の磁気面(磁力線)でできた筒状のかごを形成するためにらせん状の外部磁場コイルを用いる方式をヘリカル型と呼び、一方、ITER などに代表されるトカマク型はプラズマの内部電流を用いる方式である。プラズマは幾重にも入れ子になった磁気面に閉じ込められ、磁力線に沿った方向にはプラズマの荷電粒子と熱の拡散が速いため、

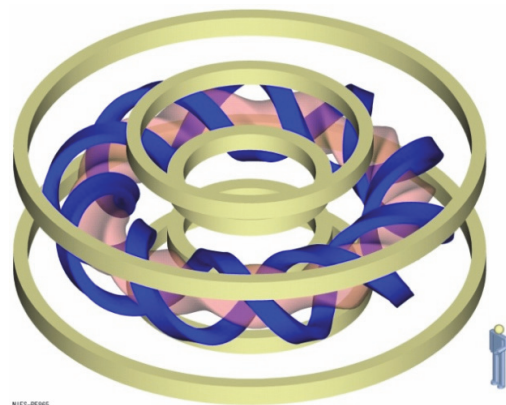


図 4-1: LHD のコイル構造[14]. 超伝導ヘリカルコイル(青色)により真空容器内部に捩れた磁気面を生成する。ポロイダルコイルにより垂直磁場を生成しプラズマ円環(ピンク色)の拡がりを抑える。

与えられた磁気面上の温度と密度はほぼ一様である。一方、磁気面を横切る方向には荷電粒子と熱の拡散が制限され、温度と密度の勾配が形成される。電磁誘導により内部電流を駆動するトカマク型の場合にはパルス運転となり、内部電流を安定に維持することが容易ではないが、ヘリカル型は原理的に長時間の定常運転が容易であるため、トカマク型とならび有力なオプションとして将来の発電炉に向けた研究が進められている。

開いた磁力線に沿って高い熱流速が流れ込むダイバータには、ITER では融点が高く炉内トリチウム蓄積量の抑制などの理由でタングステン材料が使用されるが、タングステン

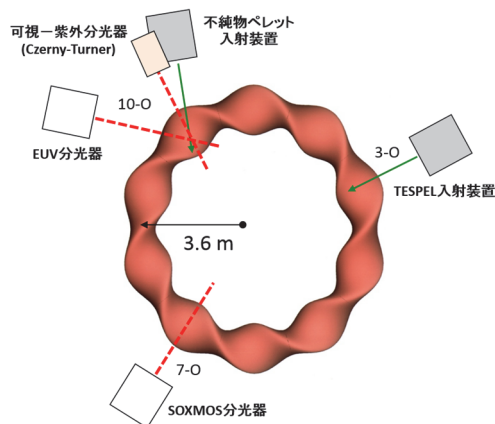


図 4-2: ヘリカルプラズマの円環を真上から見た模式図。分光器とペレット入射装置のポートの配置図。

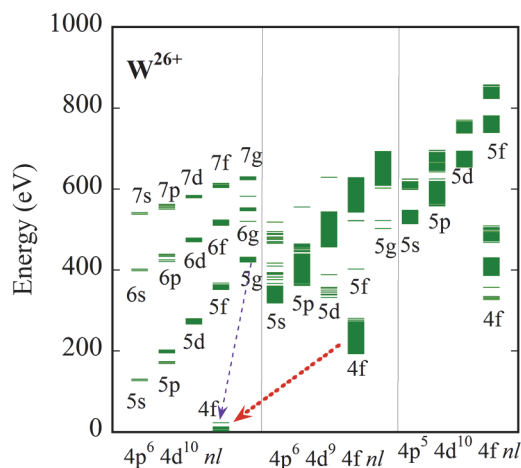


図 4-3: 26 価タングステニオンのエネルギーダイアグラム。青点線の $4p^6 4d^{10} 5g$ から $4p^6 4d^{10} 4f$ への遷移が 3 nm のピークに、赤点線の $4p^6 4d^9 4f^2$ から $4p^6 4d^{10} 4f$ への遷移が、5 nm 付近の UTA になる。

はスパッタされてプラズマに混入する。プラズマの定常維持のためには、中心プラズマに蓄積するタングステンの数密度の許容量は燃料である水素同位体の 10 万分の 1 程度までという試算がある[15]。そのため、実際に磁場閉じ込めプラズマ中でタングステニオンがどのように分布するのかについて高い関心もたれており、世界の主要な装置で盛んに研究が進められている。LHD はダイバータ材料に炭素繊維材料を用いているため、ペレット入射によってタングステンの分光研究を行っている。図 4-2 にヘリカルプラズマ環を真上から見た模式図に、2 種類のペレット入射装置（トレーサー内蔵固体ペレット (TESPEL) [16] と不純物ペレット）、可視紫外分光器、EUV 分光器、真空紫外分光器 (SOXMOS) の配置図を示す。

LHD はタングステンのような高 Z の不純物を入射してもプラズマを維持することが可能で、分光データの取得にも適している。これまで EUV 領域に現れる N 殻イオンからの強い発光線に注目した研究が多数報告されてきた[17,18]。

原子番号 74 のタングステンは ITER のプラズマ中心温度 15~30 keV でも 71 価までしか電離せず、トカマク装置 JET や JT-60U での 10 keV

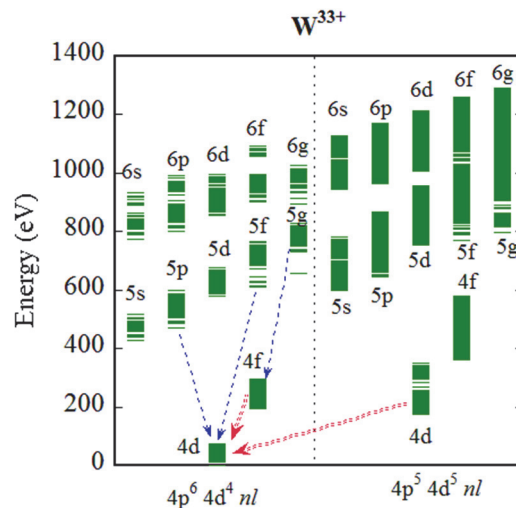


図 4-4: 33 価タングステニオンのエネルギーダイアグラム。

のプラズマで 64 価、LHD では 3 keV 程度のプラズマ中で 45 価までのタングステン多価イオンからの発光線の情報が必要となる。しかし、特に 43 価 (Ga 様イオン) より低い価数のタングステニオンの原子構造の研究はそれほどすすんでおらず、同定されている発光線も少ない[19]。従って、プラズマ中のタングステンの挙動を調べるには、まず発光線の波長とその遷移の同定、そして発光強度とプラズマパラメータとの関係を知る必要があり、そのためには信頼できる原子データと分光モデルが必要となってくる。

特に、1~2 keV のプラズマの場合、第 1 章で述べたように、5 nm 付近に幅広い発光構造、UTA が観測され、放射損失の大部分を担うが、これを記述する分光モデルの構築が問題となっている。この発光構造は、主量子数 $n=4$ が開殻のイオンの $4p-4d$ 遷移と $4d-4f$ 遷移の波長がほぼ同じになるために形成されると考えられている。この発光構造は、原子番号 50 の錫や 54 のキセノンでも同様に見られ、狭帯域化したこの UTA を半導体リソグラフィーの為に次世代光源として用いるために多くの研究が行われた[20,21]。スペクトルの狭帯域化には、配置間相互作用 (CI) が重要な役割を果たしていることが調べられた[22]。

我々は 20~45 価のタングステニオンの原子構造と放射遷移確率、電子衝突励起断面積を Hullac 原子コード[23]を用いて計算し、衝突輻射

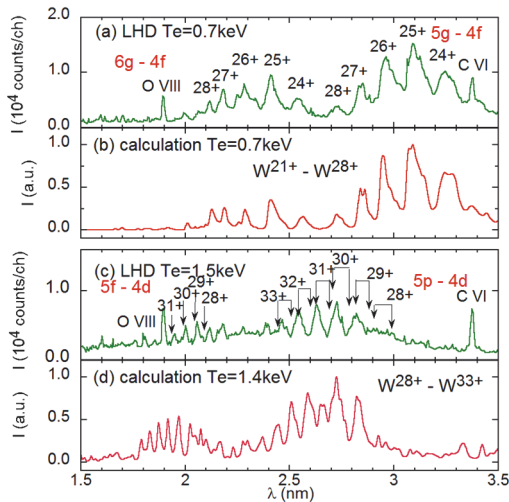


図 4-5: EUV スペクトル. (a), (c) LHD での測定値と, (b), (d)理論計算合成スペクトル. LHD プラズマの中心電子温度は(a) 0.7 keV と(c) 1.5 keV のそれぞれの場合. 計算は LHD を再現するようにイオン存在比を決めて合成した.

モデルを構築して発光線強度を計算した. Hullac コードは, 相対論的なスピン軌道関数に基づいて, 多価イオンの原子構造, 放射遷移確率, 電子衝突励起断面積等を計算する原子コード群で, 電子配置のセットを指定すれば, 衝突輻射モデルの構築に必要な様々な原子過程データを計算できる. 励起状態は, $n = 4-6$, $l = 0-4$ の電子配置を考慮した. 一部のイオンは $n = 8$ まで考慮してある. 微細構造レベルとして最大約 23000 レベルをモデルに取り込んだ[24]. このモデルには, まだ再結合過程は取り込まれていない.

第 3 章で述べたように, CoBIT による EUV 分光計測により, 2~4 nm にたくさんの発光ピークが計測され, 衝突輻射モデルの計算と比較することにより, これらのピークは, 19~32 価タングステンイオンの 6g-4f, 5g-4f, 5f-4d, 5p-4d 遷移であることが同定された[25]. 例として図 4-3 と図 4-4 に 26 価と 33 価タングステンイオンのエネルギーダイアグラムを示す. 図 4-3 の 27 価以下の 4f 開殻イオンと, 図 4-4 の 29 価以上の 4d 開殻イオンでのエネルギー準位の違いが分かり, 前者は 5g-4f 遷移が, 後者は 5f-4d, 5p-4d 遷移が強くなることが予想できる. また, 4.5~6 nm の UTA 発光構造は, 基底状態への 4d-4f 遷移, 4p-4d 遷移によ

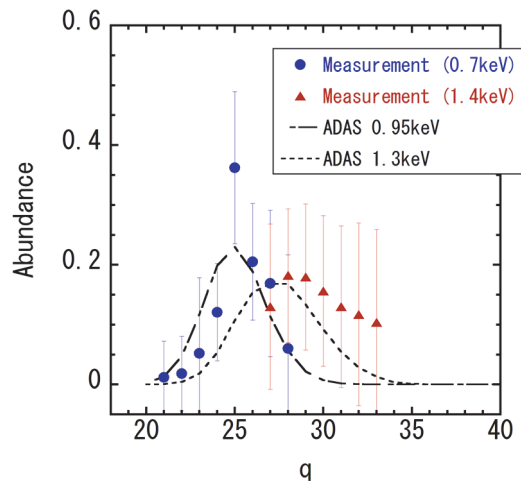


図 4-6: LHD の 1.5~3.5 nm のスペクトルへのフィッティングにより評価したタングステンイオンの価数分布(●, ▲)と, ADAS データベースの電離速度係数と再結合係数により電離平衡を仮定して計算した価数分布(一点鎖線, 点線).

って形成されると考えられる.

CoBIT の計測によって明らかになったように, これら $n = 5-4$ 遷移の波長が価数によってシフトすることから, これらを利用してプラズマ中のタングステンイオンを調べることができる.

LHD プラズマにペレットを利用して少量のタングステンを入射し, EUV 分光計測を行うと, 2~4 nm 領域の発光線は, CoBIT と似たスペクトルを示し, プラズマの電子温度の変化と連動した変化が観測された. このスペクトルに対し, 衝突輻射モデルを使って計算した各イオンのスペクトルにイオン存在比をパラメータとしてかけて合成したスペクトルでフィットを行い, イオン存在比を推定した. LHD 実験では, トムソン散乱計測により電子温度と密度が計測でき, それで得られたプラズマ中心領域における電子温度と密度を衝突輻射モデルの計算に用いた.

図 4-5 に LHD での計測したスペクトルとモデルで計算したスペクトルを, 図 4-6 に得られたイオン存在比を示す. モデルは計測されたスペクトルをよく再現している. フィッティング誤差は大きい, LHD プラズマでのタングステンイオン価数分布を初めて実験的に得ることができた. また, この分布は, ADAS データベース[26]にある電離速度係数と再結合速度係数を用いて電離平衡を仮定して計算された価数分布とも似ている.

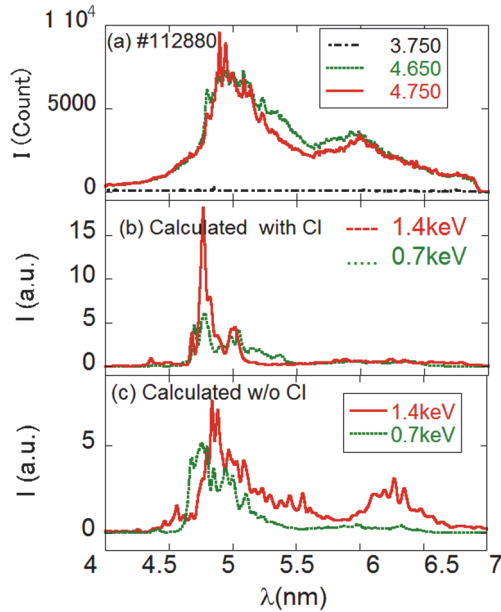


図 4-7: (a) LHD の SOXMOSS 真空紫外分光器で計測したスペクトル。一点鎖線はペレット入射前、緑点線は 4.65 秒時、赤実線は 4.75 秒の時。(b) CI を入れた各イオンごとのスペクトルを、計測でもとめたイオン価数分布をかけて合成したもの。(c) 原子構造計算の時に CI の効果を入れずに計算した原子データによる衝突輻射モデル計算の結果を用いて、(b)と同様に価数分布をかけて合成したもの。

更にこの価数分布を用いて、5 nm 付近の UTA がモデルにより再現できるか調べてみた。図 4-7 に LHD で計測したスペクトルとモデルで計算したスペクトルを示す。計算したスペクトルは、衝突輻射モデルで得られた各イオンのスペクトルに価数分布をかけて合成したものである。原子構造の計算の際に配置間相互作用 (CI) が考慮していない場合と考慮した場合の結果を示す。例えば 33 価のタングステニイオンの場合、この UTA のメインの 5 nm ピークは励起状態 $4p^64d^44f$ から基底状態 $4p^64d^5$ への $4d-4f$ 遷移、6 nm の二目のピークは、励起状態 $4p^54d^6$ から基底状態への $4p-4d$ 遷移が主に寄与している (図 4-4 参照)。これらの状態間での CI が効くと、 $4p-4d$ 遷移の遷移確率が 1 桁以上小さくなると共に、 $4p^54d^6$ から $4p^64d^44f$ への二電子一光子遷移が起こり、 $4p^54d^6$ のポピュレーションが小さくなり、6 nm の発光線が非常に弱くなるという結果を得た。ほかの価数のイオンでも同様の状況が起こり、価数分

布で合成したスペクトルでも、非常に狭帯域化した 4.8 nm の強いピークしかできない。

この状況は、錫のときとよく似ているが、LHD やトカマク装置では、図 4-7(a)に示すようにダブルピークの発光構造が計測されており、残念ながら現在のモデルでは再現には至っていない。

この衝突輻射モデルには、再結合過程が入っていない。タングステニイオンの再結合過程の原子データが未整備だからである。LHD のようなプラズマでは再結合過程に起因する発光の寄与が十分考えられるのでそれをモデルに入れる必要がある。一方、CoBIT で単一エネルギーの電子ビームで逐次電離しているプラズマを計測する場合は、再結合過程はほとんど効かないと考えられているが、30~35 価の 5~6 nm のスペクトルを CoBIT でも詳細に計測してみる必要があり、今後の課題である。

ここ数年、タングステニイオンの原子データも衝突輻射モデルも研究が進み、実験データもいろいろ蓄積がされてきた。しかしながら、UTA 構造はまだ完全に理解できていない。この発光構造は放射損失に大きく寄与すると考えられるため、より深い理解が必要である。6 nm のピークが再結合過程で説明ができたとしても、狭帯域化した 5 nm のピークは計測されたスペクトルとかけ離れており、更なる研究が必要である。

5. 基底項禁制線を用いた磁場閉じ込めプラズマ中の多価イオン分布計測

磁気双極子 (M1) 遷移は光学的禁制遷移であり一般に遷移 (発光) 確率は小さいが、可視域に現れる多価イオンの基底項微細構造間の M1 遷移は太陽コロナ (第 1 章で述べた Fe^{13+} の M1 線もその例) や惑星状星雲などの様々な天体プラズマで古くから観測されている。可視域の M1 線は自然幅が狭く、イオン温度のドップラー計測に適しているなど、プラズマ診断に有用な特長もあることから、Feldman ら [27] により重元素不純物多価イオンの基底項 M1 線を核融合プラズマ診断に用いることが提案された。また、Doron ら [28] は可視から紫外域の M1 線の強度比が電子密度依存性を示すことを理論計算によって示した。一方、

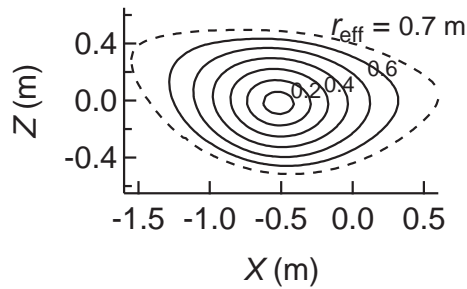


図 5-1: 観測視線が載る横長ポロイダル断面。右側が観測方向。

原子物理的興味から、 $3d^4$ 基底状態をもつチタン様多価イオンについて、そのような可視域 M1 遷移の系統的研究が電子ビームイオントラップを用いて行われた[29]。

大型磁場閉じ込め装置でタングステン多価イオンの近紫外～可視域 M1 発光を用いた研究例はなかったが、CoBIT 装置（本稿第 3 章参照）をはじめ、上海の復旦大学にある同型装置を用いてタングステン多価イオンからの発光線が多数同定され[30–33]、それが可能となった。この波長領域なら光ファイバーを用いた遠隔検出が容易であり、将来の核融合プラズマ計測に必要な計測機器の中性子遮蔽の点で優れている。本章では、LHD でのタングステン多価イオンの近紫外～可視域に現れる基底項 M1 線の観測[34]と、それを用いた磁場閉じ込めプラズマ中でのタングステン多価イオン分布の研究について紹介する。

中心温度が約 2.5 keV まで加熱された LHD の水素プラズマに、タングステン粒を内包したトレーサー内蔵固体ペレット (TESPEL) [16]を入射し、CCD 検出器を装備した Czerny-Turner 型の可視 - 紫外域分光システム（波長分解能 $\Delta\lambda \sim 0.045$ nm [35]）を用いて発光線を観測した（装置の配置図は図 4-2 を参照）。並列する 40 本の光ファイバーによってヘリカルプラズマ環の横長ポロイダル断面（図 5-1）の縦方向（Z 方向）を 40 チャンネルの視線に分割して分光スペクトルを測定した。視線方向はプラズマ垂直断面に対して 6 度傾いているため、視線の載るポロイダル断面は $Z=0$ に対して非対称になっている。したがって、視

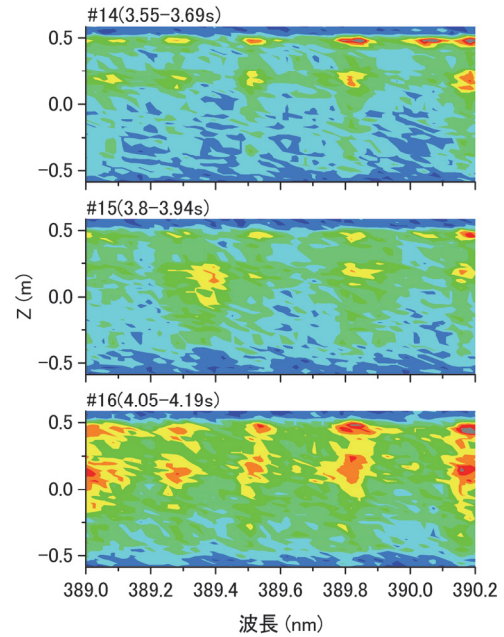


図 5-2: 3 つの連続した時間フレーム(#14, #15, #16)で検出された発光強度の CCD イメージ。TESPEL は#15 フレームの直前で入射された。イメージのスケールは CCD 検出器の 1 ピクセルあたりに検出された光子数。

線積分発光強度の Z 方向分布も非対称となり、周辺部での発光は $Z=0.5$ m と 0.2 m 付近で極大を示す。図には有効小半径 (r_{eff} : effective minor radius) も示している。原点がプラズマ中心に対応する。ある磁気面を成す磁力線に沿ってドリフト運動する荷電粒子の軌跡は、ポロイダル断面上で有効小半径一定の閉曲線を描く。

測定ではプラズマからの発光を 250 ms ごとに 140 ms 間サンプリングして、各時間フレームでの発光線スペクトルを取得した。ペレット入射後、タングステン粒の溶発、電離、タングステンイオンの励起と光放射によりプラズマの電子温度は急激に低下する。測定を行った LHD 放電では、TESPEL (タングステントレーサー量 $\sim 3.32 \times 10^{17}$ 個) 入射直後の 140 ms の時間フレームに、プラズマ中心 (大半径 3.6 m) の電子温度 (最高温度) は約 2 keV から 800 eV に低下した。その後の時間フレームでは、約 350 eV 以下まで電子温度が低下した。

図 5-2 に、TESPEL 入射の前後の連続した 3 つの時間フレーム (#14-16) で検出された発光

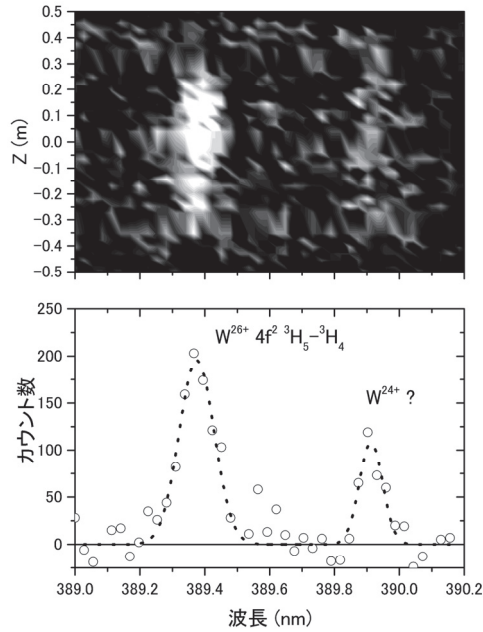


図 5-3: TESPEL 入射直後の時間フレーム (#15) で検出された 1 ピクセルあたりの光子数から、前の時間フレーム (#14) のものを差し引いた CCD イメージと、それを Z について積分した発光スペクトル. 点線はガウス関数へフィッティングした結果.

の CCD イメージを示す. 横は波長分散, 縦は横長ポロイダル断面 Z 位置に対する視線積分発光強度の分布を表している. 波長較正には, 同放電の終盤に現れる水素原子のバルマー線シリーズを用い, これによる誤差はおおよそ 0.04 nm であった. いずれの時間フレームのイメージでも, $Z = 0.5 \text{ m}$ と 0.2 m に発光強度の極大が見られる. これらはポロイダル断面の形状から周辺部での発光と考えられる. #16 フレームでは, 中心電子温度は低い平均電子密度とプラズマからの放射パワーの極大期に当たり, 周辺部での発光が強くなっている. #15 フレームのイメージだけには, これらとは別に, 波長 389.4 nm で $Z = 0$ 周辺に極大を持つ発光強度のピークが重畳しているのが分かる.

図 5-3 に, TESPEL 入射直後の時間フレーム (#15) で検出された 1 ピクセルあたりの光子数から, 前の時間フレーム (#14) のものを差し引いた CCD イメージ, およびそれを Z について積分した発光スペクトルを示す. $Z = 0$

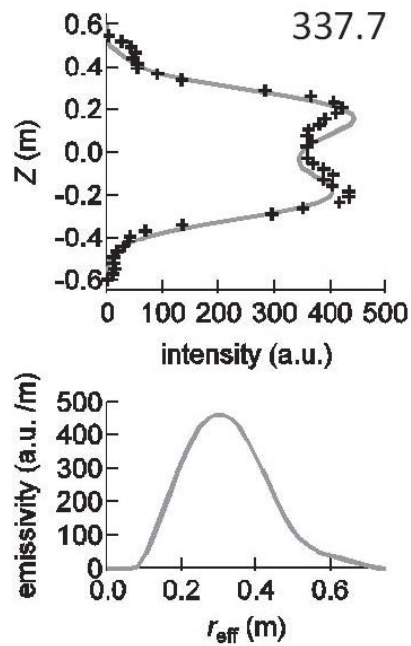


図 5-4: W^{27+} の基底項 M1 線 (337.7 nm) の視線積分強度の測定値 (+). 実線は逆アーベル変換によって下図の径方向分布を与える.

の周辺に極大を持つピークが, 先ほど述べた 389.4 nm 付近 (ピーク A) に加え, 389.9 nm 付近 (ピーク B) にも見られる. 表 5-1 には, 発光スペクトルを正規分布関数にフィッティングして得られた中心波長 (標準偏差 $\sigma < 0.01 \text{ nm}$) と, CoBIT を用いた実験により価数同定されたタングステン多価イオンからの発光線のうち, 今回の波長と最も近いものを示した. ピーク A については, grasp2K コード [36] により相対論効果と電子相関効果を考慮した多配置ディラック - フォックおよび配置間相互作用計算の結果 [37], W^{26+} の基底状態 $4f^2$ の基底項微細構造準位 3H_J の M1 遷移 $J = 5 \rightarrow 4$ による発光線であることが明らかにされている.

表 5-1: タングステン多価イオンからの発光線の波長 (nm). カッコ内の数字は不確定誤差.

	Present[34]	EBIT	Theory
A	389.37(4)	389.41(6)[30] 389.35(3)[31]	388.43[37]
B	389.91(4)	389.89(6)[30]	—

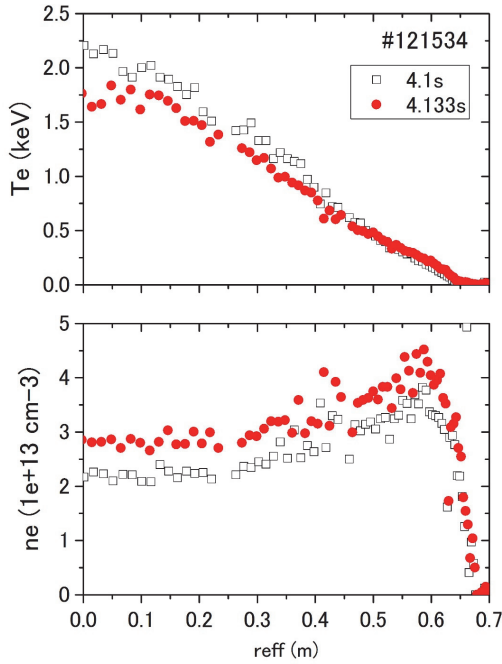


図 5-5: 発光測定中 ($t = 4.1\text{--}4.138$ 秒) にトムソン散乱計測により得られた電子温度(上)と電子密度(下)の径方向分布.

ピーク B の中心波長は, CoBIT の測定[30]により W^{2+} からの発光線として価数のみ同定されているものとほぼ一致する.

図 5-4 には同様に同定された W^{27+} の基底項 $4f^2F_J$ の M1 線 ($J = 7/2 \rightarrow 5/2$) の視線積分強度分布と, 横長ポロイダル断面 (図 5-1) の逆アーベル変換によって得られた発光線強度の径方向分布を示す. 発光線強度の径方向分布は, それをポロイダル断面の X について積分変換したものが実際に測定された視線積分強度の分布に近くなるように最小二乗法によって求められている. この積分変換は軸対称系ではアーベル変換と呼ばれ, 与えられた視線積分強度を再現するような径分布を求めることを逆アーベル変換という. LHD の横長ポロイダル断面は軸対称ではないが, 同様の変換を逆アーベル変換と呼ぶ場合が多い. この測定が行われたときの電子温度と密度の径方向分布を図 5-5 に示す. これらの結果を見ると, 同 M1 線の発光強度分布は局所的な電子温度がだいたい 1 keV になる位置 ($r_{\text{eff}} \sim 0.3$ m) でピークを示すことが分かる. 局所的な発光強度 I は, タングステン密度 n_w , q 価イオン

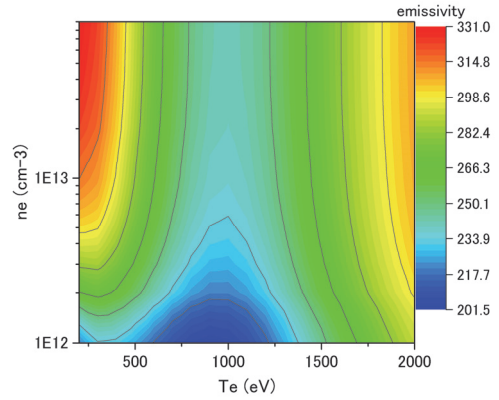


図 5-6: 衝突輻射モデルで計算した emissivity の電子温度 - 密度プロット. 赤色が emissivity の高い値を示している.

のポピュレーション P_q (q 価イオンの全体に占める割合), 励起準位 i のポピュレーション $n(i)$, 放射遷移 $i \rightarrow j$ の遷移確率 $A(i, j)$ を用いて次のように表すことができる.

$$I = n_w P_q n(i) A(i, j) \quad (5.1)$$

励起準位のポピュレーションと遷移確率が与えられれば, 測定された発光線強度の分布から q 価のタングステンイオン密度 $n_w P_q = n_q$ (第 2 章参照) の分布を得ることができる.

励起準位のポピュレーションは与えられた電子温度と密度における衝突輻射モデル(第 2 章参照)を解くことによって得られる. こうして得られたポピュレーションと遷移確率の積 $n(i)A(i, j)$ は emissivity と呼ばれる. 図 5-6 に, 今回の計算で得られた W^{27+} の基底項 M1 線の emissivity を電子温度と密度に対してプロットしたものを示す. 与えられた温度に対して, emissivity は低密度ではほぼ電子密度に比例して増加し, 高密度領域で一定値に飽和する傾向がみられる. Emissivity の電子密度依存性の変化は, 励起準位のポピュレーションを形成するキネティクスの変化によるものである. 低密度領域(コロナ相)では, 励起準位のポピュレーションが基底準位からの衝突励起速度に比例することを示している. 一方, 高密度領域(飽和相)では, 励起状態が光脱励起する前に, 引き続いて起こる電子衝突の結果, はしご様励起で励起準位のポピュレーションが他の

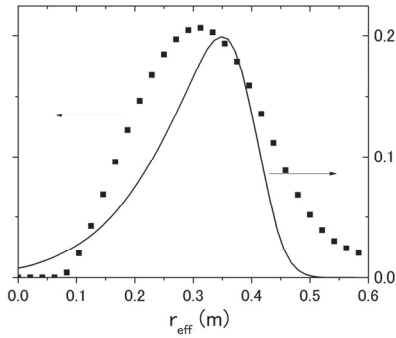


図 5-7: M1 線の emissivity から得られる W^{27+} のイオン密度分布 (■) と電離平衡計算によるポピュレーションの径方向分布 (実線).

準位へ流出するために電子密度に依存しなくなる. Emissivity の電子温度依存をみると, 低温側と高温側にピークが見られる. 前者は, 水素プラズマ中の電子衝突励起に起因し, 後者はプロトン衝突に起因するものである. M1 遷移の微細構造間のエネルギー差は数 eV と小さいため, 数 keV 程度の高温ではプロトン衝突による励起過程が emissivity を支配することを示している. ただし, この計算ではプラズマ中の電子密度とプロトン密度が等しいと仮定している. また, 現在のところデータの入手が困難なため, プロトン衝突断面積は電子衝突断面積を質量比でスケールして代用していることを断っておく.

図 5-7 は, M1 発光線の emissivity から得られた W^{27+} のイオン密度分布を示している. 先に示した M1 線発光強度分布とはほぼ相似であることが分かる. これは, 発光強度の高い電子温度領域で emissivity の変化が小さいためである. では, こうして得られたイオン密度分布はどのようなメカニズムによって形成されるのだろうか. 一定の電子温度と密度での q 価イオンのポピュレーションの時間変化は, タングステン密度が一定だと仮定すれば, 電離速度係数 S_q と再結合速度係数 α_q を使って次式で与えられる.

$$\frac{1}{n_e} \frac{dP_q}{dt} = -(S_q + \alpha_q)P_q + \alpha_{q+1}P_{q+1} + S_{q-1}P_{q-1} \quad (5.2)$$

初期条件を $P_0 = 1$, $P_{q \geq 1} = 0$ とし, 電子温度 1 keV, 電子密度 10^{13} cm^{-3} における電離・再結合

速度係数データ[38]を用いて計算してみると, W^{27+} イオンのポピュレーションが電離平衡値 $P_q(\infty)$ に達するまでに必要な時間は数ミリ秒であった. 速度係数自体が電子密度に強く依存しない範囲であれば, 電離平衡に達するまでの時定数を τ_{eq} とすると, 式(5.2)から明らかなように $n_e \tau_{eq} \sim 10^{10} \text{ cm}^{-3}\text{s}$ というスケーリングが成り立つ. 磁気面を横切って電子温度が相当変化する位置までイオンが移動するのに必要な時間が τ_{eq} に比べて十分長いのであれば, ポピュレーションの空間分布は局所的な電子温度と密度で決まると考えられる. そう仮定した場合の W^{27+} イオンのポピュレーションの電離平衡分布と M1 線の emissivity から得られたイオン密度分布を比べると, 概ねよくあっているように見える(図 5-7). 自明だが, タングステン密度 n_w の分布が空間的に一様であると仮定すれば, q 価イオンのポピュレーション P_q とイオン密度 n_q の空間分布は相似になる. しかし, 図 5-7 を詳しく見れば, ピークの位置に若干のずれがあり, 分布の裾野の形状に相違がみられる. プラズマ中心領域 ($r_{\text{eff}} \rightarrow 0$) からの発光強度の情報は, $Z = 0$ 近傍の視線積分に限られるため, 逆アーベル変換の結果に含まれる不確実性が一般にプラズマ周辺部のものより大きくなる. このため, プラズマ中心に近い領域では精度の高い比較が難しいという問題がある. LHD の真空容器の壁から流入してくる鉄イオンの場合, プラズマ中心方向への対流速度が周辺部で局所的に大きくなるという研究報告[39]があり, 周辺部ではイオン輸送効果(磁気面を横切る

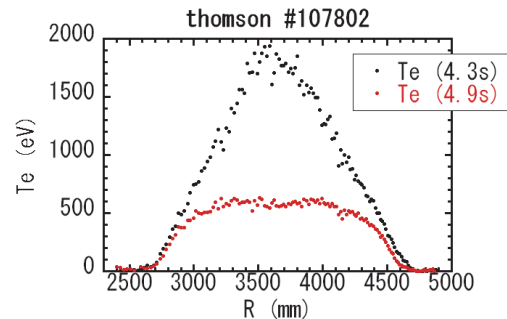


図 6-1: トムソン散乱計測で得られた電子温度分布. 横軸はトーラス中心からの距離で, およそ 3600 mm がプラズマ中心. 黒が時間 4.3 秒, 赤が 4.9 秒のときの分布.

イオンの拡散や対流によるイオン分布の電離平衡分布からのずれ)の影響が大きくなることが考えられる。また、プラズマ周辺部は他の軽元素不純物イオンからの発光線のブレンドの影響が含まれている可能性もある。今回得られたイオン密度分布の結果をより正確に理解するには、電離平衡計算に用いた速度係数データの評価、および磁気面を横切るイオン輸送(拡散や対流)のモデルによる解析が必要であるが、それらは今後の大きな課題である。

6. 鉄多価イオンの衝突輻射モデルの検証

2006年に打ち上げられた太陽観測衛星「ひので」に搭載されている極端紫外線撮像分光装置 EIS [40]は、波長域 17~21 nm, 25~29 nm にある主に Fe^{8+} から Fe^{23+} までの鉄多価イオン発光線をターゲットとして設計され、太陽遷移層と呼ばれる電子温度 6000 度の太陽表面(光球)と数百万度のコロナの間の急激に物理状態が変化する領域からの発光線の観測により、太陽プラズマの状態からコロナ加熱のなぞを探る研究が進められている。価数の異なるイオンを使って、異なる温度領域の物理状態を調べている。

鉄多価イオン発光線強度比と電子温度・密度の関係を使って太陽プラズマの状態を調べるに

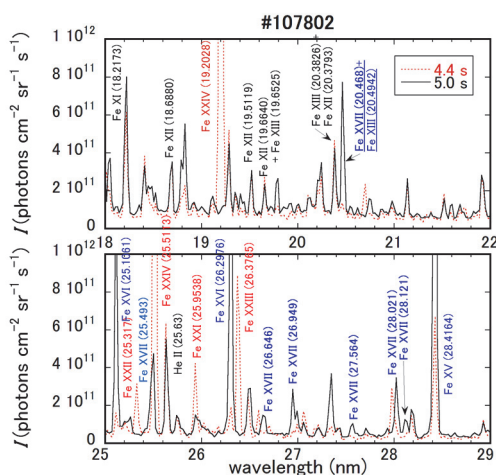


図 6-2: LHD の EUV 分光器で計測したスペクトル。点線は、プラズマ中心温度が 2 keV のとき(時間は 4.4 秒), 実線は中心温度が 600 eV のとき(時間は 5.0 秒)。鉄ペレットは 3.8 秒で入射している。

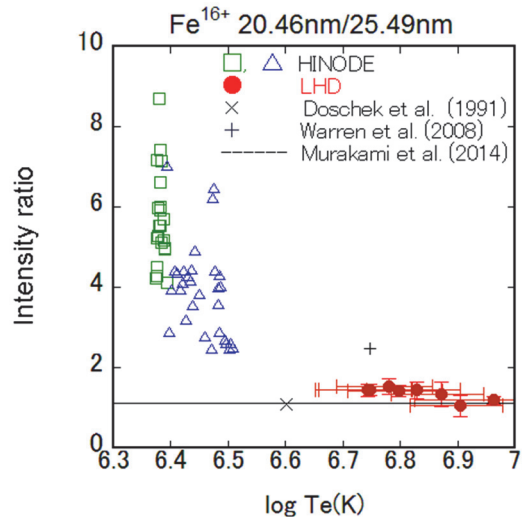


図 6-3: Fe XVII 発光線 20.46 nm と 25.49 nm の強度比と電子温度との関係。実線は我々の衝突輻射モデルによる計算[17]。●は LHD による計測値[17]。×は Doschek らによる Skylab による計測値[14]、+は Warren

は、その関係の信頼性が重要である。我々は、鉄イオンの衝突輻射モデルを構築し[41]、原子データの評価[42]や、LHD と CoBIT を使った分光計測により鉄イオンの衝突輻射モデルの検証を行ってきた[10,43,44]。

ネオン様 Fe^{16+} イオンは太陽表面の高温活動領域を探る指標として用いることができる。 Fe^{16+} イオンの 20.46 nm と 25.49 nm の二本の発光線は、同じ上準位 $2p^5 3p \ ^1S_0$ から $2p^5 3s \ ^1P_1$ (20.46 nm) と $2p^5 3s \ ^3P_1$ (25.49 nm) への遷移で、発光線強度比はプラズマの状態によらず、遷移確率による分岐比で決まる。その理論値は 1.1 とされ、過去の Skylab による太陽観測でも理論と合う結果が得られていた[45]。ところが、「ひので」の計測では、強度比は 2 より大きく[46]、さらに電子温度が低いほど大きいという依存性まで現れ[47]、原子データの信頼性が疑われた。

我々は LHD プラズマに鉄ペレットを入射し、鉄多価イオンからのスペクトルを計測して、この発光線強度比を調べた[48]。LHD では電子温度や密度はトムソン散乱計測によって発光線とは独立に測ることができる。図 6-1 に計測された電子温度の分布を、図 6-2 に計測した EUV スペクトルを示す。3.8 秒でプラズマへ鉄ペレットを入

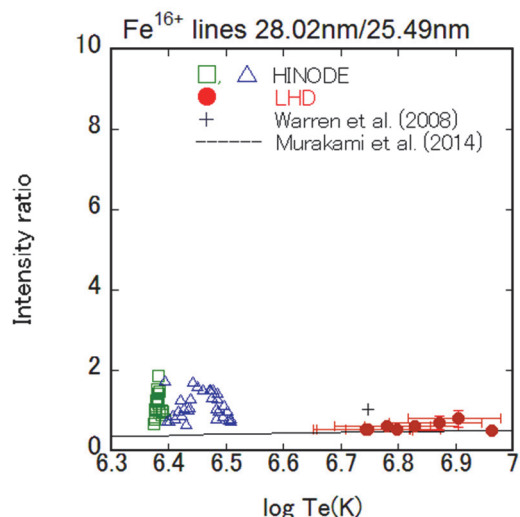


図 6-4: Fe XVII 発光線 28.02 nm と 25.49

射し、4.3 秒では中心電子温度が 2 keV あり、高価数の Fe²³⁺ (Fe XXIV)が見られるが、加熱の減少により中心温度が 600 eV に下がった 5.0 秒では、Fe¹⁶⁺ (Fe XVII)の発光線が観測された。図 6-3 に、Fe¹⁶⁺の問題の二本の発光線強度比と電子温度の関係を示す。LHD のデータは赤丸で示し、衝突輻射モデルによる計算値は実線で示す。得られた LHD のデータは理論値を支持し、ひのでのデータには問題があることを指摘した。

同時に計測したほかの Fe¹⁶⁺発光線強度比についても、衝突輻射モデルの計算と計測値を比較した。図 6-4 に例を示すが、LHD の測定値はモデル計算と矛盾しない結果を得た。従ってこの衝突輻射モデルを用いた計算は太陽プラズマ診断への適用が可能となった。

その後ひのででは、計測に使われている 2 つの CCD 検出器のあいだの補正に問題があることがわかった。また、低温度プラズマで強度比が大きくなることについては、20.46 nm で太陽フレアを撮像した構造を調べると、25.49 nm での撮像には見られない、より低い温度を示唆する Si⁶⁺イオンの発光線(27.53 nm)と同様の構造も見られたため、低温度由来の未同定の発光線がブレンドしている可能性が指摘されている[49]。

7. 最後に

多価イオンを使ったプラズマの分光診断は、手の届かない天体プラズマの物理状態を知る重

要な手段であるとともに、核融合プラズマをはじめとする実験室プラズマの多角的な理解に欠かせない。特に核融合の実現にとって不純物の挙動解明は制御への大事なステップであり、そのためにも、多価イオン発光線の波長や遷移確率、電子衝突励起断面積といった基礎的な原子データと、衝突輻射モデルによって導かれる発光線強度と物理状態との関係は、高い信頼性が必要である。これまでに、原子物理学の理論計算手法の発展、EBITなどを用いた基礎実験、LHDプラズマを使った分光計測による衝突輻射モデルの検証が進み、プラズマ原子過程の分野は大きな進展を見せてきた。電子数の少ない水素様、ヘリウム様イオンから発展し、タングステンをはじめとする原子番号の大きな元素の多価イオンの理解もずいぶん進んできた。今後も、タングステンををはじめとする多価イオンの研究をさらに進め、関連分野の共同研究者とも協力して、原子物理とプラズマをつなぐ分野をさらに発展させていきたいと考えている。

謝辞

本稿で紹介した CoBIT の開発当初から電気通信大学レーザー新世代研究センターの中村信行氏には共同研究者として多大なるご尽力を頂いた。また LHD 分光実験では、核融合科学研究所の後藤基志氏、鈴木千尋氏、大石鉄太郎氏、森田繁先生、田村直樹氏ほか LHD 実験グループの方々にお世話になった。発光強度分布の逆アーベル変換については京都大学の藤井恵介氏にお世話になった。紙面を借りて御礼申し上げます。また、本稿で紹介した研究は KAKENHI (23246165, 22340175, 15H04235)の助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] J. B. Zirker, 'Spectroscopy of astrophysical plasmas' (ed. A. Dalgarno and D. Layzer) (Cambridge Univ. Press, Cambridge) 1987, 165.
- [2] T. Kato, Physica Scripta **T73**, 98 (1997).
- [3] 渡邊鉄哉, 日本物理学会誌 **57(10)**, 738 (2002).

- [4] K. Kawashima and S. Kitamoto, *Publ. Astron. Soc. Japan* **48**, L113 (1996).
- [5] F. Parerels *et al.*, *Astrophys. J.* **533**, L135 (2000).
- [6] R. Marrus and P. J. Mohr, *Adv. At. Mol. Phys.* **14**, 182 (1978).
- [7] T. Pütterich *et al.*, *Plasma Phys. Control. Fusion* **55**, 124036 (2013).
- [8] N. Nakamura *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 063104 (2008).
- [9] H. A. Sakaue *et al.*, *J. Phys.: Conf. Ser.* **163**, 012020 (2009).
- [10] H. A. Sakaue *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 073304 (2011).
- [11] H. A. Sakaue *et al.*, *Phys. Rev. A* **92**, 012504 (2015).
- [12] Y. Kobayashi *et al.*, *Phys. Rev. A* **89**, 010501(R) (2014).
- [13] Y. Kobayashi *et al.*, *Phys. Rev. A* **92**, 022510 (2015).
- [14] <http://www.lhd.nifs.ac.jp/lhd/jstr/jcoil.html>
- [15] A. Kallenbach *et al.*, *Plasma Phys. Control. Fusion B* **47**, 207 (2005).
- [16] S. Sudo, *J. Plasma Fusion Res.* **69**, 1349 (1993).
- [17] T. Pütterich *et al.*, *Plasma Phys. Control Fusion Sci.* **50**, 085016 (2008).
- [18] C.S. Harte *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 205004 (2010).
- [19] A. E. Kramida and T. Shirai, *Atomic Data Nucl. Data Tables* **95**, 305 (2009).
- [20] V. Bakshi ed., ‘EUV Sources for Lithography’, (Bellingham, SPIE Press) 2006.
- [21] C. Suzuki *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 074027 (2010).
- [22] G. O’Sullivan and R. Faulkner, *Opt. Eng.* **33**, 3978 (1994).
- [23] A. Bar-Shalom *et al.*, *J. Quant. Spectr. Rad. Transfer* **71**, 169 (2001).
- [24] I. Murakami *et al.*, *Nucl. Fusion* **55**, 093016 (2015).
- [25] H. A. Sakaue *et al.*, *AIP Conf. Proc.* **1438**, 91 (2012).
- [26] H. P. Summers, *The ADAS User Manual*, version 2.6 (2004), <http://www.adas.ac.uk/>
- [27] U. Feldman *et al.*, *J. Opt. Soc. Am.* **B8**, 3 (1991).
- [28] R. Doron and U. Feldman, *Phys. Scr.* **64**, 319 (2001).
- [29] 加藤太治, 大谷俊介, *日本物理学会誌* **57**, 890 (2002), およびその引用文献.
- [30] A. Komatsu *et al.*, *Phys. Scr.* **T144**, 014012 (2011); *Plasma and Fusion Res.: Rapid Commun.* **7**, 1201158 (2012).
- [31] H. Watanabe *et al.*, *Can. J. Phys.* **90**, 197 (2012).
- [32] Z. Fei *et al.*, *Phys. Rev. A* **86**, 062501 (2012).
- [33] M. Qiu *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 175002 (2014).
- [34] D. Kato *et al.*, *Phys. Scr.* **T156**, 014081 (2013).
- [35] M. Goto *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 144023 (2010).
- [36] P. Jönsson *et al.*, *Comp. Phys. Comm.* **184**, 2197 (2013).
- [37] X.-B. Ding *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 145004 (2011).
- [38] The Atomic Data and Analysis Structure (ADAS)のオンラインでデータ取得が可能なサイト (<http://open.adas.ac.uk/>)を利用した. タングステンの電離・再結合速度係数データに関する最近の研究として A. Sasaki and I. Murakami, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 175701 (2013)がある.
- [39] 佐藤國憲, 舟場久芳, NIFS ニュース 2001年9月号 (http://www.lhd.nifs.ac.jp/result/nifs_news/2001/01sep_2.html).
- [40] J. H. Culhane *et al.*, *Solar Phys.* **243**, 19 (2007).
- [41] N. Yamamoto *et al.*, *Astrophys. J.* **689**, 646 (2008).
- [42] I. Skovelev *et al.*, *Astron. Astrophys.* **511**, A60 (2010).
- [43] T. Watanabe *et al.*, *Astrophys. J.* **692**, 1294 (2009).

- [44] N. Nakamura *et al.*, *Astrophys. J.* **739**, 17 (2011).
- [45] G. A. Doschek *et al.*, *Phys. Rev. A* **43**, 2565 (1991).
- [46] H. P. Warren *et al.*, *Astrophys. J.* **685**, 1277 (2008).
- [47] T. Watanabe *et al.*, 38th COSPAR-GA, E25-008-10 (oral presentation) (2010).
- [48] I. Murakami *et al.*, *Plasma Fusion Res.* **9**, 1401056 (2014).
- [49] Del Zenna and Ishikawa, *Astron. Astrophys.* **508**, 1517 (2009).

シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」をスタートするにあたって

長嶋泰之

東京理科大学理学部第二部 〒 162-8601 東京都新宿区神楽坂 1-3

ynaga@rs.kagu.tus.ac.jp

平成 27 年 10 月 1 日原稿受付

本号からシリーズ「陽電子が拓く物質の科学」がスタートする。このシリーズの趣旨を簡潔に説明してみたい。

1. はじめに

反物質の構成要素である陽電子は、通常物質中でも様々な振る舞いをする [1,2]。たとえば、金属結晶に入射すればバルク中で数 ps のうちに熱化し、その後金属中を熱的に動き回った後に金属中の電子(主に価電子)と対消滅して γ 線になる。この γ 線を検出すれば、価電子の運動についての情報を得ることができる。結晶中に空孔型の格子欠陥が存在すれば、そこに捕捉されてから対消滅することもある。気体中に入射した場合も、陽電子は原子や分子との散乱を繰り返してエネルギーを失い、その後原子・分子中の電子と対消滅する。エネルギー損失の過程で原子・分子から電子を奪い、陽電子と電子の束縛状態であるポジトロニウムを形成してやがて自己消滅することもある。陽電子を単色のビームにして気体中を透過させれば、陽電子-原子・分子間の散乱断面積が得られる。

この様に陽電子は物質との相互作用で様々な振る舞いを起こすが、それには、陽電子の消滅断面積が散乱断面積よりも遙かに小さいことが重要な役割を果たす。つまり、陽電子は物質中の電子と衝突してもなかなか対消滅せず、何度も衝突を繰り返した後にやがて対消滅する。数密度 n の電子ガス中の陽電子の対消滅率は $\pi r_0^2 cn$ と書き表すことができる。ここで r_0 は古典電子半径で $2.818 \times 10^{-15} \text{ m}$ とボーア半径よりも極めて小さな値である。金属中での陽電子寿命は 100 ps 程度である。この間に陽電子は、電子やイオンと何度も相互作用する。気体の場合では電子密度

が遙かに低いため、これよりもかなり長い寿命をもつ。その間に陽電子は、原子・分子と様々な相互作用をし、妖艶で多彩な振る舞いを見せるのである。

2. 近年の陽電子の研究

陽電子を用いた研究で問題になるのは、電子の場合と比べてビーム強度が極めて低いことである。しかしながら、電子には遠く及ばないものの、陽電子源に加速器からの高エネルギー電子の制動放射や原子炉からの γ 線の対生成を利用するなどして、次第に改善しつつある[3]。弱い陽電子源を使いながらも、逆にその特徴を生かして陽電子の特性を暴き出そうとする研究も行われている。

近年の陽電子素過程の研究として目を引くものには、次のようなものがある。

(1) 陽電子-原子・分子束縛状態

陽電子は分子と束縛状態を形成することがある。陽電子が分子の振動を励起するとともにエネルギーを失い、そのまま分子と束縛して分子中の電子と対消滅する過程が存在することも見いだされている[4]。振動励起のエネルギーとの比較から、陽電子と分子の束縛エネルギーが見積もられており、理論計算[5]との比較も行われている。原子との束縛や共鳴状態についても、理論計算が行われている[6]。

(2) ポジトロニウム-原子・分子相互作用

ポジトロニウム-原子・分子相互作用の研究のために、陽電子-原子・分子の電荷交換反応を

利用してポジトロニウムビームを生成し、ポジトロニウムの散乱実験がロンドン大学で行われている。ポジトロニウムは最も軽い中性原子と見なすことができ、その散乱実験の意義は大きい。近年、ポジトロニウム-原子・分子散乱の全断面積が、同じ速度を持つ電子と原子・分子散乱の全断面積に近い値になることが実験的に見出された[7]。それを契機としていくつかの理論的研究が始まっている[8]。また、ポジトロニウムビームを用いるのではなく、シリカエアロジェルに陽電子を入射してシリカ微粒子間の空隙中にポジトロニウムを生成してポジトロニウム-原子・分子相互作用を観測する実験も行われている。特に、Xe のような重い希ガス原子とのスピン-軌道角運動量相互作用が起こることが分かってきており、それに関する研究が進展している[9,10]。さらには、シリカエアロジェルを用いずに高圧気体中でポジトロニウムを生成し、その熱化を調べる研究も始まっている[11]。

(3) 反水素合成

反水素の合成は現在、複数のグループが欧州原子核研究機構 (CERN) でしのぎを削っており、そのなかで日本のグループの寄与が大きい。たとえばカस्प磁場を利用して生成した反水素をビームとして引き出すことに成功しており[12]、今後の展開が期待される。

(4) 陽電子と電子からなる束縛状態

陽電子と電子が1個ずつ束縛するとポジトロニウムになるが、1個の陽電子と2個の電子が束縛すればポジトロニウム負イオンが形成される。近年、効率の高いポジトロニウム負イオン生成法が開発され、この分野が進展してきている[13,14]。また、2個のポジトロニウムが束縛し合ったポジトロニウム分子の生成も確認されている[15]。

(5) 高励起ポジトロニウム

ポジトロニウムは水素原子様の束縛状態であり、無限個の励起状態が存在する。ポジトロニウムの励起状態に関する研究は、1S-2S 状態間のエネルギーの精密測定や $n = 18$ 程度までの励起に関する研究が行われてきている。最近になって、高励起状態のポジトロニウムに電場をかけてシュタルク効果を観測する実験が報告されている[16]。この手法をポジトロニウムのマニピュレー

ションに利用する試みも検討されている。

(6) 陽電子を用いた固体表面の研究

電子を数 10 keV に加速して固体表面にすれすれの角度で入射すると、反射高速電子線回折による像が得られ、これを用いれば表面の結晶構造解析が可能である。電子の代わりに陽電子を利用すると、陽電子のポテンシャルが結晶内部では真空中よりも高いため結晶表面第一層のみの情報を得ることが可能である[17,18]。最近になってこの研究がにわか大きな注目を浴びている。また、陽電子を表面に入射するとポジトロニウムが放出され、ポジトロニウム源としての利用が可能であると同時に、そのポジトロニウムのエネルギー分布を測定することで表面の情報が得られるようになってきている。さらに、低速陽電子を $\text{TiO}_2(110)$ 表面に入射すると O^+ イオンが放出される現象が見いだされている[19]。この現象は Knotek と Feibelman の実験[20]との類似性から、表面近傍の原子の内殻が陽電子との対消滅によってイオン化され、さらにオージェ効果が起こって電氣的に不安定になり O^+ が放出されたと考えられる。ただし電子の場合とは異なり、入射陽電子のエネルギーに閾値がないという特徴がある。

(7) 固体中の細孔中にポジトロニウムが生成されると、その寿命、もしくは運動量分布から細孔のサイズを評価することが可能である。その理解が進んでいる[21]。

3. シリーズの概要

陽電子の素過程の研究分野では、我が国の研究者が大きく寄与する部分が多い。そこで今回のシリーズでは、上記研究の第一線で活躍されている方々に解説をお願いした。その内容(仮題)は次の通りである。

ポジトロニウム-気体分子の反応
ポジトロニウムを含む共鳴
反水素
ポジトロニウムによる細孔評価
ポジトロニウム負イオン
陽電子付着
陽電子消滅誘起イオン脱離

本シリーズが原子衝突学会の会員の皆さんに有益な情報を提供することを願って筆を置きたい。

参考文献

- [1] M. Charlton and J. Humberston, ‘Positron Physics’ (Cambridge) 2001.
- [2] 長嶋泰之“原子分子物理学ハンドブック”朝倉書店 (2012) 254.
- [3] J. R. Danielson, D. H. E. Dubin, R. G. Greaves and C. M. Surko, *Rev. Mod. Phys.* **87**, 247 (2015).
- [4] K. Wada *et al.*, *J. Phys.: Conf. Ser.* **443**, 012082 (2013).
- [5] M. Tachikawa, Y. Kita and R. J. Buencker, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 2701 (2011).
- [6] T. Yamashita and Y. Kino, *J. Phys.: Conf. Ser.* **618**, 012009 (2015).
- [7] S. J. Brawley, S. Armitage, J. Beale, D. E. Leslie, A. I. Williams and G. Laricchia, *Science* **330**, 789 (2010).
- [8] I. I. Fabrikant and G. F. Gribakin, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 243201 (2014).
- [9] K. Shibuya, T. Nakayama, H. Saito and T. Hyodo, *Phys. Rev. A* **88**, 012511 (2013).
- [10] K. Shibuya, Y. Kawamura and H. Saito, *Phys. Rev. A* **88**, 042517 (2013).
- [11] Y. Sano, Y. Kino, T. Oka and T. Sekine, *J. Phys.: Conf. Ser.* **618**, 012010 (2015).
- [12] N. Kuroda *et al.*, *Nat. Comm.* **5**, 3089 (2014).
- [13] K. Michishio, T. Tachibana, H. Terabe, A. Igarashi, K. Wada, T. Kuga, A. Yagishita, H. Hyodo and Y. Nagashima, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 153401 (2011).
- [14] Y. Nagashima, *Phys. Rep.* **545**, 95 (2014).
- [15] D. B. Cassidy, T. H. Hisakado, H. W. K. Tom and A. P. Mills, Jr., *Phys. Rev. Lett.* **108**, 133402 (2012).
- [16] T. E. Wall, A. M. Alonso, B. S. Cooper, A. Deller, S. D. Hogan and D. B. Cassidy, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 173001 (2015).
- [17] A. Kawasuso and S. Okada, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2695 (1998).
- [18] Y. Fukaya, I. Mochizuki, M. Maekawa, K. Wada, T. Hyodo, I. Matsuda and A. Kawasuso, *Phys. Rev. B* **88**, 205413 (2013).
- [19] T. Tachibana, T. Hirayama and Y. Nagashima, *Phys. Rev. B* **89**, 201409(R) (2014).
- [20] M. L. Knotek and O. J. Feibelman, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 964 (1978).
- [21] K. Wada and T. Hyodo, *J. Phys. Conf. Ser.* **443**, 012003 (2013).

陽電子が拓く物質の科学

第 1 回 ポジトロニウム—気体分子の相互作用

澁谷憲悟*, 齋藤晴雄

東京大学大学院総合文化研究科広域科学専攻 〒 153-8902 東京都目黒区駒場三丁目 8-1

*shibuken@gakushikai.jp

平成 27 年 9 月 12 日原稿受付

陽電子は電子の反粒子であり、電子と出会うと対消滅して γ 線となる。また対消滅に先だって、陽電子と電子がポジトロニウムと呼ばれる水素様原子を形成することがある。消滅 γ 線には、消滅前の情報が残されており、陽電子やポジトロニウムがどのような状態にあったか、あるいはどのような相互作用を経験したかを読み出すことができる。本稿では、本号より連載される、シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」の冒頭に当たり、陽電子消滅研究の概略を述べるとともに、ポジトロニウムと気体分子との相互作用に関する研究を幾つか紹介する。この分野では、国内の研究者が多くの先駆的役割を果たしてきた。

1. 緒言

ポジトロニウム (Ps) は電子とその反粒子である陽電子からなる、極めて軽量な水素様原子であり、その質量は $2m_e$ 、換算質量は $\mu = m_e/2$ である。

水素様原子のシュレディンガー方程式を解くと、 $n=1$ 軌道のエネルギー固有値は $E_1 = -\mu e^4 / 8\epsilon_0^2 \hbar^2$ であり μ に比例するので、Ps の第一イオン化エネルギー (陽電子と電子の束縛エネルギー) は、水素原子の第一イオン化エネルギー (13.6 eV) の 1/2 の、6.8 eV である。ここで e は素電荷、 ϵ_0 は真空の誘電率である。また、 $n=1$ 軌道における両電荷の平均距離は $\langle r \rangle = 6\pi\epsilon_0 \hbar^2 / \mu e^2 = 3a_B / 2\mu$ であり μ に反比例するので[1]、Ps における陽電子と電子の平均距離は、水素原子における陽子と電子の平均距離の

2 倍の、 $3a_B$ である。ここで a_B はボーア半径 (52.9 pm) である。ただし、図 1 に示すように、Ps では陽電子と電子が重心を挟んで相対的に運動するので、重心から電子 (陽電子) までの距離は、水素原子の場合と Ps の場合ではほぼ等しい[2]。

Ps は、様々な気体、液体、固体 (主に絶縁体) 中で形成され得るが、本稿では主に気体中の Ps とその相互作用について述べる。なお、本稿では、Ps の励起状態には言及しない。

Ps は最終的には γ 線に崩壊して消滅する。我々は、この消滅 γ 線を計測し、様々な保存則等を駆使しながら、消滅前の Ps の状態やその相互作用に関する情報の復元を試みる。これによって、時に、陽電子を用いることでしか得られない貴重な情報に辿り着く。言うなれば、 γ 線は電子対の "dying message" であり、陽電子消滅の研究は、さながら、それを読み解く "推理小説" のようである。

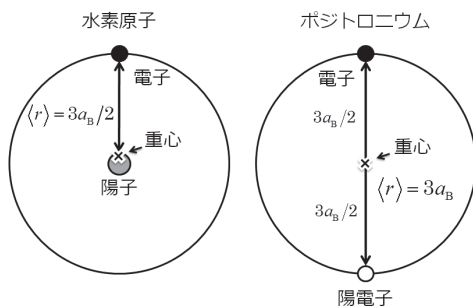


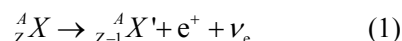
図 1: 水素原子とポジトロニウムの模式図。各重心から電子 (陽電子) までの距離はほぼ等しい。

2. 陽電子線源

Ps 実験に用いられる陽電子の発生原理には 2 種類がある。一つは原子核中で陽子が中性子に崩壊する反応 (β^+ 壊変) であり、もう一つは高エネルギー光子 (X 線等) からの電子対生成である。

2.1 放射性同位元素(RI)を利用する場合

β^+ 壊変の核反応式は,



であり, 余剰エネルギーが陽電子と電子ニュートリノ(ν_e)に不定比で配分されるため, 発生する β^+ 線は連続スペクトルを示す. 例えば, 実験で多用される ${}^{22}\text{Na}$ (半減期2.6年)では, 放出される陽電子の最大エネルギーが0.55 MeV(平均エネルギーは0.20 MeV)であり, ${}^{68}\text{Ge}/{}^{68}\text{Ga}$ [${}^{68}\text{Ga}$ の半減期が68分と短いため親核種の ${}^{68}\text{Ge}$ (半減期271日)を用意する]から放出される陽電子では, 最大1.90 MeV(平均0.99 MeV)である.

${}^{22}\text{Na}$ が β^+ 壊変すると, その直後に1.27 MeVの即発 γ 線が, 娘核 ${}^{22}\text{Ne}$ の核異性体転移により放出されるため, この核 γ 線を検出することで陽電子発生時刻を知ることを出来る点が, 実験上有用である. 厳密には, 陽電子発生時刻と核 γ 線発生時刻には平均5.3 psの時間差があるが, これは核 γ 線測定的时间分解能(100 ps程度)に比べて十分に短く, 両事象は事実上の同時とみなされる.

一方, ${}^{68}\text{Ge}/{}^{68}\text{Ga}$ は, このような即発 γ 線を放出しないが, 陽電子の初期エネルギーが十分に大きいため, フィルム状のプラスチックシンチレータ(厚さ0.1 mm程度)を効率よく透過させることができ, その発光から時間信号が得られる. また, β^+ 壊変で放出された陽電子は, パリティ非保存のため進行方向にスピン偏極しており, その放出速度が大きいほど偏極率も大きいため, スピン物性の研究には ${}^{68}\text{Ge}/{}^{68}\text{Ga}$ 線源の方がしばしば有用である[3].

${}^{22}\text{Na}$ はバイアル瓶に入った ${}^{22}\text{NaCl}$ 水溶液の状態で購入し, カプトンや金属のフィルム上に滴

下乾燥させたものを封止して, 実験に用いることが多い(図2). あらかじめ密封線源として封止され, 窓部から陽電子が放出される状態の製品も輸入されており, 低速陽電子ビームの生成などに用いられている. ${}^{68}\text{Ge}/{}^{68}\text{Ga}$ は, 密封線源として封止された状態の製品を購入して用いることが多い.

このようなRIを使用する場合, デスクトップ程度の比較的小規模な装置による陽電子消滅実験も可能である. ただし, 前者のように非密封RIを取り扱う場合や, 密封RIであっても法令の定める数量を超える強度で用いる場合は, 放射線管理区域内で行わなければならない.

2.2 加速器等を利用する場合

一方で, 電子対生成により陽電子を得るには, 例えば, 電子ライナックで発生した高エネルギー電子を重金属等の物質(主にタングステンかタンタル)に入射して $2m_e c^2$ (1.022 MeV)以上の制動放射線が発生させ, その制動放射線と物質中の原子核の電場との相互作用による電子対生成で, 陽電子(と電子)を得る[4]. タングstenは, 原子番号が大きいので制動放射線の発生効率に勝れ, また融点が高い(3,380°C)ので耐熱性も良好である.

また, 光源としてシンクロトロン放射光も利用されている[5].

また, 原子炉から放出される中性子を利用して, ${}^{63}\text{Cu}(n,\gamma){}^{64}\text{Cu}$ (半減期12.7時間)の反応や ${}^{58}\text{Ni}(n,p){}^{58}\text{Co}$ (半減期71日)の反応により, 陽電子放出核種を大量に生成することも可能である[6]. 最近では, ${}^{113}\text{Cd}(n,\gamma){}^{114}\text{Cd}$ の反応で放出される即発 γ 線(1.5 MeV以上のものが平均2.3本)からの電子対生成が利用されている[7]. 国内で

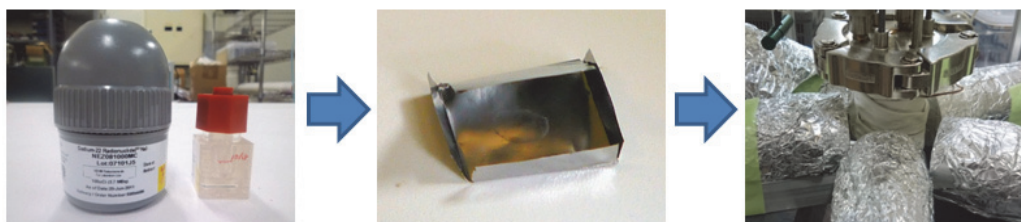


図2: 非密封線源を利用した陽電子消滅実験のイメージ写真. (左) バイアル瓶に入った ${}^{22}\text{NaCl}$ 水溶液, (中) Ti薄膜に滴下された ${}^{22}\text{NaCl}$ 水溶液, (右) 中央のガスチェンバーを取り囲むように配置された放射線検出器(BaF_2 シンチレーション検出器).

は京大原子炉で陽電子ビームラインが建設されている[8].

これらは、いずれも加速器等の比較的大規模な設備を要するが、RI に比して大強度の陽電子ビームを得ることが期待される。なお、ビーム形成技術等については、本シリーズ中で他の著者により詳しく述べられる。また、最近、Ps⁻の光電子脱離を利用したPsビームの形成も試みられている[9].

3. Ps のスピン状態

β^+ 壊変もしくは電子対生成により生じた高エネルギーの陽電子は、物質中に入射すると主に電子との相互作用でエネルギーを失う。また、その過程で物質を構成する原子から電子を奪い、Ps を形成することがある。

基底状態のPs は、そのスピンにより大きく二つに分けられる。一つは、電子スピンと陽電子スピンの合成値が1の場合 ($S=1$) で、この状態のPs をオルソポジトロニウム (*o*-Ps) と呼ぶ。もう一つは、合成スピンの値が0の場合 ($S=0$) で、この状態のPs をパラポジトロニウム (*p*-Ps) と呼ぶ。これらのスピン状態を、Ps の合成スピンの値を S 、その z 成分を M_S として $\chi = |S, M_S\rangle$ と表す。量子数を大文字で表記するのは、個々の電子や陽電子の状態ではなく、Ps を一体の粒子として記述しているの意である。 $|S, M_S\rangle$ を具体的に、電子と陽電子の個々のスピン関数で書き下すと、

$$\begin{aligned} |1,1\rangle &= \alpha_e \alpha_p \\ |1,0\rangle &= (\alpha_e \beta_p + \beta_e \alpha_p) / \sqrt{2} \\ |1,-1\rangle &= \beta_e \beta_p \\ |0,0\rangle &= (\alpha_e \beta_p - \beta_e \alpha_p) / \sqrt{2} \end{aligned} \quad (2)$$

の4つが固有状態である。ただし、 α はアップスピンを、 β はダウンスピンをそれぞれ表し、また添え字の $e(p)$ は電子(陽電子)を表す。

式(2)のうち、前の3つが *o*-Ps であり、これらは磁場がなければ縮退している(三重項状態)。残りの1つが *p*-Ps である(一重項状態)。なお、"ortho-"はギリシア語で「オーソドックス(正常な)」を意味する接頭辞であり、"para-"は「パラドックス(異常な)」を意味する接頭辞である。*o*-Ps と *p*-Ps の生成率の比は、Ps を形成する前の電子や陽

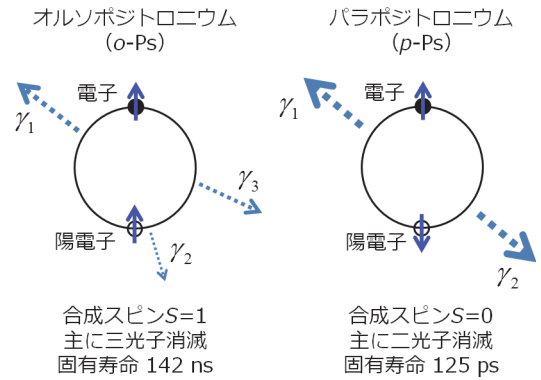


図 3: Ps のスピン状態と対消滅の概念図。(左) *o*-Ps の代表として $|1,1\rangle$ 、(右) *p*-Ps. 陽電子と電子の矢印はそれぞれのスピンを表す。

電子がスピン偏極していなければ、スピン状態数の比に等しい。つまり、一般的には、*o*-Ps の生成数が全体の 3/4 を占める。

なお、*o*-Ps のエネルギー固有値は、*p*-Ps のそれよりも $\Delta_{\text{HFS}} = 840 \mu\text{eV}$ (positronium hyperfine structure, Ps-HFS) だけ大きい[10]。これは、両者のスピンが反平行な *p*-Ps の方が僅かに安定なためである。Ps-HFS は水素原子の HFS ($5.9 \mu\text{eV}$) と比べて 2 桁も大きい、それでも室温の熱エネルギー (40 meV) に比べれば十分に小さいため、*o*-Ps と *p*-Ps の生成率比には影響しない。

2 種類の Ps を明示的に区別するのは、両者の性質や振る舞いが大きく異なるためであり、また、この違いが Ps 実験で得られる情報をより豊富なものとしている。両者の違いの中で最も特徴的なのは、 γ 線に崩壊する過程で、*o*-Ps は主に三光子消滅し、*p*-Ps は主に二光子消滅する点である。これは、荷電共役パリティの保存則に起因する。前者は関与する光子が 1 個多いため、*o*-Ps の崩壊率は *p*-Ps の崩壊率と比べてかなり(微細構造定数倍程度)小さいと考えられる。実際、真空中(周囲に電子が存在しない環境)における *o*-Ps の消滅率は $\lambda_0 = 7.0401(7) \pm 10^6 \text{ s}^{-1}$ [寿命は $142.04(1) \text{ ns}$] [11,12]、*p*-Ps の消滅率は $\lambda_0 = 7.9909(17) \pm 10^9 \text{ s}^{-1}$ [寿命は $125.14(3) \text{ ps}$] であり [12]、約 3 桁異なる。図 3 に、二光子消滅と三光子消滅の概念図を示す。

ここで、*o*-Ps の固有寿命は、ガス中であればガス分子との相互作用を繰り返し経験するのに十分な長さであるため、*o*-Ps からの消滅 γ 線には、

消滅までに体験した相互作用に関する情報も含まれている。ただし、その情報を取り出すには一工夫が必要であり、そこが Ps 実験の醍醐味である。三光子消滅では 511 keV 以下の消滅 γ 線が 3 本発生し、そのエネルギーの合計は $2m_e c^2$ (1.022 MeV) である。また、二光子消滅では約 $m_e c^2$ (511 keV) の消滅 γ 線が 2 本発生する[13]。このとき、2 本の γ 線は、お互いにほぼ正反対の方向へ放出される、という特徴がある。これは、第 4.3 節にて後述するように、運動量の保存則によるものである。

なお、二光子消滅を医学利用したのが陽電子断層撮像装置 (positron emission tomography, PET) であり、陽電子放出核種 (^{11}C や ^{18}F など) で標識した生体分子の空間分布を、被検者の周囲にトンネル状に配置した γ 線検出器で測定する。このとき、二光子消滅の γ 線が互いに正反対の方向で検出されることから、同時計数の成立した検出器同士を直線で結ぶことにより、被標識化合物の位置情報を *in vivo* で追跡できる。例えば、 ^{18}F で標識したブドウ糖を静脈に注射すると、糖代謝が昂進しているがん細胞に集積する様子が確認される[14,15]。

4. 消滅 γ 線により得られる情報

ここでは、消滅 γ 線の計測により得られる代表的な情報である、時間情報と運動量情報について述べる。

4.1 時間情報 (寿命スペクトル)

まず、時間情報とは、陽電子の生成から消滅までの生存時間である。生成の時刻は、前述のように即発核 γ 線や β^+ 線自身(あるいは、ビームであれば加速器等に同期した信号)に基づく検出信号(スタート信号)により決定する。消滅の時刻は、消滅 γ 線の検出信号(ストップ信号)により決定する。

陽電子は、周囲の物質(線源自身、測定試料、チェンバー内壁など)中にある電子と直ちに対消滅する場合もあるし、物質から電子を奪って Ps を形成する場合もある。この Ps はそのまま自己消滅する場合もあるが、Ps が物質と接触した際に、Ps を構成する陽電子が構成相手の電子とではな

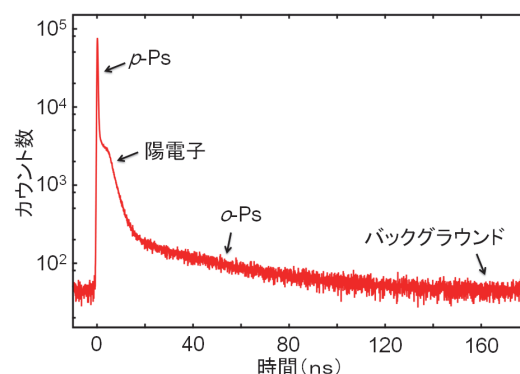


図 4: 陽電子寿命スペクトルの例(7.5 MPa の Ar ガス中)[16]. (元著者らにデータ提供を受けて、筆者らが説明用に書き直したもの.)

く、周囲の物質中にある他の電子と対消滅する場合(ピックオフ消滅)もある。いずれにしても、陽電子の生存時間は、その系内で陽電子が消滅相手の電子をどれだけ見つけやすいかを反映している。

ただし、陽電子は物質内で取り得る様々な状態から消滅するため、個々の消滅放射線がどの状態に由来するのかは、必ずしも明らかではない。有意な情報を得るためには、このような個々の陽電子の生存時間に関する情報を数千万イベント程度蓄積し(蓄積に数週間以上を要する場合もある)、生存時間を横軸とするヒストグラム(寿命スペクトルと呼ばれる)を作成する。一般的には、そこに時間に対して指数関数的に減少する 1 つないし複数の成分が現れる。その成分の数を陽電子が消滅する状態の数に対応させ、各成分の相対強度と減衰の時定数(寿命と呼ばれる)を手掛かりとして、陽電子が置かれた状態の物理的・化学的な性質を議論し、物質や Ps の性質を解き明かす。

寿命スペクトルの例として、図 4 に高圧 Ar ガス(7.5 MPa)中の陽電子寿命スペクトルを示す(佐野らが測定[16])。まず、時間原点付近の急峻なピーク構造は主に短寿命の *p*-Ps に由来し、次に、5 ns 付近の肩状の構造は Ps を形成することなく消滅した陽電子に由来し、続いて、20 ns 以降の指数関数的(片対数グラフでは直線的)に減少する構造が Ar ガス中に形成された *o*-Ps に由来する、とそれぞれ考えられる。なお、*o*-Ps に由来する構造は、複数の寿命成分に分離できることもある。最後に、約 160 ns 以降のカウンタ数一定の

平らな部分は、スタート信号とストップ信号の組み合わせが不適切な(ランダム)の同時計数により生じたノイズ成分であり、時間構造を持たないバックグラウンドである。

ここで、*o*-Ps に由来する成分の寿命は 40 ns であるが、これは真空中での *o*-Ps 寿命 (142 ns) に比してかなり短い。これは、Ar とのピックアップ消滅 (先述) により、*o*-Ps の消滅率が增大したためである。

4.2 消滅率の規格化 (${}_1Z_{\text{eff}}$)

このピックアップ消滅率は、Ps が存在する空間のガス密度に比例するため、ガス密度 n で規格化した消滅率 ${}_1Z_{\text{eff}} = \lambda / (4\pi r_e^2 cn)$ を用いるのが便利である。ここで、分母の $\pi r_e^2 cn$ は Dirac の消滅率、つまり、密度 n の電子の海を、陽電子が十分に小さな速度 ($v \ll c$) で飛行する際の消滅率であり、 r_e は電子の古典半径 (2.817×10^{-15} m) である。係数の 4 は、全電子のうち陽電子とスピンの反平行となる電子 (全体の 4 分の 1) のみがピックアップ消滅率に寄与するからである。つまり、 ${}_1Z_{\text{eff}}$ は Ps が衝突した原子 1 個あたりに、対消滅相手となる電子が実質的に何個存在するかを表している[17,18]。(なお、Ps ではなく陽電子単体の消滅率の場合には Z_{eff} と書く[17-19].)

例えば、He は 1 原子当たり 2 個の価電子を有し、各電子が Ps を形成する陽電子とスピン反平行の組み合わせとなる確率は 1/4 なので、 ${}_1Z_{\text{eff}} = 2/4 = 0.5$ となりそうであるが、実際には、この値が 0.125(2) であることが知られている[18]。これは Ps を形成する電子と He の価電子の交換相互作用が、ピックアップ消滅を妨げて ${}_1Z_{\text{eff}}$ を目減りさせる方向に働くためである。

最近、和田らによって、ピックアップ消滅については、 ${}_1Z_{\text{eff}}$ と分子の幾何学的な断面積との間に、概ね比例関係があると指摘されている[20]。一方で、気体の中には、 O_2 や I_2 等のように例外的に大きな ${}_1Z_{\text{eff}}$ を持つ分子が幾つか知られており、これらは全てピックアップ以外の消滅機構を持つと考えられる[21]。

具体的な消滅機構ごとに述べると、 O_2 や NO のような常磁性分子では、その不対電子が *o*-Ps を構成する電子と入れ替わる電子交換反応

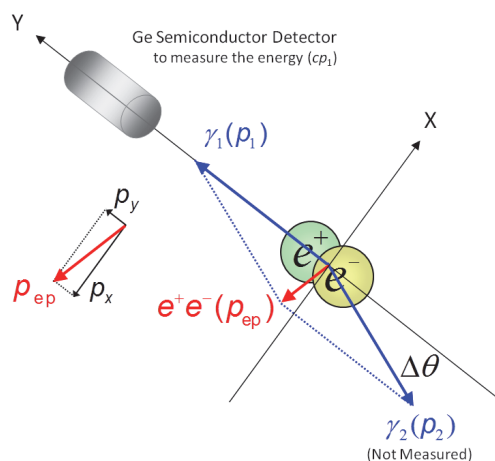


図 5: Ps の二光子消滅における運動量の保存則の概念図。

(electron exchange) が起きて、*o*-Ps が短寿命の *p*-Ps にスピン転換されるため、消滅率が大きい。なお、この電子交換反応は、標的分子の励起を伴う必要はない[22]。

また、 NO_2 , Br_2 , および I_2 などのガス分子では、Ps が一種の束縛状態や共鳴状態 (浅い束縛状態) を取ることが知られており、この場合、陽電子と軌道電子の波動関数が重なり合う時間が長くなるため、*o*-Ps の消滅率が大きい。この現象はケミカルクエンチングと呼ばれる[23]。

最後に、Kr や Xe などの原子番号の大きな原子 (を含む分子) に Ps が散乱される際に、スピン軌道相互作用によって *o*-Ps が *p*-Ps にスピン転換されることがあるため、*o*-Ps の消滅率が大きい。これは、2003 年にオーストラリア人の理論家 Mitroy によって提案され[24]、2006 年に齋藤らによって実験的に確認された[25]、Ps の新しい反応機構である。このとき、Kr や Xe の状態は変化しない。

先の電子交換に伴うスピン転換とは異なる現象であり、以降、本稿で単に「スピン転換」という場合にはこのスピン軌道相互作用によるスピン転換を指し、前者は「電子交換」と呼んで区別することにする。この「スピン転換」については、第 6 節以降で詳しく述べる。

4.3 運動量情報

次に、運動量情報は、対消滅に関するエネルギー保存則と運動量保存則によりもたらされる。先に、荷電パリティの保存則により Ps のスピン状態に応じて消滅光子数に差異を生じることを述

べたが、このうち二光子消滅には、以下の関係式が成り立つ。

まず、質量を含むエネルギーの保存則により、対消滅の前(左辺)後(右辺)で、

$$2m_e c^2 = cp_1 + cp_2 \quad (3)$$

である。ただし、 p_1 と p_2 は放出される2本の消滅 γ 線の各運動量である。

次に、消滅前の電子と陽電子の運動量のベクトル和を $p_{ep}(p_x, p_y)$ とすると、各方向成分は、

$$\begin{aligned} p_x &= p_2 \sin \Delta\theta \\ p_y &= p_1 - p_2 \cos \Delta\theta \end{aligned} \quad (4)$$

の関係を満たす。ただし、微小角 $\Delta\theta$ は2本の消滅 γ 線の相対角度が180度からずれる大きさを表す(図5、ただし $\Delta\theta$ を誇張して描いた)。

先に、「2本の消滅 γ 線がほぼ正反対の方向に放出される」と述べたが、厳密には、消滅前の電子対の合成運動量が0の場合にのみ正反対となり、一般的には概ね1度よりも小さな角度揺動 $\Delta\theta$ を生じる。図5中の平行四辺形が運動量保存則を示している。

以上のことから、消滅後の未知数は p_1 、 p_2 、 $\Delta\theta$ ($\Delta\theta \ll 1$)の3つであり、同数の保存式(3)、(4)を連立して解くと、

$$\begin{aligned} cp_1 &= \frac{2m_e c^2 + cp_y}{1 + \cos \Delta\theta} \approx m_e c^2 + \frac{cp_y}{2} \\ cp_2 &= \frac{2m_e c^2 - cp_y}{1 + \cos \Delta\theta} \approx m_e c^2 - \frac{cp_y}{2} \\ \Delta\theta &= \frac{p_x}{m_e c - p_y/2} \approx \frac{p_x}{m_e c} \end{aligned} \quad (5)$$

の関係を得る[26]。

つまり、2本消滅放射線のエネルギーは $m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ より、 $\Delta E = cp_y/2$ だけ増減している(合計は常に $2m_e c^2$ である)。これは、観測者(測定器)に対して波源が移動していると、観測される波長(エネルギー)が変化する現象、すなわちドップラー効果である。消滅放射線でドップラー効果が顕著なのは、Psの質量が $2m_e$ しかなく運動速度が大きいためである。したがって、消滅 γ 線のエネルギースペクトルを、高純度ゲルマニウム半導体(HP-Ge)検出器を用いて高精度に測定し、そのうち511 keVの全吸収ピークの形状が

ドップラー効果でどれだけ左右に広がるかを調べれば、消滅直前のPs(あるいは陽電子)が持っていた運動量(エネルギー)を求められる(ドップラー法)。この原理を利用して、ガス中におけるPsの減速過程が調べられている[16,27,28]。

一方、2本の消滅放射線の相対角度は180度から、 $\Delta\theta = p_x/m_e c$ だけずれている。この角度を測定するのに特化した測定系は、消滅放射線二光子角相関測定装置(angular correlation of positron annihilation radiation, ACAR)と呼ばれる。十分な角度分解能を得るためには、線源から γ 線検出器までの距離を5~10 m程度とする必要があるところ、同時計数率(感度)は距離の2乗で減少するため、大強度の陽電子線源が必要である。大掛かりな装置となるが、電子運動量の分解能としては、HP-Ge検出器を用いる場合よりも、1桁以上勝れている(二光子角相関法)。長嶋らは、この原理を利用して、ガス中におけるPsの減速過程を調べている[29,30]。

5. Ore モデルと Xe 問題

5.1 Ore モデル

気体中のPs形成を、エネルギー的観点から説明する大まかな描像として、**Ore モデル**が提唱されている。このモデルでは、ある程度のエネルギーを有する陽電子が物質中の原子との衝突する際に、その価電子を奪い取ることでPsが形成されると考える[18]。

物質が気体の場合には、高エネルギーの陽電子が入射すると、陽電子は周辺の気体分子を電離・励起しつつ、徐々にエネルギーを失う。その過程で、気体分子から価電子を引き抜くことでPsが形成されるが、形成されたPsの運動エネルギーがPsの束縛エネルギー($E_{Ps} = 6.8 \text{ eV}$)よりも大きいと、次の衝突で再び陽電子と電子が解離(イオン化)してしまうため、Psは安定な粒子として存在できない。

つまり、標的分子の第一イオン化エネルギーを E_i とするとPs形成反応、



は $E_i - E_{Ps}$ だけ吸熱反応であるから、陽電子のエネルギー(E_p)が $E_p - (E_i - E_{Ps}) \geq E_{Ps}$ のとき、

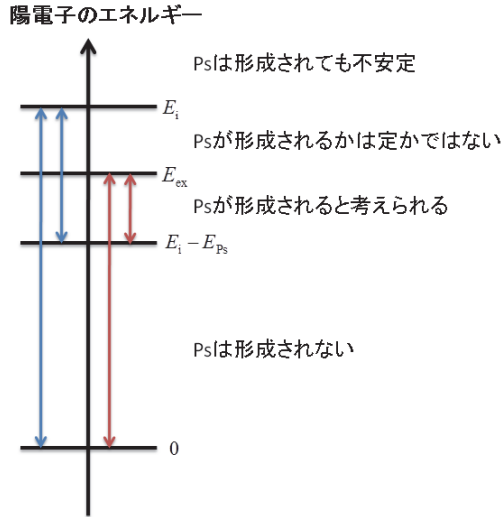


図 6: Ore モデルに関するエネルギー準位. 縦軸の左側は F_{\max} (競合領域で Ps が 100% 形成される場合) を, 右側は F_{\min} (競合領域で Ps が全く形成されない場合) を表す.

すなわち $E_p \geq E_i$ のときには, Ps が形成されたとしても安定には存在できない.

また, $E_p - (E_i - E_{ps}) < 0$ のとき, すなわち $E_p < E_i - E_{ps}$ のときは, 陽電子が電子を引き抜くのに必要なエネルギーを有しないので, Ps を形成することは出来ない.

陽電子のエネルギーがこの中間領域にあるとき, つまり $E_i > E_p \geq E_i - E_{ps}$ を満たすときのみ, Ps は形成され得る. このエネルギー領域を **Ore ギャップ** と呼ぶ.

ただし, 当該分子の最低励起エネルギーを E_{ex} としたときに, $E_i > E_p \geq E_{ex}$ の場合には Ps の形成と分子の励起が競合するため, 効率よく Ps が形成されるかどうか定かではない. どちらの過程が支配的かは, 分子の種類でも異なるであろう.

ここで, 関連するエネルギー準位を整理すると図 6 のようになる. 陽電子が非弾性散乱を繰り返して, 今関心のある範囲のエネルギー ($0 < E_p < E_i$) にまで緩和したとき, 残されたエネルギーの量がランダム (均等分布) であると仮定すると, 図 6 の左側に示すように, 全陽電子のうち Ps を形成する陽電子の割合の最大値 F_{\max} は,

$$F_{\max} = [E_i - (E_i - E_{ps})] / E_i = 6.8 \text{ eV} / E_i \quad (7)$$

と書ける. これは, $E_{ex} < E < E_i$ の競合領域において, 100% の確率で Ps が形成される場合である. また, 最小値 F_{\min} は図 6 の右側に示すように,

$$F_{\min} = [E_{ex} - (E_{ex} - E_{ps})] / E_{ex} \quad (8)$$

と書ける. これは, 競合領域において, 全く Ps が形成されない場合である.

Ore モデルが妥当であれば, F の値は概ね F_{\min} と F_{\max} の間に収まると予想される.

5.2 Xe 問題

ここで, 標的として希ガス族を考える. 希ガス族は単原子分子であり, 振動や回転励起のモードを持たないことから, Ore モデルに最も良く当てはまると考えられる. 希ガス族の E_i や E_{ex} 値は良く知られているので [31], 表 1 のように F を計算すると, 原子番号の大きな希ガスほど Ps を形成しやすいものと期待される.

ところが, *o*-Ps に由来する長寿命成分の分量を 4/3 倍して全 Ps 数を推定し F を決定する, という当時の評価方法では, 原子番号の小さい方から 3 つ目まで (He, Ne, および Ar) は予想通りの F を得たが, 次の Kr では予想される F_{\min} よりも,

表 1 Ore モデルに関する希ガスのエネルギー準位

	He	Ne	Ar	Kr	Xe
E_i / eV	24.587	21.565	15.760	14.000	12.130
E_{ex} / eV	21.218	16.671	11.624	10.033	8.437
F_{\min}	0.16	0.11	0.22	0.28	0.36
F_{\max}	0.27	0.31	0.44	0.48	0.56
F	0.23	0.26	0.33	0.11	0.03

あるいは測定された Ar の F よりも、小さな値を示した。また、Xe の測定値は、Kr の測定値よりも更に小さな値を示し、全陽電子の僅か 3% しか Ps を形成しない(ように見える)ことが分かった[32]。

Xe(と Kr)で Ps 形成率が、Ore モデルの予想値を大幅に下回る理由は長らく不明であり、「Xe 問題」ないし「Xe パズル」と呼ばれてきた。

6. Xe 問題の経過とスピン転換の発見

6.1 スピン転換の提案

「Xe パズル」を解くために、種々の実験が行われ、様々な仮説も立てられた。一連の実験で見出されたことは、

1. o -Ps に由来する成分(寿命スペクトル中で指数関数的に減少する成分)の分量が、期待されるよりも少ないこと、
2. 未知の短寿命成分(fast component)が、寿命スペクトルの時間原点付近の急峻なピーク構造(p -Ps に由来する)の付近に、現れること[17]、および、
3. Kr や Xe に、He のような軽いガスを混入すると、 F の観測値が大きくなる(Ps の形成量が回復するように見える)[17]こと、

であった。

以上のことなどから、Kr 中や Xe 中でも Ps は形成されているが、 o -Ps の消滅を促進する未知の機構が存在し、それは特に時間原点付近で(o -Ps が熱化する前に)強く発現していると考えられた[32,33]。つまり、この機構はエネルギーに大きく依存するものであることが示唆された。また、その状況証拠として、Kr や Xe に質量の小さな He を混合すると、この消滅機構から逃れる o -Ps の割合が増大することがあげられ、その物理的な理由は、Ps と標的の質量比が小さくなると 1 回の衝突で Ps が失うエネルギーが増えて、Ps の熱化が早まるからである。

このようにして、形成された Ps が何らかの理由で積極的に消滅させられている、と“推理”されたものの、その消滅機構が具体的に何なのかについては不明であった。

その間、Kr や Xe と Ps が束縛状態を形成するという仮説[32]や、何らかの理由でピックアップ消滅率が時間(エネルギー)に強く依存するという

仮説も提唱された[34]が、いずれも明確な根拠が示されず、「Xe 問題」の真相は長らく未解明のままであった。

これに対して、2003 年に Mitroy らが、Kr や Xe の様な原子番号の大きな原子と o -Ps が散乱する際に、スピン軌道相互作用によって短寿命の p -Ps にスピン転換が起きるのではないかと提案した[24]。このスピン軌道相互作用は、原子番号 Z の 4~5 乗程度に比例するので、希ガスのうち Kr や Xe でしか、この機構が発現しない理由となる。また、角運動量の保存則により、このスピン転換は s 波散乱では禁制のため、低エネルギーにおけるスピン転換反応断面積は、ほぼ p 波散乱断面積に比例すると考えられる。更に、 p 波散乱断面積は、低エネルギーにおいて概ねエネルギーの 2 乗に比例することから、スピン転換反応のエネルギー依存性も同様にエネルギーの 2 乗程度に比例すると考えられる。以上のことから、この消滅促進機構であれば、1~3 の観測事実を矛盾無く説明できそうである。

しかし、スピン転換の実験的な検証には、しばし時間を要した。それは、ピックアップ消滅による二光子消滅と、スピン転換による二光子消滅を見分けるのにも、一工夫が必要だからである。斎藤らは、磁場をかけて o -Ps の縮退を解くことで、2006 年にスピン転換を実証した[25]。

6.2 スピン転換の検証(磁場中の Ps)

実験における磁場の役割を理解するために、まず Ps に対する磁場の効果を見てみよう。導出過程は文献[35]を参照していただき、結果のみを示す。

Ps の 4 つのスピン状態のうち、 $|1, \pm 1\rangle$ の 2 つでは、電子と陽電子が互いに磁場の効果を打ち消し合うため影響を受けない。一方、 $|1, 0\rangle$ と $|0, 0\rangle$ は、エネルギーが変化し、スピン波動関数の固有状態ではなくなってしまう。

新しい固有状態は、磁場強度が B のとき、

$$\begin{aligned}
 & |1, 1\rangle \\
 & |+\rangle = \left(\frac{1}{\sqrt{1+y^2}} \right) |1, 0\rangle - \left(\frac{y}{\sqrt{1+y^2}} \right) |0, 0\rangle \\
 & |1, -1\rangle \\
 & |-\rangle = \left(\frac{y}{\sqrt{1+y^2}} \right) |1, 0\rangle + \left(\frac{1}{\sqrt{1+y^2}} \right) |0, 0\rangle
 \end{aligned} \tag{9}$$

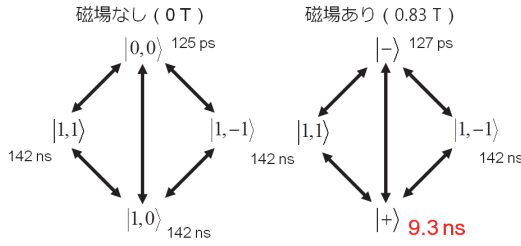


図 7: 磁場の有無による Ps 基底状態とその寿命の違い. 双方向矢印は, スピン軌道相互作用によるスピン転換反応を表す[37].

となる. ただし, $y = x / (\sqrt{1+x^2} + 1)$ で, $x = 4\mu_0 B / \Delta_{\text{HFS}}$ である. つまり, 新しい固有状態を $|\pm\rangle$ と書くと, $|\pm\rangle$ では, もともと三重項状態の一つであった $|1,0\rangle$ と一重項状態であった $|0,0\rangle$ とが, 磁場強度に応じた割合で混合している (Zeeman 効果). なお, $B \rightarrow 0$ で, $|+\rangle \rightarrow |1,0\rangle$ および $|-\rangle \rightarrow |0,0\rangle$ である.

ここで, $|+\rangle$ は二光子消滅が可能であるため, その消滅率が純粋な $|1,0\rangle$ の消滅率よりも有意に大きい. 例えば, $B = 0.83$ T では, $|+\rangle$ における $|0,0\rangle$ の混合率は 1% に過ぎないが, その固有寿命は 9.3 ns で, $|1,\pm 1\rangle$ の固有寿命 (142 ns) よりも有意に短い. この大きな変化は, $|1,0\rangle$ と $|0,0\rangle$ の固有寿命の間に 3 桁の違いがあるためである. 一方で, $|-\rangle$ の固有寿命は 127 ps となり, $|1,0\rangle$ の固有寿命 (125 ps) に比して僅かに長くはなるが, この変化は実験上無視できる程度である[36].

磁場の有無と Ps のスピン固有状態の関係を, 図 7 に示す[37]. ここで状態間を結ぶ矢印が, Xe 等とのスピン軌道相互作用によるスピン転換を表

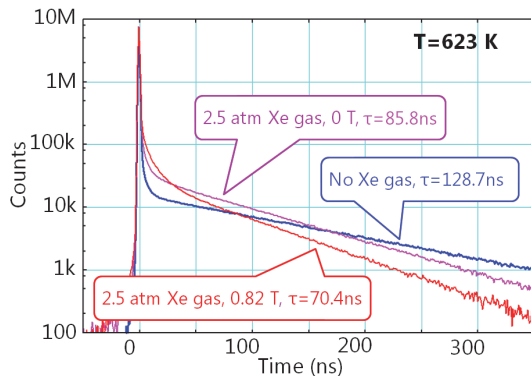


図 8: (i) ガスが無い場合, (ii) 2.5 気圧の Xe ガスを入れた場合, および更に (iii) 0.82 T の磁場をかけた場合の寿命スペクトルの違い. 測定温度は全て 623 K.

している. もしスピン転換反応が存在すれば, 磁場を掛けた場合に, $|1,\pm 1\rangle$ から寿命の短くなった $|+\rangle$ へのスピン転換によって, 観測される $|1,\pm 1\rangle$ の寿命が短くなる. つまり, 磁場がない場合の *o*-Ps ($|1,\pm 1\rangle$ および $|1,0\rangle$) の寿命値と, 磁場がある場合の $|1,\pm 1\rangle$ の寿命値 (成分強度は *o*-Ps の約 2/3 になる) を比べることで, スピン転換の有無とその反応速度定数が求められる.

図 8 は筆者らが測定した 3 本の寿命スペクトル (測定温度 623 K) で, それぞれ, ガスが無い場合, 2.5 気圧の Xe を入れた場合, および更に 0.83 T の磁場を印加した場合を示している. ガスが無い場合の寿命は 128.7(3) ns, 2.5 気圧の Xe を入れた場合の寿命は 85.8(3) ns, 更に 0.83 T の磁場を印加した場合の寿命は 70.4(5) ns であった[38].

レート方程式で解析すると, Xe による全消滅率 (密度で規格化した消滅率) $\lambda_{\text{eff}} = 4.47 \pm 0.22$ のうち, ピックオフ消滅によるものが 1.36 ± 0.17 で, スピン転換によるものが 3.11 ± 0.14 と求められた. つまり, Xe との相互作用に起因する Ps の消滅反応のうち約 7 割 (室温では約半分[37,38]) は, これまで知られていなかったスピン転換によるものであったことが判明した.

なお, この測定では, 密度 0.1 g/cc のシリカエアロゲル (アモルファス SiO_2 超微粒子の集合体) を Ps 生成媒体として用いた. ^{22}Na 線源から飛び出した陽電子はシリカエアロゲルとの相互作用により, 線源近傍でエネルギーを失いつつ, シリカエアロゲルから電子を奪って, 高い確率で Ps を形成する[29]. 試料ガス分子との相互作用は, シリカエアロゲルの大部分を占める空隙で行われる. また, Ps を形成できなかった低エネルギーの陽電子 ($E < E_i - E_{\text{Ps}}$) が, シリカエアロゲルとの衝突で速やかに消滅するため, 寿命スペクトルには図 4 に見られるような肩構造は現れない. このような特長から, シリカエアロゲルは Ps の原子・分子散乱実験の立役者となっている.

7. スピン転換反応に関する最近の研究

7.1 スピン転換反応のエネルギー依存性

二光子消滅率のうちピックオフとスピン転換の内訳が求められたので, Mitroy の仮説を検証す

るべく、各消滅率のエネルギー依存性を調査した。新しく発見されたスピン転換反応が「Xe 問題」の正答ならば、スピン転換反応は強い正のエネルギー依存性を持たなくてはならない。

実験では、ガスチェンバー全体の温度を制御する(300~623 K)ことで、熱平衡状態にある Ps の平均エネルギー(40~80 meV)を変化させた。p 波散乱断面積は低エネルギーにおいて、エネルギーの約 2 乗に比例するので、衝突頻度を考慮すると、スピン転換消滅率は温度の約 2.5 乗に比例して増大することが予想される。測定結果は、図 9 のように、スピン転換消滅率は温度の 2.08(1)乗に比例し、ピックオフ消滅率は同じく 1.03(1)乗に比例するものであった[38]。

スピン転換消滅率の温度依存性が予想(2.5 乗)よりも小さいのは、Ps の速度分布が原因である。寿命スペクトルの傾きが一定となる時間領域(図 8 では 160 ns 以降)では Ps は周囲と温度平衡に達していると考え、その速度分布をマクスウェル分布で仮定すると、2.08(1)乗という値が説明できる。これは Ps の全消滅率のうち、マクスウェル分布の高速度(高エネルギー)側の裾に含まれる Ps の寄与が、大きな割合を占めているためである。

このように、確かにスピン転換反応は強い正のエネルギー依存性を持っていることが、確認された。

一方、ピックオフ消滅率は温度の 1.03(1)乗に比例し、つまり 623 K に加熱すると 300 K の 2 倍強となったが、これは他の気体では 1.1~1.3 倍程度の値が報告されていること[39]、に比べ予想外に大きな温度依存性である。その原因は、現

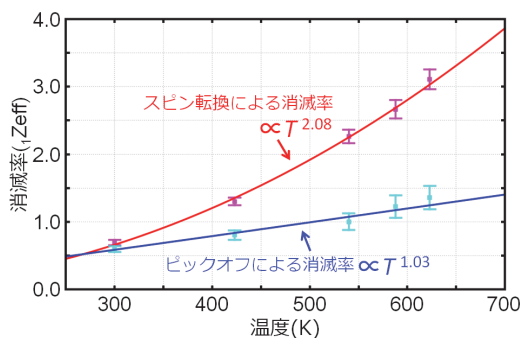


図 9: 250 kPa の Xe 中における消滅率の内訳とその温度依存性。[38]

時点では解明されていない(第 8 節で述べる解析を進めると、明らかになるかもしれない)。

7.2 スピン転換反応を利用した Ps のエネルギーの計測

以上のように、Xe 中の Ps の消滅率はエネルギーに強く依存するが、ここでは逆に、Xe 中における Ps の消滅率の時間発展を計測して、Ps のエネルギーの時間発展を高精度に求める方法を紹介する[40]。Ps のエネルギーの時間発展が明らかになれば、運動量移行断面積などの Ps-Xe 散乱を理解する上で不可欠な情報が得られ、未だに真の形成率 F が不明な「Xe 問題」の決着に向け、また一歩前進する。

実験系は、消滅 γ 線的一方をエネルギー分解能に勝れた HP-Ge 検出器で測定し、他方を時間分解能に勝れた BaF₂ シンチレーション検出器で測定するものである。つまり、核 γ 線と合わせた三重同時計数測定系を構築して、第 4 節で述べた代表的な情報である、エネルギー(運動量)情報と時間情報を、同時に取得する。

このとき、HP-Ge 検出器で測定された消滅 γ 線のエネルギーが、511 keV の光電ピークの領域(509~515 keV)に含まれるときは二光子消滅を検出したものとし、光電ピークと 340 keV 付近に現れるコンプトンエッジの間の領域(410~473 keV)に含まれるときは三光子消滅を検出したものとする。それぞれのイベントを収集して、二光子消滅寿命スペクトル $I_2(t)$ と三光子寿命スペクトル $I_3(t)$ を、それぞれ作成する。

ここで、 ε_2 と ε_3 をそれぞれ二光子消滅と三光子消滅の検出率とし、 $N(t)$ を o -Ps の数とし、 $\lambda_2(t)$ と λ_3 をそれぞれ二光子消滅率および三光子消滅率($\lambda_3 = \lambda_0 = 7.0401(7) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$)とすると、それぞれの寿命スペクトルは、

$$\begin{aligned} I_2(t) &= \varepsilon_2 \lambda_2(t) N(t) \\ I_3(t) &= \varepsilon_3 \lambda_3 N(t) \end{aligned} \quad (10)$$

である。これを辺々割って $N(t)$ を消去し、整理すると、

$$\lambda_2(t) = (\varepsilon_3 / \varepsilon_2) [I_2(t) / I_3(t)] \lambda_0 \quad (11)$$

を得る。つまり、測定された二光子消滅寿命スペクトルと三光子寿命スペクトルの比をとると、それは二光子消滅率の定数倍となるのである。なお、

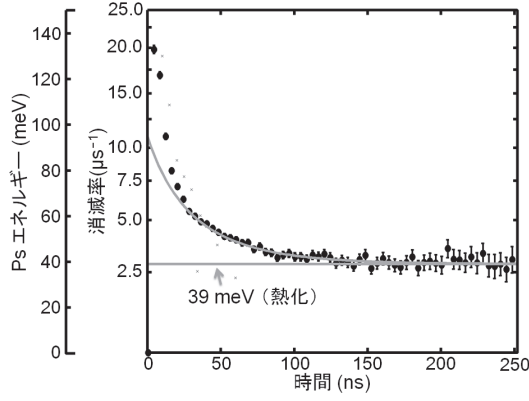


図 10: Xe ガス (2.5 Kpa) およびシリカエアロゲル中における, Ps の二光子消滅率とエネルギーのタイムプロファイル[40].

300 K の寿命値から, $\varepsilon_3/\varepsilon_2 = 0.231(6)$ と定まるので, 二光子消滅率の絶対値が求まる.

各温度での二光子消滅率は前節で図 9 のように求められているので, 図 10 のように, 二光子消滅率を Ps の平均エネルギー (\bar{E}) に換算できる.

図中のフィッティング曲線は, 古典的な弾性散乱を仮定したモデルで, $\bar{E}(t) = E_{th} \coth^2(\alpha + \beta t)$ の形の双曲線関数である[41]. ただし, E_{th} は熱浴のエネルギー, α はエネルギーの初期値で決まる定数, β は熱化の速度を表す定数である. このフィッティング結果は, 20 ns 以降の時間帯 (\bar{E} が 40~60 meV の範囲) において良好であった.

β の内訳は, Xe との衝突に起因する項 (β_{Xe}) と, シリカエアロゲルとの衝突に起因する項 (β_{SAG}) に分けて,

$$\begin{aligned} \beta &= \beta_{Xe} + \beta_{SAG} \\ \beta_{Xe} &= (\sigma_m n_{Xe} v_{th}) \cdot (2m_e/M_{Xe}) \\ \beta_{SAG} &= (v_{th}/L) \cdot (2m_e/M_{SAG}) \end{aligned} \quad (12)$$

と書ける[29]. ただし, σ_m は 40~60 meV の範囲で一定とみなした Ps-Xe 散乱の運動量移行断面積, n_{Xe} はガス分子の数密度, v_{th} は熱化した Ps の速度, M_{Xe} は Xe の質量, L はシリカエアロゲルの微粒子間の平均距離, および M_{SAG} は Ps との衝突におけるシリカエアロゲルの表面原子団の実効的な質量である.

この β の逆数の値が, Xe のガス圧が 100 kPa ($n_{Xe} = 2.42 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$) のときには $\beta^{-1} = 121(6)$ ns であり, 250 kPa ($n_{Xe} = 6.06 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$) のときには $\beta^{-1} = 89(2)$ ns であったことから, 40~60 meV の

エネルギー範囲で $\sigma_m = 12(2) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ と求められた[40]. これは, Xe の van der Waals 半径から算出される断面積 ($14.7 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$) に近い値である.

Ps エネルギーの時間発展や運動量移行断面積は, 4.3 節で述べたように, ドップラー法や二光子角相関法で調べられてきた. 例えば, Ps のエネルギー分解能に注目してみると, 式(5)から明らかのように, 従来の両手法では測定値が Ps の運動量 p に比例 (エネルギー E の 0.5 乗に比例) して変化する. これに対して, 図 9 から分かるように, スピン転換を利用する新しい方法では, 測定値が温度 T の約 2 乗に比例 (E の 2 乗に比例) して変化的ことから, 高いエネルギー分解能が得られる (凡そ 80 倍). また, 従来の両手法では, 原理的に二光子消滅にしか感度がないが, スピン転換を利用する方法では三光子消滅もデータとなるので, 感度も向上する (凡そ 6 倍).

今後は, Xe ガスを“温度計”として用い, 他のガスを Xe と混合することで, Ps と様々な分子の運動量移行断面積などを求めることが期待される.

8. スピン転換反応の応用と新しい原子分子物理への道

最後に, Ps のスピン転換反応が s 波散乱では禁制であることにより生じる, Ps 散乱の研究上の特徴を述べる.

ピックオフの消滅率 (Λ_{po}) とスピン転換の消滅率 (Λ_{sc}) は, それぞれ,

$$\begin{aligned} \Lambda_{po} &= n f_{po} \frac{\hbar}{m} \frac{\int \rho(k) \left\{ \sum_{L=0}^{\infty} \sigma_L(k) \right\} k dk}{\int \rho(k) dk} \\ \Lambda_{sc} &= n f_{sc} \frac{\hbar}{m} \frac{\int \rho(k) \left\{ \sum_{L=1}^{\infty} \sigma_L(k) \right\} k dk}{\int \rho(k) dk} \end{aligned} \quad (13)$$

と書ける. f_{po} と f_{sc} は散乱 1 回当たりの各消滅率, k は Ps の波数, $\rho(k)$ は波数分布 (熱平衡下ではマクスウェル分布), $\sigma_L(k)$ は軌道角運動量 L の部分波の弾性散乱の断面積である. なお, Λ_{sc} については, 部分波の和を $L=1$ (p 波) からとる.

ここで, $\sigma_L(k)$ は位相シフト $\delta_L(k)$ と,

$$\sigma_L(k) = 4\pi k^{-2} (2L+1) \sin^2 \delta_L(k) \quad (14)$$

の関係にあり, また, $\delta_L(k)$ はポテンシャルの係数等をあらわに含まない最低次の近似(形状独立近似)で,

$$\cot \delta_L(k) = k^{-(2L+1)} (-A_L^{-1} + r_L k^2 / 2) \quad (15)$$

である. 特に, 低エネルギーで散乱を支配する s 波散乱の A_0 は散乱長(scattering length)と呼ばれ, r_0 は有効到達距離(effective range)と呼ばれる.

低エネルギーPsの散乱に伴う消滅のうち, ピックオフ消滅では s 波散乱が支配的になり, スピン転換消滅では p 波散乱が支配的になると考えられる. このことから, p 波散乱のパラメータである A_1 と r_1 も精度良く決定できると期待される. s 波の影響を除外できる低エネルギー衝突実験はユニークであり, 理論との対比も含め, 新しい物理の展開が期待される.

9. 結言

日本では陽電子を用いた研究が長年盛んであり[42], Ps と気体の相互作用に関する研究においても, 国内の研究者が数々の重要な役割を果たしてきた.

「Xe 問題」に対しても実験により, Ps は形成されているが何らかの強いエネルギー依存性を持つ機構で消滅しているとの見解を示した事[33], 初めてスピン転換反応を実証した事[25], などで大きく貢献している.

また, 測定技術の面においても, シリカエアロゲルの導入により低圧でガス実験が可能になった事[29], 本稿では割愛したが, デジタルサンプリング機器(デジタルオシロスコープなど)の導入によりアナログ回路を大幅に簡略化かつ高精度化した事[43], などで大きく寄与した.

今後も陽電子の特徴を生かした実験法や解析法を開発し, 原子分子衝突の分野に発展に寄与したい.

なお, 第 7, 8 節で紹介した内容のうち, 著者自身の関与する研究については, 科研費(23654114 および 15H03703)の支援を受けたので, ここに謝意を表する.

参考文献

- [1] 高柳和夫, “原子分子物理学”, 朝倉書店(2000), 20.
- [2] O. Nachtmann, 'Elementary Particle Physics Concepts and Phenomena', (Springer-Verlag, Tokyo) 1990, Section 13.1.
- [3] H. J. Zhang, S. Yamamoto, B. Gu, H. Li, M. Maekawa, Y. Fukaya, and A. Kawasuso, Phys. Rev. Lett. **114**, 166602 (2015).
- [4] R. Suzuki, Y. Kobayashi, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, and T. Tomimasu, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L532 (1991).
- [5] A. Ando, V. N. Belyaev, S. Daté, H. Kamitsubo, A. V. Kiselev, G. N. Kulipanov, N. Kumagai, N. A. Mezentsev, Y. Miyahara, T. Nakamura, A. N. Skrinsky, K. Soutome, M. Takao, H. Tanaka, and I. S. Voronchev, J. Synchrotron Rad. **3**, 201 (1996).
- [6] C. Hugenschmidt, G. Kogel, R. Repper, K. Schreckenbach, P. Sperr, B. Straßer, W. TRiftshauser, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **221**, 160 (2004).
- [7] C. Hugenschmidt, C. Piochacz, M. Reiner, and K. Schreckenbach, New J. Phys. **14**, 055027 (2012).
- [8] K. Sato, Q. Xu, T. Yoshiie, T. Sano, H. Kawabe, Y. Nagai, K. Nagumo, K. Inoue, T. Toyama, N. Oshima, A. Kinomura, Y. Shirai, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **342**, 104 (2015).
- [9] K. Michishio, T. Tachibana, H. Suzuki, K. Wada, A. Yagishita, T. Hyodo and Y. Nagashima, Appl. Phys. Lett. **100**, 254102 (2012).
- [10] A. Ishida, T. Namba, S. Asai, T. Kobayashi, H. Saito, M. Yoshida, K. Tanaka, A. Yamamoto, Phys. Lett. B **734**, 338 (2014).
- [11] B. A. Kniehl and A. A. Penin, Phys. Rev. Lett., **85**, 1210 (2000).
- [12] Y. Kataoka, S. Asai, and T. Kobayashi, Phys. Lett. B **671**, 219 (2009).
- [13] 量子力学的な描像では, 等方的に放射された消滅 γ 線の波動関数が, 観測された時点で一点に収束し, 同時に他方の消滅 γ 線

- の位置も収束する. [c.f., H. Saito and K. Shibuya, *Phys. Rev. A* **85**, 042111 (2012).]
- [14] S. S. Gambhir, *Nature Rev. Cancer* **2**, 683 (2002).
- [15] M. Rudin and R. Weissleder, *Nature Rev. Drug Discov.* **2**, 123 (2003).
- [16] Y. Sano, Y. Kino, T. Oka, and T. Sekine, *J. Phys. Conf. Ser.* **618** 012010 (2015).
- [17] T.C. Griffith and G.R Heyland, *Phys. Rep.*, **39** 169 (1978).
- [18] M. Charlton, *Rep. Prog. Phys.* **48** 737 (1985).
- [19] C. M. Surko, G. F. Gribakin, and S. J. Buckman, *J. Phys. B* **38**, R57 (2005).
- [20] K. Wada, F. Saito, N. Shinohara, and T. Hyodo, *Eur. J. Phys. D* **66**, 108 (2012).
- [21] T. Hyodo, T. Nakayama, H. Saito, F. Saito, and K. Wada, *Phys. Stat. Solidi C* **6**, 2497 (2009).
- [22] N. Shinohara, N. Suzuki, T. Chang, and T. Hyodo, *Phys. Rev. A* **64**, 042702 (2001).
- [23] S. Y. Chuang and S. J. Tao, *Phys. Rev. A* **9**, 989 (1974).
- [24] J. Mitroy and S. A. Novikov, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 183202 (2003).
- [25] H. Saito and T. Hyodo, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 253402 (2006).
- [26] K. Shibuya, E. Yoshida, F. Nishikido, T. Suzuki, T. Tsuda, N. Inadama, T. Yamaya, and H. Murayama, *Phys. Med. Biol.* **52**, 5249 (2007).
- [27] T. Chang, M. Xu, and X. Zeng, *Phys. Lett.* **126**, 189 (1987).
- [28] M. Skalsey, J. J. Engbrecht, R. K. Bithell, R. S. Vallery, and D. W. Gidley, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3727 (1998).
- [29] Y. Nagashima, M. Kakimoto, T. Hyodo, K. Fujiwara, A. Ichimura, T. Chang, J. Deng, T. Akahane, T. Chiba, K. Suzuki, B. T. A. McKee, and A. T. Stewart, *Phys. Rev. A* **52**, 258 (1995).
- [30] Y. Nagashima, T. Hyodo, K. Fujiwara, and A. Ichimura, *J. Phys. B* **31**, 329 (1998).
- [31] Ed. W. M. Haynes, 'CRC Handbook of Chemistry and Physics, 96th Edition', (Taylor & Francis, New York) 2015, Section 10.
- [32] G. L. Wright, M. Charlton, T. C. Griffith, and G. R. Heyland, *J. Phys. B* **18**, 4327 (1985).
- [33] M. Kamimoto and T. Hyodo, *J. Phys. B* **21**, 2977 (1988).
- [34] M. Tuomisaari, K. Rytola, and P. Hautojarvi, *J. Phys. B* **21**, 3917 (1988).
- [35] W. C. Sauder and R. D. Deslattes, *J. Res. Natl. Bur. Stand.* **71A**, 347 (1967).
- [36] 兵頭俊夫, 長嶋泰之, *日本物理学会誌* **52**, 248 (1997).
- [37] H. Saito, T. Nakayama, and T. Hyodo, *J. Phys. Conf. Ser.* **194**, 012038 (2009).
- [38] K. Shibuya, T. Nakayama, H. Saito, and T. Hyodo, *Phys. Rev. A* **88**, 012511 (2013).
- [39] R. S. Vallery, A. E. Leanhardt, M. Skalsey, and D. W. Gidley, *J. Phys. B* **33**, 1047 (2000).
- [40] K. Shibuya, Y. Kawamura, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **88**, 042517 (2013).
- [41] W. C. Sauder, *J. Res. Natl. Bur. Stand.* **72A**, 91 (1968).
- [42] K. Fujiwara, *J. Phys. Soc. Jpn* **20**, 1533 (1965).
- [43] H. Saito, Y. Nagashima, T. Kurihara, and T. Hyodo, *Nucl. Instrum. Methods A* **487**, 612 (2002).

分子から発生する高次高調波の研究

加藤康作*

¹ 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター テラヘルツサイエンスグループ

〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-6 21 世紀プラザ 3 階 共同研究室 1

kato-ko@ile.osaka-u.ac.jp

平成 27 年 9 月 19 日原稿受付

分子に強いレーザー光を照射して発生する高次高調波は、その解析から分子の電子状態の情報が高い空間・時間分解能で得ることができることから近年盛んに研究が行われている。本稿では私たちがこれまでに行ってきた、以下の二つの研究を紹介する。(1) 配列した分子から発生する高次高調波の、分子の配列方向に対する依存性を、光パラメトリック増幅器から出る波長 1300 nm のパルスの基本波として調べた。CO₂ 分子から発生する高次高調波は N₂ や O₂ と異なり基本波の偏光が分子の向きと平行なときに強度が弱まるのが波長 800 nm の光を基本波とした場合について報告されていたが、より長波長な波長 1300 nm の光を基本波としても同様の現象が起こることが確かめられた。(2) 高次高調波のイオン化限界近傍における振る舞いを調べるため、隣り合う次数間の位相差を調べる装置を開発した。この装置により Ar と N₂ から発生する高次高調波を測定して比較したところ、11 次と 13 次の位相差に有意な違いが現れた。考えられる原因として、クーロンポテンシャルの形状の違いの影響を検討した。

1. はじめに

原子や分子 (以下、簡単のため原子も含めて「分子」と書く) に強いレーザー光を照射すると、非線形効果により照射したレーザー光の整数倍の光子エネルギーをもつ光が高調波として発生する。レーザー光の電場強度が分子内のクーロン電場に比べてずっと弱いときは、高調波の振る舞いは媒質の分極 P をレーザー電場 E のべき級数 $P = \sum_n \chi^{(n)} E^n$ で表して高次項を打ち切る近似でよく記述され [1, §1], 高調波の強度は次数が上がるにつれて急峻に減少する。しかし、レーザー光の電場強度が分子内の電場と同程度に大きくなると、もはやこのような摂動論的記述は使えなくなる。実際、レーザー光の強度が 10^{14} W/cm² 程度に達すると、図 1 の例のように次数が 10 を超えるような高い次数の高調波が真空紫外の広い波長範囲に渡って発生し、そのスペクトルには次数に対して高調波の強度があ

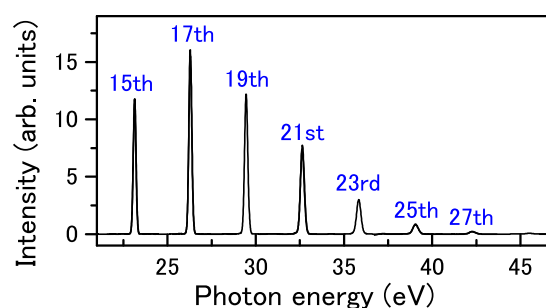


図 1: 高次高調波スペクトルの例. Ar 原子に Ti:sapphire 増幅器から出た中心波長 800 nm (光子エネルギー ~ 1.55 eV) の光を照射したときに発生した高次高調波。

まり変わらない「プラトー」と呼ばれる領域が現れる。

このような、摂動論で記述できない振る舞いを示す「高次高調波」(high-order harmonics) の発生はレーザーの高強度化に伴い 1980 年代より実験で観測されるようになった [2, 3]. 一方、理論面では 1993 年に高次高調波の発生メカニ

ズムを説明する「3ステップモデル」が提案された [4] (図 2). まず, 分子内のクーロンポテンシャルに束縛されている電子が高強度レーザー電場によってトンネルイオン化し, 連続状態に遷移する (ステップ 1). 次に, 連続状態にある電子がレーザー電場によって加速され, レーザー電場の向きが反転すると親イオンのほうに戻ってくる (ステップ 2). 親イオンと再結合する際, 双極子放射で真空紫外光が発生する (ステップ 3). この「3ステップモデル」はシンプルな模型であるにもかかわらず, 高次高調波のスペクトルの特徴をよく記述できることが分かった. 例えば, 振幅 E , 角振動数 ω の振動電場中で電子が持つ運動エネルギーの平均値 $E^2/4\omega^2$ を U_P (「ポンデロモティブエネルギー」と呼ばれる)¹, 媒質のイオン化ポテンシャルを I_P と書くと, 上述の「プラトー」領域が終わり高調波の強度が急減する「カットオフ」の光子エネルギーは, 3ステップモデルによる $3.17U_P + I_P$ に近い値をとることが知られている. さらに翌 1994 年には, 3ステップモデルを量子力学に基づき拡張したモデルが提案された [5]. このモデルによると, 高次高調波の電場 E_{HH} は, 3ステップモデルのステップ 3 において戻ってくる電子の波動関数 $|\psi_{\text{return}}\rangle$ と, 再結合先の分子軌道 $|\psi_{\text{orbital}}\rangle$ との間の遷移双極子モーメントに近似的に比例する. 戻ってくる電子のド・ブローイ波が平面波で近似できると,

$$\begin{aligned} E_{HH}(\omega) &\sim \langle \psi_{\text{orbital}} | \mathbf{r} | \psi_{\text{return}} \rangle \\ &\simeq \int d\mathbf{r} \psi_{\text{orbital}}^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \end{aligned} \quad (1)$$

となる. ここで, ω は高次高調波の光子エネルギー, \mathbf{k} は戻ってくる電子の波動関数の波数ベクトルである. 式 (1) は, 高次高調波のスペクトル $E_{HH}(\omega)$ に分子軌道の形状 $\psi_{\text{orbital}}(\mathbf{r})$ の情報が内包されていることを示している. この顕著な例として, 2004 年に発表された高次高調波による分子軌道のイメージング実験が挙げられる [6]. この実験では配列した N_2 分子に高強度

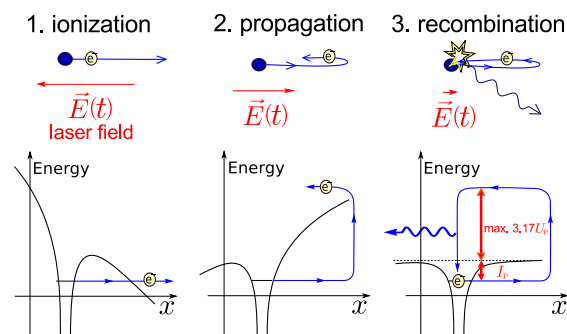


図 2: 高次高調波発生 の 3 ステップモデル. (1) 強いレーザー電場によって電子が分子から飛び出す. (2) 電子がレーザー電場によって加速され, 戻ってくる. (3) 親イオンと再結合するとき光子を放出する.

レーザー光を照射し, 発生した高次高調波を解析することで N_2 分子の最高被占軌道の形状を再現した. 高次高調波発生 の 3 ステップの最後の過程で再衝突する電子波束の時間幅は 1 フェムト秒程度と短いことから [7], 高次高調波のスペクトルから得られる情報は高い時間分解能をもち, 分子の物理を調べる手段として近年盛んに研究されている [8–11]. 本稿では, 分子から発生する高次高調波の研究の例として, 長波長パルスを用いた配列分子中からの高次高調波発生 [12], および高次高調波のイオン化限界近傍における位相差の観測 [13] について紹介する.

2. 長波長パルスを用いた配列分子中からの高次高調波発生

強度が 10^{13} W/cm² 程度の比較的弱いレーザーパルスを分子に照射すると, 分子の分極率の異方性のためにトルクが働き, 分子の向きを揃えることができる [14]. この手法を用いて配列させた分子からの高次高調波を調べたところ, N_2 や O_2 の場合は基本波の偏光が分子の向きと平行なときに高次高調波が強くなるのに対して, CO_2 分子から発生する高次高調波は基本波の偏光が分子の向きと平行なときに強度が抑制されるという現象が 2005 年に報告された [8]. 文献 [8] ではこの抑制を分子軌道の形状に起因する再結合過程の破壊的干渉により説明した. しかしその後,

¹本稿では特に断らない限り原子単位系を用いる.

CO₂ の複数のイオン化チャンネル間の破壊的干渉によるという新たな仮説が提案され [15], CO₂ から発生する高次高調波の抑制においてイオン化過程と再結合過程のどちらが主要な要因なのかについて議論が続いていた. ところで, 高次高調波を発生させる基本波の波長を変えると, イオン化過程は波長によって変化するが再結合過程は波長に依存しない. したがって, 異なる波長の光を基本波としたときの高次高調波を比較することで, 上述の現象の原因を明らかにできると考えられる. そこで, 私たちは論文 [8, 15] で用いられた波長 800 nm のパルスより長い 1300 nm の波長をもつ高強度レーザー光を基本波として配列分子に照射し, 高次高調波の振る舞いを波長 800 nm の基本波を用いた場合と比較した.

2.1 実験

実験セットアップを図 3 に示す. Ti:sapphire 増幅器の出力 (中心波長 800 nm) の一部を分子配列用のポンプ光 (パルス幅 ~130 fs, ピーク強度 ~ 3×10^{13} W/cm²) とし, 残りを光パラメトリック増幅器で中心波長 1300 nm のパルス (パルス幅 ~60 fs, ピーク強度 ~ 7×10^{13} W/cm²) に変換してプローブ光として用いた. ポンプ光とプローブ光は直線偏光しており, 偏光の向きは互いに平行になるようにした. パルスバルブから出る分子のガスジェットにまずポンプ光を照射し, 一定遅延時間後にプローブ光を照射した. ポンプとプローブの遅延時間を変えながら, 発生した高次高調波のスペクトルを平面結像型斜入射分光器と CCD カメラを用いて観測した. 比較のため, 波長 800 nm の光をプローブとして用いた実験も行った. この際は, プローブ光照射時に発生するイオン量をイオンコレクターで測定することで, イオン収量の配列依存性を観測した.

2.2 結果と考察

ポンプ光照射後, 分子の配列状態は時間とともに変化する. ポンプ光の偏光と分子軸のなす角を θ とすると, $\cos^2\theta$ の集団平均値 $\langle \cos^2\theta \rangle$ について文献 [16] で述べられた手法により計算し

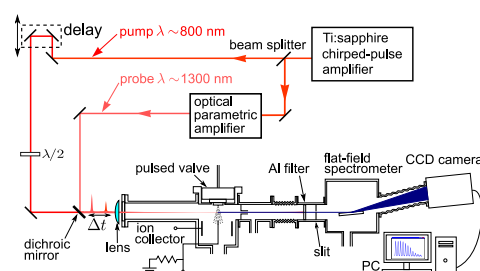


図 3: 長波長パルスを用いた配列分子中からの高次高調波発生実験のセットアップ.

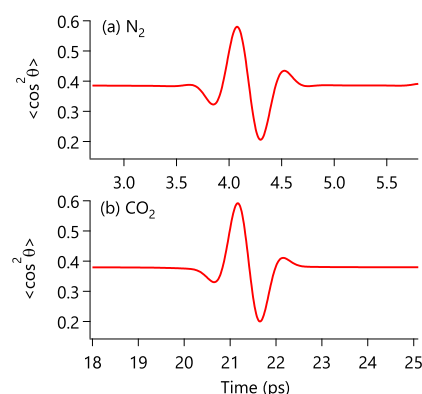
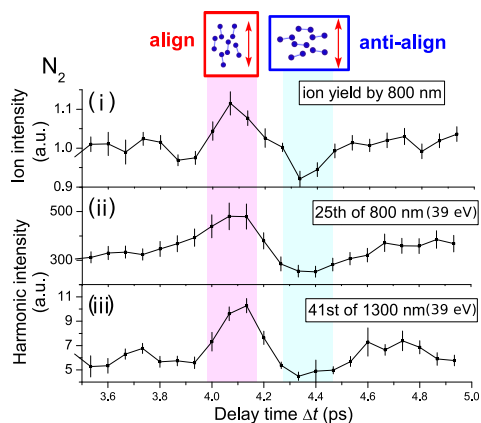


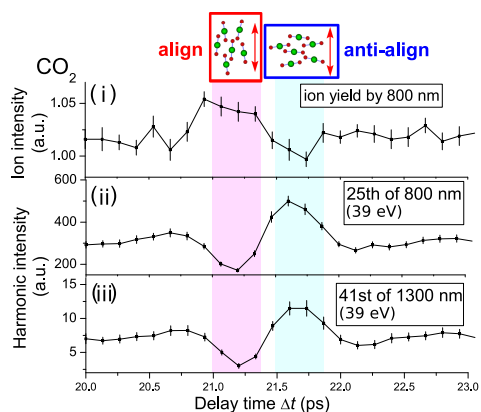
図 4: ポンプ光を照射後の遅延時間 Δt に対する配列度 $\langle \cos^2\theta \rangle$ の時間変化の計算結果. 文献 [16] で述べられた手法により計算した. 回転温度は 100K を仮定し, ポンプ光は実験に合わせてパルス幅 ~130 fs, ピーク強度 ~ 3×10^{13} W/cm² とした.

た結果を図 4 に示す. $\langle \cos^2\theta \rangle$ は分子の配列度の指標で, 分子の集団がランダムな向きするとき 1/3 であり, ポンプ光の偏光方向に平行に揃っているとき (“align”) は 1 に, ポンプ光の偏光方向と直交した面内に揃うとき (“anti-align”) は 0 に近づく. N₂ [図 4(a)] と CO₂ [図 4(b)] のどちらの場合でも, ポンプ光照射からの経過時間 Δt が分子の回転周期 T_{rot} (N₂ は約 8.4 ps, CO₂ は約 42.7 ps) の半分 $\Delta t \simeq T_{\text{rot}}/2$ において, $\langle \cos^2\theta \rangle$ はまず増加して 1 に近づき, その後減少して 0 に近づく. このように, 分子の向きは $\Delta t \simeq T_{\text{rot}}/2$ の付近において, まずポンプ光の偏光に対して平行に揃い, 次に直交した面内に揃うことが分かる [14, 16].

図 5(a) と 5(b) の (i) に, 波長 800 nm のプローブ光によって N₂ および CO₂ から生じたイオン強度をポンプ光との遅延時間 Δt の関数としてそ



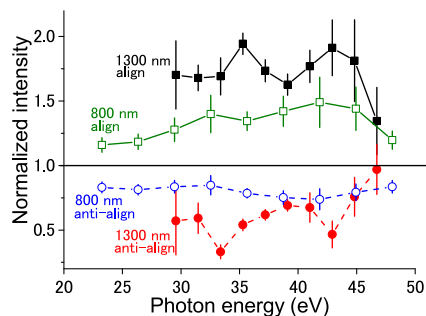
(a)



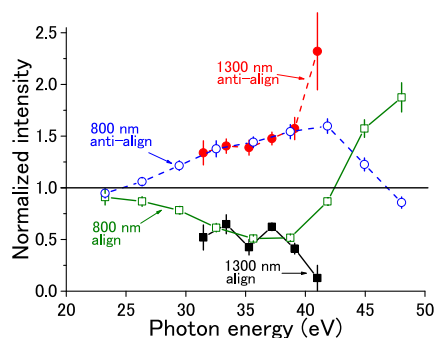
(b)

図 5: ポンプ光を照射後の遅延時間 Δt に対する, (i) 波長 800 nm のプローブ光で発生したイオン量, (ii) 波長 800 nm のプローブ光で発生した 25 次高調波強度, (iii) 波長 1300 nm のプローブ光で発生した 41 次高調波強度. (a) N_2 分子, (b) CO_2 分子についての結果 [12].

それぞれ示した. イオン強度はどちらの分子の場合でも, それぞれの分子の回転周期の半分 $T_{rot}/2$ が経過した付近で増加してから減少するという振る舞いを示した. これは, N_2 と CO_2 のどちらにおいてもイオン化確率は分子軸とレーザーの偏光が平行な場合のほうが垂直な場合より強くなることを示している. 図 5 の (ii) と (iii) に, 波長 800 nm の光と 1300 nm の光の高次高調波のうち, ほぼ等しい約 39 eV の光子エネルギーをもつ次数 (800 nm の 25 次, 1300 nm の 41 次)



(a)



(b)

図 6: 波長 800 nm および 1300 nm の高次高調波強度. プローブ光の偏光に対して平行に揃ったとき (“align”) および直交した面内に揃ったとき (“anti-align”) の強度をランダムな向きの強度で規格化した. (a) N_2 分子, (b) CO_2 分子についての結果 [12].

の強度を, ポンプ光との遅延 Δt の関数として示した. どちらの波長の場合でも, N_2 分子の場合 [図 5(a)] 高次高調波は分子の向きと偏光方向が平行なときに強くなるが, CO_2 分子 [図 5(b)] では, 分子の向きと基本波の偏光方向が平行なときに強度が弱くなった. 図 6(a) と図 6(b) に, それぞれ配列した N_2 分子と CO_2 分子から発生した高次高調波の強度を分子がランダムな向きを向いているときの強度で規格化した結果を光子エネルギーの関数として示した. 波長 1300 nm のパルスを用いても波長 800 nm の場合 [8] と同様, 30 eV~40 eV の光子エネルギーをもつ高調波において, CO_2 分子では分子の向きと基本波の偏光方向が平行な場合の方が弱くなるのが分かった.

高次高調波スペクトルは3ステップモデル(図2)の第3ステップにおいて戻ってくる電子の波束と光再結合断面積の積として理解でき, 分子軌道の形状は主に後者に反映される [17, 18]. 文献 [8] では配列した CO_2 における高次高調波の抑制を, その最高被占軌道の形状により, 式 (1) に現れる電子の連続状態から束縛状態への遷移双極子モーメントが小さくなるために起こると説明している. この機構は基本波の波長によらずに起こり得る. 一方, 文献 [15] で提案されたモデルでは, CO_2 分子の最高被占軌道(イオン化ポテンシャル $I_{p0} = 13.8$ eV) とその二つ下の軌道(イオン化ポテンシャル $I_{p2} = 18.1$ eV) からイオン化する過程が存在し, この二つの過程から発生する高次高調波の位相差 $\delta\varphi \sim (I_{p2} - I_{p0})\tau + 0.5\pi$ が破壊的干渉条件 $\delta\varphi = (2n + 1)\pi$ (n は整数) を満たすときに高次高調波が弱まると説明している (0.5π は二つの軌道の対称性の違いに起因する [15]). ここで τ は電子がイオン化してから再結合するまでの時間であり, これは基本波の波長によって変わる [19]. 例えば古典計算により τ を得ると, 800 nm の 21 次高調波を発生させる電子は $\tau = 1.1$ fs に対し同程度の光子エネルギーをもつ 1300 nm の 31 次高調波は 1.9 fs であり, 前者が $\delta\varphi \simeq 2.8\pi$ と破壊的干渉条件に近いのに対し後者は $\tau \simeq 4.4\pi$ とむしろ建設的干渉条件に近くなる [12]. しかし本実験ではどちらの場合においても CO_2 分子から発生する高次高調波は分子の向きと基本波の偏光方向が平行な場合の方が弱くなったことから, この抑制には文献 [8] で提案されたような再結合における電子の連続状態から束縛状態への遷移双極子モーメントが CO_2 の分子軌道の形状を反映して小さくなる効果の方が主要な役割を果たしていると推測される.

3. 原子および分子から発生する高次高調波のイオン化限界近傍における位相差の観測

冒頭で示した式 (1) では, 戻ってくる電子のド

ブロイ波を平面波で近似している. これは, 再結合時に親イオンの作るクーロンポテンシャルの影響を無視していることに対応する. この近似に“イオン化前の束縛状態として基底状態のみを考え, 励起状態の寄与は無視する”, “イオン化に伴う基底状態の減少の効果は無視する” という二つを加えた近似が文献 [5] で提案されており, 強電場近似 (strong-field approximation) と呼ばれている. 強電場近似を用いることで, 高次高調波がもつ特徴を簡単な計算で比較的正確に再現することができる. しかし, 最近イオン化エネルギーと同程度の光子エネルギーをもつ, いわゆる「イオン化限界近傍」の高次高調波を調べた研究において, 強電場近似では説明できない現象が観測された [20]. 現状ではこのような低い次数の高次高調波の研究は高い次数のものに比べて限られているが, 例えば大きな分子の軌道の情報を高次高調波から得るためにはド・ブロイ波長の長い再結合電子に対応する低次の高調波の情報を適切に取り込む必要があり, その際にはイオン化限界近傍の高次高調波の理解が重要になると考えられる. ところで, 高次高調波の電場のフーリエ成分 $E_{\text{HH}}(\omega) \equiv |E_{\text{HH}}(\omega)| \exp(i\phi_{\text{HH}}(\omega))$ について, 通常の回折格子を用いた分光器ではその強度 $|E_{\text{HH}}(\omega)|$ しか得ることができない. 高次高調波の隣り合う次数の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}$ は高次高調波が放出された時間 t_e と

$$t_e \simeq \frac{\Delta\phi_{\text{HH}}}{2\omega_0} \quad (2)$$

(ω_0 は基本波の角周波数) で関係づけられることが知られている [21] ので, もしイオン化限界近傍の高次高調波を発生させる再結合電子がクーロンポテンシャルの影響を受けるなら, その効果が位相 $\phi_{\text{HH}}(\omega)$ に現れることが期待される. 私たちはクーロンポテンシャルの形状の違いが高次高調波発生過程に及ぼす影響を調べるため, ほぼ等しいイオン化エネルギーの値を持つがクーロンポテンシャルの形状が異なる Ar 原子と N_2 分子から発生する高次高調波の隣り合う位相差の測定を行い, そこから得られる情報について考察を行った.

3.1 RABBIT 法について

位相差を調べる方法として, RABBIT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) と呼ばれる方法を用いた [22]. この手法では, 高次高調波とその基本波を時間差 Δt をつけて希ガスに集光し, 発生する光電子のエネルギースペクトルを観測する. 光電子のエネルギースペクトルには高調波による一光子イオン化の信号の間に高調波の光子と基本波の光子が1個ずつ関与した二光子イオン化による光電子の信号がサイドバンドとして現れる. ここで, $(2n-1)$ 次高調波の信号と $(2n+1)$ 次高調波の信号との間に現れるサイドバンド (以下 “ $(2n)$ 次サイドバンド” と呼ぶ) を発生させる過程としては, “ $(2n-1)$ 次高調波の光子と基本波の光子1個を吸収する” 過程と, “ $(2n+1)$ 次高調波の光子1個を吸収し基本波の光子1個を放出する” 過程の二つが存在し, この二つは互いに干渉する. 二次の摂動論を用いて計算すると, $(2n)$ 次サイドバンドの信号強度は

$$S_{2n} = A_I^2 A_X^{(2n-1)2} A_+^{(2n+1)} + A_I^2 A_X^{(2n+1)2} A_-^{(2n-1)} + A_I^2 A_X^{(2n-1)} A_X^{(2n+1)} A_{\text{atom}}^{(2n)} \times \cos \left[2\omega_0 \Delta t - \Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)} \right] \quad (3)$$

と表される [13]. ここで, $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} \equiv \phi_{\text{HH}}^{(2n+1)} - \phi_{\text{HH}}^{(2n-1)}$ が $(2n-1)$ 次高調波と $(2n+1)$ 次高調波との間の位相差であり A_I と $A_X^{(2n\pm 1)}$ はそれぞれ probe pulse と $(2n\pm 1)$ 次高調波の電場振幅, $A_{\pm}^{(2n\pm 1)}$, $A_{\text{atom}}^{(2n)}$, $\Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}$ は高次高調波の振幅および位相によらない数である. そこで, 高次高調波と基本波の時間差 Δt に対するサイドバンド強度の変調の様子を観測することで, $(2n-1)$ 次数高調波と $(2n+1)$ 次数高調波との間の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)}$ を抽出することができる.

3.2 位相差測定装置の開発

実験装置の概要を図7に示す. Ti:sapphire 増幅器から出た光を穴あきミラーで外側のドーナツ状のビームと内側の細いビームの2つに分け, 外側は高次高調波を発生させるための driving

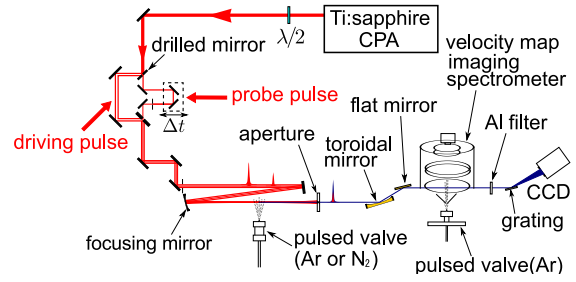


図7: 位相差測定の実験セットアップ [13].

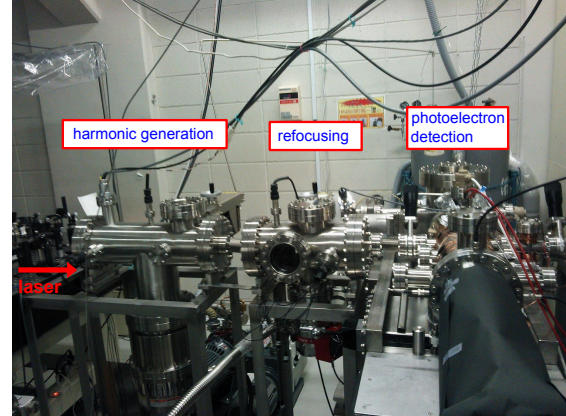


図8: 実験装置の一部の写真. レーザーは左側の真空槽に入射して高次高調波を発生させる. 中央の真空槽の中のトロイダルミラーにより高調波と基本波を集光し, 右側の速度マップイメージング装置で光電子を観測する.

pulse, 内側を RABBIT 法を用いた測定のための probe pulse とした. 両者は piezoelectrically driven delay stages により光路差をつけた後, 穴あきミラーで同軸上に戻してから真空槽 (図8) に入れ, 凹面鏡でガスジェット中に集光した. 外側の光は高次高調波を発生させた後にアパーチャで遮断した. 高次高調波と内側の細い probe pulse はアパーチャを通り抜け, トロイダルミラーによって Ar ガスジェット中に集光した. 発生した光電子の運動量分布を速度マップ型イメージング装置 [23] で観測し, そこからエネルギースペクトルを得た.

3.3 結果と考察

図9は, Ar のジェットから発生した高次高調波を位相差検出用の Ar ジェットに集光して放出された光電子の運動量分布を示しており, 左が高次高調波のみを集光した場合, 右が高次

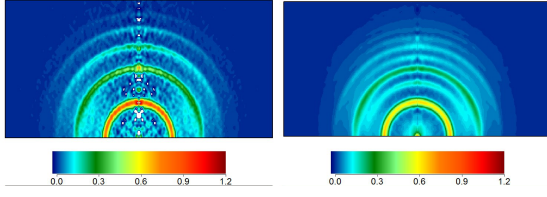


図 9: Ar のジェットから発生した高次高調波を速度マップイメージング装置内で位相差検出用の Ar ジェットに集光して発生した光電子の運動量分布. 左が高次高調波のみを集光した場合, 右が高次高調波と基本波を同時に集光した場合 [13].

高調波と基本波を同時に集光した場合のイメージである. 基本波も同時に集光した場合は高次高調波による光電子の信号の間に二光子イオン化によるサイドバンドが現れる. このイメージの動径分布を積分して, サイドバンドの強度を probe pulse の遅延時間 Δt の関数として観測した変調信号を解析し, そこから隣り合う高調波間の位相差を得た. この際, 原理的には式 (3) より得られたサイドバンド強度を Δt の関数として $\cos [2\omega_0\Delta t + \phi]$ でフィットすれば位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)}$ が得られるはずだが, 実際は高次高調波を発生させるときに driving pulse と probe pulse が干渉し, それに伴う高調波の振幅 $A_X^{(2n\pm 1)}$ の変調がサイドバンドに影響を及ぼすという問題があった. 求めたい位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)}$ は式 (3) の $\cos [2\omega_0\Delta t - \Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}]$ 中にあるが, $A_X^{(2n\pm 1)}$ の変動のために, 実験で得られたサイドバンド強度はそのままでは $\cos [2\omega_0\Delta t + \phi]$ でフィットすることはできない. 従来の研究 [22, 24] では, サイドバンドの強度を全信号強度で割ることで高調波強度の変調の影響を打ち消していたが, 今回私たちはより妥当性の高い方法として, 式 (3) の代わりに両辺を $A_X^{(2n-1)} A_X^{(2n+1)}$ で規格化した

$$\begin{aligned} \tilde{S}_{2n} &\equiv S_{2n} / (A_X^{(2n-1)} A_X^{(2n+1)}) \\ &= A_I^2 \left\{ \frac{A_X^{(2n-1)}}{A_X^{(2n+1)}} A_+^{(2n+1)} + \frac{A_X^{(2n+1)}}{A_X^{(2n-1)}} A_-^{(2n-1)} \right. \\ &\quad \left. + A_{\text{atom}}^{(2n)} \cos [2\omega_0\Delta t - \Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}] \right\} \quad (4) \end{aligned}$$

を解析に用いた. このように規格化すると, 位相差の情報を含むコサインの項の係数に $A_X^{(2n\pm 1)}$

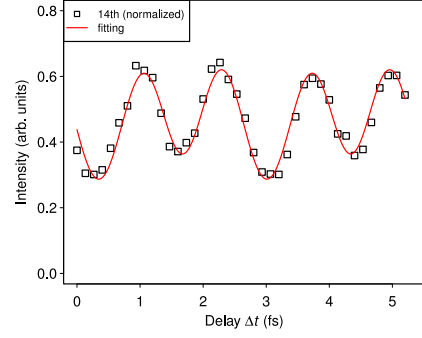


図 10: 式 (4) で定義した $\tilde{S}_{2n}(t)$ の例. Ar から発生した高次高調波について, 14 次サイドバンドに対する $\tilde{S}_{2n}(t)$ の, 高次高調波と基本波の時間差 Δt に対する変調 (黒の四角)[13]. および式 (5) によるフィット (赤の曲線)

が含まれておらず, その前にある $\frac{A_X^{(2n-1)}}{A_X^{(2n+1)}} A_+^{(2n+1)}$ と $\frac{A_X^{(2n+1)}}{A_X^{(2n-1)}} A_-^{(2n-1)}$ は変動を互いに打ち消しあうように振る舞うので Δt に対して一定に近くなる. また, 規格化に用いる $A_X^{(2n-1)} A_X^{(2n+1)}$ は一光子イオン化の信号から見積もることができる.

$\tilde{S}_{2n}(t)$ の例として, Ar から発生した高次高調波について 14 次サイドバンドに対する $\tilde{S}_{2n}(t)$ を式 (4) で計算し, 高次高調波と基本波の時間差 Δt の関数として図 4 中の黒い四角で示した. 基本波の一周期 ($2\pi/\omega \simeq 2.67$ fs) に対して半分の周期 1.3 fs での振動が見えており, これが式 (4) の $\cos [2\omega_0\Delta t - \Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}]$ による角周波数 2ω の振動であると考えられる. 一方, 基本波の角周波数 ω での振動も少し見られる. これは式 (4) の規格化で取り除けなかった driving pulse と probe pulse の干渉の影響と見られる. これを除くために, $\cos [2\omega_0\Delta t + \phi]$ に干渉の効果を加えた

$$A[1 + B \cos(\omega\Delta t + \eta)][1 + C \cos(2\omega\Delta t + \phi)] \quad (5)$$

で $\tilde{S}_{2n}(t)$ をフィットして ϕ を求めた. この ϕ が式 (4) の $-\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}$ に相当する. $\Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}$ は “atomic phase” と呼ばれる量で [22], 高次高調波の電場形状に依存しない数である. 本研究では文献 [25] で与えられた有効ポテンシャルを用いて一電子近似の下で位相差検出用の希ガスの電子状態を計算し, そこから文献 [26] に述べ

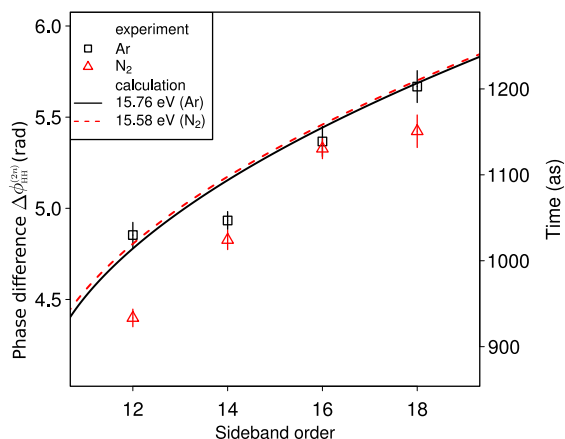


図 11: $(2n - 1)$ 次高調波と $(2n + 1)$ 次高調波との間の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)}$. 四角と三角の点はそれぞれ Ar および N_2 についての結果. 横軸はサイドバンド次数 $(2n)$ に対応する. 強電場近似に基づいた計算 [21] から得られた結果. 右の軸は位相差から式 (2) を用いて得られた高次高調波の放出時刻 [13].

られた手法で計算した $\Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}$ を用いた.

Ar および N_2 中で発生した高次高調波の, $(2n - 1)$ 次高調波と $(2n + 1)$ 次高調波との間の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} \equiv \phi_{\text{HH}}^{(2n+1)} - \phi_{\text{HH}}^{(2n-1)}$ をそれぞれ図 11 の中の四角と三角の点で示す (横軸はサイドバンド次数 $2n$ に対応). $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)}$ は Ar と N_2 どちらの場合でも次数とともに単調増加するが, Ar では 11 次と 13 次の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(12)}$ が 13 次と 15 次の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(14)}$ と近い値をとっているのに対し, N_2 では 0.5 rad ほど離れている [13, 27]. 実験と比較するため, 強電場近似に基づいた手法 [21] による数値計算を行い, 結果を Ar と N_2 についてそれぞれ実線と破線で図 11 の中に示した. 計算結果は位相差が単調増加する傾向を再現している一方, Ar と N_2 で $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(12)}$ に違いが現れる点は再現できない. 図 11 の計算ではイオン化ポテンシャルの影響を無視しているが, イオン化限界近傍の高次高調波では, 発生過程で電子が親イオンの近傍を運動するため, 親イオンの作るポテンシャルの影響を大きく受けると考えられる. ポテンシャルの形状によって変化する量として電子が再結合するタイミングがあるが, 古典軌道モンテカルロ法 [20, 28] による計算から, 再結合のタイミングの変化だけでは実験で得られ

た Ar と N_2 の結果の違いを説明するのは難しいと推測された [13]. 一方, 再結合過程においてポテンシャルの効果で電子のド・ブロイ波の位相がシフトし, これが高次高調波の位相にも反映されることが予想されている [29]. 今回観測された Ar と N_2 における $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(12)}$ の違いは, 両者のイオン化ポテンシャルの形状の差異が再結合電子の位相シフト量の違いを通じて現われたものと考えられる.

4. 終わりに

分子から発生する高次高調波の研究の例として, 照射する基本波の波長依存性 (2 節) と高次高調波の位相測定の実験 (3 節) について紹介した. 後者の実験で, 本稿で紹介した実験で顕著な違いが見られたのは 11 次と 13 次の間の位相差だけであったが, これは用いた基本波が Ti:sapphire 増幅器から出る波長 800 nm の光で, この場合高次高調波スペクトルの隣合うピークのエネルギー差が 3.1 eV と広く, 13 次以上の高次高調波についてはクーロンポテンシャルの影響が弱くなるためと考えられる. 前者の実験のようにより長い波長を基本波として用いれば, 高次高調波スペクトルのピーク間隔が狭くなり, イオン化限界近傍のエネルギー領域に含まれる次数が増える. これにより, イオン化限界近傍領域における高調波位相の光子エネルギーに対する依存性が得られ, 3 節の終わりに示したクーロンポテンシャルによる位相シフトによる説明の妥当性を定量的に調べることができると考えられる. 一方 2 節でも触れたが, 基本波の波長を変えることは 3 ステップモデル (図 2) を考えると電子が再結合するタイミングを変えることに相当する [19]. 本稿 3 節で述べたようにイオン化限界近傍の高次高調波は分子内のポテンシャルの影響を受けていると考えられるので, 基本波の波長依存性を調べることで, 分子内ポテンシャルの超高速ダイナミクスについての情報が得られる可能性がある. このように, イオン化限界近傍の高次高調波の研究は, 高次高調波の分子

物理学へのさらなる応用につながることを期待される。

5. 謝辞

本稿で紹介した研究は、著者が大学院生の間
に東京大学大学院理学系研究科物理学専攻にて
行われたものです。共同研究者の酒井広文准教
授、峰本紳一郎助教、酒見悠介博士に心より感謝
いたします。本稿についても貴重なご助言をい
ただき、お礼申し上げます。本研究は、科学研究
費補助金基盤研究 A (課題番号 19204041), 特
別推進研究 (課題番号 21000003), 特別研究員奨
励費 (課題番号 12J10272), 文部科学省「光・量
子科学研究拠点形成に向けた基盤技術開発 最
先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠
点プログラム」, 及び, 「最先端研究基盤事業コ
ヒーレント光科学研究基盤の整備」からの支援
を受けて行われました。ここに記して謝意を表
します。

参考文献

- [1] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd ed. (Academic Press, 2008).
- [2] R. L. Carman, D. W. Forslund, and J. M. Kindel, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 29 (1981).
- [3] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 595 (1987).
- [4] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [5] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- [6] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Nature (London)* **432**, 867 (2004).
- [7] H. Niikura, F. Légaré, R. Hasbani, A. D. Bandrauk, M. Y. Ivanov, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Nature (London)* **417**, 917 (2002).
- [8] T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, *Nature (London)* **435**, 470 (2005).
- [9] S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, C. C. Chirilă, M. Lein, J. W. G. Tisch, and J. P. Marangos, *Science* **312**, 424 (2006).
- [10] S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu, C. Giovanetti-Teixeira, T. Ruchon, T. Auguste, Z. Diveki, P. Breger, A. Maquet, B. Carré, R. Taïeb, and P. Salières, *Nature Phys.* **6**, 200 (2010).
- [11] C. Vozzi, M. Negro, F. Calegari, G. Sansone, M. Nisoli, S. De Silvestri, and S. Stagira, *Nature Phys.* **7**, 822 (2011).
- [12] K. Kato, S. Minemoto, and H. Sakai, *Phys. Rev. A* **84**, 021403(R) (2011).
- [13] K. Kato, S. Minemoto, Y. Sakemi, and H. Sakai, *Phys. Rev. A* **90**, 063403 (2014).
- [14] F. Rosca-Pruna and M. J. J. Vrakking, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 153902 (2001).
- [15] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovich, D. Villeneuve, P. Corkum, and M. Y. Ivanov, *Nature (London)* **460**, 972 (2009).
- [16] P. W. Dooley, I. V. Litvinyuk, K. F. Lee, D. M. Rayner, M. Spanner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **68**, 023406 (2003).
- [17] T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 013903 (2008).
- [18] S. Minemoto, T. Umegaki, Y. Oguchi, T. Morishita, A.-T. Le, S. Watanabe, and H. Sakai, *Phys. Rev. A* **78**, 061402 (2008).
- [19] H. Niikura, F. Légaré, R. Hasbani, M. Y. Ivanov, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Nature (London)* **421**, 826 (2003).

- [20] H. Soifer, P. Botheron, D. Shafir, A. Diner, O. Raz, B. D. Bruner, Y. Mairesse, B. Pons, and N. Dudovich, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 143904 (2010).
- [21] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières, *Science* **302**, 1540 (2003).
- [22] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001).
- [23] A. T. J. B. Eppink and D. H. Parker, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 3477 (1997).
- [24] L. C. Dinu, H. G. Muller, S. Kazamias, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, P. M. Paul, M. Kovačev, P. Breger, and P. Agostini, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 063901 (2003).
- [25] H. G. Muller, *Phys. Rev. A* **60**, 1341 (1999)
- [26] E. S. Toma and H. G. Muller, *J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys.* **35**, 3435 (2002)
- [27] H. Wabnitz, Y. Mairesse, L. J. Frasinski, M. Stankiewicz, W. Boutu, P. Breger, P. Johnsson, H. Merdji, P. Monchicourt, P. Salières, K. Varjú, M. Vitteau, and B. Carré, *Eur. Phys. J. D* **40**, 305 (2006).
- [28] P. Botheron and B. Pons, *Phys. Rev. A* **80**, 023402 (2009).
- [29] A.-T. Le, R. R. Lucchese, S. Tonzani, T. Morishita, and C. D. Lin, *Phys. Rev. A* **80**, 013401 (2009).

2015 年度 役員・委員会

会長

高橋正彦 (東北大学)

幹事

城丸春夫 (首都大学東京) [副会長]

加藤太治 (核融合科学研究所)

中井陽一 (理化学研究所)

渡邊 昇 (東北大学)

運営委員

市村 淳 (宇宙科学研究所)

鵜飼正敏 (東京農工大学)

加藤太治 (核融合科学研究所)

北島昌史 (東京工業大学)

田沼 肇 (首都大学東京)

長嶋泰之 (東京理科大学)

中井陽一 (理化学研究所)

渡邊 昇 (東北大学)

石井邦和 (奈良女子大学)

金井保之 (理化学研究所)

木野康志 (東北大学)

高口博志 (広島大学)

河内宣之 (東京工業大学)

酒井康弘 (東邦大学)

城丸春夫 (首都大学東京)

常置委員会

庶務委員会

委員長：渡邊 昇 (東北大学)

編集委員会

委員長：中井陽一 (理化学研究所)

行事委員会

委員長：加藤太治 (核融合科学研究所)

広報渉外委員会

委員長：城丸春夫 (首都大学東京)

顕彰委員会

委員長：鵜飼正敏 (東京農工大学)

編集委員 岸本直樹, 北島昌史, 富田成夫, 中井陽一,
彦坂泰正, 日高宏, 間嶋拓也, 森林健悟



しょうとつ 第12巻 第6号 (通巻67号)

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2015

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

発行: 2015 年 11 月 16 日

配信: 原子衝突学会事務局 <acr-post@bunken.co.jp>