

## 2P-025

レーザープラズマ誘起 X 線を光源とした溶液試料の時間分解 X 線散乱測定：  
X 線源の増強と測定精度の評価

(東北大院理) 五月女光, 東遥介, 梶本真司, 福村裕史

Enhancement of laser plasma X-ray intensity and the accuracy evaluation  
in time-resolved X-ray scattering measurement of solution

(Tohoku Univ.) Hikaru Sotome, Yosuke Azuma, Shinji Kajimoto, Hiroshi Fukumura

【序】高強度パルスレーザー光を金属や液膜表面に集光照射すると、レーザープラズマが生成し超短パルス X 線が放出される。このようにして発生させたパルス X 線は実験室規模で利用できサブピコ秒のパルス幅を持つため、光励起状態や光反応中間体の分子構造を直接観測可能な時間分解 X 線回折・散乱(TR-XRD)測定の X 線源として用いられている<sup>[1]</sup>。しかし、放射光 X 線に比べそのフォトン数は圧倒的に少なく測定にはしばしば困難がある。近年、レーザープラズマ誘起 X 線の発生効率は周囲のガス環境に強く依存し、真空中やヘリウムガス中で増強されることが報告されている<sup>[2][3]</sup>。真空中またはガスチャンバー内で X 線を発生させることは効率的に X 線強度を上げる方法であるが、個々のレーザーパルスに対して新しいターゲットを供給するためには、チャンバー内で使用可能な回転・並進ステージが必要になる。また、ターゲットより飛散するデブリから集光素子を保護する機構も必要になる。本研究では、このような複雑な真空系やメカニカルな機構を使用せずレーザープラズマにヘリウムガスを吹き付ける簡便な方法で、X 線強度を上げることに成功した。また、この増強された X 線源を用いて溶液試料の TR-XRD 測定を行う上で達成しうる S/N 比を見積もった。

【実験】Fig. 1 に X 線発生系の模式図を示す。対物レンズ(Mitsutoyo, 20x)を用いてフェムト秒レーザー光(800 nm, 150 fs, 2.5 kHz, 680  $\mu$ J/pulse)を鉄柱ターゲット表面に集光照射した。鉄柱ターゲットはモーター駆動のステージにより回転・並進させ、個々のレーザーパルスに対して新しい表面を供給した。ガラスキャピラリーを用い対物レンズの焦点位置にヘリウムガスを噴出させ、ヘリウムガス雰囲気下にプラズマを形成した。プラズマより発散する X 線の一部をガイガー・ミュラー計数管(Health Physics Instruments, model 5000)を用いて検出し、その強度をモニターした。また、レーザー光に対し垂直方向に放出された X 線を X 線レンズ(IFG, elliptical capillary)により準平行光とし、

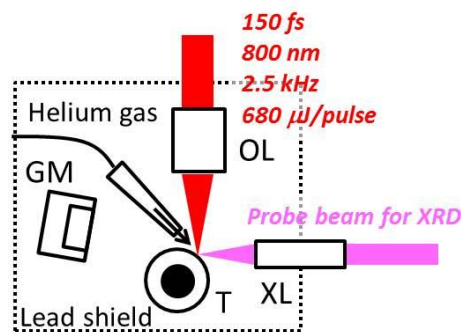


Fig. 1. X線発生系(GM: ガイガー・ミュラー計数管, OL: 対物レンズ, XL: X線レンズ, T: 鉄柱ターゲット)

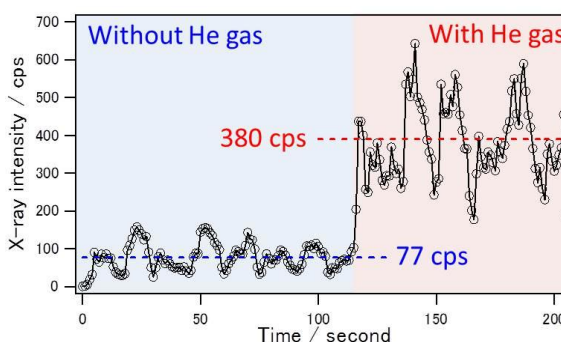


Fig. 2. ヘリウムガスの有無による X 線強度の変化

TR-XRD 測定のプローブ光とした。ジェットセルより吐出させた溶液試料に X 線を照射し、X 線 CCD を用いてその散乱 X 線を検出した。測定は全てフォトンカウンティング法により行った。

【結果と考察】 Fig. 2 にヘリウムガスの有無による X 線強度の変化を示す。X 線強度はターゲットの上下方向の並進運動に合わせて時間変化しており、ヘリウムガス未使用時では平均して 77 cps であった。一方、ヘリウムガスをプラズマに吹き付け始めるとその強度は急激に増加し平均強度 380 cps を得た。ヘリウムガスの有無により約 5 倍増強されたことになる。これはヘリウムガス雰囲気下ではプラズマから放出される電子の平均自由行程が空気中より伸び、ターゲット表面において内殻励起による X 線発生に関与できる電子の数が増加したためと考えられる<sup>[2]</sup>。

この増強された X 線源を用いてどれほどの S/N 比の溶液試料の散乱強度曲線が得られるかを確認するため、シクロヘキサンの XRD 測定を行った。Fig. 3 にその XRD 像を示す。2 $\theta$  = 22 deg. 付近の散乱ピークはシクロヘキサン溶媒中の平均分子間距離を反映している。増強された X 線源を用いることで、よりノイズの少ない散乱像を取得することができた。10 分間の測定で達成された S/N 比は約 10 であった。

長時間積算によりさらなる S/N 比の向上が期待されるが、環境放射線によるノイズが増加する懸念もある。そこで単位時間当たり X 線 CCD が検出する、溶液試料からの散乱 X 線のフォトン数(シグナル)と環境放射線のフォトン数(バックグラウンド)を測定・比較した。Fig. 4 に各々の測定における X 線 CCD に生じた電荷量に対するピクセル数のヒストグラムを示す。フォトンカウンティング法によりシグナルとする領域からフォトン数を計数した結果、単位時間当たりのシグナルとバックグラウンドはそれぞれ、1379 photons/min, 13 photons/min であった。これらの値から、達成されうる最大の S/N 比はおおよそ 100 と見積もられる。

#### 【参考文献】

- [1] M. Bargheer, N. Zhavoronkov, Y. Gritsai et al; Science. **306**, 1771 (2004)
- [2] M. Hada, J. Matsuo, Appl. Phys. B, **99**, 173(2010)
- [3] M. Hagedorn, J. Kutzner, G. Tsilimis, H. Zacharias, Appl. Phys. B, **77**, 49(2003)

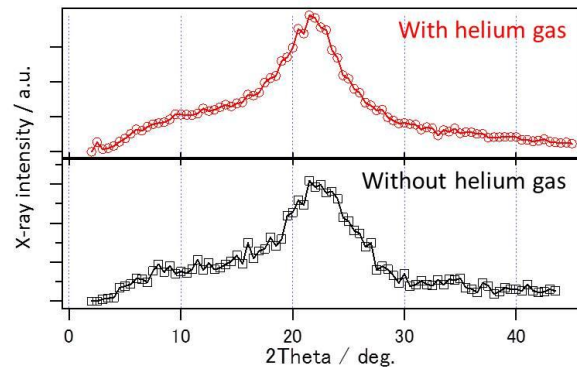


Fig. 3. シクロヘキサンの X 線散乱像(測定時間各 10 分)

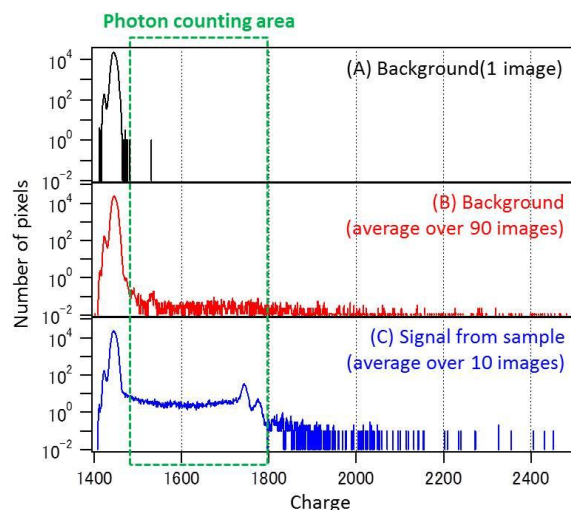


Fig. 4. X 線 CCD に生じた電荷量に対するピクセル数のヒストグラム (A)バックグラウンド(露光 1 回) (B)バックグラウンド(露光 90 回の平均) (C)試料からのシグナル(露光 10 回の平均)