

X線自由電子レーザー励起 X線レーザーの開発

1333072 長嶺和慶

指導教員：米田仁紀

1 序論

近年の自由電子レーザー (FEL) 技術の発達により、X線自由電子レーザー (XFEL) が開発され従来の X線源の一億倍以上の輝度を持った X線光源が実用化された。日本においても 2011 年には兵庫県播磨の SPring-8 に併設される形で SPring-8 Angstrom Compact Free Electron LAser (SACLA) という名称の XFEL 施設が設置され、波長 1.2Å での発振に成功し高強度の X線が利用可能になった。XFEL の開発によって図??に示すような、従来の光源では困難であった真空紫外～硬 X線までの可変性を持ったコヒーレントな超短パルス光を利用できるようになり、赤外～紫外のレーザーの開発によって得られたような様々な成果を挙げることを期待されている。

XFEL の持つ 10keV で GW を超えるピークパワーは内殻を直接励起することが可能になってきており、特性 X線のスペクトルブロードニング [1] や Ne ガスを使用した XFEL 励起 X線レーザー [2] が報告されている。SACLA では強集光光学系 [3] の開発に伴い、鉄の過飽和吸収 [4] も観測され、固体密度であっても高密度に励起ができるようになった。これはより高密度に励起することで実現する、内殻励起固体 X線レーザーの可能性を示すものである。内殻励起の X線レーザーは、高効率、狭帯域、超短パルス、フルコヒーレンスなどの特徴をもつことが予測されている。そのため、単分子イメージング [5] や干渉実験など、より応用範囲が広がることが知られており、こういった特徴を持つ高品質な X線源の開発が期待されている。

2 原理

2.1 固体密度内殻励起

YAG やヘリウムネオンなどのレーザーは、どれも最外殻の電子を励起するものであった。これは、励起方法が放電であったりフラッシュランプであったりするため、最外殻の電子にしか相互作用することができなかつたためである。最低でも数百 keV ものエネルギーを持つ X線を放出させるためには、最外殻を励起した程度のエネルギーでは不十分であり、内殻を励起する必要がある。更に、今回は

固体レーザー開発を目的としたため高強度で励起する必要もある。これらの条件を実現するため今回の実験では兵庫県佐用町にある理化学研究所の X線自由電子レーザー施設 SACLA を使用した。

2.2 利得発生閾値強度

利得が発生するために必要な励起強度を計算した。まず利得は $e^{\gamma L}$ で表せられ、小信号利得は γ は次の式で表される。

$$\gamma = (N_U - N_L) \frac{\lambda^2}{8\pi t_{spont} \delta\nu/\nu} \quad (1)$$

N_U は上準位にある原子数、 N_L は下準位にある原子数、 λ は放出される光の波長 1.5[Å]、 t_{spont} は上準位寿命は Auger 過程で決まっており、0.7[fs]、 $\delta\nu/\nu$ は放出される光の比帯域幅で $\delta\nu/\nu = 2.5/8048 \sim 3 \times 10^{-4}$ である。すると γ は次の式のようにまとめられる。

$$\gamma \sim (N_U - N_L) \times 9.5 \times 10^{-4} \quad (2)$$

次に放出された光の吸収について考える。吸収プロファイルは $e^{-\alpha L}$ で表され $K\alpha$ 線に対する吸収 α は 448.5[cm⁻¹] である。 γ が α を上回ったときに利得が発生する。このときの反転分布量を求める。

$$N_U - N_L \sim 4.8 \times 10^5 [\text{cm}^{-1}] \quad (3)$$

この反転分布を得るための励起光の強度を次の微分方程式を解き求める。

$$\frac{dN}{dt} = \frac{\eta}{h\nu} I_{th} \sigma_{edge} \quad (4)$$

$$I_{th} \sim 2.5 \times 10^{19} [\text{W}/\text{cm}^2] \quad (5)$$

更に実際には上準位寿命よりも早く励起する必要があるためこれについても式 4 を使って式を解いた。

$$I_t h \sim 3.5 \times 10^{19} [\text{W}/\text{cm}^2] \quad (6)$$

式 5,6 二つの結果のうち大きいほうを閾値とするため、利得閾値は 3.5×10^{19} である。現在 X 線領域でこれほどの高強度を実現できるのは SACLA のみであるため、実験は SACLA で行った。

3 ASE 実験

励起光のみを挿入する実験を行った。X 線領域では、高反射率を持つミラーが存在しないため、共振器構造を持たせることができない。そのため、進行波励起レーザーとなり、放出される光は自然放射増幅光 (Amplified Spontaneous Emission : ASE) となるため ASE 実験と呼ぶ。

実験セットアップを図 1 に示す。アンジュレーターを銅の K 殻吸収端である 9080eV が発振されるように設定し、放出された光を 2 段集光システム [3] を通じて 50nm に集光しターゲットとなる純銅ホイルに照射した。励起された金属ホイルからの発光を 5m 後方に位置する Si(311) 結晶で分光し 1m 離れた MPCCD で観測した。

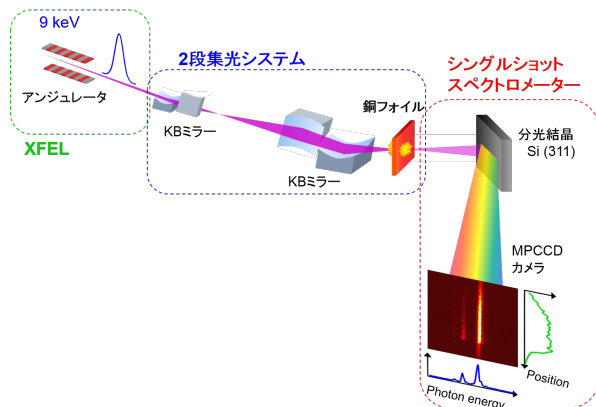


図 1 実験装置概略 [6]

CCD では図 2 に示すような横軸がスペクトル、縦軸が空間の画像が取得される。出力を定義する際には、図 2 の赤枠で示されるようなスペクトル方向では $K\alpha_1$ を中心とした 5eV、空間方向ではミラーの発散角の内側を積算した。

3.1 出力特性

3.1.1 入出力特性

入力エネルギーを変化させながら出力を計測し、入出力特性のグラフを図 3 に示した。この図より、励起強度が弱いところでは入力と出力がなだらかに変化していくが、ある値を超えるところで出力が著しく強くなるのが分かる。この傾きの変化から利得が発生したと考えられる。傾きが大きいところに対して直線を引き、利得閾値を求めると、 $2 \times 10^{19} \text{W}/\text{cm}^2$ となり、前章で求めた利得閾値

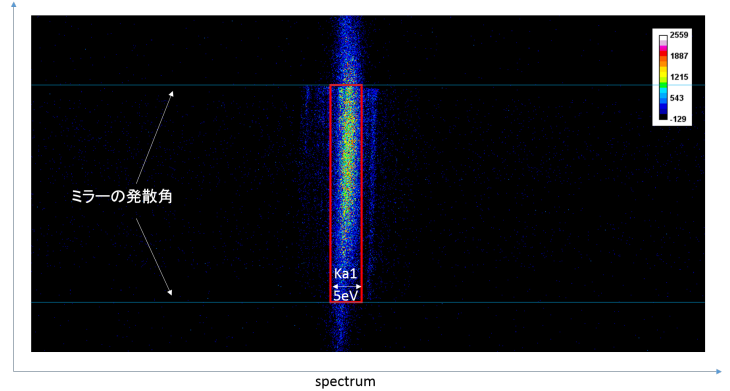


図 2 CCD 画像の一例

$3.5 \times 10^{19} \text{W}/\text{cm}^2$ とほぼ同等となり、こちらから考えても利得が発生したと考えられる。

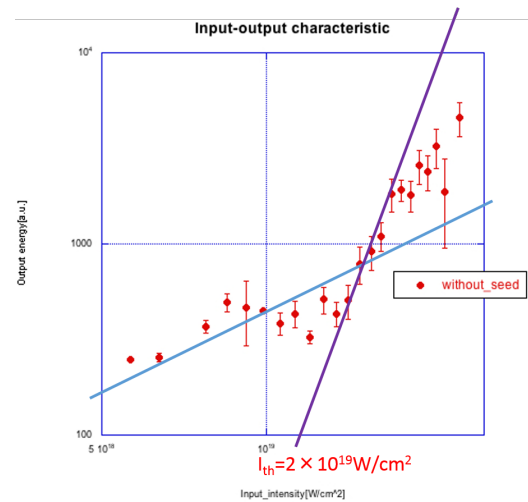


図 3 ASE 入出力特性

3.2 スペクトル特性

3.2.1 $K\alpha_1$ 単独発振

放射光などの X 線を銅に当てた際に観測される従来の一般的な $K\alpha$ 線の自然放射光スペクトルデータを図 4 に、実験で得られたスペクトルを図 5 に示す。

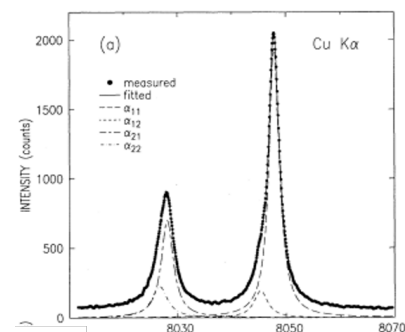


図 4 一般的な $K\alpha$ 線 [7]

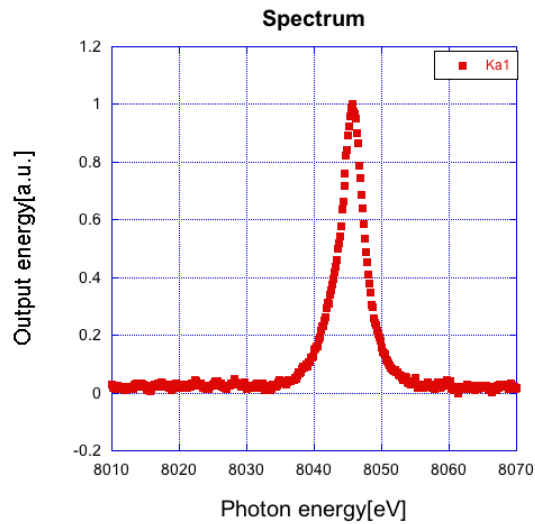


図5 ASE1 ショットスペクトルデータ

これらを比較するとこれまで一般的に得られる $K\alpha$ 線は二つのピークを持つのに対して我々の実験結果では一つのピークしかないという大きな違いがあることが分かる。これは、本来 $K\alpha_2(2p^{1/2} > 1s)$ で遷移するものが、 $K\alpha_1(2p^{3/2} > 1s)$ で遷移していることを意味している。自然放出ではありえない減少なので、誘導放出が起きていることの証拠であるといえる。この結果、励起光から $K\alpha_1$ への変換効率は、 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ のそれを足したものとなり、少なくとも 40% 程度の変換効率を得ることに成功したと考えられる。

3.2.2 スペクトルの出力特性

導波路中に減衰器を挿入し平均励起強度を変化させたスペクトルデータを図6に、 $K\alpha$ 線の自然幅を図7に示す。

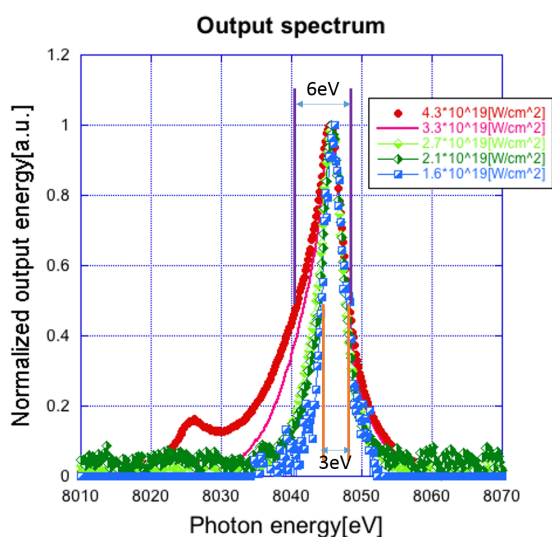


図6 ASE スペクトル

励起強度を上げるにつれスペクトル幅が広がり、その幅は広いものと自然幅の2倍以上になることが観測され

	Cu $K\alpha_1$ (eV)	Cu $K\alpha_2$ (eV)
Bearden and Shaw ^a (1935)	2.47	3.31
Pessa ^b (1973)	2.30	3.14
Citrin <i>et al.</i> ^c (1974)	2.39(10)	2.89(10)
Berger ^d (1986)	2.37	3.35
Serum ^e (1987)	2.28(5)	2.78(5)
Ayers and Ladell ^f (1988)	2.41(5)	3.17(21)
This work	2.29(2)	3.34(6)

図7 $K\alpha_1$ 自然幅 [8]

た。励起強度の違いは出力の違いとも言え、出力に対するスペクトル幅を図8に示す。横軸に出力、縦軸にスペクトル幅をとったものである。

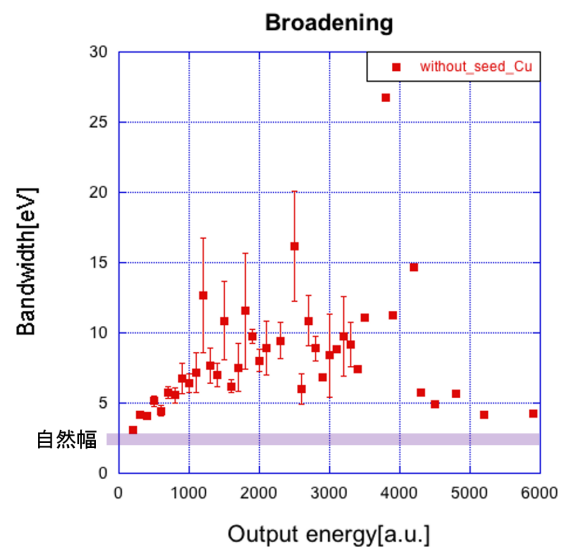


図8 スペクトル幅の出力特性

通常、利得が発生すると特定の波長へ誘導放出が積極的にかかることで、ゲインナローイングが起きスペクトル幅は自然幅以下になる。しかし、自然放出と考えられる低出力でのスペクトル幅からは一向に狭まらず、利得が発生し出力が上がるにつれて逆に広がることが観測された。

4 インジェクション実験

ASE 実験で X 線領域での利得は観測できたが、出力を高めようとするときスペクトル幅が広がり、単位波長当たりの出力を効率よくあげることができないという欠点があった。しかし、原子密度をすぐに変えることは不可能であるため別の手法を用いて実験を行った。広がったスペクトルは、原子間の相互作用によるものであると考えられる。ホモジニアスブロードニングであると考えられる。ホモジニアスブロードニングとは、図9に示すように中心波長が異なった自然幅を持った光が重なり合わさることである。もっと

も広いスペクトルでも 6eV 程度であることを考えると、自然幅の 3 倍にも満たないことが分かる。つまり図 9 の紫の丸に示すようにあるスペクトルで利得の重なりが生じている可能性が高いといえる。そのため、この重なった利得に対応する細いスペクトルの光を挿入することができればブロードニングを防げる可能性がある。この仮説を実証するためイ：アップを
図 10 に

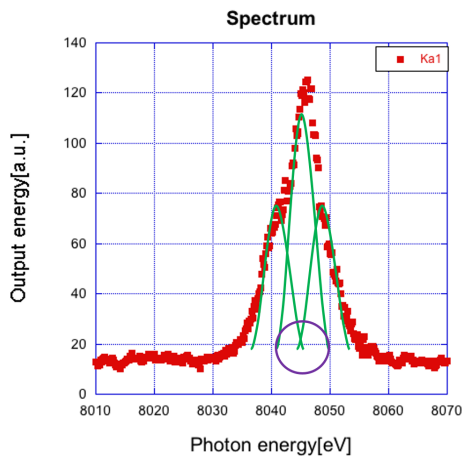


図 9 ホモジニアスブロードニング

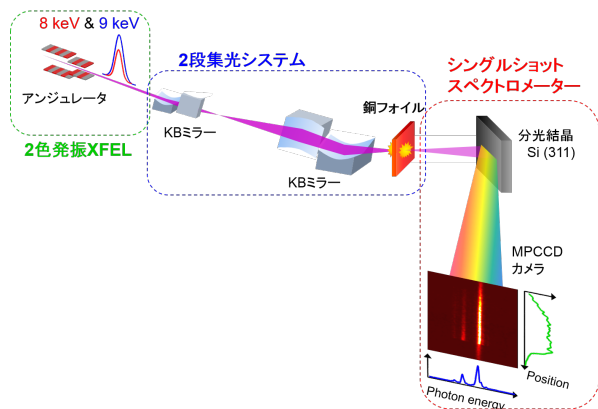


図 10 インジェクション実験セットアップ [6]

ASE 実験との変更点は、アンジュレーターを二段構成に設定し、励起光の K 殻吸収端とシード光の $K\alpha$ の二色発振 [9] を行えるようにしたことである。これは、スペクトル幅が狭い光をシード光として励起光と同時に挿入し、シード光が重なった利得を引き抜くことによりスペクトル幅の狭窄化を促す効果を狙って行ったものである。図 11 にシード光の 1 ショットごとのスペクトルデータを示す。波長に揺らぎはあるがスペクトル幅としては 2~7eV 程度である。これには先の ASE の実験で得られたスペクトル幅よりも細いものも含まれており、このシード光によって利得が引き出されれば、より細いスペクトルのレーザーが得られると考えられる。

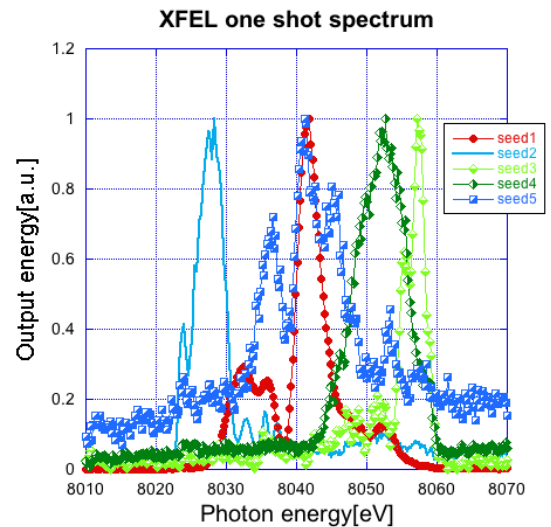


図 11 シード光 1 ショットスペクトル

4.1 スペクトル特性

図 12 に、青点を ASE 赤点をインジェクションとした横軸出力、縦軸スペクトル幅のグラフを示す。

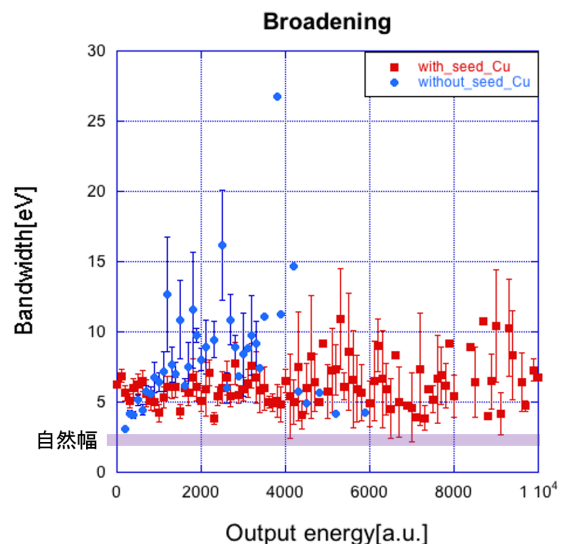


図 12 スペクトル幅の出力特性

インジェクションを行った場合、低出力から高出力まで終始 5eV 程度のスペクトル幅を持っていて、出力の増加とともに広がる ASE とは対照的なグラフを示していることがわかる。低出力の ASE はほぼ自然幅程度であり、自然放出光であると判断できることを考えると、低出力のインジェクションで 5eV というのは銅由来の $K\alpha$ 線ではなく、シード光のスペクトルであると考えられる。このことから、シード光がスペクトル引き込みを起こし、スペクトル

ルのブロードニングを抑制することに成功したと考えられる。しかし、スペクトル幅が自然幅よりも広がってしまっている。この原因は、励起された原子の密度が高いことが問題であると考えられる。文献を調べると、図 13 に示すように固体密度での内殻励起をするとブロードニングが発生するとの理論論文 [4] があった。この論文の通りであれば、今回は五割程度の原子が励起されているため、 $f_{exc} = 0.5$ のグラフのようにブロードニングが発生することが考えられる。広いものでは、20eV 程度まで広がっていることはこの図に当てはまっており、励起密度がスペクトル幅に影響を与えているのではないかと推測される。

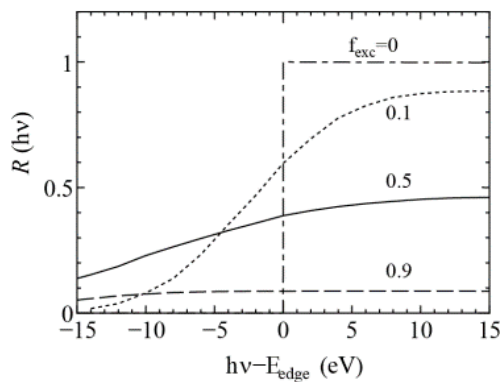


図 13 内殻の強励起に伴う K 殻吸収端のブロードニング [4]

様の特性であり、インジェクション実験の方が細いスペクトルを出力することができた。この原因としては、今回使用した真鍮やキュプロニッケルは、混合比が銅のほうが高いために銅の原子間の距離がそれほど広がっていない。そのため、スペクトル幅へ対しての影響が少なかったのではないかと考えられる。

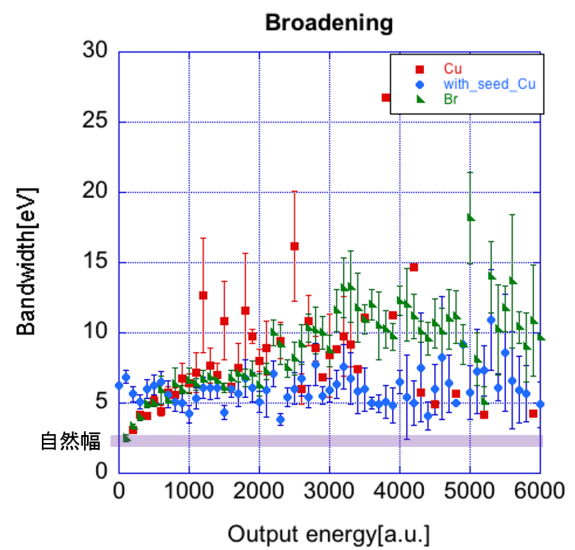


図 14 真鍮のブロードニング

5 銅合金 ASE 実験

前節の実験でインジェクション用いた場合に細いスペクトルが得られ、出力に比例するブロードニングを抑制することは観測された。しかし、シード光の平均スペクトル幅が自然幅より広いことから、自然幅を超えるスペクトルを定常的に得ることはできなかった。これらの結果から、自然幅からそれ以下のスペクトルを得てスペクトル当たりの出力を高めるためには、原子間の距離を制御する必要があると考えられる。銅の密度を下げるため、ターゲットに銅の化合物を用いることで銅原子間に他の原子を配置し、銅原子間の距離を広げることを実現した。用意したターゲットは厚み $20\mu\text{m}$ のキュプロニッケル (Cu70%-Ni30%) 真鍮 (Cu70%-Zn30%)、更にアルミと銅を $1\mu\text{m}$ 毎に積層したコンポジットターゲットを用意した。銅原子間に存在する原子が、銅よりも若干元素番号が大きいのか小さいのかで違いが出るのかを検証するため合金は 2 種類用意した。セットアップは図 1 と同じである。

5.1 スペクトル特性

図 14、15、16 に銅の ASE、インジェクションと合金及びコンポジットターゲットの出力対スペクトル幅を示す。この結果から、合金であっても ASE 実験の銅の結果と同

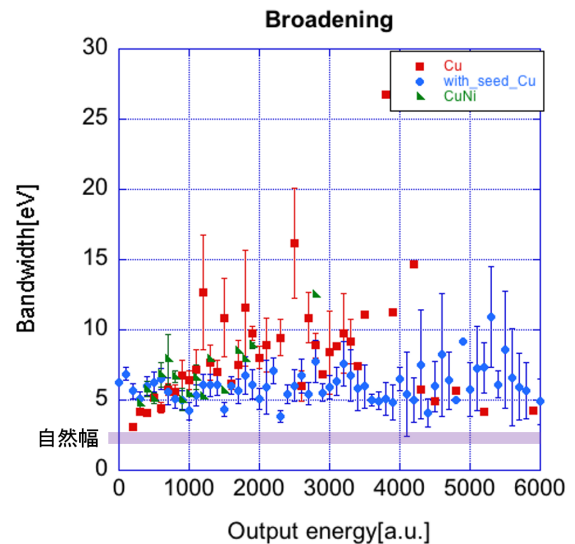


図 15 キュプロニッケルのブロードニング

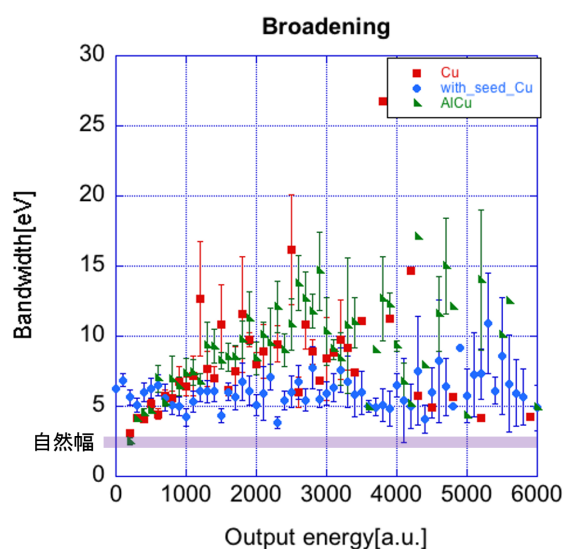


図 16 積層ターゲットのブロードニング

6 まとめと今後の展望

6.1 まとめ

世界初となる内殻励起固体 X 線レーザーの開発に成功した。高出力化、高輝度化という面で見ると、ASE 実験、インジェクション実験と合金実験では、大きな違いが観測された。シード光を大幅に増幅することに成功し、シード光がない場合よりもはるかに高出力にすることができた。さらに原子密度が下がったにもかかわらず、真鍮が大幅に出力を上げるという結果でも得られた。この結果はまだシミュレーションでは再現できていないが、高出力化においては非常に興味深い結果となり、また別のアプローチでのシミュレーションが望まれる。スペクトルの変化という面では、ASE 実験、インジェクション実験では $K\alpha_2$ の単独発振や、 $K\alpha_1$ の自然幅を超えた狭帯域な光の観測などの結果を得られた。これらは、今までは不可能であった X 線領域で原子の内殻構造を調べることができる非常に大きな可能性を示しており、X 線レーザーの新たな活躍の場を示したと考えられる。一方スペクトルの狭窄化に関しては大きな成果を挙げるができなかった。一部で良好な結果は得たが、定常的とは言いがたくより詳細な物理を検討する必要があると考えられる。

6.2 今後の展望

スペクトルの狭窄化を進めるために、より原子間の距離を離すことを考えている。硫酸銅五水和物は、結晶にもなりその分子量の大きさから銅原子間の距離が圧倒的に広がることが予測できる。更に、構成元素の水素、酸素、硫黄は 8~9keV でほぼ透明となるため良好な結果が得られるのではないかと考えて現在準備を進めている。

参考文献

- [1] D. Rackstraw, S. Vinko, O. Ciricosta, B. Cho, K. Engelhorn, H.-K. Chung, C. Brown, T. Burian, J. Chalupsk?, R. Falcone, C. Graves, V. H?jkov?, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. Lee, M. Messerschmidt, C. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, B. Nagler, R. Lee, P. Heimann, and J. Wark, "Opacity effects in a solid-density aluminium plasma created by photo-excitation with an x-ray laser," *High Energy Density Physics*, vol. 11, no. 0, pp. 59 – 69, 2014.
- [2] N. Rohringer, D. Ryan, R. A. London, M. Purvis, F. Albert, J. Dunn, J. D. Bozek, C. Bostedt, A. Graf, R. Hill, S. P. Hau-Riege, and J. J. Rocca, "Atomic inner-shell x-ray laser at 1.46 nanometres pumped by an x-ray free-electron laser," *Nature*, vol. 481, no. 7382, pp. 488–491, 2012.
- [3] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Koyama, K. Tono, Y. Inubushi, T. Togashi, T. Sato, J. Kim, R. Fukui, Y. Sano, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Generation of 10^{20}Wcm^{-2} hard x-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system," *Nature communications*, vol. 5, 2014.
- [4] H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Katayama, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, and H. Kitamura, "Saturable absorption of intense hard x-rays in iron," *Nature communications*, vol. 5, 2014.
- [5] A. Fratolocchi and G. Ruocco, "Single-molecule imaging with x-ray free-electron lasers: dream or reality?," *Physical review letters*, vol. 106, no. 10, p. 105504, 2011.
- [6] 犬伏雄一, "高強度 X 線自由電子レーザーを用いた X 線増幅実験." 日本物理学会 2013 年秋季大会.
- [7] M. Deutsch, G. Hölzer, J. Härtwig, J. Wolf, M. Fritsch, and E. Förster, " $K\alpha$ and $k\beta$ x-ray emission spectra of copper," *Physical Review A*, vol. 51, no. 1, p. 283, 1995.
- [8] L. Storm and H. I. Israel, "Photon cross sections from 1 keV to 100 meV for elements $z = 1$ to $z = 100$," *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 7, no. 6, pp. 565–681, 1970.
- [9] T. Hara, Y. Inubushi, T. Katayama, T. Sato, H. Tanaka, T. Tanaka, T. Togashi, K. Togawa, K. Tono, M. Yabashi, et al., "Two-colour hard x-ray free-electron laser with wide tunability," *Nature communications*, vol. 4, 2013.