

X線自由電子レーザー励起 X線レーザーの発振制御の研究

米田研究室 宮崎 涼

1. 序論

レーザーの発振波長域は時代とともに短波長化しており、X線自由電子レーザー(XFEL)の開発・実現によりオングストロームの波長域のX線発振も可能となってきた。

この光源は、短波長レーザーという特徴だけでなく、フェムト秒程度の超短パルス性と集光強度が $10^{20}\text{W}/\text{cm}^2$ にもものぼる超高強度光源である[1]。その特徴を励起光源として生かし、銅原子内の内殻電子をXFELにより直接励起し、その後の緩和過程を用いた内殻電子励起 $K\alpha$ レーザーの発振が報告されている[2]。

加えて、先行研究の結果によると、内殻電子励起 $K\alpha$ レーザーは利得媒質となるターゲットの原子密度や、結晶角などの励起条件によりスペクトルの狭窄化制御の可能性が報告されている[2]。

また、XFELの2色発振性を使えば、異なる2波長のX線発生を用いたセルフシーディングが可能で、例えば、銅を励起媒質として選択した場合、片方を励起光の8048eVに、もう片方を増幅光の9080eVに合わせることで、スペクトル幅が1.7eVまで狭窄化されることが報告されている[3]。

本研究では、外部入射光によらずに高品質なハードX線光源を開発する一環として、X線自由電子レーザー励起X線レーザーの縦モードと横モード(空間モード)の、より精密な制御を目指しており、具体的には以下の2点を調査した。

- (i) XFEL励起X線レーザー内に立つBragg回折起因のスペクトルの解析
- (ii) 自作ナノキャピラリー光学デバイスを用いたハードX線の空間モードの制御

2. XFEL励起X線レーザー

2.1 内殻電子励起

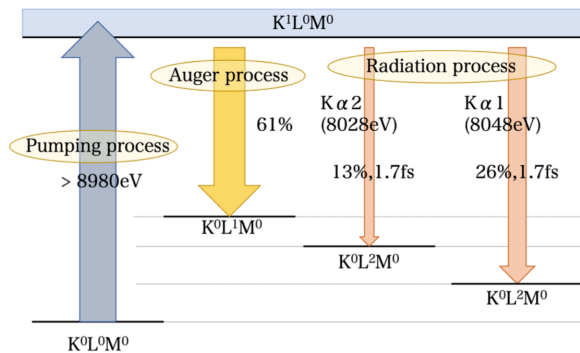


Fig 1. 内殻電子の遷移過程

高い波長チューニング性を持つXFELを励起光源として、利得媒質のK殻電子をFig 1のように選択的に直上励起する。その空孔にL殻からの電子が遷移(2p→1s遷移)することで、 $K\alpha$ レーザーは発光する。

また、励起強度が大きくなるとターゲットとなる原子のみのイオン化でなく、隣接原子もイオン化され、発光スペクトルがブロードに広がることが報告されている。特に、この遷移エネルギー準位は3d電子が寄与することが明らかとなっている[4]。

2.2 共振器型ハードX線レーザー

XFELのターゲットとなる利得媒質の結晶格子 d が、入射するX線の波長 λ と、視斜角 θ 、およびその媒質の屈折率 n に対して以下の式を満たす時、Braggの回折条件から強め合いが生じ、単一波長の定在波が生じる。

$$m\lambda = 2nd \sin \theta, m = 1, 2, 3 \dots$$

また、この条件の下、実験的なパラメータを用いた計算機シミュレーションにより、利得媒質内のおよそ数 μm の領域でX線が伝搬することがわかっている[5]。

3. XFEL励起X線レーザーの発振スペクトル解析

3.1 実験構成

本実験のXFEL励起部の実験構成はFig 2の通りである。8keVのX線を縦横100nmオーダーに集光させ、集光点にターゲットを設置し、その透過スペクトルをシリコン結晶で波長分散させたのち、X線2次元検出器(MPCCD)により観測した。また、MPCCDの距離はターゲットに対し、十分離すことでコヒーレントなX線の光子のみが観測点に到達できるように設計してある。

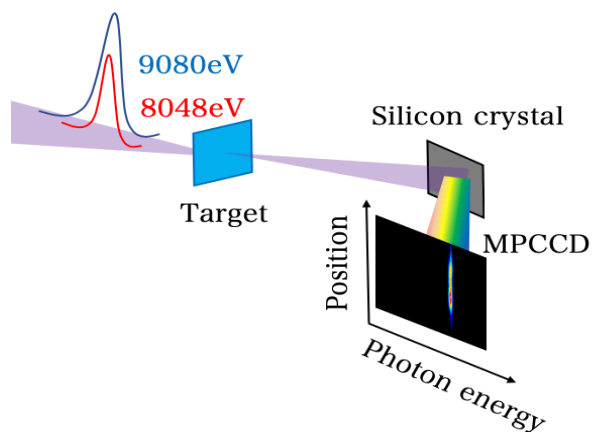


Fig 2. SACLAにおける実験構成

Fig 1 のように直上励起された銅の緩和時間は fs オーダーである。さらにこの時、内殻電子の利得閾値は、およそ 10^{19} W/cm² の強輝度が必要となる[4]。そのため、本実験では、我が国の XFEL 施設である SACLA (兵庫県播磨科学公園都市) を利用することで、XFEL 励起 X 線レーザーの発振を試みた。

また、MPCCD で観測されるイメージは Fig 3 のように横方向に波長分散、縦方向に空間的広がり記録するものである。

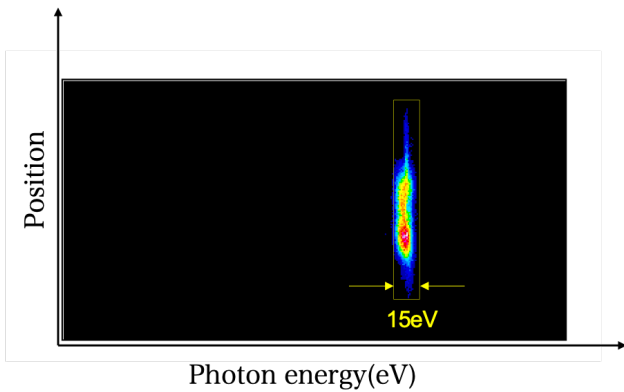


Fig 3. 観測されるイメージの例

3.2 利得媒質としての硫酸銅ターゲット

先行研究の結果より、XFEL 励起 X 線レーザーの利得媒質として、銅化合物が量子効率の高い発振を実現している。さらに、硫酸銅・五水和物 ($\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$) は、銅間距離が純銅や酸化銅などの他の銅化合物に比べて大きく、前述の励起強度による発振スペクトルのブロードニングが生じにくいいため、本実験の XFEL 励起 X 線レーザーのターゲット結晶として用いた。以下に硫酸銅五水和物の結晶構造を Fig 4 として載せる。

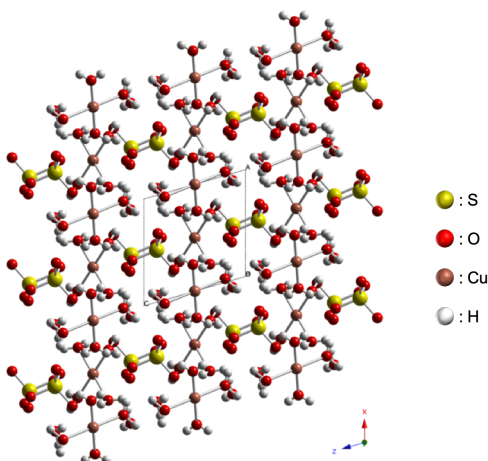


Fig 4. 硫酸銅・五水和物の結晶構造

Fig 4 からわかる通り、XFEL の入射方向により Cu 原子間の距離は異なる。そこで、結晶角度を変化させた時の透過スペクトルの変化を次に調査した。

3.3 結晶角によるスペクトルの狭窄化

硫酸銅・五水和物結晶をターゲットにして得られたスペクトルの一例を Fig 5 として以下に載せる。

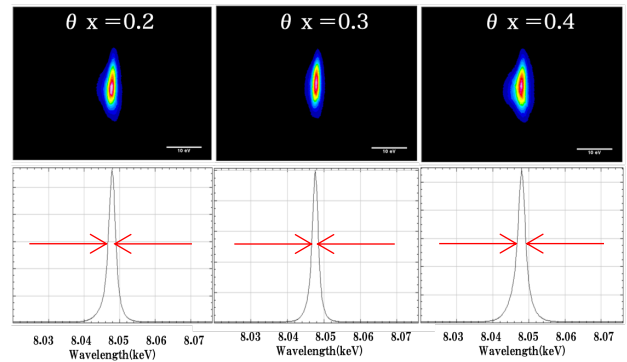


Fig 5. 硫酸銅・五水和物における透過スペクトル

Fig 5 に示したように、結晶角度を変化させた時のスペクトルの線幅に変化が見られた。そこで、以下に結晶角度と観測スペクトルの半値全幅 (FWHM) との関係調べた結果を Fig 6 として載せる。

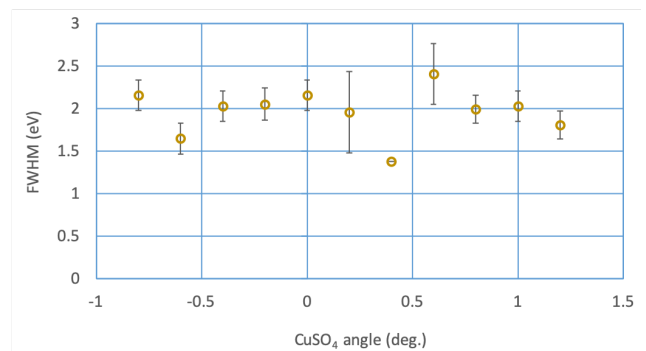


Fig 6. スペクトル線幅の角度変化

硫酸銅・五水和物結晶角度を 0.2deg. ずつ振り、-0.8deg. から 1.2deg. まで変化させたところ、大きな相関は見られなかった。

一方、0.2deg. の変更でスペクトルの FWHM は平均して 0.53eV 変化することが確認された。Fig6 より、硫酸銅・五水和物のスペクトルの FWHM の平均は 2eV から 3eV 程度であることから、0.53eV の変化は 30% 程度の寄与となる。

3.4 共振器型レーザーの観測

銅の自然放出による発光寿命から決定される線幅 2.2eV から 2.5eV 以下まで狭窄化されていたスペクトルはメインのピークに対し、左右対称の位置にサテライトバンドとなるピークが観測された。

このスペクトル構造において、サテライトバンドとメインピークとのシフト量は、XFEL のショット毎に変化していたことが確認された。以下 Fig 8 に、その一例を載せる。

また、得られたスペクトルに対し、MATLAB を用いたモンテカルロフィッティング (ステップ数: 2×10^8 回) を施すことで、各シフト量を算出した。

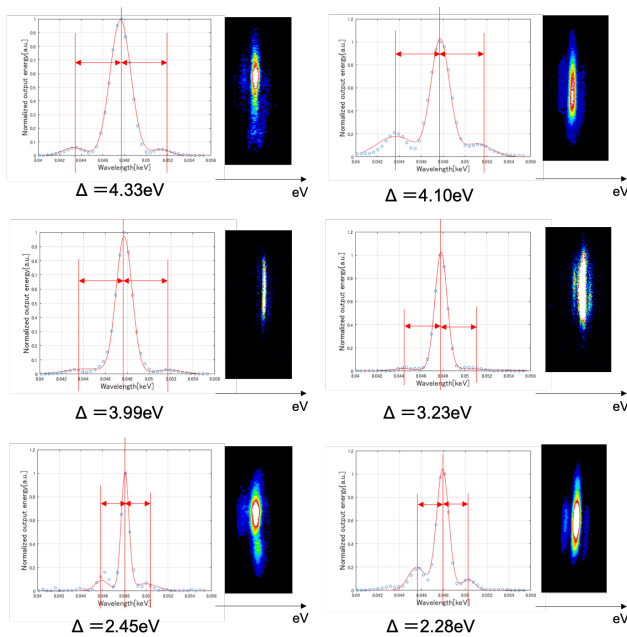


Fig 8. サテライトバンドが観測されたスペクトル

サテライトバンドがメインピークに対して左右対称に現れたということ、狭窄化されたメインピークのスペクトルの線幅から、明らかに誘導放出が主過程のスペクトル構造である。そのため、観測されたサテライトバンドは原子準位系の共振による縦モードであると考えられる。

ゆえに、これらの観測から、縦モードを持つスペクトル構造の人工的な制御の可能性が示唆された。

3.5 共振器長の推定

Fig 8 のように観測されたスペクトルから隣り合う縦モードとの間隔 $\Delta\lambda$ が測定できるため、以下の式を用いることで、励起光源の波長 λ_0 に対する、共振器の長さ L が算出される。

$$L = \frac{\lambda_0^2}{2 \Delta \lambda}$$

また、求められた縦モード間隔をヒストグラムとしてまとめると、Fig 9 のようになる。これによると、縦モードが観測されていないスペクトル構造が最頻値を示し、縦モード間隔が大きくなるに従い、度数は減少することがわかる。

さらに、およそ 7eV まで縦モード間隔は広がっていたことから、硫酸銅・五水和物結晶内には $0.9 \mu\text{m}$ 以上の共振器構造ができていたと考えられる。この結果は、利得媒質内の X 線伝搬の計算機シミュレーションの結果とも一致する。

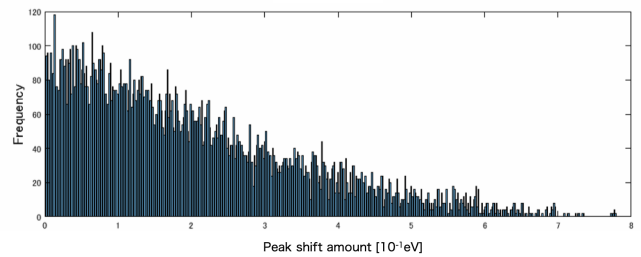


Fig 9. 縦モード間隔のヒストグラム

4. 自作ナノ光学素子を用いた空間モードの制御

4.1 単一モードキャピラリーデバイス

物質と真空との屈折率差が極めて小さいハード X 線領域では、直入射型の反射・回折光学系は組むことが難しい。反面、物質の屈折率は 1 以下となるため、コアに真空を、クラッドに物質を配置することで、X 線領域におけるステップインデックスファイバーが実現できる。

そこで、8keV の波長領域で単一モードの導波可能なナノキャピラリー光学デバイスの開発を提案した。以下 Fig 10 にナノキャピラリー光学デバイスを示す。

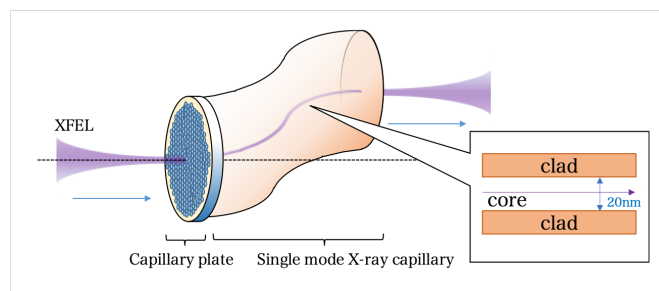


Fig 10. 8keV 領域における単一モード光学素子

単一モード光学素子を用いることは、励起断面積を小さくし強度を大きくするだけでなく、空間モードを制限するという重要な意味を持つ。

しかし、中空ガラスにおける 8keV 領域の単一モード条件は以下の規格化された周波数パラメータの式より、コア径 $a=20\text{nm}$ 以下が要求される。

$$V = \frac{2\pi a}{\lambda} \sqrt{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2} < 2.405$$

50nm から 100nm の集光径を持つ SACLA[6] から、このサイズの口径に X 線を入射させることは、効率的、技術的な面から達成が難しい。

そこで、コア部に X 線利得媒質である純銅を充填させたキャピラリーを、プレート状にモールドした増幅素子 (以下: キャピラリープレート) とカップリングさせたナノキャピラリー光学デバイスを考えた。純銅を充填させることでコア径は 125nm まで拡大することが可能となる。

4.2 キャピラリープレート設計

本実験で作製するキャピラリープレートは、8keVのハードX線の単一モード条件から、純銅をコア部に充填し内径を125nmとしたキャピラリーを、複数回の照射実験に耐久できるように1000本程度集めたマルチチャンネルとしたものである。また、キャピラリープレートの厚みは、8keVのX線の銅に対する減衰距離5.25mm以下になるようにした。

以下Table 1で8keV領域における銅の光学的特性をまとめ、Fig 11で自作したキャピラリープレートの模式図を載せる。

Table 1. 8keVのX線における銅の光学的特性

光学屈折率 n_{Cu}		臨界角 α_c (mrad)	コア径 a (nm)	減衰距離 l_a (mm)
$\delta_{Cu} \times 10^{-5}$	$\beta_{Cu} \cdot 10^{-7}$			
2.27	5.13	6.74	125	5.25

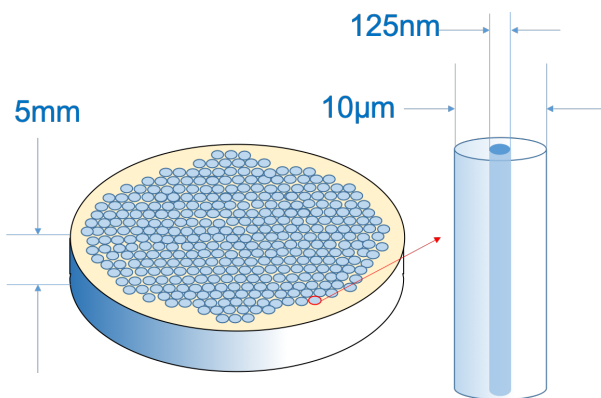


Fig 11. キャピラリープレート

4.3 引っ張り法によるキャピラリー作成

サブミクロンオーダーにおいて内面の平滑性を保つために、従来のファイバー作成法の一つである加熱・引っ張り法を用いた。引っ張り法とは、ガラス材料を高温熱源により加熱・軟化させ外部装置により引き延ばす方法である。本実験ではFig 12のような自作装置を用いることでコア径がサブミクロンのキャピラリーを作成しようと試みた。

母材であるソーダ石灰ガラスの軟化点はおよそ700°C、融点はおよそ1000°Cである。そこで、本実験の高温熱源にはリングバーナーを使用した。バーナーによる直接加熱でガラスを軟化させ、上下のパネを用いて線引きさせる機構にした。

普通に溶融している温度におけるガラスの粘性は、代表的な値で 10^2 ポアズ(10Nsm^{-2})程度であることから、引っ張る長さ0.4mに対し、軟化したガラスを引っ張るための引きパネのパネ定数を0.04N/mmに選択することで、0.5秒で1mの長さを引っ張ることができるようにした。

また、軟化したガラスが自重で垂れてしまわないように、装置全体をタワーにし、垂直方向にガラスを引っ張ることができるようにした。

もともとのガラスの内径は、 $100\mu\text{m}$ であり、数回、加熱・伸張を繰り返すことでサブミクロンのキャピラリーを作成した。

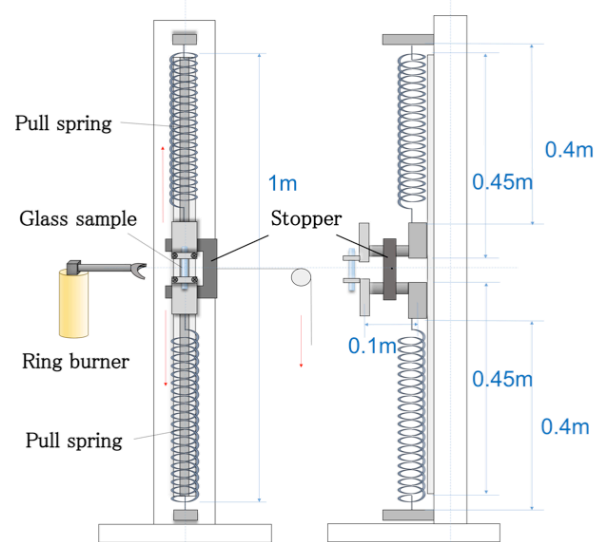
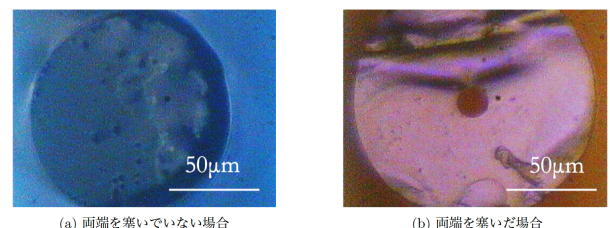


Fig 12. 自作キャピラリー作成装置

また、Fig 13のようにガラスの両端に耐熱ボンドを塗布した場合としない場合で、キャピラリーの内径が潰れることがわかった。そこで、実験ではガラスの両端に耐熱ボンドを塗布し、伸張時に内径が潰れにくいようにした。



(a) 両端を塞いでいない場合

(b) 両端を塞いだ場合

Fig 13. 耐熱ボンドにより両端を塞いだ時の比較

4.4 ガラスへの銅線挿入装置

キャピラリーのプリフォームとなる、コア径が $100\mu\text{m}$ の中空ガラスに $\phi 30\mu\text{m}$ の銅線を挿入するためにFig 14のようにXYZ光学ステージを用いた装置を作成した。銅を挿入するガラス面をCCDカメラにより2軸方向からモニタリングすることで、銅線の姿勢をまっすぐに挿入できるようにした。

しかし、銅線の挿入を試みた結果、銅線は2mm程度しか挿入できなかった。これは、 $\phi 30\mu\text{m}$ の銅線では細すぎて非常に柔らかく、途中で少しでも曲がりが生じてしまうと先に進めなくなるからであった。

そこで、銅線2本を撚ることで $\phi 60\mu\text{m}$ の銅線を挿入することにした。その結果、銅線はガラスに対し、50mmまで挿入することが可能となった。

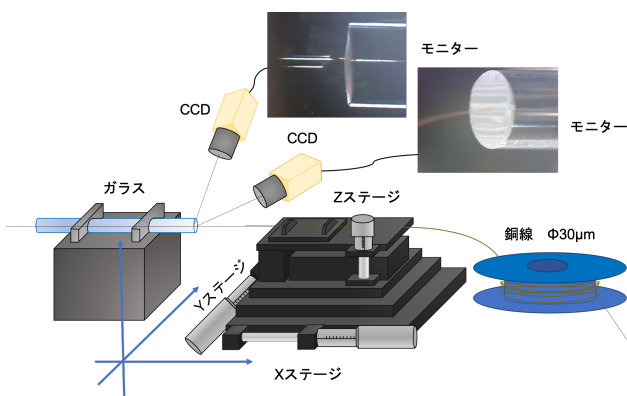


Fig 14. 自作の銅線挿入装置

4.5 2回伸張後のキャピラリーの内径の大きさ
 一回の加熱・伸張だけでは、キャピラリーの内径は、サブミクロンオーダーに到達することができないため、一度伸張したキャピラリーを再度伸張することで、内径の大きさをより小さいサイズにまで到達できるようにした。以下のFig 15に二回加熱・伸張して得られたキャピラリーの光学顕微鏡像を載せる。

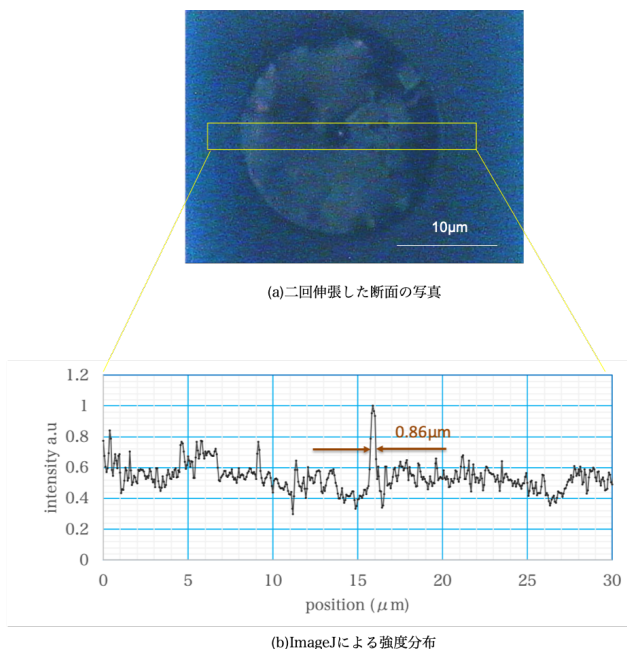


Fig 15. 二回伸張後のキャピラリーの大きさ

この時、内径は $0.86\mu\text{m}$ まで到達し、外径は $21\mu\text{m}$ であった。ゆえに、外径/内径のアスペクト比は24であった。プリフォームの外径/内径のアスペクト比が30(内径： $100\mu\text{m}$ 、外径： 3mm)であったため、伸張後もアスペクト比は保たれていたことが確認できた。

4.6 作成したキャピラリープレートの外観

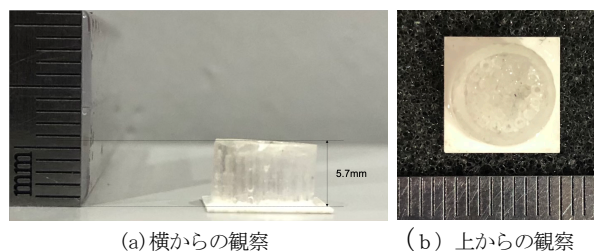


Fig 16. 作成したキャピラリープレートの外観

実際に作成したキャピラリープレートの外観を、横から見たイメージと上から見たイメージとしてFig 16に載せる。作成したキャピラリープレートは厚みが5.7mm程度となっているが、実際にX線が入射するキャピラリーは5mmに対し $\pm 1\text{mm}$ 程度の長短があることがわかった。

4.7 キャピラリープレートの表面観察

走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、作成したキャピラリープレートの表面を観測したイメージを、以下のFig 17に載せる。

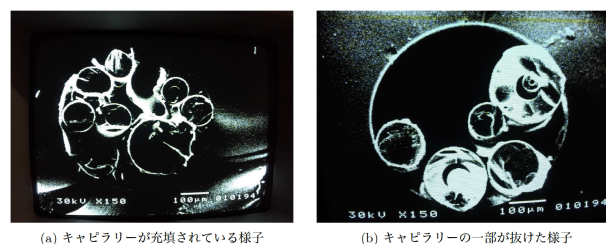


Fig 17. SEMによるキャピラリープレート表面の観察

キャピラリープレート表面をいくつか観察すると、充填したキャピラリーが抜けてしまっているものがあった。これは、キャピラリーを充填したガラスをファイバースクライブを用いて切り出した際に、固定されていなかったものが、途中の加工過程で抜けたものと考えられる。

そのため、X線領域で高い透過性を持ち、キャピラリーを固定できる流動性のある接着剤を使用することで、キャピラリーが抜けることを防ぐ必要がある。

4.8 キャピラリープレートの透過スペクトル

自作したキャピラリープレートに対し、SACLAから放射させた8keVのハードX線を照射した。実際に測定された典型的なスペクトルをFig 18に載せる。

この時、キャピラリープレートを透過させた場合と、SACLAから出力された直接のスペクトルを比較したところ、矩形の類似したスペクトル構造の観測がされた。

ターゲットの厚みは5mmでありX線の吸収長としては十分なため、8keVのハードX線が伝搬したということは、臨界角である6.74mrad(0.097deg.)以下でキャピラリープレートが、垂直姿勢を保っていたことを意味すると考えた。

しかし、実際にSACLAからのハードX線が透過したキャピラリープレートの領域は、Fig 17のようにキャピラリーが抜けてしまった部分の可能性は十分に考えられる。

さらに、キャピラリープレートをターゲットにした照射実験では、チャンバー内の真空は十分に引いていなかったため、集光させた領域は100nmオーダーに比べ広がっていたものと考えられる。

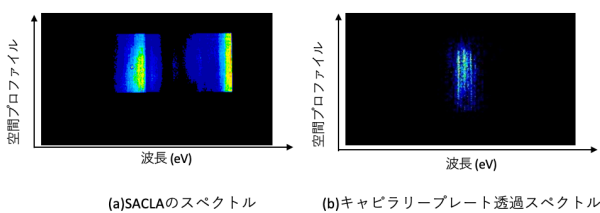


Fig 18. 元のスペクトルと透過スペクトルの比較

4.9 空間プロファイルの制御

キャピラリープレートを透過したスペクトルのうち、照射位置を変化させた時のスペクトル構造の変化をFig 19に載せる。

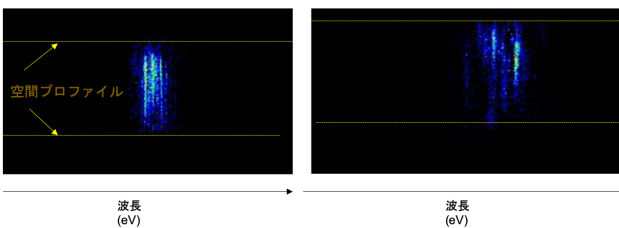


Fig 19. 透過スペクトルの空間プロファイル変化

各スペクトルのパターンは異なる空間的な広がりを持っており、そのプロファイルの位置が変化していることが観測された。これは、キャピラリープレートを透過する際に、空間的な回折が生じ、コヒーレントなハードX線の位相が変化したために伝搬モードの異なるプロファイリングとなったと考えた。これは、作成したキャピラリープレートのコア径の大きさが、単一モード条件を満たしていなかったために、8keV領域において単一モードの伝搬を達成できていなかった証拠ともなるが、一方で各ショット毎に異なる多モードでの伝搬ができていた証拠ともなる。

ゆえに、自作のキャピラリープレートをを用いた導波により、SACLAからのハードX線の空間モードの制御ができる可能性を示唆した。

5. 結論

本実験では、高品質なX線光源の開発の一環として、X線自由電子レーザー励起X線レーザーの性能制御の可能性を調べた。

Bragg回折による定在波型ハードX線レーザーを用いた縦モード制御については、サブバンドを持つスペクトルの観測ができた。さらに、その時の共振器長の長さを推定したところ、およそ1μm以上の構造を持つことがわかった。結晶角度によりメインピークとサブバンドのシフト量が変わったことから、結晶角度を変更することで縦モードの制御可能性が示唆された。

自作キャピラリープレートについては、SACLA光源を用いて0.1deg.以下の垂直姿勢を保っていたことが確認された。しかし、キャピラリーの一部はガラスのモールドに対し、抜けてしまっていたことも観測された。また、ハードX線領域におけるキャピラリー光学素子を用いた空間モードの制御についても、得られたスペクトルの空間プロファイルに種類があったことから制御可能性を示唆することができた。

今後の展望としては、以下の2点を考えることで、より高精度な制御を目指す。

- (i) Bragg反射型レーザーにおいては、硫酸銅の加工精度を高め、より高精度の角度制御を行えるようにする。
- (ii) キャピラリープレートについては、8keV領域のハードX線において、内径を単一モード条件に近づけるための作成アイデアが重要になる。例えば、ガラスプリフォームに厚み50μm程度の銅蒸着を施し、ガラスを加熱伸張する。

参考文献

[1] Mimura, H. et al. "Generation of 10²⁰W/cm² hard X-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system", Nature Commun. 5, 3539 (2014)

[2] 長嶺和慶, "X線自由電子レーザー励起X線レーザーの開発", 平成26年度電気通信大学大学院修士論文, (2015)

[3] J. Amann, W. J. Berg, "Demonstration of self-seeding in a hard-X-ray free-electron laser", Nat. Photon, 6, 693-698 (2012)

[4] 舛谷立春, "X線自由電子レーザー励起内殻電子励起レーザーにおけるスペクトル制御の研究", 平成28年度電気通信大学大学院修士論文, (2017)

[5] 米田仁紀, "ハードX線コヒーレント光学の研究", KAKEN 2018年度実績報告書, (2018)

[6] Yabashi M et al, "Compact XFEL and AMO science: SACLA and SCSS", IOPscience, volume46 16 (2013)