

令和 7 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2023～2024

課題番号：23K17149

研究課題名（和文）超高強度XFEL sub10nm集光ビームによるX線非線形光学現象の探索

研究課題名（英文）Exploring nonlinear X-ray optical phenomenon using ultra-intense XFEL with sub-10 nm focus size

研究代表者

山田 純平（Yamada, Jumpei）

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：10845027

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：新たに実現した 10^{22} W/cm²のピーク強度を有する 7×7 nm集光XFELを用いて、X線非線形光学現象の探索を目的に研究を行った。結果として、クロム試料において全ての電子が強烈に励起された「完全電離」状態の生成を示した。また、モリブデン試料において三つの光子が同時に1s電子と光電吸収相互作用を起こす硬X線三光子吸収現象の初観測に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光の特性に対する非線形応答は、現代の可視光レーザー技術や物理計測技術の中核を成している。X線領域においても非線形光学が開拓されれば、新たなX線分析技術や非線形X線光学デバイスの開発を通じて、科学計測の応用範囲を大きく拡張できる可能性がある。また本研究で得られた成果は、原子・分子物理や高強度場科学の分野における、新たな計測手法としての応用可能性を示している。

研究成果の概要（英文）：Using a newly developed XFEL beam focused to 7×7 nm with a peak intensity of 10^{22} W/cm², we performed a study for exploring nonlinear X-ray optical phenomena. As a result, we demonstrated the formation of a "fully ionized" state in chromium, in which all electrons were strongly photo-excited. Furthermore, in molybdenum, we achieved the first observation of a hard X-ray three-photon absorption, where three photons simultaneously interacted with a 1s electron.

研究分野：X線光学

キーワード：X線自由電子レーザー X線ナノ集光 非線形光学

1. 研究開始当初の背景

日本の X 線自由電子レーザー(X-ray free-electron laser: XFEL)施設である SACLA(Spring-8 Angstrom Compact Free-electron Laser)において、7×7 ナノメートル(nm)の極限集光とそれに伴う 10^{22} W/cm² のピーク強度が達成された。この超高強度 XFEL によって進展が期待される科学分野の一つに X 線の非線形光学がある。これまでに従来のピーク強度によって、X 線領域の可飽和吸収や和周波発生などが実証されてきたが、それらは低次非線形光学現象の基礎的な観察に留まっていた。より高強度な XFEL を用いることで、非線形光学デバイスへの応用や新たな高次 X 線非線形光学への道が拓けると期待できる。

しかしながら、実際の非線形光学実験においてはいくつか未解明の物理に留意する必要がある。7 nm 集光 XFEL では、極限的な集光径から集光スポット内に存在する原子数(銅 Cu の場合 8.3×10^6 個)よりも、3 桁以上多い光子数(3.4×10^{10} 個)が 1 つの XFEL パルス内で試料に照射される。このような X 線光子の津波に晒される原子群では、僅か数 fs という短いパルス幅内でも、複数の束縛電子が強烈に励起されることが予想され、これまでのいわば静的な基底状態の計測でなく、多重励起状態の金属原子・イオンを計測することに相当する。こうした特異な電子状態は 10^{22} W/cm² のピーク強度で初めて表面化してくる問題であり、当てにできる前例も存在しないことから、これまで未踏であった超高光子密度 X 線レーザー場で起きる物理現象を、世界に先んじて解明していく必要がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、7×7 nm 集光 XFEL を利用することで、多重励起状態原子・分子物理の探索と X 線多光子吸収に代表される X 線高次非線形光学現象を初観測することにある。そのためにまず、9.1 keV の 7 nm 集光 XFEL によって全電子を励起可能な軽~中比重金属を対象に多重励起状態を生成し、得られる蛍光 X 線から電離状態を計測する。すなわち、7 nm 集光 XFEL で基礎とすべき励起状態を決定する。この結果に基づき、直接三光子吸収に代表される硬 X 線領域の高次非線形光学現象の観測へ向けた戦略を決定する。

3. 研究の方法

本研究では 7×7 nm 集光 XFEL を用いた、(1)Cr(クロム)の多重励起状態の測定、および(2)Mo(モリブデン)における多光子吸収現象の観測、を実施した。鍵となる開発要素は測定系の整備と高精度な試料作製である。測定系として、(1)では Cr 薄膜試料からの蛍光 X 線を、HAPG(Highly annealed pyrolytic graphite)基板を用いたスペクトロメータにて高分解能に取得した。(2)では Mo 試料からの微弱な三光子励起発光 X 線を、単一光子計数条件の CCD(charged coupled device)検出器を用いて広立体角・高感度に計測した。試料作製について、ポリイミドフィルムをたわみや反りの無い高い平坦性で保持する機構・試料ホルダを開発し、このフィルム上にマグネトロンスパッタ法にて試料薄膜を形成する手法を確立した。

4. 研究成果

(1) Cr(クロム)の多重励起状態の測定

一般に Cr の K 吸収端と Ka 蛍光 X 線エネルギーはそれぞれ 5.898 keV と 5.415 keV である。これは、全ての電子が揃った Cr 原子では K 殻電子励起に 5.898 keV のエネルギーが必要であり、K 殻-L 殻間の準位エネルギー差が 5.415 keV に相当することを示す。時空間的に光子密度の高いナノ集光 XFEL を用いた場合には、複数の束縛電子が励起される。複数の K・L 殻電子が存在しない Cr イオン状態では、その分電子遮蔽が弱まるために吸収端および蛍光 X 線エネルギーが短波長側へシフトすることが予想される。7 nm 集光 XFEL を Cr に照射し、高エネルギー分解能にて蛍光 X 線を測定することで、多重励起状態を表す多数の発光ピークを同定することができる。すなわち、7 nm 集光 XFEL で基礎とすべき励起状態を決定することができる。

実験は SACLA の EH4c にて実施し、独自に開発した 7 nm 集光システムの調整を行った後に、マグネトロンスパッタ法で作製した 2 μm 厚の Cr 薄膜試料に XFEL を照射した。集光ビームの焦点深度(約 2 μm)を考慮し、焦点位置に対して -19~20 μm の複数のデフォーカス条件にて測定を行った。

試料真横に配置した HAPG スペクトロメータにて取得した蛍光 X 線分布を図 1 に示す。焦点近傍にて取得した蛍光 X 線分布では多数の発光ピークが観察され、特に 5.932 keV および 7.017 keV において、残り電子が 1 つしか存在しない水素様 Cr⁺²³ イオンからの原子線スペクトル: ライマン(Ly)線発光を得た。さらに最も高強度な焦点位置(デフォーカス 0 μm)では Ly 線発光ピークが減少していることが分かる。これは全ての電子が励起され、蛍光緩和による発光過程が消失したことを表し、裸の原子核状態「完全電離」が生じたことが分かる。従来までの XFEL 強度

では観測されなかった現象であり、7 nm 集光 XFEL では強烈な電子励起が生じることが明らかになった。本成果は XFEL の 7 nm 集光性能の報告と合わせて、Nature Photonics 誌の 2024 年 7 月号に掲載された。

(2) Mo(モリブデン)における多光子吸収現象の観測

(1)の結果より、7 nm 集光 XFEL の照射条件では原子内部の多数の電子が励起されることが分かった。最終的な励起状態は用いる X 線の光子エネルギー(9.1 keV)と、元素に固有のイオン化エネルギーの関係によって決まると思われる。このため、多光子吸収の観測には K 殻イオン化エネルギーの高い Mo を用いた。Mo は K 殻イオン化エネルギーが 20 keV であり、現状 9.1keV の 7 nm 集光 XFEL では K 殻の 1s 電子を励起できない。一方で、三光子が同時に 1s 電子に相互作用すると合計 27.3keV 相当の励起エネルギーによる光電吸収が起こり、結果として蛍光 X 線が発生する。水素における先行研究結果から外挿した理論計算を実施すると、Mo の三光子吸収断面積が $10^{-100} \text{ cm}^6 \text{ s}^2$ オーダーであった場合でも、 10^{22} W/cm^2 強度および SACLA の 7 フェムト秒(fs)パルス幅の XFEL を用いて、パルスあたりに 10~100 photon の十分な検出感度が得られることが確認された。

実験は SACLA の EH4c にて実施し、独自に開発した 7 nm 集光システムの調整を行った後に、マグネトロンスパッタ法で作製した 1.5 μm 厚の Mo 薄膜試料に XFEL を照射した。複数のデフォーカス条件を走査しながら蛍光 X 線を取得し、得られた発光スペクトルの入射強度依存性をプロットしたグラフを図 2 に示す。入射強度の 3 乗に対して明白に比例していることが分かる。これは三光子寄与により起きた現象であることを表す証左であり、硬 X 線の三光子吸収の初観測に成功した。得られた強度依存性からは Mo の三光子吸収断面積として、 $9.01 \times 10^{-99} \sim 2.66 \times 10^{-98} \text{ cm}^6 \text{ s}^2$ が見積もられている。現在、より正確な三光子吸収断面積の決定のために、Mo の具体的な励起状態を推定する理論計算を実施している。

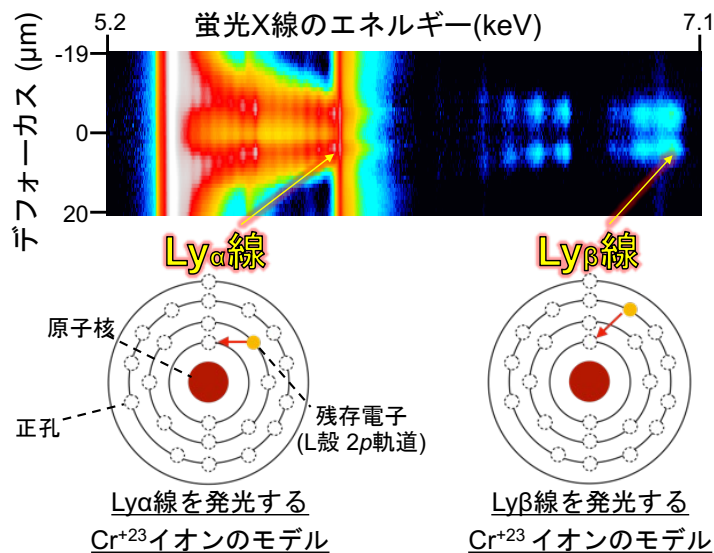


図 1. Cr からの蛍光 X 線計測結果と Ly 線スペクトルに対応する電離状態のモデル図。

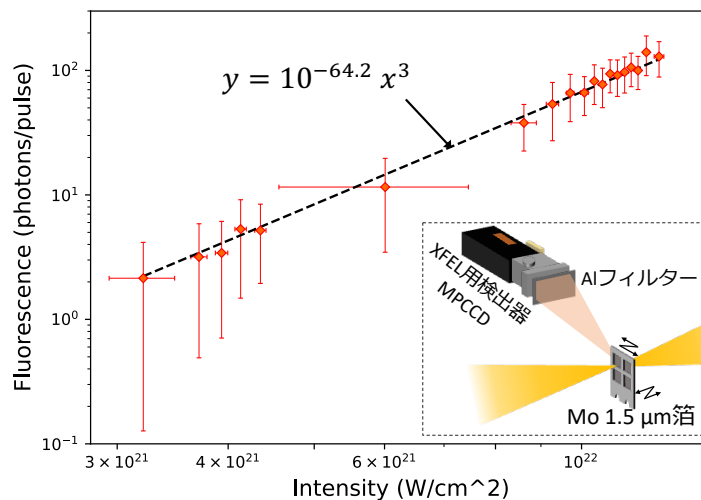


図 2. 三光子吸収後に発生する蛍光 X 線の入射強度依存性。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Huang Lei, Wang Tianyi, Yamada Jumpei, Rebuffi Luca, Austin Corey, Choi Heejoo, Kang Hyukmo, Negi Vipender, Kim Daewook, Idir Mourad	4. 巻 32
2. 論文標題 Manufacturability-based optical design optimization for advanced Kirkpatrick Baez X-ray focusing mirrors	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 25755 ~ 25755
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.529965	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Inoue Ichiro, Sato Takahiro, Robles River, Seaberg Matthew H., Sun Yanwen, Zhu Diling, Yabashi Makina, Marinelli Agostino, Yamada Jumpei et al.	4. 巻 12
2. 論文標題 Nanofocused attosecond hard x-ray free-electron laser with intensity exceeding 10^{19} W/cm ²	5. 発行年 2025年
3. 雑誌名 Optica	6. 最初と最後の頁 309 ~ 309
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OPTICA.554954	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Yamada Jumpei, Matsuyama Satoshi, Inoue Ichiro, Osaka Taito, Inoue Takato, Nakamura Nami, Tanaka Yuto, Inubushi Yuichi, Yabuuchi Toshinori, Tono Kensuke, Tamasaku Kenji, Yumoto Hirokatsu, Koyama Takahisa, Ohashi Haruhiko, Yabashi Makina, Yamauchi Kazuto	4. 巻 18
2. 論文標題 Extreme focusing of hard X-ray free-electron laser pulses enables 7 nm focus width and 10^{22} W/cm ² intensity	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 685 ~ 690
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41566-024-01411-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Inoue Ichiro, Yamada Jumpei, Kacpia Konrad J., Stransky Michal, Tkachenko Victor, Jurek Zoltan, Inoue Takato, Osaka Taito, Inubushi Yuichi, Ito Atsuki, Tanaka Yuto, Matsuyama Satoshi, Yamauchi Kazuto, Yabashi Makina, Ziaja Beata	4. 巻 131
2. 論文標題 Femtosecond Reduction of Atomic Scattering Factors Triggered by Intense X-Ray Pulse	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.131.163201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計35件（うち招待講演 7件 / うち国際学会 17件）

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Ultra-intense XFEL 7 nm focusing with advanced KB mirror
3. 学会等名 16th International Conference on X-Ray Microscopy (XRM2024) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Ultra-intense sub-10 nm focusing at a hard X-ray FEL
3. 学会等名 15th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2024) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 山田純平, 伊藤篤輝, 塩井康太, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山口豪太, 犬伏雄一, 藪内俊毅, 藤大雪, 佐野泰久, 山内和人, 矢橋牧名, 玉作賢治
2. 発表標題 7 nm集光硬X線FELによる直接三光子吸収の観測
3. 学会等名 第38回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2025年

1. 発表者名 岩野新大, 山田純平, 塩井康太, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 犬伏雄一, 山口豪太, 藤大雪, 佐野泰久, 矢橋牧名
2. 発表標題 二色発振XFELの超高強度ナノ集光へ向けた二波長反射多層膜ミラーの開発
3. 学会等名 第38回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2025年

1. 発表者名 岩野新大, 山田純平, 塩井康太, 山口豪太, 藤大雪, 佐野泰久, 矢橋牧名
2. 発表標題 XFELナノ集光ミラーのための二波長反射多層膜の開発
3. 学会等名 2025年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2025年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Advanced Mirror-Based Optics for Hard X-Ray Focusing and Imaging Applications
3. 学会等名 Gordon Research Conference: X-ray Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 XFEL sub-10 nm focusing with 10^{22} W/cm ² intensity: wavefront corrected mirror and focus characterization
3. 学会等名 PhotonMEADOW23: PhotonDiag 2023 & MEtology, Astronomy, Diagnostics and Optics Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Sub-10 nm focusing of hard X-ray free-electron laser for reaching 10^{22} W/cm ² intensity
3. 学会等名 The International Conference on Optical and Photonic Engineering (icOPEN) 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Ultra-intense hard X-ray FEL with sub-10 nm focusing
3. 学会等名 13th Ringberg Workshop: Science with FELs (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 J. Yamada, T. Inoue, S. Matsuyama, N. Nakamura, Y. Tanaka, A. Ito, K. Shioi, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, Y. Sano, M. Yabashi, and K. Yamauchi
2. 発表標題 Design, fabrication, and implementation of XFEL sub-10 nm focusing mirrors
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications (XOPT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山田純平
2. 発表標題 硬X線結像ミラー光学系の開発とナノイメージング・ナノ集光への応用
3. 学会等名 第37回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 A. Ito, J. Yamada, Y. Tanaka, K. Shioi, S. Matsuyama, T. Inoue, I. Inoue, T. Osaka, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
2. 発表標題 Direct focus characterization of sub-10 nm XFEL using speckle patterns from random nanoparticles
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications (XOPT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名	A. Ito, J. Yamada, Y. Tanaka, K. Shioi, I. Inoue, T. Osaka, G. Yamaguchi, Y. Inubushi, M. Yabashi and K. Yamauchi
2. 発表標題	Determination of astigmatism in XFEL sub-10 nm focusing system using speckle patterns from random nanoparticles
3. 学会等名	PhotonMEADOW23: PhotonDiag 2023 & METrology, Astronomy, Diagnostics and Optics Workshop (国際学会)
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	塩井康太, 山田純平, 伊藤篤輝, 田中優人, 山内和人, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 山口豪太, 犬伏雄一, 矢橋牧名
2. 発表標題	タイコグラフィを用いた XFEL sub-10 nm 集光光学系のビーム径計測
3. 学会等名	2023年度精密工学会関西地方定期学術講演会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	塩井康太, 山田純平, 伊藤篤輝, 田中優人, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 山口豪太, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 山内和人
2. 発表標題	タイコグラフィによるショットごとのXFEL sub-10nm集光のビーム径計測
3. 学会等名	2023年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	伊藤篤輝, 山田純平, 塩井康太, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山口豪太, 犬伏雄一, 藤大雪, 佐野泰久, 矢橋牧名, 山内和人
2. 発表標題	複数のX線ナノ集光評価手法を相補的に用いたXFEL 7 nmスポットの高精度計測
3. 学会等名	第37回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年	2024年

1. 発表者名 塩井康太, 山田純平, 伊藤篤輝, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山口豪太, 犬伏雄一, 藤大雪, 佐野泰久, 矢橋牧名, 山内和人
2. 発表標題 特異値分解を用いたタイコグラフィ法によるsub-10 nm集光XFELのPulse-to-pulse計測
3. 学会等名 第37回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

X線自由電子レーザーの極限的7 nm集光を実現 https://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2024/20240315_2
--

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	Brookhaven National Laboratory	SLAC National Accelerator Laboratory	Stanford PULSE Institute
ドイツ	Center for Free-Electron Laser Science	European XFEL GmbH	