

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 30 日現在

機関番号：63903

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286080

研究課題名(和文)短波長自由電子レーザーによる軟X線超蛍光の観測

研究課題名(英文) Observation of free-electron-laser-induced collective spontaneous emission in soft x-ray region

研究代表者

繁政 英治 (SHIGEMASA, Eiji)

分子科学研究所・極端紫外光研究施設・准教授

研究者番号：90226118

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,100,000円

研究成果の概要(和文)：極紫外から軟X線領域での超蛍光の観測を目指した発光分光器を新規開発し、X線自由電子レーザー(FEL)施設SACLAのBL1において実験を行った。ヘリウムの3p及び4p共鳴励起波長に相当する53.7 nm及び52.2 nmにおいて、ビームライン下流に放射される蛍光強度のガス圧依存性及び時分割計測を行った。観測された極紫外蛍光は、どちらのFEL波長でも、パルス状の時間構造を持ち、圧力に依存した遅延時間を有するという超蛍光の特徴に合致した傾向が観測された。一方、ピーク強度の振舞は、超蛍光の特徴とは大きく異なっている。これは、時間分解能の決定的な不足に起因しており、それを改善した実験を行う予定である。

研究成果の概要(英文)：In order to observe collective spontaneous emission (SF) in the short wavelength region, we have developed a new fluorescence spectrometer. Experiments have been carried out at BL1 of SACLA (X-ray free electron laser (FEL) facility) by using this spectrometer, which was set at the downstream of the beamline, for observing EUV radiation from excited helium atoms. The FEL wavelengths were set at 53.7 nm and 52.2 nm, which correspond to the 3p and 4p resonances. We have observed intense EUV radiation from excited helium atoms, emitted to the downstream of the beamline. At the both wavelengths, pulsed time structures for the radiation were observed, whose widths and delay times depend on the sample gas pressures. These trends agree with the general features of SF, but the pressure dependence of the peak intensity completely differs from what is expected for the SF. This may be due to the insufficient time resolution. A further work with much improved time resolution is scheduled.

研究分野：原子分子物理

キーワード：超蛍光 軟X線 自由電子レーザー 極端紫外光

1. 研究開始当初の背景

レーザーの発展史において、短波長領域への延伸は、常に重要なテーマの1つである。これまでに、レーザー媒質を多価イオンやプラズマとする軟X線レーザーや、高強度フェムト秒レーザーを集光して発生する高次高調波光源の開発研究などが行われているが、多様な実験目的に応じられるような実用レベルのレーザー光源には至っていない。また、波長が0.1 nmを下回るような硬X線の発生も困難である。

これらとは異なる短波長レーザーの発生法として登場したのが、直線加速器を基盤とする自己増幅自発放射 (Self-Amplified Spontaneous Emission: SASE) 型自由電子レーザー (Free-Electron Laser: FEL) である。現在、ドイツのFLASH(極端紫外(EUV: Extreme Ultraviolet) ~ 軟X線)、米国のLCLS(軟X線 ~ 硬X線)、日本のSACLA(軟X線 ~ 硬X線)の3か所において短波長SASE-FELが稼働し、多くの利用研究が行われている。更に、ドイツ、イタリア、韓国、スイスでもFELの建設が開始され、また、建設計画も国内外に多数存在するなど、今後、短波長レーザー利用が大きく進展する状況にある。

短波長SASE-FEL利用研究が拡大する中、次世代コヒーレント光源の開発研究も始まっている。SASE-FELは、通常のレーザー光に比べると、ショット毎に光強度とスペクトル構造の変動が大きいという原理的な弱点がある。これを克服するため、電子ビームと大強度なコヒーレント光の相互作用に基づくSEED-FELが提案され、真空紫外域やX線領域では既に実用化が始まっている。しかしながら、EUVから軟X線領域では、適当なコヒーレント光源が存在しない。広い波長範囲に亘る安定なFELを実現するためには、この波長領域におけるコヒーレント光源の開発は必須である。

従来の光学レーザーの利用分野が、物理や化学の基礎科学のみならず、工学、医療、環境、情報通信などへと拡大・発展してきた最大の理由は、さまざまな非線形光学現象が発見され、応用されてきたからである。例えば、高次高調波発生はレーザー光の短波長領域への波長変換としての光源開発研究、誘導ラマン散乱は物性研究、非線形屈折率変化による光双安定性(光スイッチング)は情報通信分野で利用されている。短波長領域のレーザー利用が、黎明期から成長期へと移りつつある現在、光学レーザー利用の発展に倣って、短波長領域の新しい非線形光学現象の発見と応用を探索する研究が、世界的な競争状態になっている。

このような状況の中、近年、研究代表者らのグループは、短波長FELの利用研究を積極的に推進している。SACLAの実証機としてSPring-8サイトに建設された、SCSS試験加速器を利用して、EUV領域における非線

形過程に関する実験研究を行ってきた(参考文献[1]~[7])。また、SACLAにおいてX線FELの利用研究も行っている([8], [9])。これら成果の中で、本申請代表者らは、EUV-FELを用いた量子光学現象“超蛍光”の観測に世界に先駆けて成功した([2])。量子光学効果の一つ、超蛍光は、励起状態にある原子が集団で一斉に自発放射を起こす過程である。この超蛍光現象を応用して、EUVからX線領域における短波長FEL光のさまざまな制御法を開拓することが我々の最終目標である。

2. 研究の目的

超蛍光現象とは、励起原子が蛍光を放出して脱励起する際に、“励起原子が集団”として振る舞う量子光学効果の1つである。通常、励起状態にある1個の原子は、ある寿命(励起寿命)で低いエネルギー状態に脱励起する。この時、余分なエネルギーを蛍光として放出することがある。多数の原子が脱励起で蛍光を放出する時、その光強度は励起原子の数が徐々に減る様子を反映して、指数関数的な減衰曲線を描く(図1-(a))。しかし、励起原子が蛍光波長程度の距離に1個以上存在すると、励起原子は孤立した原子として振る舞うことができず、励起原子集団として一斉に蛍光を放出する。これが超蛍光である。超蛍光の特徴は、超蛍光パルスのピーク強度は励起原子数Nの二乗に比例し、入射光に対する遅延時間と時間幅はNに反比例する(図1-(b))。また、レーザー光のように高い指向性とコヒーレント性を併せ持つことが知られている。超蛍光のパルス特性は、励起原子密度により制御可能である。

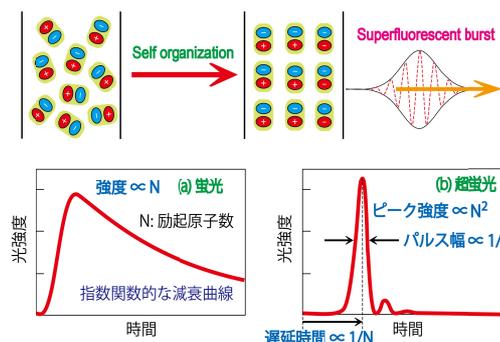


図1. 超蛍光のメカニズムの概略と蛍光(a)

本申請代表者らが観測した超蛍光は、 $\text{He}(1s^2) \text{He}^*(1s3p)$  共鳴に相当する波長 53.7 nm の EUV-FEL を高濃度 He ガスに照射した時、最大  $10^9$  個の He 原子が同時に励起状態になり、その後、励起原子が集団となって  $\text{He}^*(1s3p) \text{He}^*(1s2s)$  遷移に相当する波長 501.6 nm (可視領域) の超蛍光であった[2]。この超蛍光は、照射 EUV-FEL 光軸下流側に高い指向性 (20 mrad 以下) を持ち、通常の蛍光寿命 ( $\tau = 75 \text{ ns}$ ) よりも最小

1/75000 倍短い 10 ps 以下のパルス幅であった。つまり、通常の蛍光と比較して  $3 \times 10^9$  倍高い光強度であった。また、光子数変換効率率は最大 10%にも達した。同様の現象を、EUV から軟 X 線領域において観測することが本研究の目的である。我々の最終目標は、SASE-FEL で誘起される超蛍光現象を応用して、短波長 SASE-FEL を SEED 化するなど様々な制御手法を開拓し、今後利用が進展する短波長レーザーの裾野を拡大・発展させるための基礎基盤を充実させることにある。

### 3. 研究の方法

EUV から軟 X 線領域の超蛍光の発生を確認するために、専用の発光分光器の開発研究を新たに行うことを目指して、科学研究費補助金の予算申請を行った。これは、超蛍光は励起 FEL 光と同じ光軸方向に指向性を有する発光であり、通常の斜入射分光器（スリット回折格子 2 次元検出器の構成）では、観測したい超蛍光のみならず、より強力な励起 FEL 光も 2 次元検出器に入ってしまう可能性が高いためである。励起 FEL 光の検出器への混入を避けるために、回折格子を 2 つ用いた分光器を新たに製作する予定で予算要求を行っていたが、配分予算が大幅に削減されていたことから、当初計画を見直し、平面結像型不等刻線凹面回折格子分光器を新たに導入し、必要な改造と実験配置を最適化することにより、励起 FEL 光の寄与を極力抑えた観測を目指すこととした。現有の斜入射分光器では、時間分解測定に必須となるストリークカメラの利用において、そのスペクトル結像面にストリークカメラの光電面を設置できないという致命的な弱点があるため、新規開発を目指すことにした。

2012 年に SCSS において実施した EUV 領域での超蛍光観測のテスト実験においては、既存の斜入射分光器、真空光学社製 XUV-235-III をビームライン下流に設置し、CCD 検出器による EUV 蛍光スペクトル計測を行った。その結果、原子数密度に対して強い線形性を示す EUV 蛍光が観測されている。これが超蛍光であることを確認するためには、ストリークカメラによる時分割測定が必須となる。そこで、ストリークカメラの取り付けにも対応可能な斜入射分光器、真空光学社製 XUV-639 型をベースに、超蛍光用発光分光器及び高密度ガスセルの開発を行った。

2016 年 2 月、研究代表者が所属する放射光実験施設である UVSOR のビームライン、BL4B に新開発の発光分光器を取り付けて、CCD 検出器による斜入射分光器の性能評価実験を行った。発光分光器の分解能を評価するために、波長 30 nm におけるビームライン分光器の分解能が 10000 (  $\Delta\lambda/\lambda = 0.003$  nm ) に相当するように入出射スリット幅を設定した。この時、CCD で計測されたスペクトルは、発光分光器のスリット開度に依存して、ピーク幅、ピーク強度ともほぼ理論値通り

の振る舞いを示すことが確認された。分解能評価実験については、波長 30 nm 付近において、ビームライン分光器の波長を細かく変えながら、スペクトル形状を測定することにより評価した。その結果、スリット幅 100  $\mu\text{m}$  の時、0.05 nm 離れたピークを完全に分離して観測出来ることが確認された。スリット幅を狭めることにより、波長分解能 1000 以上の超蛍光の観測が期待される結果であった。

SACLA の新しい軟 X 線用の加速器からのビームラインは、当初 SCSS+ と呼ばれていたが、ビームライン整備の進捗に伴い、SACLA BL1 と呼ばれることとなった。この BL1 において、ヘリウム原子を試料として超蛍光実験を実施するにあたり、ビームライン真空度の悪化を避けるために、超小型ガスセルと差動排気システムの開発が必要となった。これらについては、研究協力者と連携して設計・製作を進めた。また、超蛍光が直接検出器に入るのを防ぐために、水平方向のスリットと金属薄膜フィルターを光軸上に設置できるような改造を施した。実際の実験配置の概略図を図 2 に示す。

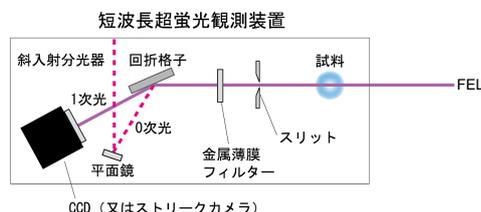


図 2 . EUV 超蛍光観測実験における実験装置の配置概略図

2016 年 6 月に本研究課題を遂行するために必須となる SACLA 利用課題申請を行い、2016 年 11 月初旬に SACLA の BL1 におけるビームタイム配分を受けた。UVSOR において開発整備を進めていた発光分光器を BL1 に持ち込み、励起ヘリウム原子集団からの EUV 超蛍光の観測を目指した実験研究を行う機会を得た。

### 4. 研究成果

実験は、BL1 の集光ビームを利用して行われた。試料ガスのヘリウムは、パルスバルブを介して光軸方向の長さ 2 mm のガスセルに導入される。このガスセルの上下流側に 1 mm のアパチャーを取り付け、BL1 の集光点に配置した。FEL の中心波長は、ヘリウムの 1s 3p 共鳴に相当する 53.7 nm、及び 1s → 4p 共鳴に相当する 52.2 nm が選択された。FEL の波長較正は、SCSS において観測実績の有る可視の超蛍光をモニターしながらアンジュレータのギャップを変更することにより行われた。EUV 超蛍光の観測では、先ず、斜入射分光器の検出器として CCD カメラを設

置し、ビームライン下流への EUV 蛍光強度のガス圧依存性を測定した。この際、FEL も同軸方向に到達するが、超蛍光の方が FEL 光よりも角度発散が大きいいため、Off-axis で測定することにより両者が分離可能であることを確認した。その後、斜入射分光器を Off-axis に設置し、CCD カメラをストリークカメラに載せ替えることにより、超蛍光に特徴的な時間構造の観測を試みた。

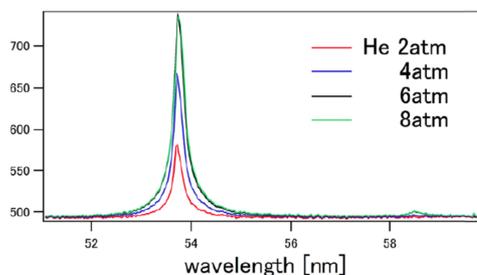


図 3 . ビームライン下流で観測された 3p 1s 蛍光スペクトルのガス圧依存性

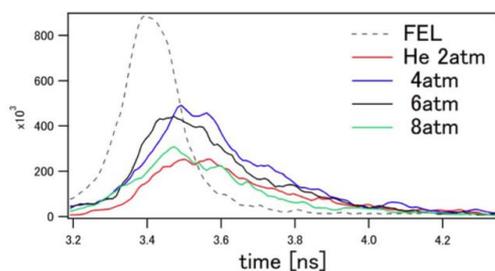


図 4 . 時間分解 3p 1s 蛍光強度のガス圧依存性

FEL の中心波長を 53.7 nm (1s → 3p) に設定し、CCD を用いて測定された EUV 蛍光スペクトルのガス圧依存性を図 3 に示す。ここでの圧力は、減圧弁の二次圧力計の表示値である。ヘリウムガスを導入すると、3p → 1s 及び 3p → 1s に由来する 53.7 nm 及び 58.4 nm の強い蛍光が観測される。ガス圧の上昇に伴い、3p → 1s のピーク強度はほぼ二乗に増大するが、6 気圧と 8 気圧では殆ど差が見られない。図 4 にストリークカメラにより時分割計測された 3p → 1s 蛍光強度の圧力依存性を示す。FEL の中心波長は、53.7 nm (1s → 3p) である。各圧力とも 546 ショットのデータ解析結果である。ビームライン下流に放射される EUV 蛍光は、パルス状の時間構造を持ち、圧力に依存した遅延時間を有するという超蛍光の特徴に合致した傾向が見られる。一方、ピーク強度の振る舞いは、励起原子密度の二乗に比例するという超蛍光の特徴とは大きく異なっている。その原因の一つの可能性としては、時間分解能が決定的に不足していることが考えられる。今回の実験ではジッターが大きく、波長選別による補正後でも、時間

分解能は 0.2 ns 程度であった。ピーク強度や遅延時間の圧力依存性を精度良く測定するために、時間分解能の大幅な向上が望まれる。

#### < 参考文献 >

- [1] Y. Hikosaka, M. Fushitani et al., (6 番目/14 人中), Phys. Rev. Lett. **105**, 133001 (4 pages) (2010).
- [2] M. Nagasono, J.R. Harries, H. Iwayama, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, Y. Senba, H. Ohashi, T. Ishikawa, and E. Shigemasa, Phys. Rev. Lett. **107**, 193603 (2011).
- [3] A. Hishikawa, M. Fushitani et al., (7 番目/15 人中), Phys. Rev. Lett. **107**, 243003 (5 pages) (2011).
- [4] H. Iwayama, M. Nagasono, J.R. Harries, and E. Shigemasa, Opt. Express **20**, 23174-23179 (2012).
- [5] E. Shigemasa, M. Nagasono, H. Iwayama, J.R. Harries, and L. Ishikawa (Okihara), J. Phys. B **46**, 164020 (5 pages) (2013).
- [6] J.R. Harries, M. Nagasono, H. Iwayama, and E. Shigemasa, J. Phys. B **46**, 164021 (5 pages) (2013).
- [7] Y. Hikosaka, M. Fushitani et al., (6 番目/12 人中), Phys. Rev. A **88**, 023421 (6 pages) (2013).
- [8] K. Tamasaku, M. Nagasono, H. Iwayama, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Tanaka, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Katayama, T. Kameshima, T. Hatsui, M. Yabashi, and T. Ishikawa, Phys. Rev. Lett. **111**, 043001 (5 pages) (2013).
- [9] K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada, H. Yumoto, H. Ohashi, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, and T. Ishikawa, Nature Photonics **8**, 313-316 (2014).

#### 5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

{ 学会発表 } (計 2 件)

岩山洋士, 藤瀬光香, J.R. Harries, 久間晋, 玉作賢治, 繁政英治, “ 励起ヘリウム原子集団からの極紫外領域における超蛍光の観測 ”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 日 ~ 2017 年 3 月 20 日, 大阪大学豊中キャンパス (大阪府豊中市).

繁政英治, 岩山洋士, J.R. Harries, “ 短波長自由電子レーザーによる軟 X 線超蛍光の観測 ”, 第 29 回日本放射光学会年会, 2016 年 1 月 9 日 ~ 2016 年 1 月 11 日, 東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト (千葉県柏市).

{ その他 }

ホームページ等

<https://www.uvsor.ims.ac.jp/staff/shige>

masa/homepage/

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

繁政 英治 (SHIGEMASA, Eiji)  
分子科学研究所・極端紫外光研究施設・准教授  
研究者番号：90226118

### (2) 研究分担者

小杉 信博 (KOSUGI, Nobuhiro)  
分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授  
研究者番号：20153546

### (3) 連携研究者

岩山 洋士 (IWAYAMA, Hiroshi)  
分子科学研究所・極端紫外光研究施設・助教  
研究者番号：50584570

### (4) 研究協力者

J.R. Harries  
藤瀬 光香 (FUJISE, Hikaru)  
久間 晋 (KUMA, Susumu)  
玉作 賢治 (TAMASAKU, Kenji)