

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 9 月 12 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25247093

研究課題名(和文) 超高強度X線場を用いたホロ－原子固体状態の研究

研究課題名(英文) Reserach on hollow atom's solid with ultra-intense x-ray field

研究代表者

米田 仁紀 (Yoneda, Hitoki)

電気通信大学・学内共同利用施設等・教授

研究者番号：00210790

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 30,000,000円

研究成果の概要(和文)：X線自由電子レーザー励起原子準位レーザーとして、これまでの記録を一ケタ短くした世界最短波長を発振に成功した。一方、実験では、さらにX線レーザーの高コヒーレント化のために、幾何学的な表面構造を持つターゲットや多層構造を持つターゲット、さらには銅原子間の相互作用が小さい化合物ターゲットでの実験を行い、観測されたスペクトルから、コヒーレンスの制御がハードX線の領域でも可能なことを見い出した。理論的な研究も、電子軌道の空孔によるスペクトルを、孤立原子状態であるが各準位で網羅的に調べることを行い、そのエネルギーシフトが起きた遷移でも利得が観測できることを示した。

研究成果の概要(英文)：By using Cu metal foil target, we succeed strong x-ray lasing. In addition, with seeding pulse, very narrow linewidth hard x-ray laser is succeeded. Important milestone of this experiment is this width of Ka laser line spectrum is narrower than the natural width of Kalpha emission. That means even though the electron transition process at the most inner shell of middle Z atoms, we can control it artificially with strong induced emission process. It is the first direct evidence for this event.

研究分野：レーザー科学

キーワード：レーザー X線レーザー フォトニクス 高エネルギー密度科学

1. 研究開始当初の背景

平成 25 年から始まったこの基盤 A 科研費では、それまで行っていた「X 線自由電子レーザー利用推進事業」で考案し、極端紫外自由電子レーザーを利用して基礎実験をしてきた結果をうけ、それを発展させるために行ったものである。

2. 研究の目的

高強度 X 線が XFEL 施設 SACLA で発生できることになり、数々の非線形現象が、内殻電子軌道に穴が開いた状態の原子が高密度に存在することで起きると予想、可飽和吸収、X 線レーズングを達成することを目的とした。

3. 研究の方法

この研究が始まると同時に、X 線自由電子レーザー施設 SACLA において、50nm 集光光学系が完成した。本研究ではそれを最大限使い、これまでにない高い集光強度を利用して研究を行っている。まず、鉄元素の K 殻吸収を用い、可飽和吸収現象が 8keV の硬 X 線で観測された。また、硬 X 線であっても近赤外レーザー利用されているような光導波路を物質内に形成できることが明らかになった。これら結果は 2014 年の *Nature Communications* に発表した。次に、内殻電子励起後の蛍光緩和過程を用いた K 線の実現に向けて研究を行った。その結果、これまでの原子準位レーザーの最短波長であった 15 から一気に固体の格子定数を下回る 1.5 のレーザーの発振に成功した。さらに、X 線自由電子レーザー施設 SACLA で実現された 2 色化 X 線レーザー技術を用い、この K 線レーザーにシーディングを行うことで、1.7eV までの狭窄化と、自然界の分岐比を超えたエネルギーの流れを実現、世界で初めての完全に時間コヒーレンスなハード X 線レーザー発振に成功した。これらの成果は、2015 年 8 月に *Nature* に発表された。

4. 研究成果

4-1 可飽和吸収

光を物質に照射すると、物質ごとに決ま

った量が吸収されるが、光の強度を高めていくと、それ以上物質が光を吸収できなくなる「可飽和吸収」という現象が起きる。この現象は、波長の長い可視から赤外域の光では、すでに光信号の生成や波形の補正など、さまざまな分野で応用されているが、可飽和吸収を用いれば、高強度の光を選択的に透過させることができるので、短い時間でのパルス光の生成や制御を行う上で必要不可欠なものになっている。しかし、これらを実現するために必要な光の強度は光子エネルギーの 2.5 乗で高くなる。すなわち、可視域で行っていることを X 線領域で行うには 9 桁以上の光の強度が必要になり実に 10^{19} W/cm² という、これまでの X 線技術では極めて困難な値となっていた。米国で 2011 年に作られた最初の強い X 線が得られる X 線自由電子レーザーでも成功例がなかった。

我々は、SACLA が生成する高輝度 X 線レーザーに対して、独自に開発した二段集光光学システムを適用し、約 50nm (ナノメートル: 1 ナノメートルは 10 億分の 1 メートル) 集光径まで絞り込み、 10^{20} W/cm² という世界最高強度の X 線を生成した。この X 線レーザーを 20 μm (マイクロメートル: 1 マイクロメートルは 100 万分の 1 メートル) 厚の鉄の薄板に照射した。

物質での X 線吸収は、主に内部の電子が担うが、吸収量や吸収する X 線のエネルギーは、物質内部の電子のエネルギー状態によって異なる。最大のエネルギー状態は、原子の中で最も原子核に近い電子がもっている。鉄原子の場合、8keV という高いエネルギーでこの電子の吸収が始まり、その前後で X 線の吸収率が大きく変わることが知られている。もし、強い X 線によって瞬時にこの電子をイオン化させてしまえば、吸収する担い手がいなくなるので、吸収できなくなるはずと考えた。実際には、使用した X 線自由電子レーザーは、ある程度エネルギー幅があったので、観測の際は、同時にこの吸収スペクトル (光子による吸収率の差) も測定できるようにした。

実験では、照射強度を増加させながら透

過 X 線を観測した。すると、低強度の時はほとんど X 線が通ることはなく真っ暗な状態なのが、理論的に予測された強度に達すると、急激に X 線が透過する可飽和吸収が観測された。これは、固体の鉄の中の多くの原子において最内殻の電子 1 つがいなくなる状態が起きたことを示している。言い換えると通常ではない原子で作られた固体状態を生成させたことになる。

さらに「吸収」と「屈折」は光学現象として物理的に Kramer-Kronig の関連がある。したがって、今回観測された吸収の変化と同時に、屈折にも変化が起きているはずである。そこで、鉄薄板を透過した X 線の状態を詳しく解析したところ、鉄薄板内で光導波路が形成されていることがわかった。

今回初めて X 線の可飽和吸収が観測されたことにより、X 線自由電子レーザーのさらなる短パルス化が視野に入ってきた。計算機シミュレーションでは、この透過率が変化する速度から考えて、アト秒の領域のパルス発生が可能になることを示している。このような超短パルス X 線レーザーには、物質が壊れる前に測定できるという大きなメリットがある。

また、可飽和吸収過程で形成される X 線の光導波路には、物質中に X 線の光ファイバーを作ったような効果が得られる可能性がある。これにより、通常の何倍もの長い距離を小さな集光径を保ちながら伝播させる新しい物質相互作用研究・応用が期待される。

今回の成果は、次世代のアト秒 (1 アト秒は 100 京分の 1 秒) X 線光学や動的 X 線光学の最初の 1 歩となり、新たな X 線光学素子を開発する技術として期待できるであろう。

4-2. 世界最短波長の原子準位レーザー

レーザーの発生方式には、大きく分けて、原子や分子内の電子準位などのエネルギー差を使う方法(原子・分子準位レーザー)と、真空中の自由電子を使う方法(自由電子レーザー)の二通りがある。多くの場合前者の方式が用いられるが、X線を含む短波長領域

への応用は困難であった。X線領域の原子準位レーザーを実現するためには、原子を取り巻く電子のうち、最も原子核に近い電子を効率的に取り除く必要があるからである。一方で、X線自由電子レーザー(XFEL)の誕生により、1平方センチメートルあたり 10^{19} ワットを超すX線強度を達成することができるようになった。それを使って、固体内部の原子の最も深い準位の電子(もっとも原子核に近い電子)だけをイオン化させて取り除き"空席を作った状態"にすることができるようになった。この空席状態はエネルギー的に不安定な状態なので、同じ原子内の外側の電子が移動してきて空席を埋めるが、その時、エネルギー差に相当する光(K α 線)か電子(オージェ電子)を放出する。本研究では、この光を出す過程を利用して、X線領域の原子準位レーザーを発振させることに成功した。

このレーザーを実現するためには、光を出す上の準位の数と下の準位の数において上が多いようにしなくてはならない(負温度)。通常は、下準位の密度が圧倒的に多く、レーザーの特徴である“増幅”現象は起きない。特に、今回のように原子の中の深い準位の場合は、空席が埋まる速度が非常に速く、1フェムト秒(10^{-15} 秒)後には空席がなくなっていることが予想される。したがって光を増幅できるほど空席を作るためには、桁違いに強い励起強度で電子をたたき出す必要があった。詳細な研究で、励起強度は波長の4乗に反比例するので、波長を10分の1に短縮したレーザーを発振させるためには、10,000倍高い励起が必要になることがわかった。

本研究では、世界最高性能を誇るX線自由電子レーザー「SACLA」でこの特異な状態を実現し、従来達成された原子準位レーザーの波長を一気に1/10程度まで短くして、1.5オングストローム(\AA)という固体中の原子間隔(格子定数)以下の波長で発振させることに成功した。

本研究では「SACLA」からのX線を2段集光という方法で100ナノメートル程度に集光し、1平方センチメートル当たり 10^{19} ワ

ット(W)というこれまでの SPring-8 など X 線のよりも 10 桁以上強い強度の X 線を生成した。この X 線を、20 ミクロン(1 ミクロンは 0.001 ミリメートル) という薄い銅箔に照射し、銅箔が発光する X 線 ($K\alpha$ 線) の特性を計測した。入射強度が、1 平方センチメートル当たり 2×10^{19} ワット(W)を超えたところから、指数関数的に $K\alpha$ 線の強度が増大することを観測した

さらに、この増幅が起きている場所に SACLA からの 2 本目の X 線を入射し発光スペクトルを計測したところ、1.7eV という狭いスペクトル幅において選択的に X 線の強度が増大していることがわかった。これらによって、世界で初めて、硬 X 線領域の原子準位レーザーの発振が確認された。

今回の研究では、原子から理想的な X 線レーザーを発生することに成功した。このスペクトルを詳しく調べることによって、原子準位レーザーの特異な振る舞いの解明が進むと期待される。さらに、今後、様々な原子を使って、波長が正確に決まった X 線レーザーを発振させることができる。このレーザーの媒質のサイズは、たった 50 ナノメートル(nm)直径で 10 ミクロン (μm) の長さしか必要としない。そのため今後様々な材料が、X 線レーザーとして利用可能になると期待される。将来は、これまでみつかった可飽和吸収体や光導波路効果などを併用して、集積化されたデバイスから所望する X 線を取り出せる時代が来ると考えている。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 15 件)

1. H. Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, H. Kitamura, T. Katayama, T. Ishikawa and M. Yabashi, Atomic inner-shell laser at 1.5-ångström wavelength pumped by an X-ray free-electron laser, *Nature*, 446-449, 524, (2015)
2. 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*, 5, Article number: 5080 (2014) など

〔学会発表〕(計 25 件)

1. Spectral control of an inner shell excited state laser pumped by X-ray FEL pulses(invited), H. Yoneda, *European XFEL Users Meeting*, Desy Hamurg, Germany, 2016.1
2. Injection seeding of Ka x-ray laser with two color X-ray free electron laser(invited), H. Yoneda, *Workshop on Multicolor FEL pulses and coherent control on the attosecond time scale opening new science perspectives*, Trieste, Italy, 2015.12
3. Atom control with hard inner shell ionization x-ray lasers(invited), H. Yoneda, *The 16th Symposium on Advanced Photon Research*, Kizu, Kyoto, 2016.11
4. Ultra-Intense X-Ray Laser Matter Interaction with Hard X-Ray Free Electron Laser(plenary), H. Yoneda, *The Ninth International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications*, Seattle, USA, 2015.9
5. Intense x-ray interaction experiments with SACLA x-ray free electron laser(invited), H. Yoneda, *The 11th International Conference on Super-Intense Laser Atom Physics*, Bordeaux, France, 2015.9
6. X-ray photonics research with a high intensity x-ray laser field(invited), H. Yoneda, *The 7th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation*, Gwangju, Korea, 2015.8
7. Intense Resonant X-Ray Interaction with Matter(invited), H. Yoneda, *The 2015 X-Ray Science Gordon Conference*, MA., USA, 2015.7
8. Gain properties of XFEL pumped

medium(invited), H. Yoneda, 7th International Workshop on Warm Dense Matter 2015, Kurashiki, Japan, 2015.6

9. New laser configuration of X-ray lasers pumped by x-ray free electron laser(invited), H. Yoneda, *The 6th Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, Hangzhou, China, 2015.5
10. Gain Dynamics of XFEL Pumped Hard X-ray Lasers(invited), H. Yoneda, *INTERNATIONAL CONFERENCE ON HIGH ENERGY DENSITY SCIENCES 2015*, Yokohama, Japan 2015.4 など

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕 出願状況(計 0件)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

米田仁紀 (Hitoki Yoneda)

研究者番号 : 00210790

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・教授

(2)研究分担者

北村 光 (Hikaru Kitamura)

研究者番号 : 60335297

京都大学・理学系研究科・助教