

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 19 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286078

研究課題名(和文) アト秒X線ストリークの開発と相対論的レーザー生成プラズマからの高次高調波への適用

研究課題名(英文) Development of an attosecond streak camera and its application to relativistic plasma high harmonics

研究代表者

難波 慎一 (Namba, Shinichi)

広島大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00343294

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：高速で変化する現象を計測するフラッシュ光源技術は原子内の電子の動きをも撮影可能なアト秒時間領域に入る。我々が最終的に目指すのはアト秒/フェムト秒高出力X線レーザー開発である。本研究では以下の目的を設定し、実験を行った。(1)アト秒X線を時間分解計測できる超高速レーザー分光システム(アト秒ストリーク)の開発、(2)相対論的レーザー生成プラズマからコヒーレント高次高調波に本計測法を適用し、X線パルスのアト秒時間特性と高調波発生機構を解明する。本研究の結果、アト秒X線ストリークカメラの開発に成功し、相対論的プラズマからの高調波を計測する準備が整った。

研究成果の概要(英文)：To characterize the temporal evolution of ultrashort X-ray pulses emitted by laser plasmas using a pump-probe method, a magnetic bottle time-of-flight electron spectrometer is constructed. The design is determined by numerical calculations of a mirror magnetic field and of the electron trajectory in a flight tube. The performance of the spectrometer is characterized by measuring the electron spectra of xenon atoms irradiated with a laser-driven plasma X-ray pulse. In addition, two-color above-threshold ionization (ATI) experiment is conducted for measurement of the X-ray laser pulse duration, in which xenon atoms are simultaneously irradiated with an X-ray laser pump and an IR laser probe. The correlation in the intensity of the sideband spectra of the 4d inner-shell photoelectrons and in the time delay of the two laser pulses yields an X-ray pulse width of 5.7 ps, in good agreement with the value obtained using an X-ray streak camera.

研究分野：プラズマ物理

キーワード：量子ビーム X線レーザー ポンププローブ分光

1. 研究開始当初の背景

(1) 1999年、高速化学反応ダイナミクスの研究に対する業績により Zewail はノーベル化学賞「フェムト秒分光学を用いた化学反応の遷移状態の研究」を受賞した。分子の反応を特徴付ける時間スケールはフェムト秒であるため、反応過程の進行過程をストロボ撮影できる強力なツールが成功のカギを握った。そして我々は今、原子内の電子運動をも計測できるアト秒 (10^{-18} s) 光パルスを手に入れつつある。この極限的パルスは超短パルスレーザーと原子の非線形光学効果により発生する高次高調波で、波長は X 線域に達する。したがってこの光源は放射光での実験と同様に原子分子過程や固体物性を超高速で観測できるユニークな研究手段を提供する。この革新的アト秒 X 線パルスは国内では東京大物性研や理化学研究所を中心に、海外では Max Planck 研やイエナ大、ウィーン工科大で精力的に研究が進められている。Nature や Science 誌でもアト秒パルスの発生や応用研究が頻りに報告され始めている。

(2) 申請代表者の難波は短パルス X 線源開発と利用実験に関して以下の2つの研究を行ってきた。

非線形高次高調波の X 線パラメトリック増幅 (イエナ大と GSI との共同研究)

パラメトリック増幅により X 線の飽和増幅に成功。ただしアト秒高調波の出力は低く (\sim nJ) 応用研究は一部の分野に限定される。

プラズマ励起 X 線レーザーの利用研究
波長 13.9 nm、パルス幅 7 ps、出力 μ J の X 線レーザーを開発し、その利用研究として X 線非線形光学効果の観測、内殻光電離強結合プラズマの発生等の成果をあげた。ただし内殻多重ホール (中空原子) 形成や電子遷移に伴う超高速現象の解明にはフェムト秒以下の X 線パルスが必要である。しかしながら X 線の高出

力化と超短パルス化を同時に実現することは容易ではない。

(3) 本研究では次世代超短パルス高輝度 X 線として期待される相対論的レーザー生成プラズマから放射されるコヒーレント高次高調波に着目する。この X 線パルスは 10^{18} W/cm² を超える超高強度レーザーとガスとの相互作用により発生する。高調波放射機構は、理論的には相対論的プラズマ中で高強度レーザーがスパイク状電子群を強制振動するために発生すると考えられているが、実験的にこの X 線パルスの時間特性を調べた研究はない。というのもこのパルスは X 線ストリークカメラの測定レンジ (\sim 1 ps) を大幅に下回るため、従来の時間ゲート技術の延長ではパルス幅を計測できないからである。このような観点から申請者らは超高速レーザー分光法によるアト秒ストリークの開発を計画し、その原理実証研究を開始した。

2. 研究の目的

(1) 高速で変化する現象を計測するフラッシュ光源技術は今、原子内の電子の動きをも撮影可能なアト秒時間領域に入ろうとしている。申請者らはこれまでに高出力ピコ秒 X 線レーザーと低出力アト秒 X 線レーザーの開発に成功した。最終目標はこれらを両立したアト秒/フェムト秒高出力 X 線レーザーを実現することである。このうち本研究では以下の2つの具体的な目的を設定する。

アト秒 X 線を時間分解計測できる超高速レーザー分光システム (アト秒ストリーク) の開発

相対論的レーザー生成プラズマから放射されるコヒーレント高次高調波に本計測法を適用し、X 線パルスのアト秒時間特性と高調波発生機構を解明する。

3. 研究の方法

(1) 超高速ポンププローブレーザー分光法ではまず X 線により原子を光電離させ (ポンプ), 引き続いて赤外線(IR)パルスを照射して発生した電子をプローブする. プローブ光により摂動を受けた電子は IR 光子をさらに吸収・放出することになるため, 電子スペクトルの両端にサイドバンドが出現する (2 色電離: two color ionization). ポンプ光とプローブ光のタイミングとサイドバンドスペクトル強度との相関から X 線パルスの時間特性が分かる. 通常は IR 光子を 1 つ吸収・放出する確率が最も高いが, 現象自体は多光子過程であるため, 多数のサイドバンドスペクトルが観測できる. プローブ光として数サイクル IR レーザーを採用したのがいわゆるアト秒ストリーク技術である. 本研究ではサブピコ秒の X 線パルス幅を計測するシステムを構築するが, ピエゾ素子駆動光学ステージ, 数サイクル IR レーザーを用いればそのままアト秒分解計測に適用可能である.

(2) 本研究では磁気ボトル型電子分光器を開発した. この分光器はシングルショットでエネルギースペクトル計測が可能, 且つ, 分解能が高いという特徴がある. さらに発生した電子の捕獲効率はほぼ 100% であるため検出効率が極めて高い.

磁気ボトルは円錐状永久磁石(0.25 T)とソレノイドコイル(2.4 mm ϕ , 250 ターン 2 A)にて発生する 10 G 程度のミラー型である. 電子検出器は高速 MCP(42 mm ϕ)を用いた. 詳細な磁場形状は有限要素法による数値計算で決定した. また, 発生する電子が検出器に確実に到達するかを調べるために分子動力学法を用いてその軌道を調べた. レーザースポット領域を 0.25mm ϕ とし, この中から 20 eV (半値全幅 $\Delta E=0.5$ eV)の電子を空間的に等方放射した時の MCP 検出位置での 2 次元空間分布を計算した. モンテカルロ法で 2500 個の電子を飛ばして調べたところ, ほぼすべて

の電子は検出器に達することが確認できた.

(3) 製作した電子分光器の性能を調べるために, プラズマ軟 X 線レーザーを光源とした電子スペクトルの計測を行った. 発振波長は 13.9 nm ($h\nu=89.2$ eV), パルス幅 ~ 7 ps, 出力 100 nJ 以上である. これを多層膜 Mo/Si 凹面鏡($R=4$ m)で数 10 ミクロンまで集光する. ターゲットは Xe 原子ビームであり, 高速電磁バルブより相互作用領域に導入される. 計測系のエネルギー分解能を向上させるために本研究では原子ビームの中心部のみをスキマーにて抽出し, X 線レーザーに照射した. また, スキマーの設置により超高真空電子分光器領域(10^{-4} Pa 以下)とガスジェット噴射真空容器($\sim 10^{-2}$ Pa)は高い圧力差を維持できる.

(4) 計測したスペクトルは Xe $4d^{-1} j=5/2, 3/2$ 内殻電子と 8~10 eV 付近の NOO オージェ電子である. 20 eV の光電子, 8 eV のオージェ電子に対して半値全幅でそれぞれ 0.83 eV, 0.45 eV と予想通りの性能が得られた.

(5) この電子分光器を用いたポンププローブ実験を行い, ポンプ光 (X 線) のパルス幅を計測した.

4. 研究成果

(1) フェムト秒以下の X 線パルスの時間特性を精密に計測することが我々の最終目標であるが, その前段階としてプラズマ軟 X 線レーザーのパルス幅計測にポンププローブ分光法を適用した. IR プローブ光には X 線レーザー発振用のガラスレーザー (波長 1053 nm, パルス幅 ~ 2 ps) を分岐させたものを用いるため X 線ポンプ光と IR プローブ光の時間的なジッターは無視できる. なお, IR プローブレーザー強度は 10^{12} W/cm² 以下とし, 多光子イオン化が起きない照射条件とした. ポンプ X 線のパルス幅が数 ps であることを考えるとポンプ光と IR パルスの時間同期をピコ秒精度行う必要がある. ガラスレーザーを

分岐後 10 m 以上実験室内を振り回した後で両パルスを再度真空容器中心で時間的・空間的に交差させることは容易ではない。そこで、時間に関しては IR 光にも感度がある X 線ストリークカメラ (CsI photocathode による多光子電離を利用) を用いて極めて高い精度で時間同期させた。両パルスの時間遅延には 10 μm ステップの光学ステージ上にリトロリフレクターを固定して行った。

(2) ポンププローブ実験には Xe 原子の光電離により発生する電子を磁気ボトル型分光器にて計測し、電子の IR 光の吸収・放射に伴うサイドバンドスペクトル強度からパルス幅を決定した。ただし、強烈な IR 光が迷光として MCP 検出器に到達し、電子スペクトルに大きな影響を与えた。したがって今回は比較的良好なサイドバンドが得られた光電子が 2 個の IR 光子を吸収したスペクトル ($h\nu_x + 2 h\nu_{\text{IR}}$) に着目した。各時刻での $2 h\nu_{\text{IR}}$ スペクトル強度をガウシアンでフィッティングし、X 線パルスの時間特性を評価した。この時のサイドバンドスペクトルの半値全幅 (FWHM) は 6.2 ps であった。ここで装置関数として IR プローブ光のパルス幅 2 ps (ガウス関数) を仮定すると、X 線ポンプ光のパルス幅は約 5.7 ps と見積もることができた。この値は X 線ストリークカメラから評価された 8 ps と良く一致することから、本研究で構築したポンププローブレザー光学系により X 線の時間特性が精密に評価できることが実証できた。

(3) 相対論的プラズマから放射される高次高調波のパルス幅を上記(1)で開発した技術を用いて行う予定であったが、量子技術研究開発機構の J-KAREN レーザー開発が遅れたため、期間内に実験を実施することができなかった。この実験は 2017 年度末に行う予定である。

5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計 11 件)

1. “Measurement of ion Mach number of arcjet plasmas by a directional Langmuir probe under high-gas pressure”, W. Sasano, T. Shikama, K. Kozue, L. Matsuoka, N. Tamura and S. Namba, IEEE Transactions on Plasma Science 3, pp. 285-288 (2017). (査読有)
2. “An experimental study on the ignition ability of a laser-induced gaseous breakdown”, T. Endo, Y. Takenaka, Y. Sako, T. Johzaki, S. Namba, Combustion and Flame **178**, 1 (2017). (査読有)
3. “Numerical Study of Spectral Line Shapes in High-Density He Plasmas”, H. Kawazome and S. Namba, (査読有) Plasma Fusion. Res. **11**, 2401124 (2016).
4. “Reinjection of transmitted laser light into laser-produced plasma for efficient laser ignition”, T. Endo, Y. Takenaka, Y. Sako, T. Honda, T. Johzaki and S. Namba, Applied Optics **55**, pp. 1132 (2016). (査読有)
5. “Avalanche of stimulated forward scattering in high harmonic generation”, C. Serrat, D.Roca, J. M. Budesca, J. Seres, E. Seres, B. Aurand, A. Hoffmann, S. Namba, T. Kuehl, and C. Spielmann, Opt. Exp 24, 8028 (2016). (査読有)
6. “Development of a cascade arc discharge source for an atmosphere vacuum interface device”, S. Namba, T. Endo 他, Rev. Sci. Instrum. **87**, 083503 (2016). (査読有)
7. “Core-level attosecond transient absorption spectroscopy of laser-dressed solid films of Si and Zr”, E. Seres, J. Seres, C. Serrat and S. Namba, Phys. Rev. B **94**, 165125 (2016). (査読有)
8. ” Construction of a magnetic bottle spectrometer and its application to pulse duration measurement of X-ray laser using a pump-probe method”, S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Nishikino

- 他, AIP Advances., **5**, 117101 (2015). (査読有)
9. "Spatially Resolved Absorption Spectroscopy on a Microhollow Cathode Helium Plasma Using a Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser", K. Torii, S. Yamawaki, K. Takayama, S. Namba 他, Plasma Fusion Res., **10**, 3406063 (2015). (査読有)
 10. "Pump-probe experiment for temporal profile measurement of plasma x-ray laser", S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Nishikino 他, Springer Proc. in Phys. 169, pp.95-102 (2015). (査読有)
 11. "Attosecond dynamics of parametric amplification at 11 nm", J. Seres, E. Seres, B. Landgraf, B. Ecker, B. Aurand, A. Hoffmann, G. Winkler, S. Namba 他, Springer Proc. in Phys. 169, pp.173-178 (2015). (査読有)

[学会発表](計9件)

1. ガス雰囲気中でのレーザープラズマ X 線の高輝度化、難波 慎一 , 小田切 誠 , 角中 昇 , 岸本 牧 , レーザー学会年会 2017 年 1 月 7-9 日徳島
2. ガス雰囲気中でのレーザー励起プラズマ軟 X 線の高輝度化 , 小田切誠 , 角中昇 , 岸本牧 , 松岡雷士 , 難波慎一 , プラズマ核融合学会年会 2016 年 11 月 29 日-12 月 2 日仙台
3. Coherent plasma x-ray laser by injection of a parametrically amplified high-order harmonic light, S. Namba, J. Seres, E. Seres, C. Serra³, T. Kuehl, C. Spielmann, M. Kishimoto, N. Hasegawa, M. Nishikino 他, Int. Conf. on X-ray laser, 22-25 May, 2017(Nara).
4. "Effects of Equation of State on fluid simulations for laser-produced plasmas" C. Ikeda, A. Sunahara and S. Namba, Int. Conf. on X-ray laser, 22-25 May, 2017 (Nara).
5. "Numerical Calculation of Gain Coefficients for a Recombination X-Ray Laser in Carbon Cluster Plasmas", H. Kawazome and S. Namba, Int. Conf. on X-ray laser, 22-25 May 2017 (Nara).
6. 【招待講演】軟 X 線高次高調波の X 線パラメトリック増幅 ,難波慎一 ,J. Seres , E. Seres , 長谷川登 , 錦野将元 , レーザー学会学術講演会第 36 回年次大会 , 名城大学 Jan. 9-11 (2016)
7. 【招待講演】Temporal characterization of laser-plasma xuv pulses by a pump probe laser spectroscopy , S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Ishino, M. Nishikino, 16th Symposium on Advanced Photon Research, Kizugawa Oct. 15-16 2015.
8. "Narrow-band high harmonic emission at 100eV from an optimized generation geometry driven by an ultrafast 40mJ table-top laser", M. Zürich, A. Guggenmos, C. Heyl, B. Landgraf, A. Hoffmann, C. Spaeth, R. Hollinger, S. Namba 他,, Int. Conf. on "Correlation Effects in Radiation Fields, 13-18 Sep. (2015). Rostock, Germany.
9. 【招待講演】Temporal Characterization of Laser-Plasma XUV Pulses, S. Namba, N. Hasegawa, M. Kishimoto, M. Nishikino 他, European Physical Society on Plasma Diagnostics, Frascati, Italy, 14-18 Apr. 2015

[その他]

<http://www.hiroshima-u.ac.jp/plasma>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

難波 慎一 (NAMBA SHINICHI)
 広島大学工学研究院・教授
 研究者番号 : 00343294

(2)研究分担者

神門 正樹 (KANDO MASAKI)

量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究
所光量子科学研究部・グループリーダー
研究者番号：50343942

岸本 牧 (KISHIMOTO MAKI)
量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究
所量子生命科学研究部・上席研究員
研究者番号：40360432

長谷川 登 (HASEGAWA NOBORU)
量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究
所光量子科学研究部・主幹研究員
研究者番号：50360409

錦野 将元 (NISHIKINO MASAHARU)
量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究
所光量子科学研究部・グループリーダー
研究者番号：70370450