

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H02118

研究課題名(和文)ハードX線コヒーレント光学の研究

研究課題名(英文)Research on coherent hard x-ray optics

研究代表者

米田 仁紀(Yoneda, Hitoki)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・教授

研究者番号：00210790

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,400,000円

研究成果の概要(和文)：ハードX線コヒーレント光学という新しいフォトンクス研究を波長1オングストロームの領域まで広げることを基礎研究として行った。特に、X線自由電子レーザー励起のハードX線原子準位レーザーにおいて、その準位間遷移と共鳴するコヒーレント光の相互作用や、発生時における制御技術などで研究開発を行っている。特に特筆すべき点としては、ハードX線の領域でラビ振動と考えられる特徴を持った周波数領域でのスペクトル縞の観測、Bragg結晶を用いた定在波型レーザーの実証などがあげられる。これらは、新しいハードX線領域でのコヒーレントフォトンクス開拓に大きな一歩を踏み出したと考えている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

人体をも透過可能でBeなどの金属では数mmの厚みもすり抜け、大気伝播も可能なハードX線の領域で、コヒーレント性の優れたレーザー光の発生やそれを用いた新しい計測、制御を目的とした研究を行っている。この領域では、波長が1オングストロームと可視域のレーザーに比べ数千倍短く、その分、通常の空間分解能としては原子一個分以上のものが容易に得られ、また、物質透過性も強いことから、内部の化学結合状態の変化も計測できるようになると期待されている。本研究では、以下に制御されたレーザー光を発生させるかに主眼点が置かれたが、可視～赤外域でのレーザー技術と同様なものが、原理実証的ではあるが達成できた。

研究成果の概要(英文)：The fundamental research was to extend a new photonics research called hard X-ray coherent optics to the wavelength range of one angstrom. Particularly, in hard X-ray atomic level lasers excited by X-ray free electron lasers, we are conducting research and development on the interaction of coherent light that resonates with the atomic transition and the control method of laser oscillation. Among several topics we have achieved, there are remarkable observations to mention below. First, the observation of spectral fringes in the frequency region are observed clearly. It has characteristics that are considered to be Rabi oscillations in the hard X-ray region. The Second, the demonstration of a standing wave laser using a Bragg crystal. I think that they have taken the first step in the development of coherent photonics in the new hard X-ray region.

研究分野：レーザー科学

キーワード：X線レーザー 内殻電子励起 ハードX線フォトンクス 高強度X線場

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2009年に米国スタンフォード、2011年に日本の播磨 SPring-8 に於いて、相次いで自由電子レーザーが X 線領域で発振 (XFEL) できるようになった。現在もユーロ FEL、スイス FEL をはじめ、東アジアでは韓国、中国でも XFEL 建設が始まっており、新しい光による新しい科学が一気に開拓されようとしている。わが国の XFEL 施設 SACLA は、10keV までの硬 X 線領域において、安定的に数フェムト秒、サブ mJ という性能をしめす。また、X 線の特徴である短波長性を使って、50nm まで集光可能な光学システムと、FEL の特性を活かしたアンジュレータと呼ばれる磁場部の条件を前後でわけ、1keV 以上離れた X 線で 2 色の発振を生成できる。このような超高強度で多色化した X 線利用は、現在世界中で SACLA でしか実現できておらず、独壇場である。

2014年、この SACLA で、銅の 8keV の K 線のレーザー化が観測された。これは原子準位を用いた最短波長(1.5 Å)のレーザーである。1960年にレーザーがルビーで発振してから 70年たって、ようやく硬 X 線までたどりついた。この成果にも、XFEL の高集光強度が欠かせない。

この K 線の発振で、2色化された XFEL の 1色を励起に、もう 1色をシードに使った実験が成功した。その結果、発振線幅が自然放出寿命で決まる幅よりも短くなり、K 線間の強度比とオージェ過程の分岐比すら、強い誘導放出により 1過程に集中化されるという現象が起きた。人類がこれまで手を付けることができなかった中質量原子の最内殻電子の遷移に対し、共鳴するコヒーレントな光波を生み出すことができたからである。我々のこの結果は 2015年 *Nature* に発表された。

2. 研究の目的

X 線自由電子レーザーが実現され、ハード(硬)X 線の領域でも、K 線レーザーや様々な非線形光学効果が実現できるようになってきた。本提案の主旨は、これら研究を進展させ、X 線を位相まで含めた光波として取り扱い、これまで夢だと思われて来た硬 X 線自身の制御や原子核に最も近い電子準位を使った原子制御などを実現し、それらの過程を利用した実応用も提示する、「硬 X 線コヒーレントフォトンクス」という新分野を創成することである。フォトンクスは、現在可視～赤外レーザーで主に行われているが、固体の原子間距離よりも短い波長でできるかは、未明な部分もある。しかし、最近、K 線レーザーと共鳴した原子準位との相互作用で、自然幅を超える狭線幅が実現し、オージェ過程と蛍光放射の分岐比すら制御できるようになった。今こそ、より確実に挑戦できる研究として計画し推進できるようになったといえよう。

3. 研究の方法

本提案である硬 X 線コヒーレントフォトンクス分野を立ち上げるために、I.共鳴高強度 X 線と物質との詳細相互作用物理解明、II. コヒーレントフォトンクスを利用した硬 X 線制御、III.共鳴高強度 X 線を利用した原子・物質のコヒーレント制御の 3つの観点から研究を行う。I では、XFEL の高強度実験で得られる特徴的なスペクトルやターゲットの原子、ドープ状態、ナノ構造など影響を説明できるように物理モデルをくみ上げて行く。II では、アト秒パルスから自然寿命を超えた狭窄化レーザーにつながるスペクトル制御、2色発振とビート検出・利用などを行い、III では、2準位系を共鳴光で結合状態にする、複数準位を多色レーザーで結合することなどを行い、それぞれのカテゴリでフォトンクスとしての応

用形態を示していく。

4. 研究成果

ここでは、特筆すべきいくつかの成果について報告する。

(1) K 線利得スペクトル内の周波数フリンジの発生

ゲイン媒質に対して強い励起でなおかつ強度の高いシード光を打ち込むなどした場合、その媒質中の原子過程と生成した共鳴レーザー光が強くカップルすることが起きると予想されていた。ここでは、その現象の解明と、制御を目指して、様々なターゲットでのシード型 K 線レーザー発振の実験を行った。その結果、Cu だけでなく、Mn などでも同様のスペクトルが観測され、まあ、そのスペクトルフリンジの間隔は、非常に等周波数間隔になっており、時間的に、利得が振動していることが明らかになった。この詳細物理については Maxwell-Bloch モデルを含む計算機シミュレーションコードを様々な仮定で開発し、定性的には、初期にシード光に時間的な変調があった場合は、より強くこのスペクトルが現れることが分かった。この研究では、このフリンジスペクトルが時間的にダブルパルスになっていると仮定し、発生した K 線レーザーに Co の薄膜を透過させた場合のスペクトル変化を観測する fs 台での X 線ポンププローブ実験を試行させた。この結果、フリンジスペクトル内での透過強度の変化及びシフトが観測され、今後の新しい計測手法につながるデータが獲得できた。

(2) 自由-束縛遷移レーザーの実現

一般に 1s 電子を励起すれば、原子自体は不安定になり、その後 1s-2p 等の共鳴線が発生させる。この過程は、元来反転分布になりやすく、強い励起を行えば、十分な利得を得られることは、それまでの我々の研究で自明であった。さらに、ここに、十分強度のあるシードを注入することにより、ある遷移過程のみを選択したレーザー発振も可能であることも示されていた。ただし、ここで成功したのは、1s-2p 遷移の中の K₁ 線と K₂ 線という 2 つの遷移についてであり、それらの振動子強度も 2 倍程度の差によるものであった。一方、原子準位のレーザーは、その遷移エネルギーが決まっていて、発振スペクトルも狭いことが通常である。しかし、この状況は、リユドベルグ状態の主量子数が増え、固体内に置かれた原子のように連続帯スペクトルになれば、変わってくる。もし、そこでレーザー発振が可能になれば、新しいハード X 線レーザーの可能性を示せることになる。

そこで、ここでは、Cu の 1s-4p 以上のエネルギー領域のシード光を入射させることで、誘導放出の観測を行った。常温の Cu 原子では、4s 電子までしか存在することがなく、固体では 3d と 4s が合わさった形で連続帯の構造をとるエネルギー構造となっている。吸収スペクトルをみても、いわゆる K 吸収端以上は、電子の準位密度が下がって来る。シード光の波長を、ちょうどこの吸収端近傍にシード光の波長を合わせて利得実験を行った。その結果、吸収端近傍で数倍の利得が観測され、そのスペクトル幅も 8eV と共鳴線に比べて数倍広いことが明らかになった。また、励起強度を変えるにつれて利得スペクトルも高エネルギー側にシフトすることが観測された。これは自由状態から束縛遷移への 1 つの特徴を表しているものであり、利得は数倍であったが、今後励起強度をあげ、十分なシードを確保することで、広帯域かつ短パルスを目指したレーザーの開発が可能であることを示した。

(3) 定在波型ハードX線レーザーの観測

X線特にハードX線の領域で、共振器型のレーザーを組むことは、その領域で直反射鏡がないことから、ほぼあり得ないことと考えられていた。これは、原子準位を使ったレーザーの場合でも同様で、寿命が1s-2pのCu原子の場合に1f程度であることを考えても、この時間内にハードX線を往復させることは、困難なことと考えられていた。しかし、固体をターゲットとし、 $10^{20}\text{W}/\text{cm}^2$ 程度の高強度のX線励起を行えば、利得が理論計算上で 40000cm^{-1} を超えることが可能で、fsの超短寿命の利得媒質でも定在波条件さえ実現すれば、共振器型レーザーと同等の働きを持たせられることが考えられた。そこで、CuのK線を対象に定在波型条件を達成できるターゲットを探索した。その結果、5水和の硫酸銅結晶が、Bragg条件で180度散乱の方向でK線に共鳴となることが分かり、この $>5\text{cm}$ の大型結晶を育成、そこからの切り出しで、薄膜ターゲットを作成する技術を開発した。

その結果、Bragg条件を達成する角度に調整した場合とそこから1度ずらした状態で、発振するK線のスペクトルが大きく変化することが分かった。さらに、シングルショットでのスペクトルをショットごとに解析した結果、共振器型のレーザーで見られる縦モードに相当する構造が出ていることが分かった。これらの発見は、ハードX線レーザーにおいて、光学波長領域で行われている共振器を用いたレーザー制御が可能なことを初めて示した例となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 米田仁紀	4. 巻 460
2. 論文標題 X線自由電子レーザーの産業応用	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 月刊OPTRONICS	6. 最初と最後の頁 154-157
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
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 米田仁紀	4. 巻 48
2. 論文標題 高強度ハードX線場では何が期待できるか？	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 X線分析の進歩	6. 最初と最後の頁 87-92
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 米田仁紀	4. 巻 59
2. 論文標題 X線自由電子レーザー-SACLAを用いた量子光学研究	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本結晶学会誌	6. 最初と最後の頁 34-38
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
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 米田仁紀	4. 巻 92
2. 論文標題 7. 原子準位X線レーザーの現状と展望	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 プラズマ・核融合学会誌	6. 最初と最後の頁 729-734
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -

〔学会発表〕 計22件（うち招待講演 21件 / うち国際学会 16件）

1. 発表者名 Yurina Michine and Hitoki Yoneda
2. 発表標題 1s-4p hard x-ray lasers of Cu atoms with strong injection seeding
3. 学会等名 2018 RPHDM Workshop
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Ultra-intense XFEL and X-ray quantum optics
3. 学会等名 US-Japan workshop on high energy density sciences (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Dynamics of gain properties of Bragg hard x-ray laser pumped by intense XFEL
3. 学会等名 10th STAR meeting (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 共振器型ハード X 線レーザーの実現
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Progress of inner-shell ionized hard x-ray laser pumped by intense XFEL pulses
3. 学会等名 3rd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Cavity controlled hard x-ray lasers
3. 学会等名 STAR 9 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Lasing and Nonlinear Phenomena in X-ray Region with the X-ray laser SACLA
3. 学会等名 Asia Pacific Laser Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 New type of hard x-raylasers pumped by X-FEL
3. 学会等名 European Conference on X-Ray Spectrometry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Progress of research on inner-shell hard x-ray laser pumped with intense XFEL pulses
3. 学会等名 5th UFDIM (Ultrafast Dynamic Imaging of Matter) conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Bragg diffraction type hard x-ray laser pumped with intense XFEL pulses
3. 学会等名 Workshop on radiative properties and hot dense matter (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Laser driven neutron source
3. 学会等名 The 8-th Asian Summer School and Symposium on Laser-Plasma Acceleration and Radiation (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yoneda
2. 発表標題 Ultra-intense XFEL and X-ray quantum optics
3. 学会等名 US-Japan workshop on high energy density sciences (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 共振器型ハードX線レーザーの実現
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 High energy density sciences activities with high power lasers in Asia, plenary
3. 学会等名 10th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications(IFSA2017) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard X-ray coherent photonics
3. 学会等名 Shanghai-Tokyo Advanced Reserach Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard X-ray coherent photonics with high energy density matter created by intense XFEL laser
3. 学会等名 International Workshop on Warm Dense Matter (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 固体密度内殻電子励起イオンプラズマ状態を用いた新しいハードX線フォトンクス研究
3. 学会等名 プラズマコンファレンス2017 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard X-ray coherent photonics with high energy density matter created by intense XFEL laser
3. 学会等名 International Workshop on Warm Dense Matter (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard x-ray photonics with intense X-ray laser pulses
3. 学会等名 IWP&RIXS 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard x-ray photonics with XFEL
3. 学会等名 MECMATPLA Winter School in Montgenevre (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 X線自由電子レーザー励起X線レーザーの開発
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第37回年次大会(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hitoki Yoneda
2. 発表標題 Hard x-ray laser photonics for hard x-ray lasers
3. 学会等名 2016 RPHDM Workshop(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分 担 者	北村 光 (Kitamura Hikaru) (60335297)	京都大学・理学研究科・助教 (14301)	