

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04452

研究課題名（和文）定在波型ハードX線レーザーの高精度制御とその応用

研究課題名（英文）Control of standing wave type hard x ray laser and their applications

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） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：ハードX線領域においてはじめて分布帰還型レーザーを開発し、その原理実証実験、内部での動特性などがわかるように計算機コードの開発、温度安定性の評価などを行った。ハードX線の領域ではX線自由電子レーザーができて以来、レーザー光が得られているが、より高精度の光を生み、新しいコヒーレント光学へ展開するためには、高いコヒーレンスのレーザー光の開発が必要であった。しかし、一般に光学レーザーの領域で行われているような共振器にフィードバックを用いるような方法は、ハードX線の領域では、良好なミラーが存在しないために、実現できなかった。そのため、ここでは、結晶のBragg回折を利用する手法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レーザーの分野では、常に短波長化、短パルス化、高出力化、高コヒーレンス化が行われてきており、それが達成されると、新しい光科学研究が生まれている。ハードX線の領域でも、このような方向性が期待されているが、まだ基本的な光学素子が開発できていない、非常に短波長になるので、高精度の光学素子や光学系が必要になる、などの困難さがあり、未だ実現できてはいない。その中で、本研究で開発された手法は、光学レーザー領域でのレーザー励起レーザーが多くのことを成し遂げていることの類似としても非常に期待できるものになっている。

研究成果の概要（英文）：We developed a distributed feedback laser for the first time in the hard X-ray region, and have carried out proof-of-principle experiments, development of computer code to understand internal dynamic characteristics, and evaluation of temperature stability. In the field of hard X-rays, laser light has been obtained since the development of X-ray free electron lasers, but in order to produce light with higher precision and to develop new coherent optics, it is necessary to develop laser light with high coherence. was necessary. However, the method of using feedback to the resonator, which is generally used in the field of optical lasers, could not be realized in the field of hard X-rays due to the lack of good mirrors. Therefore, here, we developed a technique that utilizes the Bragg diffraction of crystals.

研究分野：レーザー科学

キーワード：X線レーザー 分布帰還型レーザー 高出力レーザー 周波数安定化レーザー

1. 研究開始当初の背景

X線自由電子レーザーが成功して以来、レーザーの使用波長はÅまで短波長化され、光子エネルギーも遷移金属の最内殻電子を直接イオン化できるレベルまで来ている。これまでのレーザーの歴史が物語っているように、いったんレーザーがその波長域でできると、高コヒーレント化、高出力化、高安定化、短パルス化が進み、非線形光学、量子光学研究が発展する。ハードX線の領域もこの様な方向性が目指されているが、光学領域のレーザーと違うところは、共振器構成を利用したコヒーレンスや光波の制御が難しいことであろう。これは、ハードX線領域では良好な直反射ミラーが存在せず、また波長が原子サイズまで短縮化されているので、通常の方法では波面を保つことが難しいことから来ている。現在、自由電子レーザーを利用して光子リサイクリングのような形の共振器が提案されているが、数10mの光学系でÅの波面を制御することは非常に難しいことは明らかで、共鳴共振器内で起きているような定在波的なものが原子などと強く相互作用させるような系を実現する方法を考える必要があった。

2. 研究の目的

このような中で、共振器タイプのハードX線レーザーを実現させるために、我々は結晶のBragg回折を利用し、その内部に共鳴な定在波を発生させることを発案した。原理は、原子の内殻遷移の共鳴波長に180度Bragg回折波長が一致する結晶を準備し、外部から内殻励起に対応するX線を入射させ、利得を発生する。この時、結晶の原子位置が固体状態から変形する量が少なければBragg条件が維持され、光学領域での分布帰還型レーザーのような動作が期待できる。ただし、ハードX線に対応するような共鳴準位の遷移では、上準位寿命は1fsかそれ以下になる。また、利得発生には $10^{19}\text{W}/\text{cm}^2$ 以上の強励起が必要になり、現状では数~数10fsの励起パルス幅になる。一方で、十分な利得長積を得るためには、数 $10\mu\text{m}$ の原子層幅が必要となる。これらの条件から、利得は必然的に過渡的かつ進行波的なものになる。また、通常の分布帰還型レーザーでは、屈折率差を大きくした組み合わせにより 10^{-3} 程度の反射波を生み出せるが、ハードX線領域ではもともと屈折率という意味では1に近いためにそれほど大きな反射層を期待できない。

これらに加え、励起用のレーザーによるイオン化が進行する中で、固体のBragg条件を維持できるのか？、結晶の質は位相をハードX線の精度できるほど保てるのか？、Bragg軸と入射励起レーザーのアライメントはどのように行うのか？、道徳性を予測するにしても内殻電子が励起された状態の原子の散乱能をどう評価すればいいのか？そもそも、原子の強い共鳴線にBragg共鳴が合う結晶は存在するのか？などという解決すべき疑問があった。本研究では、これらのことを1つ1つ解決し原理実証を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

#Bragg回折分布帰還型レーザー結晶

まず、本研究では原子をCuと決めた。これは、それまでに多くのCuを含む物質でのX線レーザーのデータがあったこと、その中で強励起された際に、多くの物質で見られる最外殻の3d電子の影響による利得スペクトルの変化が著しく小さい結晶があ

ること、から決定した。次に、利得スペクトル幅内に Bragg 共鳴条件がある方位を様々な結晶で探索することにした。具体的には、Cu の $K\alpha$ 線 (8.04keV) を対象にして、実験でそれまで得られていた利得線幅 3eV の中に入る Bragg 角度を探索した。この探索で分かったことは、対称性の高い結晶では、多くの結晶軸が縮退しているため、この狭い波長範囲内に入ることが難しいが、三斜晶系など対称性が少ないものは、多くの軸が少しずつ異なる Bragg 条件を持っているために、合わせやすいことが分かった。その中で前述の励起でも利得スペクトルの変形が少ない 5 水和硫酸銅を選択した。この結晶は、しかし、論文により格子定数が異なったり、必要とされる精度がデータとしてなかったりした。そのため、予想された近傍の 6 つの結晶軸について、ターゲットを準備し、実験で確かめることにした。

X 線自由電子レーザーでの実験は、1 ショット 1 ショットでターゲットの照射部が損傷するために、1cm 角程度のターゲット試料が必要になる。また、その厚みは、励起 X 線の吸収長に合わせる必要があるために、 $20\sim 100\mu\text{m}$ 程度にする必要があった。この薄くかつ広い面積の試料を単結晶から切り出すためには、数 cm 以上の単結晶が必要になった。また、単結晶内部に欠陥があると、当然 Bragg 条件に影響が出てくる。そのため、高純度材料から育成された大型結晶が必要であった。これを得るために、99.99%の 5 水和硫酸銅材料から温度制御された状態で 2 か月ほどかけて大型結晶を育成させるシステムを構築した。その結果、定常的に 5cm を超える結晶の育成が可能になった。

次に、この結晶から所望する結晶方向に切り出し、薄膜化する必要がある。結晶から切り出すにはダイヤモンドワイヤソーなどで切断する。この際、水溶性の結晶であるので、冷却材として水は使えずシリコンオイルを使用するシステムを構築した。また、比較的柔らかい結晶のため、切断速度の最適化を行い、大面積をとれるようにした。その後、この 1mm 程度厚に切り出された結晶を研磨により $100\mu\text{m}$ 程度まで薄膜化する必要がある。ここでは、まず、両面研磨機を既存の研磨機を改造することで用意し、そこで乾式に平行研磨を行った。そこでの研磨厚みは $500\mu\text{m}$ までした。これは、それ以上薄くすると自己支持が困難になるためである。この $500\mu\text{m}$ 程度の厚みまで平行研磨されたものを、窒化ボロンの 0.3mm の板に接着剤で貼り付けた。窒化ボロンは低原子番号の物質のために、励起レーザー、発振レーザーともに透過率が高く、なおかつセラミック材のために固く平面性を保ちやすい特性を持っている。この状態で、さらに研磨を進める。平行度を保ちつつ $100\mu\text{m}$ まで研磨で薄膜化するために、手研磨を行い、3 か所でマイクロメータで研磨深さを制御させながら乾式で行った。

5 水和硫酸銅は、40 度程度になると水和している水分子が脱水することが知られている。また X 線照射実験では真空チャンバー内で行われるために、より脱水には対策が必要になる。実際にそのまま結晶面が真空にさらされた状態で X 線レーザー励起を行うと、青い結晶状態が白くなるような脱水症状が当初みられた。そこで、この現象を回避するために、結晶表面に CH 層のコーティングをディップコーティングで行う装置を開発、それにより、表面の平面度をある程度保ったままターゲットを真空内に持ち込むことができるようになった。

光軸と結晶軸のアライメント

結晶が準備できたものの、その方位軸に励起レーザーの光軸を合わせる必要がある。当初切り出した結晶の角度だけでX線レーザー実験を行っていたが、再現性に乏しく、きれいなデータにはならなかった。そこで、X線レーザーをまず2色で発振させ、片方を励起光である9keVに、もう片方をK α 線の発振光となる8keV付近に調整し、フィルターと電子ビームの磁場によるキックを利用して8keVと9keVが別々に、しかし同軸上に出るように調整した。まず、8keVのみにフィルターで調整し、その弱いプローブ光でターゲットの透過パターンを測定した。もし、180° Bragg条件になった場合、結晶内部で多くの散乱が起きるために、透過パターンが大きく変化する。このことを利用して、2方向の角度(ϕ 、 θ)の調整を行い、その後、今度はフィルターを外し、FEL内で8keVのundulator直前で電子ビームをキックすることにより、純粋な9keVビームを励起光にした実験を行った。

動特性評価のための計算機コード開発

前述したように、このレーザーは進行波励起となり、利得領域は1 μ m程度の幅を保ちながらほぼ光速で下流側に流れていく。その意味で通常の前進波と後進波が等強度で存在し、定在波を作る分布帰還型レーザーの動作原理とは異なる。一方、発振させた光は、フェムト秒台で発振し、計測としては時間積分された分光スペクトル情報に限られてしまう。そこで、レーザー内部で起きた現象、特に分布帰還が主となってレーザー発振が起きた場合、どのようなスペクトル変化が起きるのかを調べるために、計算機コードを開発した。通常、このような内部で波が干渉しながら利得を受けながらレーザーが発展していくような場合、電場の方程式を直接原子系にカップルさせて解くことが用いられる。しかし、ハードX線の場合、電磁波としての周波数は10¹⁸Hzを超え、光子間隔は0.1nm程度でその間を電磁波が伝播し、それが100 μ m程度続き、時間的には100fs程度の時間が必要になる。このような場合、すでにメッシュが必要とするメモリ量だけでも壮大な量となり、計算時間が非常にかかることが分かる。一方で、原子系の応答時間は1fs程度であり、利得の時間変化や空間変化などは比較的緩やかな計算でも予測が可能となっていた。この問題を解決するために、本研究ではレーザー光を光線として取り扱い、原子系と相互作用させて利得の時間・空間変化を計算、その後、ポストプロセスとしてその利得分布を使って電磁波と取り扱うX線の波の方程式を解かせ、得られた電場の波形をフーリエ変換することでスペクトルを計算できるコードを開発した。

4. 研究成果

以上の要素技術、詳細物理モデルの開発から、本研究課題である定在波型分布帰還ハードX線レーザーを実現し、自然幅と比較し1/3程度の狭窄化されたスペクトル、40ppm精度でのスペクトル中心の決定、温度可変レーザーの実現などを得ることに成功した。

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Yu Zhanga,... Hitoki Yoneda, Nina Rohringer, and Uwe Bergmann,	4. 巻 119
2. 論文標題 Generation of intense phase-stable femtosecond hard X-ray pulse pairs	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 PNAS	6. 最初と最後の頁 e2119616119-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1073/pnas.211961611	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

1. 著者名 Margaret D. Doyle, ..., Nina Rohringer, Hitoki Yoneda, Thomas Kroll, Claudio Pellegrini, AND Uwe Bergmann	4. 巻 10
2. 論文標題 Seeded stimulated X-ray emission at 5.9keV	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 OPTICA	6. 最初と最後の頁 513-519
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OPTICA.485989	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3件（うち招待講演 2件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 定在波型ハードX線レーザーの研究
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第41回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 高コヒーレントX線レーザーへの展開
3. 学会等名 第3回 光材料・応用技術研究会「レーザー発振60年に、過去30年未来30年の材料を考える」（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 米田仁紀
2. 発表標題 進行波励起定在波型ハードX線レーザーの動作原理の研究
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2020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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------