

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600147

研究課題名(和文) 高強度超短パルスX線の単一ショットキャラクタリゼーション技術に関する研究開発

研究課題名(英文) Development of single shot pulse characterization measurement of ultrafast X-ray pulse

研究代表者

佐藤 堯洋 (SATO, Takahiro)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：30599113

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：高強度超短パルスX線の単一ショット計測を目的として、近赤外～紫外領域のフェムト秒レーザーを組み合わせた、相互相関計測型周波数分解光ゲート法によるX線パルス特性計測システムに関する研究開発を行った。コヒーレントフォノン誘起のための近赤外～紫外光域の極短パルス発生、単一ショット高空間分解能2次元X線検出器、超高速X線タイミングモニターなどの要素技術に関する開発を行い、それら要素技術と単一ショットX線分光器などの光学系を組み合わせた超短パルスX線計測システムの検討、開発を行った。

研究成果の概要(英文)：We developed single shot ultrafast X-ray pulse characterization diagnostics based on cross correlation frequency resolved optical gating measurement by combining femtosecond laser in infrared～ultraviolet region. We developed the each component of the diagnostics, such as ultrafast femtosecond laser in infrared～ultraviolet region, single shot 2D X-ray detector, and ultrafast arrival timing monitor of X-ray. Finally we designed the pulse characterization system by combining the each component and existing X-ray optics.

研究分野：超高速X線計測

キーワード：X線 フェムト秒レーザー 自由電子レーザー パルス特性評価

1. 研究開始当初の背景

近年、日米においてX線自由電子レーザー(XFEL)が発振に成功し、既存の光源には発生することができなかった、10 fsに達する超短パルス、10 GW に達する高強度のX線パルスを利用することができるようになった。その結果、X線・フェムト秒領域における物性計測を始めとして、これまで観測することができなかった超高速現象に関する計測例が報告され始めた。さらには、X線領域における可飽和吸収、2光子吸収などX線非線形光学など新しい物理現象が開拓され始めている。日米2カ国以外においても、欧州、スイス、韓国を始めとして、世界各国において、XFEL の建設・計画が進められており、高強度超短パルスX線光源は今後も放射光科学、レーザー科学において重要な位置を占めていくものと思われる。

XFEL は主として統計的に発生するショットノイズを種光としたSASE(自己増幅型自発放射)方式、アンジュレータから発したSASE光について、モジュレーションをかけたスペクトルを切り出し、再度電子バンチと相互作用させることによって増幅を行うというセルフシード方式、外部から種光を導入することによって、シングルモードのFEL 光を出力する外部シード方式に分けられる。XFELにはこれらの発生方式が存在する一方で、SASE 方式FEL は勿論のこと、シングルモードに近いシード化されたFEL光の場合においても、硬X線におけるパルス特性の時間構造について、直接的に計測、評価した例は無い。特にSASE光は、時間・周波数領域において、ショットごとに変化し、パルスの時間構造を単一ショットで計測することは極めて重要である。

2. 研究の目的

硬X線領域において、単一ショットで、超短パルスX線光源のパルス幅、位相、周波数スペクトルを評価することは困難であった。これらのパルス特性を明らかにする本研究は、光源技術だけでなく、利用研究においても重要な指標となる。本研究では、紫外~赤外域の10 fs 以下のパルス幅を持つように開発された超短パルスレーザー光源、シングルショットのX線分光器、結晶のコヒーレントフォノン振動を組み合わせることによって、X線相互相関型周波数分解光ゲーティング(XXFROG: X-ray cross correlation frequency resolved optical gating)法によるXFEL光をはじめとした超短パルスX線のパルス幅、スペクトル、位相を直接かつ単一ショットで計測することを目的としている。そのための要素技術である極短パルスレーザー光源開発およびXFEL光のスペクトルに対するモジュレーション誘起に関して原理実証を行うことを具体的な目的としている。さらに、要素技術の統合を行い、パルス幅および位相計測に関して、完全計測に向けた知見を得ることを目的としている。

本研究では、提案する方法に関する原理実証を目的としているが、原理的には10 fs 以

下のパルス幅のXFEL 光に関しても計測可能な時間分解能を持つシステムである。この時間分解能は高強度X線光源である世界各国のXFEL において、パルス幅として想定される5 fs ~ 30 fs のほとんどのレンジをカバーすることとなり、XFEL 光源性能の評価およびXFEL 利用研究に資すると期待される。

3. 研究の方法

研究代表者に異動が生じたため、XFEL光や放射光X線を使用せずに研究開発を遂行可能である計測システムに関する計算および開発を中心に研究を実施した。具体的には、高強度超短パルスX線の単一ショット計測に向けて必要となる要素技術開発と、それらを統合したパルス計測システムの開発を行った。

(1) 極短パルス光源開発

10 fs 程度の光学レーザーをBi、Si などの試料に入射し、その後、XFEL 光に遅延時間を与えて入射させると、試料上において、X線の遅延時間に応じて、その回折強度にモジュレーションが生じる。この時間応答は、光学レーザーの入射後、最初の数100 fs の間にわたって、比較的遅く大きな強度モジュレーションが生じたのち、その後、XFEL 光の遅延時間に対して、物質のコヒーレントフォノン周期振動に対応して、周期的なモジュレーションが誘起される。このモジュレーションを誘起する際には、振動周期に対して十分に短い時間パルス幅の励起光源が必要である。そのためパルス幅が10 fs以下で試料を励起できる光学フェムト秒レーザー光源の開発を行う。具体的には、希ガスを充てんしたガラス中空ファイバー中に、フェムト秒レーザーパルスを入射することによって、バンド幅拡幅および極短パルス化する。さらにSiやCなどワイドバンドギャップ材料の場合には、直接遷移のバンドギャップは紫外領域に対応する。そのため、パルス幅を10 fs程度に保持したまま波長変換を実施し、再圧縮することでコヒーレントフォノンを誘起するための十分にパルス幅が短い光源の開発を行う。

(2) XFEL タイミング計測装置の開発

XFEL光のパルス特性を光学レーザーで評価する相互相関計測の場合には、XFEL光とレーザー光の時間的重なりの評価が重要である。本研究にて使用が想定されているXFEL光の場合には、光学レーザーとの同期に、時間的な揺らぎ(時間ジッター)が存在し、その時間幅は数100 fs程度であることが想定される。本研究で採用している空間デコーディングの利点として、計測できる時間ゲート内であれば、光学レーザー光のパルス幅を広げるためのチャープを行うことなく、XFEL 光と光学レーザー光の間に存在するタイミングジッターによる到着時間の不一致をカバーできる。空間デコーディング法を用いる際の実験セットアップの設計によって、両光源間ジッターの幅以

上の計測領域(時間窓)を確保しているが、相互相関計測において、参照光となる光学レーザーと計測対象となるXFEL光をショットごとに異なる計測試料への到着時間を計測することは、システムの校正および計測精度に必要である。そこで光学レーザー光に対してXFEL光の高精度タイミング計測装置を開発する。

(3) X線スペクトル変化の光学レーザー入射遅延時間依存性計測のための高空間分解能計測装置の開発

結晶にX線を入射した場合には、結晶構造を反映した回折X線を得ることができる。この時に、X線を一次元に集光した場合には、結晶に対して、わずかに入射角が異なる成分が得られるため、ブラッグ回折によって得られた回折光は、X線のスペクトルを反映したプロファイルとなることが知られ、XFEL光のシングルショット分光器として応用されている。このシングルショットのX線分光器に超短パルスレーザーを入射した場合には、試料を構成する結晶構造にわずかに変位が生ずるため、その変位の影響によって、各周波数成分に対するブラッグ角が変化し、観測されるスペクトルにはモジュレーションが誘起される。このモジュレーションの周期は光学フォノンに対応するため、Siでは65 fs、Cでは25 fsの周期を示す極めて高速な現象である。例えば、XFELのパルス幅は10~30 fsであることから、適当な試料を選ぶと、「XFELパルス幅モジュレーションの半周期」となるため、コヒーレントフォノンを通したXFELパルスに対するレーザーの寄与をフォノン周期の半周期、つまり線形に近似できる。このモジュレーションを後述の空間デコーディング法にて検出することによって、X線スペクトルの各周波数成分の強度変化に対する、光学レーザー入射時間依存性を計測することができる。本研究では、スペクトルへのモジュレーションを観測する際に、光学レーザーの入射遅延時間に関する情報を、2次元検出器の空間に焼き直す空間デコーディングによって行う。空間デコーディング法とは、試料上において、線状に集光したX線パルスの入射タイミングに対して、X線パルスプロファイルの長軸方向に、光学レーザーの波面をわずかに傾けて入射することによって、試料表面への到着時間に、空間的に遅延時間を設ける。このことによって、レーザーの入射遅延時間に関する時間情報を空間情報に変換することが可能であり、2次元検出器を用いた場合には、シングルショットで時間分解計測を行うことができる。

この2次元画像は光学レーザーのパルスキャラクター化を行うFROGと同様の情報を含み、解析アルゴリズムを開発することによって、計測対象となるX線パルスに対する周波数成分の位相を決定することが可能である。この時、時間分解能は、エッジ検出などの解析処理によって向上するが、原理的にはX線検出器の空間分解能によって決定される。

一般的な高繰り返し・シングルショットのX線検出器の空間分解能は50 μm ~100 μm であり、空間分解能が低く、シングルショットで空間デコーディング法への応用は困難であった。一方でシンチレーターと結像系を組み合わせたX線モニターは1 μm 程度の空間分解能が達成されているものの、信号が暗いという欠点がある。この問題を解決するため、空間分解能の向上による空間デコーディング法への適用を目的としたシングルショット、高空間分解能2次元X線検出器の開発評価を行う。

(4) シングルショット計測に向けた XXFROG の装置開発

シングルショット計測に必要な計測システムの設計のための理論計算を行うとともに、(1)-(3)の要素技術を統合することによって、コヒーレントフォノンによるX線のスペクトルへのモジュレーションおよびシングルショットXFEL光の計測を想定したシステムの開発と最適化を行う。

4. 研究成果

(1) 超短パルス光源の開発

石英中空ガラスファイバーに Ne ガスを充填し、30 fs 2 mJ、800 nm のレーザー光を集光照射した。その結果、そのバンド幅は紫外領域に達した。得られた超広帯域光をチャープミラーによって分散補償を行った。得られたパルス光を SPIDER によって計測したところ、10 fs のパルス幅が示された。バンド幅を考慮すると分散補償の最適化によって5 fs程度まで短パルス化することが可能である。さらに高速の応答速度をもつコヒーレントフォノン振動数をもつワイドバンドギャップの媒質の励起を可能とするため、紫外領域の超短パルス光源の開発を行った。非線形結晶および紫外領域の光学システムの整備および立ち上げを行い、石英中空ガラスファイバーに 800 nm の光とその第 2 次高調波を導入することによる気体媒質中の和周波混合によって、超短パルスかつ紫外領域まで帯域を広げることが可能となった。今後はパルスキャラクター化を実施し、分散補償に必要なチャープミラー、分散補償光学系の光学系設計を行い、極短パルス化を実施する。

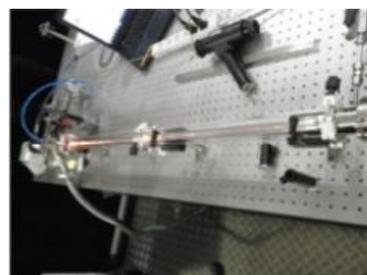


図 1 中空ファイバーによる極短パルス化システム

(2) XFEL タイミング計測装置の開発

相互相関計測型周波数分解光ゲート法を用いたパルスキャラクタリゼーションに必要な、X線とコヒーレントフォノン誘起用のフェムト秒レーザーが試料上に照射されるタイミングモニターの評価を行った。SiN薄膜、GaAs フィルムなどの試料をタイミングモニターの評価を行った。例えば SiN の例では、高強度の X 線が光学レーザーと同時に入射した時のみ、光学レーザーの透過率が減少する。図 2 に計測したタイミングシグナルを示す。横軸は CCD カメラのポジション、縦軸は透過率を示す。X 線タイミング計測についても、空間デコーディング法を用いているため、CCD カメラのポジションは光学レーザーと XFEL 光の遅延時間に相当する。図中に示した非照射時のプロファイルである黒実線の信号強度が遅延時間 (CCD カメラのポジション) に対して一定であることと比較して、X 線照射時の光学レーザー透過プロファイルを示した赤実線は、遅延時間の関数として透過率が減少していることがわかる。他にも GaAs 薄膜についても観測しており、2 種類の試料を用いて XFEL のタイミング計測が可能となった。

実際のパルスキャラクタリゼーションにおいては、両光源間のタイミングジッターによって、ショットごとにコヒーレントフォノンを誘起するタイミングが異なる。XFEL 光とフェムト秒レーザーの照射タイミングを計測することによって、空間デコーディング法を用いた相互相関計測において、両光パルスの時間的な重なりの変化をショットごとにモニターすることが可能となり、ショットごとの励起タイミングを校正したパルスの特性評価ができるようになった。

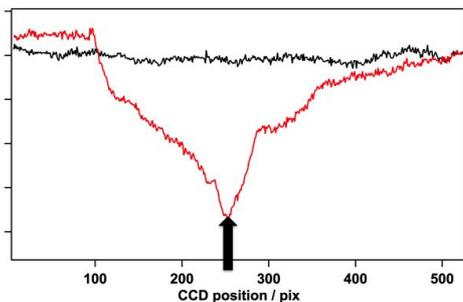


図 2 SiN 薄膜を用いた X 線のタイミング計測。赤実線: X 線が入射した時の光学レーザーの透過プロファイル。黒実線: X 線が非照射時の光学レーザー透過プロファイル

(3) X 線スペクトル変化の光学レーザー入射遅延時間依存性計測のための高空間分解能計測装置の開発

XFEL 光のプロファイルを高分解能で検出できるコンポジット Ce: YAG 素子を開発し、評価試験を行った。セラミック YAG の表面数 μm のみに X 線を可視光に変換する Ce: YAG をドープすることによって、X 線が検出器の

深さ方向に進行する際の入射部分周囲の直接・二次励起による空間的な滲みを抑制することに成功した。その結果、10 keV のシングルショットの X 線に対して、8 μm の分解能が得られた。現在、XFEL SACL A に使用されている X 線用 CCD ベースのシングルショットの検出器では、空間分解能は 50 μm 程度であり、諸外国でも 100 μm の分解能であることと比較すると、大幅な分解能の向上が実現した。空間デコーディング法において、時間分解は空間分解能によって決定されるため、空間分解能の向上は必須であった。さらに、相互相関計測型周波数分解光ゲート法では、シングルショット計測かつ FEL 光の繰り返し周波数以上の性能が必要となる。本成果によって、X 線領域においてもシングルショットかつ高繰り返し周波数、空間デコーディング法に対応する検出器が使用可能である。

(4) シングルショット計測に向けた XXFROG の装置開発

(1)-(3) で開発した要素技術を組み合わせることによって、相互相関計測型周波数分解光ゲート法による XFEL 光のパルスキャラクタリゼーションを行うために必要な計測システムを理論計算および設計し、計測装置の立ち上げを行った。当初、本研究提案時にはコヒーレントフォノンを発生する媒質に XFEL 光を照射し、その一部に参照光となるフェムト秒レーザーを照射し、フェムト秒レーザーを照射していない XFEL 光のスペクトルと比較・規格化することによって、励起光によるコヒーレントフォノン振動の寄与の有無の確認および、パルスキャラクタリゼーションを行う予定であった。しかし、XFEL 光のビームサイズやモノクロメーターを通過した SASE 光はショットごとに空間ポインティングが異なることを考慮すると、前述の方法ではシングルショットで計測は困難であった。そこで、さらなる計測の高精度化のため、透過型回折格子を用いることによって、「+一次回折光」および「-一次回折光」という、X 線パルスのレプリカ光を作成することによって、励起光 (フェムト秒レーザー) によるコヒーレントフォノンのモジュレーションの有無を比較することを考案した。コヒーレントフォノン誘起用極短フェムト秒レーザー、X 線タイミングモニター、高空間分解能シングルショット XFEL プロファイルモニター、透過型回折格子、試料冷却装置などの要素技術を組み合わせた計測装置を設計し、XFEL 光を導入すれば実験が実施可能な状態となった。計測システムに関しては理論計算の結果と合わせて論文等への投稿準備中である。

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)

〔雑誌論文〕(計2件)

T. Sato, T. Togashi, K. Ogawa, T. Katayama, Y. Inubushi, K. Tono, and M. Yabashi, "Highly efficient arrival timing diagnostics for femtosecond X-ray and optical laser pulses," Appl. Phys. Exp. 8, 012702 (2015).
査読有, doi: 10.7567/APEX.8.012702.

T. Katayama, Y. Inubushi, Y. Obara, T. Sato, T. Togashi, K. Tono, T. Hatsui, T. Kameshima, A. Bhattacharya, Y. Ogi, N. Kurahashi, K. Misawa, T. Suzuki and M. Yabashi, "Femtosecond x-ray absorption spectroscopy with hard x-ray free electron laser," Appl. Phys. Lett. 103, 131105 (2013).
査読有, http://dx.doi.org/10.1063/1.4821108

〔学会発表〕(計4件)

亀島敬, 佐藤堯洋, 工藤統吾, 小野峻, 尾崎恭介, 片山哲夫, 初井宇記, 矢橋牧名, "X線信号の高空間分解能シングルショットイメージング手法の開発," 日本物理学会第70回年次大会, 2015年3月24日, 早稲田大学 東京都・新宿区
亀島敬, 佐藤堯洋, 工藤統吾, 小野峻, 尾崎恭介, 片山哲夫, 初井宇記, 矢橋牧名, "薄膜シンチレーターを用いた高空間分解能X線イメージング," 第28回放射光学学会年会, 2015年1月12日, 立命館大学, 滋賀県・草津市
亀島敬, 佐藤堯洋, 工藤統吾, 小野峻, 尾崎恭介, 片山哲夫, 初井宇記, 矢橋牧名, "コンポジットYAGセラミックを利用した高空間分解能X線2次元計測," 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月20日, 北海道大学, 北海道・札幌市
佐藤堯洋, 小川奏, 富樫格, 片山哲夫, 犬伏雄一, 登野健介, 矢橋牧名, "GaAs過渡吸収を用いたXFEL同期レーザータイミング測定装置の開発," 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 2013年9月18日, 同志社大学, 京都府・京田辺市

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:

国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者
佐藤 堯洋 (SATO, Takahiro)
東京大学・理学系研究科・助教
研究者番号: 30599113

(2) 研究分担者
()

研究者番号:

(3) 連携研究者
()

研究者番号: