蒸留水を試料とする円偏光フェムト秒レーザー誘起パルスX線発生

佐藤 大輔¹, 松島 進一¹, 小野 博司¹, 梶本 真司¹, 福村 裕史¹, 畑中 耕治²¹東北大学大学院 理学研究科化学専攻 (〒980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉)²東京大学大学院 理学系研究科附属超高速強光子場科学研究センター (〒113-0033 東京都文京区本郷7-3-1)

Circularly Polarized Femtosecond Laser-Induced Pulsed X-Ray Emission from Distilled Water

Daisuke SATO,¹ Shin-ichi MATSUSHIMA,¹ Hiroshi ONO,¹ Shinji KAJIMOTO,¹Hiroshi FUKUMURA,¹ and Koji HATANAKA²¹Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tohoku University, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8578²Center for Ultrafast Intense Laser Science, School of Science, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo, Tokyo 113-0033

(Received August 28, 2009)

Circularly-polarized or linearly-polarized femtosecond near IR laser pulses were used as excitation for pulsed X-ray emission from distilled water solution. X-ray intensity and electron temperature were highest when the laser was linearly p-polarized, while the intensity and the temperatures decreased as the s-polarization component of laser increased in addition to the p-polarization component whichever the total laser polarization was circular or diagonally-linear. These results indicate that processes of multiphoton ionization, electron acceleration, and resonance absorption leading to X-ray emission are inhibited by the s-polarization component of the excitation laser pulses.

Key Words: Femtosecond laser, Distilled water, X-ray emission, Circular polarization

1. はじめに

集光強度にしてペタワット (10^{15} W/cm²) を超える高強度レーザー場と物質との相互作用の結果, 従来のアブレーションやプラズマの生成にとどまらず, パルスX線発生¹⁾, 相対論的電子の発生²⁾, パルス中性子線発生³⁾などが誘起される. その他にもレーザー振動電場による分子の変形⁴⁾やC₆₀のCoulomb爆発⁵⁾など, 従来の光化学・光物理とは異なる現象も多く報告されており, 高強度レーザー場における電子の振る舞いに関する理論的アプローチ⁶⁾と併せて, ペタワットレーザー場と物質との相互作用に関する研究が飛躍的に進みつつある. なかでもパルスX線発生は, 多光子イオン化, トンネルイオン化, 高強度レーザー場における電子加速, レーザーパルス幅内における散乱・内殻励起など, 基礎科学的にも興味深い過程が多く関与していると考えられ, 高強度レーザーパルスと物質との相互作用として様々な議論が行われているだけでなく⁷⁻⁹⁾, 種々の時間分解測定のための光源として注目されている¹⁰⁻¹⁵⁾.

パルスX線発生に関しては, これまで固体ターゲット¹⁶⁾, 気体ジェットターゲット¹⁷⁾, 液体ターゲット^{18,19)}等をもちいて多くの研究がなされてきた. 一方でこれらの研究において直線偏光励起に関する報告例は多く見られるものの, 円/楕円偏光励起に関する研究例は極めて少ない. こうした状況の中我々の研究グループでは,

フェムト秒レーザー誘起X線発生のための媒体として水溶液に着目しこれまで実験, 研究を行ってきた²⁰⁻²⁴⁾. 水溶液を試料としたX線発生においては, 種々の溶質を溶解することにより任意の特性X線を発生させることができる点, 循環装置を用いることにより長時間安定にX線を発生可能である点で, 基礎研究・応用双方の観点から優位であると考えられる. 他の研究例同様これまでp偏光励起を中心に実験を行ってきた. 本稿では, 上述する背景をもとに, 円/楕円偏光励起ならびに直線斜め偏光励起に関する実験結果について報告し, その特徴に関して考察を試みる.

2. 実験

実験の概略図をFig. 1に示す. 励起光源として中心波長775 nm, パルス幅390 fs (ネガティブチャープ), 繰返し周波数1 kHz, プレパルスとのコントラスト比500:1程度のフェムト秒チタンサファイアレーザー (Clark-MXR/CPA2001, PositiveLight/EvolutionX) を用いた. これまでにネガティブチャープで照射した時に最高X線強度が得られる²³⁾ことが知られているので, 比較的長いパルス幅のレーザーパルスを採用した. またレーザー照射角度は液膜の法線に対して60度とした. 試料にはマグネットポンプにより150 ml/min.の流速で循環させ, 幅100 μ mの噴出口を持つTiノズルから噴出させた蒸留水膜

Fig. 1 Experimental setup for femtosecond laser-induced X-ray emission from a distilled water flow.

を用いた。このときレーザーの照射位置での試料の噴出速度が液膜厚100 μm 、液膜幅15 mmから1.7 mm/msと見積もられ、焦点位置でのレーザースポットサイズが約20 μm 以下、繰り返し周波数が1 kHzであることから、レーザーパルスが試料の同位置に複数回照射されことなく、常に新しい液体表面でX線発生が誘起されていると考えられる。偏光制御には $\lambda/2$ 板と $\lambda/4$ 板を用いて行い、円/楕円偏光あるいは斜め直線偏光とした上で対物レンズ(Mitutoyo/M Plan Apo $\times 10$, $\text{NA} = 0.28$)を用いて蒸留水液膜表面に集光照射した。焦点でのレーザーパワーはレーザー光強度が0.30 mJ/pulse以下のとき、 $4.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 以下と見積もられる。X線検出には、強度測定用としてGM計数管(Health Physics Instruments/HPI5000 cypher)を、発光スペクトル測定用としてCZT半導体検出器(AMPTEK/XR-100T-CZT)をそれぞれ用いた。レーザー焦点から検出器までの距離は5 cmとし、検出角度はレーザーの入射方向に対して90度とした。いずれの測定においても単一光子測定を実現するため、Poisson分布を考慮し100 counts/sec.以下となるように検出器の入力窓の大きさを調整した上でX線を検出した。実験は室温、大気圧下で行った。

3. 結果

Fig. 2に円/楕円偏光あるいは斜め直線偏光を励起光とした時のX線発光強度を示す。ここで蒸留水液膜の法線に対する励起光の入射角度は60度とし、レーザー光強度は0.30 mJ/pulseとした。ここでp偏光から、楕円/円偏光あるいは斜め直線偏光を経てs偏光と変化させて行くに従い、レーザー光強度は一定にも関わらずX線発光強度が単調減少しているのが分かる。またp/s偏光比が同じであるにもかかわらず、X線発光強度が斜め直線偏光より円偏光でより高い。さらに各波長板の後、液膜試料の直前に偏光ビームスプリッターを挿入することでs偏光成分を除去し、楕円/円偏光あるいは斜め直線偏光のp偏光成分のみを励起光として照射した時のX線発光強度をFig. 3 (a)に示す。これより明らかに、楕円/円偏光あるいは斜め直線偏光励起においてs偏光成分がX線発光機構に対して抑制的に作用していることが強く示唆された。そこでp偏光成分のレーザー光強度を0.15 mJ/pulse

Fig. 2 X-ray intensity as a function of laser polarization.

とした時の円偏光あるいは斜め直線偏光(s偏光強度=0.15 mJ/pulse)を励起光とするX線発光スペクトル測定を行った(Fig. 3 (b))。ここでもp偏光成分のみを照射した時が最もX線発光強度が高く、さらにBoltzmann分

Fig. 3 X-ray intensity as a function of laser intensity depending on laser pol. (a) and X-ray emission spectra depending on laser pol. (b).

布で近似し求められる電子温度も、p偏光、円偏光、斜め直線偏光の時、それぞれ0.23 keV(高エネルギー側では0.51 keV)、0.21 keV、0.21 keVと得られた。ここでs偏光成分の効果を更に明確にするために、p偏光成分のレーザー強度を0.1 mJ/pulseと一定にした上で、s偏光強度を変化させてX線発光強度を測定したところ(Fig. 4)、ここでもs偏光強度の増加に対して単調にX線強度は減少した。より詳細に解析を行ったところ、円偏光における楕円率が0.25、斜め直線偏光では偏光面の傾きがおおよそ14度という励起条件においても、X線発光強度はs偏光成分が皆無の時と比べ半分あるいは1/3となった。これらの結果は、X線発光強度がレーザーの偏光面に対して非常に敏感であることを示している。

これらの実験結果は、p偏光成分のレーザーパルスによる共鳴吸収が優位であると予想される入射角度が60度のときに得られた結果である。レーザー照射からパルスX線発生に至る過程は、共鳴吸収以前に多光子イオン化、逆制動輻射、2次電子放出など多様であり、それら多くの過程を経た上でX線発光強度や電子温度は決定される。そこで、液膜へのレーザー入射角度を0度として同様の実験をつづいて行った。こうした条件では共鳴吸

Fig. 4 X-ray intensity as a function of s pol. component laser intensity.

Fig 5 X-ray intensity as a function of laser polarization when the laser incident angle is 0 degree.

収の効果が比較的低いと考えられる。その結果Fig. 5に示すように、円偏光励起条件下では直線偏光(p/s偏光)励起の場合と比べてX線発光強度が減少したことから、上述の共鳴吸収以外の過程に対してもレーザーの偏光が大きく影響していると考えられる。

4. 考 察

X線発生の初期段階として高強度レーザー場によるイオン化、すなわち多光子イオン化やトンネルイオン化が考えられる。今回用いたレーザーの強度は最高で0.30 mJ/pulse、パルス幅は390 fs(ネガティブチャープ)、スポットサイズは20 μm であることから、集光強度は $4.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ と見積もられるが、X線の発生過程におけるイオン化は励起パルスの前半部で起こると考えられるため、初期イオン化が誘起される時点における集光強度は数桁低下すると考えられ、本実験では多光子イオン化が支配的であると考えられる。続く二次電子放出などに伴い液膜表面において電子密度が上昇し生成したプラズマ中において、電子はレーザー光のエネルギーを逆制動輻射過程によって吸収すると考えられる。これらの過程を経て電子密度が上昇し、プラズマが臨界密度に達しレーザー光を反射するようになると、p偏光のレーザーでは共鳴吸収が効率よく誘起される。この共鳴吸収によりさらに高いエネルギー電子が生じ、高エネルギー電子の制動輻射あるいは内殻励起によりX線発生に至ると考えられる。

これらのX線発生過程への偏光の影響について考察を行う。まず、多光子イオン化について、固体や気体へのレーザー照射時における偏光の影響は数多く研究されており、円偏光に比べて直線偏光が有利であるという報告がある²⁵⁻²⁹⁾。一方で、電子の逆制動輻射過程においては、円偏光の方が直線偏光に比べて効率的であるという報告がなされている³⁰⁾。このようなイオン化や電子の光エネルギー吸収過程への偏光の影響が、X線の発生にも影響していると考えられる。例えば、Fig. 5に示す垂直入射における円偏光での発光強度の減少はイオン化による影響と考えることができる。またFig. 2の等しい偏光比での発光強度の違いは、多光子イオン化や逆制動輻射過程への偏光の影響と考えられるが、これらを明確に区別し解析することは現段階では難しい。

共鳴吸収への偏光の影響についてはFig. 4に示すように、たとえp偏光成分の一定値であっても、わずかに偏光が楕円あるいは斜めになるだけでX線発光強度は大きく減少する。これはプラズマによるレーザーの共鳴吸収は、p偏光とs偏光と成分に分離して考えるのではなく、電場の回転や傾きに影響を受けるのではないかと考えられる。こうした結果を説明するために「プラズマ中の電子は、プラズマを誘起したレーザーの電場方向にのみ振動する」という仮定を立てて考察を行う。共鳴吸収は臨界点において、プラズマ中の電子の振動とレーザーのプラズマ密度方向への電場が共鳴して電子の疎密波が生じ、電子がエネルギーを得る過程である。上記仮定か

ら、多光子イオン化や二次電子放出によって生成し、逆制動輻射によってエネルギーを吸収した電子はレーザーの電場、つまり偏光方向にのみ振動する。偏光がp偏光の場合、生成した電子はp偏光の向きに振動し、レーザー光の反射点における電場もプラズマ密度勾配の向きに振動するため電子と電場は共鳴し共鳴吸収が誘起される。一方でレーザーの偏光がp偏光から傾いている場合、生成した電子はプラズマの密度方向から傾いた方向に振動するようになるが、レーザーの偏光が傾いていても入射角は変化しないため、レーザーの電場成分はプラズマ密度勾配方向へ伝播する。従ってレーザーの偏光が傾いていると、伝播するレーザー電場とプラズマ中の電子の振動方向がずれて共鳴が誘起される確率が相対的に減少し、共鳴吸収が阻害されると考えられる。その結果X線強度が減少したと考えられる。

5. まとめ

本稿では、円偏光ならびに斜め直線偏光と従来のp偏光励起に伴う蒸留水からのフェムト秒レーザーパルス誘起パルスX線発生について比較検討を行った。レーザーの偏光がp偏光からわずかに変化するだけでX線の発光強度が減少するという結果を得た。レーザーを垂直入射させた実験から、共鳴吸収を除いた条件におけるX線発光強度の変化を観測し、円偏光や斜め直線偏光では共鳴吸収の阻害が生じていると考えた。円偏光励起は、多光子イオン化や逆制動輻射過程へ影響を及ぼすと考えられる。また共鳴吸収への偏光の影響は、プラズマ中における電子の振動がレーザーの偏光方向に依存し、その振動方向とp偏光の電場方向が異なることによると結論した。

参考文献

- 1) M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. D. Rosen, and R. W. Falcone: *Science* **251** (1991) 531.
- 2) Y. Oishi, T. Nayuki, K. Nemoto, Y. Okano, Y. Hironaka, K. Kondo, and K. G. Nakamura: *Appl. Phys. Lett.* **79** (2001) 1234.
- 3) T. Ditmire, J. Zweiback, V. P. Yanovsky, T. E. Cowan, G. Hays, and K. B. Wharton: *Nature* **398** (1999) 489.
- 4) A. Hishikawa, A. Iwamae, and K. Yamanouchi: *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 1127.
- 5) J. Kou, V. Zhakhovskii, S. Sakabe, K. Nishihara, S. Shimizu, S. Kawato, M. Hashida, K. Shimizu, S. Bulanov, Y. Izawa, Y. Kato,

- and N. Nakashima: *J. Chem. Phys.* **112** (2000) 5012.
- 6) H. Kono, S. Koseki, M. Shiota, and Y. Fujimura: *J. Phys. Chem. A* **105** (2001) 5627.
 - 7) D. Umstadter: *Phys. Plasmas* **8** (2001) 1774.
 - 8) A. Maltuska, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Haensch, and F. Krausz: *Nature* **421** (2003) 611.
 - 9) S. Martellucci, C. Bellecci, M. Francucci, P. Gaudio, M. Richetta, D. Toscano, A. Rydzy, M. Gelfusa, and P. Ciuffa: *J. Phys. Condens. Mat.* **18** (2006) S2039.
 - 10) Majed Chergui and Ahmed, and H. Zewail: *ChemPhysChem* **10** (2009) 28.
 - 11) E. G. Villora, K. Hatanaka, H. Odaka, T. Sugawara, T. Miura, H. Fukumura, and T. Fukuda: *Solid State Commun.* **127** (2003) 385.
 - 12) L. Zhao, H. Odaka, H. Ono, S. Kajimoto, K. Hatanaka, J. Hobley, and H. Fukumura: *Photochem. Photobiol. Sci.* **4** (2005) 113.
 - 13) D. Ehrentraut, Kagamitani, A. Yoshikawa, T. Fukuda, H. Sato, J. Pechjal, M. Nikl, H. Odaka, K. Hatanaka, and H. Fukumura: *Journal of Materials Chemistry* **16** (2006) 3369.
 - 14) J. Pejchal, Y. Kagamitani, D. Ehrentraut, H. Sato, H. Odaka, K. Hatanaka, M. Nikl, A. Yoshikawa, H. Fukumura, and T. Fukuda: *Phys. Stat. Sol. (c)* **4** (2007) 942.
 - 15) H. Odaka, T. Miura, K. Hatanaka, S. Wiebel, and H. Fukumura: *J. Phys. Chem. C* **113** (2009) 11969.
 - 16) H. Witte, M. Silies, T. Haarlammer, J. Hüve, J. Kutzner, and H. Zacharia: *Appl. Phys. B* **90** (2008) 11.
 - 17) B. Kim, B. Ahn, D. Lee, J. Kim, and D. Kim: *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006) 141501.
 - 18) R. J. Tompkins, I. P. Mercer, M. Fettweis, C. J. Barnett, D. R. Klug, L. G. Porter, I. Clark, S. Jackson, P. Matousek, A. W. Parker, and M. Towrie: *Rev. Sci. Instrum.* **69** (1998) 3113.
 - 19) W. Fullagar, M. Harbst, S. Canton, J. Uhlig, M. Walczak, C. G. Wahlström, and V. Sundström: *Rev. Sci. Instrum.* **78** (2007) 115105.
 - 20) K. Hatanaka, T. Miura, and H. Fukumura: *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002) 3925.
 - 21) K. Hatanaka, T. Miura, and H. Fukumura: *Chem. Phys.* **299** (2004) 265.
 - 22) K. Hatanaka, H. Ono, and H. Fukumura: *App. Phys. Lett.* **93** (2008) 064103.
 - 23) K. Hatanaka, T. Ida, H. Ono, H. Fukumura, S. Juodkazis, and H. Misawa: *Opt. Express* **16** (2008) 12650.
 - 24) K. Hatanaka and H. Fukumura: Chapter 9 in “Three-Dimensional Laser Microfabrication: Principles and Applications”, H. Misawa and S. Juodkazis, Eds. Wiley (2006) ISBN 352731055X.
 - 25) A. K. Dharmadhikari, A. S. Sandhu, J. A. Dharmadhikari, A. Mishra, and G. R. Kumar: *Appl. Phys. B* **79** (2004) 235.
 - 26) G. D. Gillen, M. A. Walker, and L. D. Van Woerkom: *Phys. Rev. A* **64** (2001) 043413.
 - 27) J. McKenna, M. Suresh, B. Srigengan, I. D. Williams, and W. A. Bryan, E. M. L. English, S. L. Stebbings, W. R. Newell, ICE Turcu, J. M. Smith, E. J. Divall, C. J. Hooker, A. J. Langley, and J. L. Collier: *Phys. Rev. A* **73** (2006) 043401.
 - 28) V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, A. El-khamhawy, and D. von der Linde: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 237403.
 - 29) D. Mathur, M. Krishnamurthy, and F. A. Ra Jgara: *Phys. Rev. A* **68** (2003) 023407.
 - 30) S. M. Hooker and N. David: *Phys. Rev. E* **72** (2005) 036402.