高強度レーザーを用いた短パルスX線および 電子線の発生と応用

上坂 充, 木下 健一

東京大学大学院 工学系研究科附属原子力工学研究施設 (〒319-1188 茨城県那珂郡東海村白方白根2-22)

Generation and Application of Ultrashort X-rays and Electrons by Intense Laser

Mitsuru UESAKA, Kenichi KINOSHITA

Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo

22-2 Shirane-shirakata, Tokai-mura, Naka, Ibaraki 319-1188

(Received October 10, 2000)

Femto- and picosecond X-rays and electrons can be generated and used at the Femtosecond Ultrafast Quantum Phenomena Research Facility in Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo. The beams are mainly applied to pump-and-probe analysis. The analysis utilizes two synchronized ultrashort beams. Especially, the time-resolved X-ray diffraction, which is one of the analysis, enables the dynamic visualization of atomic motions. Visualized atomic motions in coherent phonon, phase relaxation, phase transition, thermal expansion and shock wave in GaAs monocrystal irradiated by a femtosecond laser are described in this paper.

Key Words: Ultrashort X-rays and electrons, Pump-and-probe analysis, Time-resolved X-ray diffraction, Atomic motion, Dynamic visualization

1. はじめに

近年の加速器やレーザー等の分野における極短量子パルス発生技術の進歩により、従来静的手法によって行われてきた物性研究の分野において、ピコ秒からフェムト秒に至る極短時間領域での物質の高速過渡現象を観測する動的物性研究の手法が急速に発展してきた。例えばモード同期レーザーを用いたフェムト秒レーザーポンプ&プローブ分光法やレーザーフラッシュフォトリシスといった手法によって、固体中電子状態の時間発展や光誘起化学反応などがフェムト秒レベルの時間分解能で調べられている。物質あるいは材料の構造を原子・分子という微視的レベルにて解明する最も有効な手段の一つであるX線回折法においてもその類にもれず、特に第三世代放射光施設における時間分解解析に代表される数々の優れた成果が上げられてきている。そうした状況の下、線形加速器についても超短パルス化を目指した試みがなされており、最近のテラワット級のパルスレーザーの発展を受けて、相対論的電子ビームによる超短パルスレーザーのトムソン散乱を用いた指向性を持つ極短X線パルスの発生や、大強度レーザーを固体ターゲットに集光することで得られるレーザープラズマX線の開発などが行われている。これらの極短X線パルスを用いて熱膨張や相転移などの過渡現象中の原子の動きを直接的に観察しようという研究が欧米諸国

を中心に立ち上がりつつあり、固体物理や分子動力学計算に対する実験的検証に貢献すると期待されている。

東大原施ライナックにおいては二つの電子線形加速器によりピコ秒からサブピコ秒の電子パルスが生成可能であり、それら極短電子パルスは放射線化学における初期過程を解明するパルスラジオリシス法などの研究に利用されてきた。それらの加速器はまた、外部のシステムとピコ秒レベルで同期が可能であり、テラワットレーザーとの同期を用いてレーザー航跡場加速やトムソン散乱X線発生などの成果が上げられている。さらに近年導入した12TW 50fsレーザーを用いて、プラズマカソードからの～10fs電子ビームの生成や短パルスイオンビーム源の開発等の研究が進行しており、将来的にはさらに様々な組み合わせでの互いに同期した複数の極短量子パルスの利用が可能となると期待されている。

それらの背景を踏まえて東大原施では極短時間分解X線回折システムの構築を目指して研究を行ってきた。それは超短パルスレーザーをポンプ光、極短X線パルスをプローブ光として使用し、ポンプパルスにより物質中に誘起した過渡的变化をX線回折像として取得する手法であり、これまでに、ライナックによる極短X線パルスの発生と特性評価、および静的X線回折像の取得実験が行われていた^{1,2)}。本研究では極短時間分解X線回折システムの構築を目的として、東大原施12TW 50fsレーザーを用いたレーザー

プラズマX線発生およびX線回折実験を行った。また、X線回折像から結晶中の原子配列を推定し、過渡現象中の原子の動きの可視化を行う原子動画像化シミュレーションも試みている。最新研究状況を報告する。

2. フェムト秒高速量子現象研究設備

フェムト秒ピームフラッシュ研究を推進するべく、東大原施に平成10年度にフェムト秒高速量子現象研究設備が構築された(Fig.1参照)。フェムト秒ライナック・レーザー同期システム(Figs.2, 3参照)、12TW 50fsテーブルトップレーザーシステム(Fig.4参照)と分析システムである。フェムト秒ライナック・レーザー同期システムでは、従来のピコ秒精度同期実績を進展させ、世界最高の330fs(rms, 数分間; 数時間では2ps(rms))であるが改良中)に同期精度を達成した(Fig.5参照)。12TW 50fsテーブルトップレーザーシステムでは、レーザープラズマ航跡場加速方式によって10fsレベルの電子ビーム、レーザープラズマ中でのイオン爆発によるフェムト秒イオンビーム、極低温重水素クラスターガスジェットを使った"机の上の核融合"によるピコ秒中性子パルスの生成を目指す。ビームスプリッタより分析パルスを分岐し、光路調整によって遅延をつければ、5 μ m位置設定精度は33fs時間精度となる。さらに、本システムは超小型・低コスト放射線源として革新的である。

3. レーザープラズマX線発生およびX線回折実験

大強度のパルスレーザーを固体表面に収束して照射を行なうと固体表面にプラズマを生成し、レーザーとプラズマとの相互作用により高速電子(>10keV)が生成する。それらの高速電子がターゲット中に進入し制動放射X線や特性X線が発生する。超短パルスレーザーを用いることで高輝度な極短X線パルスを発生することが可能である。東大

原施の12TW 50fsレーザーによる最大600mJ/pulse、パルス幅 ≤ 50 fsのレーザーパルスを焦点距離162mmのOff-axis parabolicミラーにより銅板(無酸素銅)表面に集光し、レーザープラズマX線発生を行った。実験体系をFig.6に示す。試料単結晶は回転ステージ上に設置し、X線回折像取得用のイメージングプレートとともに鉛遮蔽体中に収めた。X線は5mmのスリットを通して結晶に照射された。空気原子の散乱によるレーザーの質の低下や焦点付近での空気プラズマ生成によるレーザーエネルギーの減少を避けるために光学系は真空容器内に組まれた。なおレーザー照射により銅板表面が損傷しX線発生率が激減するので、照射中に銅板を移動ステージにより動かすことで、各レーザーパルスを未照射状態の銅板表面に集光させた。

回折線は結晶の角度がBragg条件(Bragg角 ~ 13.6 deg)を満たす時のみ現れた。回折線近傍の強度分布をFig.7に示す。明らかに、二つの特性X線、即ち $K_{\alpha 1}$ (1.5407Å), $K_{\alpha 2}$ (1.5439Å), に対応するピークが現れている。それぞれの特性X線の波長とGaAs(111)の格子面間隔(3.2643Å)から回折角を校正できる。一方、回折像から読み取られた回折ピークの半値幅は約200 μ mであった。GaAsのような完全に近い結晶の場合、単色X線の回折幅は非常に小さいので無視できるとすると、回折ピークの幅はX線源の大きさに対応すると考えられる。

共同研究を行なっている原研関西研グループのレーザープラズマX線発生の数値計算によれば、レーザープラズマX線発生過程ではプリパルスによるプラズマ生成が重要な役割を果たすと考えられている。テラワットレーザーはテラワットのピークを持つメインパルスの前後に、レーザー増幅用結晶からの自然放出光からなるナノ秒レベルの光を伴っている。このピークパワーは弱いがパルス幅の長いレーザーの照射によってターゲット上に生成されるプリプラズマとメインパルスとの相互作用によってレーザーエネルギーの吸収が起こる。吸収の効率はプ

Fig.1 Femtosecond Ultrafast Quantum Phenomena Research Facility.

Fig.2 Femtosecond twin linacs.

Fig.3 0.3 TW 100 fs laser.

リプラズマの条件に強く依存するため $K\alpha$ 発生はレーザー強度によって大きく変化することになる。さらに $K\alpha$ 発生効率は電子エネルギーにも依存する。一電子当たりの $K\alpha$ 発生確率は電子エネルギー約200keVにおいて最大となるが、投入エネルギー当たりの発生効率に反映する電子エネルギー当たりの発生確率は50~60keV付近がピークである。12TW 50fsレーザーのベストフォーカスにおけるレーザー強度は $\sim 10^{19} \text{W/cm}^2$ と見積もられており、この時発生する高速電子の温度は $\sim 500 \text{keV}$ 程度と計算されている。一方、 $K\alpha$ 発生に対しては $\sim 10^{17} \text{W/cm}^2$ が最適と言われており、このシステムが十分な仕様をもつことが判る。

ここでは深さ方向に一次元的な原子配列のモデルを使

(a) Experimental chamber and optical compressor

(b) Laser

Fig.4 12 TW 50 fs laser system.

Fig.5 Synchronized femtosecond electron and laser pulses.

用してX線回折過程を数値解析し、回折パターンを計算した。Fig.8はレーザー照射後のGaAs結晶に熱膨張と衝撃波の進行を仮定し、格子間隔の歪による回折像の変化を計算した結果(点線)およびUC San Diegoの実験結果(実線)³⁾である。計算で仮定した歪分布をFig.9に示す。各時刻における原子配列を視覚的に表現することで時間変化のアニメーション化が可能である(Fig.10)。GaAs表面に照射されたレーザーは結晶内に正孔・電子対を生成することで吸

Fig.6 Experimental setup for time-resolved X-ray diffraction.

Fig.7 CuK $\alpha_{1,2}$ X-ray diffraction patterns from GaAs and Si monocrystals.

Fig.8 Experimental results of X-rays diffraction patterns (solid)³⁾ and numerical fittings (dotted) at different times.

Fig.9 Time variation of lattice strain distribution.

Fig.10 Stationary thermal expansion (optical phonon) and traveling shock wave (acoustic phonon).

収される。これらのキャリア(正孔および電子)が結晶格子と相互作用することでフォノンが生成される(格子散乱)。これらフォノンの内ある物は表面付近に留まり,ある物は結晶内部に伝播し,それらが熱膨張や格子振動といった過渡現象として現れる。レーザー照射されたGaAs結晶表面は生成されたキャリアによって電子エネルギーバンド構造の歪に伴う半導体-金属相転移⁴⁾や構造の無秩序化を起こし,電子・格子散乱やコヒーレントフォノンの生成および位相緩和等が進行する。以上のような描像がフェムト秒レーザー分光による光学的特性の測定等⁵⁾から求められており,これらの初期過程に対するスナップショットも作成した。Fig.11はコヒーレントフォノンの振動である。Fig.12は表面近傍の熱表面近傍の熱化のスナップショットを表現している。また,60ps以内の時間領域におけるX線回折像の取得とフェムト秒レーザー分光から得られる知見との比較,検証は次回実験の重要な課題である。

4. まとめと今後の展望

極短ポンパルス入射により生じる格子状態の過渡的な変化の直接観測を極短X線プローブパルスを用いたX線回折により動的に行う時間分解X線回折システムの構築が進行中である。一方,フェムト秒電子ライナックレーザー同

Fig.11 Coherent longitudinal optical phonon (8.5 GHz).

期システムはフェムト秒コヒーレンスX線源たる第4世代放射光源の原型である。レーザープラズマライナックは、ノイズ放射線の出ないクリーンな第5世代放射光源(マルチビーム源)である。いずれもたゆまぬ要素技術開発が必要である。先進加速器科学開発とその応用研究への応用に貢献していきたい。

謝 辞

レーザープラズマX線発生の数値解析について研究協力いただいた日本原子力研究所関西研究所光量子科学研究センターDr. A. Zhidkov, 佐々木 明氏に感謝致します。

Fig.12 Phase relaxation, thermalization and expansion (1~60 ps).

参考文献

- 1) H. Harano, K. Kinoshita, K. Yoshii, T. Ueda, S. Okita, and M. Uesaka: J. Nucl. Mater. **280** (2000) 255.
- 2) M. Uesaka, H. Kotaki, K. Nakajima, H. Harano, K. Kinoshita, T. Watanabe, T. Ueda, K. Yoshii, M. Kondo, H. Dewa, S. Kondo, and F. Sakai: Nucl. Instrum. and Meth. A **455** (2000) 90.
- 3) C. Rose-Petruck, R. Jimenez, T. Guo, A. Cavalleri, C. W. Siders, F. Ráksi, J. A. Squier, B. C. Walker, K. R. Wilson, and C. P. Barty: Nature **398** (1999) 310.
- 4) L. Huang, J. P. Callan, E. N. Glezer, and E. Mazur: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 185.
- 5) A. Yamamoto, T. Mishina, Y. Masumoto, and M. Nakayama: Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 740.

レーザーワード

ポンプ&プローブ分析(pump-and-probe analysis)

元々は極短パルスレーザーをビームスプリッターで2つに分岐し、一方を試料に当て現象を誘起し、時間遅延したもう一方を現象分析用に使用する過渡現象分析手法である。カリフォルニア工科大学のProf. A. H. Zewailはフェムト秒レーザーにこの手法を適用し、その功績により1999年ノーベル化学賞を受賞した。近年チャープパルス増幅による卓上テラワットレーザーの開発により、レーザー光を気体・固体ターゲットに照射することにより、レーザー

以外のビームも発生可能になっている。それらを使った分析手法の開発・利用研究が世界で盛んになっている。さらにレーザーと加速器がRF信号を介してピコ秒・サブピコ秒精度で同期がとれるようになり、その2つからのビームを使った分析も行われている。特にレーザープラズマピコ秒X線やSRをプローブパルスとして使う時間分解X線回折によって、半導体単結晶中の原子の動きが観察できるようになっている。(上坂 充)

高次高調波発生(high-order-harmonic generation)

直線偏光したフェムト秒レーザーを気体原子に集光し、尖頭値が 10^{14}W/cm^2 を超えると、光軸方向へ数100次に及ぶ奇数次の高調波が発生する。微視的には、トンネルイオン化した電子が母体原子に再衝突する時の制動放射光。非摂動論的な過程である。巨視的には、中心対称性を持つ高次非線形分極が関与した波長変換法。光学的波長変換と見なせるので、基本波レーザーのパルス幅と可干渉性が軟X線に反映される。1nmから100nmにおけるコヒーレント光を発生できる有力な手段。

チャープパルス増幅チタンサファイアレーザーを基本波として用い、これを差動排気したガスセルに集光することにより、現在卓上サイズでコヒーレント軟X線の発生が可能になっている。基本波の集光条件を調整することにより、高い輝度を有する高次高調波が発生する。

高次高調波は、軟X線領域でのフェムト秒分光としての利用価値が高い。また、複数次の高次高調波を位相同期することにより、サブフェムト秒つまりアト秒パルスの発生が可能である。(玉木 裕介)