

ホロー原子を用いた X 線レーザーの短パルス化



井上伊知郎
Inoue Ichiro



矢橋 牧名
Yabashi Makina

1 はじめに

レーザーのような強い光が物質に当たると、非線形光学効果と呼ばれる光の振幅の大きさに比例しない現象が起こる。この非線形光学効果を用いると光の性質（波長・偏光・時間幅・物質中の屈折率）の変換や、量子もつれをもった光子のような特殊な光を作り出すことが可能になる。これまで非線形光学効果は基礎研究の重要な対象となってきただけでなく、高速光通信への応用等のように実社会にも大きな影響を与えてきた。

しかし、波長が 0.1 nm 程度の光である X 線の領域においては強力なレーザー光源が存在しなかったために、真空の揺らぎ（零点振動）を利用するパラメトリック下方変換¹⁾以外の非線形光学効果は長らく見出すことができていなかった。この状況を大きく変えたのが、X 線自由電子レーザー（X-ray free-electron laser; XFEL）の登場である。

2009 年に米国の SLAC National Laboratory の LCLS²⁾、ついで 2011 年に日本の理化学研究所の SACLA³⁾ で実現された XFEL は、X 線領域における初めてのレーザー光源である。現在では、韓国⁴⁾、ドイツ⁵⁾、スイス⁶⁾ においても XFEL 施設が完成し、世界各地で XFEL を利用した研究が行われるようになりつつある。

XFEL の登場の直後から X 線領域の非線形光学効果の探索が行われ、他の波長領域では当たり前のようを実現されている、和周波発生⁷⁾、2 次高調波発

生⁸⁾、2 光子吸収⁹⁾といった現象が X 線領域でも起こることが確認された。更に、非線形コンプトン散乱¹⁰⁾のような X 線ならではの非線形光学効果も報告されている。

しかし、これらの X 線非線形光学効果は非常に小さいものであり、これまでの X 線領域の非線形光学効果の研究は、応用を見据えるというよりも現象自体の発見に主眼が置かれてきた（例えば、文献 8）の 2 次高調波発生の実験で生成された高調波は 1 パルスあたり 0.1 光子程度である）。

筆者らは、XFEL のような高い強度の X 線が物質に照射された際の非線形な吸収現象を利用することで XFEL のパルス幅を高効率に制御できることを見出し、SACLA³⁾ において実証実験を行った。以下では、この非線形光学効果を利用した光制御の原理と実験結果について述べる。

2 非線形な X 線吸収現象

物質に、光子エネルギーを変えながら X 線を照射していくと、「吸収端」と呼ばれる特定のエネルギー以上になったときに X 線の吸収が劇的に大きくなる（図 1(a)）。これは、光子エネルギーが電子の束縛エネルギーを超えると電離が起こるようになり、X 線と物質との相互作用が大きくなるためである。

内殻電子の電離が起こると、原子は内殻に穴が空いたホロー原子になる。ホロー原子は、電気的に中

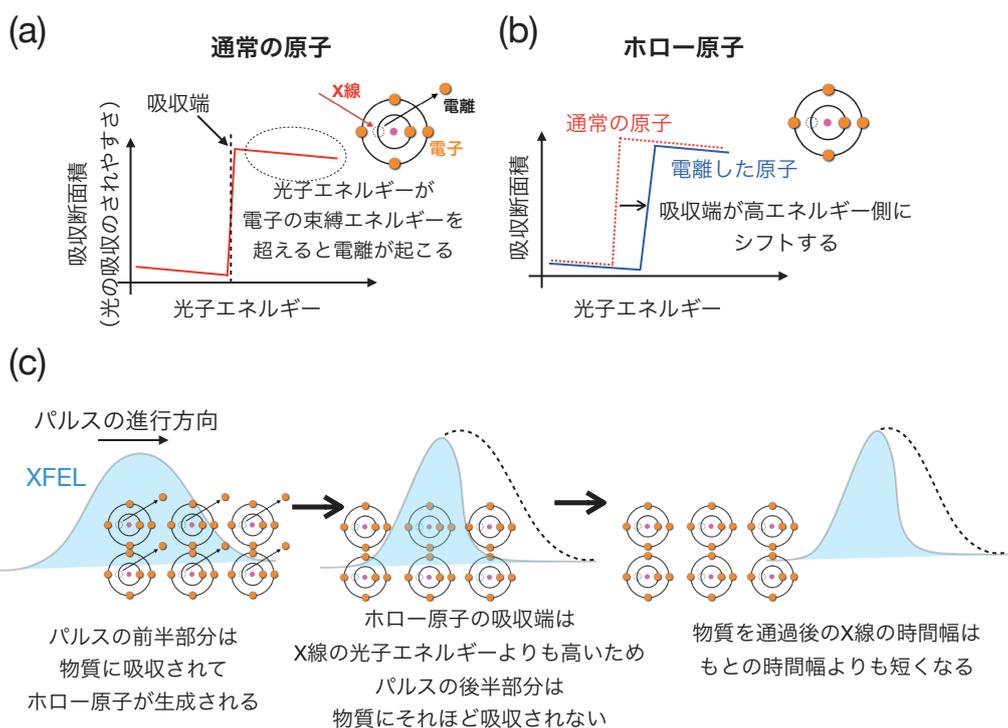


図1 非線形なX線吸収現象を利用したパルス幅短縮のアイデア

通常の原子とホロー原子のX線の吸収のされ方の違いを利用することで、X線のパルス幅を短くすることができる

性ではないために原子核と電子が強く引き合うことで束縛エネルギーが増加する。その結果、吸収端が通常の原子よりも高いエネルギーへとシフトする(図1(b))。

筆者らの研究グループは、通常の原子とホロー原子のX線の吸収のされ方の違いを利用すれば、X線の時間幅(パルス幅)を短くすることができるのではないかと考えた。図1(c)にそのアイデアを示す。

まず、X線の光子エネルギーが通常の状態とホロー原子の吸収端の間になるような原子を探す。そのような原子を含んだ物質から適切な厚さの薄膜を作り、集光したXFELを薄膜に照射する。すると、パルスの前半部分は、物質に吸収されて物質中の多くの原子がホロー原子へ変化する一方で、後半部分は、ホロー原子が多く含まれるためにX線の吸収が減少するようになる。これによって、パルスの後半部分だけを選択的に透過させることが可能になり、XFELのパルス幅が短くなることが期待できる。物質中の吸収の度合いは生成されるホロー原子の量、すなわち物質に照射されるX線強度に大きく依存することから、用いた物質は非線形光学素子と

して働くことが期待できる。

この非線形な吸収現象を実現するのに必要なX線強度は、内殻ホールの緩和時間 τ 、X線の吸収断面積 σ 、光子エネルギー $\hbar\omega$ を用いて $\hbar\omega/(\sigma\tau)$ と表すことができる¹¹⁾。周期表の第3列の元素の τ は0.5フェムト秒(fs; $1\text{ fs} = 10^{-15}\text{ s}$)程度、X線領域の σ は 10^{20} cm^2 程度である。これらの値を用いると非線形な吸収現象を実現するために必要な強度は 10^{20} W/cm^2 程度と見積ることができる。この強度は、XFELを100 nm程度に集光した場合に相当する。100 nm程度の集光は各XFEL施設で既の実現できており¹²⁻¹⁴⁾、ホロー原子を用いたXFELの短パルス化は汎用的な手法として利用できる。

3 SACLAにおける実証実験

前述のアイデアに基づいて筆者らは、SACLAにおいてXFELのパルス幅を短くすることを試みた¹⁵⁾。セルフシード技術¹⁶⁾によって光子エネルギー9 keVの単色ビームを生成し、XFELビームをミラー光学系¹⁷⁾によって約200 nmに集光した。そして、

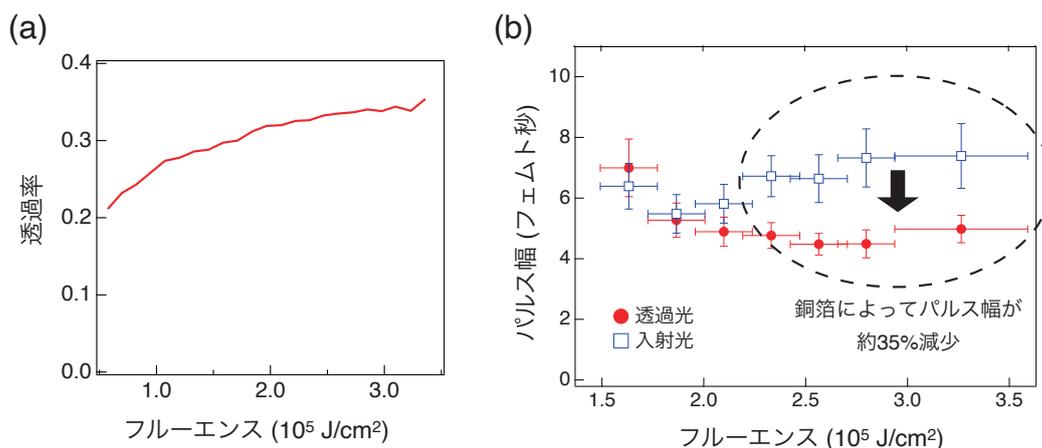


図2 SACLAにおける実証実験の結果

(a) フルーエンスが大きくなるにつれて透過率が上昇することから、非線形な吸収現象が起こっていることが明らかになった。
 (b) フルーエンスが $2 \times 10^5 \text{ J/cm}^2$ を超えると、入射光のパルス幅と比較して透過光のパルス幅が35%程度短くなっていることが実験によって明らかになった

厚さ $10 \mu\text{m}$ の銅箔（吸収端が 8.98 keV ）に XFEL を照射した。

図2(a) は、銅箔の透過率の X 線のフルーエンス（パルスエネルギーをビーム面積で割った物理量）依存性を示したものである。フルーエンスが大きくなるにつれて透過率が上昇しており、非線形な吸収現象が起こっていることを示唆している。図2(b) は、蛍光 X 線を利用した強度相関計測¹⁸⁾ を用いて、入射光及び透過光のパルス幅（半値全幅）を計測した結果を示したものである。フルーエンスが $2 \times 10^5 \text{ J/cm}^2$ を超えると、入射光のパルス幅と比較して透過光のパルス幅が35%程度短くなる様子が観測された。

図2(a) に示されているように銅箔の透過率は約30%程度であるので、図2(b) の結果は X 線の強度（パルスエネルギーを時間幅とビーム面積で割った物理量）が入射光の場合の約50%と非常に高い値を保ったまま、パルス幅が短縮されたことを意味している。すなわち、ホロー原子を利用することで実用的な非線形光学素子が実現できることが示されたと言える。

4 今後の展望

ホロー原子を利用した非線形光学素子は、X 線領域における初めての実用的な非線形光学素子である。この光学素子は物質の厚さや X 線の強度を変

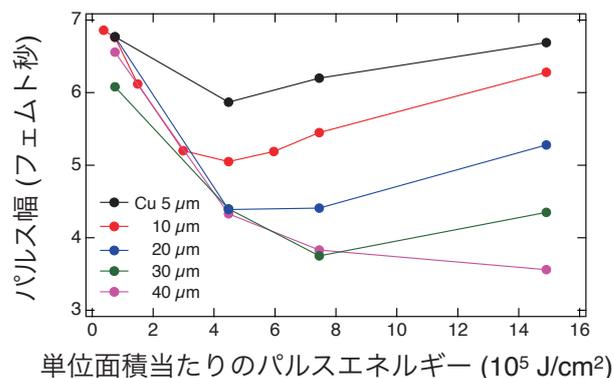


図3 様々な厚みの銅箔を透過後の X 線のパルス幅

光子エネルギー 9 keV 、パルス幅（半値全幅）が 7 fs の XFEL に対して、様々な厚みの銅箔を透過後のパルス幅をシミュレーションで計算した結果¹⁵⁾

えることで、X 線のパルス幅を様々に変化させることが可能になる。例として、光子エネルギー 9 keV 、パルス幅（半値全幅）が 7 fs の XFEL に対して、様々な厚みの銅箔を透過後のパルス幅をシミュレーションで計算した結果¹⁵⁾ を図3に示す。このシミュレーションから分かるように、銅箔の厚みを増すことによって、より短いパルス幅の X 線を作り出すことが可能になる。

しかし、短い時間幅の XFEL をこの素子によって実現するためには、必要な X 線のフルーエンスが単調に増加していく。例えば、アト秒 (10^{-18} 秒) のパルス幅の XFEL を実現するためには、XFEL を 10 nm 程度のサイズにまで集光して強度を高める必要がある¹¹⁾。しかし、X 線の集光技術は日進月歩

の勢いで進化しており、今回開発した光学素子によってアト秒 XFEL が実現されるのも決して遠い未来の話ではないと考えている。

謝辞

本研究は、日本学術振興会科学研究費助成事業の支援を受けて行われました (17K14137,19K20604)。また、実験をサポートいただいた文献¹⁵⁾の著者の皆様や SACLA エンジニアリングチーム・運転員の皆様に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) P. Eisenberger and S. L. McCall, *Phys. Rev. Lett.*, **26**, 684 (1971)
- 2) P. Emma, *et al.*, *Nat. Photon.*, **4**, 641 (2010)
- 3) T. Ishikawa, *et al.*, *Nat. Photon.*, **6**, 540 (2012)
- 4) H-S Kang, *et al.*, *Nat. Photon.*, **11**, 708 (2017)
- 5) W. Decking, *et al.*, *Nat. Photon.*, **14**, 391 (2020)
- 6) E. Prat, *et al.*, *Nat. Photon.*, **14**, 748 (2020)
- 7) T. E. Glover, *et al.*, *Nature*, **488**, 603 (2012)
- 8) S. Shwartz, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 163901 (2014)
- 9) K. Tamasaku, *et al.*, *Nat. Photon.*, **8**, 313 (2014)
- 10) M. Fuchs, *et al.*, *Nat. Phys.*, **11**, 964 (2015)
- 11) H. Yoneda, *et al.*, *Nat. Commun.*, **5**, 5080 (2014)
- 12) H. Mimura, *et al.*, *Nat. Commun.*, **5**, 3539 (2014)
- 13) S. Boutet and G. J. Williams, *New J. Phys.*, **12**, 035024 (2010)
- 14) U. Zastra, *et al.*, *J. Synchrotron Rad.*, **28**, 1393 (2021)
- 15) I. Inoue, *Phys. Rev. Lett.*, **127**, 163903 (2021)
- 16) I. Inoue, *et al.*, *Nat. Photon.*, **13**, 319 (2019)
- 17) H. Yumoto, *et al.*, *Appl. Sci.*, **10**, 2611 (2020)
- 18) I. Inoue, *et al.*, *J. Synchrotron Rad.*, **26**, 2050 (2019)

((国研)理化学研究所 放射光科学研究センター)