

# 超短パルス硬 X 線の発生と結晶構造ダイナミクス観測への応用

中村 一隆・弘中陽一郎・近藤 建一

## Generation of Ultrashort Pulsed Hard X-Rays and Those Application to Lattice Dynamics

Kazutaka G. NAKAMURA, Yoichiro HIRONAKA and Ken-ichi KONDO

High-energy quantum beams (electrons, ions, and hard X-rays) are generated by interaction between femtosecond intense laser fields and solids. The ultrashort pulsed hard X-rays are applied to time-resolved X-ray diffraction for investigating the crystal lattice dynamics. Picosecond time-resolved X-ray diffraction of photoexcited silicon crystals is described.

**Key words:** femtosecond laser, pulsed X-rays, time-resolved X-ray diffraction, intense laser fields

近年、高強度フェムト秒レーザーによって作られる  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> 以上の強光子場とクラスターや固体との相互作用で超短パルスの高エネルギー量子ビームが発生することが報告され、超高速時間分解 X 線回折や小型加速器応用、核反応研究への応用が始まっている。現在こうした研究はレーザー核融合研究に用いられるような大型の研究施設だけではなく、市販のフェムト秒レーザーシステムを用いて大学の実験室レベルで行うことができるようになってきている。本稿では固体ターゲット（金属を中心として）と強光子場との相互作用による高速電子・高エネルギーイオン・硬 X 線パルス発生の研究と、硬 X 線パルスを用いた超高速時間分解 X 線回折による結晶格子ダイナミクス研究の最近の話題について述べる。

### 1. レーザープラズマによる超短パルス量子ビーム発生

固体ターゲットへの高強度フェムト秒レーザー照射による高エネルギー量子ビーム発生メカニズムの大筋は次のように理解される。最初にレーザー光と相互作用するのは電子であり、イオン化による電子発生およびポンデラモータビポテンシャルによる電子加速により高速電子の発生

が起こる。この高速電子と金属との衝突による制動放射および内殻励起による特性 X 線の発生が起こる。高速電子の運動に対して核・イオンの運動は追従できないため電荷分離が起こり、電場勾配によりイオンが加速され高速イオンが発生する。こうした大筋のメカニズムに加え、実際のプロセスにおける詳細なメカニズムには、プレパルスにより発生するプレプラズマとレーザーとの相互作用やプラズマシースの影響、リターンカレントなどが作用することになる。以下に高速電子発生・高エネルギーイオン発生・硬 X 線パルス発生の研究について述べる。

#### 1.1 高速電子線発生

薄膜固体ターゲットに高強度フェムト秒レーザー光を集光照射すると、レーザーの進行方向すなわち薄膜の照射裏面方向に 1 MeV 以上にまで加速された高速電子の放出が観測される<sup>1,2)</sup>。図 1 はパルス幅 43 fs、中心波長 780 nm のレーザー光を厚さ 30  $\mu$ m の銅テープターゲットに  $2.7 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度で集光照射した際に発生する電子線のエネルギースペクトルを表したものである。測定した電子線の方向は薄膜のレーザー照射裏面垂直方向で、エネルギー測定には磁場分離型スペクトロメーターを用いている。ただし、薄膜に対するレーザー照射は表面垂直方

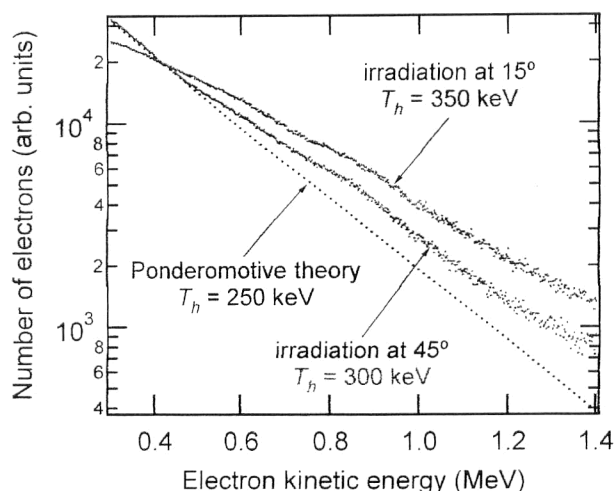


図1 銅薄膜ターゲットに  $2.7 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  の強度で 43 fs のレーザー光を照射した際にターゲット裏面に発生する電子のエネルギー分布。

向に 15 度あるいは 45 度傾けて照射している。エネルギースペクトルに示されるように 1.4 MeV までのエネルギーをもつ高速電子が発生していることがわかる<sup>1)</sup>。また高速電子の電子温度は 15 度照射のときに 350 keV、45 度照射のときに 300 keV と見積もられる。この温度は照射レーザーのポンドラモーティブポテンシャル 250 keV よりも若干高めではあるが、ここでの電子加速の基本的なメカニズムはポンドラモーティブ力によるものと考えられる。

### 1.2 高エネルギーイオン発生

強光子場と固体ターゲットとの相互作用によるイオン加速では主に高エネルギープロトンの発生が報告されている。Maksimchuk ら<sup>2)</sup> はパルス幅 400 fs、波長  $0.5 \mu\text{m}$  のレーザー光を厚さ  $1.8 \mu\text{m}$  のアルミニウム薄膜ターゲットに  $3 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  のレーザー強度で集光照射し、薄膜裏面側に放出される高エネルギーイオンの測定を行い、1.5 MeV にまで達するプロトンビームを観測した。このプロトンはアルミニウム表面に吸着した不純物（水あるいは有機物）に起因するもので、薄膜を突き抜けて裏面に放出される。プロトンは初期の高速電子放出による電荷分離で形成される電場によって加速され、その加速電場は約 10 GeV/cm と見積もられることが報告されている。同様のプロトン加速は、高速電子発生の中で述べた銅薄膜の実験においても厚さ  $5 \mu\text{m}$  の薄膜を用いた場合に観測され、70 fs のパルス幅のレーザーを用いても 1 MeV まで加速されたプロトンの発生が確認された<sup>3)</sup>。

Nemoto ら<sup>4)</sup> は水素原子を多量に含む系として  $6 \mu\text{m}$  の厚さのマイラー ( $\text{H}_8\text{C}_{10}\text{O}_4$ ) にパルス幅 400 fs、波長  $1 \mu\text{m}$  のレーザー光を  $6 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  の強度で照射し、10 MeV のエネルギーをもつプロトンの発生を観測している。さら

にマイラー表面に重水素化したポリスチレン層（厚さ  $1 \mu\text{m}$  程度）を付けた試料を用いることで高エネルギー重水素イオンを発生させ、ボロン試料に衝突させる実験を行った。その結果高エネルギー重水素イオンとボロン同位体 ( $^{10}\text{B}$ ) との衝突により核反応 ( $^{10}\text{B}(\text{d},\text{n})^{11}\text{C}$ ) が起こり、ポジトロン発生核種である炭素同位体 ( $^{11}\text{C}$ ) が発生することを報告している。

### 1.3 硬 X 線パルス発生

レーザーと固体の相互作用によって生じるプラズマを利用した X 線源は大きく 2 つに分けられる。1 つはレーザー誘起の熱プラズマからの軟 X 線領域 (1 keV 以下のエネルギー域) での X 線放射<sup>5)</sup>、X 線レーザーや X 線顕微鏡との関連で多くの研究が行われている。もう 1 つは前述した高出力レーザーによって発生する高速電子を介したもので、高エネルギーの硬 X 線の発生を行うことができる<sup>6-10)</sup>。特別に区別する場合には、後者はレーザー誘起電子 X 線源 (laser-driven electron X-ray source: LEXS) とよばれる<sup>10)</sup>。ここでは LEXS による硬 X 線パルス発生について説明する。

高強度フェムト秒レーザーを用いた高エネルギー X 線の発生に関する実験は初め Kmetec ら<sup>11)</sup> によって 1992 年に行われた。彼らはパルス幅 120 fs のレーザー光を Ta ターゲット上に  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  のレーザー強度で照射し発生する X 線のエネルギーを調べた。20 keV から 1 MeV の範囲でエネルギー分布を調べ、このエネルギー範囲でブロードに分布し 1 MeV まで達する高エネルギーの X 線が発生していることを報告している。また 20 keV 以上のエネルギーの X 線へのエネルギー変換効率が 0.3% に達することを報告している。こうした高エネルギーの X 線パルスは、先に述べたように強光子場と固体の相互作用で発生する高速電子の制動放射によるものである。これ以外にも 10 keV 付近のエネルギー範囲では、金属の内殻励起による特性 X 線の発生が観測され、時間分解 X 線回折に应用されている。以下に特性 X 線パルスの発生に関して筆者らのグループの研究を基に説明する<sup>6-9,12)</sup>。

実験に用いているのは table-top-terawatt ( $T^3$ ) レーザーシステムで、チタンサファイアレーザー発振器からのレーザー光 (パルス幅 25 fs、中心波長 780 nm) を、300 ps にパルス伸張り再生増幅し、パルス YAG レーザーを用いた 2 段階のマルチパス増幅器により最大 400 mJ/pulse まで増幅し、真空チャンバー内のグレーティングペアにより 40 fs までパルス圧縮する (最大エネルギー 200 mJ/pulse: 尖頭出力 5 TW)。またプレパルスのメインパルスに対する強度比は  $10^{-6}$  である。フェムト秒パルスレーザー光は真空チャ

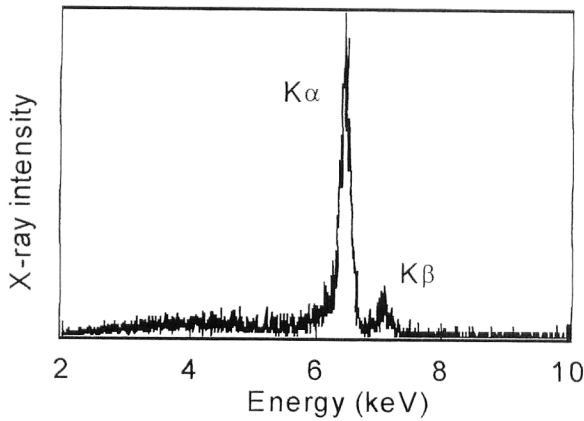


図2 鉄ディスクターゲットに強度約  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> でレーザー光を集光した際に発生する X 線のエネルギースペクトル。

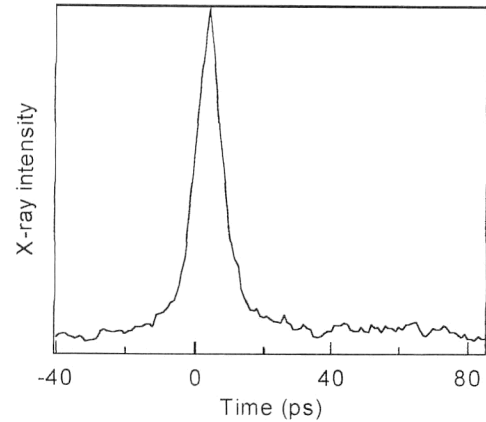


図3 鉄ディスクターゲットに強度約  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> でレーザー光を集光した際に発生する X 線のパルス幅。

ンバー内 ( $<10^{-6}$  Torr) で軸外し放物面鏡により金属ターゲットに集光照射され、 $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> 以上の高強度レーザー場を作りだすことができる。発生した X 線パルスのエネルギースペクトル・パルス幅は半導体検出器や X 線ストリークカメラを用いて調べた<sup>6,8)</sup>。

図2に鉄ディスクターゲット(厚さ約5 mm)上にパワー密度約  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> でレーザーを集光照射した際に発生する X 線のエネルギースペクトル(2~10 keV 領域)を直接検出型 X 線 CCD で測定したスペクトルを示す。強度の強い FeK<sub>α</sub> 線と FeK<sub>β</sub> 線の特性 X 線と 3~7 keV にわたる連続成分から構成されている<sup>12)</sup>。連続 X 線に対して特性 X 線の強度比は高く、単色化を行わなくても X 線回折に利用できることがわかる。同様に他の金属ターゲット(Ti, Fe, Ni, Cu, Zn)に関しても K 殻特性 X 線の発生が観測される。K 殻特性 X 線はほぼ等方的に放射されており<sup>9)</sup>、レーザー集光点から 100 mm 離れた位置において X 線フォトダイオード(XPD)によって銅ターゲットから発生する CuK<sub>α</sub> 線の光子数は  $5.2 \times 10^5$  photons/pulse/mm<sup>2</sup> (バンド幅 0.3% 以下)と求められた。大型放射光施設で得られる X 線パルスの輝度よりも 100 倍程度高い高輝度の短パルス X 線を発生できるが、指向性がないため有効に利用するには X 線集光を行う必要がある。

図3は鉄ディスクターゲットから発生した X 線のパルス幅を X 線ストリークカメラ(時間分解能 2 ps)を用いて測定した結果を示したものである。これから X 線パルスの半値幅は約 9 ps と見積もられた<sup>12)</sup>。測定された X 線のパルス幅は照射レーザーのパルス幅(40 fs)の約 200 倍になっている。これは、プレパルスで発生したプラズマ中の電子の影響やリターンカレント、さらに金属ターゲット内での電子輸送の影響によるものと考えられる。LEXS で発生するパルス X 線のパルス幅は、ターゲットの種類や形状、

レーザープロファイルに大きく依存する。Feurer ら<sup>13)</sup>はシリコンをターゲットとしてパルス幅 80 fs のレーザー光を  $3 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> で集光照射して SiK<sub>α</sub> 線を発生させ、320 nm 厚さの CdTe(111) 層のレーザー励起高速融解に伴う X 線散乱強度の変化を測定する相互相関法により X 線パルス幅の測定を行った。その結果 X 線パルス幅が 200 fs から 640 fs の間にあることを示している。

## 2. 超高速時間分解 X 線回折による結晶格子ダイナミクス

LEXS による硬 X 線パルスはレーザー光と完全同期しているため、ポンプ-プローブ法を用いることによりレーザー光励起した物質の超高速時間分解 X 線回折測定が可能である<sup>12,14-20)</sup>。X 線は可視・紫外光と違って内殻電子と相互作用するため原子位置情報を直接的に得ることができる。とくに X 線回折を用いることにより結晶構造の情報を得ることができ、これまで分子動力学などの計算で推察するしかなかった相転移過程や化学反応過程の構造変化の様子を実時間で直接測定することができる<sup>14)</sup>。

1997 年のフェムト秒レーザーによる硬 X 線パルスを用いたポンプ-プローブ型の時間分解 X 線回折の最初の論文で Rischel ら<sup>15)</sup>は Cd 原子を含むラングミア-プロシエット膜をフェムト秒レーザー照射し、熱膨張する前の Cd 原子層の乱れに起因するブラッグ回折強度の変化を時間分解測定している。Rose-Petruck ら<sup>16)</sup>はフェムト秒レーザー光を照射した GaAs 結晶をピコ秒時間分解 X 線回折測定することにより結晶内部への音響フォノン伝播過程を直接観測した。また Siders ら<sup>17)</sup>は Si 基板上的 Ge 薄膜にフェムト秒レーザー光を照射し、超高速の非熱的融解現象を時間分解 X 線回折で観測している。以下には筆者らのグループで行った 300 ps レーザー照射した Si 結晶のピコ秒時間

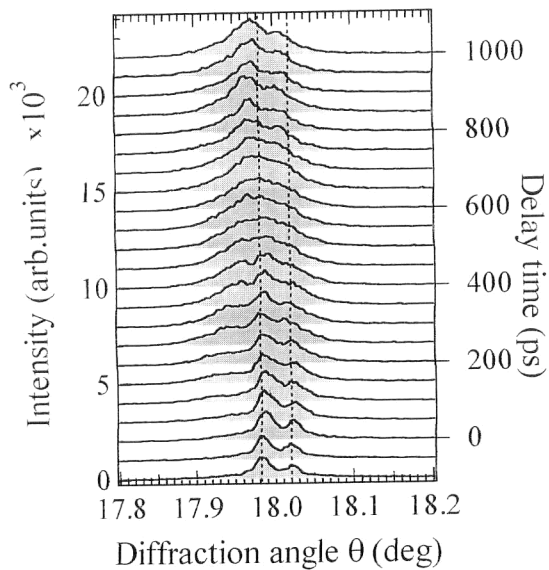


図4 Si(111)面の300 psレーザー光を1 J/cm<sup>2</sup>で照射した際のピコ秒時間分解X線回折：時間ステップ50 ps.

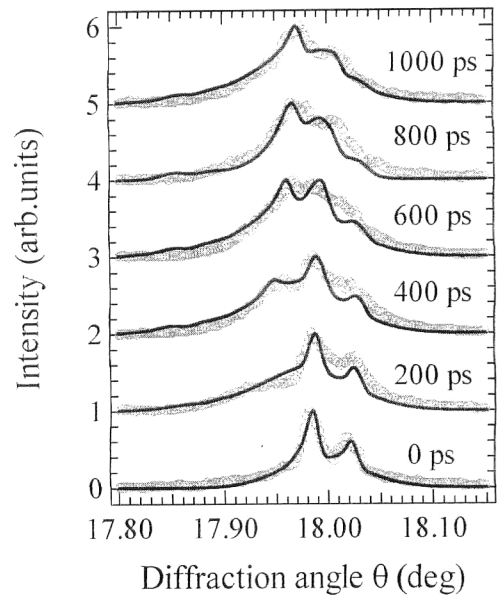


図6 Si(111)面の300 psレーザー光を1 J/cm<sup>2</sup>で照射した際に生じる内部歪み分布の数値シミュレーションを基に動力的回折理論により計算したロッキングカーブと実測値(○)との比較.

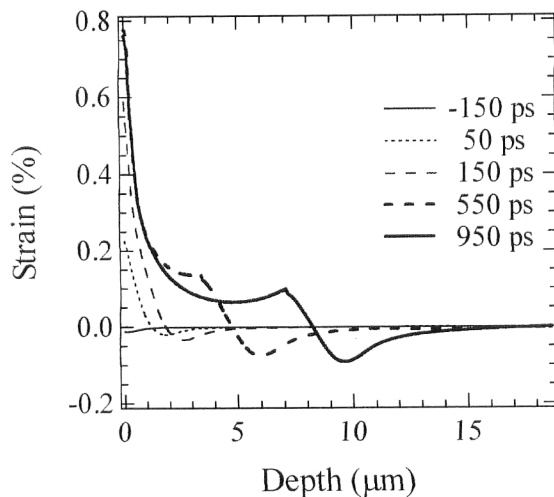


図5 Si(111)面の300 psレーザー光を1 J/cm<sup>2</sup>で照射した際に生じる内部歪み分布の数値シミュレーション.

分解X線回折測定の研究<sup>12,20)</sup>を例として超高速時間分解X線回折について説明する.

T<sup>3</sup>レーザーシステムにおいてパルス圧縮前の300 psレーザー光をビームスプリッターにより適当な強度比で2つに分岐し、一方を50 fsにパルス圧縮後金属に集光照射し硬X線パルス(10 ps程度)を発生させ、もう一方は光学遅延回路を経由した後試料表面(Si(111)面)に照射する. 300 psレーザー光が光励起用のポンプ光で硬X線パルスが現象を観測するためのプローブ光に対応し、ポンプ-プローブ法による時間分解X線回折を行った. ここでは時間ステップを約50 psで測定した. 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>で50 fsレーザー光で照射しFeK<sub>α</sub>線を発生させ、Be窓を通して大気

中に取り出し、X線回折を行った. X線回折はブラッグ回折の配置で測定し、回折したX線は液体窒素冷却のX線CCDカメラで検出した. X線回折像は600回のデータ積算により取得した<sup>12)</sup>.

図4に300 psレーザー光を1×4 mm<sup>2</sup>のスポットに1 J/cm<sup>2</sup>のエネルギー密度で照射したときに50 ps時間間隔で測定した時間分解X線回折(ロッキングカーブ)を示す. 照射前にみられる2本線はFeK<sub>α1</sub>(1.9360 Å)線とFeK<sub>α2</sub>(1.9399 Å)線である. レーザーを照射するとX線回折像が変化を始め、照射初期は低角度側へのシフト成分が増加し、約200 psにおいてFeK<sub>α1</sub>線のシフト量が最大値(-0.08度)に達する. その後シフト量が徐々に減少し、シフトしたFeK<sub>α2</sub>線に近づいていき、遅延時間約600 ps後には見かけ上1本線になる. さらに遅い遅延時間では元の2本線が全体的に低角度側にシフトした回折像となる. 最終的なシフト量は-0.02度となる. 低角度側のシフトは格子間隔の増加すなわち格子膨張を表している<sup>12,20)</sup>. また回折X線強度が増加しているが、これは結晶内部に歪み分布が存在するためにX線回折が動力的回折から運動学的回折に変わっていることによるものである.

シリコン結晶に照射したレーザー光(780 nm)の光エネルギーはバンドギャップよりも大きいため、まずバンド間の実吸収が起き電子-ホール対が形成される. キャリヤーが生成されるとバンド間吸収に加えて光のキャリヤー吸収も起こる. 電子-ホール対はオージェ再結

合により光学フォノンを励起する。光学フォノンから音響フォノンへエネルギー移動するにつれて、結晶格子温度が上がるとともに表面から格子歪みが発生し、結晶格子内部に伝播していくと考えられる。これらの過程はキャリアー、格子温度に対する速度論計算と格子歪みに対する流体計算によりシミュレートすることができる<sup>20)</sup>。図5に格子歪みに対するシミュレーション結果を示す。表面で最大0.9%の格子膨張がみられ、歪みに先端部が音速9.4 km/sで結晶内部に進展していく様子がみてとれる。シミュレーション結果を基に動力学的理論で計算した各遅延時間におけるX線回折像を図6に示す。実測されたX線回折像の時間変化がよく再現されており、レーザー加熱シリコン結晶の格子歪みダイナミクスがピコ秒の時間分解能でX線回折により直接観測することができていることが示された。

高強度フェムト秒レーザー光を金属に集光照射することにより高エネルギーのパルス量子ビームを発生させることが可能となった。硬X線パルスとレーザー光を用い、ポンプ・プローブ型の時間分解測定を行うことによりピコ秒の時間分解能で時間分解X線回折測定を行うことができ、光励起半導体内部の結晶格子ダイナミクスが直接測定されるようになった。こうした研究により、励起非平衡状態から平衡状態への構造安定化過程を研究するといった固体ダイナミクス研究への新しい展開が拓かれると期待される。

## 文 献

- 1) Y. Oishi, T. Nayuki, K. Nemoto, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura and K. Kondo: "Production of relativistic electrons by irradiation of 43-fs laser pulses on copper film," *Appl. Phys. Lett.*, **79** (2001) 1234-1236.
- 2) A. Maksimchuk, S. Gu, K. Flippo, D. Umstadter and V. Yu. Byhenkov: "Forward ion acceleration in thin films driven by a high-intensity laser," *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 4108-4111.
- 3) Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, Y. Takizawa, T. Kayoiji, K. Horioka, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura and K. Kondo: "Production of fast ions by irradiation of ultrashort laser pulses on copper tape," *Abstracts of JST International Symposium on Control of Molecules in Intense Laser Fields* (Tokyo, 2002) p. 17.
- 4) K. Nemoto, A. Maksimchuk, S. Banerjee, K. Fippo, G. Mourou, D. Umstadter and V. Yu. Byhenkov: "Laser-triggered ion acceleration and table top isotope production," *Appl. Phys. Lett.*, **78** (2001) 595-597.
- 5) H. Nakano, T. Nishikawa, H. Ahn and N. Uesugi: "Temporal evolution of soft x-ray pulse emitted from aluminum plasma produced by a pair of Ti:sapphire laser pulses," *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996) 2992-2994.
- 6) M. Yoshida, Y. Hironaka, Y. Fujimoto, K. G. Nakamura, K. Kondo, M. Ohtani and H. Tsunemi: "Generation of picosecond hard x-rays by terawatt laser focusing on a copper target," *Appl. Phys. Lett.*, **73** (1998) 2329-2395.
- 7) Y. Hironaka, Y. Fujimoto, K. G. Nakamura, K. Kondo and M. Yoshida: "Enhancement of hard x-ray emission from a copper target by multiple shots of femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. Lett.*, **74** (1999) 1645-1647.
- 8) Y. Fujimoto, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, K. Kondo, M. Yoshida, M. Ohtani and H. Tsunemi: "Spectroscopy of hard x-rays (2-15 keV) generated by focusing femtosecond laser on metal targets," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** (1999) 6754-6756.
- 9) Y. Hironaka, K. G. Nakamura and K. Kondo: "Angular distribution of x-ray emission from a copper target irradiated with a femtosecond laser," *Appl. Phys. Lett.*, **77** (2000) 4110-4111.
- 10) T. Guo, Ch. Spielmann, B. C. Walker and C. P. J. Barty: "Generation of hard x-rays by ultrafast terawatt lasers," *Rev. Sci. Instrum.*, **72** (2001) 41-47.
- 11) J. D. Kmetec, C. L. Gordon, J. J. Macklin, B. E. Lemoff, G. S. Brown and S. E. Harris: "MeV x-ray generation with a femtosecond laser," *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 1527-1530.
- 12) A. Yazaki, H. Kishimura, Y. Hironaka, K. G. Nakamura and K. Kondo: "Picosecond time-resolved x-ray diffraction of a photoexcited silicon crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** (2002) 1614-1615.
- 13) T. Feurer, A. Morak, I. Uschmann, Ch. Ziener, H. Schwoere, Ch. Reich, P. Gibbon, E. Forster, R. Sauerbrey, K. Ortner and C. R. Becker: "Femtosecond silicon Ka pulses from laser-produced plasmas," *Phys. Rev. E*, **65** (2001) article no. 016412.
- 14) J. R. Helliwell and P. M. Rentzepis (eds.): *Time-Resolved Diffraction* (Clarendon Press, Oxford, 1997) pp. 44-70.
- 15) C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P. Albouy, J. Geindre, P. Audebert, J. Gauthier, E. Förster, J. Martin and A. Antonetti: "Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films," *Nature*, **390** (1997) 490-492.
- 16) 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. J. Barty: "Picosecond milliangstrom lattice dynamics measured by ultrafast x-ray diffraction," *Nature*, **398** (1999) 310-312.
- 17) C. W. Siders, A. Cavalleri, K. Sokolowski-Tinten, Cs. Tóth, T. Guo, M. Kammler, M. Horn von Hoegen, K. R. Wilson, D. von der Linde and C. P. J. Barty: "Detection of nonthermal melting by ultrafast x-ray diffraction," *Science*, **286** (1999) 1340-1342.
- 18) T. Guo, C. Rose-Petruck, R. Jimenez, F. Raksi, J. Squier, B. Walker, K. R. Wilson and C. P. J. Barty: "Picosecond-milliangstrom resolution dynamics by ultrafast x-ray diffraction," *SPIE*, **3157** (1997) 84-92.
- 19) Y. Hironaka, A. Yazaki, F. Saito, K. G. Nakamura, H. Takenaka and M. Yoshida: "Evolving shock-wave profiles measured in a silicon crystal by picosecond time-resolved x-ray diffraction," *Appl. Phys. Lett.*, **77** (2000) 1967-1969.
- 20) H. Kishimura, A. Yazaki, H. Kawano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura and K. Kondo: "Picosecond structural dynamics in photoexcited Si probed by time-resolved x-ray diffraction," *J. Chem. Phys.*, **117** (2002) 10239-10243.

(2002年8月15日受理)