

「X線自由電子レーザー利用装置提案課題」
報告書

非平衡圧縮状態生成と超高時間分解X線回折装置の整備

(責任者) 兒玉 了祐 (大阪大学 光科学センター)
(参画者) 佐野 智一 (大阪大学 工学研究科)
尾崎 典雅 (大阪大学 工学研究科)
坂田 修身 (物質・材料研究機構)
犬伏 雄一 (理化学研究所)

1. 装置提案目的

非平衡圧縮特有の超高速現象を XFEL によりシングルイベントでその場計測する世界で唯一の装置を開発することによって、非平衡圧縮法によってのみ創成可能な新物質相凍結機構を解明し、さらに新しい高エネルギー密度物質相創成の指導原理を構築するための手法の確立を目的とする。

高強度フェムト秒レーザーを物質に照射することによって物質内部に非平衡圧縮状態を生成し、その非平衡圧縮状態における物質構造変化を XFEL による超高時間分解でその場 X 線回折測定し、またその圧縮状態をフェムト秒レーザーその場状態計測システムによって計測する装置の基盤を構築した。これらをカップリングすることによって、非平衡なランダム過渡現象のシングルショットその場診断が可能となる。

2. 装置の概要

我々が整備した装置は、非平衡圧縮状態生成装置とフェムト秒レーザーその場状態計測システムから構成される。最終的にはこれら2つの装置をカップリングすることによって、非平衡なランダム過渡現象を巨視的かつ微視的にシングルショットでその場診断するシステムとなる。それぞれの装置の概要及び仕様を以下に記す。

2-1. 非平衡圧縮状態生成装置

本装置は、高強度フェムト秒レーザーシステムと高出力ナノ秒レーザーシステムから構成される。

2-1-1. 高強度フェムト秒レーザーシステム

既存のフェムト秒レーザーシステムをアップグレードすることによってエネルギーを増大し、またプレパルスとのコントラスト比を向上させる。XFEL パルスとフェムト秒レーザーパルスとの入射タイミングを変えることによって、物質状態変化の時間進展を知ることが出来る。アップグレード後の高強度フェムト秒レーザーの仕様を以下に記す。

波長	800 nm
パルス幅	< 40 fs
パルスエネルギー	> 100 mJ
繰返周波数	10 Hz
コントラスト比	$\sim 10^6:1$
ビーム径 (@ $1/e^2$)	35 mm
空間モード	TEM ₀₀ , $M^2 < 1.5$
偏光	リニア水平

2-1-2. 高出力ナノ秒レーザーシステム

高強度フェムト秒レーザーシステムの励起用光源をスプリッターで取り出し単独で用いることを可能とした。本システムの仕様を以下に記す。

波長	532 nm
パルス幅	5-7 ns
パルスエネルギー	> 600 mJ
繰返周波数	10 Hz
ビーム径 (@ $1/e^2$)	9 mm
偏光	リニア垂直

2-2. 可視光を用いた超高速現象のその場状態計測システム

周波数ドメイン干渉計、線結像型速度干渉計といった、圧縮・圧力解放過程における物質特性変化およびダイナミクスの特徴化を行うための超高速診断システムの基盤を構築した。非平衡な過渡的圧縮解放過程を、常に実時間でモニタリングするシステムとして確立するため、これら超高速ダイナミクスその場状態計測システムの設計試作、およびテスト実験を行い、SACLA ビームラインに持ち込める状態にすることができた。以下に具体的に示す。

2-2-1. 周波数ドメイン干渉計 (FDI: Frequency Domain Interferometer)

超高速ダイナミクス観測のために、フェムト秒時間分解能を有するイメージング手法として周波数ドメイン干渉計の設置を計画している。本研究では、FDI 計測系の設計試作を行い、シリコン薄膜を用いたテスト実験を行った。チタンサファイアレーザーシステムで生成する極短パルスの 0.1% オーダーのエネルギーをプローブパルスとして切り出して使用する FDI 計測系を構築した。構築した予備実験系を概念的に図 1 に示す。

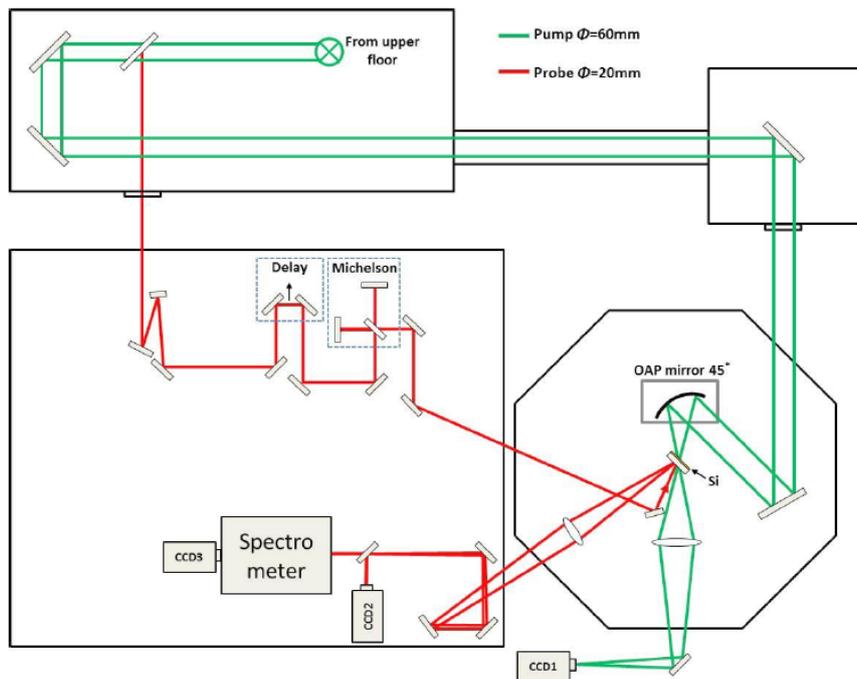


図 1; FDI 実験のセットアップ

グリーンがポンプパルス、赤が切り出されたプローブパルスである。レーザーパルスは 70-200 fs の範囲で可変であり、本研究では 200 fs とした。ポンプパルスは、オンターゲットのエネルギーが約 10 mJ で、45 度入射の放物面鏡によってターゲット上で直径約 20 μm 程度のスポットに集光されている。

ターゲットにはソーダライムガラスに厚さ 0.5-2 μm のシリコンをコーティングしたものをを用いた。ソーダライムガラスは、フェーズドシリカなどと比べて、40 GPa までの圧力で高压相転移が無いいため本実験の基盤として適している。

プローブパルスは、ポンプパルスとの同期を得るための遅延光路を通った後、マイケルソン干渉

計型の波面分割部に入射し、参照波とプローブ波に分けられる。これにより形成されたダブルパルスはターゲットに導入され、反射された光が分光器と CCD カメラからなる検出部によって検出される。時間的に分離した両パルスは分光器の内部で結合し周波数領域で干渉縞を形成する。その原理から、周波数領域の干渉縞が生成する縞間隔はダブルパルスの時間間隔に逆比例する。マイケルソン干渉計部における可変ミラーのある位置を基準として（図 2 中央）、このミラーを $\pm 20 \mu\text{m}$ （それぞれ図 2 左と 2 右）変位させると干渉縞間隔は予想通り増減した。このフリンジ間隔の変化から、ダブルパルスの時間間隔を求めると、図 2 の左から順に 129 fs、179 fs、270 fs であることがわかった。

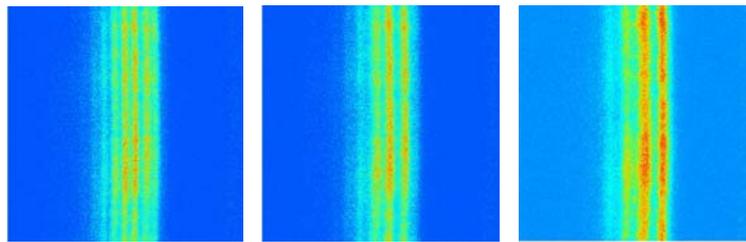


図 2; マイケルソン干渉部の可変ミラー位置が任意の基準位置（中央）に対して、 $+20 \mu\text{m}$ （左）、 $-20 \mu\text{m}$ （右）のときの干渉像の変化

ポンプパルスの照射によってターゲット面に高速運動が駆動され、この反射面の変化がプローブパルスと同期した場合には、ダブルパルス間で位相変化が生じる。FDI ではこの位相変化を干渉縞シフトから読み取ることができ、この位相変化から反射面の速度を決定することができる。図 3 にシリコン薄膜ターゲットを用いた予備実験の結果を示す。左は同期がなされていない場合の画像であり、右は同期がとれた場合の画像である。横軸は波長であると共に時間であり、縦軸は空間である。図の画像サイズは波長 170 nm とターゲット上空間 2.5 mm 程度に対応している。ターゲット裏面の数ナノメートルオーダーの微小な変化が、サブピコ秒の時間分解で観測されたことを意味している。

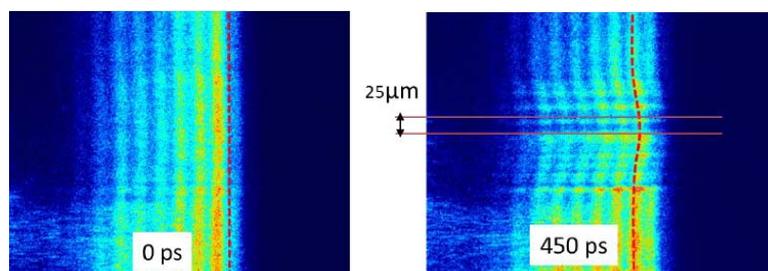


図 3; ポンプパルスが誘起するターゲット面の運動とプローブパルスの同期がとれていない場合（左）と同期がなされた場合（右）の干渉像変化の例

2-2-2. 線結像型速度干渉計 (VISAR: Velocity Interferometer System for Any Reflector)

レーザー衝撃圧縮プロセスの高速運動を調べるため、速度干渉計の設置を計画している。超高速圧縮された物質内部の圧力や体積を正確にモニターすること、および圧力解放プロセスを観測す

ること、などの要請にこたえるため、比較的長い時間レンジ（サブナノ～100 ns 程度）でピコ秒時間分解可能なイメージング手法として線結像型速度干渉計 VISAR システムの導入を検討している。さらには、シリコンをはじめとする半導体物質の高圧相凍結過程の理解に向けて、シリコンに対して光学的に薄い光である赤外光を用いた VISAR の設計試作を行い、予備実験を行った。

構築した赤外速度干渉計の概念図を図 2 に示す。ターゲットで反射された波長 1064 nm のプローブ光は、ストリークカメラまで像転送される。ターゲットチャンバー内のレンズ系で補修された光は（図 2 中には示さず）、 ωL_2 によってコリメートされ、1064 nm の光のみ透過するレーザーラインフィルターを通る。その後 ωL_4 によって VISAR 干渉計部に導入され、干渉部の 2 枚目のビームスプリッタ上で結像する。また、VISAR 中の 2 アームで分岐されたビームは同じくこのビームスプリッタ上で結合し干渉縞を形成する。つまり、ターゲット像面に干渉縞がオーバーラップしていることになる。この干渉像は ωL_5 によってストリークカメラスリット上にイメージリレーされた。本研究によって試作された赤外 VISAR の空間分解能と時間分解能はそれぞれ約 $9 \mu\text{m}$ 、110 ps と評価された。

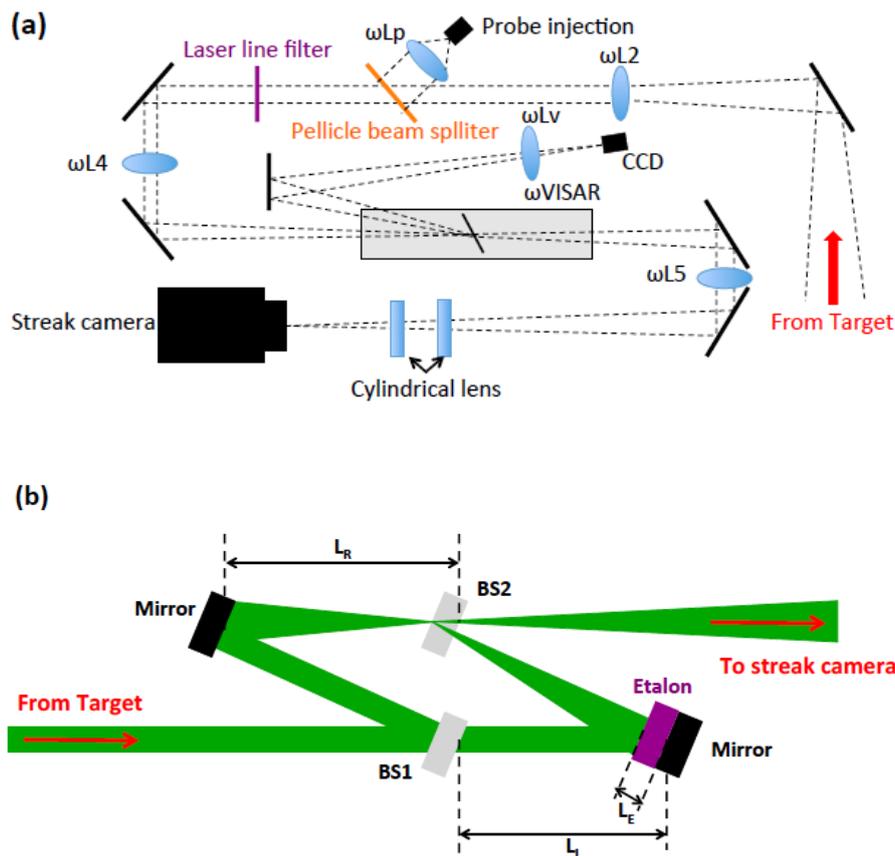


図 4; (a) 赤外 VISAR の全体構成と (b) 干渉計部

図 5(a) に実験配置の概略図を示す。被観測試料である Si 箔は、CH アブレータと Al からなる基盤に接着されている。このターゲットに高強度レーザービームを集光照射して、平面衝撃波を駆動し、Si を衝撃圧縮した。レーザー波長は 527 nm、照射スポットのサイズは直径 1000 nm、パルス波形は

半値幅約 2.5 ns の矩形波であった。ターゲット上での実効的なレーザー強度は、およそ $6 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ であった。計測には、赤外 VISAR と同時に YAG レーザーの 2 倍高調波 (532 nm) をプローブとした可視 VISAR を用いた。

衝撃圧縮下で電子密度が十分に増大すると、衝撃波面そのものが金属的な反射率を持つ。従って VISAR を用いれば、反射率を持つ衝撃波面の速度を直接計測できる。Si は 532 nm の光に対して不透明であるが、1064 nm の光に対しては吸収係数 11.1 cm^{-1} 、および自由表面によるフレネル反射率 31.4% を考慮すると、実験で用いた $53 \mu\text{m}$ 厚の試料では、透過率 64.9% と見積もられる。実際のターゲットでは、自由表面フレネル反射を抑制するために、1064 nm の光に対する無反射コーティングを施したので、透過率は 95% 以上となる。つまり、532 nm のプローブ光はほとんど Si 自由表面で反射されてしまうが、1064 nm の光は Si 内部まで侵入できることを意味する。

図 1(b) と 1(c) に、赤外および可視 VISAR の画像データをそれぞれ示す。図 1(b) では、衝撃波が Al/Si 界面に到達した時刻 $t = 0$ に、フリンジの不連続なジャンプ、およびそれ以降では連続的な変化を観測した。一方、図 1(c) では、532 nm の光は Si 内部に侵入できないことから、同時刻でのフリンジシフトは全く確認できない。 $t = 4.53 \text{ ns}$ では、反射率が赤外および可視の両 VISAR で急激に減衰した。これは衝撃波が Si 自由表面に到達したことを表している。干渉像の詳細な位相解析により、時刻 $0 < t < 1$ の範囲では衝撃波が約 12 km/s の速度で伝搬するとともに、自由表面に到達する直前では 10.1 km/s まで減衰していることがわかった。この結果から、シリコン中を伝搬するレーザー駆動衝撃波の速度が時間的に変化していることがわかった。すなわち圧力や体積、内部エネルギーといった衝撃圧縮下の状態量が緩やかに変化していることを示唆している。

本研究開発によって、Si 中を伝搬する衝撃波面の直接観測および刻々と変化する衝撃波速度の計測を行うことが可能になった。SACLA ビームラインにおいて、圧力をはじめとする状態量のモニタリングや、圧縮解放プロセスの観察に向けて重要な成果を得ることができた。

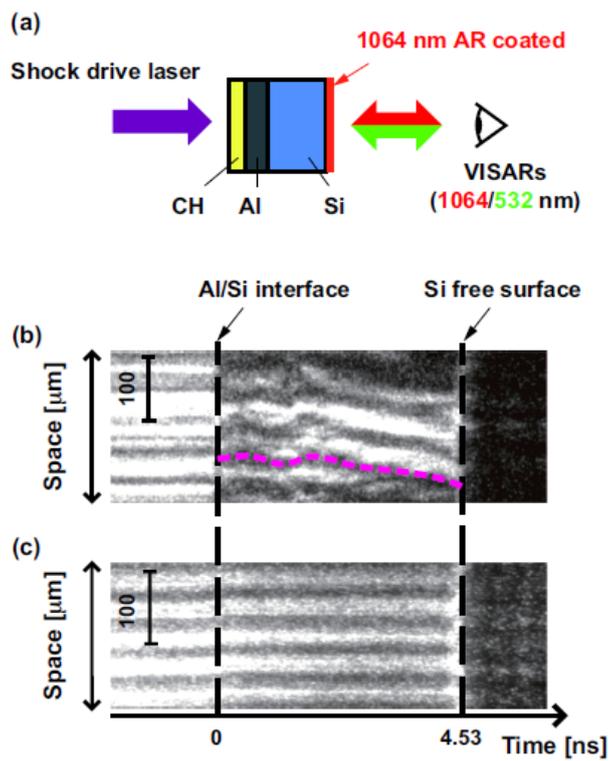


図 5; (a) 実験配置の概略図 (b) 赤外 VISAR データ (c) 可視 VISAR データ