

レーザー駆動 X 線を用いた フェムト秒レーザー駆動衝撃波の超高速イメージング

国立研究開発法人 産業技術総合研究所
分析計測標準研究部門 放射線イメージング計測研究グループ
上級主任研究員 三浦 永祐
(2020 年度 一般研究開発助成 AF-2020213-B2)

キーワード：レーザーピーニング、レーザー加速、ベータトロン X 線、フェムト秒 X 線パルス

1. 研究の目的と背景

金属材料にレーザーを照射し、表面がプラズマとして噴出する際に発生するアブレーション圧力によって材料内部に衝撃波を伝搬させて圧縮応力層を形成し、材料を改質、強靱化して金属疲労や応力腐食割れを防止する手法としてレーザーピーニングの研究が進められている。衝撃波を駆動するアブレーション圧力はレーザー強度の $2/3$ 乗に比例する。これまでレーザーピーニングではパルス幅がナノ秒領域のレーザーパルスが用いられているが、高い衝撃圧力を得るために高エネルギーのナノ秒レーザーパルスを用いた場合、表面が高温のプラズマに長い時間さらされ、亀裂発生、進展を促す引張応力層が形成される。一方、フェムト秒レーザーを用いた場合、少ないパルスエネルギーで高いレーザー強度が得られ、高い衝撃圧力を付与することができる。また、プラズマの持続時間も短く材料表面に与える熱的影響も抑制できる。このような利点、特徴を兼ね備えたフェムト秒レーザーピーニングが提案され¹⁾、その研究が進展している。近年、フェムト秒レーザーピーニングの機構解明も進展しており、従来のナノ秒レーザーピーニングでは形成されない高密度転位を有するナノ結晶粒が形成されることが報告され²⁾、巨大な弾性ひずみが超高速に誘起されることにより高密度転位が形成されると考えられている。フェムト秒レーザーピーニングは、従来のナノ秒レーザーピーニング等とは機構が異なることが示唆されている。加工機構をより詳細に調べ加工を高度化するには、フェムト秒レーザー駆動衝撃波の材料中での挙動を観測する必要がある。シミュレーションによってその特性が調べられており、数 10 GPa という極めて高い圧力が材料に付与されるだけでなく、ピコ秒程度の高速の圧力上昇、急峻な波頭を持つ超短パルスの衝撃波が誘起されることが示されている³⁾。

これらの特性を実験的検証するには、金属材料内部の衝撃波挙動を非破壊で観測できる手法が必要とされる。ピコ秒の立ち上がりおよびパルス幅を持つフェムト秒レーザー駆動衝撃波の金属材料中での挙動を高い時間分解能で観測するには、フェムト秒 X 線パルスを用いた計測手法が必要となる。本研究では、超短パルス高強度レーザーとプラズマの相互作用を利用した電子加速（以下、レーザー加速）を利用してフェムト秒 X 線パルスを発生し、その X

線パルスを用いた時間分解ラジオグラフィ法に基づく衝撃波イメージングシステムを開発し、フェムト秒レーザーが金属材料内部に駆動する衝撃波挙動を明らかにすることを目的とした。

2. レーザー駆動 X 線を用いた衝撃波イメージングシステム

図 1 はレーザー加速のシミュレーション結果の一例で、2 次元プラズマ電子密度分布を示す。レーザー加速では、高強度レーザーパルスによってプラズマ中に励起される電子の疎密波であるプラズマ波の電場によって、電子は加速される。z 軸方向に沿って左から右に伝搬するレーザーパルスは図の右端に位置し、その直後の長さ 10 μm 余りの高密度領域に囲まれた低密度領域（プラズマ波の 1 周期に相当）に、電子群が捕捉されレーザー伝搬方向に加速される様子が捉えられている。加速方向の電子群の長さは 10 μm 程度、つまりパルス幅 30 fs の電子線パルスが発生している。一方で、この電子群は加速方向と直交方向のプラズマ波の形成する電場やレーザーパルス後端の電場を受けて振動し、蛇行運動しながら加速される。この時、放射光の様に空間指向性の高い X 線（以下、ベータトロン X 線）が発生する^{4,5)}。このベータトロン X 線のパルス幅は電子線パルス幅と同程度であり、フェムト秒 X 線パルスが発生する。レーザー駆動衝撃波のイメージングに、この X 線パルスを用いる。

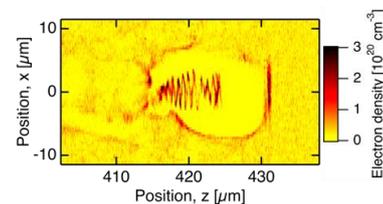


図 1 レーザー加速のシミュレーションの一例。

図 2 に本研究で開発を目指すレーザー駆動衝撃波イメージングシステムの概要を示す。金属ターゲットにレーザーパルスを照射し、材料内部に衝撃波を発生させる。レーザー加速によって発生するベータトロン X 線をレーザーによって衝撃圧力を受ける金属ターゲット側方から入射し、X 線透過像のスナップショットを観測する。衝撃波

によって強い圧縮を受けた領域の密度つまり X 線吸収率が高くなり、X 線吸収率の空間分布が発生する。X 線パルスとレーザーパルスの遅延時間を変化させ、ポンプ・プローブ法により X 線吸収率分布の時間発展を得、吸収率より密度を評価し、圧力、速度等の衝撃波の特性を評価する。

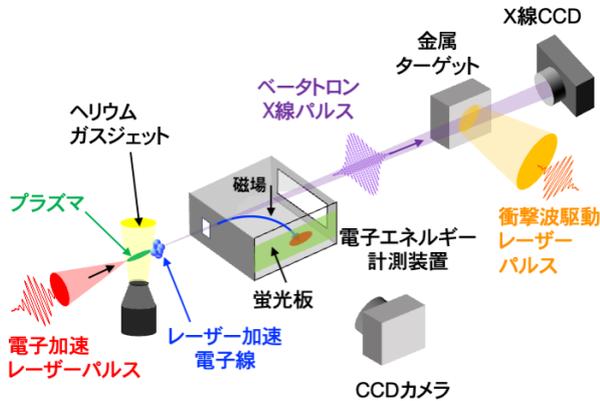


図 2 レーザー駆動 X 線を用いたレーザー駆動衝撃波イメージングシステムの概要。

図 2 の衝撃波を与える金属ターゲットの幅は、少なくともレーザーの集光径（数 $10 \mu\text{m}$ 程度）よりも大きくする必要があり、例えば、 $30 \mu\text{m}$ のアルミニウムの X 線透過像を得るには、光子エネルギーが 5 keV 以上の X 線が必要となる。ベータトロン X 線のエネルギーは電子線エネルギーの 2 乗に比例し、先行研究の理論モデルのスケールリング⁵⁾に基づくと、数 keV の X 線を得るにはエネルギー 150 MeV 以上の電子線をレーザー加速により発生する必要がある。

3. レーザー加速による高エネルギー電子線発生実験

3・1 チタンサファイアレーザー装置の高出力化

レーザー加速でより高エネルギーの電子線を得るために、ドライバーレーザーとなるフェムト秒チタンサファイアレーザー装置の高出力化を行った。パルス圧縮に高い回折効率を得られる溝本数が 1480 lines/mm の回折格子を利用することとして装置の改造を行った。

パルス伸長器には溝本数が 1200 lines/mm の回折格子が用いられているため、パルス伸長と圧縮に用いる回折格子の溝本数が異なる Mixed Grating 方式⁶⁾を採用した。パルス伸長器も Mixed Grating 方式に整合するように、回折格子への入射角の最適化等の改造を行った。計算値ではあるが、パルス伸長後のパルス幅（半値全幅）をこれまでの 350 ps から 500 ps に伸ばすことができ、増幅器列での非線形光学効果を低減することができた。最終増幅器後、パルス圧縮前で 1.6 J のパルスエネルギーが得られた。そのレーザースペクトルを図 3 (a) に示す。スペクトル幅は 35 nm （半値全幅）であった。圧縮後のレーザーパルスの特性を時間分解周波数ゲート法（Frequency

Resolved Optical Gating : FROG）で測定した。図 3 (b) はそのソノグラム像であり、パルス幅は 40 fs であった。Mixed Grating 方式は高次分散補償が可能という利点を有している。さらなるパルス圧縮器の調整が必要と考えられるが、残留高次分散の少ない FROG のソノグラム像が得られている。図 3 (c) (d) は、パルス圧縮後のレーザーパルスを焦点距離 720 mm の軸外し放物面鏡で集光した時の集光スポット像と x 軸、y 軸方向の空間プロファイルである。集光径は $13 \mu\text{m}$ （半値全幅）で、縦横比が $1 : 1.03$ と真円に近い集光スポット像が得られており、回折格子対の平行度も所定の精度で調整できていることを確認できた。また、パルス圧縮器のエネルギー透過率は 70% であった。

これらのレーザー装置の改良により、中心波長 800 nm 、エネルギー 1.1 J 、パルス幅 40 fs （ピークパワー 27 TW ）のレーザーパルスを得ることができ、これまでの 1.5 倍に出力を増強できた。

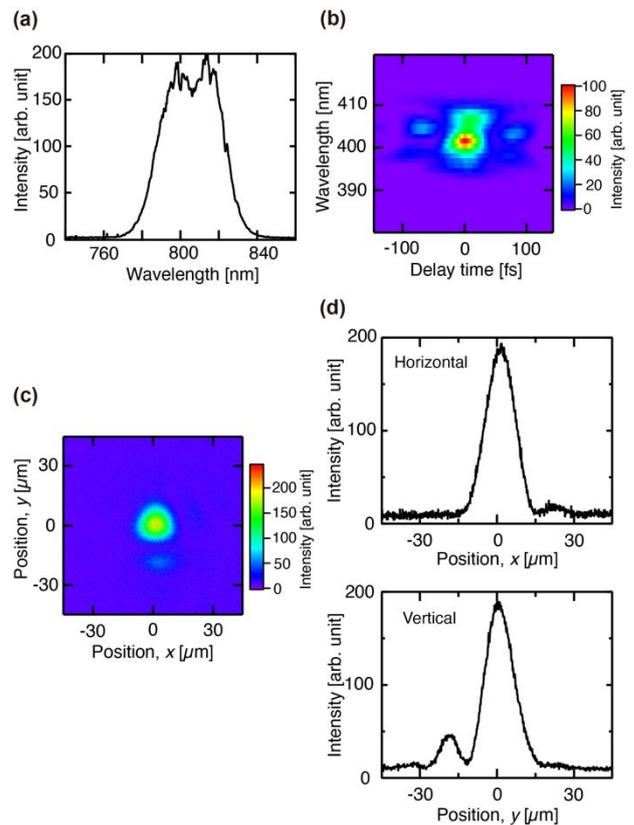


図 3 チタンサファイアレーザーの特性。(a) レーザースペクトル。(b) FROG ソノグラム像。(c) 集光スポット像と (d) その空間プロファイル。

3・2 電子加速実験

チタンサファイアレーザー装置の改造後、電子加速実験に着手した。実験配置は図 2 の左下に示す。波長 800 nm 、エネルギー 700 mJ 、パルス幅 40 fs の直線偏光のレーザーパルスを焦点距離 720 mm の軸外し放物面鏡で集光し、長さ 2 mm のヘリウムガスジェットに照射した。集光強

度は $4.7 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ であった。レーザー進行方向に加速される高エネルギー電子線を磁場（磁場強度 0.72 T ）で軌道を曲げてエネルギー分解する電子エネルギー計測装置に導き、電子線特性を評価した。エネルギー分解された電子像はイメージングプレート上に記録された。

図 4 はガス密度が $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ （プラズマ電子密度が $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ に相当）で得られた電子線の (a) エネルギー分解された電子像、(b) エネルギースペクトルである。図 4 (a) の電子像は 30 レーザーショットの重ね撮りで得られており、それを平均化して図 4 (b) のエネルギースペクトルを得ている。最高エネルギーは 100 MeV 、エネルギー分布が $N(E) = N_0 \exp(-E/T_{eff})$ の形のボルツマン状分布を持つ電子線が得られた。エネルギー分布の指標となる実効温度は、 $T_{eff} = 15 \text{ MeV}$ と見積もられた。また、 50 MeV 以上のエネルギーを持つ電子数は 10^6 個と見積もられた。ガスジェット密度を変化させて、電子線の特性を調べた。ガス密度が $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 以下では高エネルギー電子線は発生しなかった。

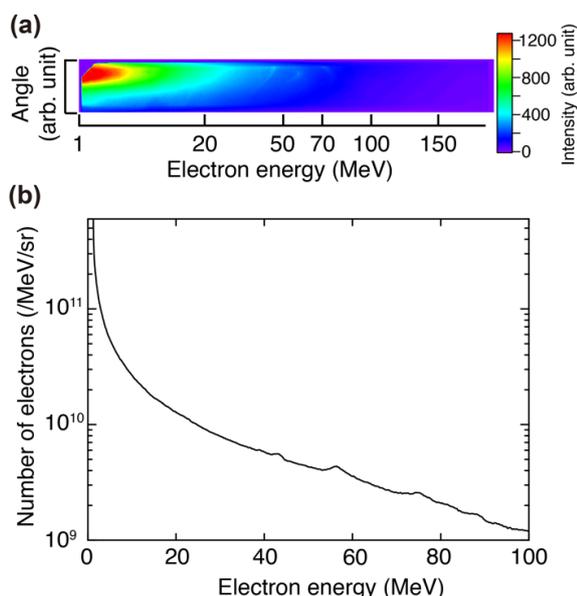


図 4 レーザー加速で得られた (a) エネルギー分解された電子像、(b) エネルギースペクトルの一例。

レーザー加速実験に着手することはできたが、レーザー装置を始め実験装置の故障が頻発した。新規に調達が必要となった装置もあり、世界的な半導体不足の影響もあり納品に想定以上の時間を要したため、研究期間のかなりの期間、電子加速実験を行うことができなかった。そのため、予定していたレーザー加速電子線の高性能化、ベータトロン X 線の特性評価、レーザー駆動衝撃波イメージングの実験を実施できなかった。

4. 粒子シミュレーションを用いた円偏光ベータトロン X 線発生の評価

レーザー加速で発生するベータトロン X 線は、フェム

ト秒の超短 X 線パルスであるという特徴に加え、ドライバレーザーパルスと同期しており、フェムト秒レーザープロセッシングにおいて誘起される超高速現象を観測するプローブとして有用である^{7,8)}。ベータトロン X 線をプローブとして利活用するには、その特性を制御できることが不可欠である。X 線の光子エネルギーは、電子線の特性を制御することによって制御可能である^{4,5)}。さらに、円偏光 X 線の発生等、偏光特性の制御機能が加われば、その利用範囲を拡張することが期待できる。

近年、超高速メモリを開発するために、フェムト秒レーザーを用いて磁性体の磁性を超高速で制御し、その磁性変化のダイナミクスを超短パルス X 線で観測する研究が進められている^{9,10)}。磁性体の分析、評価には、円偏光 X 線の吸収率に、偏光回転が左回り、右回りで、差が生じる X 線磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism: XMCD) 測定が利用される。強磁性体の鉄、コバルトは等の 3d 遷移金属は、 $0.7 \sim 0.9 \text{ keV}$ に L 吸収端があるので、2p-3d 遷移の X 線吸収を利用して、これら元素の磁性を担う 3d 軌道の情報を得ることができる。そのため、 1 keV 近傍の X 線を発生する必要がある。赤外～紫外域のレーザー光であれば、四分の一波長板を透過させて、ほぼ 100% の効率で直線偏光のレーザー光を円偏光に変換することができる。しかし、 1 keV 近傍の X 線に対しては、効率の高い四分の一波長板に相当する位相子が存在しないので、光源から円偏光 X 線を直接発生する必要がある。レーザー加速による円偏光ベータトロン X 線発生の可能性をシミュレーションによって検証した。

円偏光ベータトロン X 線を発生するために、円偏光のレーザーパルスを用いて、レーザー加速を行うことを考案し、三次元の粒子シミュレーションを行った。波長 800 nm 、パルス幅 40 fs の円偏光レーザーパルスを電子密度が $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ のプラズマに、集光強度 $2 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ で照射した時のシミュレーション結果を図 5 に示す。図 5 (a) (b) において、レーザーパルスは z 軸方向に伝搬し、矢印で示す様にレーザー伝搬方向に対して右回りに偏光が回転している。図 5 (a) はプラズマ電子密度の 2 次元断面図である。図 1 と同様に中央の高密度領域に囲まれた低密度領域に、電子群が捕捉されレーザー伝搬方向に加速される様子が捉えられている。図 5 (b) は、この加速電子群の 3 次元密度分布、図 5 (c) はそのエネルギー分布を示す。 90 MeV 近傍にピークを持つエネルギーの揃った準単色電子線が発生している。一方、この電子群は円偏光レーザーの電場と共鳴し、螺旋運動をしている。これは円偏光の放射光を発生するヘリカルアンジュレーター中の高エネルギー電子の運動と同じであり、円偏光のベータトロン X 線が発生することを示唆している。図 5 (d) は理論モデルに従い、図 5 (c) の電子線エネルギー分布を用いて評価したベータトロン X 線のエネルギースペクトルである。 1 keV 近傍ピークを持つ X 線が得られることが予測されている。また、図 5 (a) (b) に見られる様に、加

速電子群の長さは数 μm 程度であり、フェムト秒電子線パルスが発生している。つまり、円偏光フェムト秒 X 線パルス発生を示すことができた。

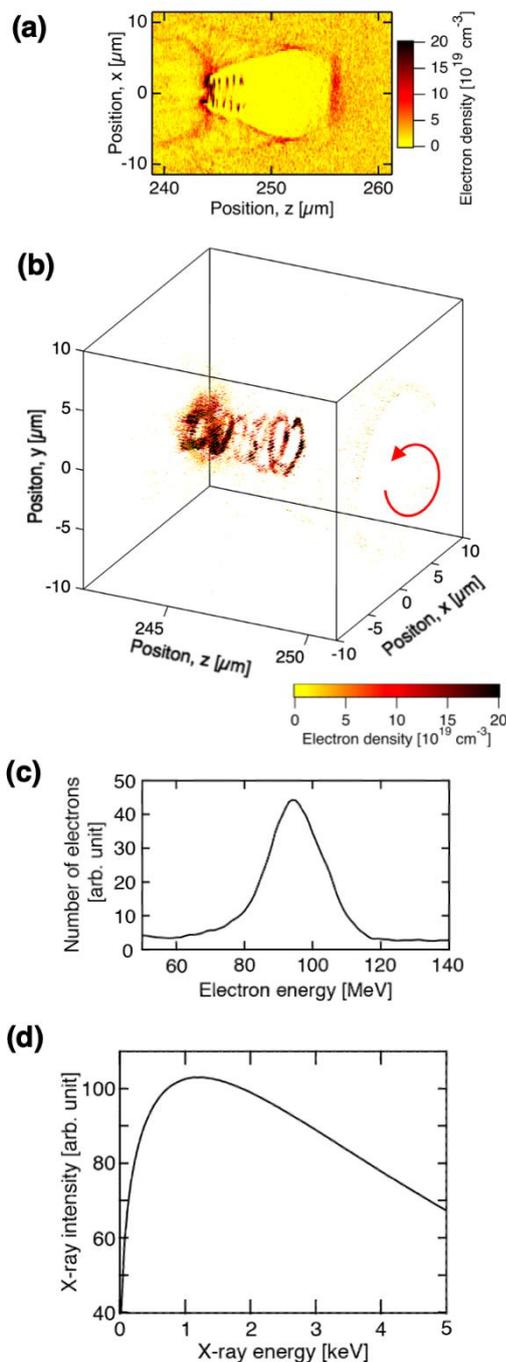


図5 円偏光レーザーを用いたレーザー加速の3次元粒子シミュレーションの結果。(a) プラズマ電子密度分布の2次元断面図。加速された電子群の (b) 3次元電子密度分布と (c) エネルギースペクトル。(d) ベータトロン X 線スペクトル。

また、レーザー伝搬方向に対して左回りの偏光を持つレーザーパルスを用いた場合、加速電子群の螺旋運動は、レーザー伝搬方向に対して左回りとなることもわかった。こ

のことは、レーザーパルスの偏光回転方向によって X 線の偏光回転方向を制御できることを示している。XMCD測定で必要とされる X 線偏光回転方向の制御が可能なのも示せた。

必要とされるレーザー強度は、3.1節で述べた我々のレーザー装置で十分達成でき、実験的検証も可能である。本手法は、フェムト秒レーザーによって誘起される磁性体の磁性変化の超高速ダイナミクス観測を可能とする、円偏光フェムト秒 X 線パルスを発生する有望な手法であると言える。

5. まとめ

フェムト秒レーザーピーニングの加工物理を解明することを目的として、金属材料中に誘起されるレーザー駆動衝撃波挙動の観測を可能とするフェムト秒 X 線パルスを、レーザー加速で得られる高エネルギー電子線を利用して発生する研究に取り組んだ。ドライバーとなるチタンサブファイアレーザー装置を高出力化し、それを用いて最高エネルギーが 100 MeV に達し、50 MeV 以上のエネルギーを持つ電子が 10^6 個の電子線を発生した。

また、円偏光レーザーを用いたレーザー加速によって、磁性体材料の磁性の超高速挙動の観測を可能とする円偏光フェムト秒 X 線パルスが発生することを、シミュレーションによって示すことができた。

謝辞

本研究を採択し、援助下さった公益財団法人天田財団の関係各位に深く感謝致します。

研究実施にあたり協力頂いた、分析計測標準研究部門放射線イメージング計測研究グループの各位に深く感謝致します。また、粒子シミュレーション実施にあたり、ご助言、ご議論を頂いた公益財団法人高輝度光科学研究センターの益田 伸一氏に深く感謝致します。

参考文献

- 1) H. Nakano *et al.*, J. Laser Micro/Nanoeng. **4**, 35 (2009).
- 2) T. Matsuda *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 021902 (2014).
- 3) B. J. Demaske *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 054109 (2013).
- 4) A. Rousse *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 135005 (2004).
- 5) E. Esarey *et al.*, Phys. Rev. E **65**, 056505 (2002).
- 6) J. Squier *et al.*, Appl. Opt. **37**, 1638 (2009).
- 7) F. Albert and A.G. R. Thomas, Plasma Phys. Contr. Fusion **58**, 103001 (2016).
- 8) 三浦永祐, 加速器 **19**, 195 (2022).
- 9) I.Radu *et al.*, Nature **472**, 205 (2011).
- 10) K. Takubo *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 162401 (2017).