

ポピュラーサイエンス

小型 X 線 レーザー

原 民 夫

理化学研究所

〒351-01 和光市広沢 2-1

(1990 年 4 月 12 日 受理)

Compact X-Ray Laser

Tamio HARA

The Institute of Physical and Chemical Research
(RIKEN)

Hirosawa 2-1, Wako-shi, Saitama 351-01

(Received April 12, 1990)

短パルス大出力レーザーの進歩と共に、レーザー生成プラズマを用いた X 線レーザーの研究において急速な進展が見られる。X 線レーザーの実用化のためには、励起の効率を大幅に改善して、少なくとも普通の実験室に納まるほど小型の軟 X 線レーザー装置を開発することが重要である。現在研究されている主な反転分布生成法は、電子衝突励起法と再結合プラズマ法の 2 つである。電子衝突励起法に比べ、再結合プラズマ法はより少ない入力エネルギーで済むだけでなく、プラズマの電子温度を効果的に冷却することにより、X 線レーザーの効率を飛躍的に向上させることが期待される。理化学研究所は、再結合プラズマ法を用いてテーブルトップレーザーによる励起の下で軟 X 線の自然光増幅実験に成功した。光子と物質との相互作用がきわめて強い軟 X 線の良質なレーザーが実現されれば、多くの新しい応用が期待される。

1. はじめに

レーザーが発明されて以来、今年でちょうど 30 年になる。その間に、レーザーは実験室から出て、外科手術用のレーザーメス、機械工作用レーザーカッター、スーパーマーケットのバーコードリーダー、コンパクトディスクドライブなど、社会の身近なところで活躍するようになってきた。レーザー開発の歴史は、レーザーの短波長化に大きな重きが置かれていたと言える。

軟 X 線 (波長: 3~300 Å) は光子と物質との相互作用が極めて強く、表面分析をはじめとする表面科学に関わりが強い波長領域である。この波長域のレーザー発振に関する様々な提案は、1960 年代から行われてきたが、長い間大きな進展がみられなかった。これは、この波長域では、レーザー遷移の上準位の放射寿命が極端に短くなるので高強度・高速励起が必要になること、透過率または反射率の充分に良好な材料が得られないため、レーザ

ー共振器の使用が困難であると考えられていたからである。しかし、各種の短パルス大出力レーザーの進歩と共に、レーザー生成プラズマを用いた実験が各国で行われるようになった。軟 X 線領域の光学素子の研究も最近急速な進展を見せ始めていることもあり、X 線レーザー開発に大きな期待が持たれている。

この波長域では、光子のエネルギーは 100 eV 前後であり、このような光を原子の内殻電子準位間の誘導放射遷移、または多価イオンの外殻電子準位間の誘導放射遷移によってレーザーを得るために、様々な反転分布生成過程が考えられてきた。現在、世界的に広く研究されている主な反転分布生成法は、電子衝突励起法と再結合プラズマ法の 2 つである。

米国ローレンス・リバモア研究所は、1984 年に電子衝突法を用いてネオン様電子配置を持つセレンウムイオン (Se^{24+}) の 3p-3s 遷移 ($\lambda=206.3 \text{ Å}$, 209.6 Å) のレーザー動作を初めて確認した¹⁾。現在、ニッケル様電子配置を持つイッテルビウムイオン (Yb^{42+}) の 4d-4p 遷移 ($\lambda=50.3 \text{ Å}$) の自然光増幅 (amplified spontaneous emission) を観測するところまで到達している²⁾。

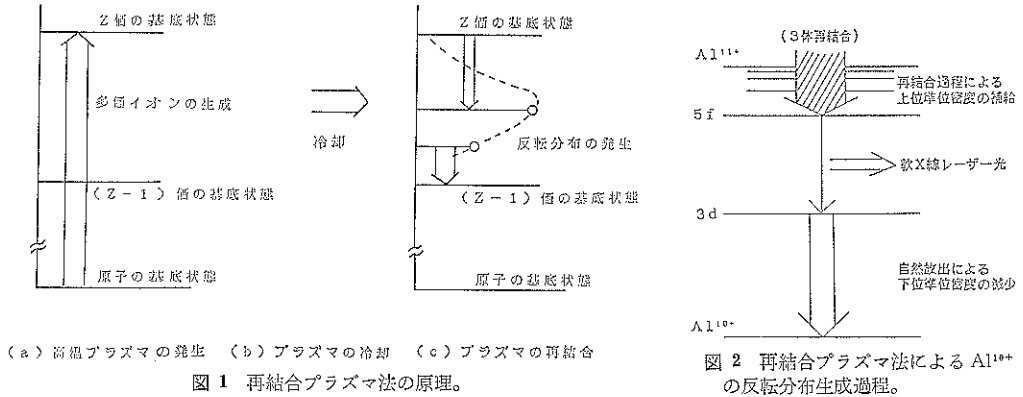
一方、再結合プラズマ法についても、プリンストン大プラズマ物理研究所、英国ラザフォード研究所、及び阪大レーザー核融合研究センターを中心に、リチウム様または水素様電子配置をもつイオンについて軟 X 線レーザーの研究が進められてきた。最近、この方法で、水素様ナトリウムイオン (Na^{10+}) の 3d-2p 遷移 ($\lambda=54.2 \text{ Å}$) の ASE が阪大から報告された。この様に、いよいよ本格的な軟 X 線レーザーの時代が到来したと言える。しかし、レーザー媒質を発生させるためのレーザー装置は、これまで専用の建て屋が必要な程巨大であった。軟 X 線レーザーの実用化のためには、まず励起の効率を大幅に改善して、少なくとも普通の実験室に納まるほど小型の軟 X 線レーザー装置を開発することが重要である。光子と物質との相互作用がきわめて強い軟 X 線の良質なレーザーが実現されれば、多くの新しい応用が期待される。理化学研究所は、再結合プラズマ法を用いてテーブルトップレーザーによる励起の下で軟 X 線の自然光増幅実験に成功した。

2. 再結合プラズマ法による軟 X 線レーザー

2.1 再結合プラズマ法の原理

再結合プラズマ法では、まず比較的軽い元素の高密度多価イオンを発生させる。次に、そのプラズマをすばやく冷却して強い再結合状態にすると、それより 1 価低いイオンの励起状態間の反転分布が生じる (図 1)。

Al^{10+} イオンの反転分布を例にとり図 2 で具体的に説



明しよう。電子温度が急冷されると、プラズマ密度が高いため、 Al^{13+} イオンは自由電子 2 個と同時に相互作用し合ってその内の 1 つの自由電子にエネルギーを放出し、主として Al^{10+} の高励起準位へ再結合 (3 体再結合) する。この過程は光を出して再結合する放射再結合より非常に大きい確率を持つ。さらに、 Al^{10+} の高い励起準位領域では自由電子との衝突を繰り返しながら、より低い励起準位へカスケード的に落ちていき、光の自然放出による脱励起過程は相対的に少ない。故に、この領域の占有密度分布はボルツマン分布となる。しかし、低い励起準位領域になると、準位間のエネルギー差が大きくなるため、電子衝突による脱励起過程は起こりにくくなる一方、自然放出の確率は急に大きくなる。その結果、低い励起準位間で大きな反転分布が生成される。

イオンの再結合の速さはプラズマ中の電子温度 T_e に強く依存する。 T_e がイオン種・価数によって決まる閾値より高い間、再結合の速さはそれほど大きくない。しかし、閾値以下になると再結合は急速に進む。このことは、 T_e が十分低下するまで、1 価上のイオン種の基底準位に多くのイオンが保持され、そこがイオンのリザーバーとしての役割を果たすことを意味している。その結果、 T_e の冷却速度が速いほど大きな反転分布が実現され、再結合プラズマレーザーの効率が飛躍的に向上することが期待される。

2.2 電子衝突励起法との比較

電子衝突励起法は重い元素の多価イオン、特に Ne 様または Ni 様イオンを用いる。この励起法では、高エネルギー電子により多価イオンが基底状態から衝突励起されるとき、励起準位間で発生する反転分布を利用する。一般に、これらに使われる準位間では電子衝突励起断面積のより大きい上準位へ高効率で励起される一方、基底準位への放射遷移確率は上準位より下準位の方が圧倒的に大きい関係を持つ。この方式は、軟 X 線に対する利得はプラズマが高温に保たれている間維持されるので、原

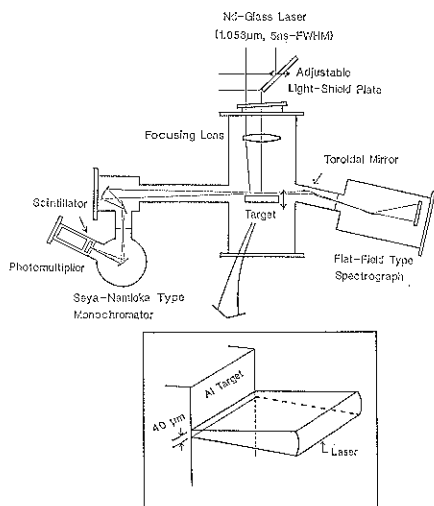
理的に定常運転が可能であるという利点を持つが、本質的に非常に強力な励起を必要とする。このため実際に到達できる短波長限界は使用する励起レーザーの能力によって制限される。国立ローレンス・リバモア研究所では、世界最大の Nd-ガラスレーザー装置 NOVA を使用し、これまでの実験で既にその出力限界に近い運転を行っている²⁾。

再結合プラズマ法の場合には、利用するイオンの価数が低いため、励起エネルギーが少ないにもかかわらず、レーザーの発振波長は相対的に短い。プラズマを効果的に冷却することにより、イオン密度がそれほど高くなくても大きな利得を発生できる。さらに、利得の発生がプラズマの生成空間または生成時間からずれるため、プラズマ発生時の体積を小さくできるという特徴を持つ。こういう理由から再結合プラズマ法は電子衝突励起法より少ない入力エネルギーで済む。

高密度プラズマ中に急な密度勾配があると、軟 X 線はプラズマ中を直進できず、屈折作用により密度の低い方向へ曲げられ、反転分布生成領域から外れてしまう。その場合、大きな反転分布が出来ても強いレーザー作用は期待できない。これを避けるために、発生するプラズマができるだけ均一な密度分布を持つようにする必要があった。このため、今まで線状焦点の線幅は $100\mu m$ から $300\mu m$ 程度と設定されてきた。再結合プラズマ法では生成するプラズマ密度を低くできるため、前述の様な軟 X 線の屈折効果は無視できる可能性がある。

3. 理化学研究所の実験^{3,4)}

理研の実験は、再結合プラズマ法により、パルス長 5 ns の励起レーザーと平板型固体ターゲットを使用して行われた。実験配置図を図 3 に示す。アルミニウムターゲット上にガラスレーザー光を線状に焦点させ、細長い高密度プラズマを生成する。プラズマはターゲット表面から噴出すると同時に断熱膨張により急激に冷却され、

図3 実験配置図¹⁾。

強く再結合する。

プラズマの冷却を促進させるために、線状焦点の線幅をできるだけ細くして自由膨張時の膨張率を大きくとった。発散角約 $120\mu\text{rad}$ のレーザービームはマスク板により円形のビームパターンの中心部が四角形に成形された後、球面レンズとシリンドリカルレンズを組み合わせた焦点距離 450mm のレンズ系でターゲット上に約 $40\mu\text{m}$ の線幅で集光された。1回のレーザー照射により、Alターゲット表面に深さ $10\sim 20\mu\text{m}$ の溝が形成されるため、レーザー照射毎にターゲットを移動させ、常に平らなターゲット表面で実験を行った。プラズマの長さは、ターゲットチャンバーの直前に置かれた遮蔽板の位置を調節することにより変えられた。ターゲット表面に沿ったプラズマの軸方向の発光は平面結像型斜入射分光写真器と瀬谷-波岡型分光器で観測された。斜入射分光写真器の前置光学系としてトロイダルミラーを用い、プラズマの噴出方向のイメージを分光写真器の入射スリット上に結像させ、この方向の空間分解能約 $200\mu\text{m}$ を得ている。また、ターゲット表面に平行な方向のイメージは写真乾板(コダック-SWR)上に、スペクトル写真の波長軸に垂直な方向につくられた。発光の空間分布測定は集光レンズとターゲットの間の距離を保ったまま、ターゲットを前後に移動させて行った。1枚の写真乾板には軟X線スペクトル写真が8本まで記録でき、一連のデータ間の現像条件の違いによる曖昧さを除くことができた。瀬谷-波岡型分光器は Al^{10+} イオンの時間的振舞いを調べるために使用された。

実験の結果、励起用レーザーのエネルギーとして、従来の約1000分の1である2Jが長さ1.2cmにわたって均等に入力された時、ターゲットから0.8mm離れた位

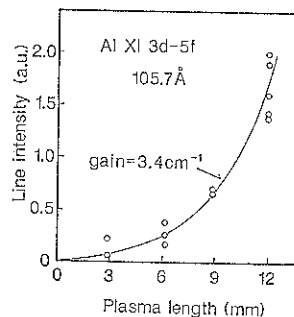
図4 プラズマ長に対するLi線アルミニウムイオン線強度の依存性⁴⁾。

表1 レーザー作用が確認された波長と利得。

	波 長 (Å)	利 得 (cm^{-1})
Al^{10+} (3d-5f)	105.7	3.4
Al^{10+} (3d-4f)	154.7	4.5
Al^{9+} (3p-5d)	123.5	3.4
Al^{9+} (3d-4f)	177.8	3.5

置の再結合アルミニウムプラズマ中で、軟X線に対する大きな利得が観測された。このプラズマは十分に低密度であるため、軟X線の屈折は問題にはならない。増幅されたスペクトル線は、10価と9価のアルミニウムイオンの105.7, 123.5, 154.7, 177.8 Åの4つの波長である。プラズマの長さに対する Al^{10+} 5f-3d 遷移($\lambda=105.7\text{Å}$)のスペクトル線強度の変化を図4に示している。実線は利得が 3.4cm^{-1} の時の理論曲線である。表1の様に、軟X線の増幅利得も時間平均された値で1cmにつき、 $3.4\sim 4.5$ と非常に大きい。

軟X線の強度 I と利得 α の関係は

$$I = I_0 \exp(\alpha L) \quad \alpha \propto (N_2/g_2 - N_1/g_1) \equiv \Delta N$$

と表される。ここで、 I_0 は利得領域に入射される軟X線の強度であり、 L は利得領域の長さである。 N_1, N_2 はそれぞれレーザー遷移の下準位、上準位の占有密度、 g_1, g_2 は各準位の統計的重みであり、 ΔN は占有密度の反転量である。上記の利得は軟X線がプラズマ中を1cm進むと、30~90倍に増幅されることを意味している。

励起レーザーの入力エネルギーをさらに増すと、利得から吸収に転じてしまう。必要以上のエネルギー注入はプラズマの温度(特に電子温度)を上昇させ、プラズマの冷却を不十分なものにするためと思われる。この実験は、再結合プラズマ法では適度の励起とプラズマの冷却が利得媒質の向上に最も重要であることを実証したものである。

軟X線レーザー発振器の開発も重要である。発振器の研究はレーザーの励起効率・レーザー出力の大幅な改善をもたらすのみでなく、レーザービームの性質向上を図

るためにも不可欠である。今回使われた励起用レーザーのパルス長は 5ns と十分に長いので、レーザー媒質である Al^{10+} イオンの発光も半値幅で約 6ns と長いパルス幅を持つことが確認された。このため、軟X線域用共振器ミラーを使えば、高い効率の軟X線レーザー発振器ができることが期待される⁵⁾。

従来、軟X線レーザーの実験におけるターゲットは、薄膜状であったので、レーザー光を照射するたびにターゲットを交換する必要があった。しかし、今回の実験は最も単純な平板状ターゲットを使用できることを実証した。板状ターゲットの表面を少しずつ移動させながら、1つのテーブルに載せることが出来るような小型の高繰り返しYAGレーザーで照射すれば、軟X線レーザーの高繰り返し運転が可能になる。この様なテーブル・トップ高繰り返し軟X線レーザーが実現すれば、一挙に軟X線レーザーの応用研究の時代を迎えることになるであろう。

4. X線レーザーの応用

X線レーザーの出現は物理、化学を中心とする物質・材料科学や工学、生命科学、医学などに、革新的な研究手段を提供するものと予測されている⁶⁾。これらの多彩な分野における基礎研究を支柱とする応用を考えてみると、1)XUV からX線領域における非線形現象の研究と応用、2)内殻励起の化学の研究と応用、3)X線レーザーレーダーとして原子配列状態、細胞内微細構造やウイルスの生態の三次元的観測、遺伝子工学、細胞内診断への応用、4)極超精密パターンの作製、極超 LSI や光 IC、単分子層や材料表面の超精密制御などの超精密加工技術への応用、5)X線ホログラフィー、X線コントラスト顕微鏡、生体組織中の巨大分子の観察や構造決定などの超

精密X線画像情報への応用、等が挙げられる。

波長 44Å において、水と生体構造の間の吸収係数の違いは最大になるので、この付近の短波長X線レーザーは高分解能の画像を可能にするであろう。軟X線レーザーの極めて高い輝度とコヒーレンスは、動いている試料も凍り付いた状態に見えるほど短い露光時間を可能にする。このような技術を用いることによって、生体構造の高分解ホログラムが可能になるであろう⁷⁾。期待される多様な応用に答えるためには、さらに軟X線レーザーの短波長化、高出力化の研究が必要である。

文 献

- 1) D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Meddecki, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. N. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone and T. A. Weaver: Phys. Rev. Lett. **54**, 110 (1985).
- 2) B. J. MacGowan, S. Maxon, C. J. Keane, R. A. London, D. L. Matthews and D. A. Whelan: J. Opt. Soc. Am. B **5**, 1858 (1988).
- 3) T. Hara, K. Ando, N. Kusakabe, H. Yashiro and Y. Aoyagi: Proceedings of the Japan Academy **65**, 60 (1989).
- 4) T. Hara, K. Ando, N. Kusakabe, H. Yashiro and Y. Aoyagi: Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L1010 (1989).
- 5) N. M. Ceglio, D. G. Stearns, D. P. Gaines, A. M. Hawryluk and J. E. Trebes: Opt. Lett. **13**, 108 (1988).
- 6) 稲場文男: 応用物理 **51**, 397 (1982).
- 7) D. L. Matthews and M. D. Rosen: Scientific American Vol. 259, No. 6, 86 (1988).