

高強度 XFEL 励起による原子準位レーザーの発振

米田仁紀

電気通信大学レーザー新世代研究センター 〒182-8585 調布市調布ヶ丘 1-5-1

要旨

我々は昨年、日本の X 線自由電子レーザー SACLA を使用した金属銅箔を用いた実験によって、原子準位を使ったもっとも短波長のレーザーを発振させた。できてみればしごく当たり前のようにも見えるこの研究について、どのようなステップを踏んだのか、本質的な困難さがどこにあったのか、また、この研究で何を変えることができたのかについて、本稿で紹介する。

1. はじめに

1960年、メイマンがフラッシュランプでルビー結晶を励起して、世界最初のレーザーを発振させた。この波長は 690 nm と赤い光であるが、その後立てつづけに、He-Ne (1961年1.15 μm)、Nd:Ca-tungstate (1961年1 μm)、半導体レーザー (1962年840 nm)、He-Ne (1962年630 nm)、Nd:YAG レーザー (1964年、1 μm)、CO₂ レーザー (1965年10.6 μm) と多くのレーザーが生まれた。ルビーレーザー発振以前にすでに多くのレーザー研究が行われていて、競争の最中であったためである。1916年にレーザーの基礎となる誘導放出を Einstein が、また、1924年に負の吸収の概念を van Vleck が提唱したが、これらを実現するために、技術的な進歩が30~40年必要であった。いずれも現代では普通に使っている技術であるが。

その後レーザーは、短波長、短パルス、高出力、高安定といった道に進み、新しい光が生まれるたびにその応用が生まれ科学が進展した。短パルス性はすでにアト秒になり、光が1サイクルを生まないで終わる短パルス性が生まれ、高出力はそのレーザー電場で電子が相対論的な速度まで1/4周期内に加速されて相対論的非線形光学が利用されている。高安定化では今や光の周波数で mHz 単位までの周波数安定度が得られるようになり、18桁に及ぶ精度で周波数が決定される時代になり、重力波検出といった新しい天文学にも応用されている。一方、レーザーの短波長化については、媒質や窓材の透過材料の短波長限界を超えて行われるようになり、1985年にプラズマを用いた X 線レーザーが18 nm で発振した¹⁾。そこから大型のレーザー施設を用いた研究が盛んになり、さらに超短パルスレーザーの出現でガス中の非線形光学過程を用いた高次高調波発生も短波長なコヒーレント光発生に寄与してきた。これら X 線レーザー研究の1つのゴールは「水の窓」と呼ばれる生体構成元素の炭素と酸素を含む生体部分をコントラスト高く撮像する目的で3~4 nm の波長 (光子エネルギーで310~410 eV) を目指していた。通常、短波長化

に従い何桁も高い励起強度が必要になることから、できる波長範囲で大きなインパクトを採した結果でもあったと思う。このような背景から、昨年、固体物質から生成できるハード X 線のレーザー (光子エネルギーで 8 keV、波長 0.15 nm) が誕生した。波長が固体の格子定数を超え、さらに空気中でも減衰が小さく透過できる点だけみても、新たな応用研究の期待がかかるレーザーが出現したと考えてよいだろう。

2. レーザーの始動条件

レーザーになるためには、誘導放出が主たる遷移過程にならなくてはならない。よく負温度が条件といわれるが、それだけでなく、十分に強い共鳴光が生成しないとレーザーになったとはいえない。誘導放出と自然放出の比は、単純に光子のモード密度 n で決まり、1:n となっている (1 が自然放出、 n が誘導放出)。この光子モード密度は位相空間における体積の大きさで決まり、周波数あたりの強度 I_ν と光の周波数 ν 、プランク定数 h 、光速 c により $\frac{c^2}{2h\nu^3} I_\nu$ となる。短波長になり周波数が高くなれば、この値を大きくするために大きな I_ν が必要になり、このことだけでも波長の⁻³乗で強度を増加しなくてはならないことがわかる。例えば、He-Ne レーザーと1.5 Å のレーザーでは、誘導放出を主過程とする強度は11桁近く違う。それだけ高強度の光を取り扱わないと達成できない理由がここにある。

また、レーザー光の特徴であるコヒーレンスの良さはピンからキリまでである。例えば、赤色のレーザーポインターは半導体レーザーからの直接出力になっているが、マイケルソン干渉計などで干渉させようとする、双方の光路差は数100 μm にしないときれいに干渉しない。一方、同じレーザーポインターでも緑色のものは、波長変換をしているのでその分コヒーレントがいい光が出ていて、干渉計測もしやすい。このため、レーザーの研究者は、理想的な

レーザー光を生成させることをめざして、いわゆる単一空間モードでフーリエ限界の光を発生させるまで努力をしている。X線自由電子レーザーをもっとも一般的なSASEモードで使った場合、スペクトル幅は40 eV/8 keVである。このバンド幅ではびんと来ないかもしれないが、前述の干渉計を考えるとたった31 nmの光路長差しか許されない。X線の場合もとの周波数が 10^{18} Hzと高いために、同じ程度のスペクトル純度でも周波数幅が大きくなってしまいうためである。したがって、高いコヒーレンスを得るための努力が行われる。しかし、一方で、フーリエ限界という周波数幅とパルス幅積は1程度に制限されるものが存在する。レーザーでの波束の継続時間は、一般のレーザーでは共振器内の光子寿命、上準位の寿命や共振器内に挿入された様々な制御素子や外からの注入同期などによって決定される。

この研究を提案した際、多くの研究者から「Auger速度が 1 fs^{-1} 以上あるのに、数10 fsのXFELで励起してなにか特別なことができるのか？」と問われた。確かに、**Fig. 1**のような通常のエネルギーフローを考えると、例えば銅の場合、60%近くがAuger過程となり、そこで出てきた電子は数100 eVのエネルギーをもつため、他の原子をイオン化し、高温化する。系の高温化は下準位を生成させたり準位のエネルギーを分岐させ容易にレーザー利得を下げる。また、いくらK殻の電子を励起する目的でK殻吸収端直上のX線光子でイオン化をしても10%程度は直接L殻電子のイオン化を起し、これも系を静寂ではない状況にすることでレーザー動作を妨げる。と、このように“できない理由”は山積みで、否定されるのも仕方がない状況であった。これらはエネルギー軸の上でのことであるが、これにさらに、空間モードの多さが加えられる。波長 $1\text{ }\mu\text{m}$ の単一モード光ファイバーのコア部は直径 $7\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。もし、同一口径で波長を $1.5\text{ }\text{\AA}$ にすれば、100万倍横モード数が存在する。集光径を $1\text{ }\mu\text{m}$ としても 10^4 程度横モードがあり、誘導放出がモードあたりの光子数に比例することを考えれば、さらなる集光径の低下をする必要が出てくることになる。もしくは、ある程度強い

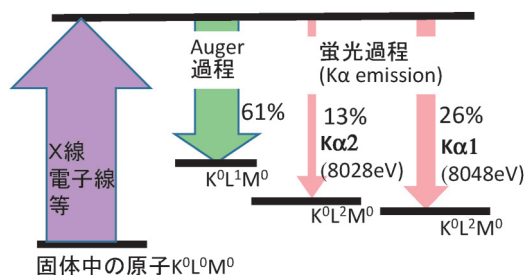


Fig. 1 (Color online) Energy flow after inner shell ionization. The superscript number of KLM mean the number of vacancy in these electron orbits. The ratio of the branching and transition energy in the figure are for Cu atoms as example.

種光を最初に入れておくことが、あるモードに集中して光子密度を増加させ、誘導放出を主過程にできる鍵となる。

3. 利得の観測へ、しかし、その前に

この研究は、日本のX線自由電子レーザー施設SACLAで行われた。2段集光という手法で、作動距離をある程度の長さとしたまま50 nmの直径まで集光できる光学系²⁾を用い、その集光部にターゲットとなる銅箔を設置して透過方向のX線強度を観測した。実は、この研究の前に、鉄を用いて吸収端の変化を観測し、固体密度の鉄であっても構成する原子の多くの1s電子をイオン化させることで、K吸収端エネルギーをシフトさせ吸収率を強度により桁違いに変化させる可飽和吸収の実験を行っている³⁾。その際、鉄のK吸収端は8 keVのところにあるが、その直上のX線の透過率が 6×10^{19} W/cm²という強度になる10倍程度増加する現象が観測され、固体内の鉄原子の20%程度がイオン化していることが見積もられた。よく知られているように、吸収が起きている物質内で、入射した光の強度は指数関数的に減少する。しかし、吸収の飽和が起きるとこの強度分布が変化し、先頭が立っているような急峻な強度分布が作られる(**Fig. 2**)。この分布変化は、照射物質の奥行き方向に見れば実効的にレーザーの立ち上がり時間を短縮していることになるので、レーザー始動にも有効になる。実際に、1次元のレート方程式モデルで計算すると、この可飽和吸収が起きている段階ですでに、誘導放出が固体内の伝播に影響を及ぼしていることがわかった。さらに、この時の透過波の発散角分布を評価した結果、可飽和吸収を起きている物質内で、X線は自らが媒質の屈折率を変化させ、まるで光導波路を形成しながら自己ガイド効果で伝播していることがわかってきた。これらは可視～赤外レーザーでの非線形光学効果としてはよく知られた現象であるが、 $1\text{ }\text{\AA}$ 程度のハードX線でも同様な効果ができることが驚きでもあり、さらに、これから生じるレーザーの光路に沿ってきれいに励起レー

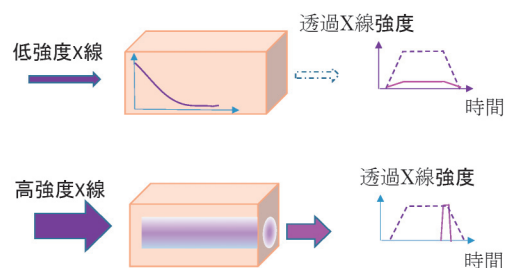


Fig. 2 (Color online) Change of propagation inside the material when laser intensity is beyond the threshold of saturable absorption. In higher intensity case, the transition properties is similar feature as optical fiber due to the breaching of saturable absorption, while in lower intensity case, intensity distribution is explained with single exponential decay curve.

ザーを伝播させることができたことは、XFEL 励起 X 線レーザーの可能性が見えた瞬間でもあった。

4. XFEL 励起 X 線レーザーの実現⁴⁾

最初のレーザー観測は、SACLA の波長を Cu の K 吸収端の直上である 9 keV に合わせ、吸収長の 4~5 倍程度の厚みを持つ銅箔に照射した。観測は後方 5 m 程度のところに設置した平面シリコン結晶を用いた分光器と MPCCD カメラを用いて行った。入射された励起レーザーのエネルギーは 10 μ J 程度であり、そのうち 20% が $K\alpha$ 線になったとしても、自然発光である指向性をもたない蛍光 X 線では検出器面には光子が 100 個程度しか到達できないような設定であった。実験で得られたスペクトル画像を Fig. 3 に示す。この時、縦方向が分光器の分散方向で横方向は発散角方向になっている。入射励起 XFEL がエネルギー幅で 40 eV 程度あったものが 5 eV 程度に圧縮され、さらに違う波長帯域で出てきたことが特徴である。また、通常特性 X 線である $K\alpha$ 線は、その下準位の L 殻電子の軌道角運動量の差により 20 eV 程度エネルギーの離れた 2 本の発光が観測され、その比は統計重率で決まり 2:1 となっている。しかし、観測された $K\alpha$ 線レーザーは、 $K\alpha$ 1 線しかないものであった。さて、何が起きたか。1 次元の伝播を入れた計算機シミュレーションを行った結果、Fig. 4 のような結果が得られた。すなわち、レーザーがあ

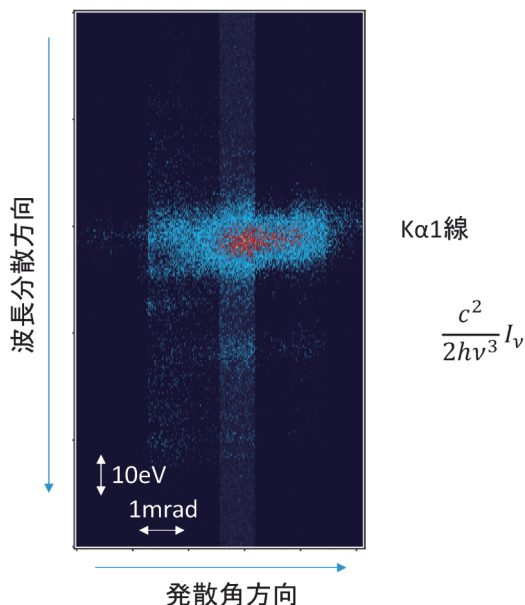


Fig. 3 (Color online) The figure of spectrometer output when we observed Cu $K\alpha$ laser amplification for the first time. The horizontal axis is divergence of x-ray from the focus point and vertical axis is photon energy of x-ray. In normal $K\alpha$ emission spectrum, both of $K\alpha$ 1 and $K\alpha$ 2 are observed and the ratio of these lines are 2:1. In this figure, only $K\alpha$ 1 line is observed.

る程度強くなってくると、計算結果も $K\alpha$ 1 線のみレーザーであり、誘導放出が自然界の分岐比を超えた遷移を起こしていることがわかった。光学波長領域では、このような原子遷移を共鳴レーザー光が変化させ、制御することは一般的であるが、原子系との相互作用は最外殻の電子と起こり、分極もしやすい。一方ハード X 線では最内殻の電子との相互作用になることと、競合過程として Auger 過程などが引き起こされる中で、このような制御ができるかどうかは全くの自明ではなかった。

この後、さらにシード光を入れた実験へと研究が展開した。2 色化した SACLA⁵⁾ の片方の光を励起光に、もう片方をシード光に用いて、レーザーの立ち上がり部分からこの誘導放出を積極的に強くさせようというものである。この結果、Fig. 5 のようなスペクトルが観測された。これは、シードする光を $K\alpha$ 2 線に合わせたものである。図からわかるように、前述したように通常では利得がかなり $K\alpha$ 1 線のみがレーザー化していたものが、分岐比でわずか 13% しかない $K\alpha$ 2 線を主成分とするレーザーが達成できたのである。さらに、レーザー化したスペクトル幅を評価した結果、最も狭いもので 1.7 eV の半値幅をもつものが生成できていることがわかった。これは $K\alpha$ 線の上準位寿命で決まる自然幅 2.5 eV 程度より狭い発光線であり、有効寿命が長い $K\alpha$ 線を原子系から引き出したことになる。すなわち、中程度の原子番号をもつ最内殻電子が関与する遷移であっても、我々は十分に共鳴するレーザー光を手に入れることに成功し、その結果、原子系の遷移寿命、遷移の分岐比を制御することができるようになった。これらのことは、この研究以前にはできなかったことである。

このようにして、我々は原子系と強い相互作用を持てる共鳴レーザー光を手に入れることができた。通常のレー

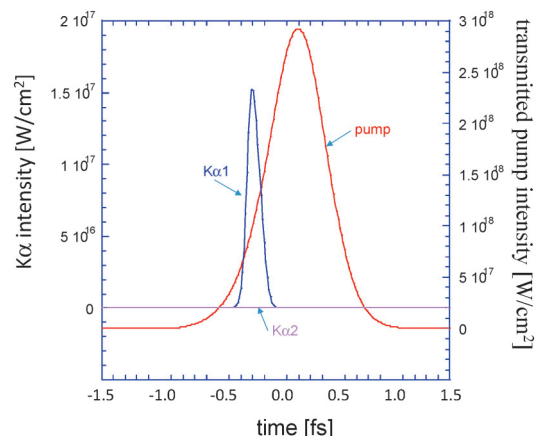


Fig. 4 (Color online) The result of 1D rate equation model simulations for the $K\alpha$ laser. The intensity profile of the transmitted pump wave is also shown. Due to saturable absorption, the peak position of the transmitted wave is shifted toward later time than that of incident wave. As shown in Fig. 3, the intensity of $K\alpha$ 2 is quite small to compare that of $K\alpha$ 1.

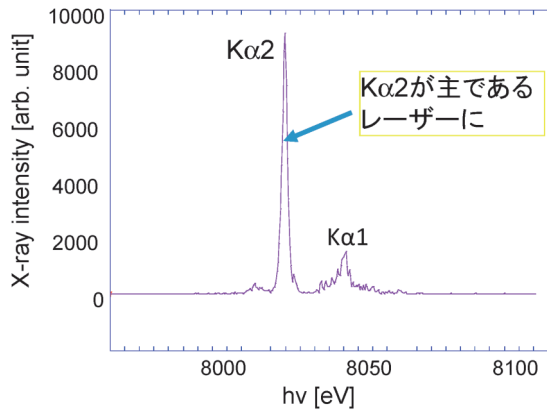


Fig. 5 (Color online) The typical result of seeding $K\alpha$ laser. By tuning the spectrum of the seed pulse on $K\alpha 2$ line, almost pure spectrum of $K\alpha 2$ is obtained. This result shows that even hard x-ray and transition of $1s-2p$ deep levels of electron inside atoms, they can be controlled by strong induced transition process with intense resonance x-ray laser filed.

ザー科学では、このような光と物質系の相互作用を駆使して様々な光の発生や物質の制御、機能デバイスの作成などが行われるが、これまで可視～紫外域を出たものについての研究がなかったのは、強度が桁違いに大きなものが要求されるだけでなく、光が関与する遷移以外に Auger 過程などの電子遷移過程が高速で起きるためでもあった。しかし、ここで紹介した原子遷移を利用した最狭線のレーザーができたことで、ハードな X 線と最内殻の電子系であっても、同様な光発生、原子制御が可能になる。これらが、新しいコヒーレント X 線フォトンクスになっていくものと確信している。

5. おわりに

2006年、わが国では X 線自由電子レーザーを建設することが決まり、同時にどんな科学研究が行えるかの利用推進研究といったものが開始された。我々の研究は、その時に「高エネルギー密度物性を利用した X 線光学研究」として採択され、開始したものである。そこで約束したことは、強い X 線場とそれによって変化した物質系で、X 線の空間フィルター、可飽和吸収、パルス波形整形、利得観測、XFEL 励起レーザーの実現であった。その意味で10年前に提案したことは、多くの他の知見が得られたことも

含めて、達成された感がある。当時、固体原子の整列さを使ったフォトンクス研究というものも提案しており、これまでの研究で、このような方向性がさらに強まったことは前述したとおりである。

さて、以前ある方から、原子遷移 X 線レーザーは SAC-LA があったからできたのであって、それ以外のオリジナリティはどこにあるのか？と聞かれたことがある。確かに実験施設として SACLA がなければ達成できない研究であり、さらに 50 nm という高い集光性能の光学系も必要なものであった。現在ここで紹介した Cu の原子単位レーザーは世界最短波長のものであり、それ以前の最短記録は、2011年に米国の LCLS-X 線自由電子レーザー施設で達成された Ne ガスを使った 1.46 nm のものである⁶⁾。レーザーの歴史の中である種停滞していた短波長化が一気にジャンプした形になっているが、この世界最短波長原子単位レーザーの達成は、技術やアイデアだけではなく、周りの研究者の研究成果がうまくいった時にようやくできるものだと感じている。また、そんなことできるはずがないと半分くらいは思っていたであろう方々から継続した支援をいただいたことが、今回の成果につながった。その方たちへも感謝を申し上げたい。

参考文献

- 1) S. Suckewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane and D. Voorhees: Phys. Rev. Lett. **55**, 1753 (1985).
- 2) H. Mimura *et al.*: Nature Commun. **5**, 3539 (2014).
- 3) H. Yoneda *et al.*: Nature Commun. **5**, 5080 (2014).
- 4) H. Yoneda *et al.*: Nature, **524**, 446 (2015).
- 5) T. Hara *et al.*: Nature Commun. **4**, 2919 (2013).
- 6) N. Rohringer *et al.*: Nature **481**, 488-491 (2012).

著者紹介



米田仁紀

電気通信大学レーザー新世代研究センター
センター長 教授

E-mail: yoneda@ils.uec.ac.jp

専門：レーザー科学、プラズマ科学、高エネルギー密度科学

【略歴】

1988年東京工業大学総合理工学研究科博士課程修了。工学博士。1988年、電気通信大学新形レーザー研究センター助手、1998年助教授、2006年教授、2012年より現職。2014年より文科省科学官を併任。

Development of atomic inner shell ionized hard X-ray laser with intense X-ray free electron laser pulse

Hitoki YONEDA Institute for Laser Science, University of Electron-Communications
1-5-1 Chofugaoka, Chofushi, Tokyo 182-8585, Japan

Abstract Recently, we succeed to develop the shortest wavelength atomic-line laser with pumping of x-ray free electron laser pulses. Even though it looks easy method to achieve it, there are a lot of steps to consider for this success In this article, what are the main difficulties and what happens after this success of well-controlled hard x-ray lasers.