

解説

軟X線レーザーの現状

渡部 俊太郎

東京大学物性研究所 〒106 東京都港区六本木 7-22-1

(1987年9月25日受理)

Present Status of Soft-X-Ray Lasers

Shuntaro WATANABE

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,
7-22-1, Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106

1. はじめに

過去5年間におけるX線レーザーの進歩はめざましい。ごく最近まで発振波長の最短は para-H₂ の 110 nm であったが¹⁾, Ne 様 Se で 20 nm の発振が得られて以来^{2,3)}, 最近では Ni 様 Eu で 6.5 nm の発振が観測され 10 nm の壁を破った⁴⁾。波長変換で得られた最短波長が YAG レーザーの第4高調波を7倍して得られた 38 nm であったが⁵⁾, 最近では KrF の17次の高調波で 14.6 nm が得られている⁶⁾。図1に短波長レーザーの波長分布とピーク出力を示す。参考のために UV 域のエキシマレーザーも含めている。

現在のところX線レーザーはレーザープラズマによって得られており、励起用レーザーシステムは巨大で、必ずしも実用的でない。しかし Ne 様 Se ではすでに 25 MW で数 mJ の出力が得られ、ビーム広がり改善が図られている。また生体への応用のため水を透過する 4 nm 程度への短波長化の努力が行なわれている⁷⁾。

X線レーザーへのアプローチを大別すると、①レーザープラズマ励起、②光励起、③波長変換である。1975年以前の研究に対しては参考文献8), 9) を参考にしていただくとして、ここでは最近の動向を中心に概説したい。

2. レーザー発振に必要な励起強度⁸⁾

レーザーが短波長になるに従って、レーザー発振を得るのに必要な励起強度は一般に著しく増大する。図2に示すように三準位モデルを仮定し、準位1から上準位2

への励起確率を R_{12} , 上準位の脱励起は遷移のみで起こるとしてその確率を A_{23} とおく。遷移の光子エネルギーと上準位エネルギーをそれぞれ hc/λ , hc/λ_p とする。スペクトル広がりにはドップラー広がりとして仮定する。レーザーの利得係数は誘導放出断面積と反転分布の積で表わされ、

$$g_D = \sigma \Delta N_{23} = (\pi \ln 2)^{1/2} \lambda^2 A_{23} / 8\pi^2 \Delta \nu_D \quad (1)$$

ここで $\Delta \nu_D$ はドップラー幅、 A_{23} は遷移確率、 ΔN_{23} は反転分布である。反転分布は

$$\Delta N_{23} \leq N_2 = N_1 (R_{12} / A_{23}) \quad (2)$$

であるから、 $\Delta \nu_D \approx \bar{v} / \lambda$ (\bar{v} は粒子の平均速度) を使うと

$$g_D \leq (\pi \ln 2)^{1/2} R_{12} N_1 \lambda^3 / 8\pi^2 \bar{v} \quad (3)$$

準位1から2へ励起するための励起パワーは

$$P_{12} = N_1 R_{12} (hc / \lambda_p) \quad (4)$$

であるから、 $\Gamma = \lambda_p / \lambda$ とすると(3)式は

$$g_D \leq (\pi \ln 2)^{1/2} \lambda^4 P_{12} \Gamma / 8\pi^2 hc \bar{v} \quad (5)$$

となる。つまり一般に利得は波長の4乗に比例して減少し、一定の利得を得るための励起パワーは逆に波長の4乗に比例して増大する。たとえば ASE (amplified spontaneous emission) モードで発振するとして、その threshold を $g_D L = 5$, $L = 1$ cm, $\bar{v} = 10^7$ cm/s, $\Gamma = 1/10$ とすると必要とされる励起パワーは 100 nm で 10^7 W/cm³, 10 nm で実に 10^{11} W/cm³ となる。もちろん比較的長パルスで反転分布が得られ、損失の少ないミラーがある場合は条件は緩和される。現状ではX線用ミラーが十分になく、高密度プラズマ中の屈折率の傾斜のためX線が直進しないため、共振器の効果は上がっていない⁷⁾。

唯一、再結合タイプの低密度プラズマで出力の増加が観測されている¹⁰⁾.

3. レーザープラズマ励起X線レーザー

前章で述べたように、レーザー発振を得るのに必要な励起強度はX線領域で最低 TW/cm^3 となる。このような励起源として最も有望なものは、ガラスレーザーをはじめとする高出力レーザーである。レーザープラズマでは、(1)プラズマ中の電子衝突で特定単位を励起する方法(衝突励起)、(2)多価イオンの電子との再結合の過程で反転分布を得る方法、(3)多価イオンを特定の線X線で共鳴励起する方法がある。このうち成功をおさめているのは(1)、(2)の衝突励起と再結合型である。リバモア研究所でASEモードながら“レーザー”動作が確認されたのはNe様Seで衝突励起型である^{2,3)}。図3にそのレベル図を示す。ターゲットとポリビニル薄膜(1500 Å)にSeを蒸着したもので、このターゲットに0.53 μmのレーザー光を線状に照射する。照射面積は1.2×0.02 cm²でレーザー強度は $\sim 10^{14}$ W/cm²に達する。このときの電子密度は 5×10^{20} cm⁻³、電子温度は1 keVである。この条件で、上単位の3pへの励起時間は100 psで下単位の3s単位の1 nsに比べ速い。また3dからの寄与もある。Radiative decay timeは3pが電気双極子遷移に対し禁制であるのに対し、3sは0.5 psと非常に短い。したがって3p→3s間に反転分布が生じる。

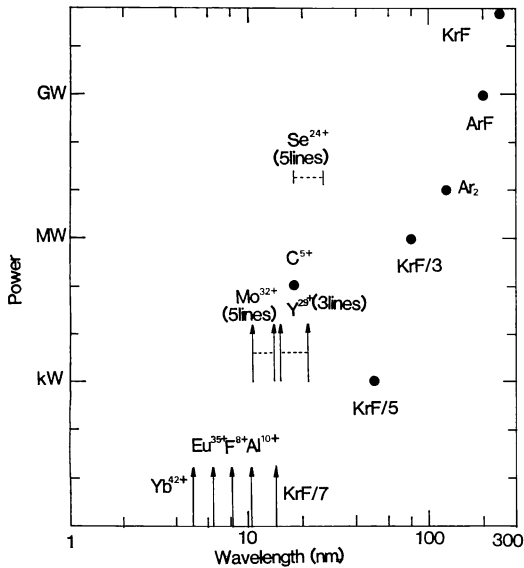


図1 軟X線領域のレーザーとそのピーク出力

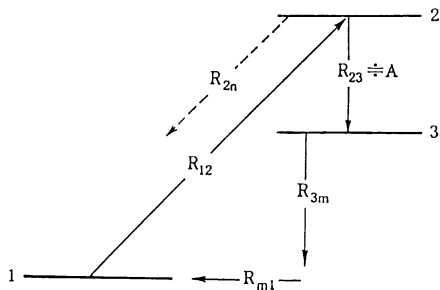


図2 レーザーの三準位モデル

図4に得られたレーザーのスペクトルを示す。最初の実験で観測されたのは20.6と20.9 nmであったが、励起レーザーの出力向上(2.4 TW→5 TW)とターゲットの改良によってその他の発振線も観測された⁷⁾。利得係数は20.63, 20.96, 20.03, 26.29 nmに対しそれぞれ4.0, 3.8, 2.3, 3.5 cm⁻¹である。シミュレーションで高

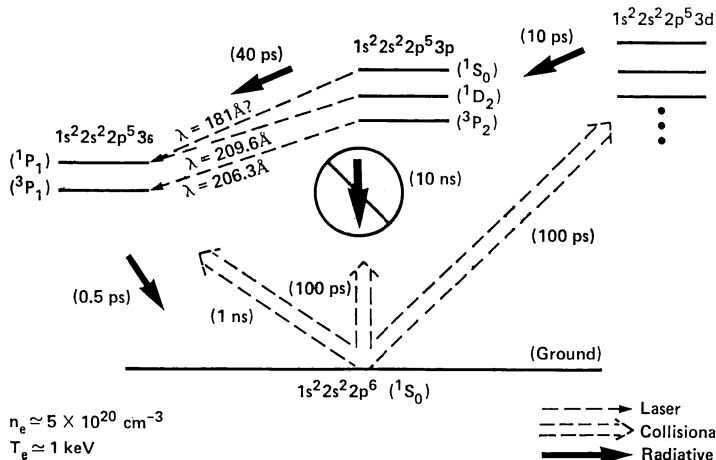


図3 Ne様Seの準位図²⁸⁾

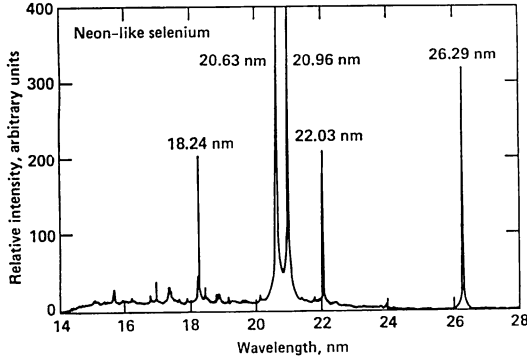


図4 Ne様Seのスペクトル⁷⁾

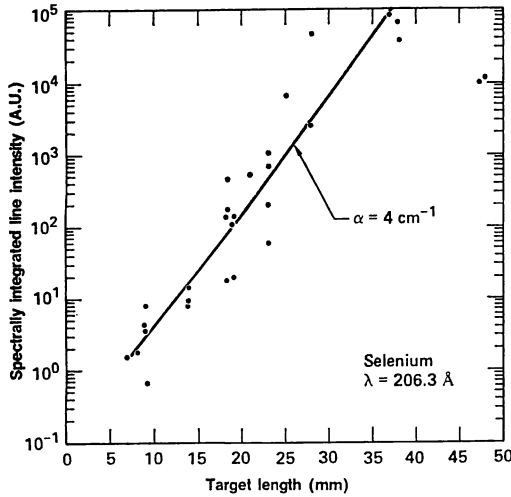


図5 Ne様Seの媒質長に対する線強度. 媒質長4 cmまでの小信号利得係数は $\alpha = 4/\text{cm}$ に対応する⁷⁾.

利得を予想された18.2 nmは測定限界以下の利得しか観測されていない。図5に媒質(ターゲット)長に対する出力を示す。ほぼ4 cmまで $g_0 L$ (g_0 : 利得係数, L : 長さ)は一定である。このとき $g_0 L = 16$ となり、シミュレーションでは利得の飽和すなわちレーザー強度が飽和強度 $I_s = h\nu/\sigma\tau$ (τ : 上準位寿命)を越える。40 mm以上で利得が減少しているのは、この飽和によるものではなく、プラズマ中の屈折率の傾斜によりビームが、媒質部分からはずれるためである。したがって現在の一つの目標は飽和領域でレーザーを動作させることである。飽和領域で動作させた場合のレーザーの特性を表1に示す⁷⁾。

リバモア研究所では短波長化のためNe様Y, Moで同様な試みを行ない、図3に対応する発振を得ている⁷⁾。また4 nm以下でGW級の出力を得るためにNi様

表1 飽和X線レーザーの諸特性

$\Delta\nu$ (バンド幅)	$\sim 0.3\Delta\nu_D$
出力(MW)	$\sim (D^2/10^{-4}\text{ cm}^2)(200\text{ \AA}/\lambda)^4$ (一定の反転分布を仮定)
空間的コヒーレンス	$\sim L\lambda/D$
コヒーレンス長	$\sim \lambda^2/\Delta\lambda$
ビーム拡がり	D/L または λ/D の大きいほう
輝度	$\frac{\text{出力(MW)} \times (6 \times 10^{24}) \times [1/h\nu(\text{eV})] \text{ photons}}{[D(\text{mm})]^2 \text{ mrad}^2 (0.01\% \text{ バンド幅})}$

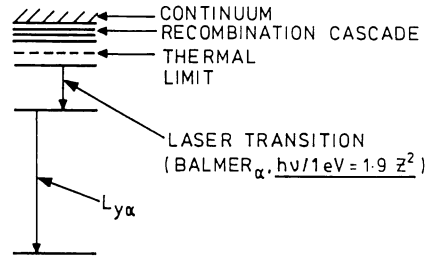


図6 H様イオンの準位図

Euの実験を行ない、最近の報告によれば6.59 nm($g_0 = 0.7\text{ cm}^{-1}$), 7.104 nm($g_0 \leq 1\text{ cm}^{-1}$)で発振を得ている。またNi様Ybでも5.02, 5.62 nmでも利得を観測しており、Auなどを使うことにより4 nmレーザーが可能としている⁴⁾。

再結合型のX線レーザーの研究は衝突励起型に比べはるかに先行していた。H様C(C^{5+})の18.2 nmでは、1980年にすでに利得が観測されている¹¹⁾。Li様Al(Al^{10+})でも1978年に増幅が観測され¹²⁾、1970年代にすでにその兆候が認められていた^{13,14)}。

H様イオンのレベル図6を示す。再結合で反転分布が得られるのはバルマー α 線である。この系列で観測される波長はC-18.2 nm, N-13.4 nm, O-10.2 nm, F-8.1 nm, Ne-6.6 nm, Na-5.4 nm, Mg-4.6 nm, Al-3.9 nmである。このうち利得が観測されているのは、 $\text{C}^{10,11,16,27)$, $\text{O}^{26)$, $\text{F}^{16,28)$ である。とくにプリンストン大学ではASEモードで発振を得たのみならず、片側に12%の反射率をもつミラーを置いて120%の出力の増加を得ている¹⁰⁾。

図7に実験配置とターゲットを示す。ターゲットは円筒内側に中心に向かってたてた4枚のCブレード(長さ2 cm)で、焦点距離の長い球面鏡でブレードの先端に沿ってソフトフォーカスしている。使用したレーザーは

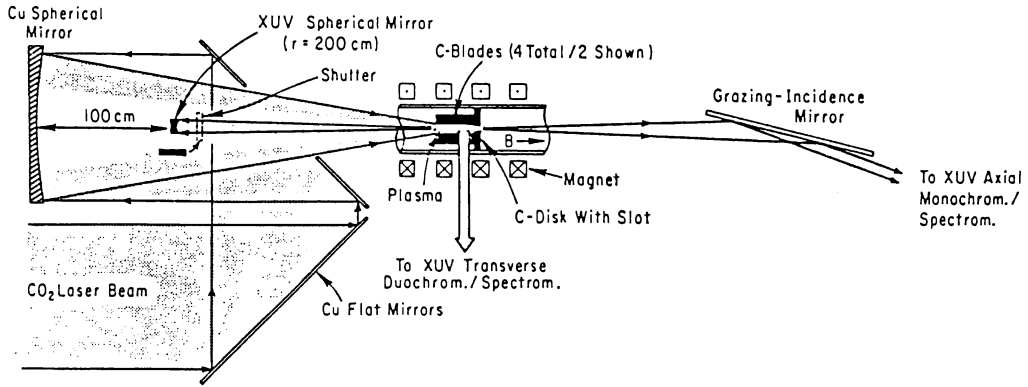


図 7 プリンストン大学で行なわれたH様Cレーザーの実験配置図¹⁰⁾

1 kJ, 80 ns の CO₂ レーザーである。プリンストン大学の特色は、生成したプラズマを 90 kG の磁場で閉じ込めることにある。自由膨張による急激な電子温度の減少とプラズマの不均一性を防ぐ目的である。この場合再結合に必要な冷却は放射冷却 (radiation cooling) が重要な役割を果たす。反転分布は中心部分よりむしろ外側に行ける。これは電子温度が中心部が高く、外側で低くなるため中心部で生成された C⁶⁺ が外側で再結合し C⁵⁺ を生成するためである。この方法で $g_0L \approx 8$, 出力 100 kW が得られている。ビームの広がり約 5 mrad であった¹⁵⁾。

ラザフォード研究所でもH様イオンのシリーズでバルマー α 線のレーザーを得る実験を行なっている¹⁶⁾。ターゲットは 7 μm のカーボンファイバーである。使用するレーザーは6ビームのガラスレーザーの2倍波 (パルス幅 70 ps) である。線状照射は球面レンズ ($f/2.5$) と軸はずしの球面鏡 ($f/2.2$) の組合せで行なっている。プリンストン大学と異なりプラズマの自由膨張により電子温度の冷却と再結合を得ている。C⁵⁺ の 18.2 nm で $g_0L=4$ を得ている。同様に LiF でコートしたカーボンファイバーをターゲットとし、H様 F(F⁴⁺) の 8.1 nm でも $g_0L=3$ 程度を観測している。パリ大学 Orsay では Li 様イオンで反転分布を得る努力を続けている。Al¹⁰⁺ の 10.57 nm ($n=5 \rightarrow 3$) で $g_0L=2 \sim 2.5$ を得ているが、発振に至っていない¹⁷⁾。

4. 光励起法

従来の中性原子や分子を使うかぎり、レーザーの波長はイオン化ポテンシャルによって制限され、せいぜい H₂ の 110 nm が限界である。この制限を越える提案が Harris らによってなされた¹⁸⁾。内殻励起された中性原

子レベルはイオン化レベルよりはるかに高い。一般にこのようなレベルは自動電離準位と呼ばれ、自然にイオン化して放射しない。しかし自動電離に対し準安定でしかも低い中性準位への遷移確率の大きい準位を選べば XUV 域のレーザーを得ることができる。

図 8 に中性 Li 原子で提案された方法を示す¹⁸⁾。4重項 ⁴P は電離に対しても放射に対しても準安定であり、十分な準位密度を得ることができる。この準位を 294.7 nm のレーザーで 2重項 1s2p²2P に移行すると 1s2p²2P⁰ の間に 20.7 nm の遷移が許容される。²P は電離に対して準安定である。遷移確率が $2 \times 10^{10}/\text{s}$ と大きいため励起レーザーのパルス幅はピコ秒オーダーである。またこ

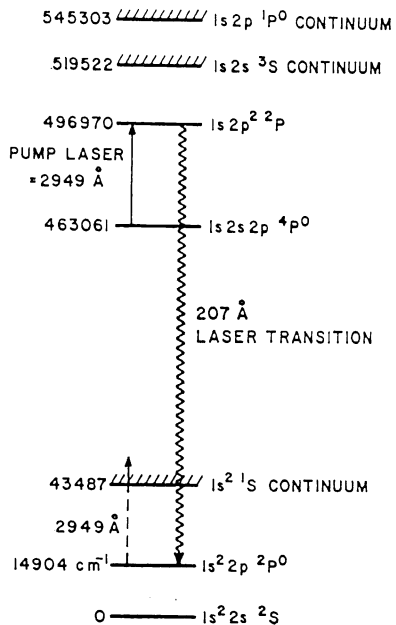


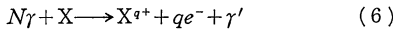
図 8 中性 Li の準位図¹⁸⁾

のレーザーは下準位 ($^2P^0$) の depopulation にも寄与する。残念ながら $^4P^0$ を励起するために 60 eV 以上の光源が必要なため、レーザー発振は得られていない。Harris らは電離に対し準安定で、遷移の許容される内殻励起準位の候補をかずかず提案している¹⁹⁾。

Bell 研ではレーザープラズマからの X 線を励起源として、XUV レーザーの研究を進めている²⁰⁾。レーザープラズマの再結合過程 (数百 ns) では、ほぼプラズマ温度に対応する黒体輻射が得られる。その温度は $T \sim 0.6(I\lambda^2)^{4/3}$ (I : レーザー強度 (W/cm^2), λ : 励起波長 (cm)) である。 $\lambda = 1.06 \mu m$, $I = 2 \times 10^{12} W/cm^2$ で約 30 eV となる。

図 9 にこの方式で得られたレーザーのダイアグラムを示す。最短は Xe^{2+} の 109 nm であり²¹⁾, Na の 37.2 nm を期待している²⁰⁾。この方法でも短波長化とともに励起 X 線の波長も短くなり、励起レーザーも高出力化は避けられない。

もう一つの光励起法は多光子励起である。超短パルス (ps~fs) の高出力エキシマレーザーを薄いガス中に集光すると、多価イオンが生成する。その反応は



で表わせる。 N 個の光子を吸収して原子 X が q 価のイオンに励起され、 γ' の蛍光を発する。図 10 に KrF (0.5 ps), ArF (5 ps) を用いて得られた多価イオンを示す²²⁾。100 光子以上が上記過程に関係している。この反応は実は一価ずつイオン化するステップワイズイオン化であることが明らかになったが、反応のタイムスケール

は $10^{16} W/cm^2$ の強度下でサブ ps のオーダーである。この過程はタイムスケールからいって、レーザープラズマによるイオン化過程と異なる。イリノイ大学ではこれを無衝突励起と称している。また気体パルスジェット (ノズルの先の粒子密度は $\sim 10^{18}/cm^3$) にピコ秒エキシマレーザーを照射し、XUV 域の蛍光を観測している⁶⁾。この方法で X 線レーザーを得ようとする場合、進行波励起は避けられない。マックスプランク研究所では Axicon を使った進行波励起を提案している²³⁾。またこの方向にそって、著者らのグループでは、TW 級のピコ秒エキシ

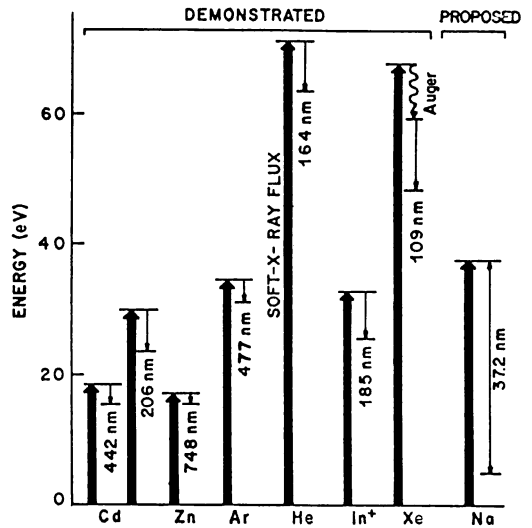


図 9 レーザープラズマからの X 線を励起源としたレーザー²⁰⁾

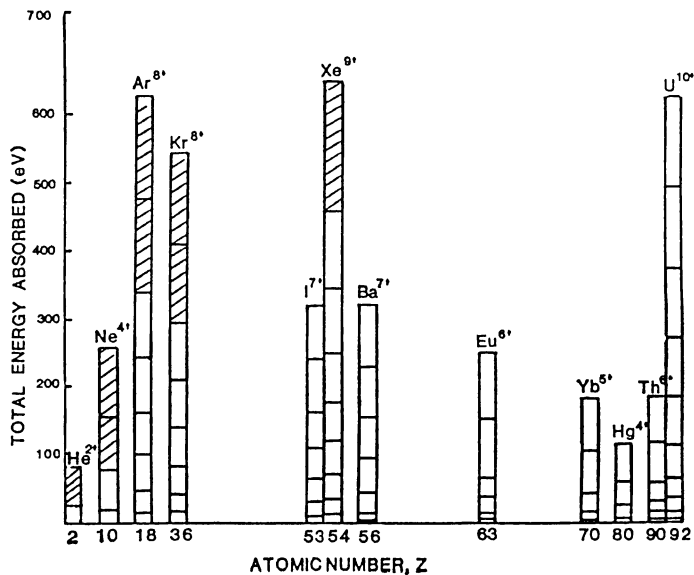


図 10 ピコ秒レーザーの多光子過程で得られる多価イオン²²⁾

マレーザーを開発中である²⁴⁾。

5. 波長変換

媒質に高輝度なレーザー光を通過させると、気体などのように反転対称な媒質中では奇数次の高調波が発生する。最近パルス気体ジェットの利用とピコ秒エキシマレーザーの開発により、XUV 領域への短波長化が実現された。図11にエキシマレーザーの高調波と色素レーザーとの光混合で原理的にカバーできる波長範囲を示す⁹⁾。実際高調波では KrF の 17 次 (14.6 nm) まで観測されている (図12)。ただ 13 次の効率は 2×10^{-11} で 5 次で 10^{-7} 程度である⁶⁾。5 次までの光はすでに、固体の光電子分光に使用されている²⁵⁾。波長変換法は短波長になるほど、効率が低下するため、X線領域は無理でも

20~100 nm では実用的光源になる可能性がある。サブ ps から fs パルスを用いると高調波の周辺にコンティニュームがでる可能性があり、その場合、小型UVSOR (軌道放射光) の働きをする。

6. ま と め

X線レーザーの本格的な研究はいくつかの先駆的な研究はあるものの、始まったばかりと言える。最近のリバモアの研究では 25 MW で効率も 10^{-5} まで改善されている。今後短波長化と同時に、より threshold が低く、効率のよいレーザー媒質の研究が進むと思われる。レーザーの改善とともに、応用していくうえで、X線ミラーをはじめとする光学系の開発が必須である。レーザーの開発、光学系の開発、応用は三位一体となって進むであろう。

文 献

- 1) R. W. Dreyfus and R. H. Hodgson: "Molecular-hydrogenlaser," *Phys. Rev. A*, **9** (1974) 2635-2648.
- 2) M. D. Rosen, P. L. Hagelstein, D. L. Matthews, E. M. Cambell, A. U. Hazi, B. L. Whitten, B. MacGowan, R. E. Turner, R. W. Lee, G. Charats, Gar. E. Bush, C. L. Shepard, P. D. Rockett and R. R. Johnson: "Exploding-foil technique for achieving a soft X-ray laser," *Phys. Rev. Lett.*, **54** (1985) 106-109.
- 3) D. L. Matthews, P. H. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medeck, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, W. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffmann, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone and T. A. Weaver: "Demonstration of a soft X-ray amplifier," *Phys. Rev. Lett.*, **54**(1985) 110-113.
- 4) E. M. Campbell: "Ultra-power laser-plasma interaction," IQEC '87 Bultimore, Maryland (1987) paper MEE 1.
- 5) J. Reintjes, C. Y. She and R. C. Eckardt: "Generation of coherent radiation in the XUV by fifth- and seventh-order frequency conversion in rare gases," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-14** (1978) 581-597.
- 6) A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. Mcltyre, K. Boyer and C. K. Rhodes: "Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**, (1987) 595-601.
- 7) D. Matthews, M. Rosen, S. Brown, N. Ceglio, D. Eder, A. Hawryluk, C. Keane, R. London, B. MacGowan, S. Maxon, D. Nilson, J. Scofield and J. Trebes: "X-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory Nova laser facility," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 575-587.
- 8) R. W. Waynant and R. C. Elton: "Review of short wavelength laser research," *Proc. IEEE*, **64** (1976) 1059-1092.
- 9) J. F. Reintjes: *Nonlinear Optical Parametric Processes*

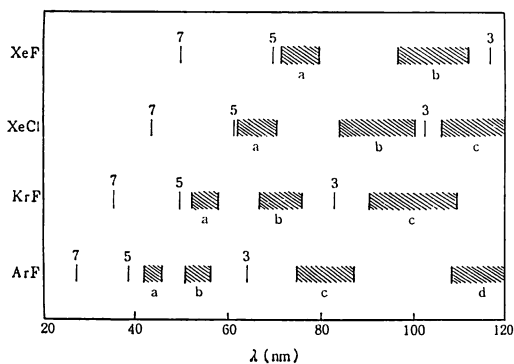


図 11 エキシマレーザーの高調波と色素レーザーの光混合でカバーできる XUV 波長域⁹⁾

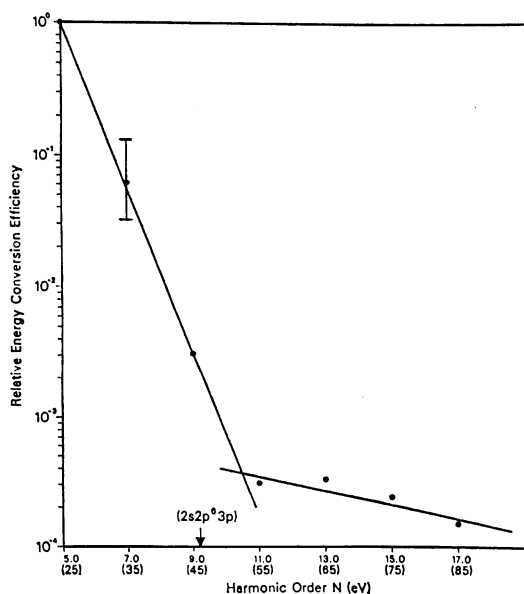


図 12 ピコ秒 KrF で得られた高調波⁶⁾

- in Liquids and Gases* (Academic, Orlando, 1984).
- 10) S. Suchewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane and D. Voorhees: "Amplification of stimulated soft-X-ray emission in a confined plasma column," *Phys. Rev. Lett.*, **55** (1985) 1753-1756.
 - 11) D. Jacoby, G. J. Pert, S. A. Ramsden, L. D. Shorrock and G. J. Tallents: "Observation of gain in a possible extreme ultraviolet laser system," *Opt. Commun.*, **37** (1981) 193-196; *J. Phys. B*, **15** (1982) 3557-3580.
 - 12) P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Carillon and C. Wehenke: "X-ray studies in laser-produced plasmas," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **17**, Supplement 17-2 (1978) 483.
 - 13) P. Jaeglé, A. Carillon, P. Dhez, G. Jamelot, A. Sureau and M. Cukier: "Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme UV range," *Phys. Lett.*, **36A** (1971) 167-168.
 - 14) P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Carillon, A. Sureau and P. Dhez: "Superradiant line in the soft X-ray range," *Phys. Rev. Lett.*, **33** (1974) 1070-1073.
 - 15) S. Suckerwer, C. H. Skinner, D. Kim, E. Valeo, D. Voorheer and A. Wouters: "Divergence measurements of soft-X-ray laser beam," *Phys. Rev. Lett.*, **57** (1986) 1004-1007.
 - 16) O. Willi, D. Bassett, C. Chenais-Popovics, R. Corbett, M. Grande, R. Hawkins, C. Hooker, M. H. Key, G. Kiehn, C. L. S. Lewis, G. J. Pert, S. Ramsden, C. Regan, S. J. Rose, R. A. Smith and T. Tomie: "X-ray laser research at the Rutherford Appleton Laboratory," *Proceedings of SPIE on Multilayer Structures and Laboratory X-Ray Laser Research*, vol. 688, San Diego, Ca. (1986) pp. 2-11.
 - 17) P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Carillon, A. Krisnick, A. Sureau and H. Guennou: "Soft-X-ray amplification by lithiumlike ions in recombination hot plasma," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 563-574.
 - 18) S. E. Harris: "Proposal for a 207-Å laser in lithium," *Opt. Lett.*, **5** (1980) 1-3.
 - 19) S. E. Harris and J. F. Young: "Core-excited metastable levels: Application to spectroscopy, to the generation of picosecond extreme-ultraviolet pulses, and to lasers," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 547-562.
 - 20) W. T. Silfvast and O. R. Wood: "Photoionization lasers pumped by broadband soft-X-ray flux from laser-produced plasmas," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 609-618.
 - 21) R. W. Falcone and H. C. Kapteyn: "Short-wavelength laser pumped by Auger decay," IQEC '87, Baltimore, Maryland (1987) paper FMM1.
 - 22) T. S. Luk, U. Johann, H. Jara, I. A. McIntyre, A. McPherson, A. P. Schwarzenbach, K. Boyer and C. K. Rhodes: "Subpicosecond studies of collision-free multiple photon processes in the ultraviolet," *Proceedings of SPIE Conference on High Intensity Laser Processes*, vol. 664, Quebec City (1986) pp. 223-228.
 - 23) F. P. Schäfer: "On some properties of axicon," *Appl. Phys. B*, **39** (1986) 1-8.
 - 24) S. Watanabe, A. Endoh and M. Watanabe: "A picosecond high power KrF laser system," *Proceedings of SPIE Conference on High Intensity Laser Processes*, vol. 664, Quebec City (1986) pp. 194-201.
 - 25) R. Haight, J. Bokor, R. H. Storz and J. B. Stark: "Photoemission apparatus using XUV harmonics of a picosecond KrF laser," *Proceedings of SPIE Conference on Excimer Lasers, Their Applications, and New Frontiers in Lasers*, vol. 476, Arlington, Virginia (1984) pp. 61-64.
 - 26) G. Jamelot, A. Klisnik, A. Carillon, H. Guennou, A. Sureau and P. Jaeglé: "Amplification of soft X-ray spontaneous emission in aluminum and magnesium plasma," *J. Phys. B*, **18** (1985) 4647-4663.
 - 27) J. F. Seely, C. M. Brown, U. Feldman, M. Richardson, B. Yaakobi and W. E. Behring: "Evidence for gain on the C_{VI} 182Å transition in a radiation-cooled selenium/Formvar plasma," *Opt. Commun.*, **54** (1985) 289-294.
 - 28) N. M. Ceglio and H. Medeck: "Time and space resolved spectroscopy of X-ray laser experiments," *Proceedings of SPIE Conference on Multilayer Structures and Laboratory X-Ray Laser Research*, vol. 688, San Diego (1986) pp. 26-35.