



小特集 プラズマ軟X線レーザー利用研究の最前線

7. 軟X線レーザーの小型化とその将来の展望

河内 哲哉

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

(原稿受付：2008年2月22日)

巨大な励起レーザー装置による原理実証実験から始まった電子衝突励起方式によるプラズマ軟X線レーザーが小型のTi:Sapphireを励起光源としたテーブルトップ光源にまでなったこの20年間の小型化の流れを俯瞰する。高輝度コヒーレント軟X線光源の利用・応用研究の展開を本格的に図っていくにあたり、プラズマ軟X線レーザーが近い将来解決すべき問題点を明らかにするとともに、その将来の展望を考える。

Keywords:

soft x-ray laser, high power laser, ultra-fast phenomena

7.1 初期の軟X線レーザーと多重照射励起法

プラズマ軟X線レーザーの主な発振方法には電子衝突励起方式と再結合プラズマ方式があるが、電子衝突励起方式の反転分布生成機構については本小特集第2章を、再結合プラズマ方式のそれに関しては参考文献[1,2]を参照していただくとして、この章では電子衝突励起方式によるプラズマ軟X線レーザーの小型化のこれまでの流れと将来への展望を記述する。

電子衝突励起方式は1976年に Zherikhin らにより提唱され[3]、その後 Vinogradov らによって Ne 様イオンを中心に詳細な理論計算がなされてきたが[4]、実験的に実証されたのは1985年の米国ローレンスリバモア国立研究所(LLNL)による報告が初めてである[5]。そこでは核融合実験用のNOVAレーザーの2倍高調波(450 ps, 6 KJ)をセレンフィルターターゲットに照射し、Ne 様 Se イオンの 3p → 3s 線(波長 20.63 nm, 20.96 nm)の増幅を観測している。この実験ではターゲットとしてフォームターゲットの表面にSeを蒸着させたものを用いていた。通常の固体ターゲットを単一のレーザーパルスで照射した場合、軟X線の増幅利得領域が急峻な密度勾配を持つ領域に生成するために増幅する軟X線が屈折の影響を受けて利得領域から外れてしまうが、初期密度の低いフォームターゲットを基盤に用いることで軟X線の増幅利得領域を電子密度勾配の緩やかな領域に生成することが狙いであった。

大規模な励起エネルギーを要する理由から電子衝突励起方式はそれから数年間はLLNLの独壇場であったが、その後、利得領域をプラズマ中の密度勾配の緩やかな領域に生成することがレーザー照射技術の改良により可能となり、励起エネルギーの縮小化がなされていく。図1に横軸を年代として、縦軸を励起エネルギー(下にいく程励起エネルギーが大きくなり、上にいく程励起エネルギーが小さくなって

いる)を示す。最初のブレイクスルーはプリプラズマを用いる方法(多重パルス励起方式)である。励起レーザーの主パルスがターゲットに照射される前に、それよりも1~2桁少ないエネルギーのレーザーパルスをターゲットに照射することでスケール長の大きな予備プラズマ(プリプラズマ)を生成しておく。プリプラズマの存在により主パルスの臨界密度(波長 1 μm に対して電子密度 $n_e = 10^{27} \text{ m}^{-3}$)近傍の密度勾配が緩やかになることとスケール長の増加により主パルスの吸収効率を高めることができる。この方法により励起エネルギーは1桁程度小さくなり、大阪大学

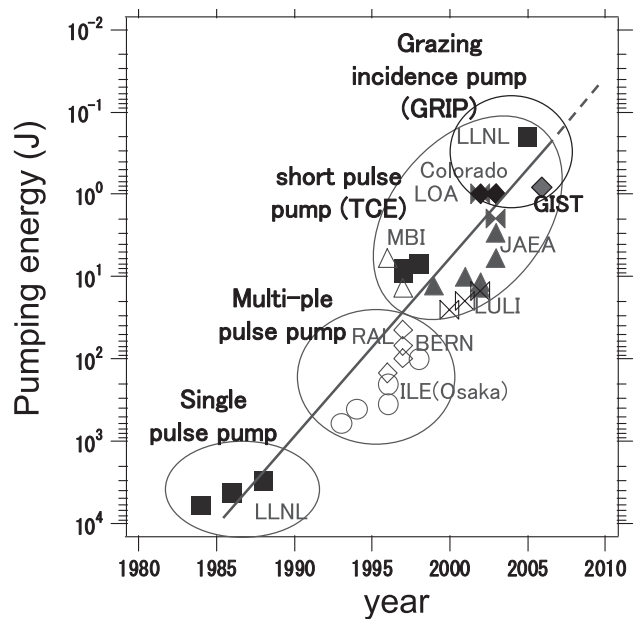


図1 波長10-30 nmのプラズマ軟X線レーザーの発振に必要な励起エネルギーの年代による推移。

レーザー核融合研究センター（現レーザーエネルギー学研究所センター）のGEKKO XII号やラザフォードアップルトン研究所（RAL）のVulcanらで電子衝突励起方式の軟X線レーザーの発振が可能となった。その後、パルス強度、パルスの時間間隔などの最適化を進めることで波長6~8 nmのNi様軟X線レーザーの発振が励起エネルギー200~300 Jで得られるようになった[6]。また、スイス、ベルン大学のグループは出力エネルギー30 J、パルス幅100 psのダブルパルス照射によりNi様Pd, Agレーザー（それぞれ波長14.7 nm, 13.9 nm）の飽和増幅を得ている[7]。これは当時の超大型レーザーによる実験が主流の電子衝突励起レーザーの中で画期的な結果であった。

7.2 過渡利得励起方式と斜め入射励起方式

1980年代終わり頃よりロシアのレベデフ研究所を中心に、超短パルスレーザーを用いてプリプラズマの電子温度を急激に上昇させることで、過渡的に大きな増幅利得を得る提案がなされた[8]。いち早くドイツMax-Born研究所がチャープパルス増幅（CPA）技術[9]を用いたNd:Glassレーザーを軟X線レーザーの励起光源として整備し、1995年頃にNe様Tiイオンの3p→3s ($J=0 \rightarrow 1$) 遷移（32.6 nm）の増幅に成功した[10]。その後、この方法は過渡利得電子衝突励起軟X線レーザーと呼ばれ、LLNL、フランスLULI研、RAL、日本の原子力機構などで同様のCPA Nd:glassレーザーを整備し10 J程度の励起エネルギーで、Ni様Pdイオン（波長14.7 nm）、Agイオン（13.9 nm）、Snイオン（12.0 nm）の3d⁹4d→3d⁹4p 遷移において、30–35 cm⁻¹という大きな増幅利得係数とともに飽和増幅が得られている[11]。

当初、過渡利得励起方式は、基底状態からの電子衝突励起の立ち上がりの時定数がレーザー上準位と下準位間の衝突過程による緩和時間よりも速くなることで、レーザー準位の励起状態占有密度に対する準定常的な取扱いが崩れて過渡的に大きな反転分布が生じると考えられてきた。それに対して現在では、従来の励起方法で実現が難しかったレーザー媒質イオン密度の最大値と反転分布生成に有利な高温状態を、超短パルスによるプラズマの急峻な加熱により同時に実現できるようになったことが過渡的に大きな反転分布生成を可能にしていると考えられている。これは、計算機コードによる詳細な計算が可能になったことと、軟X線レーザーのパルス幅や増幅利得発生時間（通常両者は異なる）の実測データが揃ってきたことにより裏付けられている。図2にNi様Agイオンに対する基底状態からレーザー上準位への電子衝突励起速度係数とNi様イオンからCo様イオンへの衝突輻射電離係数(S_{CR})をプロットしたものを示す。電子密度は $5 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ を仮定している。電子衝突励起速度係数の大きさから600–800 eVの電子温度領域が反転分布生成に最適なのに対して、衝突輻射電離速度係数はそれよりもずっと低い電子温度から実効的になることが示されている。従来の比較的長い加熱パルス（パルス幅100 ps程度）では、電子温度の増加が緩やかなために、反転分布生成に有利な高温状態にプラズマが達するまでに、

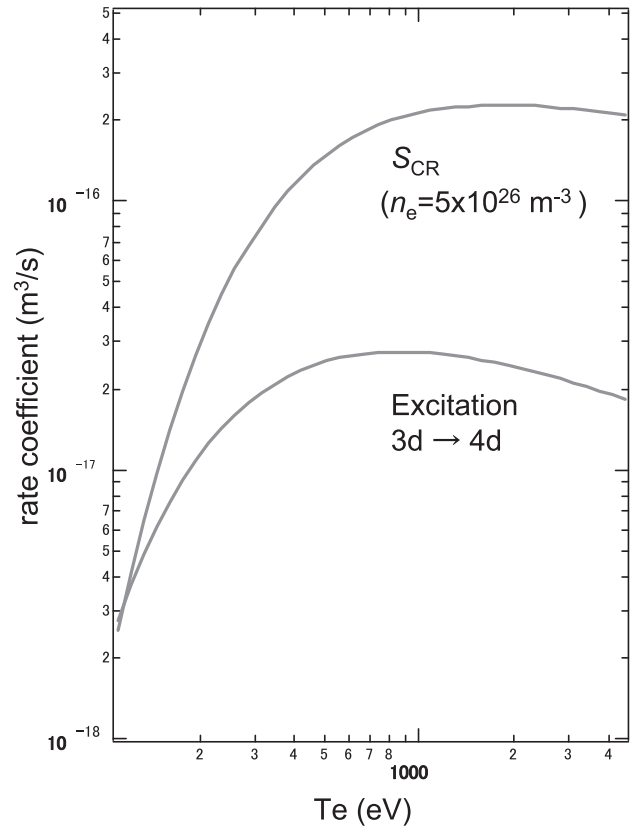


図2 Ni様Agイオンの衝突輻射電離速度係数と3d-4d衝突励起速度係数。

比較的低い電子温度でも進行するイオン化が進み過ぎてしまい、Ni様イオン基底状態密度を最大にする時間帯と反転分布生成に最適な電子温度が得られる時間帯を一致させることが困難であった。その典型的な例が図3に示されている。これはスイスのベルン大学のグループが軟X線レーザーの発生時間と励起レーザーパルスの関係を測定したもので、実線が励起パルスの時間プロファイル、破線が軟X線レーザーの時間プロファイルを表している。励起レーザーの強度がピークに達する前に、利得媒質イオンがさらに上のイオン化段階へイオン化したために増幅利得が消滅していることがわかる[12]。この実験での主パルスの後半部分（より厳密にいうと全体の70%以上）が軟X線レーザーの発振には不要であると同時に励起光の短パルス化が望ましいことを表している。

過渡利得励起方式は当初、励起レーザーをターゲットに対して垂直方向から照射することで利得領域を生成してきたが、垂直入射の場合には臨界密度ごく近傍の加熱とそこからの熱伝導による高密度領域の加熱に励起エネルギーが費やされてしまう。またプリプラズマの密度勾配により主パルスが屈折の影響を受け、想定した領域にエネルギーを注入できないかもしれない。軟X線の増幅利得領域が臨界密度よりも低い領域（under-dense）にある場合には、あえて垂直入射を行う必要はなく、under-dense領域のみを加熱するような照射配置も考えられる。これは、GRIP (Grazing Incidence Pumping) 法と呼ばれている。励起レーザー光の集光光学系に球面鏡などを軸外して使うことで収差を持った短い線集光（長さ1 mm）を作り、それを長さ10 mm

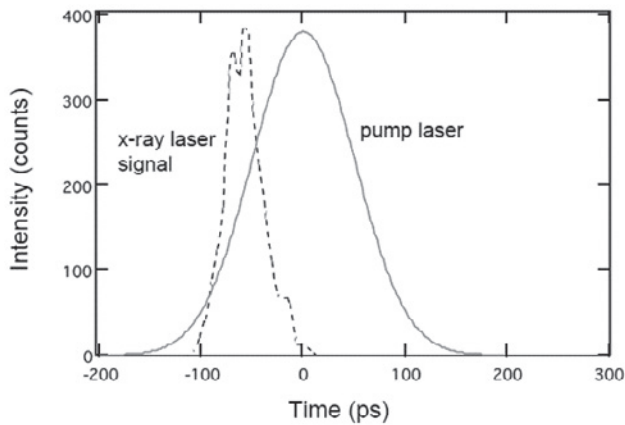


図3 100 ps ダブルパルス照射による Ni 様 Ag レーザーの時間波形 (点線) と励起パルスの時間波形 (実線) (Ref.[12], Strub et al.).

程度のプリプラズマに斜め入射することによりすでにプラズマ軟 X 線レーザーの増幅が実現している。励起レーザーをプリプラズマに斜め入射する場合に、励起レーザーが反射する電子密度は $n_{e,ref} = n_{cr} \times \cos^2(90-\theta)$ で表される。斜入射励起の入射角を最適化することでレーザー光の吸収領域 (例えば波長 $1 \mu\text{m}$ のレーザーであれば電子密度が $10^{25} \sim 10^{26} \text{ m}^{-3}$ の領域) の実効的な長さを長くすることでできるので、励起光エネルギーのプラズマへの吸収効率を上げること、過渡利得方式で重要になる進行波励起を近似的に実現できることが可能となる。最適な励起レーザー光の入射角は発振させる波長によって異なる。これは発振波長によって増幅利得が生成する最適な電子密度領域が異なるためであり、例えば、Ni 様 Mo イオンレーザー (波長 18.8 nm) の場合、入射角はターゲット垂直方向から測って 75° 程度となり、発振波長が短くなるにつれてこの角度は小さくなる、つまり垂直入射に近くなる。GRIP 法の登場により、商業ベースの Ti:Sapphire レーザーを励起光源として固体ターゲットを用いたプラズマ軟 X 線レーザーの発振実験が可能となった。現在、軟 X 線の出力エネルギー、空間コヒーレンスに関しては Nd:glass レーザーを用いた軟 X 線レーザーに比べて少し劣るが、波長 $10\text{--}30 \text{ nm}$ の軟 X 線レーザーが繰り返し 10 Hz 、励起エネルギー $0.15\text{--}1 \text{ J}$ で得られるようになった [13, 14] (図 1 参照)。

7.3 小型プラズマ軟 X 線レーザーの将来の展望

小型化、高繰返し化を図ったプラズマ軟 X 線レーザーが今後解決すべき課題を 2 つ挙げておく。一つはプラズマ軟 X 線レーザーのエネルギー変換効率を向上させることである。これまで、どのような規模の励起レーザーを用いてもプラズマ軟 X 線レーザーのエネルギー変換率は 10^{-6} でほぼ一定であり、その原因はまだ判明していない。実際に励起レーザーのエネルギーがどれだけプラズマに吸収されているか、輻射冷却がどの程度効いているかをシミュレーションと実験結果を照らし合わせながら詳細に調べる必要がある。また、この問題への取り組みを通じて、励起エネルギーを一定にした条件下で、利得領域を大きくできるか

どうかの検討を始める必要がある。軟 X 線レーザーの飽和増幅強度は利得発生領域のプラズマパラメータ (電子温度、電子密度) で決まり、その値は $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 程度になる。したがって、飽和増幅領域にまで達したプラズマ軟 X 線レーザーの出力エネルギーの向上には、利得領域の拡大が必要不可欠となる。

二つめは軟 X 線レーザーの応用範囲を生物試料のナノスケールのダイナミクスの観察にまで広げるための「水の窓」領域に向けた短波長化である。電子衝突励起方式の場合、より短い波長での発振を行うためには、より価数の高いイオンを用いなければならない。例えば Ni 様イオンを考えた場合、発振波長は有効核電荷のほぼ逆数に比例する。必要なイオンを得るのに中性原子からイオン化を行った場合のイオン化エネルギーの総和は有効核電荷のほぼ 3 乗に比例して大きくなるために、必要な励起エネルギー (または励起光の照射強度) は極端に大きくなり、さらに最適な増幅利得領域は密度の高い (over-dense) 領域になる。図 4 は横軸を励起エネルギーに縦軸をこれまでの主なプラズマ軟 X 線レーザーの発振波長をプロットしたものである。これまでに述べた多重照射法や GRIP は、どちらも under-desne 領域をいかに効率よく加熱するかを目的としたものであり、短波長化には大きな寄与をしていないことがわかる。短波長化に関しては電子衝突励起方式には原理的な限界があり、フェムト秒のパルス幅のレーザーを用いた内殻励起方式など新方式の実験的実証実験が望まれる [15]。

軟 X 線レーザーの発生に必要な励起エネルギーはこの四半世紀で 4 桁近く小さくなった。波長 $10\text{--}30 \text{ nm}$ の領域の飽和増幅に必要な励起レーザー装置も今や商業ベースの小型レーザーとなり、真に実験室規模のテーブルトップ光源といえる領域にまで達している。軟 X 線レーザーの輝度は現在プロトタイプとして稼働中の軟 X 線領域の X 線自由電子レーザーや高次高調波と比べても遜色なく、その単色性や高い空間コヒーレンスといった特徴を有効に活用していく必要がある。また最近、高次高調波の時間コヒーレンス成分のみを取り出して軟 X 線増幅利得媒質で増幅することで高い時間コヒーレンスを持った軟 X 線レーザーも実現し

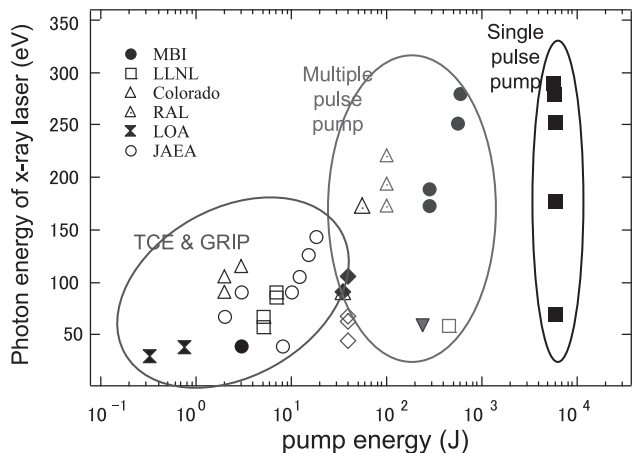


図4 軟 X 線レーザー発振に要する励起エネルギーと発振線の光子エネルギーの関係。

ている[16]. 利用研究に目を転じると、軟X線レーザーならではの研究対象がどのようなものなのかもはっきりし始めている。短波長と高輝度を利用した固体薄膜等のVolume Heatingによる新しい物性の研究や、ナノメートルオーダーの波長と高い空間コヒーレンスを活用したナノテクノロジー材料の高時間分解かつ高空間分解観察には最も適するであろう。既に強誘電体のドメイン構造の格子揺らぎの観測において他の光源では見ることができない構造変化が観測されている。また、生命科学におけるDNAやタンパク質の生命活動の発現がナノスケールの現象であることを考えれば、「水の窓」領域のコンパクトな軟X線レーザーを実現すべく最大限努力をする必要がある。

軟X線レーザーの利用研究の進展はコヒーレントX線の利用技術の進歩に負うところが多い。しかしながら、これまでコヒーレントX線を本格的に利用する研究が皆無であったために、コヒーレントX線光学とも言うべきその利用技術がまだまだ不十分であるのが実情である。これから先、コヒーレントX線光学の技術の進展が軟X線レーザーの新たな応用分野の発掘につながり、その応用分野への展開が軟X線のハンドリング技術を高めるといった両者の相互協調関係が続いていくであろう。そこで培われたコヒーレントX線を用いた計測技術は、様々な科学・工学の分野へ波及・浸透していくことが我々の望みでもある。そしてその計測手法を駆使した軟X線レーザーが、高次高調波や現在開発中の波長可変硬X線光源であるX線自由電子レーザーとともに各々の役割分担を明確にし、それぞれの得意な観測を相補的に行っていくことが今後進められることを期待する。

謝辞

本小特集を纏めるにあたって、原子力機構関西光科学研究所の大道博行研究主席、光産業創成大学院大学の加藤義章教授からご指導、ご助言を多々頂戴いたしましたことを

この場をお借りしてお礼申し上げます。原子力機構関西光科学研究所・田島俊樹前所長、量子ビーム応用研究部門光量子ビーム利用研究ユニット・木村豊秋前ユニット長、X線レーザー利用研究グループの方々に感謝いたします。

参考文献

- [1] 河内哲哉：講座「Q&A 集で見る X 線レーザー」, 第 2 章 X 線レーザーの基礎, プラズマ・核融合学会誌 **77**, 140 (2001).
- [2] 河内哲哉：小特集「プラズマ再結合」, 第 4 章レーザー生成プラズマにおけるプラズマ再結合 (X 線レーザー), プラズマ・核融合学会誌 **74**, 568 (1998).
- [3] A. Zherikhin, K. Koshelev and V. Letokhov, *Sov. J. Quant. Mech.* **6**, 82 (1976).
- [4] A.V. Vinogradov and V. Shlyaptsev, *Sov. J. Quantum Electrons*, **13**, 1511 (1983).
- [5] D.L. Matthews *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 110 (1985).
- [6] H. Daido *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1074 (1995).
- [7] J.E. Balmer *et al.*, *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron.* **5**, No. 6, 1435-1440 (1999).
- [8] Y.A. Afanasiev and V. N. Shlyaptsev, *Sov. J. Quantum Electron.* **19**, 1606 (1989).
- [9] D. Strickland and G. Mourou, *Opt. communication* **56**, 219 (1985).
- [10] P.V. Nickles *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2748 (1997).
- [11] T. Kawachi *et al.*, *Phys. Rev. A* **66**, 033815 (2002).
- [12] F. Staub, M. Braud, J.E. Balmer and J. Nilsen, *Phys. Rev. A* **72**, 043813 (2005).
- [13] R. Keenan *et al.*, *proc. SPIE* **5197**, eds. E. E. Fill and S. Suckewer, San Diego (2003) p 213.
- [14] Y. Wang *et al.*, *Phys. Rev. A* **72**, 053807 (2005).
- [15] Y. Kato and T. Kawachi, "Prospect of Laser-Driven X-ray Lasers for Extension to Shorter Wavelength", *Progress in Ultrafast Intense Laser Science*, chapter 10, Springer series in Chemical Physics, vol. 91, Eds. K. Yamanouchi, A. Becker, R. Li and S. L. Chin (2008).
- [16] N. Hasegawa *et al.*, *Phys. Rev. A* **76**, 043805 (2007).