高強度X線が開拓する物理

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 東京都調布市調布ヶ丘1-5-1)

New Physical Subjects with Intense Ultra-Short Pulse X-Ray Lasers

Hitoki YONEDA

Institute for Laser Science, University of Electro-Communications, Chofushi, Tokyo 182-8585

(Received August 29, 2009)

Using the newly developed X-ray lasers, we can open up new areas of science. In this review, topics related to the high energy-density conditions created by ultra-short pulse high-intensity X-ray laser irradiation are considered and new applications are introduced for these non-equilibrium conditions. After illumination by intense fsec X-ray laser pulses, we can create a “hollow-atom solid” in which inner shell ionization occurs in almost all the atoms while the long and/or medium range ordering of the solid remains despite the high energy-density condition. We can design active optical components for keV X-ray lasers by using absorption control. Here we estimate the threshold parameters for saturable absorbers for various X-ray lasers.

Key Words: X-ray nonlinear optics, Inner-shell ionization, X-ray free electron laser, Warm dense matter, Saturable absorber

1. はじめに

X線の応用には、シンクロトロン放射、プラズマX線などがあるが、アンジュレータを使ったビームであってもそのコヒーレンスは低く、時空間で集光して高強度場での研究ができるところまでには至っていない。一方、コヒーレントX線としては、高次高調波光やプラズマX線レーザーがあるが、ミクロン単位までの集光が可能で、フェムト秒～ピコ秒まで短パルス化されているものの、固体を対象にしたような相互作用においては、非線形光学効果を生み出せるほどの強度および共鳴準位を自由に選択できるほどの波長選択性がない。このような状況の中で、ようやく自由電子レーザーのX線化が実現され、高強度、波長可変、超短パルスといったキーワードを含む研究要素ができてきた。本解説では、この新しい光源が拓きうる物理研究について、その高強度性を利用した物質との相互作用を中心に議論する。

以下、第2節では「なぜX線レーザー応用が必要か」を、第3節では「応用上重要になる高強度X線と物質との相互作用」について、第4節では「照射後に生成される高密度な内殻励起原子の状態」を、そして第5節では、この内殻励起原子の高密度状態の応用についての可能性、特に非線形光学素子とレーザー励起X線レーザーについて述べる。

2. なぜ、今X線レーザー応用か？

X線自由電子レーザー (X-ray Free Electron Laser: XFEL) が実現できれば、シンクロトロン放射光、高次高調波、レーザープラズマ熱放射、プラズマX線レーザーといったこれまでの光源と比べて、以下のような条件が達成可能となる。

- (1) エネルギー分解能 $E/\delta E \sim 10^4$ 程度
- (2) 自由な波長選択性
- (3) フェムト秒～アト秒の直接発振
- (4) keVコヒーレントX線

まず考えられることは、短波長化された光自身のポテンシャルによって、フーリエ限界が光学波長より格段に小さくなり、アト秒への制御が容易になることが考えられる。また、XFELでは媒質フリーの発生であることから、位相の空間、時間波面という点においてもシンプルであるはずで、発生後の制御も容易なものになると予想される。さらに、空間的にも集光径を小さくするために、比較的小さなエネルギーでも超高強度が実現できる。インコヒーレント光であっても、現在、通常のシンクロトロン放射光学系で75 nmの集光が可能になってきたことを考えれば、コヒーレント光になった場合、1 nm台の集光性能に入るものと考えられる。ここに10 μ Jのエネルギーを10 fsで集光すれば 10^{23} W/cm²の照射強度といった、現在の超高出力レーザーの領域を超えた

超高光電場が実現できる。このようなXFELの応用としては、米国のLCLS(Linac Coherent Light Source)研究立ち上げ時(2000年)に、“LCLS The First Experiments”^{†1)}として、Atomic physics experiments, Plasma and warm dense matter studies, Single particle and Biomolecules, Femtochemistry, Nanoscale dynamics in condensed matter physics, X-ray laserのカテゴリに分けてまとめられているので、そちらも参照していただきたい。ここでは、その後のより高強度の応用、挑戦的な考え方についてまとめる。

3. 高強度X線と物質との相互作用

ここでは、これまでのシンクロトロン放射に比べ桁違いに高い強度でX線が物質と相互作用する状況を考える。これまでX線は物質を探索するものとして使われることが多く、物質そのものを瞬時に改変するビームとしては見られていなかった。もし、以下で述べるような高強度で照射が実現すれば、原子あたりのエネルギー付与はkeVを超え、しかし秩序性が保たれている、温度上昇を抑えられている物質状態を作ることが可能である。そこで、X線レーザーを応用する上で重要となる物質との相互作用の特徴について、まとめてみる。

高強度X線レーザーでは、照射物質内で相互作用する相手が、これまでの自由電子(最外殻の電子)から、比較的強く束縛されかつ原子核に近い内殻電子に代わるため、他の光レーザーの場合と較べて、以下のような大きな差が出てくる。

3.1 金属から誘電体的相互作用へ

よく知られているように、通常のレーザー相互作用では、レーザーは臨界密度面で反射する。深紫外レーザーといえども $1.8 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 程度の電子密度以上には侵入できない。一般の金属の固体状態の原子密度(AIで密度 2.7 g/cm^3 質量数 $A=26.98$, イオン密度 $N_i \sim 6 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, 3価程度の電子が伝導電子を作るとすると電子密度は $n_e = 1.8 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ になる。)を考えると80 nm以下の波長では、多くの金属は屈折率がほぼ1に近くなり、吸収も低下し固体内に深い侵入長が得られ、すなわち“透明”になる。金属は、薄膜化などが容易なほかDC導電率が高いので、その誘電的性質を利用した光学素子が可能になる。Fig. 1に、一般的なデータ¹⁾からグラフ化した低温AIの光学定数データを示す。長波長側の屈折率の実部 n と虚部 k の関係が $n < k$ の領域では、いわゆる誘電率の実部($n^2 - k^2$)が負となり金属的であるが、 $h\nu = 15 \text{ eV}$ 付近で $n > k$ となり誘電体的なふるまいになることがわかる。

3.2 照射下にある物質での吸収、状態

照射中、照射後の物質が持つポテンシャルエネルギーの形態は内殻電子の励起によって変化する。高出力レー

Fig. 1 Complex refractive index ($= n + ik$) of Al at the wavelength range from IR to keV-Xray. The value of $n-1$ is also plotted in this figure. At the longer wavelength region, wavelength dependence is matched to the Drude-like free electron's law, while at higher photon energy region, there are edge structure due to the free-bound electron transition.

ザー照射下の物質では、まず初期状態で自由電子的な電子が励起されるが、この自由電子数は熱的もしくは光的なイオン化によってさらに増大するため、高強度照射での相互作用は、この自由電子へのエネルギー付与が主体となる。すなわち、1原子あたりkeVのエネルギーを持っている状態とは、電子がkeVの運動エネルギーを持ち、その衝突などによってイオン系のポテンシャルエネルギーが上がっていくことである。これに対し、keVのX線を用いると、内殻電子のイオン化がポテンシャルエネルギーを持つ。自由電子の分散式Drudeの式は

$$\alpha = \frac{\omega_{pe}^2}{cn\omega^2\tau} = \frac{\omega_{pe}^2}{4\pi^2c^3n\tau}\lambda^2 \quad (1)$$

となっている。(ここで α は原子の分極率、 ω_{pe} はプラズマ周波数、 c は光速、 n は屈折率、 ω は入射光の角周波数、 $1/\tau$ は減衰係数、 λ は波長を表している。)このことから、短波長化に向けて自由電子の寄与が2乗で低下していくことがわかる。Fig. 1では、低エネルギー側の n, k ともに一様に低下している部分がこれに当たる。一方、誘電的な性質をもつ相互作用は、孤立原子の励起、イオン化と同じなので、

$$\frac{4\pi}{3}N\alpha = \frac{n^2-1}{n^2+2} = \frac{4\pi}{3}N\frac{e^2}{m}\sum_k \frac{f_k}{\omega_k^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (2)$$

^{†1)} LCLS The First Experiments

www-ssrl.slac.stanford.edu/LCLS/papers/LCLS_Experiments_2.pdf

のようになる。(ここで N は原子密度, e は単電荷量, m は電子質量, f_k , ω_k は k 共鳴での振動子強度と共鳴角周波数, γ は減衰係数を表す。)実際には, 電子の束縛-自由遷移が主となるために, Fig. 1で見られるような「のこぎり」型になるが, 短波長では共鳴点からの $1/(\omega^2 - \omega_0^2)$ の依存性によって, 自由電子の寄与より高くなって来る。(ω_0 は1つの共鳴角周波数と考えればよい)この照射による遷移は, 自由電子密度を増加させるが, X線の場合, それにより生成された自由電子が吸収する割合が少ないので, 非線形に吸収率が増加するようにならず, あくまでも低温の誘電体に光を照射し続けている状態が保たれる。逆にその準位の電子がイオン化してしまえば, 吸収が低下する。これは光学波長での可飽和吸収現象であるが, 高強度場でイオン化が起きているような状態すなわち自由電子密度が増加している状態でも, 内部からの遷移を使って, 可飽和吸収現象を起こせる可能性が高いことがわかる。

3.3 照射後の物質状態(温度)

多くの場合において光電離プロセスは非熱的なものであり, その後の非平衡状態を緩和するために系の温度が上昇する。固体に自由電子が多く存在する場合には, 励起された電子はフェルミ面からの光の吸収によってほぼレーザーの光子エネルギー分のエネルギーを得, その後衝突などにより緩和する。誘電体, 半導体-可視光のような場合には, エキシトン励起を含めバンド間遷移が主となり, 励起されたエネルギーとバンド端とのエネルギー差が緩和に伴うエネルギーとなる(Fig. 2 (b))。一方, 自由電子が多く存在する金属では, フェルミ面の電子が加速され, 光子エネルギー分を得た電子の衝突により緩和が起きるので, 強い加熱が起きる(Fig. 2 (a))。また, 励起エネルギーが内殻をイオン化するほど高ければ(Fig. 2 (c)), 入射光子エネルギーでのポテンシャルエネルギーに対する部分は大きくなる。フェルミ面直上に励起された場合, 光子エネルギーを精度よくチューニングしてやれば, 余剰エネルギーは光子のエネルギー広がり内殻電子のもつ単位幅で決まるため, 非常に低温を保った状態が実現できる可能性がある。もし, keVの光子エネルギーの入射であったとしても, 10^{-4} のエネルギー広がりのもつものを使えば, 0.1 eVすなわち1000 K程度の加熱で済む。この「低温性」は, その後の応用にとって重要な要素になるので, 精度の高いチューナビリティが大きな特徴になってくる。(実際には, このあとで述べる「目標としない準位からの遷移確率との比」によっても影響される)。

4. 内殻励起原子の高密度状態

この節では, 3で述べた内殻励起状態が, 孤立原子ではなく, 集団で存在し, 長距離秩序性が保たれる固体密度程度まで高密度になった場合について, その物性をどう理解するかをまとめる。

内殻励起状態の孤立原子の状態については, 原子核物

Fig. 2 Interaction between electron system and lasers $h\nu$. The horizontal axes means energy and the vertical axes means density of state (DOS). (a) Metal like features. The electrons just above the Fermi surface are accelerated with electrical field of the lasers. (b) Insulator type absorption. The transition between bandgap excitation occurs. (c) Inner shell ionization. The electrons bounded with inner shell are ionized to the state just above the Fermi energy.

理学の教科書で述べられているように, すでによく調べられている。それらと原子過程の知識をまとめると, 内殻励起後にFig. 3のような過程が起きていることになる。ここで, 図左側の部分は低温の固体電子システムを, 右側の部分が励起後の原子状態, K, L, Mはそれぞれの電子準位の殻, 添え字0は中性, 1は1電子イオン化が起きて空きが1つある状態を示している。イオン化され伝導体に上げられた電子は, 他の伝導電子との衝突により緩和し(e-e relaxation), 原子系としては, オージェ電子を放出($K^1L^0M^0 \rightarrow K^0L^2M^0$)するか, 特性X線を放出する($K^1L^0M^0 \rightarrow K^0L^1M^0$)。伝導電子の温度が高い, もしくは自由電子が存在すれば, 電子衝突過程によって2次的なイオン化(e-impact ionization)が起き, 放射過程後, 電子放出後にも引き続き起きる輻射, 電子放出過程が存在する。McGuireの計算²⁾によると, 最初のオージェ電子放出と特性X線放射の速度には, Fig. 4のような原子番号依存性がある。また, K殻の内殻励起が起きた場合, その緩和はおおよそ1 fs程度で次の過程に変化していくことがFig. 4からわかる。この時間内で, 内殻が励起されホロー原子(内殻電子のみがイオン化され穴の空いたようになった原子をこう呼ぶ)になったものが, 高密度で秩序性を保った状態になる。そこでどのような

Fig. 3 Transition scheme with keV X-ray laser in the materials. After inner shell ionization, many processes such as Auger and $K\alpha$ emission occur one after another. The relaxation time of the each process is important to consider. The details are explained in the text.

Fig. 4 The blanching ratio between Auger decay and radiation decay after K-shell ionization.

ことが起きるのか、以下に、簡単にその議論を行う。

4.1 内殻励起原子で作る固体状態

これまでの超短パルスレーザー照射の研究において、超短パルスレーザーが照射された後に固体の結晶状態が存続していることが実験的に確かめられている。レーザー衝撃波による圧縮をともなった実験では、数1000 K程度のもので、格子のブラッグ回折条件が保たれたままps以上存在していることが分かっている³⁾。一方、最近のWarm dense matterの研究では、イオン化、もしくは電子励起された状態でも、中距離秩序性が保たれ、条件によっては伝導帯の構造が残り、低抵抗性の金属状態が保たれていることも明らかになっている⁴⁾。これらの事実と、前述したフェルミ面直上に内殻電子を励起させることを考え合わせると、励起された電子が伝導体内の

電子と衝突し、温度をさほど上げずに熱緩和することが考えられる。通常のエネルギー衝突周波数の式を考えると、この場合の緩和時間は、以下ようになる。

$$v_e = \frac{n_i Z^2 e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_e^2 v_T^3} \ln\Lambda \quad (3)$$

ここで、 v_e は衝突周波数、 n_i はイオン密度、 Z は原子のイオン価数、 m_e は電子質量、 v_T は電子の熱速度、 $\ln\Lambda$ はクーロン対数を示している。ここに、低温で高密度に保たれたとする条件(たとえば $n_e = 1.8 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$, $T_e = 1000 \text{ K}$)を代入すると、緩和速度は 10^{20} s^{-1} 台の値となり、自由電子分布は他の過程に比べ十分に速く熱平衡状態に落ち着く。(もちろん、この数字には、この式での仮定を逸脱している部分もあるので、注意が必要である。)すなわち、イオン化された電子は、伝導帯に落ち着き、固体状態を外から見れば電荷中和が保たれているはずである。この場合、よく言われるクラスタのクーロン爆発といった非電荷中和による現象へ発展する可能性は少なくなる。

最近、これらを裏付ける理論シミュレーション結果がH. Kitamura⁵⁾によって示されており、Li原子の9個のクラスタ状態を元に、内殻の電子を伝導帯に上げることで、結合状態のポテンシャルがどうか変化するかを計算により求められている。したがって、3価程度のイオン化が起きたとしても結合ポテンシャルの形は安定的な下に凸の形となっているため、反発は起きない。

4.2 他のイオン化による非電荷中和

Fig. 1の吸収特性をみてもわかるように、K殻端であっても、吸収係数の飛びは10倍程度である。すなわち、たとえ吸収端直上を狙って照射したとしても、目的とする過程以外で10%程度の吸収が起きるため、およそK-L殻間のエネルギー差に相当する運動エネルギーをもった電子が生成されてしまう。一般的には、このエネルギーは数100 eV~keVにもなるため、最終的に系から逃げることになるがこの電荷中和のずれがどう影響するか、その時間的な様相も含めて明らかにする必要がある。以下に述べるエネルギーシフトの量やその持続時間にどう影響しているかにより、応用が変わってくる。

4.3 内殻イオン化に伴う原子内の電子ポテンシャルの変化

内殻イオン化に伴う単純な描象を考えると、K殻の内殻電子が1つ励起されれば、K殻の残りの電子はより強く原子核に引きつけられることになり、吸収端は高エネルギー側にシフトする。これらは孤立原子で考えられる状態であり、固体内に高密度にホロー原子が生成された場合は、より複雑な取り扱いが必要になると思われるが、定性的には正しい予測であろう。この状態が生み出す詳細な物理に関連した理論研究がいくつか行われている。Tong⁶⁾によると、ホロー原子を孤立して真空内に置いた場合と金属内に置いた場合では、 K_α 線のエネルギーがずれることを示している。(彼らの主張では、L

殻の電子が多くなかった方がそのずれが大きいということだが。)これは、原子核の周りの電荷中和が乱れたことによって、伝導帯の電子の影響がK殻の部分まで入り込んでいるためである。

では、ほとんどの原子が内殻を空にして、伝導帯に1つずつ電子を増やした場合、電子はどのようなポテンシャル構造をとるか？また、吸収端はどの程度変化するか？などといった問題については、定量的には未解決な問題となっているが、高強度X線レーザー照射下では、瞬時であれこのような特異な固体が作られるので、この固体を使った応用およびその詳細な解明が今後考えられている。

4.4 非平衡状態の緩和にともなう現象

先に1.2などに述べたように、もしも内殻に穴が開いた状態の系があれば、1 fs台の時間でオーグメント過程なり特性X線を出して次の状態に変化する。一方、もしも自由電子がそのホロー原子近傍に多数存在し、温度が低い状態にあるとすると、いわゆる自由-束縛遷移が起きることが予想される。この再結合速度は、水素様イオンを仮定すると通常のプラズマで用いるモデル式では以下の形であらわされる⁷⁾。

$$b_v = \bar{v}_e \sigma_{cl} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_{cl} &= \frac{\sigma_{cl}^0}{T_{ev}} = \frac{g_l}{g_+} \frac{I_{ev}^2}{T_{ev}} \sigma_{vl}^0 \cdot 10^{-6} [\text{cm}^2] \\ &= \frac{g_l}{g_+} \frac{I_{ev}^2}{T_{ev}} \sigma_{vIH}^0 \cdot Z^{-2} 10^{-6} [\text{cm}^2] \end{aligned} \quad (5)$$

$$\sigma_{vIH}^0 = 7.9 \times 10^{-18} [\text{cm}^2] \quad (6)$$

ここで、 $\bar{v}_e$ は電子の熱速度、 T_{ev} は電子温度、 g_l 、 g_+ は基底状態、イオン化状態の縮退度、 I_{ev} はイオン化エネルギー、 σ_{cl}^0 、 σ_{vl}^0 、 σ_{vIH}^0 は、平均化されたイオンの、1 eVの水素用イオンの、および水素の再結合断面積、 Z はイオン価数である。ここに、 $\text{Al} (Z=13)$ 、 $T=0.1 \text{ eV}$ 、 $g_l/g_+=2$ 、 $N_e=1.8 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ を入れると、再結合速度は $4 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ となる。内殻イオン化された原子はこの程度の速度で再結合をしていくので、この非平衡状態からの放射を利用した放射源としての応用も今後、考えられていくことになる。

5. ホロー原子固体の応用

この節では、これまで述べたX線レーザー照射物質特有の物性を用いての、新しい光学素子への応用を考える。

5.1 X線スイッチング光学素子

前述したようにFig. 1の光学屈折率の実部および虚部は、高エネルギー光子側になるにしたがって、実部は1に、虚部は0に近くなっていく。このため、X線領域では直入射反射の光学系、透過型光学系の使用が困難になる。

また、可視光近傍の波長帯では制御光学素子を構成する際、光を制御するという観点から複素屈折率を人工的に変化させる方法をとっているが、光、電場、音波、磁場などで制御しやすい自由電子もしくは最外殻の電子状態を変化させたとしても、X線に対する影響は小さい。Fig. 1を見ると、吸収端では、わずかに違う波長で大きく屈折率が変化していることがわかる。前述した屈折率の分散式で同一波長での値を桁違いに引き上げるためには非常に大きなエネルギーが必要になるが、この鋭利な吸収端においてエネルギー状態をわずかに変化させれば、大きな光学特性変化が生みだせる。ほとんどの原子を内殻励起状態にしてやれば、残りの電子が原子核に強く束縛され、吸収端も短波長側にシフトすると考えられる。

このような能動的X光学素子は、これまであまり考えられてこなかった。その理由は、(1)十分なシフトを与えるためには、固体中の原子の多くを内殻励起させる必要があるが、そのためには、非常に高いエネルギー密度が必要であること。(2)原子がこのような内殻励起状態になると、非常に短い時間で次の緩和過程が起き、その状態を保つ時間内にX線を照射することは現実的ではなかったこと。などである。しかし、X線レーザーの出現により、これらが可能になってきた。たとえば、固体状態Alの $N_i=6 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ の原子を、そのK吸収端で(吸収端エネルギー $E_k=1.5 \text{ keV}$ 、吸収係数 $k=5.6 \times 10^{-5}$ 、吸収長 $d_{\text{attenuation}} \sim 1 \mu\text{m}$)イオン化するためには、 $N_i \cdot d_{\text{attenuation}} \cdot E_k=1.4 \times 10^3 \text{ J/cm}^2$ のエネルギー束が必要である。(ここで N_i はイオン密度)これを、10 fs時間内に入れるとすると $1.4 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ の照射強度が必要になる。この値は、従来のkeV X線源では不可能な値であったが、X線自由電子レーザーでは、目標内に入っている。

では、吸収端が上述のようにシフトした時、どの程度の屈折率差を起こすことができるのか？この答には、ホロー原子固体での詳細なポテンシャルエネルギー状態の把握が不可避であるが、大まかには、低温物質の吸収端の前後の差が出ると考えてもいいだろう。照射後にはL殻からの裾野が光学特性を決めており(Fig. 1)、この電子の存在は、KLLなどの次過程が起きる前は変化しないと思われるからである。この場合、原子によりどのような差が得られるかをFig. 4に示すこの図からわかるように、

- 1) K吸収端では、変化前後で屈折率の実部ではほぼ10倍程度の比が得られるのに対し、L吸収端では5倍程度になる。
- 2) エネルギーの増加にともない、変化前後での屈折率実部の比は単調に減少する。
- 3) 変化した複素屈折率の差の絶対値は、低エネルギー側で $10^{-4} \sim 10^{-5}$ であるが、10 keV付近では 10^{-7} 台になっている。

となっている。

光の領域で用いられるファイバグレーティングでは、ガラス内に作られた $\Delta n=10^{-4} \sim 10^{-3}$ の屈折率差を利用して、多数のグレーティングを書き込むことで、高い反射

率を実現している。したがって、keV-X線の場合、前述のAlの場合でも、吸収長1 μm 内に、波数を 10^4 以上とることができる。この屈折率差の周期構造を作ることができれば、能動光学系として設計が可能になる。X線の波長は結晶での原子の層厚の大きさとほぼ等しくなっているので、1層1層違った原子を積み上げ、そこに屈折率の高低差をつけておけば、X線照射による屈折率変化により、反射から透過へスイッチさせることも可能になる。また、小さい屈折率は、よく使われるX線での斜入射光学素子の臨界角度においても有効である。例として、Pdの0.8度入射の反射率の光子エネルギー依存性を示す(Fig. 6)。ここで現れているシャープな反射エッジは、L殻の吸収端が決定している。この吸収端が照射によって短波長側にシフトすれば、透過から反射へのスイッチが可能になる。

5.2 X線可飽和吸収体

ここまで述べてきたように、高強度X線レーザーによって基底状態の原子のほとんどを励起させてやれば、吸収体から透明体へ、といったいわゆる可視域近傍のレーザー光学素子でよく使われる可飽和吸収体を実現できる可能性がある。たとえば、K ($Z=19$)は3.6 keVにK吸収端を持つが、吸収端の波長での吸収長は $L=40 \mu\text{m}$ ある。固体密度から計算されるイオン密度 $N_i=1.32 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ なので、吸収長内の全原子をイオン化させるのに必要なエネルギー密度は $h\nu \cdot L \cdot N_i=3 \times 10^4 \text{ J/cm}^2$ である。この吸収によって基底状態が枯渇すれば、10倍程度大きな吸収長に変わるため、可飽和現象が期待できる。

このような可飽和吸収現象が実現できれば、レーザー光の、時間および空間的なモードクリーナーとして使用できるほか、パルス前半を吸収させることによって照射レーザーそのもののパルス幅も短縮することが可能になる。

これらについて、通常の可飽和吸収モデルで考えてみる。基底状態からの吸収断面積 σ_{01} 、上準位からの緩和時間 τ_{12} 、光子エネルギー $h\nu$ により、飽和吸収強度 I_{sat} は $I_{\text{sat}}=h\nu/(\tau_{12}\sigma_{01})$ で与えられるはずである。ここで、 σ_{01} は低温状態におけるイオン化前の吸収断面積、 $h\nu$ は吸収端の光子エネルギーとなる。これらのパラメータのうち、 τ_{12} だけが詳細には不明であるが、前述の放射性再結合速度を参考に50 fsだと仮定すると、飽和強度は $1.3 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ となる。これは20 fs、20 μJ のX線を1 μm に集光すれば達成可能な量である。また、この時のエネルギー密度は、前述の吸収長内の原子をイオン化させる条件をも達成しているので、現実的な設計値になっていることがわかる。

可視光の可飽和吸収体では、小信号時の吸収と可飽和が起きた後の残留吸収の差(G)が、その特性の指標の一つになっている。今回の場合、この値は、大まかに以下のようなになる。(αは吸収係数、 k は屈折率の虚部、 d は媒質厚み、 λ は波長であり、添え字のafter, beforeは照射前、照射後を表す。)

$$G = \exp(-\alpha_{\text{after}}d)/\exp(-\alpha_{\text{before}}d) = \exp(2\pi(k_{\text{after}} - k_{\text{before}})d/\lambda) \quad (7)$$

Fig. 5のデータから、keV-X線の領域では、 $k_{\text{after}} - k_{\text{before}}$ は $10^{-4} \sim 10^{-6}$ 台であり、 $d/\lambda \sim 10^4 \sim 10^5$ であるので、低エネルギー(1~2.6 keV)では、 G が2桁以上得られるが、高エネルギー側では数10~数倍の差しか得られないことがわかる。

このように、長波長方向で大きな G が得られることは、逆に言えば、さらに長波長のEUV領域においては、非常に良好な可飽和吸収体が形成できることを示唆している。これらを支持するように、最近、播磨に建設されたSPring-8 Compact SASE Source (SCSS) 試験加速器においては、 $\lambda=50 \text{ nm}$ において2桁を超えるすぐれた可飽和吸収体が得られている⁸⁾。

5.3 吸収飽和から利得へ

吸収が飽和すれば、その次には利得が生じることが考えられる。これについては(a)自由-束縛遷移を利用したもの^{9,10)}、(b)特性X線を利用したもの¹¹⁾が提案されている。

(a) 自由-束縛遷移

自由電子状態にある電子が内殻に穴のあいた準位に落ちることで反転分布を作り利得を発生させるこの方式では、上準位が連続状態にあるために、波長を連続的に変化させることが可能である⁹⁾。この連続状態の中で、特定の波長のものを自由-束縛遷移の再結合過程に対して誘導(誘導放出)していけば、ある波長に放射のエネルギーを集中させることができる。Kodamaによると、その利得発生強度(強度が弱ければ、ただの吸収になる。)は、密度にほぼ比例し、利得は、密度と連続状態の電子

Fig. 5 The predicted ratio of the imaginary part of optical refractive index ($K1/K2$ and $L1/L2$) before and after inner shell ionization ($K1/K2$ for k-shell ionization and $L1/L2$ for L-shell ionization). The difference of the real part of the refractive index before and after inner shell ionization are also shown as dnK (K-shell) and dnL (L-shell).

Fig. 6 Energy dependence of reflectivity of Pd surface with 0.8 degree incident angle. The sharp drop is due to the L edge electron absorption.

温度に強く依存する¹⁰⁾。具体的に照射後の状況を考えてみると、X線自由電子レーザーでK殻の電子をイオン化させた場合、先の再結合の時間よりも速くKLLなどのAuger過程、特性X線放射などが起き、K殻の初期の空孔は埋められるだろう。しかし、これらの過程では、内部にできた空孔は次に新たな内殻の空孔を生む結果となっており、さらにAuger過程を考えれば、その後過程のたびに連続準位には電子が供給され、電子密度が増加していくことになるので、どこかの状態で、必然的に放射再結合が主となる状態となり、レーザーへと発展する可能性がある。詳細な計算を行うと、この性能は、温度に強く依存することも分かっている。この状態では、密度が高い場合に三体再結合が大きくなり、それによる余剰エネルギーが熱となり温度上昇が起きることが考えられる。このために、あらかじめ膨張させ、固体密度より低密度化したものを初期条件として使用するアイデアも出されている。

(b) 特性X線レーザー

内殻に空きのある状態で起きる特性X線遷移を直接利用したレーザーも考えられている。Elton¹²⁾によると、このレーザー動作ではK α 遷移を起こした後の下準位状態の占有のされ方が重要であるとしている。原子の性質を見ると、 $Z > 20$ の原子ではK α 遷移($K^1L^0 \rightarrow K^0L^1$)とほぼ同時に起きるAuger過程($K^1L^0 \rightarrow K^0L^2 \rightarrow K^0L^1$)により、K α 遷移の下準位がAuger分岐側でも生じてしまうために、反転分布が止まりやすい。一方、 $Z < 20$ の低原子では $K^1L^0M^0 > K^0L^2M^0 \rightarrow K^0L^1M^2$ となるために、K α 線の下準位に当たる $K^0L^1M^0$ には占有が起きることが少ない。さらにこの下準位もAuger過程によって、 $K^0L^0M^2$ で掃けてしまう速度が速いのでレーザー反転分布を維持しやすい。この考えをもう少し具体的に理解するために、それぞれの遷移の速度を考えると分かりやすい。Axerlod⁷⁾

Fig. 7 K α laser energy scheme pumped by keV X ray¹⁰⁾. The dotted line shows radiation transition and solid arrow means Auger transition.

は、彼の論文内で $S(Z=19)$ に関して、Auger及び放射過程の速度をまとめている。それによると、遷移過程を含めFig. 7に示したようになっている。

一方、Fig. 4をみるとわかるように、内殻励起された状態のK α 放射によるものとAuger過程によるものの分岐比は $Z < 30$ では、Augerの方が早く大きいことがわかる。すなわち、K α 放射の分岐確率と下準位の占有のされかたには Z の高低に関してトレードオフの関係がある。その意味で、 $Z=19$ にあるSがよい候補と考えられている。

必要とされる励起レーザー強度を見積もってみる。SのK殻の空孔時の自然寿命は $(570 \text{ ps}^{-1}(\text{KLL}) + 85.5 \text{ ps}^{-1}(\text{KLM}) + 39.0 \text{ ps}^{-1}(\text{K}\alpha_1) + 19.5 \text{ ps}^{-1}(\text{K}\alpha_2) \Rightarrow 1.4 \text{ fs})$ と考えられるので、Augerの分岐比を補って上準位密度を増加させるためには、 $2 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ (SのK吸収端での吸収断面積は $1.26 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ であるので、前述の可飽和吸収体の飽和強度の計算式と同一の式で評価できる。)の強度がいる。しかし、利得を得るためだけなら、 $(N_2 - (g_2/g_1)N_1)\sigma_{sc} - \kappa > 0$ 、すなわち上準位と下準位の差が十分あり、その放射率が、そこでの吸収に勝ればよい。動作初期に $K^0L^2M^0$ という準位には状態密度がないことを考えれば、自動的に数fsの間は高い利得が望めるだろう。その後は下準位の消滅率により決まるために、M殻の電子の占有率が重要になる。すなわち、“空き”を生む遷移($L^1M^0 \rightarrow LM^2$)が必要になるので、M電子が残っていなければならないが、10 eV程度のイオン化エネルギーでM電子はイオン化してしまう。そのため、ここでも、いかに媒質を低温に保つかが問題となってくる。M殻イオンのイオン化速度 $1/\tau$ は

$$\tau = \frac{1}{n_e \pi a_0^2 (8kT_e / \pi m_e)^{1/2}} \quad (8)$$

と考えられる。(a₀はボーア半径) $T_e = 0.1 \text{ eV}$ に保てれば、 $n_e = 4 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ の固体条件でも14 fs程度になり、長い利得継続時間が得られる可能性がある。Axerlodは熱放射スペクトルで計算を行っているが、M殻の空孔がない場合に 10^{17} W/cm^2 の励起強度で 2000 cm^{-1} 程度の利得が発生するとしている。X線レーザー励起の場合、吸収端にチューニングすることにより格段に加熱が少ない励起が

可能になり、さらに高い利得が期待できるであろう。

よく言われることであるが、X線レーザーを用いて違う波長のX線レーザーを作ってどうするのか？という疑問が出てくる。これは、現在の光科学、レーザーを利用した研究を見れば明らかなように、可視、赤外のレーザー科学でも、基準となる1つのレーザーから波長変換などを用いて様々な光を準備し、相互作用させ、観測光に利用することを行っている。その意味で、X線自由電子レーザー励起X線レーザーは利用価値が高い。また、X線自由電子レーザーの計画では、まず、いわゆる Self Amplification of Spontaneous Emission (SASE) モード (ASEレーザーのようなモード) で発振させることになっている。この場合、光のモード密度はX線であるが故にまだまだ低いことが予想され、レーザー励起レーザーにより理想に近いレーザーが実現できる可能性がある。自然放出の $K\alpha$ 放射であっても、自然幅は現在のX線自由電子レーザーで計画されている波長幅に匹敵する程度狭いことが分かっているので、固定された基準波長としての基準光源としても応用が期待できる。

6. まとめ

日米欧で開発されているX線自由電子レーザーから得られる新しい光を元に、どのような新しい科学が開拓され、レーザーと物質との相互作用においてどのような新しい展開とその応用が考えられるかについて、考えをまとめた。これらは、これまでX線自由電子レーザー利用研究として採択され、SCSS試験加速器を用いて基礎的な実験を積み重ね、超短パルスレーザーによる過渡現象の観測や、その理論モデルの構築などを行ってきた成果の一部であり、本稿では特に高エネルギー密度状態に注目してまとめている。もちろん、これ以外にも多くの展開が期待されるであろうが、鍵となっているのは、コヒーレント超短パルスX線レーザーにより、物質との相互作用が高強度化され、これまで不可能であったようなパラメータを持った物質状態も、きれいに生成できる可能性が出てきたことにある。固体と高強度超短パルス狭さく化されたX線レーザーが相互作用すれば、そこには、内殻電子が選択的に励起され、しかし、原子の長距

離秩序を保った“固体”が存在するはずで、この中では励起により瞬時に原子内のポテンシャルエネルギー構造が変化し、X線への応答関数も通常よりはるかに大きく変化すると期待される。それを利用すれば、これまで困難と思われてきたX線領域の非線形光学効果やそれを使った新しいX線能動光学素子を開発することができるだろう。

応用の可能性については、いくつかの具体例を示し、極力数字をあげて議論をしたが、ほとんどの場合、その現象が現れる強度はkeVのエネルギー領域では 10^{17} W/cm²程度であった。これは、従来までのX線源では達成できない値であることは明確である。逆に、keVより低エネルギーの光子エネルギーを用いれば、 $10^{13} \sim 10^{16}$ W/cm²でも、同様なことが可能になる。このあたりは、現在SCSS試験加速器を用いて精力的に実験研究が行われており、今後の成果に期待したい。

詳細な物理の解明については、まだ未解決な部分も多い。特に励起電子が大量に内殻から励起された状態については、実験的に明らかにしていきながら理解を深めて予測精度を向上させていく必要がある。固体物理、プラズマ物理、原子物理、高強度レーザー科学相互のなお一層の協力が、今後特に必要になってくる。

参考文献

- 1) B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis: Atomic Data and Nuclear Data Tables **54** (July 1993) 181.
- 2) E. J. McGuire: Phys. Rev. A **3** (1971) 587.
- 3) K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, C. Dietrich, A. Tarasevitch, M. Horn von Hoegen, D. von der Linde, A. Cavalleri, J. Squier, and M. Kammiller: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 225701.
- 4) H. Yoneda: プラズマ・核融合学会誌 **84** (2008) 369.
- 5) H. Kitamura: Chem. Phys. Lett. **475** (2009) 227.
- 6) X. M. Tong, D. Kato, T. Watanabe, H. Shimizu, C. Yamada, and S. Ohtani: Phys. Rev. A **63** (2001) 052505.
- 7) Zel'dovich and Y. P. Raizer: *Physics of Shock Waves and High Temperature Hydrodynamic Phenomena* (Academic Press, Inc. London, 1966).
- 8) H. Yoneda et al., submitted to Optics Express (2009), H. Yoneda, et al., *Proc. SPIE* **7501** (SPIE, Bellingham, WA 2009) p. 33.
- 9) E. E. Fill: Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 1687.
- 10) R. Kodama: Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 77.
- 11) T. S. Axelrod: Phys. Rev. A. **13** (1976) 376.
- 12) R. C. Elton: Naval Research Laboratory Memorandum Report No.2906 (unpublished), R. C. Elton: Appl. Opt. **14** (1975) 2243.

レーザーワード

ウォーム・デンス・マター (warm dense matter)

固体物理学、プラズマ物理学の双方が対象としている温度密度領域の中間領域にある物質状態を示す。その範囲は温度で0.5~10 eV、密度で固体密度の10~1/100程度の領域を指すことが多い。この領域では、原子が電子励起状態もしくはイオン化状態にありながら、固体において特徴的である中距離~短距離秩序性が持つことがある。そのため、様々な物性を発現できる可能性がある。例えば、ある種の金属では、非常にわずかな密度低下で金属-非金属転移に似た数桁にわたる導電率減少が起きる。また、この領域には、多くの金属の超臨界状態を含

み、クーロン相互作用による超高速のクラスター形成なども起きると考えられている。学術的には、固体-プラズマ中間に位置するこの物質状態を、双方のモデルの外挿では説明できない多くの現象が見つかっており、その詳細が研究課題となっている。その他、強結合-弱結合プラズマ境界であること、フェルミ縮退-非縮退の境界にあることなどが混在しているために、特徴的な性質を持つと考える場合もある。惑星-恒星内部の物質状態に近いことも興味を持たれている理由になっている。

(米田 仁紀)