

極端紫外自由電子レーザーによる超蛍光の観測

James R HARRIES

日本原子力研究開発機構 〒679-5148 兵庫県佐用郡作用町光都 1-1-1

繁政英治

自然科学研究機構分子科学研究所極端紫外光研究施設 〒444-8585 岡崎市明大寺町西郷中38

要旨

極端紫外 (EUV) 自由電子レーザー (FEL) 光と高密度ヘリウムガスセルを利用して、EUV-FEL 由来の超蛍光 (集束的自然放出) の観測に世界に先駆けて成功した。超蛍光は、「量子光学」現象の一つであり、新世代光源の利用によって初めて観測が可能となった。より短波長域での観測の可能性を含めて、今後の展望についても議論する。

1. はじめに

1.1 背景

2005年夏、ドイツ DESY の FLASH が真空紫外域において自由電子レーザー (FEL) のユーザー利用を開始して以降、新しい「第4世代」放射光源としての短波長 FEL 施設が、世界中に次々と誕生している。X線領域においては、日本の SACLA¹⁾、及びアメリカ合衆国の LCLS²⁾ が先行し、既にユーザー運転を開始している。軟 X線領域に目を向けると、ドイツの FLASH II、及びイタリアの FERMI でユーザー利用が可能となっている。更に、European XFEL, Swiss FEL, PAL-XFEL (韓国) 等、今後数年間に施設の増加ペースが加速することが見込まれる。放射光学会誌の特集記事として紹介されたように³⁾、FEL の利用研究は幅広い分野に亘り、当初予想も出来なかった新しい現象の発見や、それに付随する科学技術の発展に大きく貢献してきた。特に、原子・分子、及び光を観測対象とする基礎科学、いわゆる AMO 分野においては、目覚ましい進展につながっている⁴⁾。

新しい光源を通常の放射光と比べた場合、大まかに次の4つの点でその性質が格段に優れる。A)空間コヒーレンス、B)ピーク強度、C)時間コヒーレンス、D)超短パルス性。超伝導技術を利用する European XFEL や ERL では、E)平均強度、もこのリストに加えられる。特徴 A 及び B を活かすことにより、単一分子やナノ粒子のイメージングが可能となる。B 及び D の利用によって、X線領域における様々な非線形過程の観測・応用が可能となる⁵⁾。本稿で紹介する研究は、極端紫外 (EUV) の FEL 光が有する、B 及び D の特徴を利用したものであり、可視光レーザーの普及により著しい発展を遂げた「量子光学」における様々な研究成果について、より短波長域での展開を図ったものである。

1.2 極紫外線レーザー SCSS を利用した発光実験：超蛍光観測の経緯

EUV-FEL 施設、SCSS については、既に本誌で紹介されている³⁾。一般の利用者を対象とした共用は2013年春に終了した。近い将来、より短波長の FEL 光源、「SCSS+」として SACLA の隣に生まれ変わるアップグレードが計画されている。

2008年の共用開始から SCSS で行われてきた AMO 分野における利用実験は、その殆どが従来の放射光実験と同じく、荷電粒子(電子、イオン)を測定するものであった。しかし FEL 光を利用する実験では、パルスあたりのフォトン数が多く、パルス毎に多量に生成される価電粒子間の space-charge 効果のために、電子やイオンの運動エネルギー測定は難航していた。Hikosaka ら⁶⁾による高効率の電子エネルギー分光器の導入によって、space-charge 効果を抑制した測定が実現し、イオン分光法では得られない多光子イオン化過程に関する幾つかの成果が報告されているものの、space-charge に関する本質的な問題は残されたままである。一方、蛍光 (もしくは透過光) を測定すれば、この問題を回避することが可能となり、FEL 光の特徴の一つ、超高輝度をそのまま利用できる。また、高い密度の気体試料を対象とした実験を行うこともできる。そこで我々は、2010年夏から光の検出に主眼を置き、「量子光学をより短波長で」を合い言葉に研究を開始した。当初着目したのは、量子干渉効果による透明化 (Electromagnetically Induced Transparency: EIT⁷⁾) であった。

EIT 現象の観測では、異なるエネルギー準位間の遷移に対応する、二つの波長の電磁波を利用する。一方の電磁波の波長・強度を調整することによって、もう一方の電磁波が物質中を透過する割合を制御する。可視光領域では、slow-light, quantum memory など様々な応用研究が行われており、より短波長域への展開が近年注目されてい

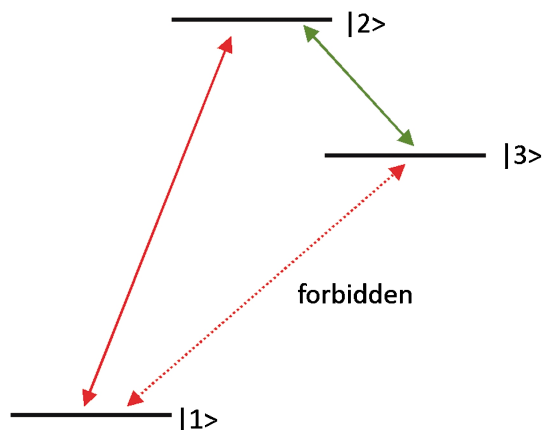


Fig. 1 (Color online) Three-level A -type system. Levels $|1\rangle$ and $|2\rangle$ are linked by an allowed transition, as are $|2\rangle$ and $|3\rangle$. The transition $|3\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ is forbidden. A strong ‘control’ field coupling $|2\rangle$ and $|3\rangle$ can induce transparency on the $|2\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ ‘probe’ transition. In this work we use an FEL to excite atoms from $|1\rangle$ to $|2\rangle$, and observe superfluorescence on the $|2\rangle$ to $|3\rangle$ transition.

る^{8,9)}。EIT 現象は様々な系で実現されるが、その典型例として、いわゆる A 形の 3 準位系を **Fig. 1** に示す。準位 $|1\rangle$ と準位 $|2\rangle$ 、及び準位 $|2\rangle$ と準位 $|3\rangle$ の間の遷移は双極子許容 (dipole allowed)、一方、準位 $|1\rangle$ と $|3\rangle$ の間の遷移は双極子禁制 (dipole forbidden) である。EIT は、 $|2\rangle$ と $|3\rangle$ を一つの「コントロール」光で結合させることによって、 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ を結びつけるプローブ光の吸収率を制御できる現象である。従来の EIT 実験は、主に可視光レーザーを利用して、Rb 原子などの外殻価電子の遷移に対して行われてきたが、**Fig. 1** で示す系を、例えばヘリウム原子で実現しようとする、 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ を結ぶプローブ光の波長は EUV 領域になる。**Table 1** にヘリウム原子の EIT 実験に必要な各種パラメータを示す。1s1s (1S) から 1s3p (1P) への遷移に相当する波長 53.7 nm の FEL 光をヘリウム試料に照射し、1s3p (1P) \rightarrow 1s2s (1S) の遷移に相当する波長 501.6 nm の可視光レーザーを利用して FEL 光の透過率を制御する実験に挑戦した。

EUV 分光器を利用して $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ による FEL 光の吸収過程は確認できたものの、可視光レーザーによる EIT 現象の観測には至らなかった¹。これは、FEL パルス (~30

¹ He** の「自然」EIT。EIT は **Fig. 1** の準位 $|2\rangle$ と $|3\rangle$ 間に生じるコヒーレンス、及び電磁波と系の量子干渉によって引き起こされる現象である。EIT に関する解説記事⁷⁾によれば、このような「干渉」現象が自然に起こっている系として、ヘリウムの 2 電子励起状態付近の光イオン化が取り上げられている。これは、いわゆる Fano プロファイルで特徴付けられる量子干渉効果であり、放射光第一世代¹⁰⁾、第 2 世代¹¹⁾、第 3 世代¹²⁾、更には第 4 世代^{13,14)} においてさえも、引き続き研究対象となっている。実は SCSS の 3 次光を利用すると、正にこの 2 電子励起状態を励起することができる。我々は、この「自然」EIT 効果を利用し、SASE 光の単色化・長時間コヒーレンス化に成功した (詳細は文献¹⁵⁾ 参照)。

Table 1 Some properties of the three-level system in helium, including the wavelengths λ and transition rates A . $(A_{21} + A_{23})^{-1}$ gives the radiative lifetime of state $|2\rangle$, and $A_{21}/(A_{21} + A_{23})$ the branching ratio to the ground state

$ 1\rangle$	1s1s 1S
$ 2\rangle$	1s3p 1P
$ 3\rangle$	1s2s 1S
λ_{21}	53.7 nm
λ_{23}	501.6 nm
A_{21}	$5.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$
A_{23}	$1.3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$
$(A_{21} + A_{23})^{-1}$	1.72 ns
$A_{21}/(A_{21} + A_{23})$	0.97

fs) と可視レーザーパルス (数 fs) の jitter に起因すると考えられる。一方、可視分光器を用いて、可視レーザーパルスのタイミングを確認していたところ、レーザー光を導入していなくても、強く、指向性の高い、501.6 nm の超短パルス光が、FEL パルスの照射時にヘリウムガスから放射されていることが判明した。これが、状態 $|3\rangle$ から $|2\rangle$ への超蛍光だったのである¹⁶⁾。

2. 超蛍光

Table 1 から分かるように、FEL の中心波長を 53.7 nm に合わせると、ヘリウム原子の準位 $|1\rangle$ から準位 $|2\rangle$ (1s² \rightarrow 1s3p) への遷移が起こる。従来の放射光実験での条件、つまり低ピーク輝度かつ低原子密度の場合には、準位 $|2\rangle$ に励起されたヘリウム原子の脱励起過程は、自然崩壊率 (Natural decay rate) A_{21} と A_{23} で決まる。**Table 1** の数値によれば、501.6 nm または 53.7 nm の蛍光の時間構造を解析すると、1.7 ns の放射寿命という結果になる。しかし光強度及び原子密度の上昇に伴い、脱励起過程や寿命などに変化が生じる。**Fig. 2** に、ガス圧の上昇が蛍光放出に及ぼす効果についての思考実験を示す。白丸は基底状態 $|1\rangle$ にある原子、黒丸が励起状態 $|2\rangle$ にある原子、青の矢印が蛍光の光子を示している。a) が、従来の放射光実験に相当する、低光強度・低密度の場合である。励起原子からの蛍光放出、及びその蛍光光子の検出は、それぞれまったく別の孤立した過程として取り扱われる。つまり、 N 個の原子の励起・脱励起過程を観察しても、一個の原子における N 回の励起・脱励起過程を観察しても、両者は区別がつかない。蛍光光子の検出器への到達時間を計測し、ヒストグラムを作れば、よく知られた指数関数の線になり、準位 $|2\rangle$ に励起されたヘリウム原子の場合、その指数関数の寿命は 1.7 ns になる。また、501.6 nm と 53.7 nm の蛍光の強度比を測定すると、3 : 97 になる。

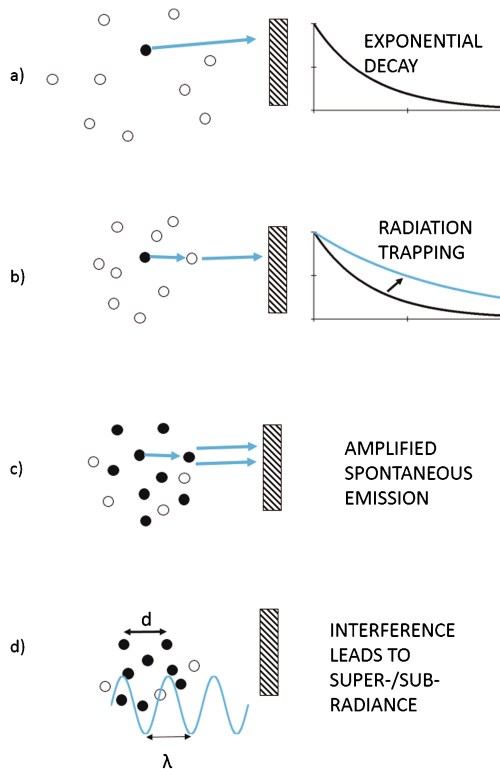


Fig. 2 The effect on fluorescence emission with increasing gas pressure (number density). Solid circles represent atoms in state $|2\rangle$, open circles atoms in state $|1\rangle$. a) dilute gas, small excited state population. b) increasing number density, but still low excited state population. c) high density, population inversion. d) average spacing between excited states comparable to wavelength of emission.

同じ光強度のまま、原子密度を上げて行くと、radiation trapping^{17,18)}が起こる領域 b)に入る。ここでは、一つの蛍光光子は、検出器に到達する前に、基底状態の原子に吸収される可能性がある。結果として、蛍光が「トラップ」されるため、測定される寿命は長くなる。なお、Table 1のような3準位系の場合、この再吸収は、 $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ 遷移にのみ起こるが、どちらの波長を検出しても寿命に影響がある。これは、波長 λ_{23} の光子は、基底状態原子によって吸収されないが、 λ_{21} を吸収した原子は、新たに λ_{23} の光子を蛍光として放出する可能性があるからである。

基底状態の原子密度だけではなく、励起状態にある原子の密度も上げた状態が c)に相当する。この場合、蛍光の光子は、励起状態にある原子に衝突する可能性がある。これは、誘導放射の領域であり、レーザーの基本の原理である。レーザーキャビティではない場合、この現象は一般に‘amplified spontaneous emission’, ASE, 増幅自然放射と呼ばれており、後述のようにこの場合は測定される寿命が短くなる。

ここまで紹介した a), b), c)は、複数の孤立した励起原子からの蛍光過程を考慮すれば説明できる現象である。検出器で測定される強度や寿命に対する影響はあるものの、

各励起原子が独立に振る舞って蛍光を放出している状況は変わらない。しかし、さらに励起原子の密度を高めて行くと、蛍光放出過程に根本的な変化が起こる。この変化の閾値は、励起状態にある原子同士の間隔が、放出される蛍光の波長に匹敵する領域に相当する。この領域では、それぞれの励起原子からの蛍光を、「孤立」した蛍光過程として取り扱えなくなるのである。このような条件下での蛍光は、1954年に Dicke により初めて取り上げられ¹⁹⁾、この条件下で起こる発光現象は、superradiance (超放射), 及び subradiance と名づけられた。前者(後者)は、励起状態にある原子と蛍光の電磁波との間に建設的(非建設的)干渉が起こる場合を意味している。つまり、超放射の場合には蛍光強度が増大し、subradiance の場合には抑制される。また超放射は、励起原子集団が協調して蛍光を放出する過程である。従って、超放射強度の時間発展は指数関数的な自発放射の場合とは大きく異なる。まず、脱励起が協調して行われるため、時間スケールが速くなる。(N個の励起原子が協調して脱励起する場合、 $\sim N$ 倍速い。)さらに、協調して脱励起が起こるためには、上の準位と下の準位との間のコヒーレンスが進展するための時間が必要となる。結果として、超放射は遅延時間を有するパルス形状となる。このパルス光の放射により、励起状態にある原子の数がゼロになるため、 λ_{21} と λ_{23} の蛍光の強度比にも大きな影響が現れる(第3章参照)。

Dicke の当時の計算では、波長 λ の蛍光を発する場合、体積 $V < \lambda^3$ の中に複数の励起状態があるとする条件を取り扱った。その後、励起状態原子の間隔 $d < \lambda$ の場合、 $V > \lambda^3$ の場合にも同じような現象が起きることが明らかになった。この緩和された条件の下で起こる超放射を、「超蛍光」superfluorescence と呼ぶようになったが、現在、その区別はなくなっているため、以降では統一して超蛍光と記載する。Dicke の理論計算以来、optical crystals²⁰⁾, nanorods²¹⁾, 気体²²⁾, レーザー冷却原子²³⁾, プラズマ^{24,25)}など様々な系において超蛍光の観測が報告されている。DeVoe と Brewer は、イオントラップの技術を用いて、二つのバリウムイオンの原子間隔を、 $1.2 \mu\text{m}$ と $1.7 \mu\text{m}$ の間で細かく制御した²⁶⁾。その結果、波長493 nmの蛍光について、Dicke が予言した superradiance 及び subradiance を直接観測することに成功している。

超蛍光に関する観測の多くは、マイクロ波または可視光領域の波長であったが、近年、特殊な条件下において、X線領域での観測が報告されている²⁷⁾。なお、本稿で紹介する実験結果も、可視光領域の超蛍光の観測ではあるが、EUV領域のレーザー励起を利用した初めての観測である。電気的に中性なヘリウム原子が観測対象であるため、DeVoe と Brewer のように原子間隔を精密に制御することはできないが、導入するガスの圧力を変えることにより、平均の原子間隔は微調整することができる。

2.1 超蛍光観測に必要な条件

超蛍光を観測するためには、一つ目の条件として、Fig. 2d)の条件を実現する必要がある。つまり、励起状態の原子の平均間隔 $\langle d \rangle$ を、蛍光波長 λ より短くしなければならない。さらに、反転分布が必要である。(この条件が緩和される場合もあるが、一般的ではない。詳細は文献²⁸⁾参照。)我々の実験の場合、実験を開始した時点では、ガスセルの中のヘリウム原子は、すべて状態 $|1\rangle$ にあり、準位 $|2\rangle$ 及び準位 $|3\rangle$ の population は 0 である。FEL パルス励起によって、平均的に50%までの原子が $|1\rangle$ から $|2\rangle$ に励起される。 $|2\rangle$ と $|3\rangle$ の間には反転分布が生じるが²²⁾、特殊な条件を用意しなければ、 $|2\rangle$ と $|1\rangle$ において反転分布は作れない。もう一つの条件は、励起過程に関連する。励起光のパルス幅は、 $|2\rangle$ の寿命や超蛍光を含む $|2\rangle$ の崩壊過程 (Doppler dephasing (後述)、内殻電子の場合には Auger 崩壊など) の時間スケールより短くなければならない。

以上をまとめると、超蛍光を観測するためには、高い原子密度、高い励起光子数、そして短い励起光パルス幅が必要不可欠である。 $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移に対応する波長 501.6 nm において、 λ^3 あたり 1 原子という密度は $8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ にあたる。圧力に換算すると 0.03 Pa になる。FEL 光の集光点における強度は、 $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 遷移を飽和させるのに十分なものである。従って、EUV-FEL 光によるヘリウム原子からの可視蛍光の場合、集光点における試料密度を上記の値程度にすることが出来れば、超蛍光の観測が実現することになる。

ここまで見てきたように、超蛍光の観測に必要な条件には、励起光の「コヒーレンス」性は含まれていない。つまり、励起状態の脱励起過程に比べて十分短い時間の内に反転分布を実現することが出来れば、従来の放射光などを励起源として用いても、超蛍光の観測は可能なのである。

2.2 超蛍光の特徴

励起原子の数を N 、超蛍光の崩壊率を τ_{SF} とすると、超蛍光には以下のような特徴がある。

1. 励起状態の原子が協調し、集団として脱励起するため、自然崩壊率より「速い」。 $\tau_{\text{SF}} \propto 1/N$
2. 励起からの遅延時間 (τ_{D}) がある。 $\tau_{\text{D}} \propto 1/N$
3. ピーク強度 (I_{peak}) が高い。 $I_{\text{peak}} \propto N^2$
4. 指向性が高い。

つまり、超蛍光の時間発展は、 N に逆比例する半値幅と遅延時間を有するパルス形状となり、そのピーク強度は N の二乗に比例する。なお、積分強度は $\tau_{\text{SF}} \times I_{\text{peak}}$ 、つまり N に比例する。

SCSS で行った実験条件では、超蛍光パルスの時間幅 τ_{SF} 、及び遅延時間 τ_{D} は、次の式を使って求めることができる²⁸⁾。

Table 2 Symbols used in equations (1) and (2), and typical values for the 501.6 nm superfluorescence discussed in this article

λ	超蛍光波長	501.6 nm
ρ	励起状態密度	$\cong 10^{16} \text{ cm}^{-3}$
A_{ki}	自然崩壊率	$1.3 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ ($1s3p \rightarrow 1s2s$)
L	長さ	$< 40 \text{ mm}$
V	体積	$\cong 0.1 \text{ mm}^3$

$$\tau_{\text{SF}} = \frac{8\pi}{3\lambda^2 \rho A_{ki} L} \quad (1)$$

$$\tau_{\text{D}} = \frac{1}{4} \tau (\ln \sqrt{2\pi\rho V})^2 \quad (2)$$

この式では、励起原子の空間分布として、「鉛筆」のような円柱形状であることを想定している。本研究のように気体試料を用いた光励起実験の場合、相互作用領域、つまり励起原子の空間分布は、FEL ビームの断面形状で、光軸方向に細長く分布することになる。従って、励起原子の空間分布は、円柱形状で近似することができる。励起原子の分布の形状が「鉛筆」型でない場合 (球状など) には、別の式を用いて計算することになる^{28,29)}。

式 (1) 及び (2) の脱励起過程への影響を考察してみると、超蛍光の観測にはいくつかの「閾値」原子密度が存在する。この閾値は、超蛍光の「寿命」に対応する値 τ が、他の脱励起過程の時間スケールよりも短くなければならないという条件に由来する。超蛍光を阻むもう一つの過程として、原子の熱運動に起因する Doppler dephasing が挙げられる。この時間スケールは、 $T_2 = \lambda / (2v)$ で見積もることができる。ここで、 v は原子の平均速度であり、室温 298 K のヘリウム原子の場合、凡そ $1000 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ である。各原子は、それぞれ違う方向に運動しているので、時々刻々と原子の位置関係が変わってしまう。時間の経過に伴う原子間距離の変化に伴い、位相整合条件から外れてしまい、超蛍光が起こらなくなる。波長 $\lambda = 501.6 \text{ nm}$ の場合、 T_2 は 250 ps となり、超蛍光が起こるための原子密度閾値は、 $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ と計算される。より短い波長の蛍光を観測する場合には、この条件はより厳しいものとなる。

Fig. 1 のようなシステムでは、 $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ 、及び $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ という二つの「競合」する蛍光過程が存在する。ここで、この二つの遷移に反転分布が作られたと仮定すると、基底状態 $|1\rangle$ への超蛍光の時間 τ_{SF} 、及び遅延時間 τ_{D} は、 $|3\rangle$ への超蛍光の時間に比べて平均的に $(A_{23}\lambda_{23}^2) / (A_{21}\lambda_{21}^2) \approx 2$ 倍長くなる。つまり、 $|2\rangle$ から $|1\rangle$ への超蛍光が起こる前に、 $|2\rangle$ から $|3\rangle$ の超蛍光によって $|2\rangle$ の population がゼロになる。これは、通常の「競合」蛍光と大いに異なっている。通常の蛍光では、両方の蛍光放出過程が起こるが、その確率が異なっている。一方、「競合」する超蛍光の場合、実験条件 (原子密度、励起光強度、パルス幅、及び励

起状態原子空間分布)の制御により、蛍光のルート、つまり超蛍光の波長を選択することが可能となる。このような波長選択が実現されれば、超蛍光現象を量子エレクトロニクスに応用できる可能性がある。

2.3 SCSS における超蛍光観測

集光点における原子密度を高めるため、また、ストリークカメラ及び EUV 分光器で測定できる十分な超蛍光強度を得るために、SCSS の汎用ユーザーチェンバー内に、一辺44 mm の立方体ガスセル(全側面に ICF34規格フランジ付き)を導入した。

ヘリウムガスは、パルスバルブにより FEL 光の30 Hz に同期され、ガスセル内に導入された。ガスセル内の試料密度は、ガスラインの圧力を0.5気圧から10気圧の範囲で調節することにより変化させた。この際、チェンバー内の真空度変化から見積もられるガスセル内の瞬間ガス圧は、300 Pa から3000 Pa までの範囲であった。この範囲であれば、十分な強度で超蛍光を観測することができると見積もられた。FEL の集光点は、ガスセルの中心に合わせた。

ビームライン下流で観測された超蛍光の特徴は、次の通りであった。

- 波長501.6 nm (青色で、人の目の感度のピークに近い)
- 角度発散 ~ 20 mrad
- 水平直線偏光
- $\tau \ll 1.7$ ns

超蛍光を特徴付ける時間構造を精密に測定するため、浜松フォトリックの超高速ストリークカメラ(FESCA 200)を用いた。FEL トリガーに合わせて、shot-by-shot で可視光のイメージをガスラインの圧力を変えながら測定した。その結果を Fig. 3 に示す。各スペクトルのピーク付近の数字は、FEL パルスにより、基底状態のヘリウム原子の50%が $|2\rangle$ に励起されたと仮定した時の平均原子間距離である。原子密度 ρ に対するピーク強度のプロットを Fig. 3 中の挿図に示している。今回の実験条件では、原子間距離は11 \sim 30 nm と推定され、超蛍光の波長501.6 nm に比べるとずっと短い。Fig. 3 より、原子間距離が短くなればなるほど、超蛍光パルスの遅延時間及びパルス幅が短くなり、ピーク強度は高くなる様子が見て取れる。ピーク強度及び積分強度を比較してみると (Fig. 3 挿図)、積分強度が原子密度に比例するのに対して、ピーク強度は原子密度の2乗に比例している。これは、超蛍光の特徴と一致する。Fig. 4 は、ストリークカメラで測定したスペクトルから抽出した、超蛍光の遅延時間及びパルス幅をガス圧に対してプロットしたものである。横軸は、ガスラインの圧力値である。データに対するフィッティングの結果、遅延時間もパルス幅も(誤差の範囲内で) $1/\rho$ に比例しており、超蛍光の特徴に一致していることが明らかになった。

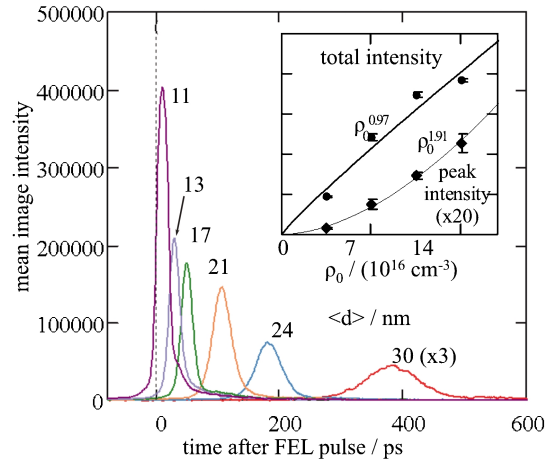


Fig. 3 (Color online) Streak camera traces at different helium number densities. The labels show the estimated average spacing between excited atoms. The inset shows the peak and total intensity as a function of estimated excited state density.

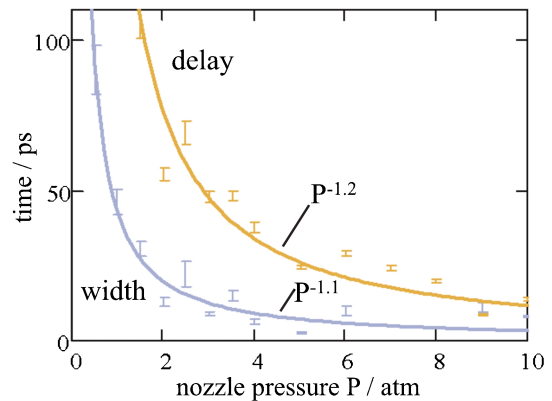


Fig. 4 (Color online) Average delay (orange/light-blue) and width (blue/dark blue) of superfluorescence pulses at different gas nozzle pressures.

以上の測定結果により、今回検出された波長501.6 nm の蛍光は「超蛍光」であると結論付けられる。しかしながら、式(1)及び(2)に基づいて、今回の実験条件に対応するパルス幅と遅延時間を計算すると、実際に測定された時間より一桁程度速い時間が見積もられる。また、遅延時間とパルス幅の比は、 $\tau_D/\tau = (\ln \sqrt{2\pi N})^2/4$ となる。ここで、 N は励起原子の絶対数であり、 ρV に相当するはずである。今回の実験条件で計算してみると、その比は32から46となる。一方、Fig. 4 から、今回の実験では、 $\tau_D/\tau \cong 5$ と見積もられる。この相違には、幾つかの理由が考えられる。まず、FEL 光はガスセルの中心に集光されており、集光点付近の原子には非線形過程が起こる可能性がある。例えば、3光子吸収によるイオン化が起これば、 $|2\rangle$ の空間分布が不均一になる。さらに、EUV-FEL 光は、可視レーザー光とは異なり、波長分布及び時間構造が shot-by-shot で激しく変動していることも理由の一つである。Fig.

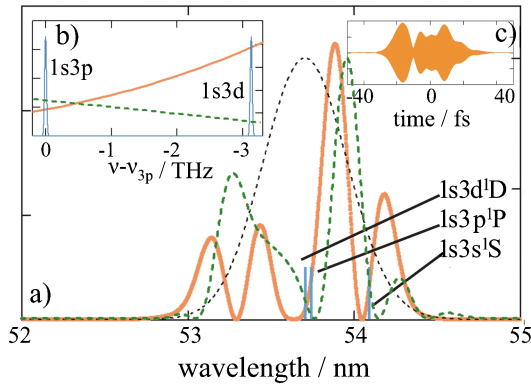


Fig. 5 (Color online) a) Simulated single-shot FEL spectra (orange and green, or solid and dotted blue), showing the position of the 1s3l (l=s, p, d) wavelengths, along with the FEL pulse envelope (dotted black line, not normalised). b) expanded to show the separation between the 1s3p and 1s3d states, their Doppler-broadened zero-field lineshapes, and the shapes of the simulated FEL pulses in this region. c) the time profile of the electric field corresponding to one of the simulated pulses.

5に、FEL シングルショットの波長スペクトルの例を示す。このスペクトルは、Pfeifferら³⁰⁾のSASE光シミュレーション法を利用し、中心波長53.7 nm、パルス長30 fs³¹⁾で計算した時のランダムな2ショットである。黒い点線の平均の波長分布と比べて、オレンジ色及び緑色の1ショットでは、「spike状」の波長分布になっている様子が見て取れる。**Fig. 5b)**は、オレンジ色シミュレーションのパルスの電場である。**Fig. 5**には、ヘリウム原子の三つの励起状態、1s3p、1s3s、及び1s3dの生成に必要な波長も合わせて示している。これを見ると、ショット毎のばらつき具合に依っては、双極子禁制遷移である1s3d及び1s3sへの励起も考慮しなければならないことが推察される²。1s3s、1s3p、1s3dのoscillator strength^{27,28)}を比較してみると、集光点付近におけるac Stark shift等まで考慮する必要があり、実際の励起状態分布は非常に複雑なもの

² 共鳴 FEL 光強度モニター。SCSSでは、ビームライン上流に設置されたガスイオン化モニターにより、FELパルス毎の積分強度が計測されている。しかしながら、今回の実験のような共鳴過程を利用する実験では、FEL光の積分強度の情報だけでは不十分である。それは、共鳴とFEL光とのオーバーラップが、shot-by-shotでランダムに変動するため、共鳴の寄与とFEL光の積分強度とが無関係になるためである。この問題を解決するためには、共鳴の寄与を直接モニターできる検出器が必要となる。我々は、この「共鳴ガスモニター」検出器の開発を試みた。低密度な条件で、ヘリウム1s3p状態を励起すると、0.03の確率で1s2s単位に落ちる。この準位は、いわゆる準安定状態であって、寿命はミリ秒オーダーであることが知られている³²⁾。また、この状態は、中性励起状態ではあるが、内部エネルギーが高いので、MCPによって検出可能である。MCPの前段に金属メッシュを張り、印加する電圧を工夫することにより、中性励起種のみを検出することが出来る「共鳴ガスモニター」を開発した。これをビームライン途中に実際に設置し、shot毎に中性励起状態にある原子の数を測定することにより、FEL光と1s3p共鳴励起状態のオーバーラップが見積もれることを確認した。

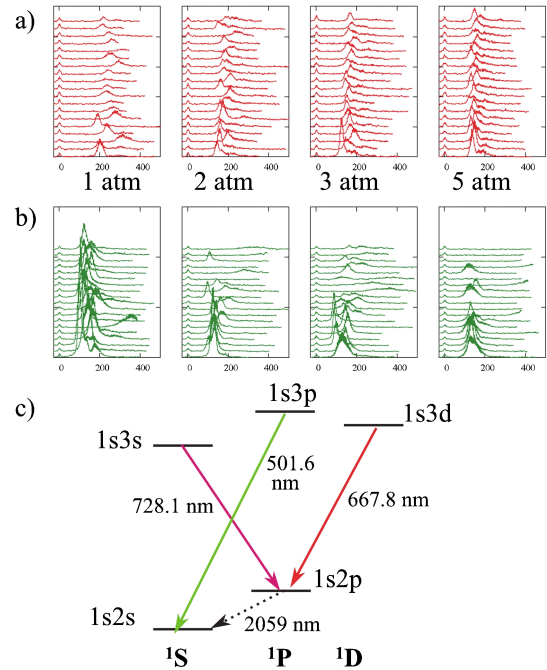


Fig. 6 (Color online) Streak camera traces of superfluorescence pulses at a) 667.8 nm (red or light-blue) and b) 501.6 nm (green or dark-blue), along with a partial level diagram c) showing the relevant transitions. The nozzle gas pressures correspond to higher number densities than those in Fig. 3 and the results of reference 16.

となる。これをモデル化することは、現実的には不可能に近い。このような状況を打破するためにも、EUV領域におけるシード型FELの実現が待ち望まれる。

2.4 他波長における超蛍光

より高い原子密度での超蛍光過程の観測を実現するために、ガスセルに改良を加えて研究を継続した。青色の波長501.6 nmの超蛍光以外に、赤色の指向性の高い、蛍光パルスが観測された。可視用の分光器でスペクトル測定を行ったところ、赤色の成分としては、ヘリウムの1s3s(¹S)→1s2p(¹P) (波長667.8 nm)、及び1s3d(¹D)→1s2p(¹P) (728.1 nm) 遷移に対応する蛍光であることが判明した(**Fig. 6c**)。これらの遷移が超蛍光に発展する過程としては、i) 1s3p、1s3dのFEL光励起(**Fig. 5**参照)、又はii) 1s3p→1s3s→1s2p等のカスケード超蛍光^{35,36)}が考えられる。667.8 nm及び501.6 nmの蛍光のストリークカメラ像の数ショット分を**Fig. 6**に示す。この際、波長の弁別には、バンドパスフィルターを用いた。なお、波長728.1 nmの蛍光は、ストリークカメラでは観測できなかった。ガス圧の上昇に伴い、超蛍光の時間幅も遅延時間も短くなって行くという、**Fig. 4**と同様の傾向は見取れるが、shot-by-shotのFEL光の波長分布が分からなければ、精密な解析は困難である。複数の競合する蛍光過程がある場合、超蛍光の分岐比を原子密度を変えることによって制御出来る可能性

がある。このような分岐超蛍光に関するより精密な実験を実施するためには、先述の「共鳴ガスモニター」や、分光器、高速フォトダイオード及び高速オシロスコープなど、高度な計測技術の導入が必須である。そこで、岡山大学の超放射の研究グループに協力を仰ぎ、2012年度のSCSS利用実験として共同研究を行った。これについては現在、データを解析中であり、今後の報告を待たれたい。

3. X線超蛍光観測への挑戦

先に述べたように、超蛍光に必要な条件の一つは準位間の反転分布である。我々の実験では $|2\rangle$ と $|3\rangle$ の間に反転分布は作られるが、 $|2\rangle$ と $|1\rangle$ の間には作られない。このため、53.7 nmの超蛍光は生じない。EUV分光器で53.7 nmの蛍光を測定すれば、寿命1.7 nsの、原子密度 ρ に比例する強度の「通常」蛍光しか観測されないはずである。ところが、EUV分光器をビームライン下流に設置して行ったEUV蛍光スペクトル測定では、原子数密度に対して強い非線形性を示すEUV蛍光が観測されている。FELショットのランダムなスペクトル構造により、 $|2\rangle$ と $|1\rangle$ の状態間にも反転分布が偶然に形成され、EUV波長の超蛍光が観測された可能性がある。ストリークカメラを用いた、より詳細な実験が待たれる。

一方、応用面からも、より短波長の超蛍光が着目されている。LCLSでのASE³⁷⁾、及びX線ラマン散乱の観測³⁸⁾の成功に伴って、超高感度な時間分解X線共鳴非弾性散乱(RIXS)の実現が期待されている。ASE過程でおこる増幅は反転分布がなくなると止まるのに対して、超蛍光では上の準位のpopulationが100%下の準位に落ちるので、ASEよりもさらに高い感度が期待できる。条件がそろえば、画期的な超高感度RIXSの実現にもつながる可能性がある。

X線領域での超蛍光を実現するために、原子クラスターの利用が提案されている³⁹⁾。我々は、SCSSにおいて、アルゴンクラスターにFELを照射した際のEUV蛍光のup-conversionに成功している⁴⁰⁾。しかし、このEUV蛍光が超蛍光の条件を満たすためには、励起時のblockade効果(一つの原子が励起されると、周りの原子のエネルギー準位がシフトし、励起光に対して非共鳴になる現象)⁴¹⁾等を考慮しなければならない。X線超蛍光を実現するもう一つの可能性として、多価イオンの利用が考えられる。例えば、ヘリウム様アルゴン(Ar^{16+})では、Fig. 1と同様の3準位系が存在する。 Ar^{16+} の場合、 $\lambda_{21}=0.3$ nm、 $\lambda_{23}=2.2$ nmになる。このような多価イオンの3準位系に超高強度のレーザー場を組み合わせると、短波長での超蛍光の可能性がさらに広がる。今回のヘリウムの3準位においても、 $1s2s(^1S)$ の励起状態を高密度で用意できれば、501.6 nmのレーザーを照射することにより、先に示した例とは逆にEUV超蛍光が誘導できるとする理論計

算もある⁴²⁾。

おわりに

超蛍光は、基礎科学の観点から興味深いだけではない。短波長域での超蛍光の観測については、応用面でも大いに注目される。特に、通常の蛍光に比べて格段に指向性が高くなる点は、例えば、蛍光X線分析において、その検出感度を飛躍的に高められる可能性を秘めている。長波長領域ではあるが、超放射の指向性を利用した分析技術として、空気中の離れたところ(kmオーダー)に存在する、ppmオーダーの微量の不純物が検出可能であることが実証されている⁴³⁾ことを付記しておきたい。

謝辞

本研究は、故永園充博士(理化学研究所)、及び岩山洋助教(分子科学研究所)との共同研究として行われました。SCSSの利用に際しては、SCSS試験加速器運転グループの多大なる支援を受けました。また、ストリークカメラの利用に際しては、JASRIの持箸晃博士にお世話になりました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) T. Ishikawa *et al.*: Nat. Photon. **6**, 540-544 (2012).
- 2) P. Emma *et al.*: Nat. Photon. **4**, 641-647 (2010).
- 3) 永園 充 and 他: EUV SASE-FEL 利用の展開 特集号, 日本放射光学会, (2010).
- 4) P. Bucksbaum, T. Möller and K. Ueda: J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **46**, 160201 (2013).
- 5) L. Young *et al.*: Nature **466**, 56-61 (2010).
- 6) Y. Hikosaka *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 133001 (2010).
- 7) M. Fleischhauer, A. Imamoglu and J. P. Marangos: Rev. Mod. Phys. **77**, 633-673 (2005).
- 8) T. E. Glover *et al.*: Nat Phys **6**, 69-74 (2010).
- 9) R. Rohlsberger, H.-C. Wille, K. Schlage and B. Sahoo: Nature **482**, 199-203 (2012).
- 10) R. P. Madden and K. Codling: Phys. Rev. Lett. **10** 516-518 (1963).
- 11) M. K. Odling-Smee, E. Sokell, P. Hammond and M. A. MacDonald: Phys. Rev. Lett. **84** 2598 (2000).
- 12) M. Domke, G. Remmers and G. Kaindl: Phys. Rev. Lett. **69** 1171 (1992).
- 13) M. Nagasono *et al.*: Phys. Rev. A **75** 051406 (2007).
- 14) A. Hishikawa *et al.*: Phys. Rev. Lett. **107** 243003 (2011).
- 15) J. R. Harries, M. Nagasono, H. Iwayama and E. Shigemasa: J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **46**, 164021 (2013).
- 16) M. Nagasono *et al.*: Phys. Rev. Lett. **107** 193603 (2011).
- 17) A. Hishikawa, H. Mizuno, M. Tani and R. Okasaka: J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **25**, 3419-3431 (1992).
- 18) J. F. Wang, J. F. Williams and C. J. Carter: Aust. J. Phys. **50**, 645-653 (1997).
- 19) R. H. Dicke: Phys Rev **93**, 99-110 (1954).
- 20) R. Florian, L. O. Schwan and D. Schmid: Phys. Rev. **29**, 2709-2715 (1984).
- 21) T. Yatsui *et al.*: Appl. Phys. Lett. **100**, 233118 (2012).
- 22) N. Skribanowitz, I. P. Herman, J. C. MacGillivray and M. S.

- Feld: Phys. Rev. Lett. **30**, 309–312 (1973).
- 23) E. Paradis, B. Barrett, A. Kumarakrishnan, R. Zhang and G. Raithel: Phys Rev **77**, 043419 (2008).
- 24) G. Timothy Noe II *et al.*: Nat. Phys. **8**, 219–224 (2012).
- 25) H. Xia *et al.*: Phys. Rev. Lett. **109**, 093604 (2012).
- 26) R. G. DeVoe and R. G. Brewer: Phys. Rev. Lett. **76**, 2049–2052 (1996).
- 27) R. Röhlsberger, K. Schlage, B. Sahoo, S. Couet and R. Rüffer: Science **328**, 1248–1251 (2010).
- 28) L. Allen and J. H. Eberly: *Optical resonance and two-level atoms*, Dover, New York, (1987).
- 29) A. I. Lvovsky, S. R. Hartmann and F. Moshary: Phys. Rev. Lett. **82**, 4420–4423 (1999).
- 30) T. Pfeifer, Y. Jiang, S. Düsterer, R. Moshhammer and J. Ullrich: Opt. Lett. **35**, 3441–3443 (2010).
- 31) R. Moshhammer *et al.*: Opt. Express **19**, 21698–21706 (2011).
- 32) R. S. Van Dyck, C. E. Johnson and H. A. Shugart: Phys. Rev. **4**, 1327–1336 (1971).
- 33) S. A. Alexander and R. L. Coldwell: Int. J. Quantum Chem. **111**, 2820–2824 (2011).
- 34) S. A. Alexander and R. L. Coldwell: Int. J. Quantum Chem. **108**, 2813–2818 (2008).
- 35) Z. Kuprionis and V. Švedas: Appl. Phys. B Laser Opt. **59**, 649–653 (1994).
- 36) L. Ji-Cai, W. Chun-Xin, G. Faris and W. Chuan-Kui: Chin. Phys. B **17**, 4211–4217 (2008).
- 37) N. Rohringer *et al.*: Nature **481**, 488–491 (2012).
- 38) M. Beye *et al.*: Nature **501**, 191–194 (2013).
- 39) A. McPherson, K. Boyer and C. K. Rhodes: J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **27**, L637–L641 (1994).
- 40) H. Iwayama, M. Nagasono, J. R. Harries and E. Shigemasa: Opt. Express **20**, 23174–23179 (2012).
- 41) A. Gaëtan *et al.*: Nat. Phys. **5**, 115–118 (2009).
- 42) N. Cui, C. H. Keitel and M. Macovei: Opt. Lett. **38**, 570–572 (2013).
- 43) V. Kocharovskiy *et al.*: Proc. Natl. Acad. Sci. **102**, 7806–7811 (2005).

著者紹介



James HARRIES

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用
研究部門 コヒーレント X 線利用研究グループ 研究副主幹

E-mail: harries@spring8.or.jp

専門: コヒーレント X 線の原子・分子・
光科学

【略歴】

1996年英国オクスフォード大学自然科学
学部卒業, 1999年英国マンチェスター大学物
理学部, 理学博士。高エネルギー加速器研
究機構 (日本学術振興会外国人特別研究
員), ベルファスト大学, 高輝度光科学研
究センター協力研究員などを経て, 2008
年3月より現職。



繁政英治

自然科学研究機構 分子科学研究所 極端
紫外光研究施設 准教授

E-mail: sigemasa@ims.ac.jp

専門: 軟 X 線分光, 原子分子

【略歴】

1986年広島大学理学部卒, 1988年大阪大
学大学院基礎工学研究科博士前期課程修了,
1990年東北大学大学院工学研究科博士後
期課程中退, 1997年東京大学博士(理学),
1990–1999年高エネルギー物理学研究所
(現高エネルギー加速器研究機構物質構造
科学研究所) 助手, 1999年5月より現職。

Superfluorescence observed using an EUV-FEL

James R HARRIES Japan Atomic Energy Agency, SPring-8,
Kouto 1-1-1, Sayo-gun, Sayo-cho, Hyogo, Japan 679-5148

Eiji SHIGEMASA UVSOR, Institute for Molecular Science,
Nishigonaka 38, Myodaiji, Okazaki, Aichi, Japan 444-8585

Abstract We report on the first observation of superfluorescence (collective spontaneous emission) at an FEL, using the EUV free-electron laser and a high number density helium gas cell. We introduce superfluorescence as an example of ‘quantum optics’ experiments which can be performed at the new generation of light sources, and discuss future prospects, including the extension to shorter wavelengths.