

§6. 利用実験

6-5. X 線パラメトリック散乱

並河 一道

東京学芸大学教育学部*

X-ray Parametric Scattering

Kazumichi NAMIKAWA

Tokyo Gakugei University

An energy conversion of a synchrotron radiation under simultaneous irradiation of an intense laser light has been discussed. Observations of a satellite reflection at Tristan AR and MR have been reported as an evidence for this phenomenon.

1. はじめに

物質による X 線の散乱・分散・吸収等の現象は、X 線物理の主要な研究課題である。これらの研究の最近の発展は放射光 X 線のスペクトルの連続性・指向性の高さ・偏光性の大きさ等の諸特性を利用することによって実現されてきた点に特徴がある。しかしながら、これらの研究はその大部分が物質の線形応答の範囲の現象に限られ、非線形領域の研究はほとんど行われておらず、可視光領域における非線形光学の研究の発展と著しい対比を見せている。このことは、現在の放射光 X 線のコヒーレンシーの低さに原因があり、X 線領域における非線形感受率に関わる研究は原子物理学における広大な未開拓領域をなしている。X 線領域における非線形光学の研究は、コヒーレントな X 線光源が利用できるようになると、光源の統計的性質との関わりにおいて重要な研究

分野となるはずである。今のところ放射光 X 線のコヒーレンシーは低く、このような実験を実行することは困難であるが、可視のレーザー光のコヒーレンシーは極めて高く強力な光源が得られるので、第三世代高輝度放射光 X 線を用いて強いレーザー光の場のもとにおける X 線の散乱現象を観察することにより X 線領域の非線形光学の研究を試みることができる。このような研究課題として本報告では「レーザー光によって誘導される X 線のパラメトリック散乱」の現象を取り上げ、その機構と特徴を考察し、トリスタン蓄積リング (AR) およびトリスタン主リング (MR) におけるこの現象の検証実験の結果を紹介する。

2. X 線の自発的パラメトリック散乱

光学領域においては、強力なレーザー光を非線形光学結晶に照射するとき、入射光の電磁場と真

* 東京学芸大学教育学部 〒184 小金井市貫井北町 4-1-1
TEL 0423-25-7481 FAX 0423-25-7491 e-mail namikawa@u-gakugei.ac.jp

空のゆらぎによる電磁場が結晶の高次の感受率を介して結合し、それらの振動数の和が入射光の振動数に等しいいくつかの散乱光が発生し、これらの散乱光が増幅される現象が知られており、光パラメトリック散乱と呼ばれている¹⁾。同様な現象はX線についても考えられるが、現在のところX線のコヒーレンシーはすこぶる低く、散乱光に対する増幅作用はまったく期待できない。しかしながら、真空の場のゆらぎによって一つの入射光子が二光子に分かれて散乱されることは可能で、X線の自発的パラメトリック散乱と呼ばれている²⁾。X線の自発的パラメトリック散乱は、放出される二光子がともにX線領域にあるような現象³⁾と、一方がX線領域にあり他方がVUV領域にあるような現象⁴⁾についてはすでに観察されているが、二光子のうち一方が可視光領域にあるような現象はまだ観察されていない。

可視光のパラメトリック散乱では双極子遷移のパリテイに関する選択則の要請により、結晶の中心対称性を考慮する必要があるが、X線のパラメトリック散乱の場合は結晶の中心対称性を考慮する必要がない。可視光の場合は、結晶の単位胞について一定と見なせるのに対し、X線の場合は、単位胞内で空間的に激しく変動する。この結果、たとえば一光子吸収二光子放出の光パラメトリック散乱は結晶に中心対称性がある場合には観察されないのに対し、同様なX線の自発的パラメトリック散乱は結晶に中心対称性があっても観察される。

3. レーザー光によって誘導されるX線のパラメトリック散乱

残念なことに、二光子のうち一方が可視光領域にあるようなX線の自発的パラメトリック散乱の起こる確率は極めて小さく、二光子自然放出確率の計算⁵⁾から推定すると、一光子散乱確率のたかだか 10^{-9} 程度以下である。しかしながら、結晶内にあらかじめ強いレーザー光が存在する

場合には、散乱体の基底状態と励起状態との間に反転分布が存在しなくても可視光の放出は誘導放出として生ずることが期待でき、X線パラメトリック散乱の起こる確率は著しく増大する。レーザー光によって増大される二光子放出の確率の計算⁶⁾から推定すると、この場合の散乱確率は 10^7 W/cm²程度のレーザー光の場に対し一光子散乱の場合の 10^{-5} 程度になる。

電気双極子遷移が主要な寄与をする10 keV程度以下のX線の共鳴散乱では、パリテイに関する選択則によって可視光子が一個増えるパラメトリック散乱は禁止されているため、図1に示すような、中間状態で可視光子が二個増える過程を考える。図1では、希土類の2p準位(a)の電子がX線を吸収して空の5dバンドへ励起され(I_1)、二個の可視光を放出して、それと重なる6pバンドないし4f準位への遷移(I_2)と再度の5dバンドへ遷移(I_3)を行い、X線を放出してもとの2p準位(a)へもどる過程を想定している。

パラメトリック散乱が効率よく起こるためには入射光と散乱光の位相差が空間的に広い範囲で一定である必要があることが必要で、このことは入射波と散乱波の間に波数ベクトルの保存則が成り立つことを要求し、エネルギーの保存則と合わせて位相整合条件と呼ばれている。可視光の場合、位相整合条件は、たとえば入射光と散乱光に対する屈折率の分散を利用して実現されるのに対し、X線の場合は、位相整合の実現にブラッグ散乱を利用できる点に特徴がある。レーザー光によって誘導

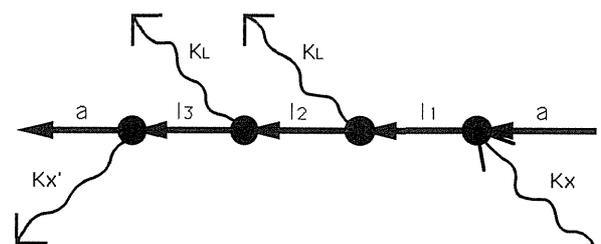


Figure 1. A schematic diagram for the laser induced parametric scattering. A laser field is not shown explicitly.

される X 線パラメトリック散乱に対する位相整合条件は,

$$\omega_{x'} = \omega_x - 2\omega_L \quad (1)$$

$$k_{x'} = k_x - 2k_L + G \quad (2)$$

と表わせる。ここで、 x および x' は散乱前後の X 線を意味し、 L は可視光を意味する。また、 G は逆格子ベクトルを表わす。(1)式および(2)式の関係は図2のエバルト構成に示されている。この図から、レーザー光によって誘導される X 線のパラメトリック散乱は通常のブラッグ反射の衛星反射として現われることが期待される。

4. トリスタン電子蓄積リング (AR) 放射光を用いた実験

レーザー光の照射による誘電体結晶の損傷は結晶の種類によって異なるが、一般に分域構造があ

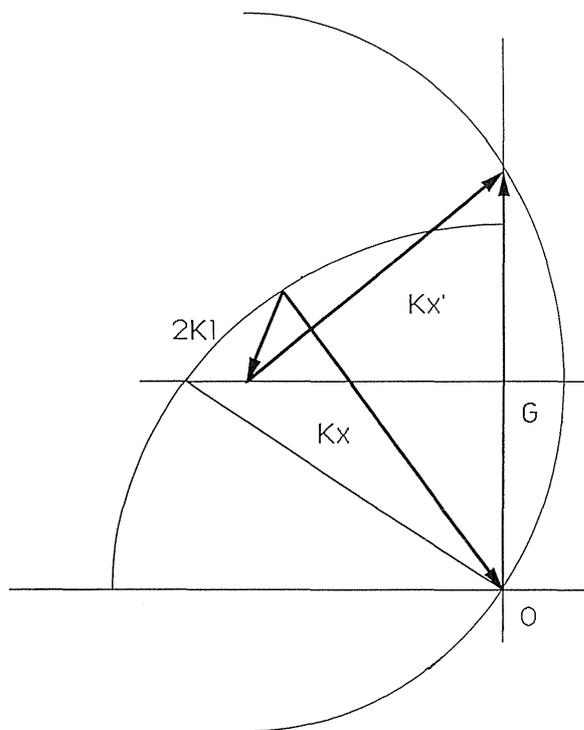


Figure 2. Ewald construction of the phase matching condition for the X-ray parametric scattering under an intense laser field.

ると分域の分布が変化し、場合によっては X 線パラメトリック散乱の現われることが期待される高角度側の裾野にまで分域の変化の影響が現われる。KDP, LiF, GGG 等の誘電体についてレーザー光の照射による試料の損傷を調べたところ、単域構造の GGG 単結晶の場合には、X 線パラメトリック散乱の出現が期待される位置付近における X 線散乱強度の変化は単調で、現象の観察の妨げにならないことがわかった。これらのことを考慮して、試料には GGG の(111)面に平行な平板単結晶を用いた。

トリスタン電子蓄積リング NE3 の実験ハッチ内に図3のような装置を組み立て、X 線アンジュレーターによる放射光 X 線を用いて実験を行った。実験装置は入射強度モニター用のイオンチャンバー、X 線回折計、X 線計測用カウンター、パルス NdYAG レーザー、レーザー用光学系等から構成されている。入射 X 線はビームラインの Si(111) ダブルモノクロメーターを用いて約 2 eV の分解能で単色化し、レーザー光にはパルス NdYAG レーザーの第二高調波 (波長 532 nm) を使い、X 線の計測はプラスチックシンチレーションカウンターを用いて行った。X 線の照射と合わせてレーザー光の発光照射を行い、これと同期して計測回路にゲートをかけ散乱強度を測定

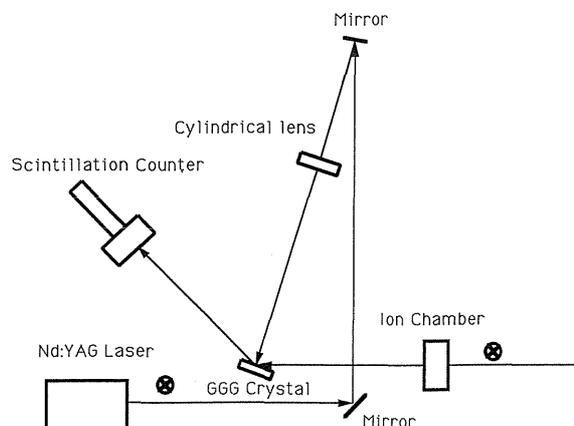


Figure 3. A schematic illustration for the experimental set up. Polarization of the incident X-ray and laser light are linear and perpendicular to the figure plane.

し、レーザーの発光がない場合と比較した。

入射 X 線のエネルギーを Gd の L_2 吸収端のピークより約 4.7 eV エネルギー高側に選んだとき、位相整合条件は 444 ブラッグ反射の中心から $268''$ 高角度側で満たされる。レーザー光の発光と同期して測定した場合と同期を外して測定した場合に得られた、衛星反射の出現が予想される位置前後の強度プロファイルを図 4 に比較してある。図 4 の横軸は 444 ブラッグ反射の中心から測った相対角度を示す。レーザー光の発光と同期して測定した場合に得られたプロファイルは、低角度側から高角度側に向かって単調に減少するバックグラウンドに重なって、ほぼ期待されされる位置に 444 ブラッグ反射と同程度の幅の強度増大が存在することを示している。なお、図の実線はバックグラウンドのガイドを示す。強度増大の大きさは、この付近におけるバックグラウンド強度のおよそ 2% 程度あり、バックグラウンド強度はブラッグ

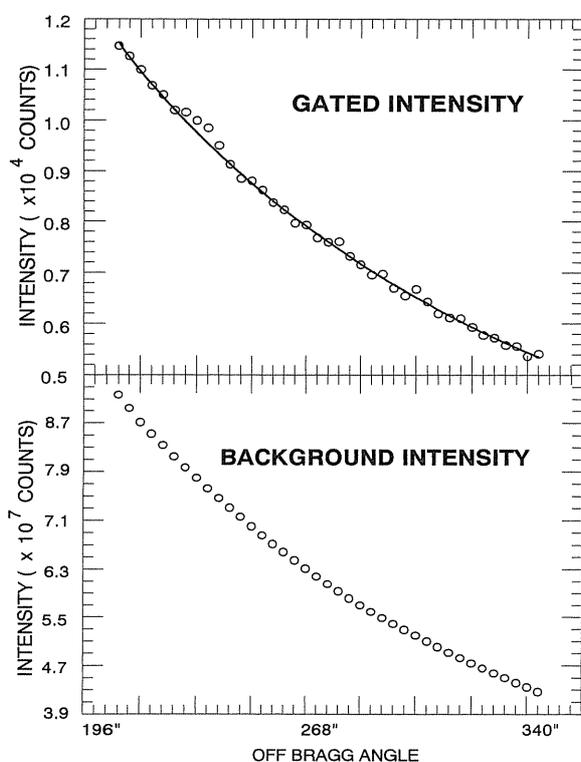


Figure 4. Intensity profiles of the rocking measurements; (up) gated by simultaneous irradiation of X-ray and the laser light, (bottom) ungated one.

ピーク強度のおよそ 5×10^{-4} 程度であるので、444 ブラッグ反射強度のおよそ 1×10^{-5} に相当し、当初の予想とよく一致している。

5. トリスタン主リング (MR) 放射光を用いた実験

MR 放射光はビームラインのモノクロメーターシステムの立ち上げが遅れていて、波長スキャンを必要とする実験に対し十分な対応がなされていなかった。このため、エネルギーを一点一点手動で選んで吸収スペクトルを測定したが、滑らかな吸収スペクトルが得られなかった。ダブルモノクロメーターが手動では十分な機能を発揮できなかったのは、エネルギーを一点同調することに基本波と高調波の比率が非系統的に変動したため考えられる。MR 放射光実験では AR 放射光実験の結果を再現し、出来れば散乱 X 線の分光までを試みることを予定していたが、実験の結果は満足から程遠いものとならざるを得なかった。

それにもかかわらず、Gd の L_2 吸収端を色々な手法で同定し、モノクロメーターを予定のエネルギーに設定し、与えられたマシンタイムの中で AR 実験の追試を試みた。図 5 は図 4 と同じ領域をスキャンして得られたプロファイルで、レーザー光と同期して得られたデータとレーザー光のない場合のデータの比を表わしている。ガイドのためにデータをスムージングして図に実線で示した。縦軸の値はレーザー光の発光のレート (約 50 Hz) と MR (約 100 kHz) のレートの比にほぼ対応している (ずれはゲートのトリガーレベルの設定による)。MR では AR の 1/3 程度の時間で同程度の計数が得られたが、図 5 のデータは図 4 のデータと比べてデータのばらつきの大きいことがわかる (ゲートをかけない場合の計測データのばらつきも大きい)。図 5 のスムージングしたプロファイルには、どれほどの意味を持たせるかは別として、位相整合条件の付近に強度増大が見られる。このような強度増大は、PF の BL16 で

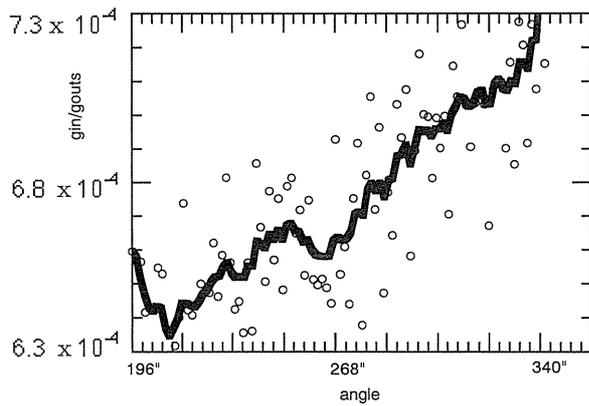


Figure 5. A result of a rocking measurement at Tristan MR shown by a ratio of gated intensity to the ungated one.

マルチポールウイグラー放射光を用いて行った非同期的実験でも観察されており、これらの互いに独立な実験は図4に現われた衛星反射がレーザー光によって誘導されるX線のパラメトリック散乱である可能性を強く支持している。

6. おわりに

X線領域のコヒーレント光源は、それによって展開されるであろう、自然科学の潜在的な可能性と工学技術の発展に対する期待から将来の魅力ある研究課題と考えられている。米国のNRCの報告書“FREE ELECTRON LASERS AND SOURCES OF LIGHT”には、「X線領域のコヒーレンスの利用とその科学の可能性を探ること」がFEL計画実現の前提条件となることが指摘されている。光子縮退度（コヒーレント体積内の一

モード当たりの光子数）が本質的役割を果たす場合にはFEL以外の短波長光源を利用して予備実験を遂行し、光子縮退度が実験の実現性に関わる条件の一つに過ぎない場合には、第三世代高輝度放射光光源を用いて予備実験を遂行することが望まれる。今回実行できなかった散乱X線の分光実験は第三世代高輝度放射光光源を用いてぜひ試みたい課題である。さらに、ここでは触れなかったX線の光物性的な課題⁷⁾には大きな発展の可能性があり、第三世代高輝度放射光光源を用いても十分研究を進めることのできる広い未知の領域が存在するように思える。

本研究は、大井みさほ（東京学芸大学）、安藤正海（KEK・PF）、伊藤進一（東京工芸大学）、植松晴子（東京学芸大学）、張小威（KEK・PF）、荒川悦雄（東京学芸大学）との共同研究として行われた。MR実験に際しては、トリスタン加速器のスタッフに直接あるいは間接にお世話になった。これらの方々に厚く御礼申し上げたい。

参考文献

- 1) 稲葉文男, 伊藤弘昌: レーザーハンドブック (朝倉書店, 1973) p427.
- 2) I. Freund and B. F. Levine: Phys. Rev. Lett. **23**, 854 (1969).
- 3) P. Eisenberger and S. L. McCall: Phys. Rev. Lett. **26**, 684 (1971).
- 4) H. Danino and I. Freund: Phys. Rev. Lett. **46**, 1127 (1981).
- 5) I. Freund: Phys. Rev. **A7**, 1849 (1973).
- 6) *ibid.* 5).
- 7) K. Nasu: J. Phy. Soc. Jpn. **63**, 2416 (1994).