

自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源の研究: 2023

RESEARCH TOWARDS ATTOSECOND X-RAY PULSE GENERATION USING FREE-ELECTRON LASER OSCILLATORS: 2023

羽島良一^{#, A)}, 川瀬啓悟^{A)}, 全炳俊^{B)}, 大垣英明^{B)}, 早川恭史^{C)}, 境武志^{C)}

Ryoichi Hajima^{#, A)}, Keigo Kawase^{A)}, Heishun Zen^{B)}, Hideaki Ohgaki^{B)}, Yasushi Hayakawa^{C)}, Takeshi Sakai^{C)}

^{A)} Kansai Institute for Photon Science, National Institutes for Quantum Science and Technology (QST)

^{B)} Institute of Advanced Energy, Kyoto University

^{C)} Institute of Quantum Science, Nihon University

Abstract

We have launched a research program on attosecond X-ray sources utilizing high-harmonic generation (HHG) driven by an infrared free-electron laser (FEL) oscillator. As the results of the first five years of the program, we have improved the FEL performance at KU-FEL and LEBRA-FEL to achieve FEL intensity high enough for HHG. We observed HHG from a solid target and tunnel-ionizing electrons in gas, both of which indicate high-field photon reactions. In the present paper, we report on the recent status and future perspectives of the program.

1. はじめに

高強度レーザーを希ガスや固体に集光した時に高い次数の高調波が発生する現象は、高次高調波発生 (High Harmonic Generation; HHG) として知られている。HHG を使えば、赤外のフェムト秒レーザーを用いて VUV から X 線の波長領域でアト秒パルスを生産できることから、国内外で精力的に研究がなされている [1, 2]。これまで、HHG 光源は固体レーザーを用いて実験されてきたが、われわれは、固体レーザーに代わって共振器型自由電子レーザー (FEL) を使った HHG 光源を提案し、その実現に向けた研究を進めている [3]。Figure 1 に提案する HHG 光源の概念図を示す。

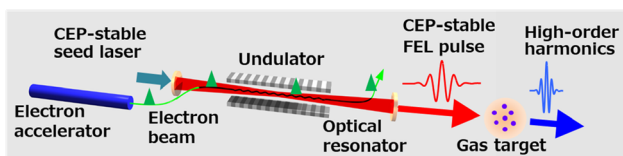


Figure 1: Concept of the FEL-HHG, attosecond photon source based on high-harmonic generation driven by an FEL oscillator.

FEL を使った HHG には二つの利点がある。まず、HHG で発生できる光子エネルギーの最大値 (カットオフエネルギー) を大きくできること、もうひとつは、高繰り返しで HHG を行えることである。

HHG の原理は、レーザー電場による原子のトンネルイオン化、引き続いておこるレーザー電場による電子の加速と親原子への再結合として説明できる。レーザー波長が長くなると、電子の加速時間、加速距離ともに長くなるので、カットオフエネルギーが大きくなる。また、HHG の発生効率を大きくするためには、ガス中を伝搬するレーザーと高次高調波の位相速度の整合条件を満たしたうえで相互作用距離を長くする必要があり。位相整合を満

たした条件では、HHG のカットオフエネルギーが入射レーザー波長の 1.7 乗に比例して大きくなること、理論計算と実験で確認されている [4,5]。これまでに、波長 3.9 μm のレーザーを用いて 1 keV を超える HHG の発生実験 [5] が行われているが、波長変換用の非線形結晶の制限などのため、入射レーザーの長波長化と発生光子の高エネルギー化は容易でない。任意の波長で発振可能な FEL を用いることで、固体レーザーでは困難な 4 μm 以上での HHG 実験が可能になる。

HHG では、トンネルイオン化が起こる 10^{14} W/cm² 程度の集光強度、パルスエネルギーに直すと 0.1-1 mJ 以上のレーザーパルスが必要である。固体レーザーではレーザー媒質の熱除去が高繰り返し化の障害となるが、真空をレーザー媒質とする FEL は 10 MHz を超える繰り返しが可能である。

このように、FEL は固体レーザーを補完し、これまで実現していないパラメータ領域 (レーザー波長、繰り返し) において HHG 実験を可能とするが、これまで、こうした実験は行われていない。われわれは、2018 年に文科省 Q-LEAP のファンドを得て、自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源の研究を開始した。本研究では、京都大学の KU-FEL、日本大学の LEBRA-FEL、二つの施設を利用している。本稿では、これまでの成果と今後の計画について述べる。

2. 超短 FEL パルスの生成

共振器型 FEL を超放射領域で動作させることで、超短パルスを高効率で発振することができる。超放射 (superradiance) は、放射場で結合した多数の原子が協働して光を放出する現象として、1954 年に R. Dicke がその存在を予言したものであり、放射に寄与する原子数を N とした時に、放射のピーク強度が N² に比例し、放射のパルス幅が 1/N に比例するという特徴がある [6]。超放射 FEL は、発振に寄与する電子数 (N) の二乗でピーク強度が増大し、1/N に比例してパルス幅が短くなる [7]。共振器型 FEL では、一定の条件を満たすときに、超放

[#] hajima.ryoichi@qst.go.jp

射発振が現れ、光の電場周期を数サイクルしか含まない超短パルスが生成されることが、理論解析、数値解析で示され、実験でも確認されている[8]。

われわれは、KU-FEL にて、電子ビーム繰り返しの動的変調、4.5 セル RF 電子銃の光陰極運転を行い、超短 FEL パルスの高効率発振を実現した[9, 10]。Figure 2 は、超放射 FEL の変換効率をゲインで規格化した共振器損失の関数として示したものである。数値シミュレーション、JAERI-FEL、KU-FEL の実験結果を重ねてプロットしてある。KU-FEL の光陰極運転では、JAERI-FEL を上回る 9.4% の変換効率を達成し、この時のパルス長は 4.2 サイクルが得られており、超放射に特有のリングング波形の測定もなされている (Fig. 3) [11]。

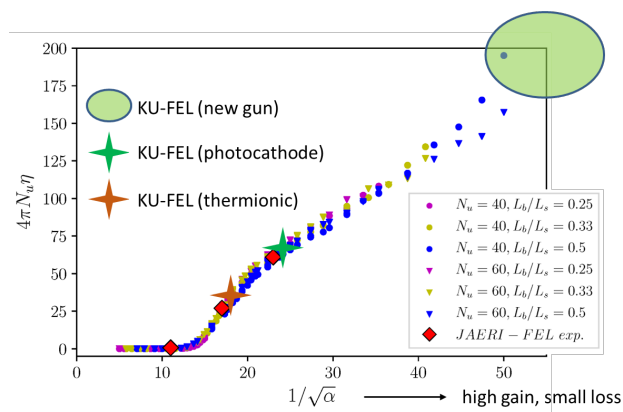


Figure 2: Extraction efficiency of the superradiant FEL oscillator. We plot simulation results with varying the number of undulator periods, N_u , the bunch length and slippage distance, L_b/L_s , and the normalized cavity loss α . Experimental results for JAERI-FEL and KU-FEL, and parameter area available with the new gun are also indicated (adopted from [8]).

LEBRA-FEL では、長年の運転による放射線の照射効果のためアンジュレータ磁場の劣化が生じ、FEL 強度の低下を招いていた。そこで、2019 年度にアンジュレータ磁石の更新を行い、FEL 強度の回復を図った。磁石更新によって FEL 強度が大きく改善し、波長 $3.6 \mu\text{m}$ にてマイクロパルス当たりのパルスエネルギーが $40 \mu\text{J}$ を超えた (磁石更新前は $7 \mu\text{J}$)。さらに、FEL パルス長の測定結果から FEL が超放射領域で動作していることが示唆されている。

3. 強光子場実験

超放射 FEL 発振で可能となった高い集光強度を利用して、いくつかの強光子場実験を行った。

KU-FEL では FEL パルスを大気中で集光した際に、放電音を伴う発光が観測される。この発光は、熱陰極運転 (繰り返し 2856 MHz) のみで生じ、マイクロパルス当たりのエネルギーがさらに大きい光陰極運転 (29.75 MHz) では見られない。ガス種、ガス圧を変えた実験、および、電離の数値解析の結果から、熱陰極運転で観測される発光は、カスケード電離による放電に由来することがわかった。放電発光が熱陰極運転のみで現れるのは、マイクロパルス繰り返しの違いで説明できる。低繰り返しの光陰極

運転では、パルスインターバルでの電子拡散が大きく、カスケード電離が進展しないことが数値解析から確認できた。数値解析と実験結果を比較することで、気体の電離、励起、緩和、電子拡散といった反応を調べることができる。HHG 実験のガスターゲットの設計に有用な知見が得られる。

KU-FEL の光陰極運転では、目視での発光は見えないが、光電子増倍管による測定では、気体の発光が観測された。波長 $8.6 \mu\text{m}$ の FEL パルスを N_2 中で集光した際には、 N_2 分子の蛍光 (波長 377 nm) がマイクロパルスごとに現れた。FEL パルスエネルギーと蛍光強度の相関から、蛍光がトンネル電離に由来することが示唆されている [12]。

FEL パルスの集光強度の評価は、トンネル電離電子のエネルギー分析からも可能である。この実験の詳細は [13] にて報告している。

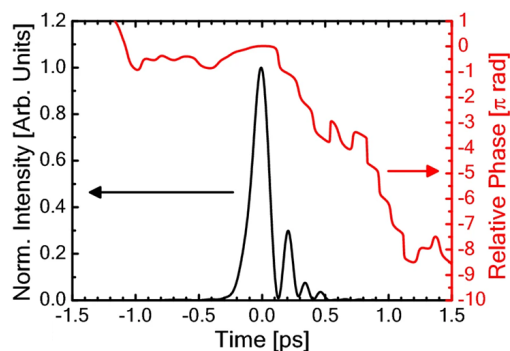


Figure 3: Temporal profile of an FEL pulse at KU-FEL. Intensity and relative phase retrieved from autocorrelation measurement are plotted [11].

4. VUV 分光器の製作

気体の HHG 実験では、VUV から X 線領域の高次高調波発生が予想される。この高調波を測定するための分光器を製作した。製作した分光器は、5-200 nm の幅広い波長領域をカバーするため、3 枚の回折格子を切り替えて使用できる設計とした。使用するのは、島津製作所製のラミナー型レプリカ回折格子であり、フラットフィールド・ポリクロメータに適した製品である。検出器は冷却型 X 線 CCD 検出器 (Oxford Instruments 社、ANDOR Newton DO940P-BEN) を使用する。CCD 素子のサイズは

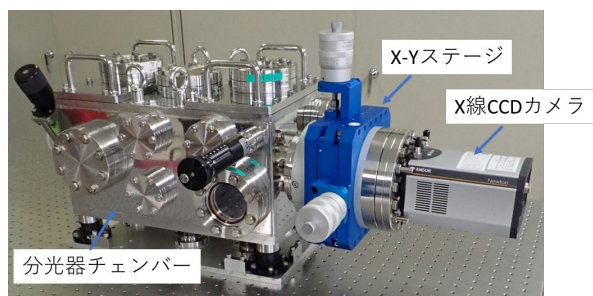


Figure 4: VUV monochromator developed for the FEL-HHG experiments.

27.6 × 6.9 mm であり、回折格子のフラットフィールド (L=25.3 mm) をカバーしている。また、入口スリット、回折格子、検出器 CCD 素子のアラインメントを取る際には、アラインメント用の可視レーザーを入射し、回折格子の 0 次光を検出器で観測する必要があるが、この時、検出素子をフラットフィールドの外側に移動しなければならない。このため、検出器を精度よく移動するための X-Y ステージ (AVC 社製、AXY-6/4LM、X-Y 移動距離 = ± 12.5 mm) をカメラと分光器チェンバーの間に取り付けた。Figure 4 に完成した分光器の外観を示す。

5. 今後の計画とまとめ

KU-FEL では、新電子銃 (1.6 セル、RF 電子銃) が設置され、昨年度までに Cu 光陰極を用いた FEL 発振の確認が終わっている。今年度は、CsTe 光陰極による大電荷ビームの引き出しと、これを用いた FEL 発振を計画している。Figure 2 に示すような高効率 (超短パルス) が実現するのか、間もなく明らかになるだろう。また、超放射 FEL パルスは、チャープ補償することでパルスの圧縮が可能であることから、Ge ロッドを用いたチャープ補償を試み、パルス圧縮が可能であることを確認している [14]。今後は、FEL の非線形チャープに合わせたチャープ補償ミラーの設計を行う予定である。

KU-FEL では、固体の HHG 実験として、多結晶 ZnSe 板に FEL パルスを集光した際の透過光に含まれる 13 次の高次高調波を確認した。透過配置では ZnSe のバンドギャップ (2.7 eV=440 nm) を超える高調波は観測できないが、新たに製作した VUV 分光器を使えば、反射配置にて、さらに高次の高調波の観測が可能となる。

気体の HHG 実験では、単一原子からの HHG 発生効率が入射レーザーの波長とともに指数関数的に小さくなるため、最初の実験は、LEBRA-FEL の 2-3 μm の FEL パルスを使って行う計画である。今年度中に最初の実験を予定している。

FEL 共振器における超放射発振では、外部レーザーによるシーディングを行えば、キャリアエンベロープ位相の安定化が可能となる [3]。これに必要なシードレーザーの開発を QST 東海で立ち上げたが [15]、メンバーの異動に合わせて、このレーザーを QST 関西に移設した。レーザーの安定動作に適した環境下で、引き続き開発作業を進めている。外部レーザーの代わりにアンジュレータからのコヒーレント放射を使う FEL の位相安定化についても検討を開始している [16]。

KU-FEL、LEBRA-FEL で実現した超短パルス FEL は、HHG 以外にも応用可能である。中赤外、長波長赤外ではユニークな光源であり、強光子場実験の専門家からも、多くのご意見をいただけるとありがたい。

謝辞

本研究は、文部科学省の光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP、JPMXS0118070271) の助成を受けたものである。VUV 分光器の製作では、東京大学物性研究所の板谷治郎氏の協力を得た。感謝申し上げる。

参考文献

- [1] F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>
- [2] 大森賢治編, “アト秒科学”, 化学同人 (2015).
- [3] R. Hajima and R. Nagai, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 204802 (2017).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.204802>
- [4] T. Popmintchev *et al.*, *PNAS* **106**, 10516-10521 (2009).
<https://doi.org/10.1073/pnas.0903748106>
- [5] T. Popmintchev *et al.*, *Science* **338**, 1287-1291 (2012).
<https://doi.org/10.1126/science.1218497>
- [6] R.H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.93.99>
- [7] R. Bonifacio, F. Casagrande, G. Cerchioni, L. Salvo Souza, P. Pierini and N. Piovella, *La Rivista del Nuovo Cimento* **13**, 1 (1990).
<https://doi.org/10.1007/BF02770850>
- [8] R. Hajima, *Atoms* **9**, 15 (2021).
<https://doi.org/10.3390/atoms9010015>
- [9] H. Zen, H. Ohgaki, R. Hajima, *Phys. Rev. Accel. Beams* **23**, 070701 (2020).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevAccelBeams.23.070701>
- [10] H. Zen, H. Ohgaki, R. Hajima, *Appl. Phys. Express* **13**, 102007 (2020).
<https://doi.org/10.35848/1882-0786/abb690>
- [11] H. Zen, R. Hajima, H. Ohgaki, *Sci. Rep.* **13**, 6350 (2023).
<https://doi.org/10.1038/s41598-023-33550-z>
- [12] R. Hajima *et al.*, “Emission phenomena of gases and solids by few-cycle FEL pulses in log-wavelength infrared”, *Proc. PASJ2022, Kitakyusyu (Online meeting), Japan, Oct. 2022*, pp. 771-774.
- [13] K. Kawase *et al.*, In these proceedings.
- [14] H. Zen *et al.* (submitted).
- [15] K. Kawase *et al.*, “Development of fiber laser system for a mid infrared light source with the difference frequency generation”, *Proc. PASJ2020, Online, Japan, Sep.2-4, 2022*, pp. 268-271.
- [16] R. Hajima *et al.*, “Carrier-envelope phase stabilization in FEL oscillators”, *Proc. 14th International Particle Accelerator Conference (IPAC2023), Venezia, May 7-12, 2023*, pp.1856-1858.
<https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2023-TUPL054>