

自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒 X 線光源

DEVELOPMENT OF A HIGH-REPETITION-RATE ATTOSECOND X-RAY SOURCE BASED ON A FREE-ELECTRON LASER

羽島良一^{#, A)}, 永井良治^{A)}, 川瀬啓悟^{A)}, 大垣英明^{B)}, 全炳俊^{B)},
早川恭史^{C)}, 境武志^{C)}, 住友洋介^{C)}, 島田美帆^{D)}, 宮島司^{D)}

Ryoichi Hajima^{#, A)}, Ryoji Nagai^{A)}, Keigo Kawase^{A)}, Hideaki Ohgaki^{B)}, Heishun Zen^{B)},
Yasushi Hayakawa^{C)}, Takeshi Sakai^{C)}, Yoske Sumitomo^{C)}, Miho Shimada^{D)}, Tsukasa Miyajima^{D)}

^{A)} National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

^{B)} Kyoto University, ^{C)} Nihon University, ^{D)} High Energy Accelerator Research Organization

Abstract

A research project has been launched towards a high-repetition-rate attosecond X-ray pulse source, which is based on high-harmonic-generation (HHG) driven by infrared free-electron lasers (FEL). In the project, we will establish basic technologies relevant to the FEL-driven HHG. Two infrared FELs at Kyoto University and Nihon University are utilized as test beds for the R&D. Wavelength tunability of FEL enables one to explore HHG for cutoff energies above 1 keV. Plans and status of the project are also presented.

1. はじめに

高強度レーザーを希ガス中に集光した時に非常に高い次数の(数百から千次以上)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成できることから、国内外で精力的に研究がなされている [1, 2]。

自由電子レーザー(FEL)とHHGの組み合わせでは、過去に、HHGをシード光としたシングルパス FEL 実験が行われた例がある。電子ビームのショットノイズからレーザー発振を行う SASE (self-amplified spontaneous emission) では、発振スペクトルがショットごとに一定でなく、時間コヒーレンスが不完全であるといった短所がある。HHGをシード光とすることで、発振の初期条件を制御することができ、SASEの短所を解決できる。実験では、ショットごとのスペクトル再現性に改善が見られたが、シード光と電子バンチのジッターなど技術的な課題も認識された [3]。

上記の実験とは反対に、FELで発生した赤外パルスをガス中に集光しHHGを行うことも原理的に可能であるが、これまでに実験例はない。FELを駆動源とするHHGをFEL-HHGと呼ぶことにする。固体レーザー(フェムト秒レーザー)を駆動源とする従来のHHGと比較して、FEL-HHGの利点は大きく二つある。

一つ目は、FELは高繰り返しが容易であることである。文科省の報告書、「量子科学技術(光・量子技術)の新たな推進方策」[4]には、量子科学技術のポテンシャルを最大限引き出し、今後の進展を先導することなどを目的として、新たな推進方策がまとめられている。この中で、「極短パルスレーザーとアト秒科学」の研究課題の一つとして、短時間で多くの高精度なデータを取得するための

高繰り返し化があげられており、ロードマップの長期的な目標として1 MHzの繰り返しが設定されている。

固体レーザーで駆動するHHGは、レーザー媒体や波長変換素子の熱負荷の問題があるのに対して、真空を媒体とし、目的の波長のレーザーを直接生成するFELでは、熱負荷の問題がないため高繰り返しに有利である。リニアックで生成できる電子ビームの繰り返し(平均電流)に限界があり、また、ビームダンプの放射線遮蔽と熱除去の観点から、実用的なHHGの繰り返しに上限はあるが、エネルギー回収型リニアックのために開発した電子銃 [5]、超伝導加速空洞 [6] を組み合わせることで、電子エネルギー50 MeV、1 mA、10 MHzといった構成は技術的に可能と考える。

FEL-HHGの二つ目の利点は、任意の波長でHHGを行えることである。HHGの原理は、レーザー電場による希ガス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 [1, 2]。レーザー波長が長くなると、電子の加速時間が長くなり、HHGで発生する最大光子エネルギー(カットオフエネルギー)も大きくなる。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とる必要がある。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[7, 8]。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[8]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、これより長い波長でのHHG実験は報告されていない。

波長可変かつ高平均出力が可能なFELで中赤外のレーザー発振を行い、これをHHGに利用すれば、原理的に、1 keV以上のアト秒X線をMHzの繰り返しで生成可能であり、従来の固体レーザーHHGで到達不可能な

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

パラメータ領域を補完できる。われわれは、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)の支援を受け、FEL-HHGの基礎基盤技術の開発研究を2018年11月よりスタートした。本稿では、FEL-HHGの簡単な説明を行った後に、本研究の概要、これまでの進捗状況を報告する。

2. FEL-HHGの概要

共振器型FELでは、電子が光パルスに追い越されながら相互作用を行うため、光パルスの後半部分が主に増幅される。つまり、光パルスの群速度が真空中の光速よりも小さくなる。光の増幅を共振器中で繰り返し行うためには、この小さな群速度の補償が必要であり、FEL共振器長を少し短く設定しなければならない。これを光共振器長のデチューニングという。

電子バンチがFELのスリップ長(波長とアンジュレータ周期数の積)よりも短い場合、共振器長デチューニングの大きさによって、FELの発振は、定常状態(single supermode)、リミットサイクル、カオスと変化し、パルス長も変わることが理論的、実験的に確かめられている[9]。

共振器長のデチューニングがゼロ、すなわち、共振器の完全同期長で、強い発振がおこることが、原研FELで観測され、その後、完全同期長発振は、通常の高変換効率を示すこと、数サイクルの極短パルスが生成されることなどが、実験と数値シミュレーションから明らかになった[10, 11]。

さらに、われわれは、完全同期長発振において、外部からキャリアエンベロープ位相(CEP)を安定化した微弱なシードレーザーを連続注入することで、FELパルスのCEPを安定化する手法を提案した[12]。このようにして得られる、CEPを安定化した数サイクルの赤外光パルスは、VUVからX線の孤立アト秒パルスを生成するHHGの駆動源となりうる。Figure 1に、われわれが提案するFEL-HHGの模式図を示す。

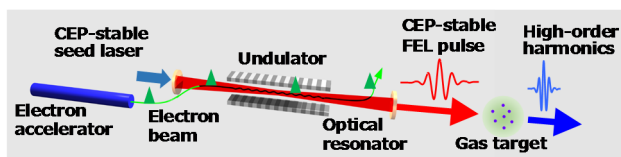


Figure 1: Concept of the attosecond X-ray source (FEL-HHG)

3. 研究プログラムの概要と進捗状況

3.1 Q-LEAPプログラム

経済・社会的な重要課題に対し、量子科学技術(光・量子技術)を駆使して、非連続的な解決(Quantum leap)を目指すための研究開発プログラムとして、文部科学省がスタートしたのが、光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)である。Q-LEAPでは、3つの技術領域、①量子情報処理(主に量子シミュレータ・量子コンピュータ)、②量子計測・センシング、③次世代レーザーについて Flagship プロジェクトと基礎基盤研究を実施している。

われわれのテーマ=「自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究」は、次世代レーザー技術領域の基礎基盤研究として採択された。研究期間は10年間(2018-2027年度)の予定である。

FEL-HHGを本格的に利用するには、CWで動作可能な超伝導リアックによる共振器型の赤外FELが望ましいが、本研究では、限られた予算で基礎基盤技術の確立を行うことを目的とし、既存の常伝導リアックFEL施設である、京都大学のKU-FEL、日本大学のLEBRA-FELを利用する計画とした。

プログラムの前半6年では、QSTを含めた3つの拠点で並行して基礎基盤技術の研究を進め、後半の4年間でこれら技術を統合して、KU-FEL、LEBRAのいずれかで総合試験を行う予定である。

3.2 京都大学(KU-FEL)における研究

京都大学エネルギー理工学研究所に設置されている赤外自由電子レーザー(KU-FEL)では、波長3.5-23 μm のFEL発振が可能であり、ユーザー実験が行われている[13]。

最近、KU-FELでは、電子バンチ繰り返しの周波数変調によるdynamic cavity desynchronization(DCD)を用いたFELの高効率発振に成功した[14]。共振器FELでは、ゲイン、共振器損失、バンチ長が一定の条件を満たすとき、完全同期長発振により高効率かつ数サイクルのFELパルス生成が起こることが知られている。このような発振は立ち上がりが緩やかなため、超伝導リアックの長いマクロパルスが必要と考えられていたが、DCDを用いると常伝導リアックでも可能となる。

Q-LEAPプログラムでは、DCDによる完全同期長発振にて、電子ビーム、光共振器のパラメータを変えながら実験を行い、FELの変換効率、パルス長を測定し、FEL-HHGに必要な中赤外パルスの生成条件を明らかにすることを目指す。具体的には、既設の4.5セルRF電子銃で可能な二つの運転モード、熱陰極動作(バンチ電荷=40 pC)、光陰極動作(120 pC)に加えて、新規に導入予定の1.6セルRF電子銃(1 nC)と、電荷量を大きく変化させる。共振器損失については、従来のホールカップリング金属ミラー(約3%の共振器損失)に加えて誘電体多層膜ミラー(約1%の共振器損失)を導入し、光共振器の低損失化を試みる。過去の実験における共振器FELの変換効率の最大値はJAERI-FELの9%[15]であるが、KU-FELの実験ではこれを超えることも期待される。

Q-LEAP採択後の進捗は以下の通りである。

DCDによる高効率発振におけるFELパルスの波形測定をプリング分解型自己相関測定にて行い、数サイクル発振を示すデータが得られた。FEL発振シミュレーションとの比較を含めた詳細なデータ解析を進めている。FELシミュレーションでは、バンチ電荷量の増大、光共振器損失の低減によって、変換効率のさらなる増大とパルス幅のさらなる狭小化が得られることが予想されている。これを実験で確認するための準備として、4.5セル高周波電子銃の光陰極動作レーザーの増強を行い、熱陰極と同様のマクロパルス(8 μs)の運転を可能とし、また、10 μm 用の誘電体多層膜ミラーを調達した。これらを用

いた実験を今年度中に実施する予定である[16]。Figure 2 に、光陰極駆動用レーザーの時間波形を示した。増強前は、マクロパルスを $8 \mu\text{s}$ としたときに、レーザーパルスエネルギーの低下がみられたが、増強後は $8 \mu\text{s}$ にわたって電子バンチ生成に必要なレーザーパルスエネルギー ($30 \mu\text{J}$) が得られているのがわかる。

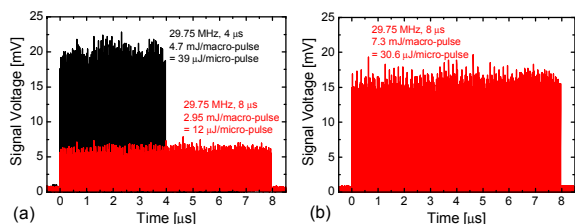


Figure 2: Laser pulse trains for driving the RF-gun at KU-FEL (a) before the laser reinforcement and (b) after the reinforcement.

3.3 日本大学(LEBRA-FEL)における研究

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設(LEBRA)は、常伝導リアックとしては比較的長い $20 \mu\text{s}$ のマクロパルス幅を持っており、波長 $0.3\text{-}5 \mu\text{m}$ の FEL をユーザーに供給している[17]。Q-LEAP プログラムでは、この長いマクロパルスを活かして、FEL パルスを外部共振器に蓄積し、蓄積後にこれを取り出す、パルススタック&キャビティダンプの研究を行う。

モードロックレーザーで生成したパルス列を外部共振器に蓄積し強度を高める手法は、高強度レーザーが必要な HHG に利用できる。Max Planck 研究所にて、波長 1040 nm のレーザーを外部共振器に蓄積し、 100 eV の高次高調波を発生に成功したとの報告がある[18]。

FEL の出力パルスを外部共振器に蓄積した例としては、Stanford 大学の超伝導リアック FEL にて、波長 $5 \mu\text{m}$ の FEL パルスを 70 倍まで蓄積した実験がある[19]。外部共振器への FEL パルスの蓄積、さらに、これを利用した HHG を行うにあたっては、さまざまな課題があるだろう。これらを実験的に確認した上で HHG の障害になる場合は解決策を提示しておく必要がある。

外部共振器にてパルススタックを行う場合、レーザーパルス列の繰り返しと外部共振器の繰り返し(周長)を精密に一致する必要があるが、FEL の場合には電子バンチ繰り返し、FEL 共振器の周長、外部共振器の周長の三者の同期が必要となる。要求される同期精度は、外部共振器のフィネス(Q 値に比例)によって変わる。また、CW 動作が可能な超伝導リアック FEL では、外部共振器の損失と入射がバランスした「定常モード」として運転できるが、パルス列の長さ制限のある常伝導リアック FEL では、外部共振器を「過渡モード」で運転する方が有利な場合もある[20]。LEBRA-FEL では、FEL-HHG に必要な光パルスのパラメータと、実際に得られる FEL の特性(パルスエネルギー、パルス長)を考慮した上で、外部共振器の運転パラメータを決定する予定である。

外部共振器で HHG を行う場合、Max Planck の実験のように、外部共振器の内部にガスターゲットを置いて HHG を行う方法に加えて、外部共振器に蓄積したレー

ザーをダンプして、共振器の外に取り出した後に HHG を行うことも可能である。外部共振器に蓄積した光パルスを一度に取り出すキャビティダンプは、Si や Ge などの半導体を光スイッチとして用いることで実現できる。共振器内に半導体板をブリュースター角で設置し、共振器に光が蓄積したタイミングで半導体に外部からのレーザーを照射し、半導体板を透過から反射に瞬時に切り替えるというものである。透過から反射への切り替えは、外部レーザーにより半導体中に電子・正孔ペアを瞬間的に生成することで行う。FEL における光スイッチの利用例としては、UCSB の遠赤外 FEL における FEL 共振器のキャビティダンプ[21]、産研 FEL におけるマクロパルスから単一 FEL パルスの切り出し[22]などの実績がある。

Q-LEAP 採択後、われわれは、外部共振器の構築と調整を開始した。LEBRA-FEL の FEL 共振器長は 6.718 m であり、共振器内を光が往復する周波数は 22.3125 MHz である。これは、加速器周波数 (2856 MHz) の 128 分の 1 に等しい値であり、加速器と FEL 共振器の繰り返しが同期するようになっている。本研究で製作する外部共振器の周波数は FEL 共振器周波数の 2 倍の 44.625 MHz (共振器長 3.359 m) に選び、4 枚のミラーを備えた蝶ネクタイ型の構成とすることで、光学台 ($1500 \text{ mm} \times 2400 \text{ mm}$) に配置可能にした[23]。

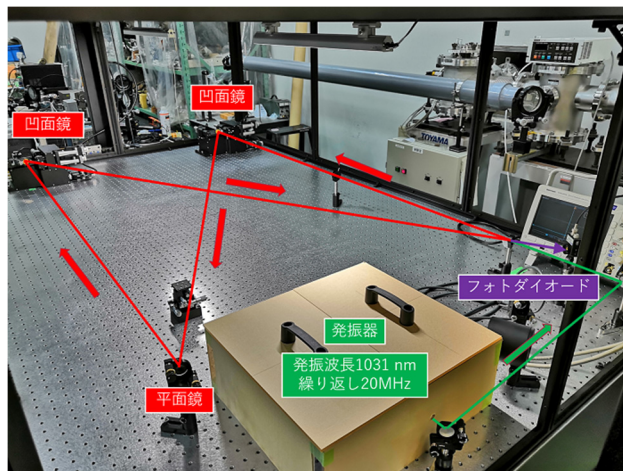


Figure 3: Setup of a 4-mirror optical resonator for stacking FEL pulses at LEBRA-FEL.

外部共振器を動作させるには、光軸を合わせただけで共振器長を FEL パルス列の間隔(FEL 共振器長)に精密に合わせる必要があるが、FEL パルス列の長さを決める電子ビームのマクロパルスが $20 \mu\text{s}$ と短いことから、FEL パルス列を共振器調整に用いるには困難が予想される。そこで、共振器調整用のモードロックレーザーを別途用意することとした。調整用レーザーは、QST グループが製作し、これを光学台上に設置した。光学台における配置を Fig. 3 に示す。これまでの調整で、共振器内を光パルスが複数周回していることが確認できている。さらに、入射レーザーと共振器の空間モードのマッチングを改善するなどして、設計通りの蓄積に向けた作業を継続している。

FEL と外部共振器の最適パラメータを探索するために、

FEL 発振と外部蓄積を統合的にシミュレーションできる環境を整備している[24]。3次元 FEL シミュレーションコードである GENESIS1.3 に光伝搬計算を組み合わせ、FEL 共振器のシミュレーションを行い、その出力データを使って外部共振器の動作を解析するものである。

LEBRA では、2001年に FEL 発振に成功して以来、長年の運転を積み重ねた結果、FEL アンジュレータに放射線の照射損傷による不均一な磁場の劣化が生じている。現状のアンジュレータでも FEL 発振は可能であるが、ゲインの低下が起きていることは明らかである。Q-LEAP プログラムでは、高ゲインの条件下で DCD を使った FEL 発振を行い、数サイクルの赤外光を発生することが必須であることから、アンジュレータ磁石の更新を行うこととした。2019年度に更新作業を予定している。

3.4 QST における研究

HHG にて、単一のアト秒パルス(孤立アト秒パルス)を発生するにはいくつかの方法があるが、最も直接的な方法は、パルス幅数サイクル程度で CEP(キャリアエンベロープ位相)が安定な高強度レーザーパルスを用いる方法である[25]。

CEP を安定化する手法は、固体レーザーではすでに確立されており、HHG のみならず光周波数コムなど広く応用されている。一方、FEL では、ショットノイズから発振がスタートするために CEP を安定化することは不可能と考えられていたが、われわれは、CEP 安定化した微弱なレーザーを外部から FEL 共振器に連続注入することで、完全同期長発振における数サイクル FEL パルスの CEP を安定化できることを見出した[12]。これを実現するためには、FEL と同一の波長、繰り返しを持ち、CEP 安定化したレーザーが必要である。

中赤外の波長(2-10 μm)にて、上記の条件を満たすレーザーパルスを得る装置構成として、われわれは、ファイバーレーザー発振器、増幅器、波長変換装置の3段階からなるレーザーシステムを採用することとし、その第一段階として、ファイバーレーザーを用いたモードロックレーザー発振器(2台)の製作を行った[26]。本発振器は、LEBRA-FEL における外部共振器の調整用として利用し、また、FEL のシードレーザーの初段部にも採用する予定である。

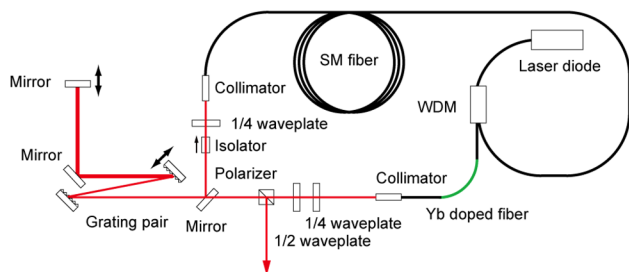


Figure 4: Configuration of a mode-locked fiber laser oscillator developed at QST.

Figure 4 に製作したモードロックレーザーの構成を示す。レーザーは 30 cm \times 30 cm のブレッドボードに配置可能な大きさである。加速器周波数との同期は、ミラー位置を調整し光路長を可変することで行う。

2台のレーザー発振器のうち、1号機は LEBRA-FEL に移設し、外部共振器の調整に供している。2号機は QST にて詳細な特性試験を続けている。回折格子(グレーティングペア)、波長板のセッティングが発振特性に与える影響を調べたところ、回折格子の間隔、アイソレータ後の 1/4 波長板の角度がモードロック動作、発振スペクトル幅に影響することがわかった。アイソレータ後の 1/4 波長板の角度を変えることで、パルス幅(発振スペクトル幅からフーリエ限界を仮定して算出)が 130~290 fs まで変化する様子が観測された。2019年度は、50 W の半導体レーザーを励起源とした増幅部の製作を進めている。

Q-LEAP プログラム前半の基礎基盤技術研究では、シードレーザーに加えて、HHG 発生用のガスセルの開発を QST にて行う計画である。また、これまでに開発した FEL シミュレーションコードを使って、KU-FEL、LEBRA-FEL の実験計画の策定、実験データの解析をサポートする体制をとっている。

また、コンパクト ERL を中心とする KEK の超伝導加速器研究グループとの連携も図っており、Q-LEAP における基礎基盤技術研究が終了した後の、本格的な FEL-HHG 施設の実現に向けた超伝導リニアック FEL の検討も並行して進める計画である。

4. まとめ

高次高調波発生(HHG)により発生するアト秒パルスを使えば、物質中の電子波束をリアルタイムに観測、制御できるようになる。量子力学的な物性の本質の理解、新たな量子機能性の発現を目指した研究が、いま、まさに始まりつつある。波長可変、高繰り返しといった FEL の特長は固体レーザーを補完するものであり、光・量子の最先端研究の一端を電子加速器ベースの光源である FEL が担うことも十分に期待できる。

われわれは、完全同期長発振や DCD による数サイクルパルスの生成、シードレーザーを用いた CEP 安定化、外部共振器によるパルスエネルギー増強など、共振器 FEL の潜在的な可能性をさらに引き出し、未踏光源である 1 keV 以上のアト秒パルス生成を目指した研究をスタートした。

波長 4 μm 以上の数サイクルパルスは、HHG によるアト秒パルス生成のみならず、興味深い利用[27, 28]が広がっているが、これまで光源がなかったために、手つかずの領域である。これらの幅広い利用も視野に入れながら、FEL-HHG の基礎基盤技術の確立を目指したい。

謝辞

東京大学の板谷治郎氏、筑波大学の Xiao-Min Tong 氏、QST の石井順久氏から高次高調波発生について、QST の永島圭介からファイバーレーザー発振器について、それぞれ、有益な助言をいただいた。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)によるものである。

参考文献

- [1] Ferenc Krausz and Misha Ivanov, "Attosecond physics", Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009).
- [2] 大森賢治編, "アト秒科学", 化学同人 (2015).

