**PASJ2022 TUP056** 

# 自由電子レーザーシーディング用差周波発生中赤外光源システム開発の現状 DEVELOPMENT OF THE MID-INFRARED LIGHT SOURCE SYSTEM BASED ON DIFFERENCE FREQUENCY GENERATION FOR SEEDING OF A FREE ELECTRON LASER

川瀬啓悟<sup>#</sup>, 羽島良一, 森道昭, 永井良治 Keigo Kawase <sup>#</sup>, Ryoichi Hajima, Michiaki Mori, Ryoji Nagai QST

#### Abstract

Under MEXT Quantum Leap Flagship Program, we are conducting the basic study for the high-harmonic generation driven by mid-infrared (MIR) free electron laser (FEL) collaborating with QST, Kyoto university, Nihon university and KEK. In this work, we are developing the carrier-envelope phase (CEP) stabilized MIR pulse source to seed the FEL. By taking the difference frequency generation (DFG) between the Raman-shifted soliton pulse in a highly nonlinear photonic crystal fiber (HN-PCF) and the replica pulse driving the HN-PCF, we can generate the CEP stabilized MIR pulse. We report the present status and the recent results on the development of the CEP stabilized DFG-MIR source system.

### 1. はじめに

近年、短パルス固体レーザーを利用した中赤外領域 の光で駆動する高次高調波発生(HHG)で、1keV を超え るアト秒領域の X 線パルスの発生が実証されている[1]。 この報告では、光パラメトリック増幅で得られる波長 3.9 μm、パルスエネルギー10 mJ、繰り返し数 20 Hz のアイド ラー光を用いて、最大 1.6 keV まで至る HHG X 線の発 生を確認している。またこの報告では、HHG において位 相整合可能なフォトンのエネルギーは駆動する光の波 長に対しておよそ 1.7 乗で増加することが示されている。 その結果、より長い波長の光で駆動することにより、より 高いフォトンエネルギーのX線パルスの発生が期待でき る。一方、HHGの効率は波長の6乗で減少することが知 られており[2]、より高エネルギーフォトンの発生と利用に は、より高いパルスエネルギーで高い繰り返し数を持つ 中赤外光源が必要となる。そこで、この要求を満たす光 源として中赤外領域の自由電子レーザー(FEL)が考えら れる。一般に FEL は発振波長が連続的に可変であり、 増幅媒質も真空中を移動する電子ビームであるため、波 長選択の自由度、高出力化に対する物質耐性による制 限など固体レーザーなどに比べて利点が多い。一方、 FEL は通常、ショットノイズと呼ばれるアンジュレータ中を 伝播する電子ビームが確率的に発生する放射光を種 (シード光)として共振器内で光増幅するため、パルスエ ンベロープに対するキャリア位相(CEP)は一定ではなく、 安定な HHG が困難である。しかしながら FEL に外部か ら CEP が安定なシード光を導入することで CEP 安定な FEL が出力できることが数値シミュレーションで示唆され [3]、それを実証し、FEL による高繰り返しアト秒光源の基 礎基盤技術となる研究開発を O-LEAP 基礎基盤研究の 下で実施している。特に本研究では出力 10 mW の CEP 安定中赤外光源の開発を実施している[4]。

中赤外 FEL のシーディングに必要な CEP 安定中赤 外光源として、単一発振器から成る差周波発生(DFG)光 源に着目した[5-7]。この場合、同一のパルスを分離して 一方の波長をシフトさせて差周波を発生させるので、 CEP オフセットは相殺される。そのため CEP は原理的に 安定となる。波長シフトには高非線形性フォトニック結晶 ファイバー(HN-PCF)を用いる[8]。 先行研究では本研究 では、モード同期 Yb ファイバーレーザーを構築して 1030 nm 中心のフェムト秒パルスを発生させ、HN-PCFで 1400 nm 付近まで波長をシフトさせて、周期的分極反転 酸化マグネシウム当量的タンタル酸リチウム(PPMgSLT) で DFG させる中赤外光源システムを構築している。これ までに量子科学技術研究開発機構東海量子ビーム応 用研究センターで光源開発を進めてきたが、2022 年度 中の本センター廃止予定に伴い、2022年5月に開発環 境を関西光科学研究所へ移設し、研究開発を継続して いる。本稿では移設後の再構築とその後の進展につい て報告する。

## 2. 差周波発生中赤外光源

移設後に再構築したDFG中赤外光源システムの全体 写真を Fig. 1 に示す。本システムは Yb ファイバーレー ザー発振器とファイバー増幅器、透過型グレーティング ペアを用いたコンプレッサー、HN-PCF 波長シフト光学 系、DFG 光学系から構成されている。

# 2.1 モード同期 Yb ファイバーレーザーシステム

現在構築している DFG 中赤外光源システムは 8 MHz のモード同期 Ybファイバー発振器で発生するフェムト砂パルス列を 1.5 m のダブルクラッド Yb ファイバー (Yb1200-10/125DC, LIEKKI)で増幅することで 3.4 W の出力を得ている。この増幅器は波長 976 nm, 定格出力 9 W のレーザーダイオード(K976A02RN-9.000WN0N, BWT)で励起されている。 増幅器ファイバーは偏光方向保持型ではないため、出力は偏光が回転している。 そのため 1/4 波長板と 1/2 波長板を通した後に偏光子を通る

<sup>#</sup> kawase.keigo@qst.go.jp

光の強度が最大となるように2つの波長板を調整し、水平偏光としてからアイソレータへ導入している。現在のところ、アイソレータ透過パワーは2.4Wである。アイソレータ透過ビームはコンプレッサーを通してから偏光ビームスプリッターで分離し、PCFへの入力ビームとDFGの励起ビームとしている。

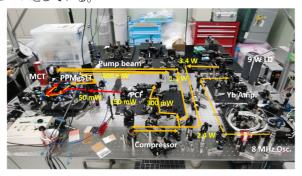


Figure 1: Experimental setup.

#### 2.2 HN-PCF 波長シフト光学系

波長シフトさせるために利用する HN-PCF は特性の異なる 2 種類を用意した。 1 つはゼロ分散波長が 800 nm 付近にある HN-PCF800,もう 1 つはゼロ分散波長が 950 nm 付近にある HN-PCF1040 で、ともに FORC 社製である。前者は非線形性と 1040 nm 付近の分散パラメータが大きいが有効コア径が小さく、後者はその逆である。 計算によると、200-300 fs の波長 1040 nm の入力パルスに対する波長シフトは、適当なファイバー長を選択することで両者とも目的の 1400 nm 付近に到達できる見積もりを得ている[9,10]。実験では HN-PCF800 は長さ 12-15 cm、 HN-PCF1040 は 2 m で試験した。

#### 2.3 DFG 光学系

波長シフトした PCF 出力をシグナル光、コンプレッ サー後に分離した 1030 nm の励起ビームをポンプ光とし て PPMgSLT(Fan-out PPMgSLT, Oxcide)で DFG を得る ために2つのビームを合流する光学系を構築した。シグ ナル光とポンプ光のタイミング調整を取るために、ポンプ 光輸送光学系に金コートレトロリフレクターを設置した自 動ステージ(SGSP26-100, SIGMA KOKI)による遅延光 学系を導入している。シグナル光とポンプ光は光学系途 中のダイクロイックミラー(DMSP1180, Thorlabs:シグナル 光反射、ポンプ光透過)で合流され、平凸レンズで PPMgSLT へ集光される。利用した PPMgSLT は周期が 26.6 – 29.4 μm のファンアウト形状で、1030 nm の励起に 対して DFG の位相整合範囲 3.39 – 4.45 μm に対応す る。これに対応するシグナル光の波長範囲は 1340 -1480 nm である[11]。 周期長は幅 5 mm で上記の範囲を 線形に変化する。PPMgSLT はマイクロメータ付きの移動 ステージ上に設置されており、周期長はステージの移動 によりなされる。DFGの計測にはPPMgSLTの出力に2.4 μm あるいは 3.6 μm の長波長透過フィルタ(ともに Edmund Optics)を挿入して実施している。DFG 光の検出 には液体窒素冷却の HgCdTe 検出器(J15D22-M323-S01M-60-CdTe, EG&G Optoelectronics, 以下 MCT と略 記)をバイアス印加プリアンプ(DP-8000 PREAMP, EG&G Optoelectronics)に通して利用している。

### 3. 結果

#### 3.1 PCF 出力の計算結果と実験結果の比較

昨年の年会に引き続き[12]、HN-PCF による Yb レーザーパルスの波長シフトについて、HN-PCF1040 の光学パラメータのカタログ値を参照して計算コードを使用して数値計算した[10]。波長シフトは入力パワーに依存するため、特に測定スペクトルを再現するように計算の入力パラメータを変化させた。

DFG として 4 μm の波長を得るために、以下の実験では主にシフトした波長で 1375 nm にピークを持つスペクトルとなるように入力パラメータの調整をした。計算と測定スペクトルの比較とその時の計算による PCF 出力光の時間構造を Fig. 2 に示す。スペクトルを比較することで、Fig. 2(a)のスペクトル測定時の PCF への入力パワーは 3.3 kW 程度であったと見積もることができる。

### 3.2 和周波発生信号の確認

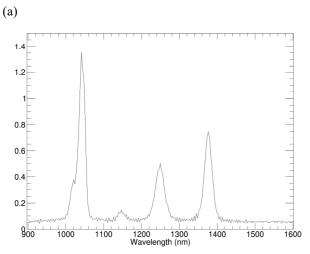
PPMgSLT でのシグナル光とポンプ光の時間的オーバーラップの調整には、まずフォトダイオードによる粗調を実施した。PPMgSLT の下流にフォトダイオード(DET10N2, Thorlabs)を配置し、発振器をモニターしているフォトダイオード(DET10A2, Thorlabs)でオシロスコープをトリガーさせ、シグナル光のみ、ポンプ光のみのそれぞれの信号のピークタイミングの中心値が一致するポンプ光ディレイステージを見積もり、その位置付近で DFG の信号探索を実施することとした。

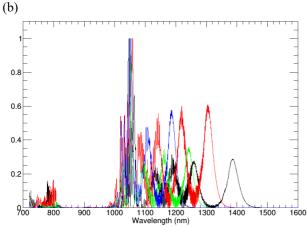
次に PPMgSLT の下流に可視光領域のファイバー分光器受光部を設置し、ディレイステージを動かして和周波発生(SFG)信号を探索した。DFG と比べて SFG は可視領域にあり、視認できる程度の変化が見られた。また小型のファイバー分光器でも十分にスペクトル計測できる発生量であった。上記で設定したタイミング付近だけでなく離れたいくつかの位置でも SFG 発生が確認されたが、ここでは上記で設定したディレイ位置付近の SFG が確認されたタイミングで、PPMgSLT の周期を変えて、SFG の波長変化を確認した。この波長計測から計算により評価できる PPMgSLT の周期長が移動ステージの位置と線形であるという結果を得た。この測定により、ファンアウト型 PPMgSLT の周期位置の絶対値較正を実施した。

# 3.3 DFG 信号の確認

検出器をファイバー分光器から MCT に交換し、発散するPPMgSLT 出力を軸外し放物面鏡(OAP)で集光して検出する配置とした。MCT 受光部の前に 2.4 µm の長波長透過フィルターを設置し、DFG 以外の信号を除去した。フィルターの光学密度が 3 程度であるため、1 W 近いポンプ光に対して、DFG が 1 mW 以下であればその信号はポンプ光の透過パワーに埋もれてしまう。そのため、シグナル光側に機械的チョッパーを導入し、ポンプ透過光によるバックグラウンドを除去した MCT でシグナル光有無の差分計測を実施した(Fig. 3)。

#### PASJ2022 TUP056





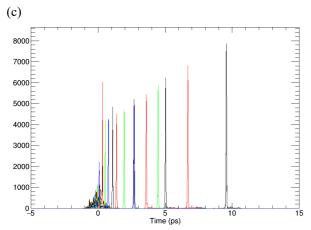


Figure 2: Comparison of the wavelength shifted output spectra from the PCF between (a) measurement and (b) calculations and (c) calculated temporal structures. From the comparison of the spectra, the input power if the measured spectrum can be estimated to be about 3.3 kW. In this calculation, each color shows the different input power. The black line shows the input power of 3.3 kW, red is 2.5 kW, green is 1.8 kW and blue is 1.3 kW.

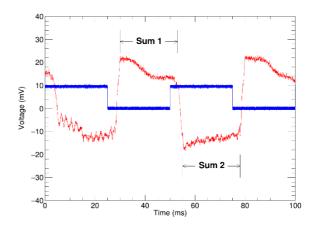


Figure 3: Signal waveform from MCP (red) and synchronized signal from the chopper (blue). In the MCP signal, by summing up the signal values in the region Sum 1 and Sum 2 and taking the difference of them, the DFG signals are made and recorded.

当初、前述のフォトダイオード信号の比較により設定したディレイタイミング近傍では顕著な DFG が検出されず、より広い範囲のディレイタイミングで信号探索することで、強い DFG 信号を得た。シグナル光、ポンプ光双方のビーム調整を進めることで、信号強度は増大し、SFG と同様に広いタイミング範囲で DFG 信号が確認された(Fig. 4)。この事に関する定量的な解析は今後の課題である。

現在 DFG 強度をさらに増大させ、10 mW を超える出力を得るために、シグナルおよびポンプ光輸送の最適化や調整を実施しているとともに、回折格子分光器を用いたスペクトル計測を進める予定である。

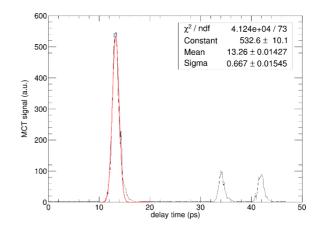


Figure 4: Variation of the DFG signal changing the pump timing (black line). The largest peak might correspond to the cross correlation between the Raman shifted pulse and the pump pulse and the correlation width is evaluated to be 0.667 ps in root-mean-square with gaussian fitting (red line). The origin of the satellite signals is not clear at now.

### 4. まとめ

量子科学技術研究開発機構東海量子ビーム応用研究センターの閉鎖計画に伴い、研究環境を関西光科学研究所へ移設し、差周波発生中赤外レーザーシステムの開発環境を再整備した。Ybファイバーレーザーシステムと1040 nm 付近にゼロ分散を持つ長さ2 mの PCFとを用いることで1400 nm 付近にラマンシフトした光を発生させ、PPMgSLT による差周波光の発生を確認した。出力エネルギーはまだ100 μW 以下であり、その出力向上が今後の課題である。

### 謝辞

本研究は、平成30年度光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)次世代レーザー基礎基盤研究「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(課題番号:JPMXS0118070271)」の下で実施しています。本研究を進めるにあたって、東京大学の金磊さん、岩崎純史さんには有用なご助言を頂いております。

# 参考文献

- [1] T. Popmintchev *et al.*, Science 336 (2012) 1287; https://doi.org/10.1126/science.1218497
- [2] E.L. Falcão-Filho et al., Opt. Express 17 (2009), 11217; https://doi.org/10.1364/OE.17.011217
- [3] R. Hajima and R. Nagai, Phys. Rev. Lett. 119 (2017), 204802;
  - https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.204802
- [4] R. Hajima *et al.*, "Development of a high-repetition-rate attosecond X-ray source based on a free-electron laser", Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Kyoto, Japan, Jul. 31 Aug. 3, 2019, pp. 742 746;
  - https://www.pasj.jp/web\_publish/pasj2019/proceeding s/PDF/THPI/THPI011.pdf
- [5] T.W. Neely et al., Opt. Lett. 36 (2011), 4020; https://doi.org/10.1364/OL.36.004020
- [6] G. Soboń et al., Opt. Lett. 42 (2017), 1748; https://doi.org/10.1364/OL.42.001748
- [7] L. Jin *et al.*, IEEE J. slect. Topics in Quantum Electron. 24 (2018), 0900907;
  - https://doi.org/10.1109/JSTQE.2017.2759258
- [8] J.M. Dudley et al., Rev. Mod. Phys. 78 (2006), 1135; https://doi.org/10.1103/RevModPhys.78.1135
- [9] M.E. Masip et al., Opt. Lett. 34 (2009), 842; https://doi.org/10.1364/OL.34.000842
- [10] Free Optics Project;
  - http://freeopticsproject.org/DDL2.html
- [11] J.-P. Meyn and M.M. Fejer, Opt. Lett. 22 (1997), 1214; https://doi.org/10.1364/OL.22.001214
- [12] K. Kawase et al., "Wavelength shifting with high nonlinearity photonics crystal fiber for difference frequency generation", Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, QST-Takasaki, Online, Japan, Aug. 9 - 12, 2021, pp. 756 – 759;
  - https://www.pasj.jp/web\_publish/pasj2021/proceeding s/PDF/WEP0/WEP051.pdf