

## 中赤外自由電子レーザーパルス高強度化のための外部蓄積実験に向けて TOWARD MID-IR FEL PULSE STACKING FOR PEAK POWER ENHANCEMENT

住友洋介<sup>\*A)</sup>, 境武志<sup>A)</sup>, 早川恭史<sup>A)</sup>, 川瀬啓悟<sup>B)</sup>, 羽島良一<sup>B)</sup>

Yoske Sumitomo<sup>\*A)</sup>, Takeshi Sakai<sup>A)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>A)</sup>, Keigo Kawase<sup>B)</sup>, Ryoichi Hajima<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup>College of Science and Technology, Nihon University, Chiba, Japan

<sup>B)</sup>National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST), Ibaraki, Japan

### Abstract

We advance the development of underlying technologies for attoseconds next-generation light sources using the femtoseconds mid-IR light pulses from the oscillator free electron laser at Nihon University, through the high-harmonic generations. As a part of our project, currently we attempt an experiment of pulse energy enhancement by an external cavity, enough to process the non-linear phenomena of the high-harmonic generations. In this paper, we report on the result of test enhancement by an IR mode-locked fiber laser, and the current status of the pulse accumulation of free electron laser.

### 1. はじめに

光パルスの時間幅はカメラにおけるシャッター速度と同じく、対応する物理現象を捉える上では重要なパラメーターとなる。この時間幅の圧縮の進展には目を見張るものがあり、近年では赤外領域を中心に、分子スケールでの物理現象を捉えることが可能となるフェムト秒パルス光源が比較的容易に使用可能となっている。また、そのことによりフェムト秒領域の光源を利用した目覚ましい物質特性を中心とした成果が報告されている。現状のフェムト秒領域での光源の応用性の高さを踏まえると、次の世代の光源として、原子スケールでの物理現象の直接観測や励起が可能となるアト秒パルス光源の開発は必要不可欠であり、世界中で最先端科学での応用が見込まれるような、高繰り返し、高ピーク強度（高パルスエネルギー）のアト秒パルス光源の開発競争が行われている真っ只中である。日本でもその例にもれず、レーザー業界を中心に開発プロジェクトが進行中であるが、本研究は100 MeV以下となる小・中型加速器の利点を活かしたアト秒パルス光源の基礎技術開発を行うものである。

アト秒の時間スケールに至るためには、その波長の軟 X 線に至る短波長化と、数サイクルに至るパルス時間幅の短縮が必要不可欠となる。既存のレーザー技術では、高ピーク強度、短いパルス時間幅の技術が成熟しており、これを応用するのは理にかなっている。希ガスなどをターゲットとした非線形現象である高次高調波生成は、赤外領域の光の入射に対して100次を超える高調波に至るまでプラトリーな強度領域が存在する現象であり、近年大いに着目を集めている。面白いことに、入射波長が長くなるにつれプラトリー領域が持続する次数が増え、より短い波長に到達可能なことが実験上示唆されており [1]、既存の赤外・中赤外領域のレーザー技術を活かして

アト秒パルス光源開発を行う上では鍵となる現象である。

日本大学における加速器には共振器型自由電子レーザー装置が組み込まれており、波長1-6  $\mu\text{m}$ の中赤外フェムト秒パルスの生成が可能である。アンジュレーターで生成された光が凹面鏡で構成される共振器内を往復し、共振器長の間隔でやってくる電子パルスと逐次的な相互作用を起こすことで指数関数的な非線形増幅現象を誘発する。高強度となった光パルスが電子パルス側にマイクロバンチ化を引き起こすことで、電子ビームからのエネルギー変換を飛躍的に向上させることのできるものである。共振器から外部へは、凹面鏡にある結合穴を通じて1%程度の取り出しを行っているのであるが、このことから、内部の光パルスの往復間隔での繰り返しとなり、日本大学では22.3 MHzとなる。一般的に、半導体を主体としたレーザー開発においてはパルスの高強度と高繰り返しはトレードオフの関係にあるのに対し、高周波加速を用いる加速器ではGHzに至る電子パルスの生成を容易に行うことができ、付随する高繰り返し光パルスの生成は得意とするところであると言える。

また、自由電子レーザーでは電子ビームがアンジュレーター内で蛇行運動を行うことから、生成される光パルスに対して遅延が生じることとなる。共振器型自由電子レーザーの面白い特性として、共振器長を数波長分変化させることで光パルスと電子パルスの時間的な重なり方を変化させることができ、これに伴う相互作用の変化により、発振の立ち上がりや飽和強度、パルス時間幅を変えることができる。特に、電子パルスの繰り返しに対して共振器長を完全に一致させた完全同期長発振状態においては、飽和強度が高くなり、また、パルス時間幅が波長数サイクル分と短くなるということが実験的にも確認されている [2,3]。

本研究においては、上記加速器による共振器型自由電子レーザー技術により生成可能な、中赤外、高ピーク強度、短時間パルスの特徴を活かした上で、

\* sumitomo.yoske@nihon-u.ac.jp

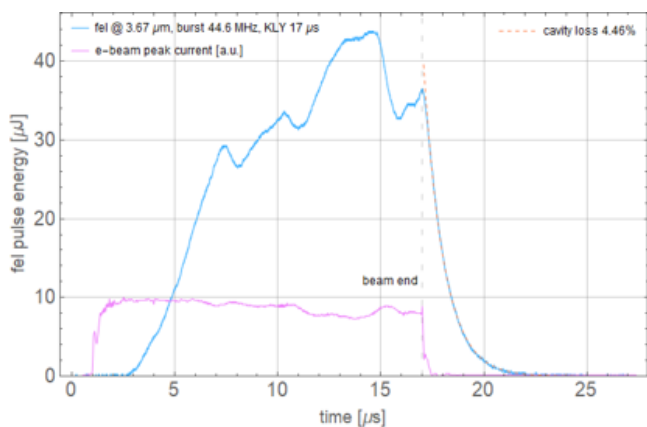


Figure 1: A measured FEL pulse energy accumulation along the time evolution of electron pulse train at a high-charge mode beam operation.

高次高調波生成の光源とすることで、軟 X 線に至る高繰り返しのアト秒パルス光源の基礎技術開発を行うことを目的としている（参考 [4]）。高次高調波生成は非線形現象であり、その十分な発生にはパルス当たり（サブ）mJ 程度のエネルギーが必要となることから、日本大学においては共振器型自由電子レーザーから生成される中赤外光パルスを外部共振器へと蓄積することで、パルスエネルギーの効率的な増幅に関する研究を中心に行っている [5,6]。なお、自由電子レーザーパルスの外部蓄積は世界的には数例の報告があるのみで [7,8]、国内では初の試みとなる。本報告では、最近行われた自由電子レーザーの性能向上のための改善状況や外部共振器の構成決定を目的として試験蓄積として行っていたモードロックファイバーレーザーにおける蓄積結果、最近の自由電子レーザーパルス蓄積に向けた構築状況について報告を行う。

## 2. 共振器型自由電子レーザー改善状況

日本大学の共振器自由電子レーザーで使われているアンジュレーターは 20 年近く年月が経過しており、運転時の放射線によるダメージの蓄積として上流部から最大 30% にも至る磁力の劣化が確認され、また関連して、当初と比較すると桁で落ちる自由電子レーザーの発振強度しか得られない状況となっていた。そこで、ここ数年の間共振器型自由電子レーザーの性能向上を目的として、アンジュレーターの周期磁気回路の改善、並びに共振器を構成する凹面鏡の交換、また、自由電子レーザー光の輸送経路の拡張を行ってきた。輸送経路は当初設置された頃は 1 μm 程度以下の光輸送のみを目的としていたことから、エキスパンダーまでの輸送経路が狭く、中赤外光を輸送するには適していなかったことを改善したものである。

上記改善の結果、発振強度の顕著な改善を見ることができるようになっている。特に、高速グリッドパルサーを使用した高電荷運転モードでは、発振時のパルスエネルギーが桁違いに高く、本研究目的で

ある高次高調波生成にはうってつけの運転モードである。Figure 1 では、44.6 MHz での高電荷運転モード時における発振波長 3.67 μm のパルスエネルギーとその時間発展の様子を示している。ここで、パルスエネルギーはマクロパルスで計測したエネルギーから算出したものであり、赤線は電子ビームの時間波形を任意強度で表示したものとなっている。また、44.6 MHz の高電荷運転モード時においては、22.3 MHz の共振器内で 2 つの独立パルスが同時に成長することにも注意されたい。改善前は周回共振器損失も高く、桁で低いエネルギー強度であったが、強いところでは 40 μJ を超える強度となる部分も存在するようになっている。高電荷運転モードを始めてからはこれほど高い強度の発振が確認されたことは今までになく、高次高調波生成に向けて加速器の性能を引き出すことに成功したと言えるであろう。なお、アンジュレーター後は 45 度偏向後ビームダンプに入射されるのであるが、発振強度の増加に伴い電子ビームからのエネルギー変換も大きくなっており、ビームの後半の一部がビームダンプに到達できなくなるほどの状況となっている。また、発振波形から読み取った周回共振器損失は 4.5% 程度となっており、結合穴で 1% 程度、2 枚の金蒸着凹面鏡の反射損失もそれぞれ 1% 程度あることを踏まえると、そう悪くない値となっており、凹面鏡の更新の効果が適切に現れている。

## 3. ファイバーレーザーを用いた試験蓄積

共振器型自由電子レーザーの性能改善と並行して、外部共振器の構成決定を目的として、モードロックファイバーレーザーを用いた蓄積試験も行っている。ファイバーレーザーは製作されたものを日本大学へと設置したものであるが、測定したところでは、繰り返し 20 MHz、波長 1.03 μm、自己相関コヒーレンス長で 140 fs 程度の性能となっている。ファイバーレーザーは、供給源となる LD 発振器の老朽化やモードロックを引き起こすためには仕様外での電流投入をする必要があったことから、温度や湿度に大きく影響される非常に不安定な状態となりしばらく蓄積実験に支障が生じていた。これに対応するため、より高出力に対応した LD 発振器に更新を行い、モードロックの安定化のみならず信号雑音比を桁違いに改善させることに成功している。

Figure 2 では、試験蓄積において構築した外部共振器、ならびに入射光学系を示している。外部共振器は、数百しかない自由電子レーザーパルスの蓄積を想定し、入射は 10%、また、空間の都合から共振器長は倍の 40 MHz、8 の字型の構成とした。入射光学系では、ファイバーレーザーの横方向大きさや発散をもとに、共振器内部の蓄積条件に一致するよう光学素子を設置したものとなっている。共振器内部の光プロファイルの測定には、平面鏡からの 1% 未満の漏洩光をカメラや 150 MHz 応答の増幅フォトディテクタを用いて行っている。

入射光学系ならびに外部共振器内部の横方向光プロファイルの一致が見られた状態で、凹面鏡の一つ

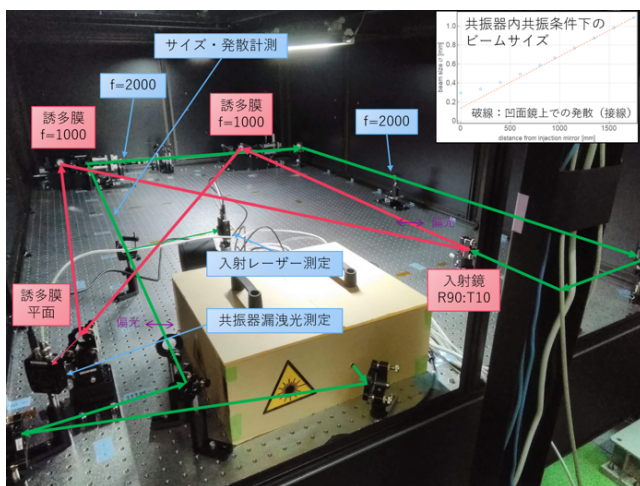


Figure 2: A configuration of external cavity for the fiber laser pulse accumulation.

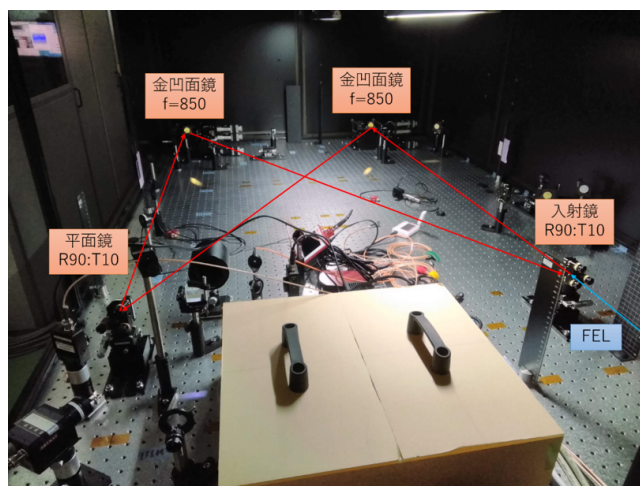


Figure 4: A configuration of external cavity for the FEL pulse accumulation.

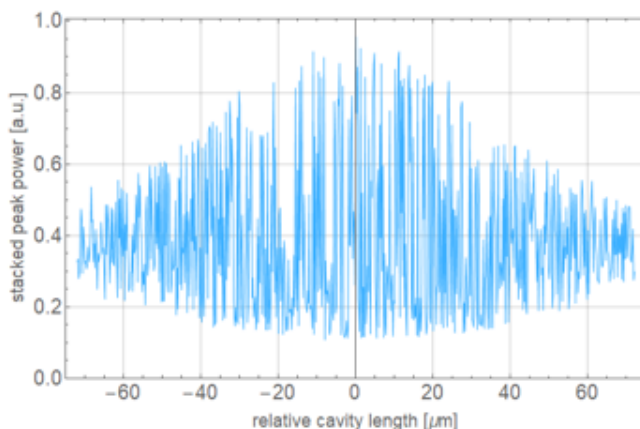


Figure 3: A longitudinal scan of external cavity for the fiber laser pulse accumulation. The leak from flat mirror is used for the power measurement of accumulated pulse inside the cavity.

を動かし共振器長を変化させた状態における漏洩光強度の変化の様子を Fig. 3 に示す。他パルス間相関であることや、パルスが周回していることから複数のパルス相関が起きているので自己相関のような形状とはならないのであるが、図からはパルス蓄積を十分に確認できているのがわかる。なお、波形の細部構造が周期的ではなく乱れが生じているのは、光源のファイバーレーザーに起因していると考えられる。実際、一番共鳴が起ころうな位置においてもその強度は数百ミリ秒で大きく増減するような状態となっており、この時間スケールで物理的に何かが動いているとは考えづらく、ファイバーを媒質とした発振における位相不安定性の影響は大きい。ただ、この試験蓄積の目的は自由電子レーザーのための外部共振器の構成決定を行うことであり、日本大学自由電子レーザーにおいてはパルスレインの持続時間としても 10 数  $\mu\text{s}$  であることから、数百ミリ秒の変動をこれ以上追い込むことは必要ではないこ

とに言及しておく。

#### 4. 自由電子レーザーパルスの蓄積状況

試験蓄積において得られた知見をもとに、中赤外自由電子レーザーパルス蓄積に向けた外部共振器の構築、調整を行っている。自由電子レーザーではその繰り返しに合わせて外部共振器は 44.6 MHz の構成とする必要があり、また、波長もファイバーレーザーとは大きく異なることから、凹面鏡の曲率半径を始めとした光学素子の変更も行った。Figure 4 において、現状の自由電子レーザー向けの外部共振器の構成を示す。凹面鏡は金蒸着のものとし、入射鏡や平面鏡では透過を考慮したフッ化カルシウムを基盤とした 3-5  $\mu\text{m}$  の波長域で対応可能な誘電体多層膜を採用した。ここで、まだ調整の段階であるので、平面鏡部も 10% 透過としていることに注意されたい。

上記構成をもとに、Fig. 1 で得られている 3.67  $\mu\text{m}$  の高電荷運転モードにおける自由電子レーザーパルスを用いた入射試験を行った。まだ光学素子が揃っていないことから入射光学系の調整ができておらず、共振器内部の光プロファイルとは一致していないが、各種光学素子は想定通りの性能を示しており、共振器内部で複数周回できている様子は漏洩光の測定により観測できている。なお、誘電体多層膜における自由電子レーザー高調波の透過が難しかったため、共振器内部の調整には自由電子レーザーの入射光路と一致させた前述のファイバーレーザーを用いることにしている。

#### 5. まとめと今後の予定

小・中型加速器の利点を生かしたアト秒パルス光源の基礎技術開発を行うに当たり、日本大学では自由電子レーザーパルスの外部蓄積を行うことで、高次高調波生成の為の中赤外パルス高強度化に取り組んでいる。長年の放射線ダメージによるアンジュレーター減磁を含めた性能改善を行い、日本大学の

高電荷運転モードにおける今までの最高強度の発振を確認することができている。並行して行っているモードロックファイバーレーザーにおける試験蓄積では、外部共振器におけるパルス蓄積が確認されている。また、試験蓄積で得られた知見をもとに、中赤外自由電子レーザーパルスのための外部共振器構築も行い、現在その調整に取り組んでいる。

今後は自由電子レーザーの入射光学系の調整を進め、外部共振器でのパルス蓄積を行っていく予定である。共振器型自由電子レーザーでは共振器長の変化により電子パルスと光パルスとの相互作用が変わり、結果的に蓄積される光パルスの立ち上がりや強度にも影響が現れる。この特徴は外部共振器で蓄積を行う際にもその蓄積に大きな影響を与えらるため、今後の外部共振器の調整においては2つの共振器における共振器長の差異も含めた特性の理解を行うことも重要であると考えられる。

## 謝辞

本研究は文部科学省光・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。

## 参考文献

- [1] T. Popmintchev *et al.*, “Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers”, *Science*, 336, 6086, 1287-1291 (2012).
- [2] N. Nishimori *et al.*, “Sustained Saturation in a Free-Electron Laser Oscillator at Perfect Synchronism of an Optical Cavity”, *Phys. Rev. Lett.*, 86, 5707 (2001).
- [3] R. Hajima and R. Nagai, “Generation of a Self-Chirped Few-Cycle Optical Pulse in a FEL Oscillator”, *Phys. Rev. Lett.*, 91, 024801 (2003).
- [4] R. Hajima and R. Nagai, “Generating carrier-envelope-phase stabilized few-cycle pulses from a free-electron laser oscillator”, *Phys. Rev. Lett.*, 119, no. 20, 204802 (2017).
- [5] Y. Sumitomo, R. Hajima, Y. Hayakawa and T. Sakai, “Simulation of Short-Pulse Generation from a Dynamically Detuned IR-FEL Oscillator and Pulse Stacking at an External Cavity”, *J.Phys.Conf.Ser.*, 1350 012040 (2019).
- [6] 住友洋介 *et al.*, “共振器型 IR-FEL パルス蓄積のための外部増幅共振器の開発と試験蓄積”, 第16回日本加速器学会年会プロシーディングス THPI023 (2019).
- [7] T. I. Smith, P. Haar, H. A. Schwettman, “Pulse stacking in the SCA/FEL external cavity”, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A*, 393 (1997), 245.
- [8] P. Niknejadi *et al.*, “Free-electron laser inverse-Compton interaction x-ray source”, *Phys. Rev. Accel. Beams* 22, no. 4, 040704 (2019).