

# 赤外自由電子レーザーによるアト秒・zepto秒 X線発生

## GENERATION OF ATTO- AND ZEPTO-SECOND X-RAY PULSES FROM INFRARED FEL OSCILLATORS

羽島良一<sup>\*A)</sup>、永井良治<sup>A)</sup>、  
Ryoichi Hajima<sup>\*A)</sup>, Ryoji Nagai<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup>National Institutes of Quantum and Radiological Science and Technology (QST)

### Abstract

We discuss generation of X-ray pulses from high harmonic generation (HHG) driven by an infrared free-electron laser oscillator. FEL oscillators operated in a high-gain regime with a perfectly synchronized optical cavity can produce a few-cycle infrared pulses as demonstrated in the JAERI FEL. Since the FEL is able to produce optical pulses with a wavelength longer than 6  $\mu\text{m}$  that is difficult to obtain with solid-state lasers, the FEL provides a unique opportunity to explore fully phase-matched HHG in keV energies for atto- and zepto-second pulses.

### 1. はじめに

時間幅の短い光パルスを作り出せることはレーザーの大きな魅力の一つである。これまで、Q-switchによるナノ秒パルス、モードロックによるピコ秒およびフェムト秒パルスの発生が行われており、さらに、数サイクルの超短パルスレーザーを使った高次高調波発生 (High harmonic generation; HHG) ではアト秒の光パルスが得られている [1, 2]。

アト秒、さらには、zepto秒の光パルス生成を目指す場合、光の波長を時間幅に応じて短くしなければならない。例えば、波長 1 nm の軟 X 線では、1 サイクルの光パルスが 3.3 as に対応する。zepto秒の光パルスは硬 X 線でないと実現できない。従って、高次高調波の光パルスを短くするには、短波長化 (高調波の次数を上げる) が必要となる。

これまでに、固体レーザーに基づく HHG で軟 X 線の発生が実現されている。自由電子レーザーを使うことで、固体レーザーでは到達不可能な動作領域 (高繰り返し、さらに、硬 X 線) の HHG へアプローチできないだろうか。本稿では、赤外の自由電子レーザーをベースにした高次高調波による、アト秒・zepto秒 X 線の発生を提案する。

### 2. 中赤外レーザーを用いた高次高調波発生

HHG は、高強度レーザーをガス中に集光した時に、レーザー周波数の高調波が発生する現象である。発生可能な高調波の次数の目安となる高調波のカットオフエネルギー  $E_c$  は、標的原子のイオン化エネルギー  $I_p$ 、レーザー波長と強度に対応するポンデロモータビエネルギー  $U_p$  を用いた簡単な式で表される。

$$E_c = 3.17U_p + I_p \quad (1)$$

$$U_p(\text{eV}) = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} = 9.3 \times 10^{-14} I \left( \frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \right) \lambda^2 (\mu\text{m}^2) \quad (2)$$

集光強度  $I$  を一定とすると、カットオフエネルギーはレーザー波長の 2 乗にほぼ比例する。

また、HHG で発生できる光子数も波長と相関がある。光子数を大きくするには、レーザーとガスの相互作用長 (ガスの密度と厚さ) を伸ばすことが有効であるが、ガス中における入射レーザーと高次高調波の位相速度が一致しないため、位相スリップが起これば HHG の効率が低下する。HHG で発生する光子数を増やすには、位相整合条件を整えることが重要となる。

HHG で発生できる光子のエネルギーを位相整合条件の観点から整理すると、入射レーザー波長の 1.7 乗に比例することがわかっている [3]。つまり、位相整合条件の点では、波長が長い方が HHG の短波長化に有利となる。このため、チタンサファイアレーザー、Yb ドープファイバーレーザーといった近赤外レーザー (0.8-1  $\mu\text{m}$ ) に代えて、中赤外のレーザーパルスを用いた HHG の実験が行われている。

Popmintchev らのグループは、波長 3.9  $\mu\text{m}$ 、6 cycle、10 mJ、20 Hz の中赤外パルス He ガスに集光し、1.6 keV の HHG 発生に成功している [4]。この時に得られた X 線の光子数は  $10^5$  ph/shot/1%BW である。1.6 keV の X 線は single cycle でフーリエ限界の時 2.5 as に相当する。

中赤外で数サイクルの光パルスを作るには、近赤外の超短パルスレーザーを非線形光学現象 (パラメトリック増幅、差周波混合など) で中赤外光に変換する手法が用いられる。変換後の中赤外パルスの波長、パルスエネルギーなどは、近赤外レーザーのパラメータ、非線形光学素子の特性で制限されるので、実現できる波長に限界がある。

HHG における位相整合条件のスケール則に従えば、He ガスをターゲットにして 10 keV の硬 X 線を効率よく発生するには、波長 12  $\mu\text{m}$  のレーザーが必要となる [4]。従来の固体レーザーと非線形光学現象を用いた技術では、このような波長領域で数サイクルの光パルスを生成するのは容易でない。

### 3. 共振器型自由電子レーザーによる超短パルス生成

自由電子レーザーは、電子エネルギー、アンジュレータの設計を選ぶことで任意の波長で発振が可能

\*hajima.ryoichi@qst.go.jp

である。特に、近赤外から中赤外の波長領域では、反射率の高いミラーが利用できるので、技術的に成熟した共振器型自由電子レーザーを用いることができる。

共振器型自由電子レーザーで生成される光パルスの波形は、電子バンチ長、スリッページ長、FEL ゲイン、共振器損失、共振器長のデチューニングで決まり、スーパーモード理論 [5] によって記述することができる。FEL ゲインが光共振器損失に比べて十分に大きいパラメータで、バンチがスリッページ長よりも短い場合には、光共振器長のデチューニングが小さい領域で、superradiant 発振と呼ばれる超短パルス発生が起こる。FELIX では波長  $10.4 \mu\text{m}$  で 6 サイクルの、CLIO では波長  $8.5 \mu\text{m}$  で 7 サイクルの光パルスの発生が報告されている [6, 7]。

スーパーモード理論では発振が起こらないとされていた共振器の完全同期長（電子バンチの間隔と光共振器の長さが完全に一致する）における高効率の FEL 発振が JAERI-FEL で発見され [8]、のちに、2.32 サイクルの超短 FEL パルスであることが確認された [9]。この発振は、FEL ゲインが大きく、光共振器損失が小さい条件で起こり、SASE-FEL と同様のメカニズムで発振することが示唆されている [10]。また、発生する FEL パルスは周波数チャープを持っており、チャープ補償を行うことでさらなる短パルス化も可能である。

このような、完全同期長発振で得られる 1-2 サイクルの超短 FEL パルスを使って HHG を行えば、1-2 サイクルの X 線が発生できる。固体レーザーで実現が困難な波長領域も FEL では問題なく発振できる。HHG の位相整合条件を満たす最適の波長を選ぶことで、VUV、軟 X 線から硬 X 線まで、1-2 サイクルの光パルスの発生にアプローチできるだろう。この時のパルスの時間幅は、軟 X 線ではアト秒、硬 X 線ではzeptosecond となる。

#### 4. FEL の設計例

FEL 発振波長を  $12 \mu\text{m}$  とし、パルスエネルギー 1 mJ、パルス長 2 サイクルとなるような FEL の設計を試みる。設計は、自作の一次元の FEL シミュレーションコードを用いた。赤外 FEL による HHG を提案した Tecimer の論文 [11] では、二台の FEL 共振器が結合した装置が示されているが、ここでは、単一の共振器からなる構成とした。

設計の自由度（パラメータ）は、

- ゲインパラメータ  $j_0 = 2(4\pi N_u \rho)^3$ （Colson の無次元電流）
- 共振器の損失  $\alpha$
- cooperation length  $L_c = \lambda/4\pi\rho$ （FEL 波長  $\lambda$  と FEL parameter  $\rho$  で決まる）
- スリッページ  $L_s = \lambda N_u$ （FEL 波長とアンジュレータ周期数の積）
- バンチ長  $L_b = 2\sigma_z$ （ここでは、Gaussian pulse の rms 幅の 2 倍として定義）

であるが、ここでは、このうち独立なパラメータとして、 $j_0$ 、 $\alpha$ 、 $L_s/L_b$  を選んだ。

Figure 1 に、 $L_s/L_b = 1.67$  とし、 $j_0$  と  $\alpha$  の値をスキャンした時の FEL 変換効率を示す。完全同期長発振を得るためには、それぞれの共振器損失の値に対して閾値ゲインがあることが示されている。

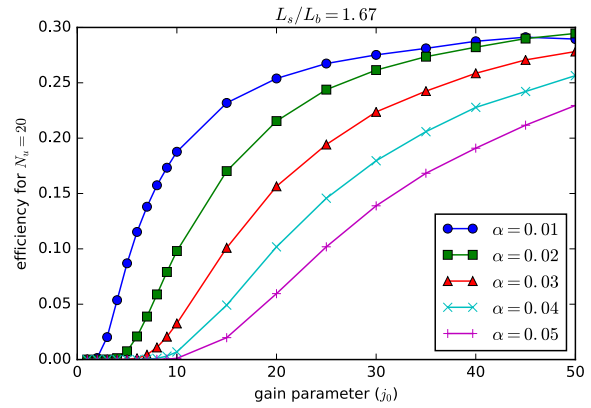


Figure 1: スリッページとバンチ長の比を  $L_s/L_b = 1.67$  と選び、ゲインパラメータ  $j_0$  と共振器損失  $\alpha$  の値をスキャンした時の FEL 変換効率。

変換効率が 10% となるパラメータとして、 $j_0 = 10$ 、 $\alpha = 2\%$  を選んだ時の、FEL マクロパルスの立ち上がり、FEL パルスの時間波形を Figure 2、3 に示す。ここでは、発振シミュレーションでは、パス毎のショットノイズを固定している。約 2000 往復後に飽和に至る。バンチ繰り返しを 10 MHz とした場合は、 $200 \mu\text{s}$  に相当する。

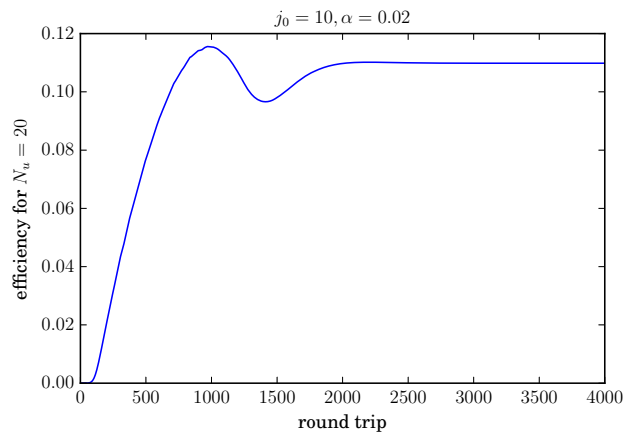


Figure 2:  $L_s/L_b = 1.67$ 、 $j_0 = 10$ 、 $\alpha = 2\%$  とした時の FEL マクロパルスの計算結果。飽和後の変換効率が約 10% となる。

Figure 3 では、完全同期長発振の特徴である、電子バンチよりも短い光パルス、主パルスに続くリングが確認できる。主パルスの時間幅は 2.4 サイクル (FWHM) である。

完全同期長発振における FEL パルスは大きな周波数チャープを持っており、チャープ補償を施すこと

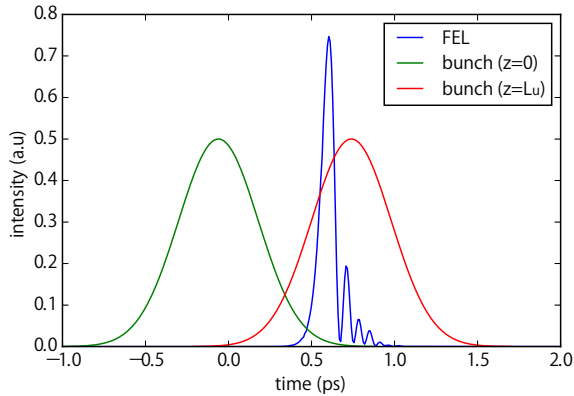


Figure 3:  $L_s/L_b = 1.67$ ,  $j_0 = 10$ ,  $\alpha = 2\%$  としての飽和後の FEL 波形. アンジュレータ入口、出口での電子バンチの波形も合わせて示す.

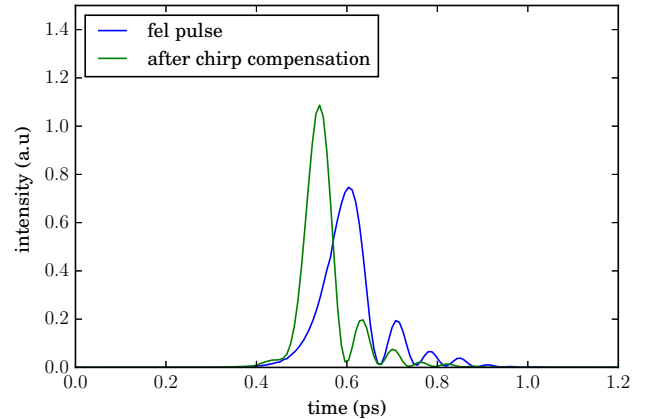


Figure 4:  $L_s/L_b = 1.67$ ,  $j_0 = 10$ ,  $\alpha = 2\%$  としての飽和後の FEL 波形にチャープ補償を施した場合. チャープ補償後の FEL パルス長は 1.6 サイクル (FWHM) まで短くなる.

でパルスをさらに短くすることができる。Figure 3 の FEL パルスに対して、3 次分散のチャープ補償

$$\Delta\phi(\omega) = a_0 + a_1(\omega - \omega_0) + a_2(\omega - \omega_0)^2 + a_3(\omega - \omega_0)^3 \quad (3)$$

を施した時の、パルス波形を図 4 に示す。チャープ補償後のパルスは、1.6 サイクル (FWHM) である。

Figure 5 に、飽和後の電子バンチのエネルギー広がりを示した。

一般的な共振器型 FEL では、変換効率とエネルギー広がりとはアンジュレータ周期数の逆数で決まる。完全同期長発振では、アンジュレータ周期数ではなく光のサイクル数が電子と光の相互作用時間を決める。したがって、超短パルス (1-2 サイクル) の生成は、電子から光への大きな変換効率、電子ビームの大きなエネルギー広がりを同時に伴う。変換効率を 10% に選んだ計算、Fig.5 では、FEL 発振後の電子ビームには、約 40% のエネルギー広がり (全幅) を持つことが示されている。このような FEL では、エネルギー回収型リニアックの利用は不可能であり、シングルエンドの超伝導リニアックが候補となる。

$j_0 = 10$ ,  $\alpha = 2\%$  に相当する装置パラメータの例を Table 1 に示し、構成例の模式図を Fig. 6 に示す。

## 5. 超短パルス発生における FEL の物理

共振器型 FEL の完全同期長発振における超短光パルスの発生は、FEL の物理としても興味深い研究テーマを含んでいる。著者の理解の範囲で簡単に紹介する。

Bonifacio らは、high-gain FEL が、 $L_c$  (cooperation length)、 $L_s$  (スリッページ)、 $L_b$  (バンチ長) の大小関係によって三つの動作領域

- steady state
- weak superradiance
- strong superradiance

分けられることを示した [12]。

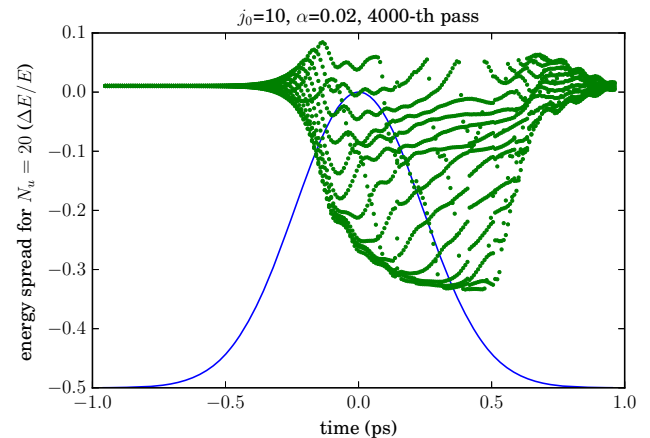


Figure 5:  $L_s/L_b = 1.67$ ,  $j_0 = 10$ ,  $\alpha = 2\%$  としての飽和後の電子バンチのエネルギー分布. エネルギー広がり約 40% (全幅) である.

steady state は、 $L_s \ll L_b$  の場合であり、SASE 型の XFEL はこれに相当する。ゲイン長が  $L_G = \lambda_u / 4\pi\sqrt{3}\rho$ 、電子から FEL への変換効率が  $\rho$  で表されるといよく知られた関係式が成り立つのは、このケースである。

スリッページが無視できない動作領域での high-gain FEL では、レーザー光で変調を受けた電子が後方にスリッページして (光に追い越されて)、電子はレーザー光が存在しない領域に逃げながら新たな光を放出する。レーザー波長で集群を受けた電子がアンジュレータ放射を行うので、放出する光の強度は電子の数  $N$  の二乗に比例する。Bonifacio は、Dicke の superradiance [13] のアナロジーから、superradiant FEL と呼んだ。飽和後の光強度 (ピーク強度) が steady state FEL と比べて大きい/小さい場合に分けて、それぞれ、strong/weak superradiance と定義している。superradiance 領域では、電子に変調を与えるレーザー場と放射で生成される

Table 1: Parameters of FEL for HHG

electron beam	
energy	100 MeV
bunch charge	240 pC
normalized rms emittance	20 mm-mrad
rms bunch length	240 fs
peak current	400 A
bunch repetition	10 MHz
undulator	
undulator parameter (rms)	3.5
pitch	7 cm
full gap	2 cm
the number of periods	20
FEL	
wavelength	12 $\mu\text{m}$
efficiency	10%

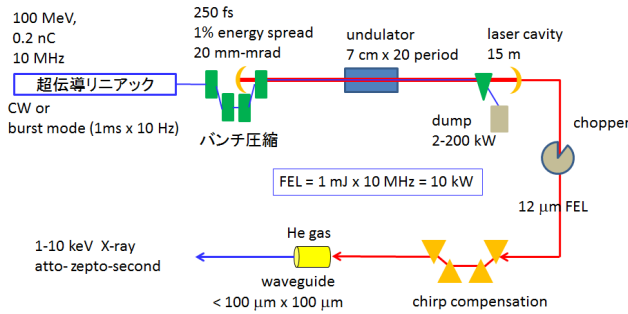


Figure 6: FEL-HHG によるアト秒・zeptosecond X線源の構成例。

レーザー場は、周波数、位相が同じである必要はない。集群した電子はエネルギーを失いながら放射を続けるので、放射されるレーザー場にはダウンチャープパルスの後半で波長が長くなる現象が生じる。

FEL の動作パラメータが  $L_s/L_b \gg (L_c/L_b)^{3/2} > 1$  の場合には、weak superradiance が起こる。二準位系（レーザー）における superradiance の特徴である Burnham-Chiao リンギング [14] を持ったパルス波形が見られるのはこのケースである。

strong superradiance は  $L_c/L_b \ll L_s/L_b \sim 1$  の場合に見られる。cooperation length がバンチ長よりも短いので、独立した複数の光パルスがスリッ領域で成長する。

共振器型 FEL の完全同期長発振のシミュレーション結果を見ると、アンジュレータにおいて、光パルスは電子バンチを追い越しながらパルスの増幅と短縮が同時に起こることがわかる。光パルスは、共振器を往復後に次の電子を追い越し、さらに増幅が続く。つまり、完全同期長発振は、光パルスが長い電子バンチ（バンチ長とパス数の積に等しい）を追い越していくことと等価である。しかしながら、もし、最初から長いバンチをアンジュレータに入射した場合は、バンチの至る所で独立した発振が起こり、光パルスは多数の spike を持つようになるだろう。Bonifacio の言う

strong superradiance 発振となり、単一の超短パルスの形成は得られない

共振器 FEL の完全同期長発振は、シングルパスでは weak superradiance であるが、光が共振器を多数回往復することで、strong superradiance に匹敵するピーク強度に到達すると考えられる。

Piovella は、完全同期長で動作する共振器 FEL では、マクロパルスの立ち上がり部で FEL 増幅 (superradiance 発振) が起こるが、FEL ゲインは周回ごとに小さくなり、やがて FEL パルスは減衰してしまい発振が止まるとの解析結果を示した [15]。

JAERI-FEL の完全同期長発振を再現する FEL シミュレーションでは、2パス目以降のショットノイズを off にすると Piovella の解析と同様に発振がとまるが、ショットノイズを常に on とすると FEL 発振が継続し深い飽和状態で超短パルスの形成に至ることが確認された [16]。飽和後の FEL パルスに比べて  $10^{-10}$  以下の強度しかないショットノイズが、超短 FEL パルスの形成に本質的な役割を果たしていることは興味深い。Piovella の理論解析にショットノイズを組み込むことができれば、現象のさらなる理解へつながるだろう。

完全同期長発振で得られる超短 FEL パルスは、二準位系における superradiance でみられる Burnham-Chiao リンギング [14] と同様の波形をしている。superradiance におけるリンギングは、光パルスが媒質を進みながら、光の吸収と放出（二準位系の励起と脱励起）を繰り返す結果を反映している。superradiance の原理を最初に提唱した Dicke のモデル [13] では、光の伝播を考えていないので、このようなリンギングは現れないが、一般的な superradiance の実験 [17] に共通する光の波形である。FEL は二準位系とは異なり、ひとつの粒子（電子）が多数の光子を放出できる。特に、完全同期長発振では、光のダウンチャープに合わせて、電子がエネルギーを失いながら FEL 共振条件（光の放出）を維持し高い変換効率をもたらすことが、シミュレーションから確認される。FEL におけるリンギングの形成、放出する光子数の上限（変換効率の限界）など詳しい考察が待たれる。

また、完全同期長発振における FEL マクロパルスの立ち上がり部を詳しく見ると、パルスが相似形を保ったままパルス幅の減少とピークの増大が起こっていることがわかる。これは、二準位系における自己誘導透過における面積定理 [18] のアナロジーとして考えることができる。二準位系においてブロッホベクトルが回転（ $\pi$ パルスの形成）するという描像を通して FEL パルスの成長を考えることは興味深い。

ちなみに、二準位系におけるレーザーの動作を記述する Maxwell-Bloch 方程式を最初に示したのは、Arecchi と Bonifacio である [19]。McNeil は、この方程式を Arecchi-Bonifacio 方程式と呼ぶことを提唱している [20]。

## 6. 中赤外 FEL による HHG の検討

HHG で発生可能な光子数を見積もるには、ターゲットガスの単一原子としてのレーザー場に対するふる

まい (single atom response) を明らかにした上で、ガスの厚みにわたっての位相整合、ガスによる吸収などを考慮しながら、レーザーとガスの相互作用領域を最適化する必要がある。レーザーと原子の相互作用は、時間依存のシュレディンガー方程式によって原理的に正確に記述できる。しかしながら、レーザーの波長が長くなると、イオン化した電子が、より遠くまで離れた後に原子に戻ってくることになるので、その計算量は、レーザー波長の6乗に比例し増大する(空間3乗、時間3乗)。三次元の第一原理計算[21]を中赤外領域(波長 $10\mu\text{m}$ 程度)で行うのは、スーパーコンピュータを使ったとしても現実的に処理できる計算量ではない。ある程度の精度を維持した一次元の近似計算[22]に頼るのが適当であろう。

HHGにおいて、入射するレーザー波長が長くなると、single atom responseは小さくなる傾向にあるが、Popmintchevらによると、レーザー波長が長いほど位相整合条件の点では有利であり、厚いガスタargetを用いることでsingle atom responseの低下は補えたとある。

中赤外FELによるHHGでアト秒軟X線、zeptosecond硬X線の発生、これを使った実験を展開するためには、FELとHHGを含んだ全体システムの設計とパラメータの最適化が必要である。FELの波長、パルスエネルギーとパルス長、チャープ補償の手法、ターゲットガスの種類、ガス圧、相互作用長、集光用waveguide、位相整合の手法などである。

FELの解析は、これまで自作の1次元シミュレーションコードを使って、JAERI-FELの再現、また、HHGのためのFELの設計を行ってきた。今後、3次元の効果を考慮するために、GENESISなどの3次元FELコードの利用も検討している[23]。

## 7. まとめ

超短光パルスの発生は、ピコ秒～フェムト秒～アト秒へと、これまでのレーザー研究におけるメインストリームのひとつであり、また、今後も同様であることは間違いない。超短光パルスは、化学反応における短寿命遷移状態の直接観測に用いられ、また、光誘起相転移のように熱的過程では到達できない新たな物質相の発見にも寄与してきた。

アト秒パルス発生は、これまで、固体レーザー技術に基づく近赤外のフェムト秒パルスをガスに集光した時の高次高調波が主に用いられてきた。最近では、位相整合の点で有利な中赤外領域へ固体レーザーの波長を拡大する試みが続いている。共振器型自由電子レーザーを用いれば、近赤外から中赤外の波長領域において1-2サイクルの超短光パルスを生成できる。この光パルスを使った高次高調波発生を行えば、固体レーザーでは到達が困難なパラメータ領域でHHG実験を行うことができる。特に、位相整合条件の点で有利な中赤外レーザーによるHHGは、固体レーザーに比べてFELが原理的に優位であり、軟X線(アト秒)から硬X線(zeptosecond)の光パルスの効率的な発生と利用にFELが貢献できる可能性がある。

本稿では、アト秒・zeptosecond X線発生のための共振

器型FELの例として波長 $12\mu\text{m}$ 、1.6サイクル(チャープ補償後)の装置パラメータを示し、さらに、FEL物理、HHG実験に向けた課題についてコメントした。

HHGの理論、実験について、筑波大学のXiao-Min Tong氏、東京大学の板谷治郎氏から有益な助言をいただいた。感謝を申し上げる。

## 参考文献

- [1] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- [2] F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
- [3] T. Popmintchev *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106**, 10516 (2009).
- [4] T. Popmintchev *et al.*, *Science* **336**, 1287 (2012).
- [5] G. Dattoli *et al.*, *IEEE J. Quant. Electron.* **17**, 1371 (1981); N. Piovella *et al.*, *Phys. Rev. E* **52**, 5470 (1995).
- [6] G. M. H. Knippels *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1755 (1995).
- [7] F. Glotin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2587 (1993).
- [8] N. Nishimori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5707 (2001).
- [9] R. Hajima and R. Nagai, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 024801 (2003).
- [10] R. Hajima *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. A* **483**, 113 (2002).
- [11] M. Tecimer, *Phys. Rev. ST-AB* **15**, 020703 (2012).
- [12] R. Bonifacio *et al.*, *Rivista Del Nuovo Cimento* **13**, No.9, 1-69 (1990).
- [13] R.H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- [14] D.C. Burnham, R.Y. Chiao, *Phys. Rev.* **188** (1969) 667.
- [15] N. Piovella, *Phys. Rev. E* **51**, 5147 (1995).
- [16] R. Hajima *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. A* **475**, 270 (2001).
- [17] N. Skribanowitz *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 309 (1973).
- [18] S.L. McCall and E.L. Hahn, *Phys. Rev.* **183**, 457 (1969).
- [19] F.T. Arecchi, R. Bonifacio, *IEEE J. Quantum Electron.* **1**, 169 (1965).
- [20] B. McNeil, *Nat. Phot.* **9**, 207 (2015).
- [21] T. Otobe, *J. Appl. Phys.* **111**, 093112 (2012).
- [22] X-M. Tong and S-I. Chu, *Chem. Phys.* **217**, 119 (1997).
- [23] 永井良治、羽島良一、第13回日本加速器学会年会論文集、MOP074 (2016).