

単一サイクル自由電子レーザー発振を可能とする基本原理の実証

EXPERIMENTAL DEMONSTRATION OF THE FUNDAMENTAL PRINCIPLE FOR SINGLE-CYCLE FREE ELECTRON LASERS

田中隆次^{A)}, 貴田祐一郎^{B)}, 橋本智^{C)}, 宮本修治^{C,D)}, 富樫格^{A,B)}, 富澤宏光^{A,B)}, 後長葵^{E)}, 金島圭佑^{E)}, 田中義人^{E)}
Takashi Tanaka^{*A)}, Yuichiro Kida^{B)}, Satoshi Hashimoto^{C)}, Shuji Miyamoto^{C,D)},
Tadashi Togashi^{A,B)}, Hiromitsu Tomizawa^{A,B)}, Aoi Gocho^{E)}, Keisuke Kaneshima^{E)}, Yoshihito Tanaka

^{A)}RIKEN SPring-8 Center

^{B)}Japan Synchrotron Radiation Research Institute

^{C)}Laboratory of Advanced Science and Technology for Industry, University of Hyogo

^{D)}Institute of Laser Engineering, Osaka University

^{E)}Department of Material Science, University of Hyogo

Abstract

It is well known that the pulse length of seeded free electron lasers (FELs) roughly scales as that of the seed light, and thus shorter FEL pulses are available by using shorter seed pulses. In an extreme condition in which the seed pulse is ultimately short, e.g., few-cycles long, this is not valid any longer; the FEL pulse is stretched by the so-called slippage effect, in which radiation overtakes electrons moving along an undulator. In a previous paper, we proposed a scheme to counteract the slippage-driven pulse stretch in FELs and reduce the FEL pulse length ultimately down to a single-cycle duration; this is based on a concept of “chirped microbunching” (CM), or an electron density modulation with a varying period of modulation. Toward realization of FELs based on the CM scheme, we carried out experiments to demonstrate its fundamental mechanism in the storage ring of the NewSUBARU synchrotron radiation facility, with an ultrashort seed pulse with the pulse length shorter than 5 cycles. Experimental results of spectral and cross-correlation measurements were in reasonable agreement with the theoretical predictions, which strongly suggests the successful demonstration of the CM scheme.

1. はじめに

シード型自由電子レーザー (FEL) のパルス長は、シード光のパルス長に比例して変化することが知られている。このため、シード光を短パルス化することでシード型 FEL の短パルス化が可能である。しかしながら、パルス長が数サイクルに達する超短パルス光をシード光として利用する場合、上記の手法は有効に機能しない。これは、アンジュレータ磁場中で正弦波軌道に沿って運動する電子が、自身が放出した光から取り残される、いわゆる「光スリッページ効果」のためであり、上記で述べた極限条件においては、FEL のパルス長は電子がアンジュレータを進むにつれて伸長する。我々は、超短パルス FEL の実現を目指す上で最大の障壁となる、「スリッページによるパルス伸長」を克服するために理論検討を行い、この結果、チャープマイクロバンチ (Chirped Microbunch = CM、変調周期が長手方向に沿って変化する電子密度変調) に基づく新たな FEL 手法を見出すとともに、単一サイクル FEL への応用について報告した [1]。これ以降、CM に基づく新たな光源方式が国内外のグループからも多数提案されており、例えば、単一サイクルテラヘルツ光源 [2,3]、複数の高調波を合成することによるサブサイクルパルスの生成 [4]、アンジュレータ磁場分布の最適化による短パルス化 [5]、HGHG(High Gain Harmonic Generation) 型 FEL やコンプトン散乱光源への応用 [6,7]、さらには孤立アト秒パルス [8] やダブルアト秒パルス [9] の生成等、多岐にわ

たる。これら全てが光科学における新たなツールとして魅力的である一方、その基本原理である「CM の生成とパルス伸長効果の抑制」は未だに実証されていない。我々は CM に基づく新たな光源の実用化を目指すため、上記基本原理を実証するための実験を行った。本プロシーディングでは同実験の概略と結果について報告する。

2. 実証実験の概要

2.1 実証実験の経緯とレイアウト

2015 年に初めて CM に基づく FEL 手法を提案した後、その基本原理の実証を行うための研究拠点として国内の加速器施設について調査を実施した。この結果、施設の規模やアクセス性、電子エネルギー、シングルバンチ運転条件、加速器レイアウト等の観点から、SPring-8 構内で稼働中の放射光施設ニュースバルの蓄積リングが最適であるとの結論に達した。施設の関係者と実証実験の可能性について協議して同意を得た後、技術的及び理論的検討に入り、2018 年に獲得した科研費を原資として研究プロジェクトを発足した。最終的な実証実験のレイアウトを Fig. 1 に示す。

ニュースバル蓄積リングはレーストラック型の蓄積リングであり、全長 11 m の挿入光源の設置が可能な長直線部が 2 か所存在する。その一方 (BL01) にテーパアンジュレータ 2 台 (モジュレータ・ラディエータ) と 3 極電磁石 (シケイン) が設置されている。実験ホール上流側には近赤外レーザーが設置され、短パルスシード光を発生する。シード光は BL01 上流側真空ポートから入射窓を介して蓄積リングに入射され、モジュレータ

* ztanaka@spring8.or.jp

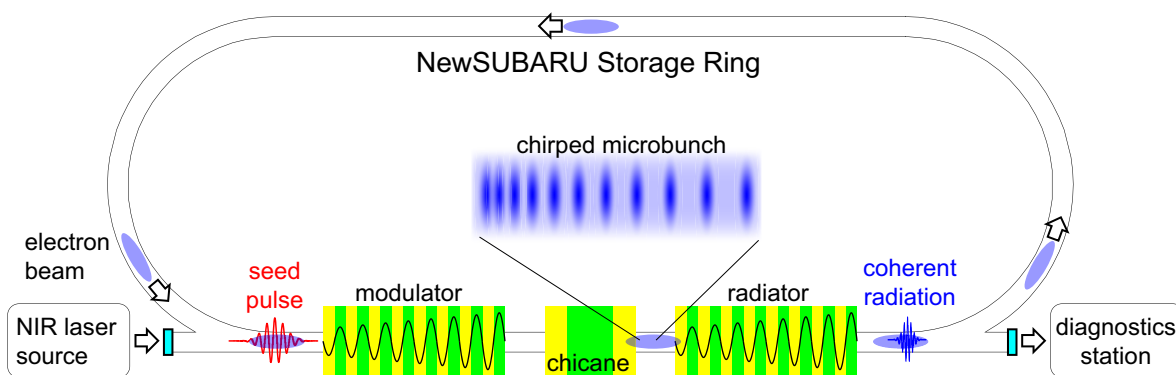


Figure 1: Accelerator layout for the experimental demonstration of the CM scheme.

において電子ビームと相互作用する。相互作用によって電子ビームに誘起されたエネルギー変調は、シケイン通過後に密度変調へ変換され、マイクロバンチが生成される。マイクロバンチが生成された電子ビームがラディエータを通過することで、自発光よりも遥かに高い強度のコヒーレント光が発生する。コヒーレント光は BL01 下流側真空ポートから出射窓を介して引き出され、大気中に設置された光計測系まで輸送されて各種計測が行われる。

上記レイアウトは、HGHG 型 FEL のそれとほぼ同等であるが、実証実験においては、(1) シード光に超短パルス光を利用すること、(2) モジュレータ及びラディエータがテーパアンジュレータであること、の 2 点において異なる。これらは、CM を生成するため（即ち、スリッページを制御するため）の必須の条件である。

尚、本実証実験では、ほぼ全ての要素機器について新規開発や整備、あるいは大規模な改造が必要であった。以下でそれぞれの詳細について述べる。

2.2 ニュースバル蓄積リング

ニュースバル蓄積リング BL01 直線部には、もともと電磁石型のオプティカルクライストロン（モジュレータ・ラディエータ及びシケイン）が設置されていたが、これらのモジュレータ及びラディエータにはテーパ機能、即ち磁場分布に勾配を与える機能が無かったため、テーパアンジュレータ（2.5 節）を新規に開発し、2020 年 3 月に交換作業を行った。ただし経費節減のため、真空チャンバー及びシケインは既存品を再利用している。2020 年度後半には、従来使用していた SPring-8 の入射器（SACLA 直線加速器からの入射方式確立に伴い運用停止）に代わる、ニュースバル専用入射器の設置作業が行われた。この作業は本実証実験プロジェクトとは完全に独立に進められたものであり、作業の間の半年間は実験を中断せざるを得なかったものの、入射器を専有する効果は大きく、それ以降の実験効率が格段に向上することとなった。また 2022 年度夏にシケインの磁場増強を可能とする改造を行った。

実証実験の間、蓄積リングは電子エネルギー 0.95 GeV、蓄積電流 100 mA、バンチ長 80 ps (FWHM)、自然エミッタンス 37 nm.rad、カップリング定数 0.01、エネルギー幅 4×10^{-4} でシングルバンチモードで運転され、また、増強後のシケインにおける縦分散 (R_{56}) は

50 μm であった。

2.3 シードレーザー

シードレーザーとして中心波長 800 nm の近赤外フェムト秒レーザー光源が BL01 上流実験ホールに設置された。実証実験のためにはパルス長が十分に短いシード光が必要であるため、中空ファイバを利用したパルス圧縮法 [10] が適用された。同手法では、チタンサファイア増幅器からのフェムト秒パルスの一部をアルゴンガス (0.4 気圧) で満たされた中空ファイバ (全長 0.5 m、コア径 250 μm) に集光することで、波長域 700 nm から 900 nm に及ぶ広帯域レーザーパルスが生成される。中空ファイバ射出後のパルスエネルギーは 0.12 mJ であり、これはアルゴンガスが無い場合の 0.15 mJ よりもわずかに低い。また、蓄積リング入射窓のフレネル損失のために、実際にモジュレータに到達するシード光のパルスエネルギーは 0.1/0.13 mJ (アルゴンガス有/無) と見積もられおり、CM の生成に十分な強度であることが計算により確認された。

上述した中空ファイバ法で生成される広帯域レーザーパルスはチャープしているため、チャープミラーで圧縮する必要がある。また、蓄積リング入射までの光輸送系には空気や入射窓等の高分散媒体が存在するため、チャープミラーの設計にはこれらの影響を考慮する必要がある。即ち、シード光がモジュレータに到達した時点でフーリエ限界に達するように設計が行われた。また、実際にモジュレータの位置におけるパルス長を計測することは不可能であるため、仮想的な光輸送ラインを同一の媒体を用いて構築し、シード光が仮想モジュレータの位置でフーリエ限界に達していることを確認した。Figure 2 に、中空ファイバ法の適用有無でスペクトルが変化する様子を示す。期待通り、中空ファイバ法の適用によりバンド幅が大きく広がっていることが確認できる。自己相関法で計測されたパルス長 (FWHM) はそれぞれ 48 fs と 12 fs であり、同手法によって 4 倍程度パルス長が圧縮されている。本報告では、これらのシード光の条件を区別するため、それぞれ狭帯域 (パルス長 48 fs)、広帯域 (パルス長 12 fs) と称する。

シードレーザーにおけるもう一つ重要な点は電子ビームとの空間マッチングである。理想的には、シード光は電子ビームとモジュレータ全体にわたって一様に

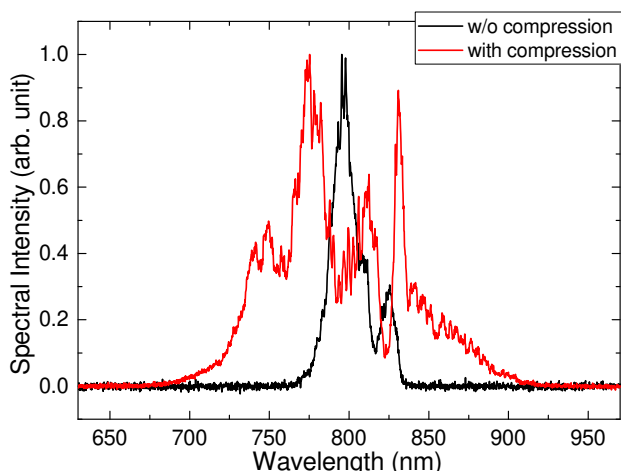


Figure 2: Spectra of the seed pulse without (black) and with (red) the hollow-fiber compression scheme.

相互作用することが好ましい。BL01における水平(垂直)方向の平均電子ビームサイズが1.2(0.14) mmであることから、モジュレータの中心位置において1.5 mmのウェストサイズでシード光が集光されるように光輸送系の設計がなされた。

2.4 時間同期系

シードレーザーと電子ビームの時間同期を実現するためには、電子ビームのタイミングを決定する、蓄積リングのRF加速空洞を駆動するためのマスターオーシレータの信号をベースに、レーザーシステムを駆動するトリガー信号を生成する必要がある。このため、マスターオーシレータの周波数499.95 MHzを63分周かつ10通倍するデジタル分周器を新規に開発し、レーザー共振器のトリガー信号(79.36 MHz)として利用した。さらにこれを79200分周し、レーザー増幅器のトリガー信号として配信することで、短パルスシード光が約1 kHzの繰り返し周波数で蓄積リングに入射されるように時間同期系を構築した。また、このトリガー信号のタイミングを連続掃引するためのタイミング制御器を製作し、蓄積リングを周回する電子ビームが2520周毎にシード光と同期するように調整を行った。構築された時間同期系の性能を評価するために、16 GHzオシロスコープでシード光と電子ビームのタイミングジッターを計測したところ、7.1 psであることが確認された。これは電子ビームのバンチ長80 psよりも遥かに小さく、実証実験に十分な精度を有していることが確認された。

2.5 テーパーアンジュレータ

モジュレータ及びラディエータとして、全長3.84 m、周期長160 mm、周期数24のテーパーアンジュレータを新規に開発した。最小ギャップは45 mmであり、最大磁場振幅は0.68 Tである。このテーパーアンジュレータは、磁場勾配をより柔軟に調整するため、ギャップがリニアに変化する一般的なテーパーだけではなく、ギャップを周期毎に独立に調整可能な機能を備えている[11]。この結果、周期長160 mm、磁場振幅0.68 T以

下の条件の下で、任意の磁場分布の生成が可能である。また、特定の周期を意図的にデチューン(無効化)することで有効な周期数の調整も可能な設計となっている。通常の運転条件では、モジュレータ及びラディエータは0.55 T及び0.38 Tの一定磁場振幅を発生する(テーパー無し)に設定され、この場合、電子ビームはモジュレータにおいて波長800 nmのシード光と相互作用し、ラディエータにおいて波長400 nmのコヒーレント光を生成する。

2.6 光計測系

BL01下流の実験ホールに設置された光計測系は3種類の計測機器、即ち、位置モニター、時間モニター、及び相互相関器で構成される。これらを用いて、電子ビームが生成する自発光とコヒーレント光だけではなく、BL01を通過してくるシード光の評価を行った。

位置モニターは、両凸レンズ、バンドパスフィルタ(800 nm)及びCMOSカメラで構成され、電子ビームとシード光の空間同期を担保する役割を担う。波長800 nmの自発光の集光イメージは、モジュレータ位置におけるシード光に対する電子ビームの相対位置を表し、これらが一致するようにシード光の入射角度を調整することで、両者の空間同期が確保される。

時間モニターは、集光レンズ、回折格子、及びストリークカメラで構成され、自発光とシード光(中心波長800 nm)の相対到着時間を計測する。計測結果を元にタイミング制御器を調整することで両者の時間同期が確保される。同モニターのもう一つの重要な役割は、ラディエータで放出されたコヒーレント光と自発光(中心波長400 nm)の時間分解スペクトルの測定である。ちなみに、ストリークカメラの時間分解能は1 ps程度であり、100 fs以下と想定されるコヒーレント光のパルス長を直接的に計測することはできない。

相互相関器はコヒーレント光のパルス長を評価する役割を担う。厚さ10 μm の $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO)結晶を用いてシード光とコヒーレント光の和周波(267 nm)を発生する。また、同じセットアップでシード光の(光計測系の位置における)パルス長を自己相関法で計測可能である。

2.7 コヒーレント光の観測

上述した機器要素は全て2020年3月までにニュースバルへの設置を完了し、2020年度後期中断(新入射器の設置作業)を経て、2021年度から本格的なコミッションを開始した。この結果、約10か月後の2022年2月に初めてコヒーレント光の生成と観測に成功した。Figure 3に、ストリークカメラで計測した放射光の時間分解スペクトルのスクリーンショットを示す。縦軸が時間、横軸が波長であり、自発光に起因する、時間幅100 ps、中心波長400 nm、バンド幅30 nmの弱い信号の上に、時間幅17 ps、バンド幅5 nmの一際明るい信号が確認された。この信号は、シード光を遮断すると消滅することからコヒーレント光由来であることが確認された。ちなみに、時間幅17 psは予測される時間幅よりも2桁以上長い。これはコヒーレント光の信号が強すぎるが故に、時間方向に“太る”ためであり、適切に減衰することでストリークカメラの時間分解能程

度にまで短くなることが確認されている。

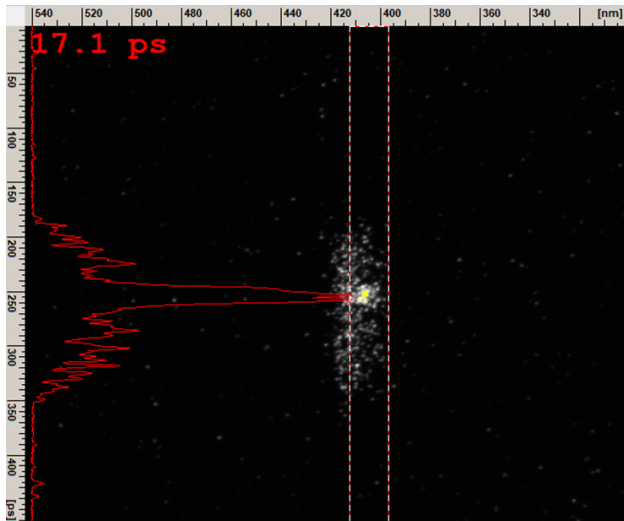


Figure 3: Screenshot of the time-resolved spectrum of coherent and spontaneous radiation measured by the streak camera.

尚、コヒーレント光を生成するためにはシード光と電子ビームの高精度な同期が必要であるが、一旦同期を確保すると、それ以降は極めて安定な状態でコヒーレント光が生成されることが確認された。これは本プロジェクトで整備した全ての機器が、期待通りの性能で安定に稼働していることを示している。

3. 実験結果

CM の生成とパルス伸長効果の抑制という基本原理を実証するために、Table 1 に示す 6 つの異なる条件でコヒーレント光のスペクトル測定を行った。各条件はシード光の帯域 (狭帯域、広帯域)、アンジュレータの実効周期数 ($N_{eff} = 24, 12, 6$)、及び磁場勾配 ($dB/dz = 0, 2.9\%/m$) で定義されており、CM を生成するための条件は (v) に相当する。

Table 1: Conditions of the Seed Pulse and Undulators for the Spectral Measurements

| Condition | Seed Pulse | N_{eff} | dB/dz |
|-----------|------------|-----------|---------|
| (i) | narrowband | 24 | 0 |
| (ii) | broadband | 24 | 0 |
| (iii) | broadband | 12 | 0 |
| (iv) | broadband | 6 | 0 |
| (v) | broadband | 24 | 2.9%/m |
| (vi) | narrowband | 24 | 2.9%/m |

各条件においてストリークカメラで 100 ショットの時間分解スペクトルを測定し、時間ジッターを補正した後、コヒーレント光に相当する時間幅で切り出したデータを積算することにより、各条件における測定データとして抽出した。Figure 4(a) に測定結果を示す。凡例に示したローマ数字が、Table 1 の諸条件の番号に相当

する。強度は条件 (i) の最大値で規格化しているが、測定結果の比較を容易にするため、縦軸のスケールが各条件で異なることに留意されたい。

黒線が狭帯域シード (i) の場合のスペクトルであり、バンド幅 5 nm 程度の狭帯域なコヒーレント光が生成されている。これは、パルス長 48 fs のシード光によって同じパルス長のコヒーレント光が生成されるという近似と整合する。仮にこの近似が広帯域シード (パルス長 12 fs) でも正しいとすると、コヒーレント光のパルス長は 12 fs で、そのバンド幅は 20 nm 程度にまで広がるはずである。実際には赤線 (ii) で示すように、コヒーレント光のバンド幅は 7 nm 程度であり、従ってパルス長は 12 fs よりもずっと長い。即ち条件 (ii) においては上記の近似はもはや正しくなく、コヒーレント光のパルス長を支配するのはシード光のパルス長ではなく、アンジュレータのスリッページであることがわかる。

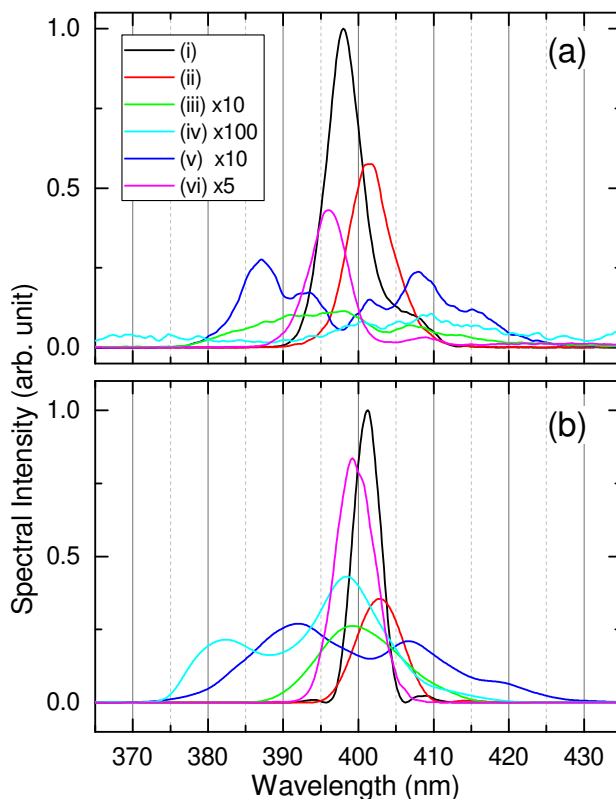


Figure 4: Spectra of coherent radiation for the 6 different conditions summarized in Table 1: (a) experimental and (b) numerical results.

スリッページの影響を緩和し、コヒーレント光の短パルス化 (広帯域化) を可能にする最も単純な方法は、アンジュレータの周期数を削減することである。条件 (iii) 及び (iv) の測定結果を緑線及び水色線で示す。期待通りバンド幅は広がっているものの、強度は激減している。これはコヒーレント光の生成が非線形な過程であることに起因し、周期数の削減がスリッページの影響の緩和として現実的な手法では無いことを示している。これが、我々が CM に基づく光源開発を目指している理由である。

CMの生成とパルス伸長効果の抑制を検証するために、条件(v)で測定したスペクトルを青線で示す。モジュレータ、ラディエータとも磁場勾配が2.9%/mとなるようにテーパを設定した。磁場勾配は、テーパを与えずにモジュレータ及びラディエータのギャップを変化させたときのコヒーレント光の強度変化を計測することで最適化した。期待通りバンド幅は広がり、かつ強度は周期数削減条件(iii,iv)に比べて大きく改善している。即ち、CMが生成され、高強度の短パルスコヒーレント光が発生していることを示唆する。ちなみに、マゼンタ線で示す条件(vi)、即ち狭帯域シードにおけるテーパ適用は全く効果が無く、コヒーレント光は狭帯域のまま強度が低下するのみである。即ち、狭帯域シードで生成されるマイクロバンチはチャープしておらず、コヒーレント光を短パルス化(広帯域化)する効果は無い。

上記で示した実験結果の妥当性を検証するために、各条件におけるスペクトルを数値計算により求めた。計算結果をFig. 4(b)に示す。計算は放射光計算コードSPECTRA [12]で行い、強度の規格化や縦軸スケール、及び線色をFig. 4(a)と同様に設定してプロットしてある。条件(iii)及び(iv)では相違がやや大きいものの、全体的な傾向はよく一致していることが確認された。

上記で示した実験及び計算結果、特に条件(ii)と(v)における両者の整合性は、CM法の有効性を強く示唆する。この事実をより強化するため、これらの条件におけるコヒーレント光のパルス長を相互相関測定により評価した。結果をFig. 5に、数値計算による予測と併せて示す。信号強度は条件(ii)における最大値で規格化している。どちらの条件においても数値計算結果は実験結果をよく再現していることが確認された。

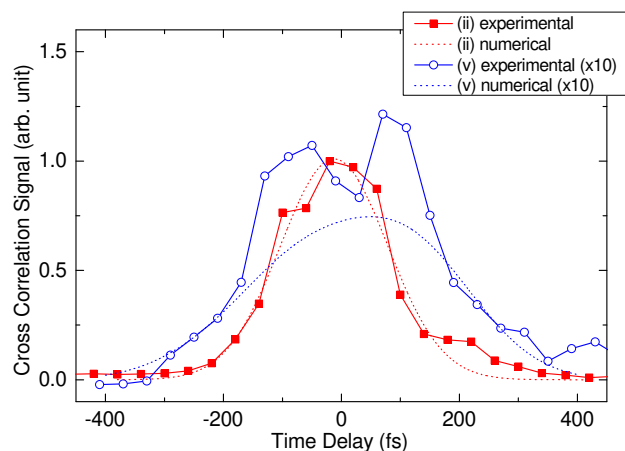


Figure 5: Cross-correlation measurement for SFG signal between the seed pulse and coherent radiation, with (blue circles) and without (red squares) the CM scheme. The dashed lines show numerical predictions in the same conditions.

4. 議論とまとめ

最後に、CM法の適用によるコヒーレント光のパルス長変化について議論する。ラディエータで生成された波長400 nmのコヒーレント光は、光計測系に達する

前に、蓄積リング出射窓のコバルガラス(群遅延分散 575 fs^2)と光輸送ラインの空気(同 500 fs^2)という2つの高分散媒質を通過する。このため、光計測系で評価されるコヒーレント光のパルス長(実効パルス長)は、ラディエータ直下におけるコヒーレント光のパルス長(初期パルス長)に比べて大幅に伸びる。例えば、CM法を適用しない場合の初期パルス長は48 fs、実効パルス長は84 fsと計算される。一方、同法を適用した場合、初期パルス長は12 fsであるのに対し、実効パルス長は350 fsと一桁以上伸びることが計算で確認されている。従って、実験的に初期パルス長を推定することは、特にCM法を適用した広帯域コヒーレント光では困難である。しかしながら、本実証実験における各種計測結果、即ちスペクトル計測と相互相関計測の理論予測との整合性は、本実証実験の機器セットアップと測定手法、及び数値計算の妥当性を示すものであり、CMによるコヒーレント光のパルス伸長の抑制を間接的に実証する結果であると結論できる。

謝辞

本研究はJSPS 科研費JP18H03691の助成を受けて行われました。

参考文献

- [1] T. Tanaka, "Proposal to generate an isolated monocycle x-ray pulse by counteracting the slippage effect in free-electron lasers," *Phys. Rev. Lett.* **114**, 044801 (2015).
- [2] T. Tanaka, "Difference frequency generation in free electron lasers," *Opt. Lett.* **43**, 4485–4488 (2018).
- [3] H. Zhang, W. Wang, S. Jiang, C. Li, Z. He, Q. Jia, L. Wang, and D. He, "Generation of frequency-chirped density modulation electron beam for producing ultrashort thz radiation pulse," *Phys. Rev. Accel. Beams* **23**, 020704 (2020).
- [4] Y. Kida, R. Kinjo, and T. Tanaka, "Synthesizing high-order harmonics to generate a sub-cycle pulse in free-electron lasers," *Applied Physics Letters* **109**, 151107 (2016).
- [5] V. A. Goryashko, "Quasi-half-cycle pulses of light from a tapered undulator," *Phys. Rev. Accel. Beams* **20**, 080703 (2017).
- [6] T. Tanaka and P. R. Ribič, "Shortening the pulse duration in seeded free-electron lasers by chirped microbunching," *Opt. Express* **27**, 30875–30892 (2019).
- [7] B. H. Schaap, P. W. Smorenburg, and O. J. Luiten, "Isolated attosecond x-ray pulses from superradiant thomson scattering by a relativistic chirped electron mirror," *Scientific Reports* **12**, 19727 (2022).
- [8] P. R. Ribič and T. Tanaka, "Isolated single-cycle extreme-ultraviolet pulses from undulator radiation," *Opt. Lett.* **45**, 5234–5237 (2020).
- [9] T. Tanaka and P. R. Ribič, "Proposal to generate a pair of intense independently tunable attosecond pulses from undulator radiation," *Opt. Lett.* **47**, 1411–1414 (2022).
- [10] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, C. Spielmann, F. Krausz, and K. Ferencz, "Generation of 0.1-tw 5-fs optical pulses at a 1-khz repetition rate," *Opt. Lett.* **22**, 1562–1564 (1997).
- [11] T. Tanaka, Y. Kida, R. Kinjo, T. Togashi, H. Tomizawa, S. Hashimoto, S. Miyamoto, S. Okabe, and Y. Tanaka, "De-

PASJ2023 WEOA2

velopment of an undulator with a variable magnetic field profile,” *Journal of Synchrotron Radiation* **28**, 404–409 (2021).

- [12] T. Tanaka, “Major upgrade of the synchrotron radiation calculation code *SPECTRA*,” *Journal of Synchrotron Radiation* **28**, 1267–1272 (2021).