

# 自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源の研究: 2025

## RESEARCH TOWARDS ATTOSECOND X-RAY PULSE GENERATION USING FREE-ELECTRON LASER OSCILLATORS: 2025

羽島良一<sup>#, A)</sup>, 川瀬啓悟<sup>A)</sup>, 全炳俊<sup>B)</sup>, 大垣英明<sup>B)</sup>, 早川恭史<sup>C)</sup>, 境武志<sup>C)</sup>, 金井恒人<sup>D)</sup>, Tenio Popmintchev<sup>E)</sup>,  
Ryoichi Hajima<sup>#, A)</sup>, Keigo Kawase<sup>A)</sup>, Heishun Zen<sup>B)</sup>, Hideaki Ohgaki<sup>B)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>C)</sup>, Takeshi Sakai<sup>C)</sup>,  
Tsuneto Kanai<sup>D)</sup>, Tenio Popmintchev<sup>E)</sup>

<sup>A)</sup> Kansai Institute for Photon Science, National Institutes for Quantum Science and Technology

<sup>B)</sup> Institute of Advanced Energy, Kyoto University

<sup>C)</sup> Institute of Quantum Science, Nihon University

<sup>D)</sup> Institute for Molecular Science

<sup>E)</sup> University of California San Diego

### Abstract

We have launched a research program on attosecond X-ray generation utilizing the extreme nonlinear process of high harmonic generation driven by mid-infrared free-electron lasers (FEL). The team has achieved FEL intensities sufficient for tunnel ionization of electrons in noble gases and has successfully generated high harmonics from solid and gas media at the free-electron laser facilities at Kyoto University and Nihon University. In parallel, the team has been developing mid-infrared lasers with several-cycle pulse duration and carrier-envelope-phase stabilization for enhanced attosecond control. In this presentation, we will report the recent advances of our research thrust.

### 1. はじめに

高強度レーザーを気体に集光した時に高次高調波が発生する現象は、High-Harmonics Generation (HHG)として知られており、物質中の超高速現象を観測するアト秒 X 線源として研究されている。われわれは、赤外で動作する共振器型自由電子レーザー (FEL) を用いた HHG 光源を提案し、その基盤技術の確立を目指して、京都大学および日本大学の FEL 施設を使った研究を進めている。

これまでの HHG 研究は、固体レーザーを用いて行われてきた。固体レーザーに代えて FEL を使う利点は二つある。ひとつは、MHz の高い繰り返しで動作できること、もうひとつは、中赤外の広い領域で任意の波長を選んで動作できることである。HHG で発生できる最高次数の高調波のエネルギー (カットオフエネルギー) は入射するレーザー波長に依存し、レーザー波長の 1.7 乗でカットオフエネルギーが大きく (波長が短く) なることが実験と理論で示されている[1]。

赤外領域の FEL は、共振器型の構成で多くが建設されてきた。FEL パルスの繰り返しは共振器長で決まるが、共振器を複数の FEL パルスが往復するような運転も可能である。さらに、超伝導加速器を用いれば CW の運転を実現できる。

共振器 FEL の光パルスは電子バンチのショットノイズを種光として増幅、飽和に至るため、光パルスの電場位相 (carrier envelope phase: CEP) を制御することはできないと考えられていたが、外部に用意したシードレーザーを用いることで CEP を制御する手法が提案された[2]。これにより HHG の安定な動作が可能となる。

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) の支援をうけて、FEL で駆動する

高繰り返しアト秒光源 (FEL-HHG) の研究を 2018 年にスタートした。京都大学エネルギー理工学研究所の KU-FEL (波長 = 3.5 - 23  $\mu\text{m}$ ) および、日本大学理工学部の LEBRA-FEL (波長 = 0.3 - 5  $\mu\text{m}$ ) を利用して研究を行っている。これまでに、高効率の FEL 動作と超短パルス生成が可能な超放射発振の実証[3]、パルス波形、集光強度の確認[4,5]を行い、両施設にて、固体、および、気体からの高調波発生に成功している。2025 年 7 月には、Q-LEAP プログラム 8 年目冒頭のステージゲート審査を通過し、順調に研究が進捗している。本稿では直近 1 年の成果を中心に、われわれの研究を紹介する。

### 2. 気体高調波発生における位相整合

気体の高次高調発生では、入射レーザーと高調波が気体中で等しい位相速度を持つときに、光路に沿って発生する高調波が互いに強められる。すなわち、気体高調波発生実験では、入射レーザーと高調波の「位相整合」を取ることが必要となる [6]。

光の波長によって位相速度が異なる現象は、波長分散として定義されるが、気体中における分散は、中性原子による分散 ( $\Delta k_{atoms}$ )、プラズマによる分散 ( $\Delta k_{plasma}$ )、回折、導波路の幾何学条件による分散 ( $\Delta k_{geom}$ ) の和となる。

$$\Delta k = \Delta k_{atoms} + \Delta k_{plasma} + \Delta k_{geom} \quad (1)$$

KU-FEL、LEBRA-FEL では、窒素、酸素、アルゴンから発生する低次の高調波 (可視光領域) が観測されている。これらの実験では気体が正常分散を示すため、上式右辺の 3 つの項がすべて正の値をとり、 $\Delta k = 0$  とすることはできない。しかしながら、気体の圧力 ( $p$ ) を適切な値に選ぶことで、有限の相互作用長 ( $L$ ; ガスセル長) にわたる位相整合の積分値  $F_q(p, L)$  を極大とすることができる

<sup>#</sup> hajima.ryoichi@qst.go.jp

[7].

$$F_q(p, L) = \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{1}{Z_r} \left(1 + \frac{z'}{Z_r}\right)^{1-q} e^{-i\Delta k_q(p)z'} dz' \quad (2)$$

ここで、 $Z_r$ はレーリー長、 $q$ は高調波の次数、 $\Delta k_q(p)$ は圧力 $p$ における入射レーザーと高調波の位相の不整合である。

(2)式に基づいて、FEL波長 $2\ \mu\text{m}$ 、ガスセル長を $2\ \text{mm}$ とした場合について、集光点のレーリー長を $15\ \mu\text{m}$ 、 $30\ \mu\text{m}$ とした時の気体圧力と3次高調波パルスエネルギーの関係を計算した結果をFig. 1に示す。圧力が $10\text{--}15$ 気圧で位相整合が最適化され、強い高調波が生成できることがわかる。

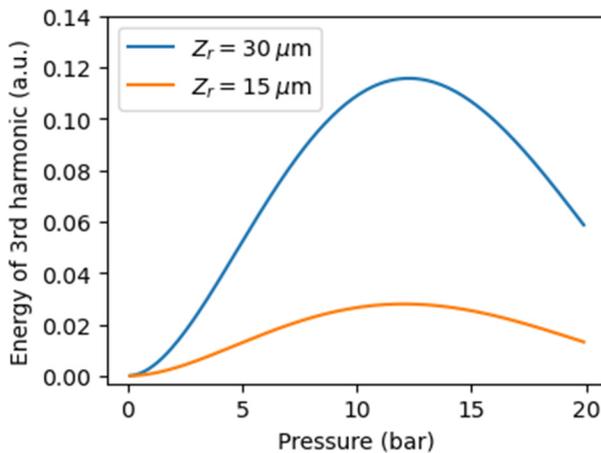


Figure 1: Energy of third harmonic versus the gas target pressure calculated by Eq. (2). The two curves show the calculation results when the focal Rayleigh length is set to  $30\ \mu\text{m}$  and  $15\ \mu\text{m}$ , respectively.

### 3. 気体高調波発生実験(LEBRA-FEL)

LEBRA-FELでは、 $2\ \mu\text{m}$ のFEL波長にて、気体高調波発生実験を行っている。これまでの実験では、気体高調波に迷光が混じりこむ現象が見られたが、2025年7月の実験にて迷光の除去に成功した。

気体高調波は入射レーザーが直線偏光の場合に発生し、円偏光では発生しない。実験では、FEL(波長 $2.13\ \mu\text{m}$ )の光路に $1/4$ 波長板を挿入し、FELパルスを直線偏光から円偏光に切り替えながら、焦点距離 $25\ \text{mm}$ の $\text{CaF}_2$ 非球面レンズでFELパルスを集光した際に大気から発生する高調波(3次光)を光電子増倍管で測定した。3次光のみを検出するために、光電子増倍管にはバンドパスフィルター(中心波長 $710\ \text{nm}$ 、バンド幅 $10\ \text{nm}$ )を装着した。Figure 2は $1/4$ 波長板の回転角度と高調波強度(ターゲットガスは大気)の相関である。高調波強度はマクロパルス中で変化する、また、マクロパルス毎に変動するが、ここでは、マクロパルス中の最大値をサンプルし、 $100$ 個のマクロパルスにおける平均値に標準偏差のエラーバーをつけてプロットした。

FELパルスが直線偏光、楕円偏光、円偏光と変わるに

つれて、高調波強度が周期的に変化する様子が確認できた。この結果から、測定された高調波はFELにもともと含まれる高調波ではなく、気体高調波であることがわかる。

窒素をターゲットガスとした時の、ガス圧と高調波強度の相関を測定した結果をFig. 3に示す。実験では、外径 $1/4$ インチの銅管を内径が $2\ \text{mm}$ となるように扁平につぶし、小孔(直径 $1\ \text{mm}$ )をあけたチューブターゲットを用いた。実験機器の制約上、 $6$ 気圧までのデータしか取れなかったが、高調波強度の圧力依存性が見えており、位相整合を反映していると考えられる。

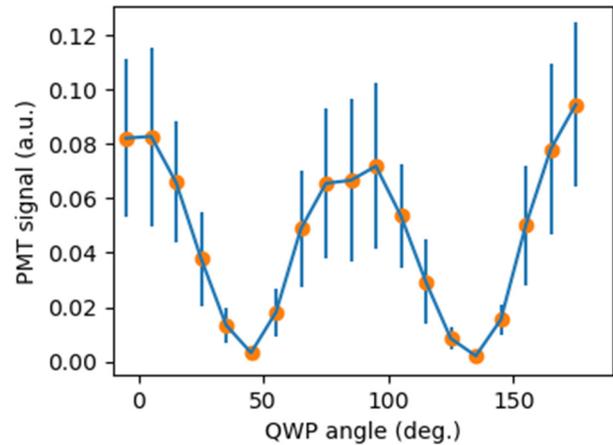


Figure 2: Correlation between third harmonic signals from the atmosphere obtained by a photomultiplier tube and the angle of the quarter wave plate (QWP).

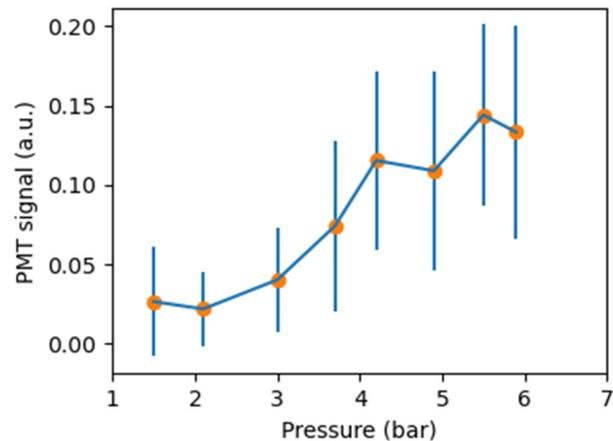


Figure 3: Third harmonic signals obtained by a photomultiplier tube versus the pressure of nitrogen in the tube target.

### 4. 気体高調波発生実験(KU-FEL)

KU-FELでは、これまで $4.5$ セルRF電子銃の光陰極運転を利用して主に波長 $5\ \mu\text{m}$ のFELパルスを用いて高調波発生実験を行ってきた。Q-LEAPプログラムでは、FELパルスエネルギーの増大を目的として、新規電子銃( $1.6$ セル光陰極RF電子銃)の製作を行った。2024年度

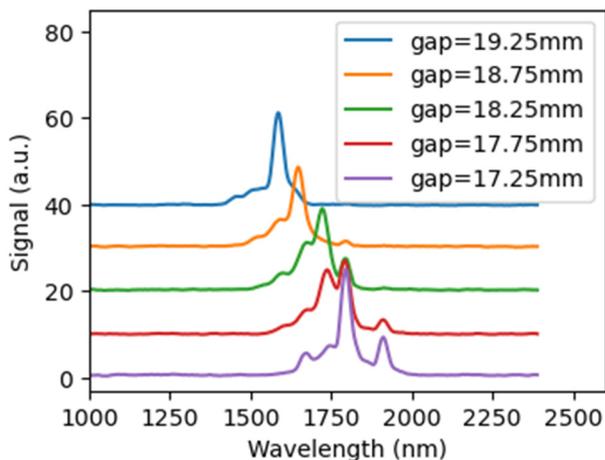


Figure 4: Third harmonic spectra for different undulator gaps.

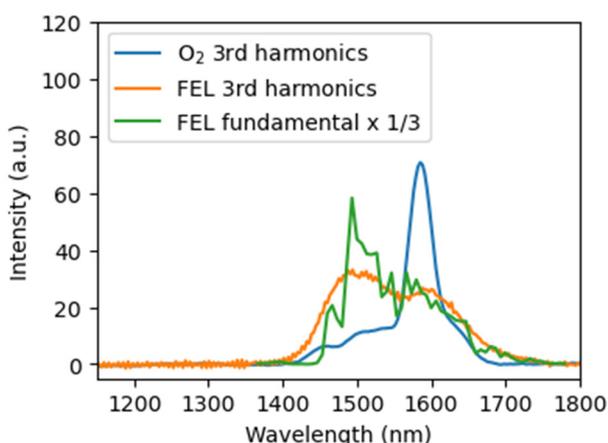


Figure 5: Spectra of the third harmonic from oxygen, third harmonic contained in the FEL pulses, and the FEL fundamental wavelength scaled by 1/3.

に新規電子銃の光陰極運転が可能となったため、これを利用した気体高調波発生実験を開始した。

実験では、FEL 自身が含む高調波をカットするためのロングパスフィルター (LPF) を FEL 光路に挿入、その下流に焦点距離 25 mm の  $\text{CaF}_2$  非球面レンズを設置し、FEL パルスをチューブターゲットに集光した。ターゲットには、酸素を導入し、気体圧力を変えながら、発生する高調波を測定した。

Figure 4 は、酸素 (6.5 気圧) から発生した 3 次高調波スペクトルを、アンジュレータギャップを変えながら (FEL 波長を変えながら)、近赤外用分光器 (Ocean Optics NIRQuest) で測定した結果である。3 次高調波の波長が FEL 波長の変化に追従している様子が見てとれる。

気体高調波のスペクトルは、FEL にもともと含まれる高調波のスペクトルと異なっており、また、FEL 基本波のスペクトルを単純にスケールしたものと異なっている。Figure 5 にアンジュレータギャップが 19.25 mm の時の気体高調波、FEL 高調波、FEL 基本波を 1/3 にスケールしたスペクトルを示す。気体高調波は、FEL 強度の大きな

マクロパルス後半で強く出ると考えられること、FEL マクロパルスの後半では中心波長が長波長側にシフトすることで、これらスペクトルの違いを定性的に説明できるが、より詳しい解析は今後の課題である。

## 5. まとめ

赤外領域で動作する共振器型自由電子レーザーを用いたアト秒 X 線源の研究について直近 1 年の進捗を報告した。日大、京大の FEL 施設では、気体からの高調波発生実験を進め、可視光領域での高調波スペクトル、高調波パルスエネルギーと気体圧力の相関を取得した。日大では、Q-LEAP 専用実験室の整備が完了し、また、京大では、新規電子銃による FEL 実験が可能となった。今後は、これらインフラを有効活用して VUV、X 線領域の高調波発生とともに、別途開発を進めている FEL パルスの位相安定のためのシードレーザー [8] を組み合わせた実験を計画している。

## 謝辞

本研究は文部科学省平成 30 年度光・量子飛躍フラッグシッププログラム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, 1287 (2012). doi:10.1126/science.1218497
- [2] R. Hajima and R. Nagai, “Generating carrier-envelope-phase stabilized few-cycle pulses from a free-electron laser oscillator”, *Phys. Rev. Lett.* 119, 204802 (2017). doi:0.1103/PhysRevLett.119.204802
- [3] H. Zen, R. Hajima and H. Ohgaki, “Full characterization of superradiant pulses generated from a free-electron laser oscillator”, *Scientific Reports* 13, 6350 (2023). doi:10.1038/s41598-023-33550-z
- [4] H. Zen, R. Hajima and H. Ohgaki, “Nonlinear compression of naturally down-chirped superradiance pulses from a free-electron laser oscillator by thick germanium plates”, *Optics Express* 31, 40928 (2023). doi:10.1364/OE.503090
- [5] K. Kawase *et al.*, “Beam characterization of mid-infrared free electron laser to drive high-harmonic generation”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 63, 072001 (2024). doi:10.35848/1347-4065/ad5425
- [6] T. Popmintchev *et al.*, “Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the spectrum”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* 106, 10516-10521 (2009). doi:10.1073/pnas.0903748106
- [7] B. V. Rumiantsev *et al.*, “Effect of the length and pressure of a gas jet on optical harmonics generation by 4.5- $\mu\text{m}$  femtosecond laser radiation of a Fe:ZnSe laser system”, *JETP Lett.* 116, 683 (2022). doi:10.1134/S0021364022602123
- [8] K. Kawase *et al.*, “Evaluation of the phase-locking system for the synchronization between the midinfrared free electron laser and the fiber laser”, in *Proc. of 22nd Annual Meeting of PASJ, Tokyo, Japan, 2025.*