

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 9 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18H03691

研究課題名(和文)スリッページ制御による自由電子レーザーの短パルス化

研究課題名(英文)Shortening the free electron laser pulse by controlling the slippage effect

研究代表者

田中 隆次(Tanaka, Takashi)

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・グループディレクター

研究者番号：30321780

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題は、自由電子レーザー(FEL)のパルス長を、理論極限である単一サイクルに圧縮する新たな発振原理の実証を目的とする。短パルスレーザー(波長800nm、パルス幅12fs)をシード光としてシード型FEL過程によって波長400nm(2倍波)のコヒーレント光を生成し、アンジュレータに磁場勾配を与えることで狭帯域化することに成功した。さらに、相互相関法によって評価したコヒーレント光のパルス幅が100fs程度であり、光輸送系の分散の影響を考慮した計算に基づく予測値と大きな矛盾が無いことが確認された。これらの実験結果により、単一サイクルを可能とする基本原理の実証という目標に到達したと結論できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題で実証を目指した新たなFEL発振原理は、従来の原理では不可能な、単一サイクルFELを実現するための基本原理である。FELは、従来の光学レーザーでは不可能な波長領域をカバーするための重要な光源であるが、その短パルス化にはスリッページによるパルス伸長という根本的な問題が最大の障壁として存在していた。今回、上記原理を実験的に実証したことにより、FELにおける短パルス化、特にスリッページが律速となる究極的な条件における短パルス化の実現が視野に入ってきたことで、FELによる高出力アト秒パルスの生成や、それを光源として利用した新たな科学の展開が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The goal of this project is to experimentally demonstrate a new free electron laser (FEL) concept, which enables to shorten the FEL pulse length down to the theoretical lower limit, namely, to a single cycle pulse. Using a short-pulse laser with the wavelength of 800 nm and pulse length of 12 fs as seed light, we successfully generated coherent radiation with the wavelength of 400 nm, and achieved spectral broadening by applying a field gradient in the undulator. The pulse length of the coherent radiation evaluated by means of a cross-correlation technique was of the order of 100 fs, which is consistent with a theoretical prediction that takes into account the effects of the large dispersion in the transport line. The above experimental results strongly suggest the validity of the new FEL concept to realize the single-cycle FEL.

研究分野：放射光源開発

キーワード：自由電子レーザー 短パルスレーザー コヒーレント放射 アンジュレータ 蓄積リング

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) パルスレーザーを利用して高速な現象を調べるためには、発光時間(パルス幅)が十分に短く、明るい光源が必要である。このため、パルス幅の圧縮はレーザー工学分野における最重要課題の一つであり、その極限の形態「モノサイクルパルス」では、発光している間に光の波がわずか1回だけ振動する。即ち、1波長に相当する時間までパルスが圧縮されている。例えば、波長800 nmのモノサイクルパルスは約3フェムト( $3 \times 10^{-15}$ )秒のパルス幅を有する。最近では「高調波発生(High Harmonic Generation: HHG)」、即ち、高度に集光した超短パルスレーザーを希ガスなどのターゲットに照射することで発生する、数100アト秒というパルス幅を持つ光パルス(アト秒パルス、1アト秒は $10^{-18}$ 秒)が利用可能となってきた。一方、これら従来の技術に基づいて10 nm以下の波長でモノサイクルパルスを生成し、パルス幅数10~数アト秒といった領域にまで到達するには、理論的・技術的に困難な挑戦的課題を克服する必要があることは容易に想像できる。そこで期待されるのが、従来とは全く異なる原理で発振する「X線自由電子レーザー(X-ray Free Electron Laser: XFEL)」である。

XFELでは、アンジュレータと呼ばれる装置が発生する周期磁場によって蛇行する高エネルギー電子ビーム、より詳細には、発振波長と同じピッチで密度が等間隔に変調された領域(マイクロバンチ)が透明な発振媒体として機能するため、原理的にはいかなる波長帯でも発振が可能であり、電子エネルギーとアンジュレータのパラメータを調整することによって発振波長を任意に選択できる。2017年の時点で、日本のSACLAや米国のLCLSを始めとする、波長0.1~10 nmのX線レーザーを供給するXFEL施設が稼働中であり、光合成に関与する重要なタンパク質の構造解明や、X線領域における新たな非線形光学現象の発見などの成果創出に貢献している。しかしながら、既存のXFEL施設において到達可能な最短パルス幅は高々数フェムト秒であり、赤外レーザーのそれと同程度に到達しているに過ぎない。XFELをさらに短パルス化するには様々な技術的課題があるが、仮にこれらを全て解決したとしても、XFELで到達可能なパルス幅の下限はモノサイクルには遠く及ばない。これは、電子と光の速度に僅かな差があり、アンジュレータ1周期を電子が進む際に光が1波長分だけ前方に進むためであり(光のスリッページ効果、及びそれに伴うパルス伸長)、XFELの短パルス化を妨げる最大の要因となっている。

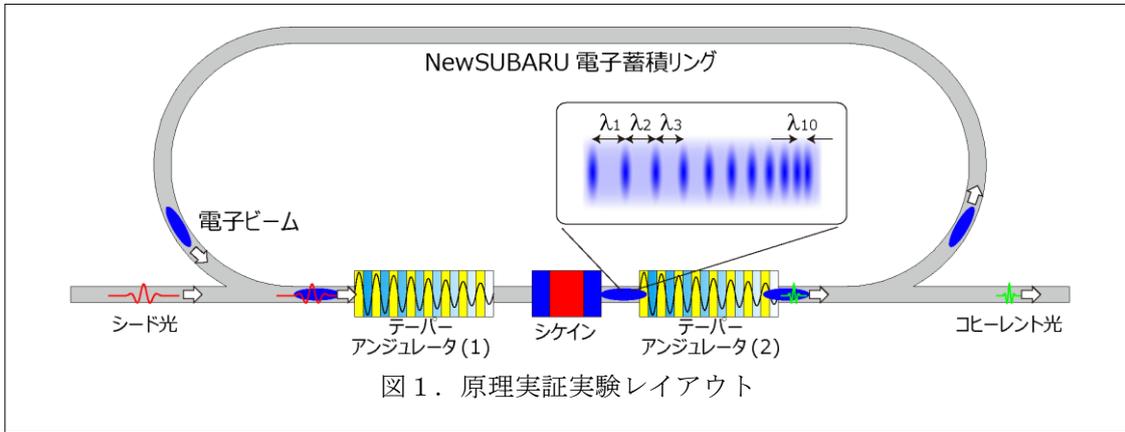
(2) 上記の問題を解決するために、我々はシード型FELと呼ばれる発振方式においてモノサイクルパルスの生成が可能な新たなFEL手法を考案し、2015年に誌上発表を行った。本手法では、粗密の間隔が徐々に変化する密度変調(=チャープマイクロバンチ)を電子ビームに誘起し、これを、磁場振幅が徐々に変化するテーパーアンジュレータに入射する。この場合、スリッページによるパルス伸長効果が抑制されるため、マイクロバンチのチャープ率及びアンジュレータの磁場変化率を調整することによって出力パルスのパルス幅が制御可能であり、究極的にはモノサイクルパルスの生成が期待できる。本手法の有効性は数値計算に基づく理論研究で明らかとなっていたものの、実用化へと進むためには実験的手法による実証が必要不可欠な状況であった。また研究開始当初の段階では、本手法によって得られるXFELパルスには無視できない強度のサテライトパルスが含まれると共に、位相やパルス幅等の制御は不可能な状況であった。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、(1)上述した「スリッページ効果の抑制によるパルス幅制御」という基本原理を実験的に実証すること、及び、(2)これまでの理論研究をベースとして、上記で述べた基本原理を拡張し、その課題を解決する新たな概念を確立することである。これらの研究開発を通じて、本手法に基づくXFEL光源を実用化すると共に、それを利用した応用研究へ展開することを最終目標とする。

### 3. 研究の方法

(1)実証実験は、兵庫県立大学が運用する放射光施設NewSUBARUの電子加速器において行った。同加速器は高品質な電子ビームを供給すると共に、レーザー導入用のポートを備えており、実証実験に適した蓄積リングである。図1に実証実験における機器レイアウトを示す。本研究課題において整備並びに新規製作が必要な機器は、赤外短パルスレーザー、2台の可変テーパーアンジュレータ及び磁場シケイン、輸送光学系と診断機器、電子ビームと上記レーザーの時間同期システムであり、さらに新設したテーパーアンジュレータの運転に必要な加速器パラメータの最適化が必要である。シード光としてレーザーポートから赤外短パルスレーザーを導入し、1段目のテーパーアンジュレータで電子ビームと相互作用し、エネルギー変調を誘起する。エネルギー変調された電子ビームは、シケイン通過後にチャープマイクロバンチを形成した後、2段目のテーパーアンジュレータを通過する際にスリッページ効果が緩和されたコヒーレント放射を発生する。実験ホールに設置された光計測系でコヒーレント光の特性評価を行い、パルス幅がテーパーアンジュレータの磁場変化率と相関することを確認する。

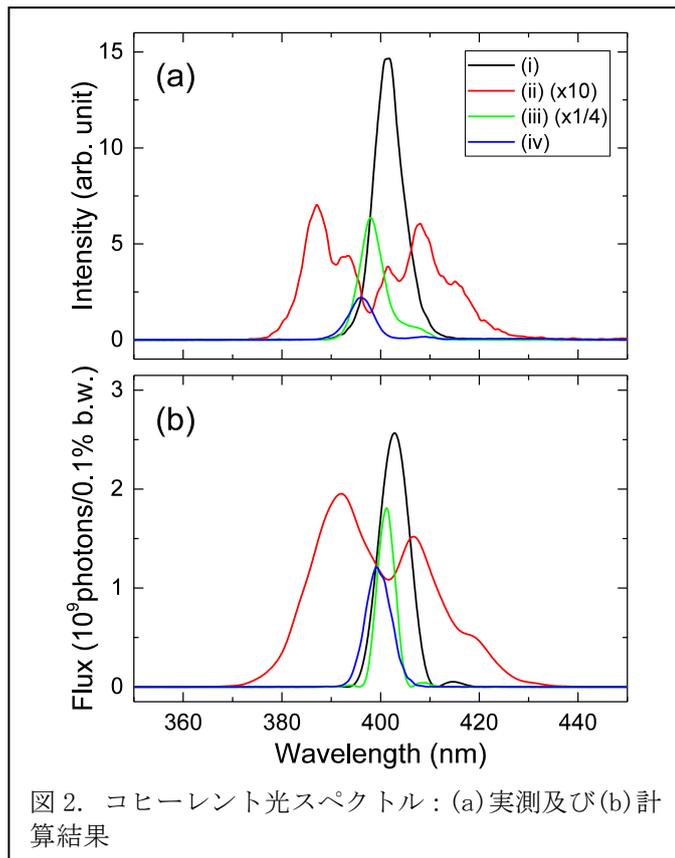


(2)上記実証試験と並行して、本手法に基づく XFEL 光源の実用化に向けた理論検討を行った。基本原理の課題を克服する可能性のある新たな概念を考案し、その妥当性や期待される光源性能について検証を行った。定性的な検証に加えて、定量的な光源性能の評価が可能な数値計算コードの開発を行い、その実用性について検討を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 短パルスシールド光とテーパアンジュレータによる広帯域化

集光した波長 800nm (パルス幅 48fs) の赤外シールドレーザーを、希ガスを充填した中空ファイバへ導入することによって広帯域化し、さらにチャープミラーで 12 フェムト秒 (4 サイクル程度) にまで圧縮した。この短パルス光をシールド光として利用し、HGHG (High Gain Harmonic Generation) と呼ばれるシード型 FEL 方式によって、波長 400nm (2 次光) のコヒーレント光を生成することに成功した。アンジュレータ下流側のビューポートから取り出したコヒーレント光のスペクトル測定の結果を図 2(a-i)に示す。次に、2 台のアンジュレータにテーパを加え、0.029 (m<sup>-1</sup>)の磁場勾配を与えた状態でコヒーレント光を生成し、本手法における基本原理であるスリッページ抑制効果の実証を試みた。この結果、図 2(a-ii)に示すように、テーパ適用によってコヒーレント光のスペクトルのバンド幅が 4 倍程度広がっていることが確認された。これは、磁場勾配が無い通常の発振状態(a-i)に比べて、パルス幅が 1/4 程度に圧縮されていることを示唆する。また、中空ファイバを排気して元の状態 (パルス幅 48fs) で同様の測定をした結果、テーパ適用による広帯域化は確認されなかった。測定結果を図 2(a-iii)、(a-iv)に示す。即ち、テーパによる短パルス化はシールド光のパルス幅が十分に小さい時にのみ有効であり、パルス幅が長い狭帯域シールド光では機能せず、コヒーレント光の強度が失われるのみであることを意味する。図 2(b)に示す数値計算結果はこれらの傾向をよく再現している。



##### (2) 相互相関法によるコヒーレント光のパルス幅評価

上記のスペクトル測定による原理実証に加えて、相互相関法によってコヒーレント光のパルス幅評価を行い、上記実証実験結果の検証を行った。ビューポートから取り出したシールド光とコヒーレント光を光学定盤に設置した相互相関器で合成し、これらの和周波で生成された波長 267nm (3 次光) の光強度を、両者の遅延時間の関数として測定した結果を図 3 に示す。短パルスシード (12fs) を利用し、テーパの有無のそれぞれの条件について計測を行った結果、相互相関強度の時間幅として 220fs、及び 350fs という結果が得られた。自己相関法によって計測されたシ

ード光のパルス幅（ビューポートのガラス材による分散で 200fs に伸長）をデコンボリューションすることで求まるコヒーレント光のパルス幅は、それぞれ 100fs、290fs と評価された。これらは、ビューポートガラス材及び空気の群遅延分散 (fs<sup>2</sup>) と、数値計算で求まるコヒーレント光の電場形状を考慮して得られる値と比べても大きな矛盾は無い。

上記(1)及び(2)の実験結果や計算による再現は、本実証実験の妥当性を示すものであり、これをもって、本研究課題の目標(1)が達成されたと結論できる。

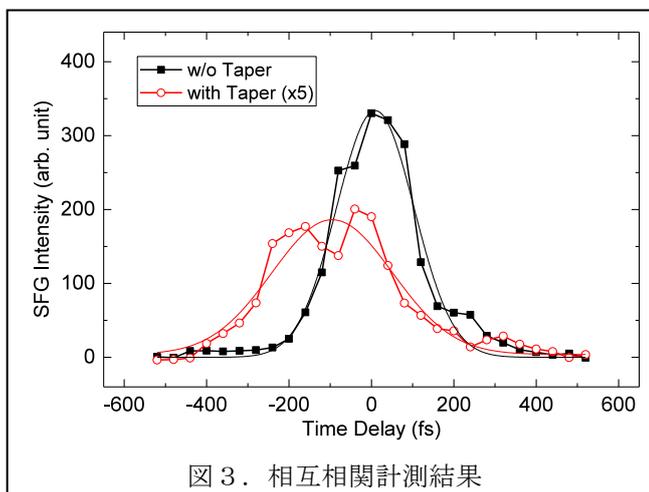


図 3. 相互相関計測結果

### (3) 波形制御可能な孤立アト秒パルスを生成する FEL 手法の確立

上記の実証実験と並行し、本手法の基本原理解について更なる理論的検討を続けた結果、特殊な磁場形状を有するアンジュレータ（複合機能型アンジュレータ）を利用することで、従来の基本原理の課題を克服し、その機能を拡張する方式を見出した。この新たな方式はサテライトパルスの抑制や、孤立した数サイクルアト秒パルスの生成と制御、さらにはダブルパルスの生成など、各種応用に重要な機能を有している。定性的な検証でその妥当性を確認した後、新たに開発した数値計算コードを用いて、その光源性能を理論的に検証した。図 4 にこの新たな方式を適用した際に期待されるアト秒パルスの制御性を示す。この例では、パルス幅（中心波長）の可変性(a)、キャリアエンベロープ位相とサイクル数の制御性(b)、及びダブルパルスの生成と遅延時間の制御性(c)が示されている。我々が把握する限り、アト秒パルスをこのように柔軟に制御する方法は存在せず、この新方式の実用化により、アト秒科学のさらなる進展が期待できる。

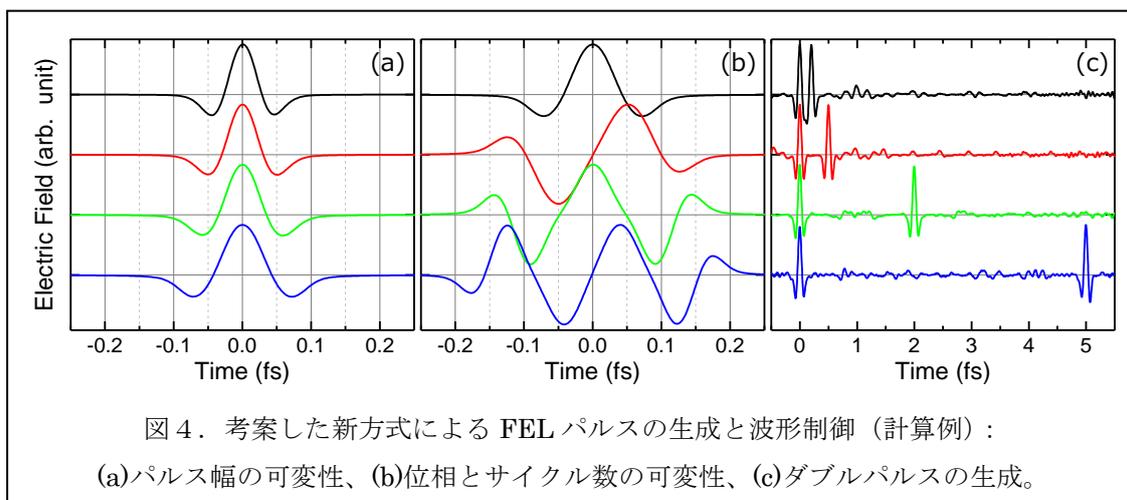


図 4. 考案した新方式による FEL パルスの生成と波形制御（計算例）：

(a)パルス幅の可変性、(b)位相とサイクル数の可変性、(c)ダブルパルスの生成。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Takashi Tanaka and Primoz Rebernik Ribic	4. 巻 47
2. 論文標題 Proposal to generate a pair of intense independently tunable attosecond pulses from undulator radiation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 1411-1414
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.452357	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takashi Tanaka, Yuichiro Kida, Ryota Kinjo, Tadashi Togashi, Hiromitsu Tomizawa, Satoshi Hashimoto, Shuji Miyamoto, Sumiyuki Okabe and Yoshihito Tanaka	4. 巻 28
2. 論文標題 Development of an undulator with a variable magnetic field profile	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 404-409
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1107/S1600577521000989	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Primoz Ribic and Takashi Tanaka	4. 巻 45
2. 論文標題 Isolated single-cycle extreme-ultraviolet pulses from undulator radiation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 5234-5237
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.401977	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takashi Tanaka and Primoz Ribic	4. 巻 27
2. 論文標題 Shortening the pulse duration in seeded free-electron lasers by chirped microbunching	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 30785-30892
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.27.030875	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Takashi Tanaka	4. 巻 22
2. 論文標題 Electron bunch compression with an optical laser	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Accel. Beams	6. 最初と最後の頁 110704-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.110704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tanaka Takashi	4. 巻 21
2. 論文標題 Universal representation of undulator phase errors	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Accelerators and Beams	6. 最初と最後の頁 110704-1-16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevAccelBeams.21.110704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tanaka Takashi	4. 巻 43
2. 論文標題 Difference frequency generation in free electron lasers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 4485-4488
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.43.004485	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Takashi Tanaka
2. 発表標題 Generation and Control of Attosecond Pulses
3. 学会等名 Attosecond to Few-Femtosecond Ultrafast Science at Future FELs (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Tanaka
2. 発表標題 Generation of Short-Pulse FELs: Proposal
3. 学会等名 Advanced FEL Technologies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 アンジュレータ位相誤差の普遍的表式と系統的な不整磁場への適用
3. 学会等名 日本加速器学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 差周波FEL(自由電子レーザー)による新たな光源の可能性
3. 学会等名 HiSOR研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 自由電子レーザーの短パルス化と将来展望
3. 学会等名 第15回AMO討論会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 ニュースバルにおける単一サイクル自由電子レーザー原理実証実験計画
3. 学会等名 第15回日本加速器学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 X線自由電子レーザー-SACLAの短パルス化と将来展望
3. 学会等名 第2回レーザー学会「ユビキタス・パワーレーザー」専門委員会、第2回科学技術交流財団「マイクロ固体フォトンクス」研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takashi Tanaka
2. 発表標題 Infrared Synchrotron Radiation (IRSR) in Storage Rings: Limitations and New Possibilities
3. 学会等名 SPring-8先端利用技術ワークショップ～強磁場中顕微赤外分光と高輝度放射光施設における赤外ビームラインの展望～（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 XFELを単一サイクル化する新たな原理と蓄積リングにおける実証計画
3. 学会等名 PF研究会「高繰り返し極短パルス光源の未来」（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中隆次
2. 発表標題 ニュースバルBL01 における単一サイクルFEL 原理実証計画
3. 学会等名 ニュースバルシンポジウム2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	貴田 祐一郎  (Kida Yuichiro)  (70553486)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・加速器部門・研究員   (84502)	
研究分担者	田中 義人  (Tanaka Yoshihito)  (80260222)	兵庫県立大学・理学研究科・教授   (24506)	
研究分担者	橋本 智  (Hashimoto Satoshi)  (80285337)	兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・准教授   (24506)	
研究分担者	金城 良太  (Kinjo Ryota)  (50790862)	国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・研究員   (82401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------