

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600149

研究課題名(和文)フェムト秒時間分解能E0サンプリング計測のための超広帯域プローブ光源開発

研究課題名(英文)Development of ultrabroadband probe pulse for E0-sampling measurement

研究代表者

小川 奏 (OGAWA, KANADE)

独立行政法人理化学研究所・放射光科学総合研究センター・特別研究員

研究者番号：80634352

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、フェムト秒電子バンチの形状を明らかにするためのElectro-Optic(E0)サンプリング法による電子バンチ計測に用いるプローブレザー光の開発である。本計測法に必要な広帯域で平坦なスペクトル形状のチャープパルスを、超広帯域光発生や位相補償、波形整形技術、光パラメトリック増幅などを用いて開発を行った。Nd:YAGレーザーの2倍高調波を用いた増幅実験を行い、スペクトルが帯域100nmに渡って平坦でパルスエネルギー38uJのチャープパルスが得られ、E0サンプリング計測に使用可能なプローブ光を開発するという目標は達した。

研究成果の概要(英文)：We developed the ultra broadband probe pulse for electron bunch measurement with E0-sampling technique. In this measurement, ultra broadband and flat-top shaped spectrum chirped pulse is necessary. So, using the super-continuum generation, phase compensation, pulse shaping, and optical parametric amplification, we developed the probe pulse. The pulse of ultra broadband spectrum is generated by Ti:Sapphire oscillator and photonic crystal fiber. The pulse is amplified with BBO crystal and second harmonics of Nd:YAG laser. In result, we obtained the over 100 nm bandwidth of flat-top spectrum and 38 uJ pulse energy.

研究分野：レーザー

キーワード：非線形光学 光パラメトリック増幅

1. 研究開始当初の背景

理化学研究所の X 線自由電子レーザー (XFEL) SACLA では、高い空間コヒーレンスを有した高強度 X 線パルスを様々な実験に対して安定的に高い品質で提供している。このような高品質な X 線パルスを得るには、もともとなる電子バンチにも高い品質が求められる。このため SACLA の加速器では高い精度での温調や多数のビームモニタによる計測、調整などによって極めて安定した電子ビームの提供を可能にしている。しかし、今後より高度な実験を担っていくためには電子バンチの形状をより詳細に、しかもバンチごとにリアルタイムで明らかにする必要がある。このため、フェムト秒の電子バンチ長の正確な計測を非破壊で可能にする新しい計測技術の開発が急務である。

XFEL で使用している電子ビームのバンチ長は半値全幅 30 fs 以下と見積もられており、現在一般的に用いられているストリークカメラの分解能は約 300 fs であることから、これによってバンチ長を直接計測することは不可能である。また電子バンチを曲折させて空間的にバンチ長を計測するディフレクターによる方式では、十分な空間分解能を得るためには長大化せざるを得ない。現実的なスケールで対応可能な電子ビームエネルギーは 1 GeV 程度であり、XFEL の 8 GeV の電子ビームの計測に使用することは難しい。さらにこれらの方法では非破壊かつリアルタイムな計測を行う事はできない。そこでこれらの問題を解決する次世代の電子バンチ計測として、Electro-Optic (EO) サンプリング法による電子バンチ計測が世界的に研究、開発されている。フェムト秒電子バンチ計測が可能な分解能をもった EO サンプリングの実現は、XFEL パルスの高品質化だけでなく利用実験の信頼性向上にも大きく貢献するものとして期待できる。

2. 研究の目的

EO サンプリング法とは、電子ビーム軸近傍に設置した電気光学素子 (EO 結晶) に電子バンチと同時にプローブ光を入射することで、電子バンチ形状をプローブ光へと転写する手法である。具体的には、電子バンチが通過するとき発生するクーロン電場によってプローブ光のスペクトルが偏光変調されたものを偏光子などによって強度変調へ変換、計測器により復調することで元の電子バンチ形状を計測する。また前述のように、EO 結晶は電子ビーム軸内に設置されるわけではないため、電子バンチに影響を与えず形状をリアルタイムで計測可能である。この EO サンプリングに必要なプローブレーザー光であるが、フェムト秒分解能を得るための広帯域 EO プローブ光パルスが存在しないために、モニターとして実現していない。EO サンプリング計測における時間分解能 T_{Res} は、 $T_{Res} \sim (\tau_0 \tau_c)^{1/2}$ で表される。ここで τ_0 はフー

リエ限界でのパルス幅で、 τ_c はプローブ光のパルス幅である。300 nm (FWHM) 以上の帯域 (フーリエ限界パルス幅 ~ 2.6 fs) では、300 fs (FWHM) 以下の線形チャープパルスを生成する必要がある。このような精密制御プローブ光を得るため、これまでにない超広帯域光の発生技術と増幅技術、さらに様々な光学素子を組み合わせた波形整形技術と位相補償技術からなる整合性のとれたシステム開発を行う。

3. 研究の方法

本研究の目的は、フェムト秒電子バンチの形状を明らかにするための Electro-Optic (EO) サンプリング法による電子バンチ計測に用いるプローブレーザー光の開発である。このための要素技術開発として、中心波長 800 nm で帯域 350 nm (FWHM) 以上の超広帯域光発生と増幅、波長全域にわたってフラットなスペクトルを生成するための波形整形、帯域全体にわたって線形なチャープを保持するための位相補償を行う必要がある。そこでまず、帯域が 350 nm (FWHM) 以上の超広帯域光を生成する手法としては、光ファイバーによる自己位相変調 (SPM) による広帯域化を利用する。近年フォトニック結晶ファイバー (PCF) の登場によって、フェムト秒レーザー発振器の種光でもオクターブにおよぶ帯域の超広帯域光を容易に発生できるようになった。しかしこの波長帯域を保ったまま増幅することは世界でも未だに実現していない。このような超広帯域増幅を行う場合、非線形光学結晶の 1 つで広帯域増幅に適した BBO 結晶を用いた光パラメトリック増幅 (OPA) を行う。BBO 結晶を用いた OPA では増幅光に Nd:YAG レーザーの 2 倍波 (532 nm) を用いることが一般的であるが、この場合得られる増幅帯域は、中心波長 800 nm で半値全幅約 200 nm 程度である。一方、チタンサファイアレーザーの 2 倍高調波 (400 nm) を増幅光とすることで得られる増幅帯域は 250 nm であるが、波長が 500 nm から 750 nm と短波長側にシフトしてしまう。本研究で必要な中心波長が 800 nm で 300 nm (FWHM) 以上の増幅帯域を得るために適した増幅光は、位相整合条件の計算からは波長が 450 nm から 470 nm である。この波長で発振可能なレーザー媒質の検討を行った結果、OPA の増幅光として必要な 100 μ J 以上の高いパルスエネルギーを得ることは困難であることも判明した。本研究では、OPA によって 920 nm 中心の光を増幅し、これの 2 倍波を発生させることで 460 nm の励起光を得る手法を新たに提案し、世界でも解決していないオクターブ級の帯域で増幅可能な手法を技術的に確立する。

また、プローブ光は矩形状のスペクトル形状と線形チャープを同時に実現する必要がある。特に、PCF によって超広帯域化したスペクトルは原理的に凹凸の構造を持ってし

まうため、これを矩形スペクトルにアダプティブに整形する必要がある。これには凹凸の構造が少なくなるようなパラメータや、波形整形と増幅の組み合わせを最適化する制御システムの確立が必要である。一方で全帯域にわたって限りなく線形なチャープを得るため、AO 変調素子やグリズム（回折格子とプリズムから成る位相補償素子）の最適な組み合わせを検討しなければならない。このため、スペクトルや位相を自動計測しフィードバックする機構を設計する。AO 変調器は波形整形と分散補償が同時に行えることから本システムに最適である。計測したスペクトル、位相情報はリアルタイムで演算され、AO 変調器のパラメータとしてフィードバックを行うことで、矩形スペクトルで線形チャープの超広帯域光を得る。特にチャープに関しては、グリズムで全体のチャープを補償することでプローブパルス幅を可変し、AO 変調器によって高次の分散を補償する。

4. 研究成果

(1) まず、PCF による超広帯域光発生とこれによる波形整形を行い、プローブ光の種光を開発した。PCF による超広帯域光発生では、コアサイズ $5 \mu\text{m}$ のファイバーにパルスエネルギー 25 nJ を入射したときに最大帯域 ($600 \text{ nm} - 950 \text{ nm}$) が得られた。PCF によって広帯域化した光は出射側レンズでコリメートされ、AO 変調素子 (DAZZLER) によってスペクトルの整形を行った。以上の結果を示したのが、図1のスペクトルである。黒線で示したのが PCF から出力された広帯域光で 700 nm から 950 nm に渡って広がった整形しやすいスペクトルを利用した。この時の PCF への入射エネルギーは 12 nJ であった。これに AO 変調素子による波形整形を行った結果が点線である。帯域を損なうことなく、フラットトップな形状のスペクトルが得られた。この整形後のスペクトルの面積は元のスペクトルの 12% であった。これは、整形後のスペクトルの上限を整形前のスペクトルが持つ溝構造の最も低いところに合わせたため、広帯域化したときのもとのスペクトルの構造がさらに平滑にすることができれば、より大

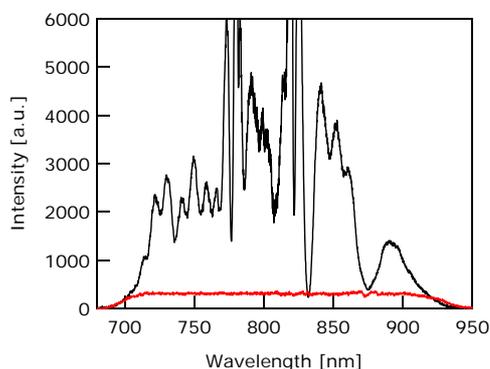


図 1: 超広帯域光発生 (黒線) と波形整形後 (赤線) のプローブ光スペクトル

きい変換効率を得ることは可能である。また、AO 変調素子とその前段に置かれた 2 つのグリズムと後段の 2 つのプリズムから構成された位相変調装置を用いて発振器やファイバーからの 3 次分散を補償し、線形チャープを種光に与えた。これにより、スペクトル形状とチャープが制御可能な理想的なプローブ光の種光が達成された。

(2) 次に種光を半導体レーザー励起 Nd:YAG レーザーの 2 倍高調波 (532 nm) を用いて増幅 (OPA) した時のスペクトルが図 2 である。OPA のための非線形結晶には 800 nm 近辺で広い増幅帯域をとれる Type-1 BBO 結晶を用いた。カット角 23.7 度、結晶長は 5 mm とした。結晶中での励起光と種光の交差角は約 2 度となるよう光軸を配置した。励起のタイミングは粗調として電気的な遅延装置を使用し、微調にはステージにのせた折り返しミラーによる光学遅延で最適化することで、得られたパルスエネルギーは平均で $38 \mu\text{J}$ であった。また、パルスごとのエネルギー揺らぎは RMS で 14% であった。この時の利得はおよそ 10^5 であった。これにより、帯域から分解能は限定的ではあるが、E0 サンプル計測可能なプローブ光の提供が可能になった。パルスエネルギーは十分である一方、パルスエネルギーの揺らぎは 14% と安定とは言えない結果となった。より安定なパルスエネルギーを得るためには、励起光の最適化が必要である。また、増幅後のスペクトルには細かな構造ができています。これはフォトニックファイバーによる広帯域化が起因と考えられる。よりなめらかなスペクトル形状が得られるような広帯域あ条件を検証するほか、サファイア板等を利用した広帯域化など、他の広帯域化の手段とも比較検討を行っていく必要がある。例えば、YAG 基板を用いて発生させた広帯域光をもちいることで PCF 由来の深いスペクトル構造は見られなくなった。しかし YAG 基板で得られた広帯域光の帯域は、増幅の前後共に 100 nm 程度であることから、この手法を用いる場合では帯域 350 nm 以上の超広帯域化に課題が残る。OPA に最適な広帯域光源開発が必要であると考えられる。

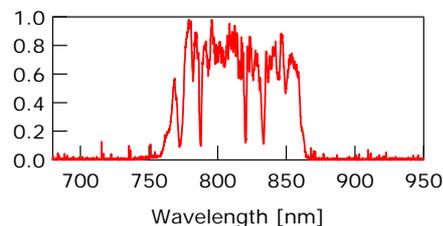


図 2: OPA による広帯域光増幅後のプローブ光スペクトル

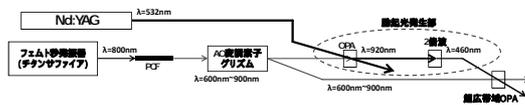


図3:超広帯域 OPA 用 460 nm 励起光開発と、これを用いた超広帯域増幅システムの構成図

(3) OPA の増幅帯域は増幅媒質として使用する非線形結晶の屈折率特性と使用する励起光の波長、そして結晶中での励起光と種光の交差角に依存する。(2)で行った Nd:YAG レーザーの2倍高調波(532 nm)による増幅では、波長750 nmから900 nm程度までが限界であり、これはやや長波長がわでの増幅が得られなかったものの本実験結果とも良く一致している。本研究の目標である800 nm中心で650 nmから広い増幅帯域を得るための理想的な励起光波長はおよそ460 nm近辺である。460 nmの励起光波長を得るため我々は、広帯域化した種光から920 nmの成分を取りだし、これを増幅して2倍高調波を発生させることを考え、次の図3のような構成に拡張することとした。種光から一部を取り出した波長920 nmの光を励起する際には、同様にNd:YAG レーザーの2倍高調波(532 nm)とType-I BBO結晶によるOPAを用いた。このOPAによる利得は 10^6 で、得られたパルスエネルギーは800 μ Jであった。さらにこの光をType-I BBO結晶で2倍高調波発生させることで460 nmのパルスを得た。しかし現状ではパルスエネルギーが見積もりほど得られず、強度不足からか460 nmを用いたOPAは得られなかった。

460 nm光での増幅が得られなかった原因としては、主に励起光強度の不足、空間オーバーラップや時間オーバーラップの不一致などがあげられる。このうち460 nmの強度不足は最も大きな原因であると考えており、このため今後は460 nm光の強度を上げる必要がある。これには、920 nmから460 nmへの変換効率を上げるか、元となる920 nm光のより大きいパルスエネルギーを得ることが必要である。920 nm光のパルスエネルギーを大きくするためには、532 nmによるOPAの増幅段数を増やすことや、より強度の高い種光を使用することを検討している。段数を2段にし、励起光と920 nm光のオーバーラップのタイミングをずらして変換効率を上げることで、2~3倍程度利得を上げることは可能である。また、位相整合の帯域が大きい必要は無いため、Type-II BBO結晶を使用することなども検討する。また、460 nmの位相状態などがOPAを行う事に対して不利な状態になっている可能性も考えられる。元となる920 nmは超広帯域光の一部から切り出して使用している。これが、パルス幅が想定より大きくなっており、励起強度の見積もりと実態が剥離している可能性がある。このため、これ

らの実態を十分に解明する必要がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小川 奏 (Ogawa, Kanade)

独立行政法人 理化学研究所・放射光科学
総合研究センター・特別研究員

研究者番号: 80634352

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

(4) 研究協力者

富澤 宏光 (Tomizawa, Hiromitsu)

公益財団法人高輝度光科学研究センター

松原 伸一 (Matsubara, Shinichi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター

岡安 雄一 (Okayasu, Yuichi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター