

## 高次高調波によるアト秒X線発生のための 中赤外自由電子レーザーの位相安定化方法の提案

### A NEW METHOD FOR STABILIZING CARRIER-ENVELOPE PHASE IN A MID-IR FEL TOWARDS ATTOSECOND X-RAY SOURCES BASED ON HIGH-HARMONIC GENERATION

羽島良一\*、永井良治

Ryoichi Hajima\*, Ryoji Nagai

National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

#### Abstract

Controlling carrier-envelope phase (CEP) of few-cycle laser pulses is necessary for applications such as quantum control of molecular processes, optical frequency combs and high-harmonic generation (HHG). In this paper, a method of CEP stabilization in a FEL oscillator is presented. The method is based on a continuous injection of CEP-stable seed laser pulses into the FEL oscillator. We discuss accuracy of the CEP stabilization under the influence of jitters in the seed laser and the electron beam. Application of the CEP-stable FEL pulses to the generation of attosecond X-ray pulses via HHG is also introduced.

#### 1. はじめに

「レーザーが普通の光と異なる点をあげよ」と言われると、多くの方は、「干渉性（コヒーレンス）」と答えるだろう。1つのレーザービームを2本に分けて空間的にずらして重ねる、あるいは、時間的にずらして重ねた時、2本のビームに干渉が見られることは、それぞれ、空間コヒーレンス、時間コヒーレンスの証左である。自由電子レーザー（FEL）も空間コヒーレンス、時間コヒーレンスを備えている。

時間コヒーレンスは、言い換えれば、レーザー電場が  $E = E(z) \cos(kz - \omega t + \phi)$  の形で表され、その位相が連続していることである。ここで、 $E(z)$  はレーザーパルスのエンベロープを表す複素振幅、真空中では  $k = \omega/c$  である。そして、残った変数  $\phi$  は、0から  $2\pi$  の値をとる定数である。

単一のレーザーパルスを使う限りでは  $\phi$  の値を気にすることなく実験できるし、二本のレーザーを使う場合でも適当なディレイを入れれば位相差を任意の値に固定できるので、やはり、 $\phi$  を気にする必要はない。ところが、エンベロープ  $E(z)$  が急峻に変化する場合は  $\phi$  の値が重要な意味をもつようになる。数サイクルパルスがその代表例である [1]。

Figure 1 に示すような数サイクルの極短パルスでは、パルスのエンベロープに対する電場振動の位相を定義することができ、これをキャリアエンベロープ位相 (carrier-envelope phase; CEP) と呼ぶ。CEP を任意の値に固定する、あるいは、連続するパルスの CEP の変化量を任意の値に固定するといった操作が CEP 制御 (CEP 安定化) である。

レーザーが引き起こす物理過程の中には、レーザー強度ではなく、レーザー電場に依存するものがある。このような物理過程に基づくレーザー応用では、CEP 制御の手法の確立が必須である。固体レー

ザーではこのような手法が確立しており、数サイクルパルスによる量子制御 [2]、高次高調波発生 [3]、広帯域光周波数コム [4] といった応用が広く研究されている。

本稿では、われわれが考案した、FEL における CEP 制御手法 [5] について、その原理を説明し、精度を議論した後、高次高調波によるアト秒 X 線発生への応用可能性を紹介する。

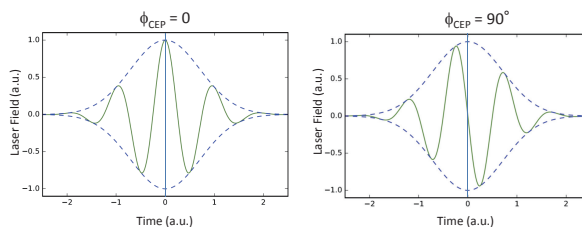


Figure 1: Definition of carrier-envelope phase in a few-cycle laser pulse. The carrier-envelope phase ( $\phi_{CEP}$ ) is 0 for the left figure and 90 degree for the right figure.

#### 2. 共振器 FEL の発振形態と CEP 制御

##### 2.1 FEL 共振器長のデチューニング

RF 加速器で駆動される共振器型 FEL では、電子バンチと光パルスが繰り返し相互作用を行いながら FEL 発振 (増幅、飽和) が起こる。このような相互作用を実現するには、共振器長の二倍が電子バンチ間隔の整数倍に等しくなければならない。この時の共振器の長さを完全同期長と呼ぶ。通常の共振器型 FEL では、共振器を完全同期長からわずかに短くした状態で発振が起こる。これは、FEL の固有モード (時間方向の固有モード) の群速度が真空中の光速よりもわずかに遅いためである。共振器長を短くすることを共振器長のデチューニングという。

蛇行しながらアンジュレータを通過する電子は、

\* hajima.ryoichi@qst.go.jp

光パルスに追い越されていく。アンジュレータ前半で光によるエネルギー変調を受けた電子バンチが、やがて、密度変調を生じアンジュレータ後半で強い光を放射することで、光パルスの後半が増幅される。共振器を短くすることは、この増幅された部分が共振器を往復した後にアンジュレータ入口で電子バンチと重なる状態を作る。その結果、電子バンチに強いモジュレーションがかかり、さらに強い放射が得られ、往復回数とともに指数関数的な光の増幅となる。ここでは、増幅された光パルスを共振器で折り返して再びアンジュレータ入口に戻す「マクロなフィードバック」と、光パルスの後半部を先頭に戻す「ミクロなフィードバック」が働いていることに注目してほしい。

共振器型 FEL では、電子バンチ長、スリップ長、FEL ゲイン、共振器損失、そして、共振器長デチューニングの値によって、定常発振、周期発振（リミットサイクル）、カオス発振が現れることが知られている [6]。

## 2.2 完全同期長発振

共振器長のデチューニングがゼロ、すわなち、共振器の完全同期長のもので、強い発振がおこることが、原研 FEL で観測され、その後、完全同期長発振の以下の特徴が確認された [7, 8]。(1) スリップ長がバンチ長より長い場合に現れる、(2) ゲイン、損失の閾値が存在する、(3) 通常の発振より高い変換効率を示す、(4) 数サイクルの極短パルスが生成される、(5) 飽和にいたるまでの時間が長い。

完全同期長発振では、光パルス後方から前方へのパルス内フィードバックが存在しない。このため、FEL の立ち上がりに時間を要し、また、ゲインと共振器損失に閾値があることになる。

電子と光の相互作用で生成した波長間隔のマイクロバンチが強い光を放射するという描像は、FEL 発振の原理を説明するのによく用いられるが、マイクロバンチが光を放射するのには、二通りの場合がある。バンチ長がスリップ長、コオペレーション長よりも長い場合、マイクロバンチは後方の電子（マイクロバンチ）が放射した光の中で放射を行う。この放射は後方の電子が放射した光に足し合される。SASE 方式の XFEL などが、この場合に当たる。バンチ長がスリップ長、コオペレーション長よりも短い場合、マイクロバンチは光が存在しない自由空間で放射を行う。光の波長以下にプレバンチした電子ビームによるコヒーレント放射などが、この場合に当たる。Bonifacio らは、前者を定常状態発振 (steady-state)、後者を superradiance 発振と呼び、それぞれの場合に、FEL 強度が電子数の 4/3 乗に比例 (steady-state)、電子数の 2 乗に比例 (superradiance) することを示した [9]。

完全同期長発振では、マイクロバンチが自由空間で放射を行う superradiance 発振の場合にあたる。マイクロバンチはエネルギーを失いながら放射を行うので、生成される光パルスは、後方に向かうに従って波長が長くなるダウンチャープを示す。原研 FEL の実験では、2.32 サイクルの極短パルスが生成され、

このパルスが 10% を超えるチャープをもつことが示唆された。

## 2.3 FEL における CEP 制御

FEL の完全同期長発振で生成される数サイクルパルスにて CEP 制御ができれば、固体レーザーと同様に、量子制御、光周波数コム、高次高調波発生などに FEL を利用することができる。

電子ビームのショットノイズを種光として発振する FEL では、飽和後の FEL パルスの位相はランダムとなるが、外部レーザーを種光として発振を行うシングルパス FEL (seeded FEL) では、FEL パルスの位相を制御する試みがなされている。たとえば、FERMI の実験では、時間差をつけた二つのレーザーパルスをシードとすることで、一つの電子バンチ内に位相差をロックした二つの FEL パルスを作り出すことに成功している [10]。ただし、この例でも、CEP を制御したわけではない。

seeded FEL において CEP 制御を実現するには、根源的な困難がある。これは、FEL の増幅が位相の変化を伴う（ゲインが複素数となる）ことによる。FEL の増幅が位相の変化を伴うことは、FEL 方程式から得られる光電場の増幅が、次式のように表されることから明らかである [11]。

$$E(\hat{z}) = E_0 \exp\left(\frac{\sqrt{3+i}}{2} \hat{z}\right) \quad (1)$$

増幅に伴う位相の変化は、光ビームの自己収束作用 (radiation guiding) を生み出すといった利点もあるが、飽和後の光パルスの位相が増幅過程（ゲインの大小）に依存することが、ここでは問題となる。つまり、seeded FEL にてシードレーザーの位相を制御したとしても、電子バンチのわずかなジッター（バンチタイミング、ピーク電流、エネルギーなど）のために、飽和後の光パルスの位相が不安定になることが避けられないのである。

## 3. 外部レーザーの連続注入による CEP 安定化

### 3.1 CEP 安定化法の提案

われわれは、共振器型 FEL にて CEP 制御を実現する新たな手法を提案した [5]。これは、完全同期長発振と外部レーザーのシーディングを組み合わせるものである。以下、シミュレーション結果を示しつつ、本手法による CEP 制御の有効性を確認する。なお、シミュレーションは、自作の次元時間依存 FEL コードを使っている [8]。

Figure 2 は、完全同期長発振における光パルスの波形をプロットしたものである。共振器の往復回数が、1500、2000、2500 回におけるパルスを重ねている。計算で使用したパラメータは Table 1 に示した。2.2 節にて示したように、完全同期長発振では、パルス内フィードバックがないため、光パルスの先頭部は電子バンチのショットノイズに支配され、往復ご

とにランダムに変動する。この変動のため、光パルス全体の位相が安定化しないことが読み取れる。

われわれが提案する手法は、波長、振幅、位相を安定化した外部レーザーパルスを光パルスの先頭部に重畳することで、FELパルスの CEP 制御を行うものである。Figure 3 に、外部レーザーパルスを重畳した場合の完全同期長発振の計算結果を示す。光パルス先頭部の位相、振幅が外部レーザーによりピン止めされることで、光パルス全体が安定化していることがわかる。

Figure 4 に、シードレーザーあり、なしの場合について、光パルス内の位相、強度の変化を往復回数に対してプロットした結果を示す。シードレーザーによって位相、強度ともに安定化していることがわかる。シードレーザーがない場合の位相、強度変動の時定数は、FEL の立ち上がり時間におよそ等しいことも読み取れる。

Table 1: Parameters of the FEL Oscillator Used in the Simulations

Electron beam	
energy (MeV)	50
bunch charge (pC)	100
norm. emittance ( $x/y$ ) (mm-mrad)	12/12
bunch length <sup>(*)</sup> (ps)	0.4
peak current (A)	250
bunch repetition (MHz)	10
undulator	
undulator parameter (rms)	1.25
pitch (cm)	4.5
number of periods	40
FEL	
wavelength ( $\mu\text{m}$ )	6
Rayleigh length (m)	0.52
FEL parameter, $\rho$	0.0052
cavity loss	4%

(\*) The bunch length is full width of a rectangular bunch.

### 3.2 シードレーザーの構成とシーディング法

われわれが提案する CEP 制御に利用するシードレーザーは、FEL と同一の波長、FEL (加速器) と同期した繰り返しをもち、振幅、位相が安定化されているものでなければならない。必要なパルスエネルギーは、上記シミュレーションの場合、0.34 nJ (パルス幅 400 fs) である。このようなレーザーは、ファイバーレーザー発振器と差周波発生を組み合わせた装置 [12]、または、光パラメトリック増幅と差周波発生を組み合わせた装置 [13] で実現できる。

共振器 FEL へのシーディングはいくつかの方法で実現できる。Figure 5 にシーディング方法の例を示す。図中、(b) は、FEL アンジュレータの直前にシーディング用アンジュレータを設置する方法である。二つのアンジュレータの磁場の向きを直交することで、FEL とシードレーザーを異なる偏光とし光路の分離を容易にすることができる。(c) は電子ビーム

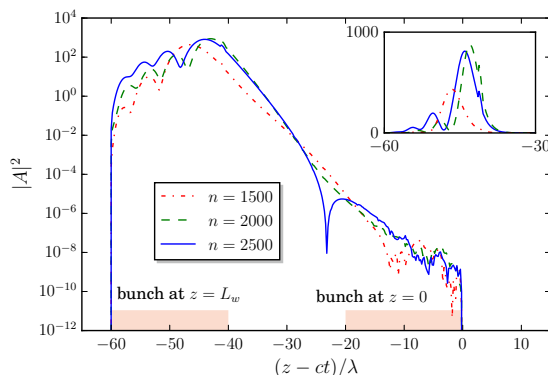


Figure 2: Temporal shapes of FEL pulses in a perfectly synchronized optical cavity after 1500, 2000 and 2500 round trips. Profile of the electron bunch at the entrance,  $z = 0$ , and the exit,  $z = L_u$ , of the undulator is also plotted. The inset is the same FEL pulses plotted with a linear scale.

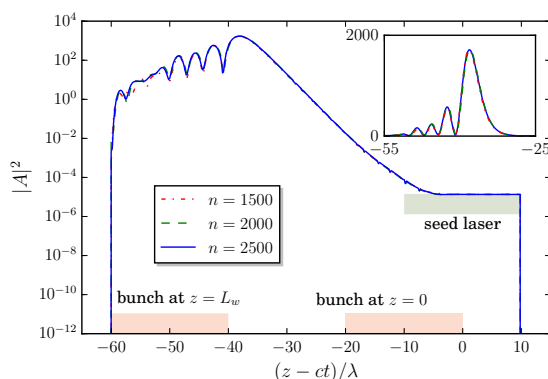


Figure 3: Temporal shapes of FEL pulses in a perfectly synchronized optical cavity with an external seed laser after 1500, 2000 and 2500 round trips.

軌道の上流にシード用アンジュレータを設置する例である。シーディングを FEL 共振器と独立に行えるが、電子ビーム輸送中のジッター (エネルギー変動による行路差など) が CEP 安定性を損なう可能性がある。

### 3.3 CEP 安定化の精度、限界

シードレーザーによる CEP 制御は、本来はショットノイズで支配される光パルスの先頭部をシードレーザーで安定化して得られるものであるから、ここで用いるシードレーザーはショットノイズよりも十分に強くなければならない。シードレーザーのパワー ( $P_{seed}$ ) を変えながら CEP 安定度を計算した結果 [5] からは、 $P_{seed}$  がショットノイズのレベル ( $P_{noise}$ ) を超えれば CEP が安定化し、 $P_{seed}$  の増大とともに CEP 安定度が向上することがシミュレーションで示されている。Figure 3 の計算で用いた  $P_{seed}/P_{noise} = 10^3$  の場合、CEP 変動の rms 値は 0.1 rad となる。



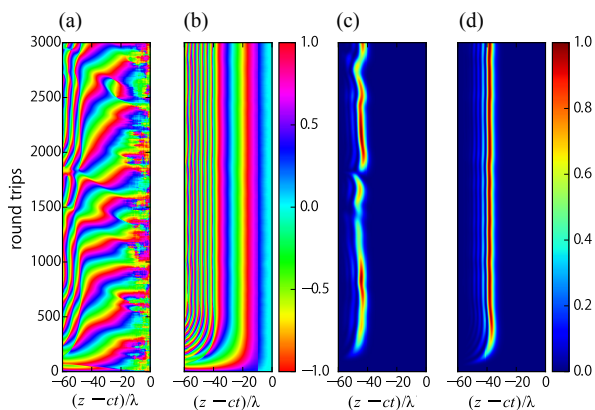


Figure 4: Contour plots of instantaneous phase of FEL pulses in units of  $\pi$  rad for (a) without injection seeding and (b) with injection seeding. Contour plots of instantaneous intensity of FEL pulses normalized to the maximum intensity for (c) without injection seeding and (d) with injection seeding.

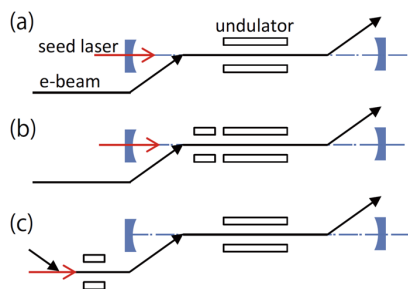


Figure 5: Possible seeding schemes. (a) the seed laser and the FEL share the undulator and the optical cavity, (b) installing a seeding undulator before the FEL undulator, (c) installing a seeding undulator at the beam path.

では、加速器、シードレーザーのジッターが CEP 安定性に与える影響はどうであろうか？

シードレーザーの位相は FEL パルスの CEP にそのまま反映されるが、位相の速い変動は FEL 共振器のもつ時定数でフィルターされる。共振器の時定数は、損失で決まる Q 値だけでなく、FEL 発振（立ち上がり）の時間とも関係する。Figure 6 (a)(c) は、マクロパルスの途中（1000 往復後）でシード位相を反転した場合の計算結果である。FEL 位相は、シード位相に直ちに追従するのではなく、FEL 立ち上がりと同様に 500 パス程度の遅れをもって変化の様子が示されている。

電子バンチのジッター（タイミング、バンチ波形、エネルギーなど）は、FEL ゲインの変動を通して FEL パルスの波形、振幅、位相の変化をもたらす。完全同期長における superradiance 発振の変換効率とゲインの関係は過去にも示されている [14] が、位相の変化を示した研究はない。ここでは、数値計算で電子バンチジッターの影響を示すことにする。Figure 6

(b)(d) に、マクロパルスの途中（1000 回往復）にて FEL ゲインパラメータを 30% 増した場合の計算結果を示す。レーザー位相の変化の場合と同様、ゲインの増大は、少し遅れて光パルスの変化に反映されるが、ここでは、ピーク位置、ピーク強度、位相の全てが変化している。FEL ゲインのジッターが CEP 安定性に与える影響を計算した結果を Fig.7 に示す。ここで、ジッターはランダムに与えている。ゲインジッターが 20% の時、CEP のゆらぎが 0.15 rad となっている。FEL ゲインジッターは、RF 加速器の位相、電磁石のリプル、フォトカソード・ドライブレザーのジッターなど複合的な要因により生じる。バンチ圧縮を含む加速器の構成を最適化することで、FEL ゲインジッターを低減することができる [15]。FEL 装置の設計では、このような観点も考慮しなければならない。完全同期長発振における光パルスの増幅は、バンチの局所的なパラメータ（電流、スライスエミッタンスなど）で決まるローカルゲインではなく、バンチ全体を積分したゲインで決まる。このため、マイクロバンチ不安定性のようなバンチの局所的なゆらぎは、CEP に大きく影響しない可能性もあるが、具体的な計算は今後の課題である。

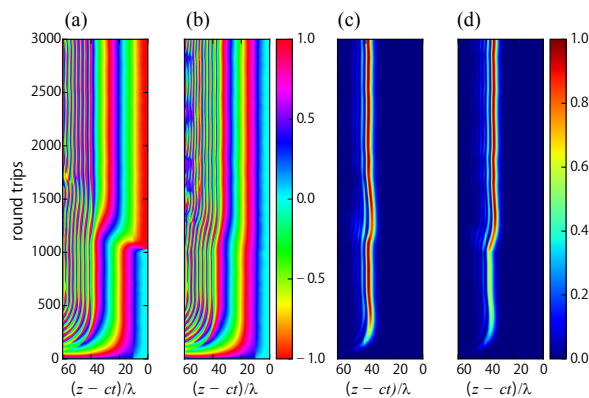


Figure 6: Contour plots of instantaneous phase of FEL pulses in units of  $\pi$  rad for (a) sudden change of the seed laser phase ( $\pi$ ) after the 1000th round trip and (b) sudden change of FEL gain parameter (+30%) after the 1000th round trip. Contour plots of instantaneous intensity of FEL pulses normalized to the maximum intensity for (c) the sudden change of the seed laser pulse and (d) the sudden change of the FEL gain parameter.

#### 4. 高次高調波発生への応用

われわれが提案する FEL パルスの位相安定化は、共振器を構成する高反射率のミラーとシードレーザーが得られる任意の波長で利用することができ、様々な応用が可能である。その中でも、数サイクルの極短パルスの特徴を生かした利用が高次高調波発生 (high-harmonic generation; HHG) である。

HHG は、高強度のレーザーをガス中に集光した時に、ガス原子からトンネル電離した電子が元の原子に再結合する際に入射レーザーの高調波を発生する

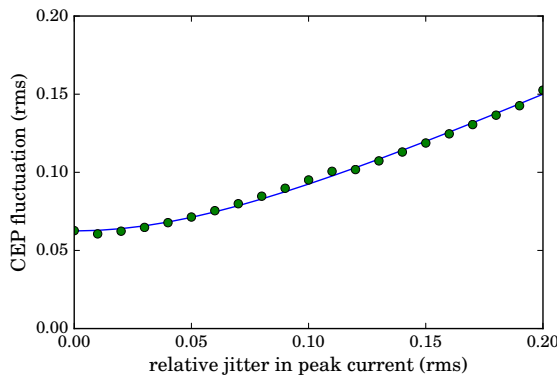


Figure 7: Fluctuation of carrier-envelope phase,  $\Delta\phi$ , as a function of the rms jitter in the peak current,  $\Delta I$ . The solid curve is the best-fit curve employing a function form  $\Delta\phi = \sqrt{a^2 + b^2(\Delta I)^2}$ .

現象である。近赤外のレーザーを入射した時に発生する高調波は VUV から軟 X 線までにおよび、また、入射するレーザーが数サイクルの極短パルスの場合には、発生する高調波はアト秒パルスとなる。

これまで HHG で生成された高調波の最短波長は、1.6 keV である [16]。この実験は、3.9  $\mu\text{m}$  のレーザーを用いて行われた。3.9  $\mu\text{m}$  の光パルスは、1  $\mu\text{m}$  の固体レーザーで発生したパルスを非線形光学結晶で波長変換して作られた。これまでに行われた実験、理論解析によると、さらに短い波長の高次高調波発生を目指すには、入射レーザーの波長を長くしなければならないことが示されている。これは、ガス中を進むレーザーと高調波の位相整合条件から導かれたスケール側として知られており、高調波のカットオフエネルギー（最短波長）は入射レーザー波長の 1.7 乗に比例する [17]。

共振器 FEL は、固体レーザーの限界を超えて、4  $\mu\text{m}$  以上の中赤外領域にて数サイクルの光パルスを生成することができる。これを用いれば、固体レーザーでは届かない 1.6 keV 以上の高エネルギーの高次高調波発生ができると考えられる。1–10 keV の高調波を生成できれば、そのパルス幅はアト秒からzepto秒となる [18]。Figure 8 に共振器型 FEL で駆動するアト秒 X 線システムの概念図を示す。

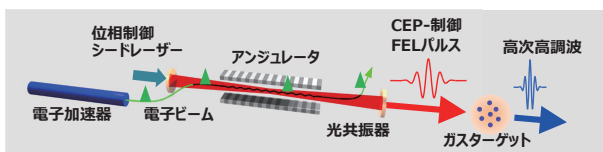


Figure 8: Schematic view of an attosecond X-ray source driven by a FEL oscillator.

## 5. まとめ

本稿では、共振器型 FEL において、数サイクルの極短パルスを生成し、かつ、その位相（CEP 位相）

を制御し安定化する手法を述べた。FEL にて光パルスの位相制御が実現すれば、固体レーザーが拓きつつある極短パルスレーザーの先端科学である量子制御、広帯域光周波数コム、高次高調波発生といった分野に FEL が進出することができる。波長可変かつ高繰り返し可能な FEL は、固体レーザーを補完しながら、これら分野の研究を飛躍的に進展させる可能性がある。

## 謝辞

本研究は、(公財) 光科学技術研究振興財団の研究助成を受けて実施した。

## 参考文献

- [1] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545-591 (2000); <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.72.545>
- [2] S. Adachi and T. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 153903 (2005); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.153903>
- [3] K. Midorikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** 090001 (2011); <https://doi.org/10.1143/JJAP.50.090001>
- [4] C. Gohle *et al.*, *Nature* **436**, 234-237 (2005); <https://doi.org/10.1038/natur03851>
- [5] R. Hajima and R. Nagai, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 204802 (2017); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.204802>
- [6] P. Chaix *et al.*, *Phys. Rev. E* **59**, 1136 (1999); <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.59.1136>
- [7] N. Nishimori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5707 (2001); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.5707>
- [8] R. Hajima and R. Nagai, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 024801 (2003); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.024801>
- [9] R. Bonifacio *et al.*, *Riv. Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis.* **13**, 1 (1990); <https://doi.org/10.1007/BF02770850>
- [10] D. Gauthier *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 024801 (2016); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.024801>
- [11] E.L. Saldin, E.A. Schneidmiller and M.V. Yurkov, “The Physics of Free Electron Lasers”, Springer (1999).
- [12] G. Sobon *et al.*, *Opt. Lett.* **42**, 1748-1751 (2017); <https://doi.org/10.1364/OL.42.001748>
- [13] K. Kaneshima *et al.*, *Opt. Express* **24**, 8660 (2016); <https://doi.org/10.1364/OE.24.008660>
- [14] N. Nishimori *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. A* **483**, 134-137 (2002); [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00298-X](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00298-X)
- [15] L. Wang and T.O. Raubenheimer, *J. Mech. Eng. Autom.* **4**, 632 (2014); <https://doi.org/10.17265/2159-5275/2014.08.002>
- [16] T. Popmintchev *et al.*, *Science* **336**, 1287 (2012); <https://doi.org/10.1126/science.1218497>
- [17] M.-C. Chen *et al.*, *Proc Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **111**, E2361 (2014); <https://doi.org/10.1073/pnas.1407421111>
- [18] 羽島良一, 永井良治, 第 13 回日本加速器学会年會論文集, MOP071 (2016); [http://www.pasj.jp/web\\_publish/pasj2016/proceedings/PDF/MOP0/MOP071.pdf](http://www.pasj.jp/web_publish/pasj2016/proceedings/PDF/MOP0/MOP071.pdf)