

京都大学自由電子レーザー施設の現状

PRESENT STATUS OF FREE ELECTRON LASER FACILITY AT KYOTO UNIVERSITY

全炳俊^{#, A)}, 紀井俊輝^{A)}, 大垣英明^{A)}

Heishun Zen^{#, A)}, Toshiteru Kii^{A)}, Hideaki Ohgaki^{A)}

^{A)} Institute of Advanced Energy, Kyoto University

Abstract

An oscillator-type mid-infrared Free Electron Laser (FEL) named KU-FEL has been developed at the Institute of Advanced Energy, Kyoto University for energy related researches. A THz coherent undulator radiation source driven by a compact-accelerator using a photocathode RF gun has been developed as an accelerator based intense THz light source with quasi-monochromatic wavelength spectrum. In this paper, the present status of the facility is reported.

1. はじめに

京都大学エネルギー理工学研究所では、エネルギー関連研究への応用を目指し、中赤外自由電子レーザー装置(Kyoto University Free Electron Laser, KU-FEL)を開発してきた[1-3]。これまでに、波長 3.4~26 μm での発振に成功しており[3]、固体試料や薄膜のポンプ・プローブ分光[4-8]、生物試料への照射[9-13]等、幅広い応用実験に供されている。

KU-FEL 装置の中赤外 FEL(MIR-FEL)は周波数 2856 MHz のマイクロ波で駆動する 4.5 空洞高周波電子銃と 3 m 加速管、ビーム輸送部、アンジュレータ、光共振器により構成されている[1, 2]。Figure 1 に 2022 年 8 月現在の FEL 装置概略図を示す。Q-LEAP 事業の下、MIR-FEL の更なる性能向上のため、加速管直上流に 1.6 空洞高周波電子銃の増設を進めている。

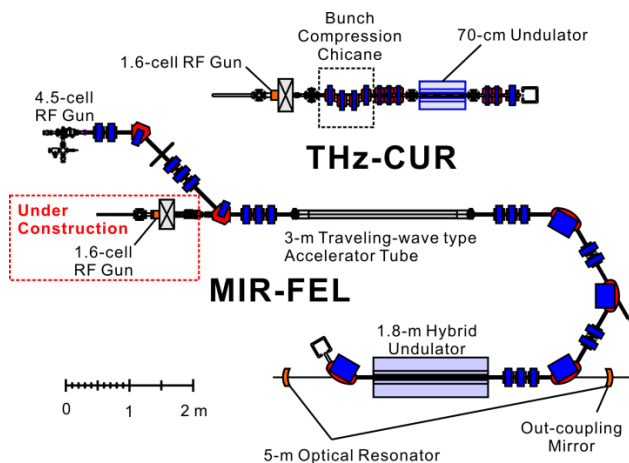


Figure 1: Layout of MIR-FEL and THz-CUR source in August 2022.

MIR-FEL の開発に加えて、近年は光陰極高周波電子銃で発生させた電子バンチをバンチ圧縮器で圧縮し、1 ps 程度の短バンチにした後に、アンジュレータに入射する事で強い準単色 THz 光を発生させるコヒーレントアンジュレータ放射(Coherent Undulator Radiation: CUR)

光源の開発も行っている[14-20]。THz-CUR 光源の概略図も Fig. 1 に示した。THz-CUR 光源は専用の光陰極高周波電子銃を持つが、高周波源と光陰極駆動用レーザーを MIR-FEL 用電子銃と共有している。ECC-RF Gun[21]を用いた高強度化[22]や低減衰偏光可変性付与光学系の開発[23]、外部共振器を用いた高強度化[24]などを外部利用者との共同研究で進めている。

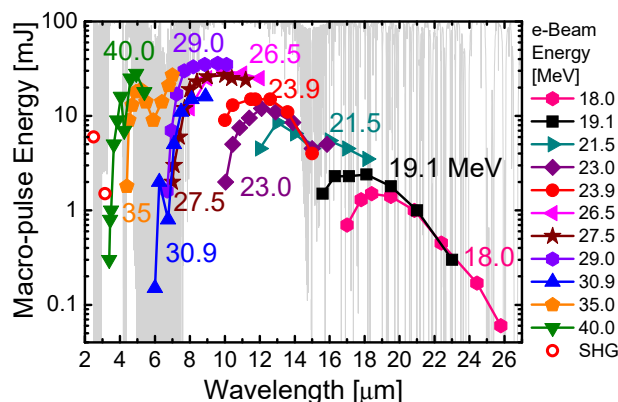


Figure 2: Macro-pulse energy of KU-FEL under the thermionic operation available at the user station 1.

2. 京都大学中赤外自由電子レーザーの性能

KU-FEL の 2022 年 8 月現在の性能を Table 1 に示す。4.5 空洞高周波電子銃内に設置された LaB_6 陰極を熱陰極として利用した際には、最短波長 3.4 μm 、最長波長 26 μm での発振が確認されている。ユーザー利用ステーションにおける各波長でのマクロパルスエネルギーを Fig. 2 に示す。近年、発振可能再短波長よりも短い波長を利用したいという内部ユーザーの希望があり、中赤外用非線形結晶(ZnGeP_2 , $\theta=48.8$ deg. $\phi=0$ deg., 3 Photon 社製)を用いた二次高調波発生も行っている[25]。これまでの実績としては、波長 6.3 μm の二次高調波発生で 3.15 μm を発生した際に、約 1.5 mJ のマクロパルスエネルギーが、波長 5.0 μm の二次高調波発生で 2.5 μm を発生した際に、約 6 mJ のマクロパルスエネルギーが得られている。

[#] zen@iae.kyoto-u.ac.jp

Table 1: Performance of KU-FEL

RF Gun Operation Mode	Thermionic	Photocathode
Wavelength Range	3.4 – 26 μm	To be determined
Max. Macro-pulse Energy*	41.8 mJ @4.9 μm	4.5 mJ @11 μm
Typ. Macro-pulse Duration	2 μs	3.5 μs
Micro-pulse Repetition Rate	2856 MHz	29.75 MHz
Max. Micro-pulse Energy*	7.3 μJ @4.9 μm	~40 μJ @11 μm
Micro-pulse Duration*	~0.3 ps @11 μm	~0.2 ps @11 μm
Typ. Bandwidth*	3%-FWHM	~6%-FWHM
Max. Extraction Efficiency	5.5% @11.6 μm [24]	9.4% @11 μm [25]

*Observed at user station 1 (after 12 m transport).

2019 年度には FEL の引き出し効率測定を行い、熱陰極運転においては波長 11.6 μm にて最大 5.5% の引き出し効率を得られている事を確認した。これは常伝導加速器を用いた共振器型 FEL では最高の引き出し効率であり、動的バンチ位相変調を導入することで、高い引き出し効率を得られていることが明らかとなっている [26]。2020 年度に実施したマイクロパルス長計測により、波長 11 μm において半値幅約 0.3 ps のマイクロパルス長が得られていることが明らかとなった。

2022 年 8 月現在、本装置は波長可変範囲およびユーザーステーションで利用可能な最大マクロパルスエネルギーにおいて、中赤外自由電子レーザーとして国内最高性能を有すると共に、引き出し効率において現在稼働中の共振器型 FEL として世界最高性能を有する。

高周波電子銃内に設置された LaB₆ 陰極に外部から波長 266 nm のマルチパルスピコ秒レーザーを照射し、光陰極動作させた際の性能も Table 1 に示した。波長可変域はまだ調査できていないが、電子バンチ電荷量の増大により、FEL ゲインが増加しており、熱陰極運転時よりも幅広い波長可変域が得られると考えられる。マイクロパルス繰り返し周波数が熱陰極運転と比べて約 1/100 と低いいため、マクロパルスエネルギーは低下するが、より高いマイクロパルス当たりのエネルギー得られる。これは熱的な影響を低減して非線形効果を得るのに適した条件と考えられる。FEL の引き出し効率は 9.4% と熱陰極運転と比べて増大し [27]、それに伴い、マイクロパルス長は波長 11 μm において半値幅約 0.2 ps と短くなっている。

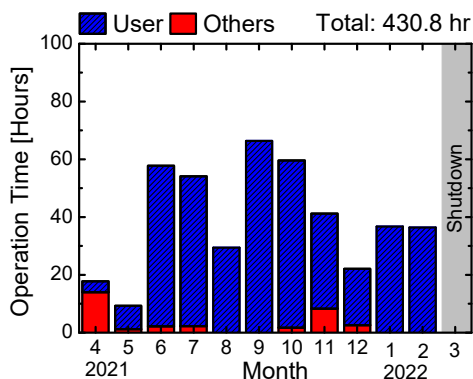


Figure 3: Operation time of KU-FEL facility in FY2021. The adjustment of accelerator, machine tuning for FEL lasing, study of the driver linac and FEL parameter measurements are included in “Others”.

3. KU-FEL 稼働状況

Figure 3 に KU-FEL 駆動用電子線形加速器の 2021 年度における稼働状況を示す。総運転時間は 430.8 時間であった。放射線管理上の年間最大運転可能時間 (960 時間) の約 45% であり、まだマシントimeに余裕がある。2020 年度から予め全ユーザーに対してマシントime意向調査を行い、10 月末までに一通り外部ユーザー利用実験を実施することとした。2021 年度も同様の方針でマシントime配分を実施し、ユーザー利用を行った。2021 年 4、5 月の運転時間が短いのはこのためである。また、2022 年 3 月から 6 月の間は 1.6 空胴高周波電子銃の加速管直上流への追加に伴う放射線遮蔽の変更に関する変更申請および遮蔽変更・追加作業のため、シャットダウン期間となった。

Figure 4 に 2009 年度以降の総運転時間とユーザー利用時間及びユーザー利用時間が総運転時間に占める割合の履歴を示す。2010 年度までは加速器の R&D がメインであったが、2011 年度から 2013 年度にかけてユーザー利用実験が増加した。2021 年度には、総運転時間の約 93% がユーザー利用実験に供された。2021 年度は 2020 年度とほぼ同等の運転時間となった。ユーザー数は 2020 年度の 16 件と変わらず 16 件であった。全てが同じユーザーではなく、新規に 3 件のユーザー利用が始まっている。

2022 年度は所外共同利用・共同研究の件数が 18 件と 2021 年度の 16 件から増加した。本年度も昨年度同

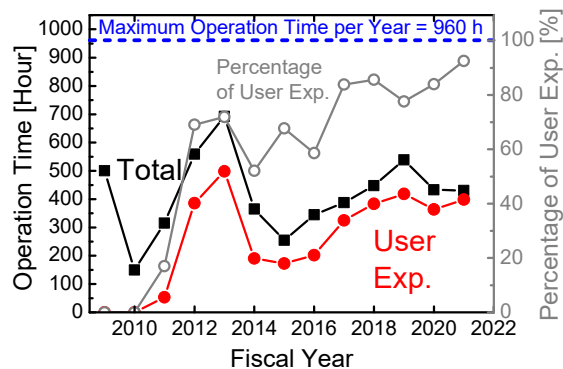


Figure 4: History of total operation time and user experiment time of KU-FEL since 2009. The maximum operation time per year is 960 hours, which is limited by radiation restriction.

様、11月までに外部ユーザー利用実験を一通り終える計画を立て、ユーザー利用実験を鋭意実施中である。

4. トラブルおよび問題点

KU-FEL では 2 台のクライストロンを用いて、電子銃と進行波加速管を個別に駆動している。電子銃用モジュレータは 1997 年購入、加速管用モジュレータは 2003 年購入であり、どちらも 15 年以上継続して使用しており、老朽化問題が顕在化している。

電子銃用モジュレータは PFN 用高圧コンデンサの不良が 2014 年度より発生し、20 本の全交換を 2017 年度に完了していた[28]。2019 年度は加速管用モジュレータの PFN 用高圧コンデンサの不良が発生した。そこで、2019 年度はまず新しいコンデンサを 10 本調達し、交換した。残りの 10 本中 5 本を 2022 年度の予算で調達することとなった。2022 年度末に既設コンデンサとの交換を実施する予定である。

モジュレータの放電スイッチとして用いられているサイラトロンに関して、電子銃用モジュレータは 10 年以上前に購入された予備品があったため、2020 年 4 月に交換した。現在、様子を見ながら継続して使用している。一方、加速管用モジュレータは 2021 年 3 月末に KEK 入射器系より譲り受けていた使用済みサイラトロンへの交換を実施した。交換・調整後、本サイラトロンは問題なく動作しており、2021 年 4 月 21 日の段階で FEL の発振も問題なく行えることを確認した。

他方、根本的な老朽化対策として、上記クライストロンモジュレータ 2 台の更新を考えており、大学本部への予算要求を行っている。

5. 施設整備状況

更により多くのユーザーに利用して頂ける様、加速器及び利用環境の整備を引き続き行っている。以下に案件毎に整理して述べる。

5.1 光陰極運転による KU-FEL の高ピークパワー化

2018 年度から光・量子飛躍フラグシッププログラム(Q-LEAP)、基礎基盤研究課題として、中赤外自由電子レーザー(FEL)で駆動する高繰返し高次高調波発生(HHG)アト秒光源(FEL-HHG)の実現を目指し、量研、日大、KEK、京大エネ研のチームで研究開発を開始した。本プロジェクトでは、共振器型中赤外自由電子レーザーで発生させた高強度数サイクル中赤外光を希ガスに集光し、HHG を行い、アト秒 X 線発生を行う予定である。研究プロジェクトの構想や概要については、プロジェクトリーダーである量研の羽島氏が過去の加速器学会で報告しているので、そちらを参照されたい[29]。KU-FEL では、既設の KU-FEL 施設をアップグレードする事で HHG 駆動に必要な高強度数サイクル中赤外光の発生を目指して研究を進めている。2018 年度には光陰極運転用陰極励起用レーザーシステムのアップグレードを行った[30]。2019 年度は中赤外 FEL のパルス長測定系の構築を進めると共に、アップグレードした光陰極励起用レーザーシステムを用いた実験を行い、バンチ電荷量 190 pC、マクロパルス長 7 μ s の電子ビームを発生させ、FEL 発振を行うことで、引き出し効率 9.4 %という共振器

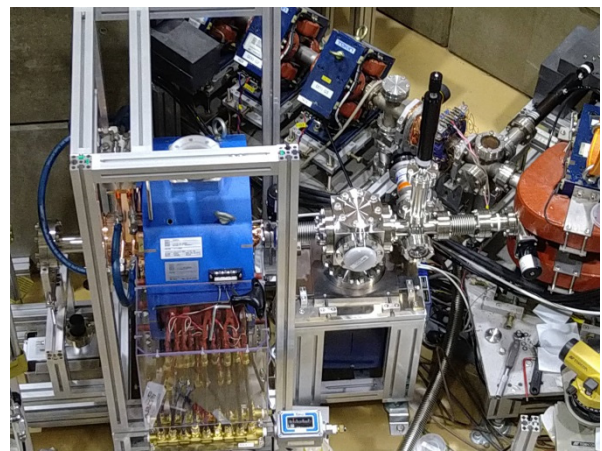


Figure 5: Photo of new 1.6 cell RF gun installation.

型 FEL の引き出し効率として、世界最高記録を達成した[27]。また、更なるバンチ電荷量の増大による引き出し効率向上とピークパワー増大に向けて、新光陰極高周波電子銃の導入を進めており、2020 年度には KEK 工作所の支援を受けて専用 1.6 空洞光陰極高周波電子銃を製作した[31]。2022 年 3 月から 6 月の間に放射線遮蔽の改造・増強を実施すると共に、加速管直上流に新 1.6 空洞高周波電子銃を設置した(Fig.5)。実運用に向けて鋭意、準備を進めている。

5.2 放射線変更申請によるビームパワー増強

新 1.6 空洞高周波電子銃の増設のため、放射線遮蔽体の配置変更とそれに伴う変更申請が必要となった。この機に、放射線遮蔽を増強して電子ビームパワーを増強することとした。加速管後の偏向電磁石周りの鉛遮蔽を増強すると共に、ビームダンプの遮蔽増強を実施することで、最大ビームパワーをこれまでの 41.2 W から 60.0 W まで増強可能である事が計算により分かったため、最大ビームパワーを 60.0 W として変更申請を実施した。そして、2022 年 3 月 1 日から加速器の運転を停止し、遮蔽体配置の変更および遮蔽の増強を実施した。そして、6 月 1 日に施設検査を受け、6 月 6 日に合格通知を受け取った。これにより最大ビームパワーが 60.0 W まで増強可能となった。その後、6 月 8 日から調整運転を再開し、6 月 20 日から外部ユーザーの施設利用実験を再開した。MIR-FEL では加速管に入射されるマクロパルス当り電荷量が約 630 nC であり、電子ビームエネルギー 40 MeV の条件下ではマクロパルスの繰返し周波数を 1.6 Hz までしか上げることができなかったが、ビームパワー増強後は 2.3 Hz まで上げることが可能となり、実験効率が大幅に向上した。今後も更なる遮蔽増強によってビームパワーが更に向上可能かどうかについて検討を進めていきたいと考えている。

5.3 Optical Parametric Oscillator の導入

MIR-FEL との pump-probe 実験の高度化を目指し、Optical Parametric Oscillator(OPO)を導入した。中古の OPO 光学系を手に入れ、既設のナノ秒 Nd:YAG レーザの三次高調波を励起源として利用した。Figure 6 に OPO 出力パルスエネルギーとシグナル光の写真を示す。OPO の非線形結晶を回転させると発振波長が変わり、

シグナル光で約 400~700 nm、アイドラ光で 720~2300 nm の間で波長可変である。波長 470 nm 辺りで最大パルスエネルギー 850 μJ が得られている。既に輸送光学系の整備を終えており、pump-probe 実験用極低温クライオスタットの試料位置まで輸送可能な状況となっている。今後、更に調整を進めてパルスエネルギーの増大を図ると共に、OPO と MIR-FEL を組み合わせた pump-probe 実験を実施する。

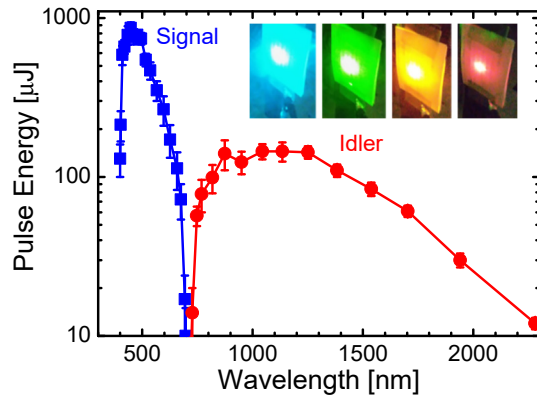


Figure 6: Pulse energy of OPO output. Insets are photo of signal beam with different crystal angles.

6. まとめ

京都大学中赤外自由電子レーザーは 2022 年 8 月現在、当初の目標波長領域(5~20 μm)を超える 3.4~26 μm の発振が可能となっている。中赤外用非線形結晶 (ZnGeP_2)を用いた二次高調波発生も開始し、波長 2.5 μm および 3.15 μm でそれぞれマクロパルスエネルギー約 6 mJ および 1.5 mJ を達成可能である事が確認されている。従来の熱陰極運転のみならず、光陰極運転も実施可能となっており、より熱的影響が少なく非線形効果の表れやすい条件が得られる様になっている。

2021 年度の総稼働時間は 430.8 時間でその内の約 93% がユーザー利用実験に供された。クライストロンモジュレータの老朽化が深刻化しているが、高圧コンデンサやサイラトロンとの交換を適宜実施することにより、何とか延命できている。

一方、光陰極励起用レーザーの整備が進み、光陰極高周波電子銃を用いた THz 光源開発や中赤外 FEL の性能向上などの開発が進められている。今後、これらの開発が進むことで、より幅広い応用実験に利用可能な施設となる事が期待される。

参考文献

[1] H. Zen *et al.*, “Development of IR-FEL Facility for Energy Science in Kyoto University”, *Infrared Physics & Technology*, 51, 2008, pp. 382-385; <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1350449507001077>

[2] H. Zen *et al.*, “Present Status and Perspectives of Long Wavelength Free Electron Lasers at Kyoto University”, *Physics Procedia*, 84, 2016, pp. 47-53; <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389216303042>

[3] H. Zen *et al.*, “Present Status of Infrared FEL Facility at Kyoto University”, *Proceedings of FEL2017*, 2018, pp.162-

165; <http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/fel2017/papers/mop050.pdf>

[4] K. Yoshida *et al.*, “Experimental Demonstration of Mode-Selective Phonon Excitation of 6H-SiC by a Mid-Infrared Free Electron Laser with Anti-Stokes Raman Scattering Spectroscopy”, *Applied Physics Letters*, 103, 2013, 182103; <https://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.4827253>

[5] E. Ageev *et al.*, “Time-resolved detection of structural change in polyethylene films using mid-infrared laser pulses”, *Applied Physics Letters*, 107, 2015, 041904; <https://aip.scitation.org/doi/full/10.1063/1.4927666>

[6] M. Kagaya *et al.*, “Mode-Selective Phonon Excitation in Gallium Nitride Using Mid-Infrared Free Electron Laser”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 56, 2017, 022701; <http://iopscience.iop.org/article/10.7567/JJAP.56.022701/meta>

[7] M. Kitaura *et al.*, “Visualizing Hidden Electron Trap Levels in $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ Crystals Using a Mid-Infrared Free Electron Laser”, *Applied Physics Letters*, 112, 2018, 031112; <https://aip.scitation.org/doi/full/10.1063/1.5008632>

[8] O. Sato *et al.*, “Two-photon Selective Excitation of Phonon-mode in Diamond Using Mid-Infrared Free-Electron Laser,” *Physics Letters A* 384, 2020, 126223; <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S037596011931165X>

[9] F. Shishikura *et al.*, “ザリガニの眼は中赤外線が見えるのか”, *日大医誌*, 75, 2016, pp. 140-141; https://www.jstage.jst.go.jp/article/numa/75/3/75_140/_article/-char/ja/

[10] T. Kawasaki *et al.*, “Photo-Modification of Melanin by a Mid-Infrared Free-Electron Laser,” *Photochemistry and Photobiology*, 95, 2019, pp.946-950; <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1111/php.13079>

[11] T. Kawasaki *et al.*, “Cellulose Degradation by Infrared Free Electron Laser,” *Energy & Fuels* 34, 2020, pp.9064-9068; <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acs.energyfuels.0c01069>

[12] T. Kawasaki *et al.*, “Application of Mid-Infrared Free Electron Laser for Structural Analysis of Biological Materials,” *Journal of Synchrotron Radiation*, 28, 28-35 (2021); <https://doi.org/10.1107/S160057752001406X>

[13] T. Kawasaki *et al.*, “Degradation of Lignin by Infrared Free Electron Laser,” *Polymers*, 14, 2401 (2022).

[14] S. Suphakul *et al.*, “Generation of Short Bunch Electron Beam from Compact Accelerator for Terahertz Radiation,” *Proceedings of IPAC2016*, 2016, pp.1757-1759; <http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/ipac2016/papers/tupow008.pdf>

[15] S. Suphakul *et al.*, “Beam Dynamics Investigation for the Compact Seeded THz-FEL Amplifier,” *Energy Procedia*, 89, 2016, pp.373-381; <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1876610216300571>

[16] S. Suphakul *et al.*, “Measurement of Coherent Undulator Radiation of Compact Terahertz Radiation Source at Kyoto University,” *International Journal of Magnetism and Electromagnetism* 3, 2017, IJME-3-008; <https://www.vibgyorpublishers.org/content/international-journal-of-magnetism-and-electromagnetism/ijme-3-008.pdf>

[17] S. Krainara *et al.*, “Development of Compact THz Coherent Undulator Radiation Source at Kyoto University”, *Proceedings of FEL2017*, 2018, pp. 158-161; <http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/fel2017/papers/m>

- op049.pdf
- [18] S. Krainara *et al.*, “Manipulation of Laser Distribution to Mitigate the Space-Charge Effect for Improving the Performance of a THz Coherent Undulator Radiation Source”, *Particles* 1, 2018, pp.238-252;
<https://www.mdpi.com/2571-712X/1/1/18>
- [19] S. Suphakul *et al.*, “Investigation of Bunch Compressor and Compressed Electron Beam Characteristics by Coherent Transition Radiation,” *Particles* 2, 2019, pp.32-43;
<https://www.mdpi.com/2571-712X/1/1/18>
- [20] S. Krainara *et al.*, “Properties of THz Coherent Undulator Radiation Generated from a Compact Accelerator Source at Kyoto University,” *Review of Scientific Instruments* 90, 2019, 103307;
<https://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.5110342>
- [21] K. Sakaue *et al.*, “Ultrashort Electron Bunch Generation by an Energy Chirping Cell Attached RF Gun,” *Physical Review ST Accelerators and Beams* 17, 2014, 023401;
<https://journals.aps.org/prab/abstract/10.1103/PhysRevSTAB.17.023401>
- [22] K. Sakaue *et al.*, “エネルギー変調によって圧縮した電子バンチによるコヒーレントアンジュレータ放射,” *Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2020, pp.638-640;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2020/proceedings/PDF/THPP/THPP60.pdf
- [23] S. Kashiwagi *et al.*, “Demonstration of Variable Polarized Coherent Terahertz Source,” *Infrared Physics & Technology* 106, 103274, 2020;
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1350449519310254>
- [24] S. Kashiwagi *et al.*, “外部光共振器を用いたコヒーレントアンジュレータ放射の電場重畳,” in these proceedings.
- [25] H. Zen *et al.*, “Present Status of Free Electron Laser Facility at Kyoto University,” *Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2019, pp.1250-1253;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2019/proceedings/PDF/FSPI/FSPI004.pdf
- [26] H. Zen *et al.*, “High Extraction Efficiency Operation of a Midinfrared Free Electron Laser Enabled by Dynamic Cavity Desynchronization,” *Physical Review Accelerators and Beams*, 23, 2020, 070701;
<https://journals.aps.org/prab/abstract/10.1103/PhysRevAccelBeams.23.070701>
- [27] H. Zen *et al.*, “Record High Extraction Efficiency of Electron Laser Oscillator,” *Applied Physics Express* 13, 102007, 2020;
<https://doi.org/10.35848/1882-0786/abb690>
- [28] H. Zen *et al.*, “Present Status of Free Electron Laser Facility at Kyoto University”, *Proceedings of 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2017, pp. 1347-1350;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2017/proceedings/PDF/FSP0/FSP011.pdf
- [29] R. Hajima *et al.*, “自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒 X 線光源”, *Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, Kyoto, Japan, Jul. 31-Aug. 3, 2019, pp. 742-746;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2019/proceedings/PDF/THPI/THPI011.pdf
- [30] H. Zen *et al.*, “京都大学中赤外自由電子レーザーの長マクロパルス光陰極運転に向けた光陰極励起用レーザーシステムのアップグレード”, *Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2019, pp. 786-788;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2019/proceedings/PDF/THPI/THPI024.pdf
- [31] T. Miyajima *et al.*, “高効率極短 FEL パルス生成のための 1.6 セル高周波電子銃の開発”, *Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2021, pp.610-613;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2021/proceedings/PDF/WEPO/WEPO04.pdf