

## 高調波発生駆動のための日本大学 LEBRA FEL のビーム特性評価

### BEAM CHARACTERIZATION OF THE LEBRA FEL AT NIHON UNIVERSITY TO DRIVE HIGH-HARMONIC GENERATION

川瀬啓悟<sup>#, A)</sup>, 全炳俊<sup>B)</sup>, 境武志<sup>C)</sup>, 早川恭史<sup>C)</sup>, 大垣英明<sup>B)</sup>, 羽島良一<sup>A)</sup>

Keigo Kawase<sup>#, A)</sup>, Heishun Zen<sup>B)</sup>, Takeshi Sakai<sup>C)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>C)</sup>, Hideaki Ohgaki<sup>B)</sup>, Ryoichi Hajima<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> KPSI, QST

<sup>B)</sup> IAE, Kyoto University

<sup>C)</sup> IQS, Nihon University

#### Abstract

High harmonics generation (HHG), driven by focusing a few-cycle laser pulse in gas, is developed as the attosecond light source. Since the maximum photon energy of HHG scales with the square of the driving laser's wavelength, a longer wavelength laser is needed to obtain higher photon energy. The highest photon energy of HHG is 1.6 keV driven by the midinfrared laser pulse with the 3.9  $\mu\text{m}$  wavelength so far. The free electron laser apparatus at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA FEL) at Nihon University continuously covers the wavelength from 1.5  $\mu\text{m}$  to 6  $\mu\text{m}$ . Thus, this FEL is stable to explore the wavelength dependence of HHG. To evaluate the focal intensity for driving HHG, we conduct measurements of the pulse duration and the focusing performance of the FEL pulse. We report the results of these measurements here.

#### 1. はじめに

振動電場の数サイクル分の時間幅しか持たない光パルスによる高次高調波発生(HHG)は、アト秒時間スケールの時間幅の光パルスを生成する。現在、様々な研究グループが数サイクル赤外レーザーパルスを用いてアト秒光パルスの発生と利用研究を進めている[1, 2]。HHGで到達できる最大エネルギーは駆動するレーザー光の波長の自乗でスケールすることが知られており、これまでの所、3.9  $\mu\text{m}$ の赤外光で駆動した1.6 keVのHHGが報告されている[3]。そのため、より長波長によるHHGの高エネルギー化研究は興味深い。

近年、赤外 FEL は高出力化に伴い、数サイクル発振が可能である[4, 5]。FEL は波長を広範囲に容易に変更でき、また原理的に高繰り返し駆動も可能である。そのため、赤外 FEL を利用することで、HHG の高エネルギー化と高繰り返し化の研究の発展が期待できる[6]。

HHG 研究において重要なパラメータは集光強度である。そのため、駆動する赤外パルス光の時間的・空間的な特性の詳細評価は、HHG 研究にとって重要な前提となる。そこで本研究では日本大学 LEBRA FEL[7]によるHHGに必要なパラメータを確認し、定量的な実験の評価を実施するために、FEL ビームの特性評価実験を実施した。LEBRA FEL では、近年、FEL 用のアンジュレータ磁石が更新され[8]、FEL の高出力、高品質化研究が進められている。そのため、現在の FEL のパルス長と集光ビームサイズの評価測定を標準的な手法を用いて実施した。パルス長測定は、これまでに多くの赤外 FEL 施設で実施されたものと同様、非共線二次高調波発生(SHG)強度自己相関計測で実施した[9 - 14]。集光ビ-

ームサイズの評価はナイフエッジ手法を用いて実施した[15 - 18]。なお、本研究の詳細は文献 19 に既報である。

#### 2. 実験

実験は日本大学 LEBRA FEL を用いて実施した。パルス長評価は波長 2  $\mu\text{m}$  と 3  $\mu\text{m}$  に対して、集光ビームサイズの評価は波長 2  $\mu\text{m}$  に対して実施した。電子ビームはこれまでの調整で最も高出力動作に実績があるバンチ繰り返し周波数 44.6 MHz で実施した。この場合、FEL 共振器内に独立した 2 つのパルスが発展する。電子ビームのエネルギーは波長 2  $\mu\text{m}$  に対しては 86.6 MeV、波長 3  $\mu\text{m}$  に対しては 78.1 MeV であった。

加速器室から真空ダクトを通して FEL 光は実験ステーションまで輸送される。実験ステーションでは FEL 光は CaF<sub>2</sub> 窓を通して取り出され、利用される。パルス長評価計測では、窓直後の光学テーブルの上に Fig. 1 に示すセットアップを構築した。取り出された FEL 光はサンプラーによりその一部がモニターのために反射され、CaF<sub>2</sub> レンズで集光して焦電検出器で検出される。焦電検出器は ELTEC 社製 Model 420-0 を利用し、信号は Thorlabs

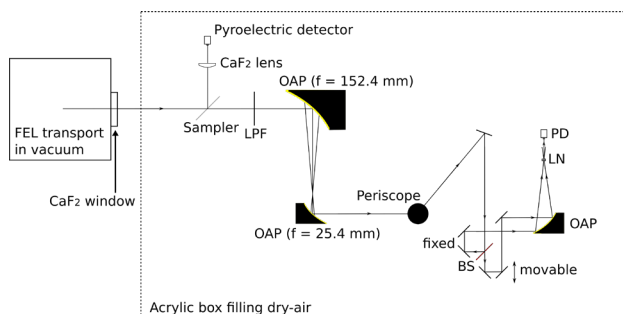


Figure 1: Experimental setup for the noncollinear SHG autocorrelation measurement.

<sup>#</sup> kawase.keigo@qst.go.jp

Inc.製のトランスインピーダンスアンプ TIA60 で増幅してオシロスコープ(Teledyne LeCroy 社製 HDO6034A)で波形を記録した。FEL 光の大半はサンプラーを透過し、直後の長波長透過フィルタ(LPF)で高調波が除去され、2 台の軸外し放物面鏡(OAP)で縮小される。その光はペリスコープで下流のビームスプリッター(BS)の偏光特性に合わせた偏光方向に調整され、自己相関計測系に輸送される。BS は Thorlabs Inc.製の BSW511R を利用した。非共線 SHG 強度自己相関計測の場合、BS で分離された2つの光はひとつの OAP で非共線的に非線形結晶中に集光される。ここで非線形結晶には、厚さ 0.2 mm の表面コーティングされていないニオブ酸リチウム(LN)結晶を用いた。LN 結晶は波長 3  $\mu\text{m}$  に位相整合した結晶軸から 55.9° の角度でカットされている[20]。波長 2  $\mu\text{m}$  に対しても同じ結晶を用い、入射角度を微調して計測した。LN 結晶からの SHG 信号は InGaAs フォトダイオード検出器(PD: Thorlabs Inc.製 DET10N2)を用いて検出した。これは 1.8  $\mu\text{m}$  より長い波長の光に不感で、この計測においては SHG 信号のみが有感である。従って検出器の前に追加の基本波カットフィルタ等は不要であった。また、空気中の水蒸気による光の吸収を避けるために、光学テーブル全体をアクリルボックスで覆い、乾燥空気を導入することで低湿度環境下計測を実施した。

ナイフエッジ計測による集光ビームサイズの評価も同じ光学テーブル上で実施した。マシンタイムの制約上、これは波長 2  $\mu\text{m}$  に対してのみ実施した。FEL 光を外径 25 mm で、焦点距離 25 mm の CaF<sub>2</sub> で集光し、2 軸の自動直動ステージにカッターナイフの替え刃を固定して、ナイフエッジを走査した。信号は前述と同じ種類の焦電検出器で受光し、オシロスコープで前述のモニター光ともの同時にオシロスコープで波形を記録した。

### 3. 結果と考察

事前実験として共軸 SHG 干渉自己相関計測配置で SHG と同時測定した基本波計測データを用いて、スペクトルの時間発展を評価した。波長が一定の場合、SHG の

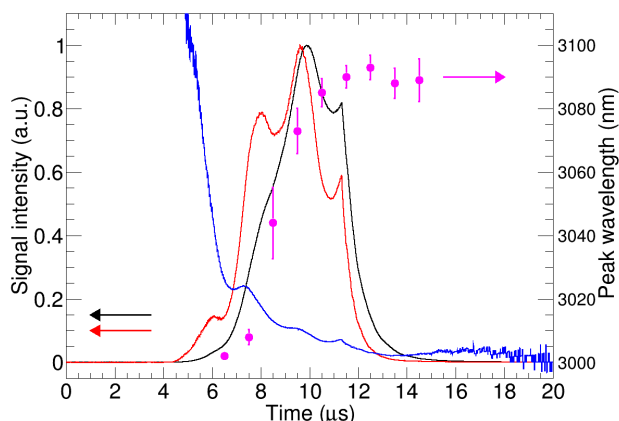


Figure 2: Macropulse waveforms for the SHG signal (red) and square of the fundamental signal (black). The blue line shows the ratio of the red line to the black lines multiplied by 10. Pink points show the instantaneous wavelengths.

信号強度は基本波強度の自乗に比例することが期待されるが、波長が変化する場合にそうとは限らない。波長 3  $\mu\text{m}$  の FEL の SHG 波形と基本波波形の自乗、およびそれらの比をプロットしたものを Fig. 2 に示す。基本波の干渉自己相関計測より得たスペクトルの時間発展も合わせてプロットする。測定結果では、マクロパルス前方において強い SHG 変換効率が見られ、後方に行くに従い変換効率が低下している。一方波長は初めに 3  $\mu\text{m}$  程度であったものが、FEL の時間発展とともに 90 nm 程度長波長化している。LN 結晶の位相整合角は 3  $\mu\text{m}$  が最大となるように選定している。位相整合許容幅とこのマクロパルス内の波長変化の大きさについて、まだ詳細な議論はできていない。SHG 変換効率と FEL の波長変化との関係についての定量的な評価研究は今後の課題である。

波長 3  $\mu\text{m}$  と 2  $\mu\text{m}$  に対して測定した SHG 強度自己相関計測の結果をそれぞれ Fig. 3(a, b)に示す。本計測結果に対しては、ガウス分布関数よりもローレンツ分布関数の方がよくフィットするので、パルス長評価もローレンツ分布を仮定した評価値とする。Figure 3(c, d)はそれぞれ波長 3  $\mu\text{m}$  と 2  $\mu\text{m}$  における FEL の平均マクロパルス波形と評価したパルス長を示している。波長 3  $\mu\text{m}$  における最短パルス長はピーク強度最大時で 68 fs である。その後、パルス強度が低下するにつれてパルス長が長くなっている。一方、波長 2  $\mu\text{m}$  においては、ピーク強度に至る前にパルス長が 77 fs の最小を示し、その後緩やかに長くなる。波長 3  $\mu\text{m}$  の方がより高強度となるようにビーム調整が進められていたため、この振る舞いの差異は、2 つの波長におけるビーム調整具合に起因すると考えられる。

波長 2  $\mu\text{m}$  の FEL 光に対して実施した集光ビームサイズの評価のためのナイフエッジ計測の結果を Fig. 4 に示す。プロットは、ナイフが完全にビームを遮蔽した時の積分信号強度を 0 とし、ナイフが完全にビーム領域から外れた時の積分強度を 1 とするよう規格化している。参考文献にある通り、信号強度が 0.1 から 0.9 となる時のナ

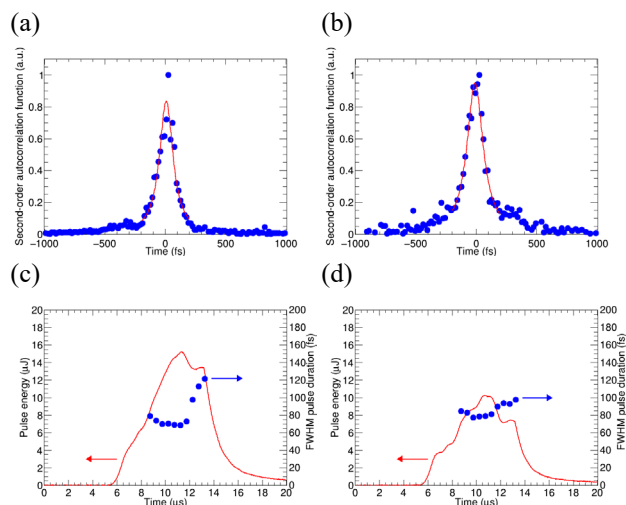


Figure 3: SHG intensity autocorrelation traces for the 3  $\mu\text{m}$  (a) and 2  $\mu\text{m}$  (b) wavelengths. (c) and (d) show the macropulse waveforms and instantaneous pulse durations for 3  $\mu\text{m}$  and 2  $\mu\text{m}$ , respectively.

イフェッジの移動距離を $D_c$ として、スポット半径 $W$ との間の関係 $2W = 1.561D_c$ よりビームのスポット径を求めた。水平・垂直についてびーむ伝播方向に数点計測して得たビームの集光スポットサイズ計測の結果を Fig. 5 に示す。伝播方向の距離 $z$ の関数としてビームエンベロップ $W(z)$ の式[18]

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(1 + \left(\frac{M^2 \lambda (z - z_0)^2}{\pi W_0^2}\right)^2\right)^2}$$

でフィットした結果、焦点距離 25 mm、外径 25 mm の $\text{CaF}_2$  レンズで集光した時の波長  $2 \mu\text{m}$  の FEL 光の最小スポットサイズ $W_0$ は水平  $4.4 \mu\text{m}$ 、垂直  $4.3 \mu\text{m}$  で、 $M^2$ はともに $\sim 1$ であった。また、集光特性についてはマイクロパルスの全体を通して時間的な発展はないことがわかった。

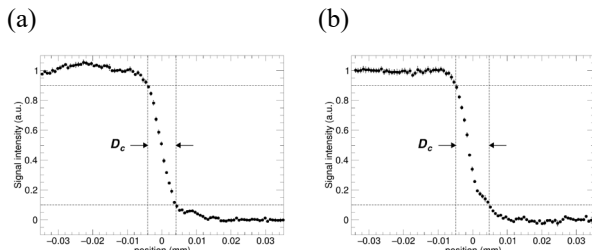


Figure 4: The traces for the knife-edge scanning near the focal point. (a) horizontal and (b) vertical traces.

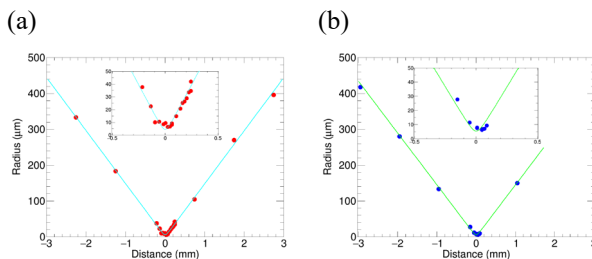


Figure 5: The beam envelopes of (a) horizontal and (b) vertical. Insets show the enlarged plots near the focal point.

今回の測定では波長  $2 \mu\text{m}$  で光学テーブル上において最大マイクロパルスエネルギー  $10.2 \pm 0.6 \mu\text{J}$  であった。測定した FEL 光のパルス長は  $81.2 \pm 0.3 \text{ fs}$ 、集光ビーム断面積は  $(3.0 \pm 0.4) \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  であり、ピークパワーは  $126 \pm 8 \text{ MW}$ 、集光強度は  $(4.2 \pm 0.6) \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  と評価できる。この強度はガス分子をターゲットとした HHG の駆動に必要な強度に十分達しており [21, 22]、LEBRA FEL を用いて FEL による HHG の研究が十分に実施可能であることが確認できた

#### 4. まとめ

本研究では日本大学 LEBRA FEL において SHG 自己相関計測とナイフエッジ計測とを実施し、波長  $2 \mu\text{m}$  で  $(4.2 \pm 0.6) \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  の集光強度が得られることを示した。その結果、LEBRA FEL において中赤外 FEL パルスによる HHG 研究を十分に実施できることを確認した。従って今後、実際に FEL による HHG の研究を進める。

#### 謝辞

本研究は文部科学省量子飛躍フラッグシッププログラム (JPMXS0118070271) の下で実施しております。本研究の実験は日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設を用いて実施しました。

#### 参考文献

- [1] F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* 81, 163 (2009). doi:10.1103/RevModPhys.81.163
- [2] K. Midorikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 50, 090001 (2011). doi: 10.1143/JJAP.50.090001
- [3] T. Popmintchev *et al.*, *Science* 336, 1287 (2012). doi:10.1126/science.1218497
- [4] R. Bonifacio and F. Casagrande, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* 239, 36 (1985). doi: 10.1016/0168-9002(85)90695-3
- [5] N. Piovela *et al.*, *Phys. Rev. E* 52, 5470 (1995). doi:10.1103/PhysRevE.52.5470
- [6] R. Hajima and R. Nagai, *Phys. Rev. Lett.* 119, 204802 (2017). doi:10.1103/PhysRevLett.119.204802
- [7] Y. Hayakawa *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* 483, 29 (2002). doi:10.1016/S0168-9002(02)00281-4
- [8] 早川恭史, 境武志, *放射光* 36, 140 (2023).
- [9] E. P. Ippen and C.V. Shank, in *Ultrashort Light Pulses*, ed. S.L. Shapiro (Springer, Berlin, 1977) p. 83. doi:10.1007/3-540-13493-X\_17
- [10] E.R. Crosson *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* 358, 216 (1995). doi:10.1016/0168-9002(94)01584-8
- [11] R. Prazeres *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* 358, 212 (1995). doi:10.1016/S0168-9002(99)80008-4
- [12] G.M.-H. Knippels *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 75, 1755 (1995). doi:10.1103/PhysRevLett.75.1755
- [13] R. Nagai *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A* 483, 129 (2002). doi:10.1016/S0168-9002(02)00297-8
- [14] H. Zen *et al.*, *Sci. Rep.* 13, 6350 (2023). doi:10.1038/s41598-023-33550-z
- [15] Y. Suzuki and A. Tachibana, *Appl. Opt.* 14, 2809 (1975). doi:10.1364/AO.14.002809
- [16] A.E. Siegman, M.W. Sasnett, and T.F. Johnston Jr., *IEEE J. Quantum Electron.* 27, 1098 (1991). doi:10.1109/3.83346
- [17] A.E. Siegman, "How to (Maybe) measure laser beam quality", *DPSS (Diode Pumped Solid State) Lasers: Applications and Issues* (Washington, D.C., United States), 1998, ed. M. Dowley, (Optica Publishing Group). doi:10.1364/DLAI.1988.MQ1
- [18] 平拓範, *レーザー研究* 26, 723 (1998). doi:10.2184/ljsj.26.723
- [19] K. Kawase *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* 63, 0721001 (2024). doi:10.35848/1347-4065/ad5425
- [20] D.E. Zelmon, D.L. Small, and D. Jundt, *J. Opt. Soc. Am. B* 14, 3319 (1997). doi:10.1364/JOSAB.14.003319

[21] P. Colosimo *et al.*, Nat. Phys. 4, 386 (2008).  
doi:10.1038/nphys914

[22] C.I. Blaga *et al.*, Nat. Phys. 5, 335 (2009).  
doi:10.1038/nphys1228