

## 中赤外自由電子レーザー光パルス間位相同期システム開発に向けた 試験調和共振器の構築

### DEVELOPMENT OF A TEST HARMONIZED OPTICAL RESONATOR FOR MID-IR PHASE-LOCKED FREE ELECTRON LASER

久保田月野<sup>#, A)</sup>, 住友洋介<sup>A)</sup>, 曾我怜大<sup>A)</sup>, 原田一輝<sup>A)</sup>, 境武志<sup>B)</sup>, 早川建<sup>B)</sup>, 早川恭史<sup>B)</sup>

Tsukino Kubota<sup>#, A)</sup>, Yoske Sumitomo<sup>A)</sup>, Reo Soga<sup>A)</sup>, Kazuki Harada<sup>A)</sup>,

Takeshi Sakai<sup>B)</sup>, Ken Hayakawa<sup>B)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> CST, Nihon University, Tokyo, Japan

<sup>B)</sup> LEBRA, Nihon University, Chiba, Japan

#### Abstract

The oscillator free electron laser at Nihon University has a potential to generate highly brilliant, ultra short-duration, mid-infrared light pulses, especially at a high repetition rate. The unobtainable properties of mid-IR pulses may induce a nonlinear reaction by sequential instantaneous irradiation to the eigenfrequencies of hydrogen-related molecules such as water and ammonia. To improve the performance of this free electron laser, we are planning to generate a high repetition optical frequency comb by introducing a phase harmonization between pulses generated at around 3 GHz so as to concentrate the intensity on specific eigen frequency components. In this presentation, we will introduce the outline of our research on optical frequency comb and phase harmonization system, and report on a pilot phase harmonization system as a preparatory step.

#### 1. 光パルスによる分子反応の超効率制御

現代において2018年のノーベル物理学賞である高強度超短光パルスの生成や2023年にノーベル物理学賞したアト秒光パルスレーザーに代表される極短時間な光パルスレーザー開発の進歩が顕著になってきている。極短光パルス開発で必要となるモードロックシステムなどを用いて、分子のみならず原子反応の制御や確認が可能となりつつある。この極短光パルスによる反応は、従来の線形的な反応だけでなく非線形的な現象を引き起こす可能性が考えられる。こういった非線形的な現象が観測されるためにパルス技術の育成が重要である。

日本大学には100 MeV以下の高エネルギーな電子ビームを制御する電子線形加速器があり、約3 GHzの高繰り返しな電子ビームを最大20  $\mu$ s程度のロングスパンで発振させることができる。高エネルギーで高繰り返しな電子ビームを用いることにより共振器型自由電子レーザー装置を用いて2-5  $\mu$ mの波長領域で100フェムト秒以下の極短光パルスを生成することができる。この特筆すべき特徴を持った中赤外光パルスを生成することのできる施設は世界的にも珍しく、本研究では、高強度な極短中赤外光パルスを用いて、分子間の反応をこれまで確認されている線形反応ではなく、非線形的な反応を起こすことによる分子反応の高い効率での制御を可能とする技術を確認することが目的となる。先行的な研究として、日本大学の共振器型自由電子レーザーで生成される極短光パルスと同じ波長帯である中赤外に分子間の固有エネルギーを持つ水素関連分子を実験試料とし、集中照射による分子操作によって水素の超効率生成を目指すことを究極の目標としている。

#### 2. 高輝度フェムト秒レーザーの開発

##### 2.1 高繰り返し光周波数コムの利用

水素関連分子の制御を実現するためには、水素関連分子が持つ固有の吸収帯域と同じ波長を持つ高輝度なレーザーを照射する必要がある。そこで、非線形的な反応を引き起こすための単色性の高いパルスレーザーを光周波数コムから生成する。光周波数コムの概要図をFig. 1に示す。光周波数コムの特性を用いることにより、特定の周波数成分の強度を高めることができる。時間と周波数は逆数の関係から、光パルスの照射間隔時間が長ければ長いほど光パルスに依存した周波数成分の強度が上昇するが、日本大学では約3 GHz程度の高繰り返しな発振を、最大20  $\mu$ sの電子ビームにより生成することができるため光周波数コムを用いた高輝度な中赤外パルスレーザーの生成に適していると言える。

##### 2.2 位相同期システムの構築

現在日本大学では、共振器型自由電子レーザー装置を用いることで、パルス1つが100フェムト秒程度の時間広がりを持つ中赤外パルスレーザーを生成し研究開発に利用している。この中赤外パルスレーザーを生成する過程において、共振器内で電子ビームと光パルスが相互作用することにより非線形的な反応を起こし高輝度なパルスレーザーを生み出しているが、この共振器内の光パルスは電子ビームから生み出されたものであり、パルス内位相は電子ビームのショットノイズに大きく依存する。その結果、パルス内部の位相はランダム性を持つようになり、積算させるとブロードな周波数を持つ光になり特定の周波数成分の強度を高めることが難しい。そこで、共振器内に凹面鏡を追加し3枚の凹面鏡で調和共振させることによりそれぞれの光パルスに相関を持たせる位相

<sup>#</sup> csts23011@g.nihon-u.ac.jp

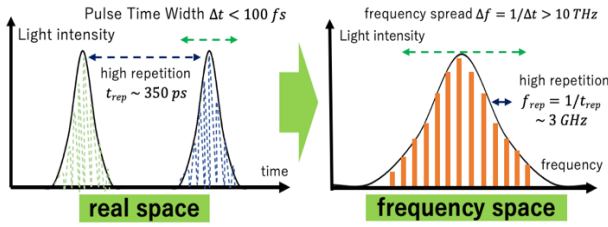


Figure 1: An overview of optical frequency comb [1].

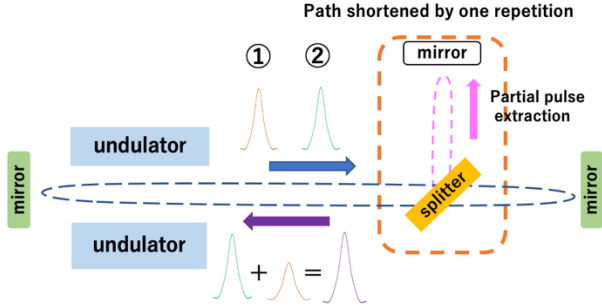


Figure 2: A schematic of the oscillator FEL [1].

同期システムの構築を検討している[1]。位相同期システムの概略図を Fig. 2 に示す。Figure 2 のように、既存の2枚の凹面鏡に加え1パルス分経路を短くした位置に凹面鏡を設置することにより3枚の凹面鏡によって共振器内の光パルスに相関を持たせ情報を伝達していくことができる。この仕組みは、位相同期自由電子レーザー[2-4]として提案・実証されている。

### 3. 試験共振器の構築

共振器構築への前段階として、試験的に共振器の構築を行う。実際の共振器は6718 mmであり、実験室で距離を取るために折り返した経路を計画し概要図を Fig. 3 に示す。既存の共振器の凹面鏡に用いられているR3700の凹面金コートミラーを2枚使用し、位相同期経路の凹面鏡の曲率をガウスビーム[5]から導出する。

$$E = E_0 \exp\left(\frac{\omega_0^2}{\omega^2(z)}\right) \exp\left(\frac{-ikr^2}{2R(z)} + i\phi\right), \quad (1)$$

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_0}{z}\right)^2\right), \quad (2)$$

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}. \quad (3)$$

凹面鏡の曲率は、(2)式のRから求められる。共振器長6718 mmから位相同期経路に用いる凹面鏡の曲率はR3653と求められた。

試験共振器を構築する際に、光学台構築に使用するブレッドボードなどの費用を抑えるために、光学レールと枕木を用いての構築を計画した。概要図を Fig. 4 に示す。枕木はFusion360で設計を行い3Dプリンターで印刷した。また試験共振器内部に入射するレーザーの曲率を共振器に合わせて調整する必要がある。

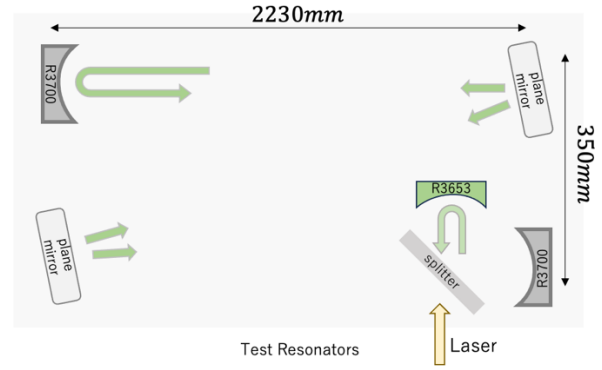


Figure 3: A schematic of the pilot harmonic resonators.

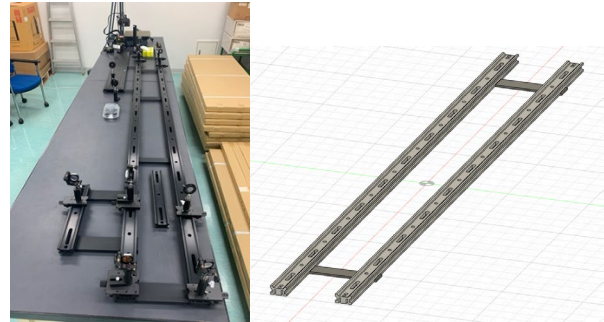


Figure 4: A photo drawing a part of the pilot harmonic resonators.

#### 3.1 入射用レーザーのビームサイズ測定

凹面鏡の曲率に合ったレーザーを入射するために、実験で使用するレーザーのビームサイズを計測した後レーザーのビームサイズに沿ったレンズを導入し入射系の構築を行う。まずレーザーのビームサイズを測定し、そこから測定値の近似式から標準偏差を導く。レーザーのビームサイズを測定した結果をそれぞれ Fig. 5 に示す。ビームのサイズについての表記はガウスビームを利用して計算していくことから $\omega$ で表す。レーザーを計測した結果、初期状態から平行光であることがわかった。そこで、空間的なコヒーレンスを確認するためレーザーを $f = 250 \text{ mm}$ のレンズで収束させ各位置でのビームサイズを測定し結果を Fig. 6 に示す。これらの測定からビームサイズ $\omega_1 = 1.785 \text{ mm}$ を用いて入射系の構築を行っていく。

#### 3.2 レンズによる入射系構築

共振器内の凹面鏡の曲率に沿ったレーザーを入射するためにレンズを用いた入射系の構築を行っていく。先ほど導いたビームサイズ $\omega_1 = 1.785 \text{ mm}$ から用いるレンズの焦点距離と位置を転送行列[5]を用いて計算していく。この共振器に入射されるときビームサイズと角度に一致する転送行列の式は以下のようになる。

$$\begin{pmatrix} \omega_2 \\ \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & d_3 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f_3} & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & d_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f_2} & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & d_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f_1} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega_1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (4)$$

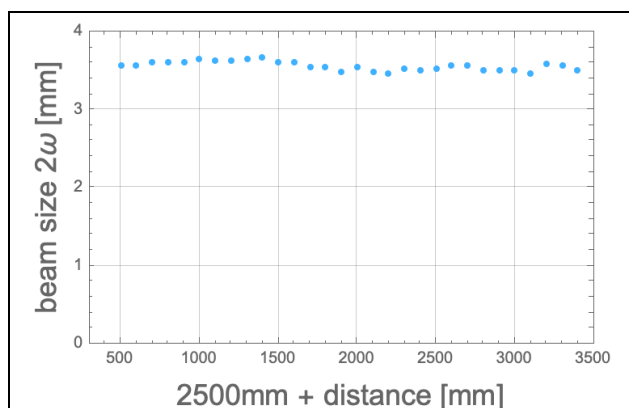


Figure 5: A measurement of laser beam sizes at several points.

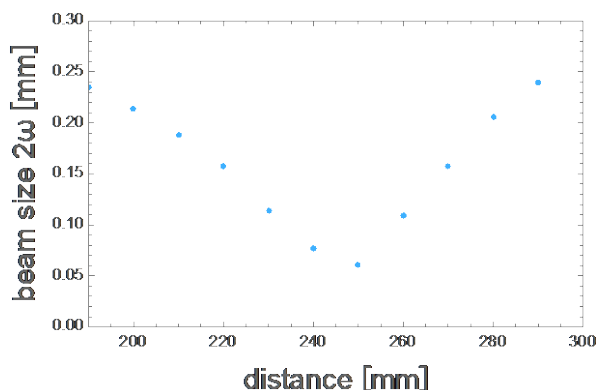


Figure 6: Measurement results with  $f=250$  lens.

この結果から(4)式を計算することによりFig. 7のようにそれぞれの値を求めることができ、求めたレンズの焦点距離と位置から入射系を構築した。

### 3.3 凹面鏡の曲率と入射ビームの広がり比較

(4)式の計算結果より、 $f_1 = 50$ 、 $f_2 = 35$ 、 $f_3 = 1000$  のレンズを用いて入射系の構築を行った。入射系により作られたビームが正確に入射できているかを収束点付近のビームサイズを計測することにより確かめる。入射口から 3600 mm - 3760 mm を 10 mm ごとに測定した。測定結果をFig. 8 に示す。測定結果より、収束点が 3600 mm より短いところにあると考えられる。レンズの位置を調整することにより正確な位置で収束させられるようにしていく。

## 4. まとめ

水素の超効率的な生成のために高輝度なフェムト秒レーザーの生成を行いたい。そのために高繰り返しな光周波数コムと位相同期システムの開発を行っていく。

現段階では、位相同期システムの準備段階として試験的な共振器の構築を行っている。試験共振器の1周期分ずらした経路に凹面鏡を設置することにより、凹面

鏡 3 枚の任意の 2 枚で共振状態となるような調和共振器の構成となる。3 枚でまとめて調整を行うのは難しいため、スプリッターを入れた 2 枚での調整をまずは行っている。

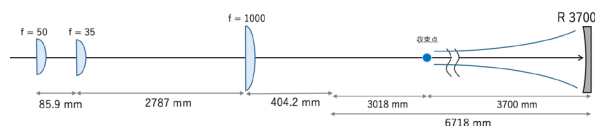


Figure 7: Incidence meter overview.

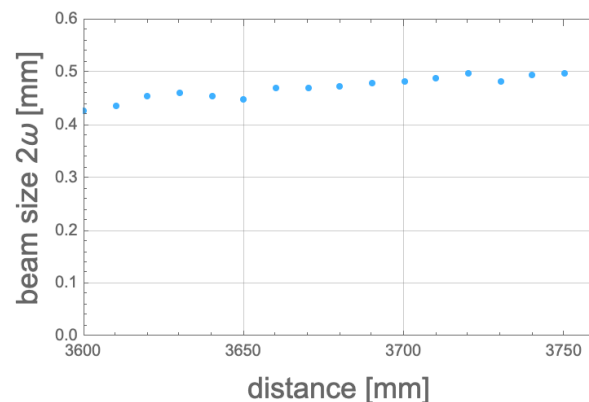


Figure 8: Beam size at convergence point.

## 謝辞

本研究は、令和 6 年度日本大学理工学研究所外部資金獲得(スタートアップ)支援研究助成金により支援されています。

## 参考文献

- [1] T. Kubota *et al.*, “高繰り返し中赤外光周波数コム開発に向けた試験位相相関実験”, Proceedings of the 20th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 29 - September 1, Chiba, Japan, 2023.
- [2] Eric B. Szarmes, Stephen V. Benson, John M.J. BADEY, "Mode control on short-pulse FELs using a Michelson-mirror resonator", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Volume 296, Issues 1–3, Pages 98-109, (1990).
- [3] D. Oepts, R. J. Bakker, D. A. Jaroszynski, A. F. G. van der Meer, and P. W. van Amersfoort, Phys. Rev. Lett. 68, 3543 (1992).
- [4] Pardis Niknejadi *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams 22, 040704 (2019).
- [5] Y. Honda, “レーザーと先端光源加速器”, Accelerator Fundamentals and Applications of Energy-Recovery Linacs Chapter 6, OHO, 2015.