

# 共振器型自由電子レーザーによる数サイクル赤外光の発生と強光子場科学への展開

羽島良一

量子科学技術研究開発機構 〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方 2-4

■強光子

赤外の波長領域で動作する共振器型自由電子レーザーを一定の条件で運転すれば、光の電場を数周期しか含まない、極短光パルスを生成することができる。このような「数サイクル FEL 発振」では、発振に寄与する電子数の増大とともにピーク強度と変換効率の増大、パルス幅の短縮が見られ、二準位系における超放射とのアナロジーが成り立つ。本稿では、JAERI-FEL での数サイクル FEL 発振の実験結果、さらに、数サイクル発振におけるショットノイズの役割、キャリアエンベロープ位相安定化の提案、数サイクル赤外パルスを用いた強光子場科学への展開を紹介する。

## 1. はじめに

振動する電磁場を数周期しか含まない「数サイクルパルス」の生成と利用が、レーザーの分野で活発に研究されている<sup>1,2)</sup>。時間幅の短い数サイクルパルスは、超高速現象を観測するプローブとして利用でき、また、超高強度レーザー場の実現に必須の技術でもある。集光したレーザーの電場強度が原子のクーロン電場に匹敵、あるいは、これを上回る状況では、束縛電子のトンネル電離、高次高調波発生などの興味深い現象がひき起こされる。このような強い電場中での原子、分子のふるまいを調べる研究が強光子場科学である。

フェムト秒レーザーを用いた極短パルス強光子場科学の歴史は、チタンサファイアレーザー（波長 $0.8\ \mu\text{m}$ ）、イットリビウムレーザー（波長 $1\ \mu\text{m}$ ）など、近赤外レーザーの利用からスタートし、光パラメトリック増幅や差周波発生により生成する中赤外（波長 $3\text{--}8\ \mu\text{m}$ ）パルスの利用へと波長範囲を拡大してきた。イオン化した電子がレーザー場から受け取るエネルギーは、レーザー波長の2乗に比例して大きくなり、高次高調波の短波長化などにつながる。このため、中赤外、長波長赤外（波長 $8\text{--}15\ \mu\text{m}$ ）における強光子場科学研究が望まれているが、固体レーザーでは波長変換の効率に限界があり容易ではない。高次高調波発生では波長 $3.9\ \mu\text{m}$ <sup>3)</sup>、Xeの強光子場電離では波長 $8.9\ \mu\text{m}$ <sup>4)</sup>が、これまでに最も長い波長の実験である。

アンジュレータを通過する電子が発する自発放射光は、アンジュレータ周期数に等しい波束をもつが、共振器型自由電子レーザー（FEL）ではアンジュレータ周期数よりも少ない周期数しか含まない光パルスを作ることができ、条件を整えば周期数が10以下の「数サイクルパルス」も生成可能である。FELは波長可変の特長を持つので、固体レーザーで発生が困難な波長を含む広い波長域におい

て、数サイクルパルスの生成、これを用いた強光子場科学の展開を可能とする<sup>5)</sup>。

本稿では、共振器型 FEL における数サイクル光パルスの生成について、実験と数値解析の結果を交えながらその原理を説明し、強光子場科学への応用を目指した取り組みを紹介する。

## 2. 超放射

本稿で紹介する共振器型 FEL による数サイクル赤外光は、超放射 FEL (superradiance FEL) と呼ばれる現象で説明される。本稿の主題の数サイクル FEL パルス生成に入る前に、超放射 FEL を紹介する。超放射は、二準位系における準位間の遷移確率を考察した Robert Dicke が理論的に導出し<sup>6)</sup>、その後、実験的に確認された<sup>7)</sup>現象である。超放射 FEL は、Rodolf Bonifacio らが、その存在を理論的に示し<sup>8)</sup>、これまでに多くの実験が行われてきた。ここでは、Dicke の超放射、超放射 FEL について、簡単に説明する。

二つのエネルギー準位をもつ原子を考える。原子が上準位から下準位へ遷移する時、準位間のエネルギー差に等しいエネルギーの光子が放出される、すなわち、自発放射である。初期状態（時刻 $t=0$ ）に、多数の原子が上準位にあった時、上準位にある原子の数は時間とともに指数関数的に減少する。減少の時定数は上準位から下準位への遷移確率（アインシュタインの A 係数として知られている）で決まる。

では、すべての原子が光の波長に比べて十分小さい領域に集まっている場合はどうなるであろう。初期状態に N 個の原子の全てが上準位にあるとする。光子が1個放出されると、上準位に (N-1) 個、下準位に1個の原子が存在することになる。この時、上準位と下準位への原子の配

分は  $N$  通りの場合の数がある。ところが、原子が波長に比べて小さい領域に集まっている場合、光子を放出した原子を特定して  $N$  通りの状態を区別することはできず、 $N$  通りの状態が結合した新たな量子状態として取り扱わなければならない。準位間の遷移確率も孤立した原子の場合とは違う値をとる (Fig. 1 参照)。同様に、光子が 2 個、3 個…  $N$  個放出された状態も、それぞれの場合の数が結合した量子状態となる。準位間の遷移確率を詳しく計算すると、場合の数に従って遷移確率が大きくなるのがわかる。 $N$  個の原子を二つの準位に分配する場合の数は、両者に半数ずつとした時に最大となるので、光子放出の時間波形は自発放射で見られる指数関数的な減少曲線ではなく、場合の数を反映して時間とともに増大し減少するパルス波形とな

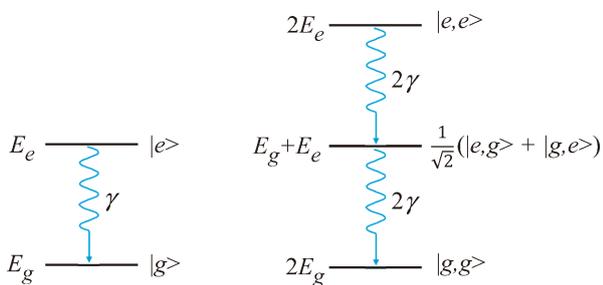


Fig. 1 (left) Spontaneous emission in a two-level system isolated from other emitters, and (right) superradiance in a two-level system consisting of two emitters whose separation is less than the wavelength of the light.

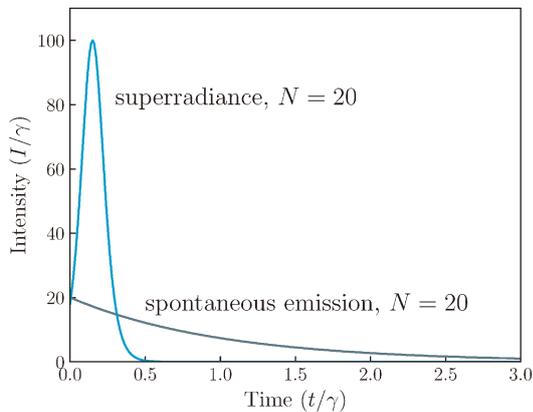


Fig. 2 Temporal profiles of the spontaneous emission and the superradiance from a two-level system with the number of emitters,  $N=20$ .

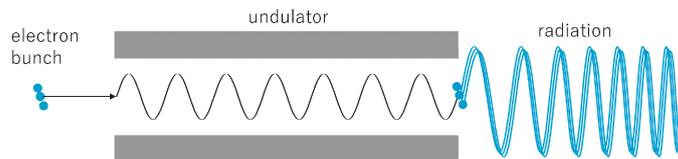


Fig. 3 Superradiance from an electron bunch shorter than the radiation wavelength. The radiation shows frequency down chirp due to the electron energy variation in the undulator.

る (Fig. 2 参照)。これが Dicke の示した超放射である。詳しい計算を行えば、パルスのピーク値が  $N^2$  に比例、パルスの時間幅が  $1/N$  に比例することが示される<sup>9,10)</sup>。

$N$  個の電子を含む電子ビームが光の放射を行う際にもピーク強度が  $N^2$  に、パルス幅が  $1/N$  に比例する場合があります、これも超放射 (superradiance) と呼ぶ。光波長よりも時間幅の短い電子バンチが放射するコヒーレント放射がその例である<sup>11)</sup>。ここで、電子ビームによる超放射は、バンチした電子が「自由空間で」光を放射する場合に限ることに注意しなければならない。この理由を以下に述べる。

波長以下のスケールで集群した  $N$  個の電子からなる電子バンチがアンジュレータを通過する場合を考える (Fig. 3 参照)。バンチ全体が放射する光は、それぞれの電子が放射する電場の位相が揃って重なり合ったものとなる。 $N$  個の電子が放出する光の電場は、電子 1 個が放出する光の電場の  $N$  倍となるので、光のパワーは  $N^2$  倍となる。ここで、電子は光を放出するにしたがってエネルギーが低下するので放出する光の位相と波長は徐々に変化し (ダウンチャープした光を放射し)、 $N$  が大きく強い光を出す場合は、位相と波長の変化が顕著になる。電子はエネルギーを失うと同時にバンチ構造も崩れるため、やがて強い放射が起こらなくなる。このため、電子数の増大はパルス幅の短縮をもたらす。

一方、電子の軌道に自身の放射する光と位相の異なる光 (電場) が存在する場合は、 $N^2$  放射の条件が成り立たなくなり、光の放出ではなく吸収も起こり得る。FEL の原理は、ポテンシャル中にトラップされた電子の回転運動で示されるが、回転が進んで飽和に達した場合が、これに相当する。このような現象は超放射と区別される。SASE 型の XFEL では、電子ビームから光への変換効率が FEL パラメータと呼ばれる無次元量  $\rho$  で決まる<sup>8)</sup>。 $\rho$  はピーク電流 (電子数) の  $1/3$  乗に比例するので、FEL のピーク強度は電子数  $N^2$  ではなく  $N^{4/3}$  に比例することからも、超放射でないことがわかる。SASE 型の XFEL では、マイクロバンチした電子は、常に、後方の電子が放出した光の中で放射を行い、超放射に必要な「マイクロバンチした電子の自由空間での放射」の条件を満たさないためである。

以下の議論のために、FEL の動作を特徴づける 3 つの長さ、電子バンチ長 ( $L_b$ )、コーポレーション長 ( $L_c$ )、スリップ長 ( $L_s$ ) を導入する。FEL に用いられる高エネルギー電子の速度は、ほぼ光速であるが、アンジュレータ

で蛇行する電子は光パルスから遅れて進む。アンジュレータ中を進む間に電子が光から遅れる長さはスリップ長 ( $L_s$ ) として定義され、レーザー波長 ( $\lambda$ ) とアンジュレータ周期数 ( $N_u$ ) の積として、 $L_s = \lambda N_u$  と計算される。コーポレーション長は、FELの指数関数的増幅に伴ってピークパワーが  $e$  倍になるのに要するスリップ長であり、 $L_c = \lambda / (4\pi\rho)$  で与えられる。

Bonifacio らは、超放射 FEL の動作領域を二つに分けて、strong superradiance, weak superradiance と呼んだ<sup>6)</sup>。前者は、指数関数的増幅によりシングルパスで飽和強度まで達した後、マイクロバンチした電子がスリップして光から抜け出し超放射を行う場合に相当する。これは、 $L_c \ll L_s \sim L_b$  の条件を満たす場合である。アンジュレータは FEL の飽和に十分な長さであり、バンチ最後尾はマイクロバンチした後にスリップ領域でスパイク状の光パルスを放出する。スパイクのピーク強度は、FEL パラメータ  $\rho$  で決まるピーク強度を超えるので、“strong”の形容がなされる。後者の weak superradiance は、 $(L_s/L_b) \gg (L_c/L_b)^{3/2} > 1$  の条件下で発現する。 $L_c > L_b$  なので、シングルパスで飽和に至らないが、マイクロバンチした電子がスリップ領域で  $N^2$  放射を行う。放射パルスの時間波形は、二準位系の超放射と同じく双曲線関数 ( $\text{sech}^2$ ) の立ち上がり波形と、メインピークとこれに続く減衰をともなう規則的なサブピーク列 (Burnham-Chiao リンギング) を持つ。 $L_b < L_c$  なので、波長間隔で形成されたマイクロバンチは一体となってダウンチャープを伴う光を放出する (後方の電子が放出した光を含んで超放射となる)。

### 3. スーパーモード理論

RF リニアックで作られる電子ビームは 0.1-1 ps 程度の時間幅を持った電子バンチであり、赤外で動作する FEL では、電子バンチの長さがスリップ長よりも短い。このような場合、アンジュレータ前半部で光と相互作用しマイクロバンチを生じた電子は、スリップして光から抜け出した後に、超放射を行う。つまり、電子は光から遅れながら増幅作用を行うので、光パルスの後半部が増幅する。共振器型 FEL では、連続する電子バンチの間隔と光パルスの往復時間が同期するように共振器の長さを選ぶが、実際には共振器を同期条件で決まる長さよりもわずかに短くして動作させる。このようにして、強く増幅したパルス後半部を前方に移動することで、往復回数に従った指数関数的増幅が得られる。実際の光共振器長と電子ビームの間隔で決まる長さの差を光共振器のデチューニング長という。

共振器型 FEL にて、スリップ長、バンチ長、ゲインパラメータ、光共振器の損失とデチューニング長が与えられた時に、発振状態を求めるための解析方法としてスーパーモード理論がある<sup>12)</sup>。共振器型 FEL では、光パルス長に比べて共振器長がはるかに長い場合、共振器の固有モード

(縦モード) で光パルスの時間波形を展開するには多数のモードが必要となり実用的な解析に適さない。スーパーモード理論は、電子バンチ長 ( $L_b$ ) とスリップ長 ( $L_s$ ) を基準とした長さで定義される固有モードを用いて FEL の時間波形を展開する手法である。スーパーモード理論を使えば、FEL パルスの成長を少数の固有モードで記述でき、各モードの時間波形、成長率(固有値)が求められる。バンチがスリップ長よりも短い条件下で動作する、短バンチ FEL のスーパーモード理論は、Piovella らによって導出された<sup>12)</sup>。

Fig. 4 は、共振器型 FEL について、スーパーモード理論が与えるモードごとの成長率を示したものである。横軸はゲインパラメータとスリップ長で規格化した共振器デチューニング長 ( $\nu$ ) である。 $\nu$  の絶対値が大きい場合 ( $-0.13 < \nu < -0.02$ ) では最低次のスーパーモードのみが正の成長率を持つ。2 次のスーパーモードは、 $-0.02 < \nu < 0$  で、3 次のスーパーモードは、 $-0.01 < \nu < 0$  で正の成長率を持つ。ただし、高次のスーパーモードは成長率が小さいので、共振器損失が大きい場合は立ち上がらないことがわかる。一方、ゲインパラメータが共振器損失に比べて十分に大きい場合は、 $\nu$  がゼロに近い運転パラメータで複数のスーパーモードが同時に発振する。二つのスーパーモードが同時に発振する場合は規則的な周期変動を伴うリミットサイクル型の発振が、三つ以上のスーパーモードが発振する場合はカオス的な発振になる<sup>13)</sup>。この時、複数のスーパーモードは縮退し、超放射のスケール則に従う極短パルスが生成されることが理論解析で示され、オランダの共振器型 FEL (FELIX) の実験でも確認された。

次に、FEL パルスのサイクル数が FEL の変換効率と関係していることを示す。共振器型 FEL における電子ビームから光へのエネルギーの変換効率 (引き出し効率ともい

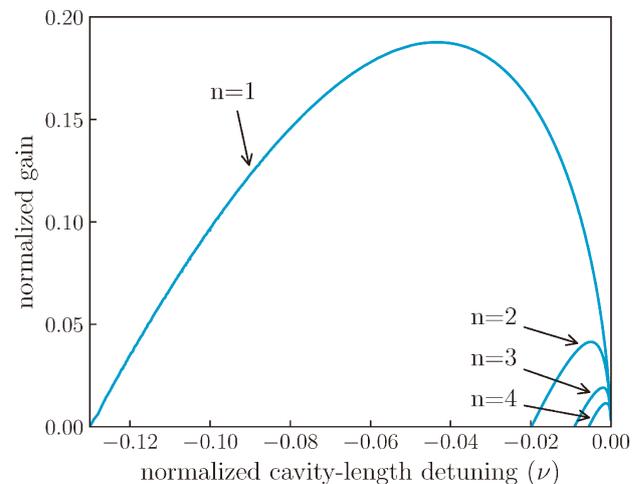


Fig. 4 Normalized single-pass gain calculated by the supermode theory. The gain curves of the first four supermodes are plotted as a function of the normalized cavity length detuning.

う)は、アンジュレータ周期数 ( $N_u$ ) で決まり、 $\eta = 1/(2N_u)$  と表される。これは、アンジュレータからの自発放射光のスペクトル幅が  $1/N_u$  であり、自発放射光のスペクトルを微分して得られるゲインカーブの帯域幅が変換効率であることに対応している。誘導放出で多数の光子を放出する電子は、徐々に自身のエネルギーを失っていき、電子のエネルギーが、ゲイン帯域で決まるエネルギーの下限を超えると、今度は、電子は誘導吸収を行い光のエネルギーが電子エネルギーに変わる。この現象は、反転分布をもった二準位系にて、誘導放出が進むにつれて下準位の原子数が上準位の原子数を上回り、反転分布が消滅してレーザー増幅が停止するのと同様である。

超放射 FEL にて、スリップ長よりも短い光パルスが生成された場合の変換効率はどうか？ 電子はアンジュレータ中で光パルスの中を後方にスリップしながら相互作用を行うが、この場合の相互作用はアンジュレータ周期ではなく、光パルスの長さ(振動電場のサイクル数)で決まることになる。つまり、変換効率はアンジュレータ周期数でなく、光のサイクル数で決まる。スーパーモード理論によれば、光共振器長のデチューニングを小さくした時に現れる数サイクル発振時の変換効率は、 $\eta = 1/(8\pi N_s)$  となり、光パルスのサイクル数 ( $N_s$ ) に反比例することが示されている<sup>13)</sup>。この結論は、共振器型 FEL における数サイクルパルスの生成において重要な意味をもつ。すなわち、FEL パルスの短縮は、変換効率の増大を伴うということである。

#### 4. 共振器型 FEL における数サイクルパルスの生成

前節までに述べた超放射、スーパーモード理論の結果を参照しつつ、共振器型 FEL における数サイクルパルスの生成実験の結果を紹介する。数サイクルパルスの生成は、1990年代に、FELIX、CLIO (フランスの共振器型 FEL) から相次いで報告された。両施設ともに常伝導 RF リニアックで駆動される共振器型 FEL であり、赤外領域のユーザー利用を目的として建設されたものである。FELIX では、波長  $10.4 \mu\text{m}$ 、 $24.5 \mu\text{m}$  にて FEL パルスの時間波形を自己相関法で測定したところ、最短で6サイクルの光パルスが確認された<sup>14)</sup>。CLIO では、波長  $8.5 \mu\text{m}$  で7サイクルのパルスが測定された<sup>15)</sup>。

スーパーモード理論によると、このような発振は、FEL のゲインパラメータが共振器損失に比べて十分に大きな条件で、光共振器長のデチューニングを小さくした時に現れ、多数のスーパーモードが縮退した状態であると示される。この時、数サイクルの光パルスがマクロパルスの立ち上がり部で過渡的に形成されるが、飽和とともにカオス的な発振状態に移行し、数サイクルパルスは持続しない。

FELIX では、その後の実験でバンチ電荷 ( $q$ ) を変えな

がら FEL パルス測定を行ったところ、FEL の変換効率 ( $\eta$ )、パルスエネルギー ( $E_L$ )、波長広がり ( $\Delta\lambda/\lambda$ ) が、 $\eta \propto q^{1/2}$ 、 $E_L \propto q^{3/2}$ 、 $(\Delta\lambda/\lambda) \propto q^{1/2}$  の関係にあり、超放射のスケール則を満たす発振が起こっていることが確認された<sup>16)</sup>。

#### 5. JAERI-FEL における数サイクルパルスの生成

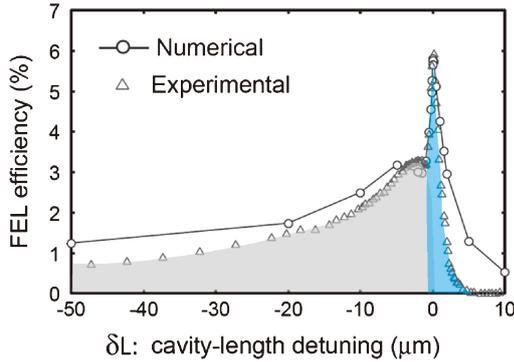
本節では、JAERI-FEL において達成された高効率発振と数サイクルパルス生成実験について述べる。JAERI-FEL は、日本原子力研究所で開発された共振器型 FEL である。原子力分野をはじめとした産業利用を目指して、高平均出力が可能な超伝導リニアックを電子ビーム源として採用したことが、他の赤外 FEL 施設との大きな違いであった。1987年に建設がスタート、1998年に最初の FEL 発振、2000年にマクロパルス平均  $1 \text{ kW}$  以上の高出力発振に成功、その後、エネルギー回収型リニアックへと改造され、2008年まで運転された。

筆者が JAERI-FEL チームに加わった1999年当時は、FEL 出力を増大するため、電子銃グリッドパルサーの改良をはじめとした電子ビームの高輝度化と加速器の安定化に向けた取り組みが進んでいた。これに加えて、Piovella らの理論解析を参考に共振器を低損失とする(アウトカプplを小さくする)ことで FEL の変換効率が高まり、FEL 出力が徐々に増大していった

実験で得られた FEL 発振の状態を理解するには、共振器のデチューニングカーブを測定し理論解析や数値解析と比較するのがよいため、デチューニングカーブを取りながら FEL の調整を行うのが日課であった。実験を進めるうち、意外な現象が観測されるようになった。デチューニングカーブに「ツノ」が立つようになったのである。それまでに報告されていた実験や理論解析には登場しない「ツノ」の出現によって、JAERI-FEL は共振器型 FEL の出力と効率の記録を塗り替えることになった。実験と並行して進めていた数値解析により、「ツノ」が完全同期長の位置に立つことが示唆され、その後、実験で確認された<sup>17,18)</sup>。

JAERI-FEL で測定された共振器のデチューニングカーブを Fig. 5 に示す。共振器長の絶対値の測定は、加速器周波数と同期したチタンサファイアレーザーを共振器に入射した際のパルススタックの大きさから求めている。共振器長のデチューニングがゼロの位置に「ツノ」が出現していることがわかる。Fig. 5 にて、デチューニングが負の発振は、通常の共振器型 FEL でも見られ、スーパーモード理論で説明できる。デチューニングがゼロ近傍の青く塗った領域(完全同期長発振)は、JAERI-FEL で新たに発見されたものである。

実験と数値解析から、完全同期長発振のユニークな特徴が明らかになった。(1) FEL ゲインが閾値を超えた時に



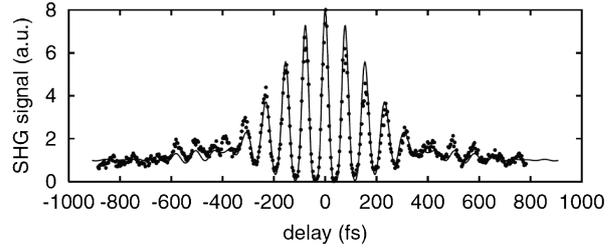
**Fig. 5** Cavity length detuning curve obtained at the JAERI-FEL. The lasing at  $\delta L < 0$  is described by the supermode theory. The lasing at  $\delta L \geq 0$  was the new lasing mode first observed at the JAERI-FEL. The new lasing mode exhibits high-efficiency few-cycle lasing<sup>17)</sup>.

のみ現れる、(2) マクロパルスが指数関数的ではなく線形的に立ち上がるため、飽和までに多数の往復回数を要する、(3) 電子ビームのショットノイズが FEL の立ち上がりだけでなく、飽和後も重要な役割を果たしている、(4) 数サイクルの極短パルスが飽和後も持続して発振するといった点である。完全同期長発振時の光パルス波形は、Dicke の superradiance, Bonifacio の weak superradiance FEL と同様、双曲線関数 (sech<sup>2</sup>) の立ち上がり、メインピーク、減衰をとまなう規則的なリングングを持つ。超放射に寄与する電子の数は、スリッパ長に含まれる電子数と共振器の Q 値の積となる。

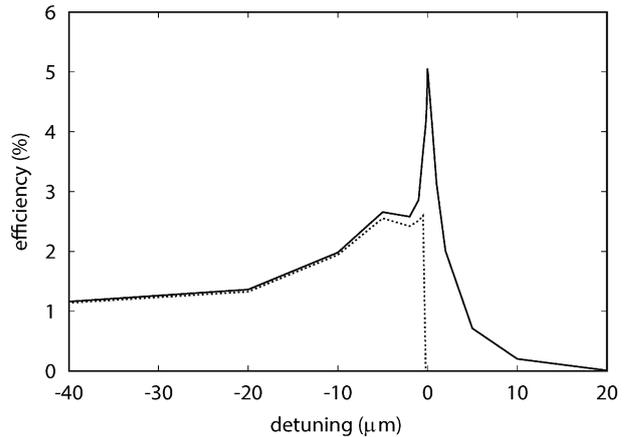
JAERI-FEL の完全同期長発振における数サイクルパルスの生成は、数値解析で示された後、実験的に確認された。実験では、完全同期長発振で得られた波長 22 μm の FEL パルスの時間波形をフリンジ分解型自己相関法で測定した。Fig. 6 に測定した自己相関波形を示す。チャープを考慮しないフィッティングでは、パルス幅は 3.4 サイクル (FWHM) である。数値解析によると FEL パルスは大きなダウンチャープ (パルスの後方ほど周波数が小さい) を持っていることが示されており、実験で得られたパルスにチャープ補償を行えば、1.5 サイクルまで圧縮できる可能性が示された<sup>19)</sup>。

スーパーモード理論が示す数サイクル発振 (ゲインが共振器損失よりも十分大きな場合に、共振器のデチューニングをゼロに近づけると現れる) では、FEL 強度が飽和するにつれて、リミットサイクル、カオスの発振に移行し、数サイクルパルスが得られるのはマクロパルス立ち上がりの過渡期のみである<sup>13)</sup>。これに対して、JAERI-FEL で発見された完全同期長発振では、FEL が飽和した後も数サイクルパルスが継続する点が特徴である。

完全同期長発振におけるショットノイズの効果は、次節で述べるキャリア・エンベロープ位相の安定化とも関係するので、ここで触れておく。



**Fig. 6** A fringe-resolved autocorrelation signal from the JAERI-FEL. The solid line is a fitted curve by a chirped sech<sup>2</sup> pulse<sup>18)</sup>.



**Fig. 7** Cavity-length detuning curve calculated for the JAERI-FEL experiment with two different noise-factor: shot noise determined by the standard formula (solid line) and 10<sup>-12</sup> of that (dashed line)<sup>16)</sup>.

電子バンチのショットノイズは、電子が 6 次元位相空間 (位置と運動量) にランダムな分布を持っていることに由来する。共振器型 FEL や SASE-FEL の種光は、いずれも、ショットノイズによるものである。FEL では、微小な種光が成長し指数関数的な増幅が始まると、ショットノイズの役割は終わる。共振器長のデチューニングを伴う共振器型 FEL では、成長した光パルスが共振器を往復した後、次に続く電子との相互作用における初期値となる。FEL 出力の飽和後は、ショットノイズは光パルスの強度に比べて無視できる強度であり、FEL 発振に影響を与えることはない。

ところが、JAERI-FEL の発振を再現するシミュレーションでは、完全同期長発振においてショットノイズが FEL の立ち上がりだけでなく飽和後も重要な役割を果たしていることがわかった。Fig. 7 は、ショットノイズの大きさを変えて、デチューニングカーブを計算した結果である<sup>18)</sup>。ショットノイズの大きさを正しく評価した計算では、実験と同様に完全同期長の位置にデチューニングカーブの「ツノ」が立つが、ショットノイズを小さくすると「ツノ」は立たない。つまり、完全同期長発振の出現は、ショットノイズの大きさに影響されるとの結果である。過

去に行われた理論解析<sup>20)</sup>にて、共振器型 FEL の完全同期長発振は持続しないとの結果が示されているのは、ショットノイズを考慮していないためであろう。完全同期長発振を持続するためには、なぜ、ショットノイズが必要なのか、次節でキャリア・エンベロープ位相の安定化と合わせて説明する。

## 6. FEL パルスのキャリア・エンベロープ位相の安定化

レーザーパルスの包絡線（エンベロープ）に対する振動する電場（キャリア）の位相をキャリア・エンベロープ位相（carrier-envelope phase; CEP）とよぶ。固体レーザーでは、CEP を制御して数サイクルパルスを生産する技術が確立している。レーザーパルスの時間幅が短くなり、パルスに含まれる振動電場が数サイクルとなると、CEP の制御が重要な意味を持つ。トンネル電離に代表される高強度レーザーと原子の相互作用では、レーザー強度ではなく、電場が意味を持つためである。例えば、レーザーをガス中に集光し短波長の光を得る高次高調波発生（High-Harmonic Generation; HHG）では、CEP の値によって得られる高調波の次数や発生量が変わることが知られている<sup>21)</sup>。

では、FEL において絶対位相を制御した位相安定化パルスの生成は可能であろうか？ FEL は電子ビームのノイズを種光として発振するので、CEP を制御することはできないと考えられてきたが、筆者らは、完全同期長の条件下で動作する共振器型 FEL において CEP を安定化したパルスを生産する手法を提案した<sup>22)</sup>。本手法を以下に紹介する。

共振器の長さを電子バンチの繰り返しに合わせた完全同期長の条件下で発生した光パルスが数サイクルの極短パルスとなることは先に述べた。Fig. 8(a) は、完全同期長の条件下での FEL パルス波形の計算結果である。電子エネルギー 50 MeV、電子バンチ長 0.4 ps、発振波長 6  $\mu\text{m}$ 、アンジュレータ周期数 40 のパラメータを選び、共振器内の往復回数が 1000, 1500, 2000 の時の光パルスを重ねてプロットしてある。縦軸のパルス強度は対数、リニアの両者を示している。電子バンチは、光パルスに対して後方にスリップしながら相互作用を行うが、完全同期長の条件下では、光パルスの後方から前方へのフィードバックがないため、光パルスの先頭部は常にショットノイズに支配される。往復ごとに、電子はショットノイズを初期値として FEL 相互作用をスタートするので、光パルスの波形は、ゆらぎを伴って変化する。ショットノイズの強度が極端に小さい場合は、FEL 相互作用が始まらないので、完全同期長発振はおこらない (Fig. 7 で示した結果がこれにあたる)。

もし、微弱なレーザーパルスを外部から FEL 共振器に注入し、FEL パルスの先頭部に外部レーザーのパルス

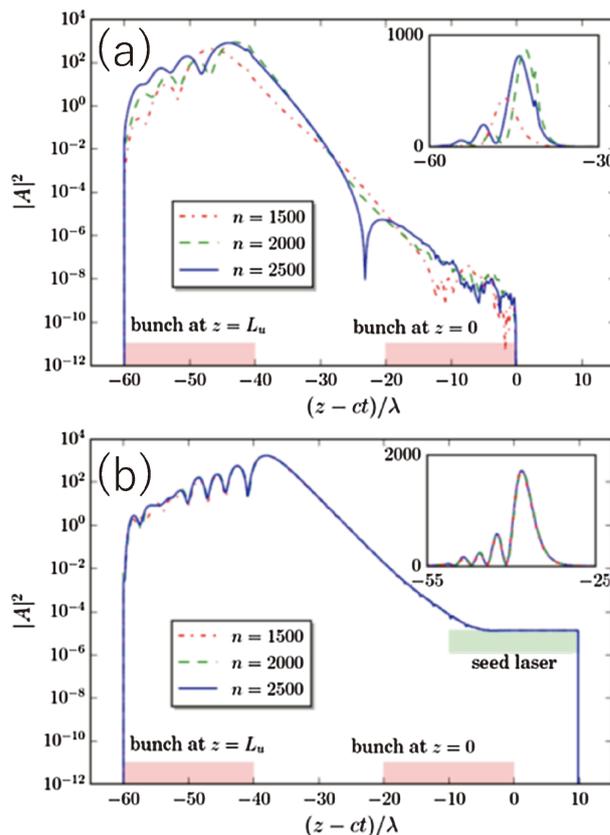
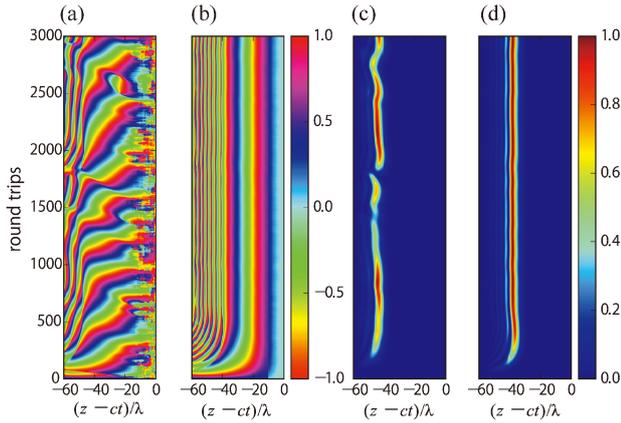


Fig. 8 FEL pulses in a perfectly synchronized optical cavity simulated by one-dimensional code. Temporal shapes for the round trip numbers  $n=1500, 2000$  and  $2500$  are plotted. Profile of the electron bunch at the entrance and the exit of the undulator is also plotted. The inset is the same FEL pulses plotted with a linear scale. (a) without an external seed laser and (b) with an external seed laser<sup>21)</sup>.

(シードレーザーパルス) を重畳すればどうなるであろうか。FEL パルスの先頭部の振幅と位相はシードレーザーによって固定されるので、往復ごとの電子と光の相互作用は、定まった初期値からスタートし、全体としての FEL 相互作用からも揺らぎが排除される。これにより、キャリア・エンベロープ位相も安定化する。Fig. 8(b) は、シードレーザーを注入した場合のパルス波形の計算結果である。パルス波形が安定化していることがわかる。飽和後の FEL パルスは 4.4 サイクル (半値全幅) の極短パルスとなる。パルス後方のリングングに、わずかに揺らぎが残っているが、これは、ショットノイズ (シードレーザーパルスの  $10^{-5}$  の強度) の効果である。Fig. 9 は、光パルスの振幅と位相が往復回数に従って変化する様子をプロットしたものである。シードがない場合は不安定であった振幅と位相が、シードを加えることで安定化する様子が示されている。

CEP 安定化に必要なシードレーザーは、電子ビームのショットノイズよりも十分大きな強度を持ち、光パルスの先頭部 (光の波長で 10 周期程度) に重畳するものであればよい。Fig. 8, 9 の計算例では、シードレーザーのパルス



**Fig. 9** Contour plots of instantaneous phase of simulated 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 an external seed laser and (d) with an external seed laser<sup>21)</sup>.

長400 fs, 光共振器内でのパルスエネルギー0.34 nJである。ただし、FELと同一の波長、同一の繰り返しをもつ必要がある。このようなレーザーは、加速器周波数に同期したモードロックレーザーを光パラメトリック増幅や差周波発生などで波長変換することで実現できる。

## 7. 強光子場科学への展開

さて、ここで提案した位相安定化 FEL パルスの応用のひとつが、強光子場科学の代表的な例である高次高調波発生 (HHG) によるアト秒パルス UV/X 線の生成である。固体レーザーによる HHG では、主に100 eV 以下のエネルギーのアト秒パルスが生成され、物質中の電子の動きをとらえる研究などに利用されている。HHG で光子エネルギーが 1 keV 以上の X 線の発生を目指すには、HHG に用いるレーザーの波長を長くすることが有用である。HHG は、トンネル電離した電子がレーザー電場中で振動運動し、親イオンの位置に戻って再結合する時に光子を放出するものである。この時、電子がレーザー場から受け取るエネルギーはレーザー波長の2乗に比例して大きくなるので放出される光子エネルギーの最大値 (カットオフエネルギー) も大きくなる。理論計算によるとカットオフエネルギーはレーザー波長の1.7乗に比例することが示されてお

り、これを裏付ける実験として、 $3.9\ \mu\text{m}$  のレーザーパルスによる1.6 keV の HHG が報告されている<sup>3)</sup>。しかしながら、固体レーザーでは  $4\ \mu\text{m}$  以上の波長 (中赤外) で HHG に必要な光パルスを作ることは難しく、さらなる実験結果の報告はこれまでにない。 $4\ \mu\text{m}$  以上の波長領域で位相安定化 FEL パルスを生成し、これを HHG に用いれば、1 keV 以上の X 線領域でアト秒パルスを生成できる可能性がある。さらに、FEL は固体レーザーと比較して、高繰り返し、高平均出力の点で優位である。

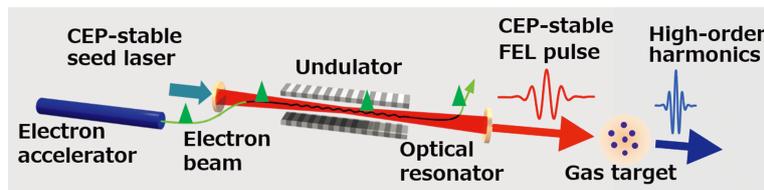
筆者らは、共振器型 FEL で駆動する HHG 光源 (FEL-HHG) を提案し、その実現に必要な基礎基盤技術の研究を文科省の光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) の支援を受けてスタートした<sup>23)</sup>。提案する FEL-HHG の概念図を Fig. 10 に示す。

研究プログラムでは、既存の共振器型 FEL である、京都大学の KU-FEL、日本大学の LEBRA-FEL、二つの施設を利用して、数サイクル FEL パルスの生成と評価、FEL 変換効率の向上、外部共振器による FEL パルスエネルギーの増強、加速器と同期して運転可能な中赤外シードレーザーといった要素技術の研究を進め、CEP を安定化した FEL パルスの生成、中赤外 FEL パルスによる HHG 実験を実施する計画である。

本研究の成果の一部である KU-FEL における高効率発振の結果は本特集号でも触れられている。KU-FEL では波長  $11\ \mu\text{m}$  にて、パルス長 = 数サイクル、パルスエネルギー =  $100\ \mu\text{J}$  (赤外窓手前の値) といった、気体分子のトンネル電離実験が可能な FEL パルスが得られている。中赤外から長波長赤外の波長領域で共振器 FEL を使った強光子場科学の実験をまもなく開始する予定になっている。

## 8. おわりに

「米国で自由電子レーザーというのが発明されたのを知ってるか。電子加速器があれば作れるらしいぞ、やってみないかね」という、東京大学原子力工学科の近藤駿介教授 (のちに原子力委員長) の言葉に乗せられて FEL の研究に足を踏み入れたのは、大学院に進んだばかりの筆者であった。多くの方々の助けを借りて、1993年6月25日、日本で最初のリニアック FEL の発振に成功したのは、それから6年余りを経たのちである<sup>24)</sup>。レーザー発振は相転移の一種と言われる。低エミッタンスかつ高ピーク電流の



**Fig. 10** Schematic view of high-harmonics generation driven by an infrared FEL oscillator (FEL-HHG).

電子ビームを生成する加速器を用意し、アンジュレータ、光共振器の据え付けと調整を行い、レーザー利得が共振器の損失を上回った時、それまでの自発放射光とは全く異なる光が目の前に現れる。そんな相転移の面白さに魅せられて、これまで FEL の研究を続けてきた。

放射光蓄積リングや X 線 FEL に比べれば、赤外で動作する共振器型 FEL は小型の装置であるが、電子の発生、加速、FEL の動作から光の利用まで興味深い物理現象がぎっしりと詰まっている。本稿で紹介した数サイクルパルスの生成も、その一例である。今号の赤外自由電子レーザー特集記事をきっかけにして、赤外自由電子レーザーへの関心が広がることを期待する。

## 謝辞

JAERI-FEL における実験は、峰原英介、沢村勝、永井良治、西森信行、菊沢信宏の各氏と共同で行った成果である。Q-LEAP プログラムは、京都大学の大垣英明、全炳俊、日本大学の早川恭史、境武志、住友洋介、KEK の宮島司、島田美帆、QST の永井良治、川瀬啓悟の各氏と共同で進めている。共同研究者の皆様へ感謝申し上げます。本研究の一部は、文部科学省の光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP, JPMXS0118070271) によるものである。

## 参考文献

- 1) T. Brabec and F. Krausz: *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- 2) *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications*, edited by F. X. Kartner (Springer-Verlag, Berlin, 2004).
- 3) T. Popmintchev *et al.*: *Science* **336**, 1287 (2012).
- 4) D. J. Wilson, A. M. Summers, S. Zigo *et al.*: *Sci Rep* **9**, 6002 (2019).
- 5) R. Hajima: *Atoms* **9**, 15 (2021).
- 6) R. H. Dicke: *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- 7) N. Skribanowitz, I. P. Herman, J. C. MacGillivray and M. S. Feld: *Phys. Rev. Lett.* **30**, 309 (1973).
- 8) R. Bonifacio, F. Casagrande, G. Cerchioni, L. Salvo Souza, P. Pierini and N. Piovella: *La Rivista del Nuovo Cimento* **13**, 1 (1990).
- 9) L. Allen and J. H. Eberly: *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (Dover, New York, 1987).

- 10) M. G. Benedict, A. M. Ermolaev, V. A. Malyshev, I. V. Sokolov and E. D. Trifonov: *Super-radiance: Multiatomic Coherent Emission* (IOP Publishing, London, 1996).
- 11) A. Gover, R. Iancu, A. Friedman, C. Emma, N. Sudar, P. Musumeci and C. Pellegrini: *Rev. Mod. Phys.* **91**, 035003 (2019).
- 12) G. Dattoli, A. Marino and A. Renieri: *Opt. Comm.* **35**, 407 (1980).
- 13) N. Piovella, P. Chaix, G. Shvets and D. A. Jaroszynski: *Phys. Rev. E* **52**, 5470 (1995).
- 14) G. M. H. Knippels, R. F. X. A. M. Mols, A. F. G. van der Meer, D. Oepts and P. W. van Amersfoort: *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1755 (1995).
- 15) F. Glotin, R. Chaput, D. Jaroszynski, R. Prazeres and J.-M. Ortega: *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2587 (1993).
- 16) D. A. Jaroszynski, P. Chaix, N. Piovella, D. Oepts, G. M. H. Knippels, A. F. G. van der Meer and H. H. Weits: *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1699 (1997).
- 17) R. Hajima, N. Nishimori, R. Nagai and E. J. Minehara: *Nucl. Instr. Meth. A* **475**, 270 (2001).
- 18) N. Nishimori, R. Hajima, R. Nagai and E. J. Minehara: *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5707 (2001).
- 19) R. Hajima and R. Nagai: *Phys. Rev. Lett.* **91**, 024801 (2003).
- 20) N. Piovella: *Phys. Rev. E* **51**, 5147 (1995).
- 21) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano *et al.*: *Nat Commun* **5**, 3331 (2014).
- 22) R. Hajima and R. Nagai: *Phys. Rev. Lett.* **119**, 204802 (2017).
- 23) R. Hajima *et al.*: *Proc. 39<sup>th</sup> FEL Conf. (FEL-2019)*, 272 (2019).
- 24) E. Nishimura *et al.*: *Nucl. Instr. Meth. A* **341**, 39 (1994).

## 著者紹介



### 羽島良一

量子科学技術研究開発機構 上席研究員

E-mail: hajima.ryoichi@qst.go.jp

専門：加速器放射光源，FEL，レーザーコンプトン散乱ガンマ線

### 【略歴】

1989年東京大学工学系研究科修士課程修了，博士（工学）。1989年-1999年東京大学工学系研究科，1999年日本原子力研究所に入所，研究開発法人の組織改編を経て，2016年より現職。

# Generation of few-cycle infrared pulses from free-electron laser oscillators for ultrafast intense laser science

**Ryoichi HAJIMA** National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, Tokai, Ibaraki 319-1106, Japan

**Abstract** Few-cycle optical pulses can be generated from free-electron laser (FEL) oscillators operated at a specific condition. The few-cycle FEL lasing is analogous to superradiance from a two-level atomic system and the peak intensity, the duration of the optical pulse, the conversion efficiency from the electrons to the optical pulse scale the number of electrons contributing to the FEL lasing. In the present paper, results of the few-cycle lasing at the JAERI-FEL are introduced and the role of the shot-noise, possible stabilization of the carrier-envelope-phase, and applications of the few-cycle FEL pulses to ultrafast intense laser science are discussed.