

# 研 究 報 告 書

## 「モノサイクル X 線自由電子レーザー実現に向けた高出力シード光源開発研究」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 12 月～2020 年 3 月

研 究 者: 貴田 祐一郎

### 1. 研究のねらい

本研究では、zeptosecond X 線自由電子レーザー、つまり、モノサイクル(単一周期)X 線自由電子レーザーを見据えた次世代自由電子レーザー理論“モノサイクル高調波発生(Monocycle harmonic generation, MCHG)”の原理検証を可能とする高出力シード光源を創出することをねらいとした。

2015 年、理研の研究者からモノサイクル X 線自由電子レーザーを実現するためのコンセプト(前述の MCHG)が世界へ発信された。極限までパルス幅の圧縮された単一周期光パルスを、光の単一周期極限線に沿って短波長へ波長変換する手法である。他の方法論と異なり、複数段を経ることで、zeptosecond X 線自由電子レーザーを実現できる可能性がある。そして、その道を拓くためには MCHG 理論の原理実証が必須である。

MCHG 理論提案では高次高調波発生により得られる波長 60 nm の極端紫外光がシード光源として仮定され、数値計算研究が行われている。しかし高次高調波をシード光源としたシード型自由電子レーザーが利用に資する安定光源を与えて来なかった経緯を踏まえれば、高い安定性が得られ易い長波長の超短パルスレーザー光源をシード光源に用いることが現実的であると考えられる。一方で、電子ビームへ高周波のエネルギー変調を与える(自由電子レーザー波長を短波長化する)ためには短波長のシード光源が有利という逆の要請もある。これら相反するシード波長に対する要請を勘案すると、267 nm 近傍の紫外域がシード波長の候補として浮かび上がる。実際、レーザーシード型自由電子レーザーとして安定稼働し、利用者に長年レーザー光を提供してきた海外自由電子レーザー施設においては電子ビームのエネルギー変調に波長 267 nm のレーザー光源が用いられてきた。

以上の背景の下、本さがけ研究では紫外域に目を向け、MCHG 理論の原理検証に資する高出力紫外モノサイクルシード光源技術を創出することをねらいとした。紫外モノサイクルレーザー光源は世界で前例がない。実現のための新奇方法論の提案、原理検証、そのために必要な要素光源・計測技術基盤の形成を含む一連の研究を推進した。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

波長 800 nm、パルス幅約 40 fs フェムト秒レーザーパルスを励起光源として白色光を発生させ、それを分光・増幅する可視(波長約 520 nm)、近赤外(波長約 1200 nm)の 2 種の光パラメトリック増幅器を構築した。量子干渉を利用してこれら 2 レーザー光を時空間軸上で合成し、単一周期幅で周期的にピークを形成するレーザー光源を開発した(研究テーマ A)。また、希ガス充填中空ファイバー中の自己位相変調と負分散鏡を併用し、サブ 10 fs 短パルス光源を開発した(研究テーマ B)。以上の光源の内、波長 800 nm と波長 1200 nm の 2 光源を用い

て気体中で四波混合を誘起し、紫外光を発生させる実験研究を推進した。連続的なスペクトル構造を持つ光や、複数のスペクトルピークを持つ光等が出力される挙動が観測され、方法論[Phys. Rev. A 96, 063840 (2017)]と矛盾のない結果が得られている。

当初想定されていなかった成果も得られた。第三高調波発生に関する成果であり、パルス幅 2-3 fs に相当する広帯域の紫外放射が得られると同時に、報告例の無い特異な挙動も観測されている。観測された第三高調波発生に関する挙動は先の四波混合に関する挙動と併せて一種の光極限“単一光周期極限における摂動論的非線形光学”と位置づけ、統一して解釈できることが明らかとなった。

極短光パルス波形計測について、気体を媒質とした相互相関計測技術を研究した。パルス幅 8 fs の光パルスを試験パルスとして用いた実験研究を推進し、既法による計測結果と比較し、両者が同一の波形を与えることを示した。既法とは異なり、本法は原理上紫外モノサイクルパルス計測に利用可能である。更に、過渡回折格子効果に基づく本法には、非線形動作領域(異常動作条件)があることを明らかにした。この領域で利用した場合、測定対象パルスの幅を著しく過小評価してしまう危険性の高い手法であることを明らかにすると同時に、それを避ける複数の技術的手段を見出し、光計測技術として確立させた。長年広く利用されてきた和周波混合に基づく既法よりも堅牢な計測技術であることも見出した。

## (2) 詳細

### 研究テーマ A「近赤外モノサイクルパルス列光源開発」

波長 800 nm、パルス幅約 40 fs フェムト秒レーザーパルスを励起光源として白色光を発生させ、分光・増幅する可視(波長約 520 nm)、近赤外(波長約 1200 nm)の 2 種の光パラメトリック増幅器を構築した。量子干渉を利用してこれら 2 レーザー光を時空間軸上で合成し、単一光周期幅で周期的にピークを形成するレーザー光源を構築した。これは紫外モノサイクルパルス発生に要する入射光源の一つである。研究開始当初は 3 色以上のレーザー光源を合成する計画であったが、最終的に得られる紫外モノサイクルパルス光源安定性の観点から方式を見直し、検討を重ねた結果、2 レーザー光で十分であることが結論付けられ、前述の通り 2 色のレーザー光源のみを合成して本研究項目を終えた。

### 研究テーマ B「サブ 10 fs 超短パルス光源開発」

本研究項目は、本さがけ研究課題において必須ではあるが主題ではないことを踏まえ、迅速な目的達成のため、希ガス充填中空ファイバー中の自己位相変調と負分散鏡を併用する既存技術に基づき、高強度サブ 10 fs 短パルス光源を構築した。これを 2 つに分岐し、パルス幅 8 fs 以下の時間波形形状の滑らかな短パルスビームラインを 2 本構築した。

### 研究テーマ C「モノサイクル深紫外超短パルス光発生」

#### ① 非線形パルスピッカー原理実証実験研究

紫外モノサイクルパルス発生用入射光源の内、波長 800 nm と波長 1200 nm の 2 色のフェムト秒レーザー光を用いて非線形パルスピッカー原理検証実験(スペクトル計測実験)を行った。得られた出力光のスペクトルを図 1 に示す。2 色のフェムト秒レーザー光の相対位相(図中の位相差)に依存し、スペクトル形状が連続的な形状(図中赤線)と、複数ピークから為る形状(図中青線)との間で変化する様子が確認された(図 1)。本さがけ研究課題の基礎となる方法論[Phys. Rev. A 96, 063840 (2017)] と矛盾無く、入射パルス包絡線の変化と関連付けて観測された挙動を定性的に説明できることが確認された。つまり、さがけ研究目的である紫外モノサイクルパルス発生に資する想定通りの光発生挙動が観測された。

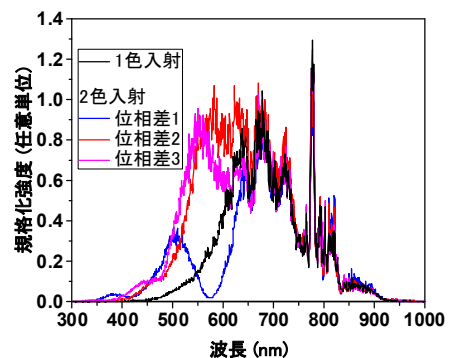


図 1. スペクトルの相対位相依存性

## ② 第三高調波発生に関する特異な挙動

本成果は前項目の研究推進中に偶然得られた成果である。具体的には 2 つのレーザー光同時入射時に、パルス幅 2-3 fs に相当する広帯域の紫外放射(第三高調波)が得られた(図 2)。また、2 つの入射レーザー光の相対位相差(図中の位相差)に依存して連続的なスペクトルが得られる場合(図 2 赤線)、孤立した 2 つのピークから成るスペクトルが得られる場合(図 2 青線)の 2 種が確認された。そして、本挙動も前項目の四波混合に関する成果同様、電場の包絡線形状に基づき定性的に説明できることが明らかとなった。物理に関する得られた理解を基盤とし、モノサイクルダブルパルス生成並びに、その構成パルス間隔のレーザー周波数による受動固定(passive stabilization)など、新しい光制御技術応用の方向性も見出された。

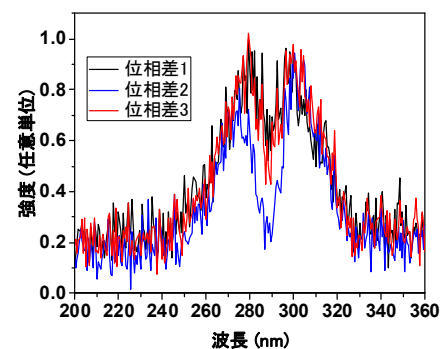


図 2. 第三高調波スペクトル

## ③ 気体中の過渡回折格子効果に基づく時間波形計測法

本さがけ研究課題目的達成のためには紫外モノサイクルパルス計測技術が必要である。しかし現在までに紫外モノサイクルパルスを計測する技術は確立されておらず、2019 年出版の複数の論文にそのことが明記されている。さがけ研究課題開始時より新奇時間波形計測技術の研究を一項目として計画に組み込み、2018 年度までの参照光源の整備を経て、2019 年度に気体中の過渡回折格子効果に基づく相互相関周波数分解光ゲート法の研究を本格始動・完了し、結果として極短光パルス計測技術が創出された。

また、報告例の無い非線形動作領域(異常動作領域)の存在についても研究の過程で突き止めた。それを線形動作領域(正常動作領域)と切り分けるための複数の技術的手段を含め、技術的障害とそれらを除く手段の研究を進め、最終的に計測技術として完成させた。前述の正常動作の検証無く利用した場合、過渡回折格子を利用した時間波形計測法は、測定対象パルスの幅を非常に狭く過小評価してしまう極めて危険な手法であることも明らかにした。

測定対象波長・パルス幅を制限しない本法は汎用的かつ高い精度と信頼性を有するレーザーパルス時間波形計測技術として光科学技術の発展に資する可能性がある。広く利用される和周波混合を利用した周波数分解光ゲート法(図3点線、既法)よりも原理・実験の両面から堅牢な技術であることも見出された。

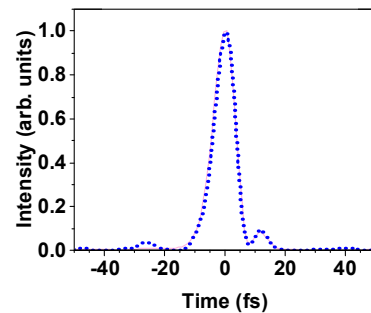


図3. 時間強度波形計測結果.  
点線は既法(和周波混合)による同一光源計測結果

### 3. 今後の展開

今後の研究の展開の方向性の一つとして、例えば、イタリアのレーザーシード型自由電子レーザーに使用される紫外シードレーザー光源と同等の安定性を持つモノサイクル紫外光源技術へと高度化する研究展開の方向性が挙げられる。本さきがけ研究は、方法論の提案から原理検証までを含む基礎研究であったため、広いパラメータ空間上で光源開発研究を推進した。そのため各要素に冗長性が持たされた機器構成になり、全て3 m x 1.5 mの面積に収まっているものの、簡素化を経た小型化の余地がある。つまり、モノリシックな紫外モノサイクル光源への研究展開の方向性とそれによる安定性の向上を出口とした技術開発の方向性が展開の一つに挙げられる。また、真空紫外モノサイクル光源を先に見据えた光源波長短波長化研究も研究展開としてあり得る。その他光パラメトリックチャープパルス増幅等の既存光源技術との組み合わせによる更なる高強度化、搬送波包絡位相安定化の方向性も考えられる。

そして、本研究で形成された気相の過渡回折格子効果に基づく光計測技術基盤は、電子動力学研究に利用される過渡回折格子法[例えば、Faraday discussions 212, 157 (2018)]と同配置であり、共存する。即ち、測定対象パルスを本技術で計測後、気体媒質を入れ替え、そのまま時間分解分光計測を開始、データ取得、解析する、という一連の流れを堰き止めることなく、繋ぐことが出来る。紫外モノサイクルパルスを用いれば、紫外サブフェムト秒科学を開拓する手段へとそのまま変貌する。紫外モノサイクルパルス光源と本計測技術の組み合わせによるこうした紫外光科学の開拓も、研究成果を基盤とした今後の展開の可能性の一つとして描くことができる。

### 4. 自己評価

#### ・研究目的の達成状況

本報告書執筆時点では本研究課題の目的は達成されていないが、必要な各種要素光源開

発、時間波形計測技術開発を終え、研究期間内の紫外モノサイクルパルス発生・計測の目的達成が見込まれている。

・研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

本研究は研究代表者一人で推進し、研究期間全体を通して概ね想定通りに進捗した。研究費執行状況について、本研究開始当初から必要最低限の性能、もしくは、不明ではあるが使用できる可能性のある安価なカタログ製品を設定予算の制約内で導入・試験しながら光源開発を推進した。本研究初期は執行研究費節減と引き換えに多くの時間を消費したが、安価な量産品の中にいくつかの良質で高性能な光学部品が存在を認めることができた。蓄積された情報を背景に、研究期間後半において、時間と研究費を過度に消費することなく、真に必要な箇所に集中・執行することが可能となった。研究期間全体として、有効な研究費執行が行われたように感じている。

・研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果(今後の見込みを含む)

本研究ではモノサイクル X 線自由電子レーザー実現に向けた紫外モノサイクルレーザー光源創出を目的に研究を推進したが、研究期間を通して得られた紫外極短パルス光源技術はこれに代表される次世代 X 線レーザー技術の発展に、直接的、或いは間接的に資すると考えられる。

また、本研究がキーワードとした「紫外」域は、種々の光材料や半導体、また核酸等ベンゼン環を有する化合物が光を吸収して極短時間電子応答を示す重要な波長域である。アト秒とフェムト秒の境界領域の時間分解能で光物理・化学反応過程の起点となる電子の動きを直接捉える手段が得られれば、光科学分野で重要な位置づけを占める新たな光物性研究領域、即ち、紫外サブフェムト秒科学が創出されるはずである。本さがけ研究が研究対象とした紫外モノサイクル光源はこうした新しい紫外光科学への扉を開く鍵の一つとして見ることもできる。2019 年より既にその潮流が世界で生じ始めている(例えば, Opt. Lett. 44, 1308 (2019), Phys. Rev. A 99, 063405 (2019))当該紫外光科学研究領域に対して、本光源に関する成果は、光計測に関する本研究の別の成果(2つ目の鍵)と共に開拓の原動力を形成する可能性がある。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1)論文(原著論文)発表

- |   |
|---|
| 1. Yuichiro Kida. Isolation of an energetic monocycle optical pulse in the ultraviolet range. Physical Review A. 2017, 96, 063840/1-6     |
| 2. Yuichiro Kida. Transient grating in a thin gas target for characterization of extremely short optical pulses, Optics Letters, accepted |

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表(招待講演)

1. Yuichiro Kida. DEEP UV MONOCYCLE LASER FOR SEEDING OF NEXT GENERATION XFEL. Topical Problems of Nonlinear Wave Physics (NWP-2017), ロシア モスクワサンクトペテルブルグ, 2017 年 7 月 22-28 日
2. 貴田 祐一郎. 単一光周期非線形光学が創出する紫外極短パルス光源. 日本分光学会 紫外フロンティア分光部会第2回講演会「紫外フロンティア分光研究の最前線」, 名古屋大学東山キャンパス, 2020 年 1 月 6 日
3. 貴田 祐一郎. 単一光電場周期内で駆動される非線形光学効果に基づく紫外極短光パルス発生. レーザー学会学術講演会第40回年次大会, 宮城県仙台市, 2020 年 1 月 20-22 日