

京都大学小型中赤外自由電子レーザー施設の開発とその利用展開

全 炳俊

京都大学エネルギー理工学研究所 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

紀井俊輝

京都大学エネルギー理工学研究所 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

大垣英明

京都大学エネルギー理工学研究所 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄



中赤外自由電子レーザーは中赤外領域で大強度短パルスレーザーを供給可能な波長可変コヒーレント光源である。京都大学エネルギー理工学研究所では、エネルギー分野への応用を目指して小型中赤外自由電子レーザーを開発すると共に、ユーザーステーションを整備してきた。施設の概要と各ユーザーステーションの現状、これまでに実施された利用実験と共に、現在進めている更なる高強度極短パルス化に向けた取り組みについて紹介する。

1. はじめに

自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) は真空中をほぼ光速で飛行する高エネルギー電子ビームをゲイン媒質として用いるレーザーであり、原理的にマイクロ波から X 線までの波長領域で発振可能なレーザーである。世界初の FEL はスタンフォード大学の Madey らにより 1977 年に中赤外領域 (波長 $3.4 \mu\text{m}$) で発振が確認され¹⁾、以降、短波長および長波長領域へと発振波長が拡大された。現在では硬 X 線領域の FEL としてアメリカの LCLS (Linac Coherent Light Source)²⁾、日本の SACLA (Spring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser)³⁾、EU の European XFEL (X-ray FEL)⁴⁾、韓国の PAL-XFEL (Pohang Accelerator Laboratory XFEL)⁵⁾などが稼働中である。中赤外領域の FEL は、比較的低エネルギーの低い電子ビームで駆動する事が可能であり、上記の初発振以降、固体レーザーが苦手とする波長領域において連続的に波長可変な大強度光源として様々な装置が建設されてきた。

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、京都大学小型中赤外自由電子レーザー (Kyoto University FEL: KU-FEL) という熱陰極高周波電子銃を電子源とした小型で経済的な中赤外 FEL の開発を行ってきた⁶⁾。1995年から中赤外自由電子レーザーに関する基礎研究を開始し、1998年に熱陰極高周波電子銃から電子ビーム発生に成功。2002年に電子ビームの 40 MeV までの加速に成功。2004年に現在の建屋に移設した後、2006年にアンジュレータを設置し、2008年3月に初発振に成功した⁷⁾。また、2008年5月に波長 $13 \mu\text{m}$ において出力飽和を達成している⁸⁾。その後、アンジュレータの交換

や光共振器設計の見直し、運転条件の最適化を行い、レーザー性能の向上を図ってきている⁹⁾。その結果、現在、波長 $3.4\text{--}26 \mu\text{m}$ において大強度波長可変中赤外レーザーを供給可能となっている⁶⁾。2008年の初発振以降、前述のレーザー性能向上と並行し、学内・学外ユーザーによる利用研究を開始すると共に、応用実験ステーションの整備を行っており、現在、3つの応用実験ステーションが利用可能となっている。

また、京都大学エネルギー理工学研究所は2011年度より共同利用・共同研究拠点ゼロエミッションエネルギー研究拠点事業¹⁰⁾を開始しており、中赤外 FEL やその発生に用いる電子加速器、固体レーザー等の付帯設備を利用した外部ユーザーの共同利用・共同研究を更に積極的に実施している。2011年度から2020年度の間に延べ73の所外研究グループが拠点事業を通じて KU-FEL 施設を利用してきた。本稿を通じて日本放射光学会会員の皆様にも KU-FEL 施設について知って頂き、今後の共同利用・共同研究に向けての参考にして頂ければ幸いである。

2. 中赤外自由電子レーザー発振器の構成と動作原理

中赤外 FEL 発振器は真空中を飛行する高エネルギー電子ビームを用いて光の発生、増幅を行い、レーザーを発振させる装置である。中赤外 FEL には光共振器を用いないシングルパス型も存在するが、中赤外域では長いマクロパス内に等間隔に並んだ複数の電子バンチを持つマルチバンチ電子ビームの発生が比較的容易且つ、高反射率ミラーが使用可能であるため、一般的に光共振器を用いる共振器型

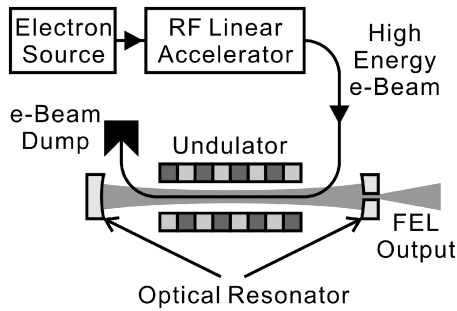


Fig. 1 Schematic drawing of typical MIR-FEL oscillator.

が採用されている。Fig. 1に共振器型中赤外 FEL の典型的な構成図を示す。電子源から発生させた高品質電子ビームを線形加速器により数十 MeV まで加速し、アンジュレータと呼ばれる周期的磁場を発生させる装置に入射する。高エネルギー電子ビームがアンジュレータ中の周期的磁場で多数回偏向されると、電子の進行方向に一定の間隔でシンクロトロン放射が放射され、干渉により特定の波長で強め合い、準単色な放射となる。これをアンジュレータ放射と呼ぶ。平面アンジュレータから放出されるアンジュレータ放射を軸上で観測した際の中心波長 λ_R は

$$\lambda_R = \frac{\lambda_U}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right) \quad (1)$$

で表される。ここで λ_U はアンジュレータの周期長、 γ はローレンツファクター ($\gamma = 1 + E/m_0c^2$, E は電子の運動エネルギー、 m_0 は電子の静止質量、 c は真空中の光速)、 K はアンジュレータ中での偏向強度を表すパラメータ ($K = eB_U\lambda_U/2\pi m_0c$, e は電気素量、 B_U はアンジュレータピーク磁場強度) である。発生したアンジュレータ放射は、下流側に設置された光共振器鏡により反射された後、上流側の光共振器鏡で再度反射され、アンジュレータに再入射されると同時に光共振器中に蓄積される。この時、光共振器長を電子パンチ間隔のほぼ整数倍となる様に調整すると、後続の電子パンチと共振器中に蓄積されたアンジュレータ放射光がアンジュレータ中で時間的に重畳され FEL 相互作用を起こす。その際、蓄積光電場により電子が減速され、電子の運動エネルギーが蓄積光に受け渡される事で蓄積光が増幅される。この増幅によって光共振器中に蓄積された光は往復回数に対して指数関数的に強度が増大していく。電子ビームのマクロパルス後半で多数回に及ぶ増幅の結果、蓄積光の強度が強くなると、アンジュレータ中を電子ビームと蓄積光が相互作用しながら飛行している間に、電子の運動エネルギーが有意に低下し、そのエネルギー広がりが増大することで蓄積光の増幅率が低下する。1 往復の間の増幅率と光共振器の損失が釣り合うと、蓄積光強度は一定となり飽和に達する。

FEL は発振プロセスに熱的なエネルギー散逸が無く、

レーザ媒質の温度上昇や破壊が生じないため、高効率且つ高強度化が可能である。Fig. 1ではレーザ発振に用いた電子ビームをビームダンプに捨てているが、超伝導加速器を用いた自由電子レーザーでは、この電子ビームを減速し、エネルギー回収を行うことで、飛躍的な高効率化が可能である¹¹⁻¹³⁾。

一般に共振器型の中赤外 FEL では、広い波長可変性を得るために光共振器に金属コートミラーが用いられる。共振器外への光取出しには、Fig. 1の右側の共振器ミラーの様に、金属ミラーの中心に穴をあけてそこから光取出しを行うホールカップリングがよく用いられる。波長が変わると光共振器内に蓄積される光のミラー上でのサイズが変化し、光取出し穴から取り出される光の割合も変化する。このため、各発振波長で光の取出し割合が最適に設定可能な様に、穴径の異なる数枚のミラーを真空中で交換可能とした赤外 FEL 施設も存在する^{14,15)}。

共振器型 FEL で発振するレーザの波長は式(1)で示されるアンジュレータ放射光の波長とほぼ同じであり、式(1)中の γ および K をそれぞれ、電子ビームの運動エネルギーおよびアンジュレータ磁場強度を変化させることで、連続的に発振波長を変化させることが可能である。施設によっては中赤外用アンジュレータ・光共振器のセットと遠赤外用/THz 用アンジュレータ・光共振器のセットを有し、中赤外～遠赤外/THz 領域をカバーする場合もある^{16,17)}。

3. 京都大学小型中赤外自由電子レーザー施設 (KU-FEL)

Fig. 2 に KU-FEL 施設全体のレイアウトを示す。FEL の発生には電子線形加速器から供給された高エネルギー電子ビームを使用するため、加速器運転時に制動放射による X線やガンマ線、それに付随した光核反応により中性子が発生する。このため、FEL 発振器および駆動用電子線形加速器は厚さ 2 m のコンクリート遮蔽壁の中に設置されている。発生した中赤外レーザは球面鏡により疑似平行光に変換された後、遮蔽壁の上を越えてユーザーステーションへと輸送される¹⁸⁾。中赤外レーザの輸送経路はアクリル製のカバーや塩化ビニルのチューブにより覆われており、輸送路内の大気を窒素ガスと置換することで、大気に含まれる水蒸気や二酸化炭素による中赤外レーザ強度の減衰を低減可能となっている。

KU-FEL 施設には中赤外 FEL とは別に、光陰極高周波電子銃から発生させた短パンチ電子ビームを使って THz 準単色コヒーレント放射を発生させる THz Coherent Undulator Radiation (THz-CUR) 光源¹⁹⁻²²⁾ も設置されており、この光源を元にした偏光可変準単色テラヘルツ光源の開発²³⁾ やエネルギー変調空洞付き高周波電子銃を用いた THz-CUR 光源の高度化研究²⁴⁾ も実施中である。

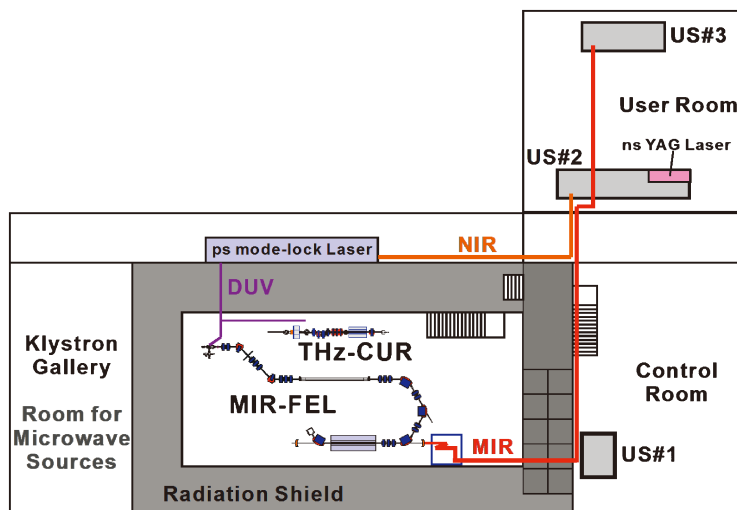


Fig. 2 (Color online) Schematic diagram of facility layout.

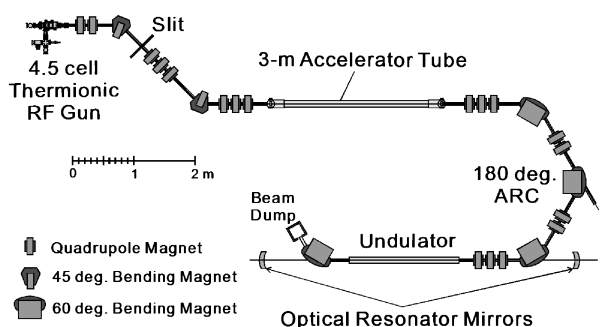


Fig. 3 Schematic diagram of MIR-FEL oscillator in KU-FEL.

3.1 中赤外自由電子レーザー発振器

Fig. 3に KU-FEL 施設に設置された中赤外 FEL 発振器の概略図を示す。この装置では電子源として4.5空胴熱陰極高周波電子銃を採用している。マイクロ波共振空胴の端面に熱陰極が配置され、熱陰極から放出される電子を静電界よりも絶縁限界の高いマイクロ波電界で一気に加速する。これにより空間電荷効果による特性劣化を抑えながら、加速に用いる高周波の周波数である2856 MHz と同じ高繰り返し電子バンチ列が供給可能である。また、シャントインピーダンスの高い電子銃構造と高周波加速により約23 cmの加速長で約8.4 MeV という高いエネルギーを持つ電子ビームの生成が可能である。電子銃から射出された電子ビームは Dog-leg と呼ばれる1対の偏向電磁石と3つの四極電磁石で構成されるセクション中の Slit によって自由電子レーザー発振に不要な低エネルギー成分を除去した後、長さ3 mの進行波型加速管へと輸送される。電子銃同様、進行波加速管には外部から高周波電力が供給され、高周波電界が誘起されている。この高周波電場の位相に FEL 発振に適したタイミングで電子銃からの電子ビームを入射することで、電子ビームを最大40 MeV まで加速する。その後、3台の偏向電磁石、4台の四極電磁石で構

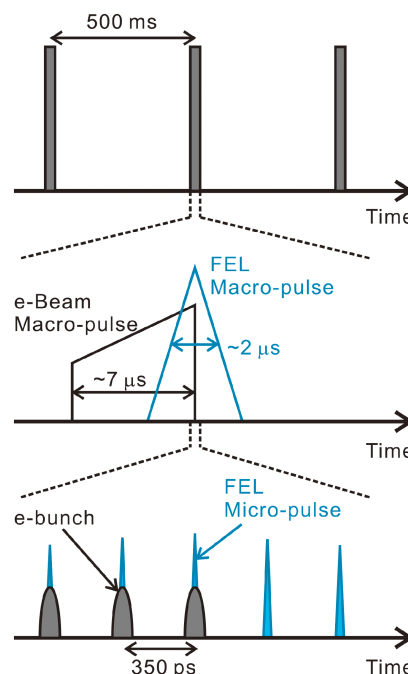


Fig. 4 Time structure of electron bunch and FEL pulse of KU-FEL.

成される180度偏向セクションを経由して、電子ビームの進行方向の長さを短く圧縮した後、アンジュレータへと入射される。アンジュレータの上流・下流には光共振器を構成する凹面鏡が設置されており、この中に電子ビームから放出されたアンジュレータ放射光を蓄積し、後続の電子ビームとの FEL 相互作用により増幅することで、レーザー発振を得る。

KU-FEL においては、電子ビームはバンチ列として約7 μs 間連続して供給され、レーザー増幅・発振がバースト的に生じる。Fig. 4に電子バンチおよびレーザーパルス の時間構造の模式図を示す。KU-FEL の電子線形加速器の駆

動に用いられるクライストロンという高周波源は、その繰り返し周波数を10 Hzまで上げられる性能を有しているが、放射線漏洩量規制および老朽化に伴う装置寿命延命のため、現在は最大2 Hzの繰り返しで運転している。バンチ列中の電子バンチの間隔は通常運転時は350 psであり、発生する自由電子レーザーも供給される電子バンチ列と同様のパルストレイン構造を持ち、電子バンチ列終盤に約2 μsの半値幅で、バースト的に発振する。パルストレイン中の個々の光パルスをマイクロパルスと呼び、パルストレイン全体の事をマクロパルスと呼ぶ。

Fig. 5にユーザーステーション1 (Fig. 2中US#1)にて利用可能なKU-FELの発振波長とマクロパルス当たりの積分光エネルギーを示す。この際、光輸送路中の大気は窒素置換されていない。電子ビームエネルギーに対応してデータプロットの色、シンボル形状を変えてある。同じエネルギー条件下で異なる波長が得られるのは、アンジュレータの磁場強度を変化させて、式1中のKを変化させ、波長を変化させているためである。Fig. 5にはHITRAN²⁵⁾を用いて計算した大気吸収に起因する輸送路の透過率スペクトルも示した。波長4.3, 5~7.5, 15 μmにおいて、レーザー強度が低下しているのは、大気による吸収の影響である。大気の赤外吸収に起因する強度低下は輸送路を窒素ガスで置換することにより、その影響を低減する事が可能である。また、3.4 μmよりも短い波長領域を非線形結晶による二次高調波発生を利用して供給可能である。KU-FELでは波長2.5~4 μmの発生が可能なZnGeP₂結晶を用意しており、波長6.3 μmのFELを入射し、マクロパルスエネルギー1 mJを超える波長3.15 μmの二次高調波を供給した実績がある。

Fig. 6に典型的な波長スペクトルを示す。共振器型FELでは共振器の長さを微調整することで、発生するレーザーのマイクロパルス長とスペクトル幅が変化する。KU-FELで

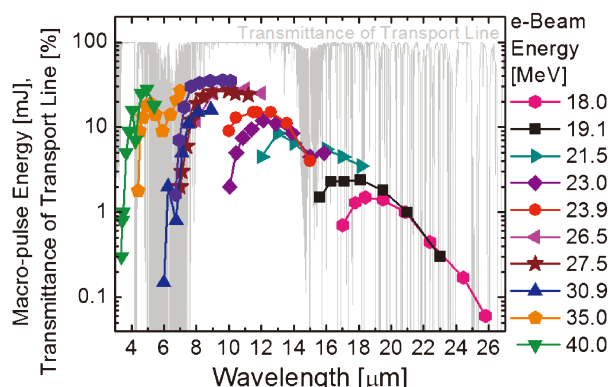


Fig. 5 (Color online) Available macro-pulse energy of KU-FEL at the user station #1. Thin line indicates the transmittance of transport line between the FEL oscillator and the user station #1 calculated using HITRAN²⁵⁾ under the calculation condition of H₂O: 1.86%, CO₂: 0.033%, O₂: 20.9%, and N₂: 77.2%.

はサブピコ秒のパルス幅を持つ強度重視広帯域運転条件が良く利用されているが、共振器長を1発振波長分程度、短くすることでマイクロパルス長を伸ばし、狭帯域発振させることも可能である。強度重視広帯域運転条件下では、Fig. 6の様に、スペクトル半値幅が発振波長の4%程度に広がると共に、長波長側にテイルを引いたスペクトル構造となる。一方、狭帯域運転では、強度重視広帯域運転に対して、マクロパルスエネルギーが3~5分の1程度に低下するが、長波長側のテイルが消え、スペクトル半値幅が発振波長の1%程度に狭まり、波長純度が大幅に向上する。これらの運転モードを使い分けることで、大強度超短パルスレーザーが必要な非線形分光やポンプ・プローブ実験、狭帯域光源が必要な分光実験など、様々な実験が可能となっている。

Table 1にユーザーステーション1にて利用可能な典型的なレーザー性能をまとめておく。これまでに強度重視広帯域運転条件下でマイクロパルス長の測定が行われており、

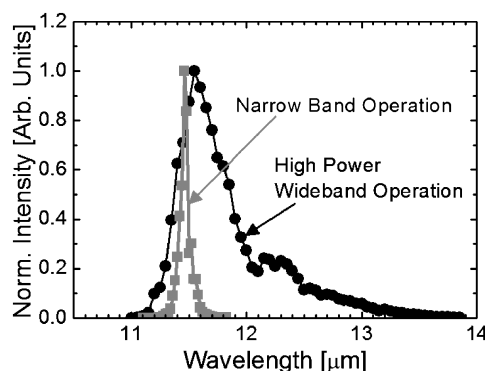


Fig. 6 Typical spectrum of KU-FEL at 11.5 μm under the wideband high power operation and narrowband operation.

Table 1 Typical Performance of KU-FEL with thermionic operation available at user station #1.

Tunable Range		3.4–26 μm
Spectrum Width	High Power Wideband	~4% + long-wavelength tail
	Narrowband	~1%
Maximum Macro-pulse Energy		40 mJ
Typical Macro-pulse Duration		2 μs
Maximum Micro-pulse Energy		7 μJ@9 μm
Macro-pulse Repetition Rate		<2 Hz
Micro-pulse Repetition Rate		2856 MHz
Micro-pulse Duration		0.6 ps-FWHM@12 μm in 2013 ²⁶⁾ 0.26 ps-FWHM@10 μm in 2021
Maximum Macro-pulse Ave. Power		20 kW
Maximum Micro-pulse Peak Power		~19 MW
Power Fluctuation		<10% FWHM

2013年の測定では波長12 μm において約0.6 ps-FWHM との結果が得られている²⁶⁾。その後の性能向上の結果、最近の測定では波長10 μm において約0.26 ps-FWHM という結果も得られており、波長10周期を下回る様なパルス長を持つ超短パルス中赤外レーザーの供給が可能となっている。

レーザー強度に関しては、波長10 μm における最大マイクロパルス当たりのエネルギーが約5 μJ なので、約19 MW のピークパワーが得られていることとなる。運転条件や波長に依るが、強度変動は10%程度であり、強度変動が気になる実験においては、ショット毎に入射強度を常時モニターし、入射強度による規格化や低強度なショットを除外するなどの工夫が必要である。このため、KRS-5窓をビームサンプラーとして光路上に常時挿入し、反射された中赤外光を高速焦電検出器により測定することで、常時FEL強度・パルス波形測定を可能とし、強度変動の規格化やパルス選別に利用可能な状況を整えている¹⁸⁾。また、同じKRS-5窓を使い、FEL光軸上に可視光レーザーを重畳し、ユーザーステーション側に飛ばしている。これにより、目に見えない中赤外レーザーの光軸調整を可視光を見ながら行うことが可能となっている¹⁸⁾。

後述するが、既存の熱陰極をマイクロパルス繰り返し29.75 MHz のピコ秒深紫外レーザーパルス列で励起し、光電効果により電子ビームを発生させ、より高い電荷量を有する電子バンチをレーザー発振に用いる光陰極動作についても開発を進めており、マイクロパルスエネルギーを約7倍に増大させる事に成功している²⁷⁾。本運転モードはより高いピーク強度が必要な非線形分光実験や中赤外レーザーを用いた高次高調波発生へと繋がる強光子場実験に適した運転モードであり、今後、光陰極動作専用高周波電子銃の導入などにより更なる高度化を目指して研究開発を進めている。

3.2 ユーザーステーション

現在、KU-FEL施設にはFig. 2に示す様に3つのユーザーステーション(US#1-3)が存在する。ここでは各ユーザーステーションの概要とこれまでに実施されてきた応用研究について紹介する。各ユーザーステーション共通で使用可能な機器としては、レーザー光の強度測定のための焦電型エネルギーメータ、マクロパルス中での時間変化測定用各種検出器(高速焦電型検出器、常温MCZT検出器、液体窒素冷却MCT検出器)、FEL発振時に自然発生してしまう高調波光除去用各種ロングパスフィルタ、偏光制御・測定および強度調整用ワイヤグリッド偏光子(KRS-5基板、ZnSe基板)、電動シャッター、集光レンズや集光ミラー、オシロスコープなどが整備されている。こういった共通機器もユーザーの要望を聞き、必要に応じて整備を進めている。次に各ユーザーステーションについて説明する。

ユーザーステーション1: 照射&特性測定

FEL発振器から最も近い距離に位置するユーザーステーション1(Fig. 2中US#1)はシンプルなレーザー照射およびレーザー特性測定用ステーションである。本ステーションには回折格子型分光器(DK-240, CVI)が設置されており、この分光器により実験に利用したFELのスペクトルを測定してユーザーに提供している。XYZ三軸自動ステージを使用可能であり、試料位置を精密に制御しながら、FELの照射を行うことができる。また、集光レンズや集光ミラーを用いて、様々な試料にFELを集光照射する事が可能である。実験毎に光学素子配置や装置構成をフレキシブルに変えることが可能であり、フェラデーケージを用いた実験も行われている。本ステーションではこれまでに、ザリガニの複眼²⁸⁾や歯、セルロース²⁹⁾、メラニン³⁰⁾、イカ墨化石³¹⁾といった生体試料への照射実験や有機膜融解の実時間測定実験³²⁾、赤外検出器の飽和特性測定³³⁾、二次高調波発生分光³⁴⁾、光音響分光装置の開発³⁵⁾等が実施されてきている。

ユーザーステーション2: ポンプ・プローブ実験

二つ目のユーザーステーション(Fig. 2中US#2)はポンプ・プローブ実験用ステーションである。本ステーションにはパルス幅約5 nsのNd:YAGレーザー(Surelite-II SLI-10, Continuum)と光学窓付き閉ループ式ヘリウムクライオスタット、光電子増倍管(R3896, Hamamatsu)およびGated-ICCD(PI-MAX2, Princeton Instruments)付きUV-NIR回折格子型分光器、冷却CCD付きUV-NIR回折格子型分光器が標準装備されており、最低温度6 Kの極低温条件下で近赤外(1064 nm)・可視(532 nm)・紫外(355 nm)レーザーと中赤外FELとを組み合わせた各種ポンプ・プローブ実験を実施可能となっている。また、中赤外FELのマイクロパルスと同期したモードロックNd:YVO₄レーザー(パルス幅7.5 ps, 波長1064 nm)およびその高調波(532 nm, 266 nm)も使用可能である。

本ユーザーステーションではこれまでに、極低温下での超短パルス中赤外レーザーによる選択的格子振動励起と可視光プローブレザーのアンチストークスラマン散乱による直接観測³⁶⁻³⁹⁾や紫外ポンプ・中赤外プローブ実験によるシンチレータ材料中の浅い電子トラップ準位の可視化⁴⁰⁾、常温大気中でのLIPSS(Laser Induced Periodic Surface Structure)形成のその場観測⁴¹⁾などが実施されている。

ユーザーステーション3: 多目的持ち込みステーション

三つ目のユーザーステーション(Fig. 2中US#3)は多目的持ち込みステーションである。本ステーションには、1×2 mの光学台が設置されており、ユーザーは自身の装置を持ちこみ、実験系を構築して実験を行う事が可能である。このビームラインでは過去に中赤外レーザーと近赤外レーザーの和周波発生を利用したシングルショット中赤外ス

ペクトル測定⁴²⁾やプラズマミラーを用いた中赤外マクロパルスからのナノ秒パルス切り出しと Ge 中での中赤外レーザーの Spectral Broadening⁴³⁾といった実験が行われてきた。

4. さらなる高強度短パルス化に向けた光源開発

2018年度から量研・日大・KEK・京大とで、中赤外 FEL を駆動光源とした高次高調波発生による高繰り返しアト秒硬 X 線レーザーの開発に向けた共同研究グループが立ち上がり、文部科学省の光・量子飛躍フラグシッププログラム (Q-LEAP) に応募し、次世代レーザー技術領域の基礎基盤研究『自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究』として採択された⁴⁴⁾。本研究プロジェクトでは、京大の KU-FEL と日大の LEBRA-FEL (LEBRA: Laboratory for Electron Beam Research and Application)⁴⁵⁾という既存の常伝導加速器を用いた赤外自由電子レーザー施設を用いて、赤外自由電子レーザー駆動高次高調波アト秒光源の実現に必要な要素技術開発を行う。赤外自由電子レーザーの適用可能性やメリットについては本特集に掲載されるこのプロジェクトの研究代表者である羽島氏 (量研) の記事を参照されたい。本プロジェクト中で KU-FEL は共振器型 FEL の変換効率向上とそれに伴う超短パルス高強度化により、高次高調波を駆動するに足る FEL 強度の達成を目標として研究を行っている。

前述の通り、共振器型 FEL は電子ビームの運動エネルギーをアンジュレータ中での FEL 相互作用を通して電磁場エネルギーに変換し、増幅・発振を達成するレーザーである。この際の変換効率は引き出し効率と呼ばれ、共振器型 FEL の性能を決める重要なパラメータである。同じ電子ビームを FEL 発生に用いた場合、引き出し効率が高ければ高いほど高いレーザー出力が得られる。また、引き出し効率が高いほど、マイクロパルス幅が狭くなることが知られて

いる⁴⁶⁾。このため、高次高調波発生により単独アト秒パルスを発生するために必要な数サイクル程度のパルス幅を持つ極短パルスを発生するには、引き出し効率の向上が不可欠である。これまでの世界最高引き出し効率は約 9% であり⁴⁷⁾、超伝導加速器を用いた日本原子力研究所の JAERI-FEL (JAERI: Japan Atomic Energy Research Institute) において電子バンチの繰り返し周波数と光共振器の往復周波数が完全に一致した Perfect Synchronization⁴⁸⁾ (以下、完全同期長と呼ぶ) 条件下において達成された。また、JAERI-FEL では引き出し効率が約 6% の条件において、マイクロパルス長の計測が行われており、その結果、3.4 サイクルのパルス長が得られたとの報告がある⁴⁹⁾。FEL の増幅率および飽和強度は光共振器の往復周波数と電子バンチの繰り返し周波数の関係に強く依存する。Fig. 7(a) は横軸に FEL の増幅時間 (電子ビームのマクロパルス長もしくは光共振器中の往復回数に対応)、縦軸に FEL のピーク強度を典型的な 2 つの光共振器長について示した図である。実線で示した完全同期長条件下では、増幅率が低く飽和強度が高くなるが、光共振器長を完全同期長条件よりも 1~2 波長程度短くした条件 (Detuned) で増幅率が最大となり、少ない増幅回数で光強度が強くなる。ただし、この条件下では、飽和強度が低い。この状況を Fig. 7(a) に破線で示した。JAERI-FEL においては、超伝導加速器を電子ビーム源として用いていたため、電子ビームのマクロパルス長が 0.4 ms と長く、増幅率が低い完全同期長条件下においてもレーザー飽和を達成することが可能であった。一方、KU-FEL の様な常伝導加速器を用いた FEL では、マクロパルス長が最大でも 50 μ s と短いため、引き出し効率は 4% 程度が限界だと考えられており、高引き出し効率を狙う取り組みは殆ど行われてこなかった。これに対して KU-FEL では、マクロパルス中で電子バンチの繰り返し周波数を変調し、早いレーザー強度の立ち上がりと高い飽和パワーを同時に達成可能とする手法である Dynamic Cavity Desynchronization (DCD) と呼ばれる手法⁵⁰⁾を導入した。即ち、Fig. 7(b) の様に発振

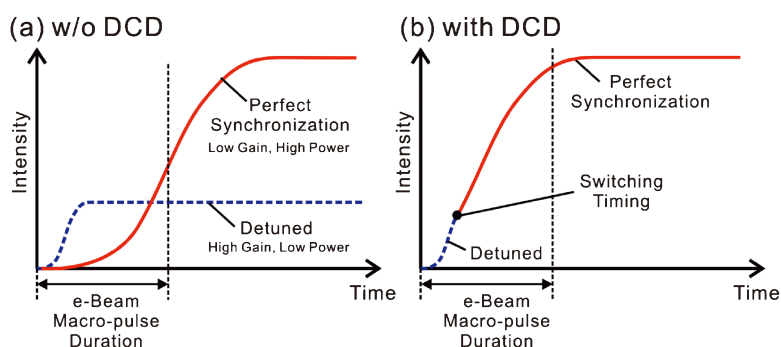


Fig. 7 (Color online) Schematic drawing of FEL power evolution (a) depending on the synchronization condition between the roundtrip frequency of optical cavity and the e-bunch repetition rate, (b) when the e-bunch repetition rate is switched from detuned condition to perfect synchronization condition in a macro-pulse.

初期のマクロパルス前半においては、電子バンチの繰り返し周波数を光共振器の往復周波数よりも少し低くし、増幅率の高い条件とすることで、光共振器内レーザ光強度を早く立ち上げる。この条件で飽和に近い強度にまで増幅して完全同期長条件にスイッチする事で、高い飽和強度を得る。FELIXグループによりその有効性は既に示されていたが、この手法によって引き出し効率がどの程度改善されるのかについては、1件の数値計算シミュレーションを用いた研究があるのみであった⁵¹⁾。KU-FELでは、DCD法の導入によって、引き出し効率が4.2%程度から5.5%まで改善される事が示された⁵²⁾。なお得られた引き出し効率(5.5%)は、その時点で常伝導加速器を用いた共振器型FELとしては世界最高の引き出し効率であった。次に、FELの引き出し効率が増幅率に依存し、増幅率はバンチ当たり電荷量に依存することから、電子ビームの1バンチ当たり電荷量を増大させることで、レーザ増幅率を高め、引き出し効率向上を目指した。KU-FELの電子源には単結晶の六硼化ランタン(LaB₆)を熱陰極として用いた4.5空胴熱陰極高周波電子銃が用いられてきた。この電子銃では、深刻なバックボンバードメント現象⁵³⁾の影響により、バンチ当たり電荷量とマクロパルス長の間強いトレードオフ関係が存在し、様々な対策^{54,55)}を導入するも、マクロパルス長を7 μ s程度とした場合、マクロパルス中の平均バンチ当たり電荷量は約40 pC程度に制限されてきた。LaB₆陰極は仕事関数が約2.5 eVと比較的小さく、外部から短パルス紫外レーザを照射することで光陰極としても使用可能な事が知られている⁵⁶⁻⁶⁰⁾。そこで、この電子銃の光陰極運転を行うことでバンチ当たり電荷量を増大させた。即ち、LaB₆陰極の温度を下げ、熱電子放出を抑制した条件において、外部から波長266 nm、パルス長約5 ps、マイクロパルス繰り返し周波数29.75 MHz、マクロパルス長7 μ sのピコ秒深紫外パルス列を陰極へ照射し、バンチ当たり電荷量190 pCの電子ビームを発生させ、KU-FELを駆動した。結果として、最大引き出し効率9.4%を観測した²⁷⁾。この際、2枚のKRS-5窓を通した後で観測して得られたマイクロパルスエネルギーは約50 μ Jであり、KRS-5窓一枚当たり70%の透過率であることを勘案すると、その上流では約100 μ Jのマイクロパルスエネルギーが得られていることとなる。KU-FELでは引き出し効率をアンジュレータ下流で測定した電子ビームエネルギー分布の時間発展から、各マクロパルス時刻において、電子ビームからレーザ電磁場に受け渡されたエネルギーを算出することで求められている。マクロパルス全体の平均値を測定したJAERI-FELの測定方法とは異なるため、直接的にこれらの結果を比較して良いかと言う議論はあるが、JAERI-FELとほぼ同等となる世界最高の引き出し効率を達成した。100 μ sを超えるマクロパルス長を有する超伝導加速器を用いたJAERI-FELと同程度の引き出し効率を、7 μ sという短いマクロパルス長しか持たない

KU-FELにおいて達成できたことは今後の開発に向けて大きな意義がある。マイクロパルス長の測定はまだ行っていないが、マイクロパルス長が引き出し効率に反比例することから、150 fs-FWHM(=4.5サイクル)程度のパルス長を持つことが期待されている。

さらに引き出し効率の向上によるパルス長短縮・ピーク強度増大を達成するため、Fig. 3の加速管上流直線部に新しい光陰極高周波電子銃の設置を予定している。2022年度からの新電子銃を用いた実験開始をめざし、2021年2月現在、高エネルギー加速器研究機構にてこの電子銃を製作中である。既存の熱陰極高周波電子銃の光陰極運転では、電子銃ジオメトリと空間電荷効果の影響により、バンチ当たり電荷量は最大190 pCに制限されていたが、この電子銃では1 nC以上のバンチ当たり電荷量を持つ電子ビームを発生させることが可能となる。これにより、さらにFEL増幅率を増大させ、引き出し効率を向上すると共に、レーザ強度を大幅に増大させることが可能になると期待される。

5. おわりに

以上のように、京都大学エネルギー理工学研究所では、小型中赤外FEL発振器を開発し、現在では3.4~26 μ mといった幅広い波長範囲で波長可変高強度短パルス中赤外レーザの供給が可能となっている。3つのユーザーステーションが整備されており、生物・固体物理領域の様々なユーザー利用に対応してきた。大学附置研の一研究室が所有・運営している施設であり、フットワーク良くユーザーの要求に柔軟に対応可能な反面、維持・管理に充てられる予算は大きくない。これまでも、産業技術総合研究所・大阪大学・日本原子力研究開発機構・高エネルギー加速器研究機構・SPring-8・早稲田大学といった外部の研究機関から折に触れて物品の貸与や移管により不足を補うことで何とか性能維持・向上を継続して行うことが可能であった。この場を借りて感謝の意を表したい。2021年度以降、新しい光陰極高周波電子銃の導入作業が始まり、2022年度からその本格運用が始まる。このアップグレードにより、KU-FELは世界最高のピーク強度を有する中赤外FELとなる。熱陰極高周波電子銃を利用した高平均パワー且つ超高マイクロパルス繰り返し周波数(2856 MHz)を有する運転モードを維持しつつ、マイクロパルス繰り返しが低く(29.75 MHz)、世界最高ピークパワーを供給可能な運転モードが利用可能となることで、非線形分光やポンプ・プローブ実験、強光子場科学実験に対して、特徴のあるプラットフォームとなる事を目指し、今後も研究開発を進めていく。

謝辞

KU-FELは数多くの外部利用者による積極的な利用に

よって支えられてきた。ここに深く感謝を申し上げる。KU-FELの外部共同利用・共同研究は京都大学エネルギー理工学研究所の実施する共同利用・共同研究拠点事業『ゼロエミッションエネルギー研究拠点』から支援を受けて行われた。本研究の一部は文部科学省 光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) 基礎基盤研究『自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究 (課題番号 JPMXS0118070271)』の下で行われた。

参考文献

- 1) D.A.G. Deacon *et al.*: Phys. Rev. Lett. **38**, 892 (1977).
- 2) Homepage of LCLS, <https://lcls.slac.stanford.edu/>
- 3) Homepage of SACLA, <http://xfel.riken.jp/>
- 4) Homepage of European XFEL, <https://www.xfel.eu/>
- 5) Homepage of PAL, <http://pal.postech.ac.kr/paleng/>
- 6) H. Zen *et al.*: Physics Procedia **84**, 47 (2016).
- 7) H. Ohgaki *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 8091 (2008).
- 8) H. Ohgaki *et al.*: Proc. of FEL08, MOAAU02 (2008).
- 9) 全炳俊ら: 日本赤外線学会誌 **26**, 62 (2016).
- 10) 共同利用・共同研究拠点ゼロエミッションエネルギー研究拠点のホームページ, http://www.iae.kyoto-u.ac.jp/zero_emission/
- 11) G. R. Neil *et al.*: Phys. Rev. Lett. **84**, 662 (2000).
- 12) R. Hajima *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **507**, 115 (2003).
- 13) N.R. Thompson *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **680**, 117 (2012).
- 14) W. Shollkopf *et al.*: Proc. of FEL2014, WEB04 (2014).
- 15) H. Li *et al.*: Chinese Physics C **41**, 018102 (2017).
- 16) Homepage of ELBE-FEL, <https://www.hzdr.de/db/Cms?pNid=471>
- 17) Homepage of FELIX, <http://www.ru.nl/felix/>
- 18) K. Yoshida *et al.*: Zero-Carbon Energy Kyoto 2012, 205 (2013).
- 19) S. Suphakul *et al.*: International Journal of Magnetic and Electromagnetism **3**, IJME-3-008 (2007).
- 20) S. Krainara, *et al.*: J. Phys. Conf. Ser. **1067**, 032022 (2018).
- 21) S. Krainara *et al.*: Particles **1**, 238 (2018).
- 22) S. Krainara *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **90**, 103307 (2019).
- 23) S. Kashiwagi *et al.*: Infrared Phys. Technol. **106**, 103274 (2020).
- 24) K. Sakaue *et al.*: Proc. of PASJ2020, 638 (2020).
- 25) Homepage of HITRAN on the Web, <http://hitran.iao.ru/>
- 26) Y. Qin *et al.*: Optics Letters **38**, 1068 (2013).
- 27) H. Zen *et al.*: Appl. Phys. Express **13**, 102007 (2020).
- 28) F. Shishikura *et al.*: Journal of Nihon University Medical Association **77**, 159 (2018).
- 29) T. Kawasaki *et al.*: Energy & Fuels **34**, 9064 (2020).
- 30) T. Kawasaki *et al.*: Photochem. Photobiol. **95**, 946 (2019).
- 31) T. Kawasaki *et al.*: J. Synchrot. Radiat. **28**, 28 (2021).
- 32) E. Ageev *et al.*: Appl. Phys. Lett. **107**, 041904 (2015).
- 33) Y. Ikemoto and H. Zen: Infrared Phys. Technol. **106**, 103268 (2020).
- 34) S. Tagiri *et al.*: Proc. of FEL2017, TUP071 (2017).
- 35) J. Okumura *et al.*: Proc. of FEL2017, TUP070 (2017).
- 36) K. Yoshida *et al.*: Appl. Phys. Lett. **103**, 182103 (2013).
- 37) M. Kagaya *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 022701 (2017).
- 38) O. Sato *et al.*: Phys. Lett. A **384**, 126223 (2020).
- 39) 吉田恭平ら: 日本赤外線学会誌 **28**, 62 (2018).
- 40) M. Kitaura *et al.*: Appl. Phys. Lett. **112**, 031112 (2018).
- 41) 田中陽平ら: 【A】基礎・材料・共通部門 光応用・視覚研究会, LAV19019 (2019).
- 42) X. Wang *et al.*: Optics Letters **37**, 5148 (2012).
- 43) X. Wang *et al.*: Appl. Phys. Lett. **103**, 191105 (2013).
- 44) 光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) のホームページ, <https://www.jst.go.jp/stpp/q-leap/>
- 45) 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設のホームページ, <http://www.lebra.nihon-u.ac.jp/>
- 46) N. Piovela *et al.*: Phys. Rev. E **52**, 5470 (1995).
- 47) N. Nishimori *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **483**, 134 (2002).
- 48) N. Nishimori *et al.*: Phys. Rev. Lett. **86**, 5707 (2001).
- 49) R. Nagai *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **483**, 129 (2002).
- 50) B. J. Bakker *et al.*: Phys. Rev. E **48**, R3256 (1993).
- 51) S.-B. Song *et al.*: J. Korean Phys. Soc. **37**, 209 (2000).
- 52) H. Zen *et al.*: Phys. Rev. Accel. Beams **23**, 070701 (2020).
- 53) C. B. McKee and J. M. J. Madey: Nucl. Instrum. Meth. A **296**, 716 (1990).
- 54) T. Kii *et al.*: AIP Conf. Proc. **879**, 248 (2007).
- 55) H. Zen *et al.*: IEEE Trans. Nucl. Sci. **56**, 1487 (2009).
- 56) P. G. O'Shea *et al.*: Appl. Phys. Lett. **73**, 411 (1998).
- 57) D. J. Bamford *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **318**, 377 (1992).
- 58) S. Mogren and R. Reifenberger: Surface Science **186**, 232 (1987).
- 59) M. Boussoukaya *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. A **264**, 131 (1988).
- 60) K. Torgasin *et al.*: Phys. Rev. Accel. Beams **20**, 073401 (2017).

著者紹介



全 炳俊

京都大学エネルギー理工学研究所 助教

E-mail: zen@iae.kyoto-u.ac.jp

専門：電子加速器、自由電子レーザー

【略歴】

2009年京都大学大学院博士課程修了（博士（エネルギー科学））。分子科学研究所極端紫外光研究施設 助教を経て2011年7月より現職。



大垣英明

京都大学エネルギー理工学研究所 教授

E-mail: ohgaki.hideaki.2w@kyoto-u.ac.jp

専門：量子放射源の開発と利用

【略歴】

1988年九州大学大学院博士課程修了（博士（工学））。九州大学研究員、電子技術総合研究所研究員、同グループリーダー、京都大学エネルギー理工学研究所准教授を経て2007年12月より現職。



紀井俊輝

京都大学エネルギー理工学研究所 准教授

E-mail: kii@iae.kyoto-u.ac.jp

専門：バルク超伝導体の加速器応用

【略歴】

1999年東京工業大学大学院博士課程修了（博士（理学））。京都大学エネルギー理工学研究所助教を経て2008年11月より現職。

Development and application of Kyoto University free electron laser

Heishun ZEN Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto, 611-0011 Japan

Toshiteru KII Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto, 611-0011 Japan

Hideaki OHGAKI Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto, 611-0011 Japan

Abstract Mid-infrared free electron laser is a wavelength-tunable coherent light source which can provide intense and short pulse laser in mid-infrared region. A compact mid-infrared free electron laser and its user stations have been developed for energy related researches at Institute of Advanced Energy, Kyoto University. In this article, the present status of the facility, performed application experiments, and an on-going project aiming at further increase of peak intensity available at the facility are introduced.