

# タンデムアンジュレータからの放射光波束の時間構造観測

保坂将人

中国科学技術大学 〒230026 中国合肥市包河区金寨路96号

名古屋大学シンクロトロン光研究センター 〒464-8603 名古屋市千種区不老町

金安達夫

九州シンクロトロン光研究センター 〒841-0005 佐賀県鳥栖市弥生が丘 8-7

分子科学研究所 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

藤 貴夫

豊田工業大学レーザー科学研究室 〒468-8511 名古屋市天白区久方 2-12-1

加藤政博

広島大学放射光科学研究センター 〒739-0046 広島県東広島市鏡山 2-313

分子科学研究所 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

## 要旨

電子蓄積リングの直線部に並べた二台のアンジュレータを通る電子はダブルパルス状の放射を発する。このダブルパルス状の放射の時間構造をアト秒レベルで操作すると、従来は高度に制御されたレーザー光が必須と考えられていた光による物質の量子状態制御が放射光でも可能となる。この新たな放射光利用の基礎を確立するために、我々は二台のアンジュレータを直列に配したタンデムアンジュレータから発生する放射の時間構造を観測した。Mach-Zehnder 干渉計による自己相関測定、分光器を用いたスペクトル測定、そして量子干渉法による遅延時間測定を併用することで、タンデムアンジュレータからの放射がアト秒精度で制御可能なダブルパルス構造を有することを確認できた。さらに超短パルスレーザーの分野で開発された Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction (SPIDER) 法を応用し、アンジュレータ放射の電場構造を復元することに成功した。

## 1. はじめに

相対論的電子ビームは偏向電磁石の中では一様磁場によるローレンツ力を受けて白色光を放射し、アンジュレータの中では周期磁場により蛇行運動し準単色光を放射する。放射光科学に携わる者には常識ともいえる光源の性質であるが、このとき電子が発する電磁波の波形はどのようなものだろうか？ 例えば偏向電磁石を通る電子の放射は、長さが臨界波長程度、時間にするとアト秒程度の超短ハーフサイクルパルス状の電磁場になる (Fig. 1)。一方、アンジュレータを通る電子は磁場の周期数だけ蛇行運動し、正確に周期数回振動する電磁波を放射する。さらには電子の運動を上手く制御すれば、原理的には放射場の波形 (本稿では、このような単一電子が発する電磁場を光波束と呼ぶ) を自在に制御できるはずである。興味深い点は、例えばアンジュレータ放射の場合、電子はセンチメートル程度の周期で蛇行運動するが、放射電磁場は相対論的な圧縮効果によりナノメートル程度の波長となることである。加速器技術により巨視的なスケールの電子の運動を制御することで

ナノメートル (時間にするとアト秒) の精度で電磁場波形が制御できる可能性がある。ところが実際に得られる放射光パルスは多数の電子の放射が乱雑に重なったものであり、個々の電子が発する光波束の波形や時間特性はそのな

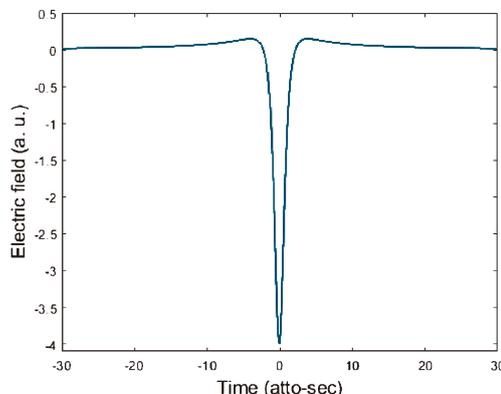


Fig. 1 Time domain electric field of synchrotron radiation from a bending magnet. The field is numerically calculated for an electron of  $\gamma = 1000$  bent with a radius of curvature  $\rho = 1$  m.

かに埋もれてしまう。いくつかの先駆的な研究<sup>1,2)</sup>を除けば個々の電子が発する光波束の時間構造が顧みられることは、ほとんどなかった。

最近、初めてアンジュレータ、より具体的にはタンデムアンジュレータからの光波束の時間構造を活用した利用研究が行われた<sup>3-7)</sup>。タンデムアンジュレータとは、Fig. 2のように二台のアンジュレータが直列に配置された装置であり、アンジュレータの間には電子ビームの軌道を迂回させる位相子 (phase shifter) あるいはバンチャー (buncher) と呼ばれる磁石 (通常は電磁石) が設置されている<sup>8)</sup>。タンデムアンジュレータを通る電子は上流と下流のアンジュレータでそれぞれ磁場の周期数だけ蛇行運動をするため、単一電子が発する光波束はダブルパルス状の構造を持つことになる。さらにダブルパルス間の遅延時間は位相子によってアト秒レベルで調整可能である。このダブルパルス状の光波束を使うことで、放射光による物質の量子状態の制御<sup>4,5,7)</sup>や量子干渉を利用した超高速分光<sup>6)</sup>が実現した。

本稿ではタンデムアンジュレータからのダブルパルス波束の時間構造を検証した研究<sup>9)</sup>について解説する。まず Mach-Zehnder 干渉計 (以下 M-Z 干渉計と記す) を用いて1次自己相関を測定し、光波束がダブルパルス構造を持つことを確認した。さらにインターフェログラムから直接的にダブルパルス間の遅延時間を求めた。また、スペクトル測定でもダブルパルス間の遅延情報を引き出した。これらの実験は紫外 (以下 UV) 領域で行われたが、同じ特性がより短い波長領域でも成り立つことを検証するために、極端紫外 (以下 XUV) 領域で時間領域の量子干渉法を用いて遅延時間を測定した。それぞれの実験結果を比較検討し、時間軸が矛盾なく説明できることを確認した。さらに干渉計を用いた観測では直接的に得ることができない放射光の位相情報を Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER) 法<sup>10)</sup>を使って求めた。すでに述べたように、アンジュレータ放射の光波束は磁場周期数だけ振動する正弦波的な時間構造を持つが、著者らの知る限り、それを実測した研究は報告されてい

ない。SPIDER 法は超短パルスレーザーのパルス長の検証などに用いられる方法である。位相がばらばらな放射光については本研究で初めて用いられた。放射光の SPIDER 実験はタンデムアンジュレータを用いることで実現することができた。

本稿では主にタンデムアンジュレータからのダブルパルス波束の利用を念頭に解説するが、これに限らず放射光波束が本来有する優れた時間特性の全く新しい応用も考えられると思う。そのような研究のヒントになってくれたら幸いである。

## 2. M-Z 干渉計による時間領域観測実験

本稿で紹介する実験は全て分子科学研究所 UVSOR-III<sup>11,12)</sup>の光源開発ビームライン BL1U 行われた。電子ビームのエネルギーは750 MeV、BL1Uの光源は蓄積リングの長直線部に設置されたタンデムアンジュレータである。タンデムアンジュレータは二台の Apple-II アンジュレータ (周期長88 mm, 周期数10) と位相子で構成されている。Fig. 2に模式的に示されているように位相子は3つの連続した双極電磁石の磁場によって、そこを通過する電子ビームの水平方向に迂回経路 (バンブ軌道とも呼ばれる) を形成する。迂回経路の微小軌道長  $dl$  は進行方向変位  $dz$  および水平方向変位  $dx$  ( $dx \ll dz$ ) によって以下の式で与えられる。

$$dl = \sqrt{dz^2 + dx^2} = \sqrt{dz^2 + \theta^2 dz^2} \approx dz \left( 1 + \frac{\theta^2}{2} \right) \quad (1)$$

ここにおいて  $\theta$  は磁場による電子ビームの曲げ角度で、位相子の磁場強度に比例する。Eq.(1)から迂回経路による軌道長の伸長は磁場強度の2乗に比例することがわかる。迂回経路による電子ビームの遅延は、上下流アンジュレータからのダブルパルス間の遅延に反映される。UVSOR-IIIの位相子は電子ビームエネルギー750 MeVの条件下でダブルパルス間の遅延時間を1.2 fs から91 fs まで調

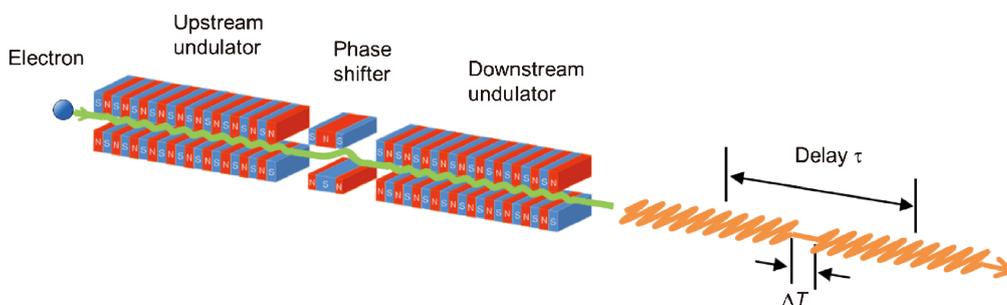


Fig. 2 (Color online) Schematic illustration of the tandem undulator<sup>9)</sup>. A relativistic electron passing through the undulators emits a wave packet with a waveform characterized by time-separated 10-cycle oscillations. The time delay  $\tau$  between the double-pulsed components of the wave packet is controlled by the phase shifter magnet between the two undulators. (Reprinted from Ref. 9)

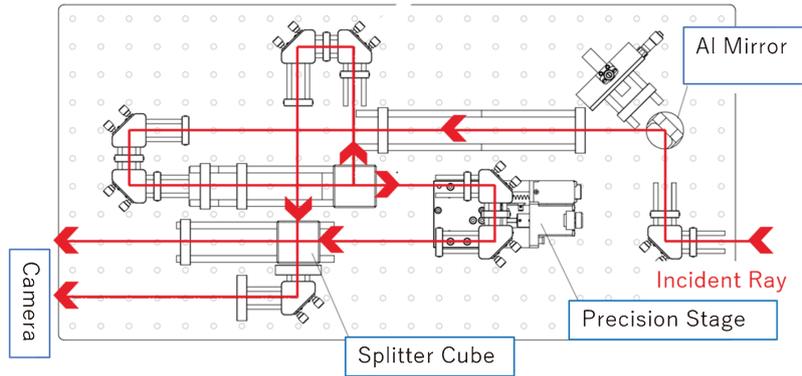


Fig. 3 (Color online) Schematic of Mach-Zehnder interferometer for autocorrelation measurement.

整できる。

放射光波束の一次の自己相関は M-Z 干渉計を用いて測定した。一次の自己相関は Michelson 干渉計を用いても測定が可能であるが、精密調整の自由度から M-Z 干渉計の構造を選び、Fig. 3 に示す装置を構築した。アンジュレータは基本波を UV 領域に設定し、発生する放射光を金コートミラーで跳ねてサファイア窓を通じて大気中に設置した干渉計へ導いた。ミラーおよび窓材によってアンジュレータ放射の高調波成分は吸収される。測定対象が UV 光であるためその波長の数分の一程度 ( $\sim 100$  nm) の機器の揺らぎが測定結果に影響を与える。したがって機器の機械的安定性を向上させるための防振対策、さらに光の経路をパイプで覆う等の方法で空気揺らぎを防ぐことが精度の高い測定を行う上での鍵となった。また干渉計には、測定結果に影響を与えるバンドパスフィルターおよび強い波長依存性のある光学機器は使われていない。

Fig. 3 に示すように干渉計に入射した光はスプリットキューブによって 2 つに分けられ、片方の光は固定の遅延を受けて、もう片方は精密ステージによって光路差が調整され (こちらを遅延レプリカと呼ぶ)、再びスプリットキューブによって合流後カメラへ入射される。このとき光波束の電場を  $E(t)$  とすると、光路差  $\tau_{MZ}$  における一次の自己相関関数  $F(\tau_{MZ})$  は以下の式で与えられる。

$$F(\tau_{MZ}) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t) + E(t - \tau_{MZ})|^2 dt \quad (2)$$

自己相関測定では精密ステージを動作させ、その振動が治まったときにカメラで入射光を記録する。カメラ上には空間的な光路差によってフリンジ構造が表れるが、明瞭に観測可能な小さな空間を選んでその強度の変化を光路差の関数としてプロットすることで Fig. 4, 5 に示されるようなインターフェログラムを得た。

最初に、一台のアンジュレータからの光波束の一次自己相関関数測定 (Fig. 4a) について述べたい。実験はタンデムアンジュレータを構成する二台の Apple-II アンジュレータのうちの 1 つ (下流側) を直線偏光モードで基本

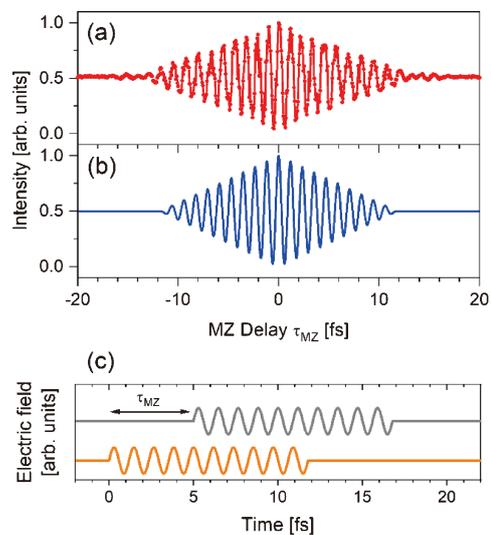
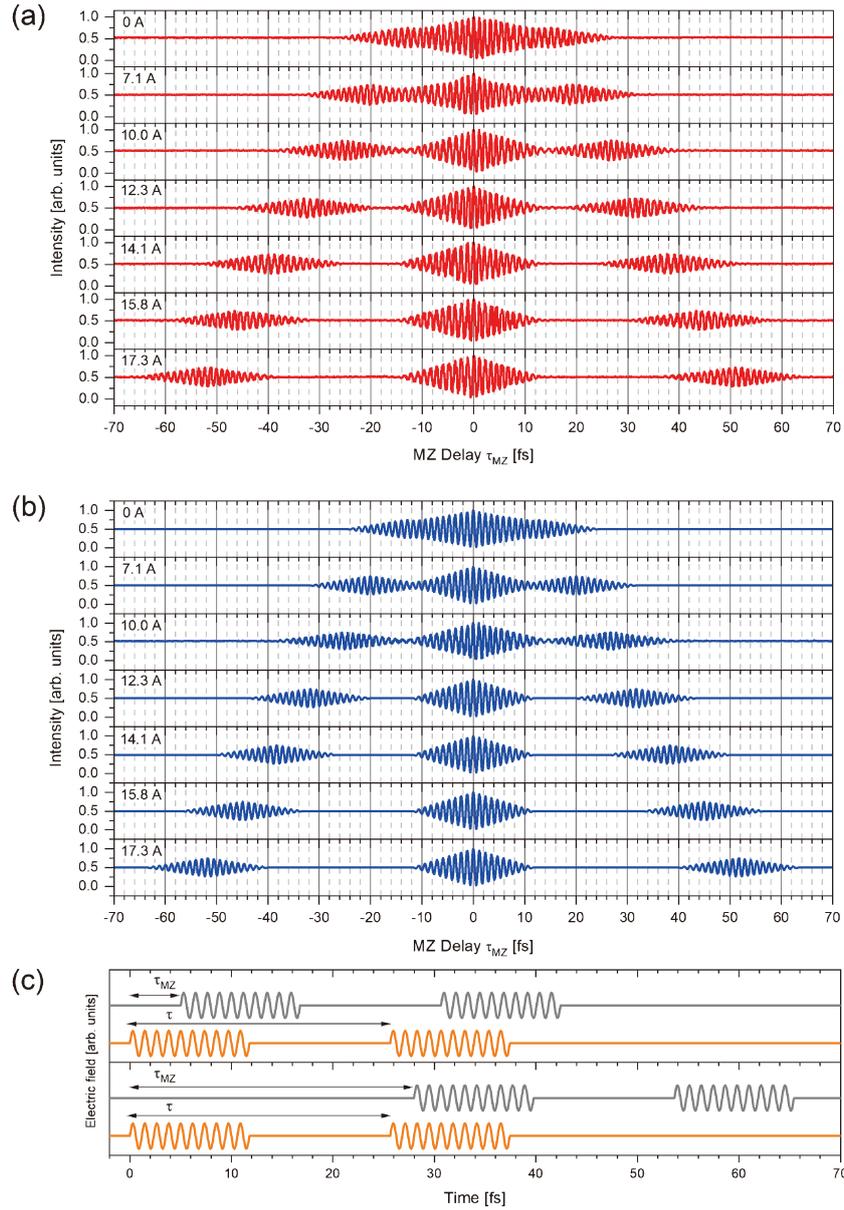


Fig. 4 (Color online) Autocorrelation measurement of spontaneous radiation from the downstream undulator<sup>9)</sup>. The wavelength of the fundamental undulator radiation was set to 357 nm. (a) Measured result. (b) Calculated autocorrelation function assuming a 10-cycle sinusoidal wave at 357 nm wavelength. (c) Waveform of the wave packet (orange) and its delayed replica (gray) used in the calculation. (Reprinted from Ref. 9)

波 357 nm に設定して行った。実験結果は 3 角形のエンベロープを持つ約 1.2 fs 周期の振動波形を示した。図には振動の乱れも見えるがこれは M-Z 干渉計内で除去できなかった機器の振動が原因であると考えられる。

この実験結果の解釈について述べる。これまで述べてきたように多数の電子から放射される放射光はばらばらな位相の光波束の集まりであるが、干渉測定では異なる電子が発した光波束間の乱雑な位相の寄与は互いに打ち消しあう。したがって一次の自己相関関数は単一電子が発する光波束に対するものと同じ形状となる<sup>13,14)</sup> (実際には電子ビームのエミッタンスおよびエネルギー広がりの影響を受ける)。アンジュレータを通る電子が発する光波束の電場波形を  $N$  サイクルの正弦波に単純化すると、初等的な積



**Fig. 5** (Color online) Autocorrelation measurements of spontaneous radiation from the tandem undulator at various values of the phase shifter current<sup>9)</sup>. The wavelength of the fundamental undulator radiation was set to 357 nm. (a) Measurement. (b) Calculation. (c) Waveform of the double pulsed wave packet (orange) and its delayed replica (gray) used in the calculation. (Reprinted from Ref. 9)

分によって自己相関関数は以下の式で与えられる。

$$F(\tau_{MZ}) \propto \begin{cases} NT & NT \leq \tau_{MZ} \\ NT + (NT - \tau_{MZ}) \cos \omega \tau_{MZ} & 0 \leq \tau_{MZ} < NT \\ + \frac{1}{\omega} \sin \omega \tau_{MZ} & \\ NT + (NT + \tau_{MZ}) \cos \omega \tau_{MZ} & -NT \leq \tau_{MZ} < 0 \\ - \frac{1}{\omega} \sin \omega \tau_{MZ} & \\ NT & \tau_{MZ} < -NT \end{cases} \quad (3)$$

ここで  $\omega$  はアンジュレータ基本波放射の角周波数、 $T (= 2\pi/\omega)$  は周期、 $\tau_{MZ}$  は精密ステージで調整される遅延時間である。

波長357 nmの10サイクルの正弦波について、Eq.(3)を用いて自己相関関数を計算した (Fig. 4b)。Eq.(3)からも読み取れるように、自己相関関数は入射波と同じ周期で2Nサイクル振動し三角形のエンベロップを持つ。これらの特徴は実験結果にも表れており、計算は実験を良く再現している。なお実際のアンジュレータ放射は基本波だけではなく高調波成分も含むために、自己相関関数はスパイク状の構造を持つはずである。しかしながら実験結果にそのよう

な構造はみられない。これは本研究の実験装置では短波長域の高調波成分が除去されているためである。また Eq. (3) で表されるモデルは実験結果をよく再現するが、実験のほうは周期数が2つ程度多くになっているように見える。これはアンジュレータ両端部の磁場の影響であると考えられる。

次にタンデムアンジュレータからの光波束の一次の自己相関関数について説明する。タンデムアンジュレータからの光波束は遅延時間  $\tau$  のダブルパルス構造を持つことが予想される。上流アンジュレータで発生した光波束の電場を  $E(t)$  とし、下流のアンジュレータからは  $\tau$  だけ遅延した同一の光波束が発生することを仮定すると、光電場は  $E(t-\tau)$  で表される。このことからダブルパルス状の光波束の一次の自己相関関数は

$$F(\tau_{MZ}) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t) + E(t-\tau) + E(t-\tau_{MZ}) + E(t-\tau-\tau_{MZ})|^2 dt \quad (4)$$

と表される。

実験では上下流のアンジュレータとも直線偏光で基本波の波長を357 nmへ設定した。位相子電磁石の励磁電流は、遅延時間がおよそ6フェムト秒ステップで増加するように調整した。各グラフ左上に示した数値は位相子電磁石の励磁電流である。Fig. 5(a) に各励磁電流値で測定した自己相関関数を示す。Fig. 5(a) の一番上に示した励磁電流値が0 Aの自己相関関数は、一台のアンジュレータからの放射による自己相関関数とよく似た三角形のエンベロップが特徴的である。励磁電流が大きくなるにつれ、自己相関関数の振動部は3つに分裂していく。エンベロップはいずれも三角形であるが、中央部に比べると両脇の構造は強度が半分である。まず中心付近の振動部分は、光波束とその遅延レプリカを持つダブルパルス構造が両方とも重なり合っただけで生じた干渉と解釈できる (Fig. 5c 上段)。一方、両脇の振動部は光波束を持つダブルパルス構造の片側だけが干渉したと解釈できる。そのため中央部に比べ強度が半分である。具体的には右側の振動部は  $E(t-\tau)$  と  $E(t-\tau_{MZ})$  が  $\tau_{MZ} \sim \tau$  において干渉することで生じ (Fig. 5c 下段)、左側の振動部では、 $\tau_{MZ} \sim -\tau$  でダブルパルス構造の一番目と遅延レプリカの二番目の成分が干渉している。

一台のアンジュレータの場合と同様にアンジュレータを通る単一電子が発生する光波束の電場形状を  $N$  サイクルの正弦波と考えると、Eq. (4) は解析的に積分することができる。計算結果<sup>9)</sup> は煩雑であるのでここでは省くが、Fig. 5(b) に実験と同じ条件で行った計算の結果を示す。計算結果は観測された自己相関関数の特徴—20周期の振動が遅延時間の増加によって3つに分裂—をよく再現している。なお、中心付近の振動部と両端の2つの振動部の時間差は上下流アンジュレータ間の遅延時間  $\tau$  に対応する。

したがって一次の自己相関関数から直接的にダブルパルス間の遅延時間を導出できる。

### 3. 周波数領域の干渉測定

時間領域の電場分布と周波数領域のスペクトルは互いにフーリエ変換の関係であるので、スペクトル測定によってもタンデムアンジュレータの波束の時間領域での性質を調べることが可能である<sup>7)</sup>。これまでもタンデムアンジュレータからのスペクトルの測定によってタンデムアンジュレータの放射について調べられた実験例はある<sup>8)</sup>。本研究はM-Z干渉計の測定結果との比較を主な目的としている。Analytic Signalの周波数表現<sup>15)</sup>で一台のアンジュレータ(この場合は上流側アンジュレータ)からの光波束の電場を振幅と位相によって

$$\tilde{E}_u(\omega) = |\tilde{E}(\omega)| \exp[i\phi(\omega)] \quad (5)$$

で表す。ここにおいて  $\phi(\omega)$  は位相の波長依存性を表す実数関数である。 $\tau$  だけ遅れた、下流側アンジュレータの光波束の電場は

$$\tilde{E}_d(\omega) = |\tilde{E}(\omega)| \exp[i\phi(\omega)] \exp(-i\tau\omega) \quad (6)$$

で表せる。したがってこれらが干渉して観測されるスペクトルは

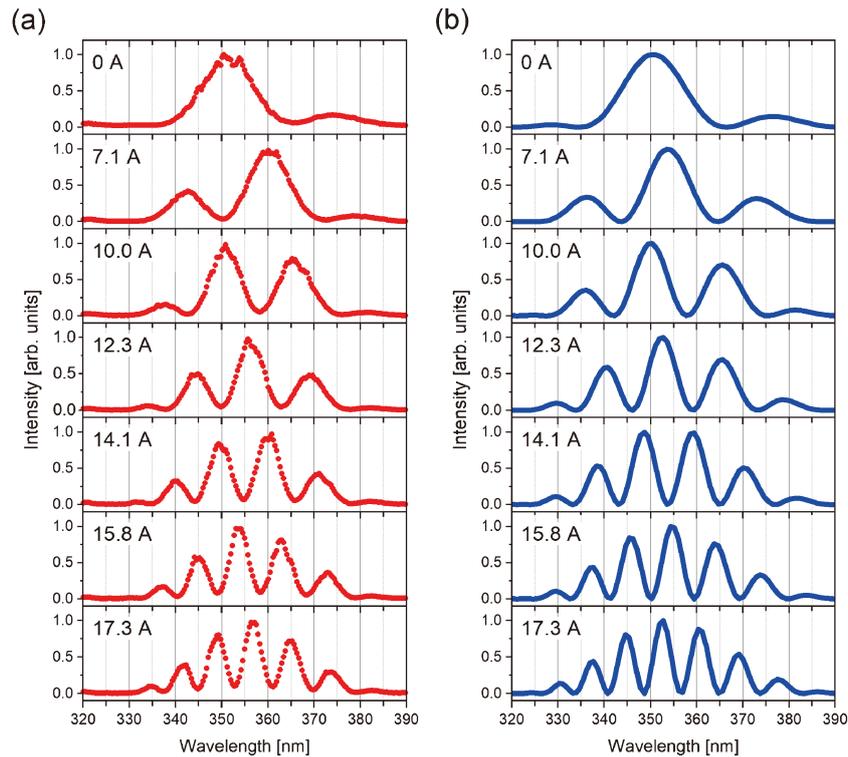
$$|\tilde{E}_u(\omega) + \tilde{E}_d(\omega)|^2 = 2|\tilde{E}(\omega)|^2 \{1 + \cos(\omega\tau)\} \quad (7)$$

で表される。実際には電子ビームは有限のエミッタンスやエネルギー広がりを持つため、個々の電子が発生する電場が完全には同一ではないことによって、Eq. (7) で示される干渉スペクトルは変調を受ける。このために実験で測定されるスペクトルは

$$I(\omega) = 2I_0(\omega) \{1 + f_{\text{mod}} \cos(\omega\tau)\} \quad (8)$$

で与えられる。ここにおいて  $I_0(\omega)$  は1台のアンジュレータのスペクトルを表し、 $f_{\text{mod}} (< 1)$  は干渉のコントラストを表す。

スペクトルの測定実験はM-Z干渉計実験と同時にを行った。分光には簡易的なファイバー分光器(アパーチャ径50  $\mu\text{m}$ , 分解能0.19 nm)を用いた。実験結果をFig. 6(a)に示す。各グラフ左上に示した数値は位相子電磁石の励磁電流である。Eq. (7) から予想されるように励磁電流値つまり  $\tau$  が大きくなるにしたがって、フリンジの間隔が狭くなることが示されている。これまでの比較と同様に  $I_0(\lambda)$  として、 $N$  周期の正弦波の電場の強度を仮定してEq. (8) を用いて計算したスペクトルをFig. 6(b)に示す。



**Fig. 6** (Color online) Spectra from the tandem undulator at various values of the phase shifter current<sup>9)</sup>. (a) Measured spectra. (b) Calculated spectra obtained by applying the Fourier transform to the double-pulsed 10-cycle sinusoidal wave packet. (Reprinted from Ref. 9)

ここにおいて遅れ時間  $\tau$  には M-Z 干渉計実験で測定された値を用いた。図から明らかなように簡便なモデルながら、実験結果が良く再現される。つまり、M-Z 干渉計による波束の時間構造の測定と周波数領域にスペクトル測定は矛盾なく説明できるといえる。

#### 4. XUV 時間領域観測

UV 領域における M-Z 干渉計による一次の自己相関の測定およびスペクトル測定によって、タンデムアンジュレータからの放射がダブルパルス構造を持つ光波束であることが示された。ダブルパルスの利用実験の観点からは、XUV 領域やさらに短い波長領域でもこの描像が成り立つかどうか重要であり、実験的に検証する必要がある。ところが光学的な干渉実験を行うことは XUV より短い波長域では技術的に難しい。そこで XUV 領域でヘリウム原子の量子干渉を利用してダブルパルス間の遅延時間を求め、それが UV 領域での実験結果と一致するのか確認した。

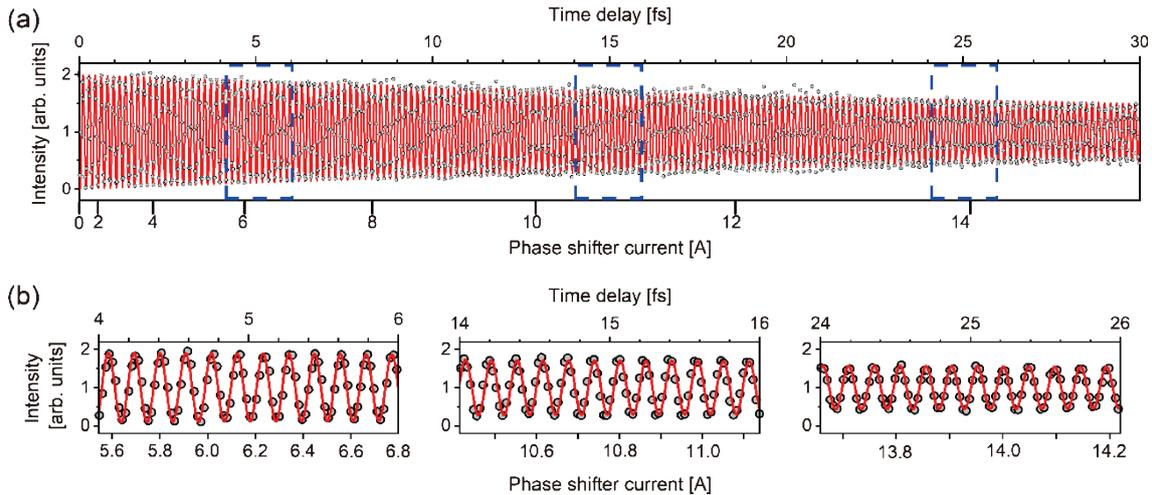
量子干渉実験については参考文献<sup>3)</sup>で詳しく述べられているのでここではかいつまんで説明する。ダブルパルスで励起されたヘリウム原子の量子状態は、最初のパルスで励起された状態と  $\tau$  だけ遅れたパルスにより励起される状態の重ね合わせで表される。基底状態から励起状態への遷移周波数を  $\omega_k$  とすると、最初のパルスによって励起された

状態は振動数  $\omega_k$  で振動するので、次のパルスによる励起まで位相は  $\omega_k \tau$  だけすすむ。この位相差が状態間の量子干渉を引き起こし、励起確率は遅延時間に応じて周期的に変化する。ダブルパルスとの相互作用によって励起される確率は以下の式で与えられる。

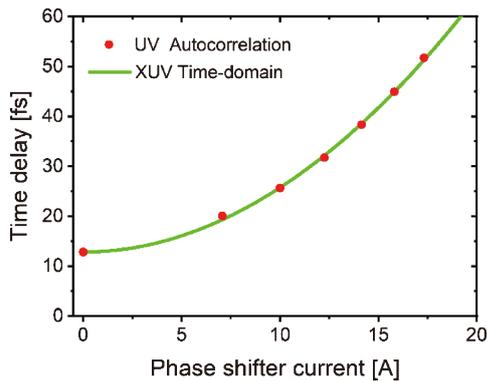
$$n_k \propto 1 + \cos \omega_k \tau \quad (9)$$

量子干渉実験はヘリウム原子の  $1s \rightarrow 5p$  励起を対象として行った。2つのアンジュレータの放射波長（基本波）を共鳴励起波長  $\sim 51$  nm に設定し、タンデムアンジュレータからの放射をヘリウムガスビームへ照射した。励起状態の生成量は UV 域 361 nm の蛍光を検出して測定した。**Fig. 7** にタンデムアンジュレータの位相子の励磁電流を連続的に変えて測定した蛍光収量を示す。蛍光収量は  $1s5p$  状態への遷移周波数に相当する時間周期 ( $\sim 172$  as) での変動を示した。この振動の 1 周期が明確に確認できることから、測定上の時間分解能はそれより数倍程度良いと見なせる。**Fig. 7** において遅延時間は図の上側の横軸に示した。遅延時間の較正には、位相子が作る電子ビームの迂回経路の長さが励磁電流の二乗に比例する性質を利用している<sup>6,9)</sup>。

量子干渉法で求めたダブルパルス間の遅延時間と M-Z 干渉計による 1 次自己相関で求めた遅延時間との比較を



**Fig. 7** (Color online) (a) Fluorescence yield as a function of the phase shifter current in decay from the  $1s5p$  excited state of helium atom<sup>9)</sup>. The time delay produced by the phase shifter was calibrated using a time-damped sinusoidal curve that oscillates at 172 as period corresponding to the resonant frequency of the  $1s \rightarrow 5p$  excitation. The gray circles are measured data and the red line shows the fitting result. The time delay converted from the phase shifter current is shown on the top axis. (b) Enlarged plots in the three regions indicated by the blue broken lines in (a). (Reprinted from Ref. 9)



**Fig. 8** (Color online) Time delay between the double-pulsed components obtained by the two different wavelength regions<sup>9)</sup>. For comparison, the relative delay obtained in the time-domain interferometry with the XUV wave packets is normalized to the absolute delays in the UV wavelength at 0 A phase shifter current. (Reprinted from Ref. 9)

**Fig. 8** に示す。各々の実験でアンジュレータのギャップ値が異なるために、アンジュレータ自体による遅れ時間（スリッページ効果）が異なる。そこで励磁電流値が 0 アンペアのときの遅延時間が一致するように、量子干渉法で求めた遅延時間にオフセットを与えた。両者は良い一致を示しており、量子干渉測定において 172 as 周期の明瞭な干渉が測定されたことから、タンデムアンジュレータを用いれば、アト秒単位で遅延時間が調整可能なダブルパルスの光波束が任意の波長領域で発生できるとわかった。

## 5. 放射光 SPIDER 実験

2 章で述べた 1 次の自己相関関数の実験によって直接ダブルパルス間の遅延を測定することができるものの、光波束の電場構造を復元することはできない。タンデムアンジュレータから発生した放射光の電場構造を実験的に復元するには位相情報を求めなければならない。超短パルスレーザーについては位相を求める方法はすでに確立されている。また、放射光源から発生する波束の位相を求める提案及び実験例も存在するが、それらは入射レーザーによってシードされた自由電子レーザー（FEL）や high gain harmonics generation (HG) FEL に限られている<sup>17-19)</sup>。実際、シードされた放射光源はレーザーに類似した性質をもつ。それに対して本稿では位相がばらばらなアンジュレータからの光波束の位相を SPIDER 法によって求める研究<sup>10)</sup>について解説する。SPIDER はフェムト秒レーザーのパルス特性を検証するために開発された方法であり、すでに広く利用されている。ここでは一般的な SPIDER 法についての解説は省き、タンデムアンジュレータを用いた実験に限定して説明したい。

タンデムアンジュレータにおいて上流側のアンジュレータをある波長に固定し、下流側のアンジュレータをそれに対して波長を角周波数  $\Omega$  だけシフトした値に設定する。さらに位相子で上流と下流のアンジュレータ間の遅延を観測に適切な値  $\tau$  に設定する。そのときの下流側アンジュレータからの電場は 3 章でも用いた analytic signal の表現を使って (Eq. (5), (6), (7) を参照のこと) 以下の式で表すことができる。

$$\tilde{E}_d(\omega) = |\tilde{E}(\omega - \Omega)| \exp[i\phi(\omega - \Omega)] \exp(-i\tau\omega) \quad (10)$$

ここにおいて  $\phi(\omega - \Omega)$  は spectral phase と呼ばれる、位相の周波数依存性を表す実数関数である。上流と下流のアンジュレータからの電場が干渉して作られるスペクトル強度は

$$\begin{aligned} |\tilde{E}_u(\omega) + \tilde{E}_d(\omega)|^2 &= |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}(\omega - \Omega)|^2 + 2|\tilde{E}(\omega)| \\ &|\tilde{E}(\omega - \Omega)| \{\cos(\phi(\omega - \Omega) - \phi(\omega) - \tau\omega)\} \end{aligned} \quad (11)$$

与えられる。Eq. (7) に与えられている（周波数シフトのない）通常のタンデムアンジュレータのスペクトルと比較すると Eq. (11) の干渉項に相対的な spectral phase  $\phi(\omega - \Omega) - \phi(\omega)$  が含まれており、スペクトルのフリッジにこの情報は現れる。

したがって、上流側を固定したまま下流側のアンジュレータの角周波数を  $\Omega$  ずつシフトさせ、それぞれスペクトルの測定を行う。この角周波数  $\Omega$  によって位相復元の分解能が決まる。これらの測定されたデータから spectral phase の情報を引き出すことができるが、具体的方法については本稿では割愛する。周波数表示の analytic signal を逆フーリエ変換すると、その実数部に電場波形が表れるので、spectral phase および強度スペクトルから光波束の波形を導出することができる。

タンデムアンジュレータを用いた SPIDER 実験は UV 領域および XUV 領域で行われた。UV 領域の SPIDER 実験はタンデムアンジュレータの上流側アンジュレータを基本波のエネルギーを 3.5 eV に固定し、下流側アンジュレータは角周波数  $\Omega = 2\pi \times 1.15$  THz (4.76 meV) を基本とした周波数シフトを行なった。位相子の調整によって遅延時間  $\tau = 90.25$  fs に設定した。M-Z 干渉計の実験と同じようにサファイア窓を介して大気中に取り出された UV 光を分光器に入射することでスペクトルの測定を行った。Multi-shear の SPIDER アルゴリズム<sup>20)</sup> によって解析することで得られた位相分布および強度分布を Fig. 9 に示す。位相のオフセットはエネルギー 3.5 eV で 0 になるように調整した。さらにこれらから復元した電場波形も示す。

XUV 領域での SPIDER 実験はエネルギー 35 eV 付近の光波束について行った。上流側アンジュレータの基本波エネルギーを 35 eV に設定し、下流側アンジュレータは遅延時間を  $\tau = 9$  fs に選び、 $\Omega = 2\pi \times 6.65$  THz (27 meV) を基本として角周波数をずらし、スペクトル測定を行った。スペクトルの測定には XUV 領域のヘリウム原子の光電子分光を用いた。光波束の入射によってヘリウム原子から発生する光電子のエネルギー分布には入射波束のスペクトルが反映される<sup>21,22)</sup>。電子の運動エネルギーの測定には光電子分光装置が用いられた。測定された XUV スペクトルは UV 領域と同様に multi-shear アルゴリズムによって解析された。XUV 領域の spectral phase および再構築された

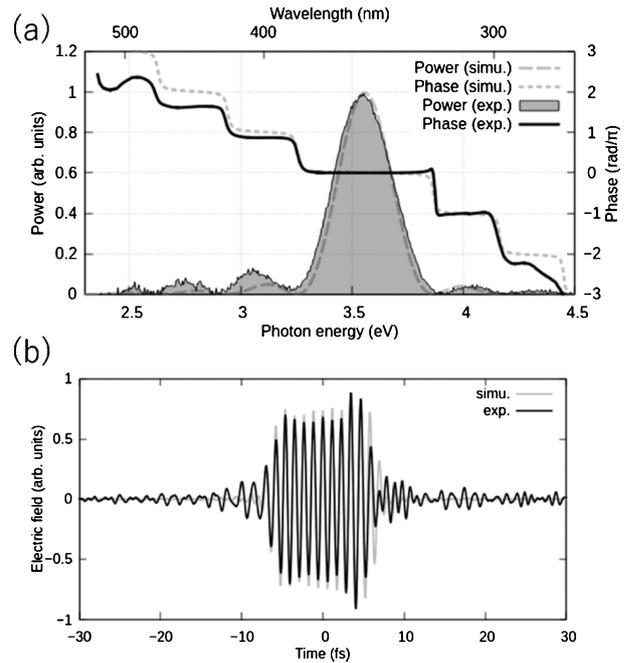
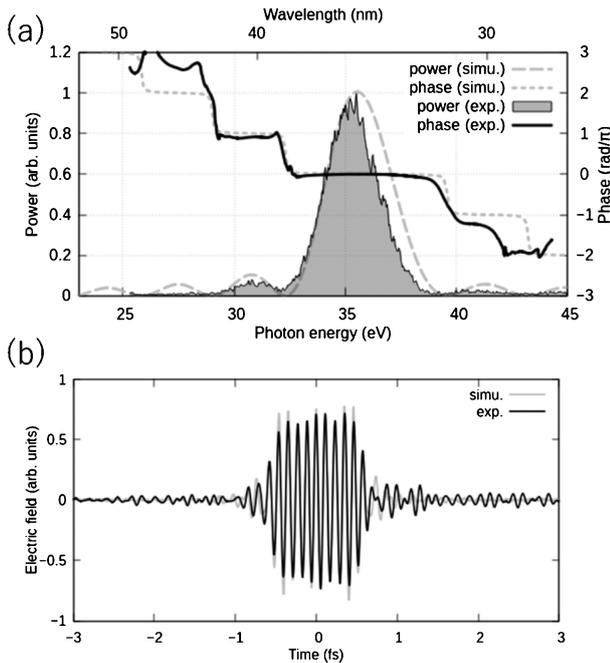


Fig. 9 (a) UV power spectrum of the wave packet from the upstream undulator (shaded curve) and the spectral phase retrieved from the multi-shear algorithm<sup>10)</sup>. (b) Waveform of the wave packet retrieved from the power spectrum and spectral phase shown in (a). The numerically simulated power spectrum and spectral phase are also shown as a gray dashed curve and a gray dotted curve, respectively. The phase offset is set to zero at 3.6 eV. The numerically simulated waveform is also shown as a gray curve. (Reprinted from Ref. 10 ©The Optical Society)

電場波形を Fig. 10 に示す。

実験で得られた spectral phase および電場波形と比較するために相対論的電子がアンジュレータ磁場中で発生する電場を数値的計算によって求めた<sup>23)</sup>。電場をフーリエ変換することで spectral phase は求められる。さらに、高調波成分を周波数領域で数値的に除去して逆フーリエ変換することによって実験で得られた基本波成分のみの電場波形を計算することができる。シミュレーション計算の結果は Fig. 9, 10 に灰色線で示し、実験値と比較する。図から明らかかなように UV の場合も XUV の場合も、スペクトル強度が零点を通るごとに spectral phase が  $\pi$  だけ変化する様子がよく再現されている。また、電場波形は周期数も含めてよく再現されている。

ところで UV の実験において、放射光が分光器に入射するまでに透過するサファイア窓によって spectral phase に影響が表れるのではないかと思うかもしれない。それはサファイア窓が有限の屈折率波長分散を持ち、そのことによって波長ごとに異なる遅延を受けるからである。しかし、この遅延は上流アンジュレータからの放射および下流アンジュレータの放射とも同じだけ与えられ、結局 Eq. (7) および Eq. (11) の干渉の項には影響を与えない。結局、サファイア窓が spectral phase の測定結果に影響を与



**Fig. 10** (a) XUV power spectrum of the wave packet from the upstream undulator (shaded curve) and the spectral phase retrieved from the multi-shear algorithm<sup>10)</sup>. The numerically simulated power spectrum and spectral phase are also shown as a gray dashed curve and a gray dotted curve, respectively. The phase offset is set to zero at 35 eV. (b) Waveform of the wave packet retrieved from the power spectrum and spectral phase shown in (a). The numerically simulated waveform is also shown as a gray curve. (Reprinted from Ref. 10 ©The Optical Society)

えることはない。

## 6. まとめと展望

本稿では相対論的電子から放出される放射光波束の時間領域の性質について述べてきた。放射光の時間領域の利用は、レーザーにくらべて波長の選択の幅が広く特に極端紫外線やX線領域にも拡張可能であること、通常の加速器技術により電子の運動を制御することでアト秒レベルでの光波束の時間構造操作が簡単に出来ることが大きな利点であり、今後の発展も期待される。ところで電子ビームは位相がばらばらであるだけではなく、有限な空間的な広がりやエネルギー広がりを持ち、それらは光波束の時間構造の単一性に影響を与える<sup>8)</sup>。電子ビームがエネルギー広がり  $\Delta E/E$  および角度広がり  $\Delta\theta$  を持つとき、ダブルパルスの遅延  $\tau$  に対する影響は

$$\Delta\tau_E = 2\tau \frac{\Delta E}{E}, \quad \Delta\tau_\theta = \frac{L}{2\beta c} (\Delta\theta)^2 \quad (12)$$

で与えられる。ここで  $\beta c$  は電子の速さ、 $L$  は上下流のアンジュレータ間の距離である。ビームの空間的広がりの影

響は位相子の磁場の空間分布（主に磁場6極成分）に依存するが、本研究においてその効果は十分小さいため、ここでは議論しない。UVSOR-III について Eq. (12) を見積ると、遅延時間が数フェムト秒の領域ならば角度広がり  $\Delta\theta$  の寄与（ $\sim 10$  as）が時間分解能を決めるが、遅延時間が増加するとエネルギー広がり  $\Delta E/E$  の寄与が徐々に支配的になることがわかる。例えば  $\tau = 50$  fs ではエネルギー広がり、角度広がり  $\Delta\theta$  の寄与はそれぞれ 50 as, 10 as と見積もられる。この様子は Fig. 7 において、遅延が大きくなるにつれ量子干渉のコントラストが下がることから読み取れる。

将来的に第4世代回折限界光源を利用すれば、電子ビームの空間広がりの影響は UVSOR-III と比べてはるかに小さく無視できるようになるだろう。そのため極めて短い遅延時間で時間分解能が大幅に向上し、UVSOR-III では困難なアト秒からサブフェムト秒の遅延領域でダブルパルスの時間特性を生かした実験が可能になると期待される。一方、一般的に蓄積リング光源における電子ビームのエネルギー広がり  $\Delta E/E \sim 10^{-3}$  であるから、回折限界光源を使ったとしても、遅延時間が数十フェムト秒の領域では時間分解能は数10アト秒に制限される。これを乗り越えるにはエネルギー回収型ライナックのような超高性能光源加速器の実現が必須となる<sup>24)</sup>。

本稿では放射光波束の spectral phase を SPIDER 法によって観測する研究についても解説したが、この研究によって通常 SPIDER 法で用いられる非線形効果を使わずに位相が測定できることが示された。本手法は非線形効果を利用することが困難なX線領域のパルス長測定へも応用できるだろう。

## 謝辞

本稿で紹介した研究は岩山洋士助教、藤本将輝助教、ELHAM SALEHI 研究員、岡野泰彬氏（分子科学研究所）、高嶋圭史教授、真野篤氏（名古屋大学）、彦坂泰正教授（富山大学）、和田真一准教授（広島大学）との共同研究として行われました。また本研究の一部は広島大学大学院理学研究科（野津庄平君）及び名古屋大学大学院工学研究科（木村信之介君）の修士論文となりました。

本研究は自然科学研究機構新分野創生センター先端光科学研究分野プロジェクト（01211906）、科学研究費補助金（17H01075, 18K03489, 18K11945, 20H00164, 22H02044）、分子科学研究所共同利用研究（21-805, 22IMS6611）、中国科学技術大学国際招聘教授基金（2022BVR0）の支援を受けて行われました。UVSOR BL1U は文部科学省量子ビーム基盤技術開発プログラムの補助を得て建設されたものです。

## 参考文献

- 1) S. Nakanishi, H. Itoh, T. Fuji, T. Kashiwagi, N. Tsurumachi,

- M. Furuichi, H. Nakatsuka and M. Kamada: J. Synchrotron Rad. **5**, 1072 (1998).
- 2) S. Fujiki, K. Tsuchiya, J. Ishikawa, H. Okuma, T. Miyahara, H. Sasaki, T. Shioya, T. Obina and S. Yamamoto: Phys. Rev. A **80**, 063804 (2009).
  - 3) 金安達夫, 彦坂泰正, 加藤政博: 放射光 **33**, 327 (2020).
  - 4) Y. Hikosaka, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: Nat. Commun. **10**, 4988 (2019).
  - 5) T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: Phys. Rev. Lett. **123**, 233401 (2019).
  - 6) T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: Phys. Rev. Lett. **126**, 113202 (2021).
  - 7) Y. Hikosaka, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: Nat. Commun. **12**, 3782 (2021).
  - 8) P. Elleaume: J. Phys. Colloques **44**, 333 (1983).
  - 9) T. Kaneyasu, M. Hosaka, A. Mano, Y. Takashima, M. Fujimoto, E. Salehi, H. Iwayama, Y. Hikosaka and M. Katoh: Scientific Reports **12**, 9682 (2022).
  - 10) T. Fuji, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, Y. Okano, E. Salehi, M. Hosaka, Y. Takashima, A. Mano, Y. Hikosaka, S. Wada and M. Katoh: Optica **10**, 302 (2023).
  - 11) M. Adachi *et al.*: J. Phys. Conf. Series **425**, 042013 (2013).
  - 12) H. Ota *et al.*: J. Phys. Conf. Series **2380**, 012002 (2022).
  - 13) K. Je. Kim, Z. Huang and R. Lindberg: "Synchrotron Radiation and Free-Electron Lasers" (Cambridge University Press, 2017).
  - 14) T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: New J. Phys. **22**, 083062 (2020).
  - 15) C. Iaconis and I. A. Walmsley: IEEE J. Quantum Electron. **35**, 501 (1999).
  - 16) W. K. Peters, T. Jones, A. Efimov, E. Pedersoli, L. Foglia, R. Mincigrucci, I. Nikolov, R. Trebino, M. B. Danailov, F. Capotondi, F. Bencivenga and P. Bowlan: Optica **8**, 545 (2021).
  - 17) R. N. Coffee, J. P. Cryan, J. Duris, W. Helml, S. Li and A. Marinelli: Philos. Trans. Royal Soc. A: Math. Phys. Eng. Sci. **377**, 20180386 (2019).
  - 18) B. Mahieu, E. Allaria, D. Castronovo, M. B. Danailov, A. Demidovich, G. De Ninno, S. Di Mitri, W. M. Fawley, E. Ferrari, L. Fröhlich, D. Gauthier, L. Giannessi, N. Mahne, G. Penco, L. Raimondi, S. Spampinati, C. Spezzani, C. Svetina, M. Trovò and M. Zangrando: Opt. Exp. **23**, 17665 (2015).
  - 19) G. De Ninno, D. Gauthier, B. Mahieu, P. R. Ribic, E. Allaria, P. Cinquegrana, M. B. Danailov, A. Demidovich, E. Ferrari, L. Giannessi, G. Penco, P. Sigalotti and M. Stupar: Nat. Commun. **6**, 8075 (2015).
  - 20) D. R. Austin, T. Witting and I. A. Walmsley: J. Opt. Soc. Am. B **26**, 1818 (2009).
  - 21) M. Wollenhaupt, A. Assion, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. Zamith, M. A. Bouchene, B. Giraldo, A. Flettner, and G. Weichmann and U. Gerber: Phys. Rev. Lett. **89**, 173001 (2002).
  - 22) M. Winter, M. Wollenhaupt and T. Baumert: Opt. Commun. **264**, 285 (2006).
  - 23) S. Elham, M. Hosaka and M. Katoh: to be published to Journal of Advanced Simulation in Science and Engineering.
  - 24) KEK Report 2012-04, "Energy Recovery Linac Conceptual Design Report".

## 著者紹介



### 保坂将人

中国科学技術大学客員教授  
名古屋大学シンクロトン光研究センター  
客員准教授  
E-mail: m-hosaka@nusr.nagoya-u.ac.jp  
専門: 加速器科学・ビーム物理学

#### 【略歴】

1994年東北大学理学研究科博士後期課程修了, 博士(理学)。1995年分子科学研究所助手。2006年名古屋大学助教授。2021年より現職。



### 金安達夫

九州シンクロトン光研究センター 副主任研究員  
E-mail: kaneyasu@saga-ls.jp  
専門: 原子分子物理学・加速器科学

#### 【略歴】

2004年東京都立大学大学院理学研究科博士課程修了。博士(理学)。東京大学, 分子科学研究所での博士研究員を経て, 2008年より九州シンクロトン光研究センター研究員, 2009年より現職。2018-2019年分子科学研究所客員准教授。2022年分子科学研究所准教授(兼任)。



### 藤 貴夫

豊田工業大学 教授  
E-mail: fuji@toyota-ti.ac.jp  
専門: レーザー物理, 量子エレクトロニクス

#### 【略歴】

1999年筑波大学大学院工学研究科物理学専攻博士後期課程修了。博士(工学)取得。1999年東京大学大学院理学系研究科助手。2002年日本学術振興会海外特別研究員兼務(オーストリア・ウィーン工科大学光学研究科)。2004年ドイツ・マックスプランク量子光学研究所客員研究員。2006年独立行政法人理化学研究所研究員。2010年分子科学研究所准教授を経て, 2019年より現職。



### 加藤政博

広島大学放射光科学研究センター 教授  
自然科学研究機構分子科学研究所 特任教授  
E-mail: mkatoh@hiroshima-u.ac.jp  
専門: 加速器・ビーム物理学

#### 【略歴】

1986年東京大学大学院中退。博士(理学)。1986年高エネルギー物理学研究所助手。2000年岡崎国立共同研究機構分子科学研究所助教授。2004年同教授。2020年より現職。

# Observation of temporal structure of synchrotron radiation wave packet from a tandem undulator

**Masahito HOSAKA** University of Science and Technology of China, No.96, JinZhai Road Baohe District, Hefei, Anhui 230026, P.R.China  
Synchrotron Radiation Research Center, Nagoya University, Nagoya, 464-8603

**Tatsuo KANEYASU** SAGA Light Source, Tosu 841-0005, Japan  
Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan

**Takao FUJI** Laser Science Laboratory, Toyota Technological Institute, Nagoya 468-8511, Japan

**Masahiro KATOH** Hiroshima Synchrotron Radiation Center, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima 739-0046, Japan  
Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan

**Abstract** We report a study to observe the temporal structure of synchrotron radiation wave packets generated from a tandem undulator. First order autocorrelation measurement using a Mach-Zehnder interferometer, spectral measurement using a spectrometer, and quantum interferometry confirm that the radiation from the tandem undulator is a double pulse wave packet that can be tuned with attosecond precision. We have also studied the electric field of undulator radiation, and succeeded in retrieving the electric field structure of undulator radiation by the Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction (SPIDER) method, which is used for ultrashort laser pulses.