

パルスラジオリシスシステム改善のためのフェムト秒ファイバレーザの開発 IMPROVEMENT PULSERADYOLYSIS SYSTEM BY INTRODUCING FEMTOSECOND PULSED LASER

添田雄史^{#,A)}, 伊藤孔明^{A)}, 斎藤悠太郎^{A)}, 保坂勇志^{A)}, 坂上和之^{B)}, 鷲尾方一^{A)}
Yushi Soeta^{#,A)}, Yoshiaki Ito^{A)}, Yutaro Saito^{A)}, Yuji Hosaka^{A)}, Kazuyuki Sakaue^{A)}, Masakazu Washio^{A)}

^{A)} Waseda Research Institute for Science and Engineering, Waseda University

^{B)} Waseda Institute for Advanced Study, Waseda, Waseda University

Abstract

At Waseda University, we have been developing a pulse radiolysis system in order to clarify the early chemical reactions by ionizing radiation. In pulse radiolysis system, the electron pulse pumps a radiation reaction and resulting species are probed by the broadband pulsed laser. For probe light, we have researched Super Continuum (SC) light which is broadband pulse laser. The spectrum of SC light is broadened by nonlinear optical effect in the photonic crystal fiber. In order to broaden the spectrum, we construct femtosecond fiber laser which is expected to be high peak intensity and induce strong nonlinear optical effect. In this conference, we introduce our Yb fiber laser system as a new probe light for pulse radiolysis, recent progress of SC light generation and future prospective.

1. はじめに

今日、加速器などによる放射線化学反応は様々な分野へと応用されている。とりわけ、我々の生活に密接に関わっている半導体に関しては、その製作プロセスに必要な露光光源が近年さらなる微細化のために、可視光から紫外光や電子線などに変わっている。故に露光プロセスにおいては従来まで考えられていた「光化学反応」から「放射線化学反応」が支配的に起こるようになり、より良い半導体を作るために放射線化学反応のより良い理解と制御が必要になった。放射線化学反応ではその初期過程において生成されたエネルギー状態の高い中間活性種を起点に反応が進むので、これらの中間活性種の挙動を理解することで放射線化学反応の全体の理解へとつながる。

そこで、早稲田大学では放射線化学反応初期過程解明のために、我々の所有している S バンド RF 電子銃により、パルスラジオリシス実験を行うべく、そのシステムを構築してきた。パルスラジオリシスでは、高エネルギーの電子線を試料に照射し、それによって生じる中間活性種の光吸収を測定することで、中間活性種の挙動を解析することができる。我々はこれまでにナノ秒やピコ秒といった非常に早い時間分解能を持つパルスラジオリシスシステムを構築した^[1]。とりわけピコ秒オーダーで減衰する中間活性種の光吸収を直接観測するにはストロボスコピック法と呼ばれる手法を用いる必要がある。これは電子ビームに同期した極短パルスレーザを delay

line などにより光学遅延を与えて試料に照射するといった手法であり、これによりピコ秒やフェムト秒オーダーの分解能を持ったパルスラジオリシスシステムを構築できる。この手法では原理的に広帯域な極短パルスレーザが必要であり、我々はこの光源としてパルスレーザを非線形光学効果によって広帯域化した Super Continuum 光に関する研究を行ってきた。

本講演では、パルスラジオリシスにおけるプローブ光に用いるべく新たに導入したフェムト秒ファイバレーザとその増幅システム、並びにこれを用いた現状のパルスラジオリシスシステムに関する評価と今後の展望について報告する。

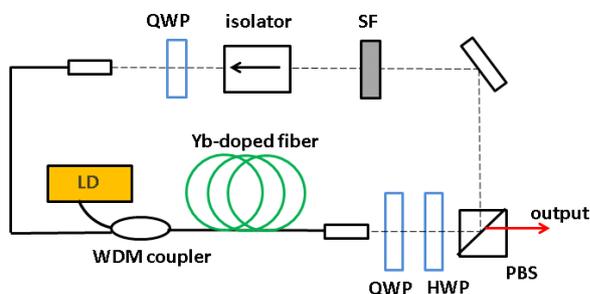
2. フェムト秒 Yb ファイバレーザ

新たに導入するプローブ光源の Seed 部分にはコンパクトで高安定な Yb ファイバレーザを選んだ。こちらは、利得媒質である Yb³⁺ が広い誘導放出スペクトルを持っているためフェムト秒のパルスが生成可能となる。以下の figure 1 に我々の構築した Yb ファイバレーザの概略図を示す。

モードロック発振を行う方法としては NLPR(Non-Linear Polarization Rotation)法を用いた^[2]。また、ファイバ内の分散によるパルス幅の広がりには figure 1 にある 2nm バンド幅の狭帯域フィルタによって抑制されている。しかし、出力部分では正の分散を受けて線形にチャープされたパルスが得られるため、フーリエ限界程度のパルス幅を得るためには外部で回折格子対やブリズム対を用いて圧縮を行う必要がある。回折格子対によるパルス圧縮前後のパルス幅

[#] ysoe.tennis.000@fuji.waseda.jp

や出力などの性能を Table 1 に示す。



SF : Spectrum filter
QWP : Quarter-Wave Plate
HWP : Half-Wave Plate

Figure 1: The schematic of Yb fiber laser.

Table 1: The performance of Yb fiber laser

パルス幅	1.37psec(圧縮前)
	188fsec(圧縮後)
中心波長	1020~1026nm
スペクトル幅 (FWHM)	17.4nm
平均出力	41mW
繰り返し周波数	43.4MHz
パルスエネルギー	0.95nJ
ピーク出力	0.69kW(圧縮前)
	5.03kW(圧縮後)

中心波長は狭帯域フィルタの角度を変えることによって上記の範囲でチューニング可能となっている。また、スペクトル幅から算出したフーリエ限界パルス幅は 86fsec と算出された。得られたパルス幅はこの 2 倍程度広がっているため、cavity 内に回折格子対では補償できない高次の分散が存在していると考えられる。

3. Chirped Pulse Amplification(CPA)の構築

フェムト秒のパルスを増幅する際には、ピーク強度が非常に高いことから、増幅器内で非線形光学効果によるスペクトルやパルス波形の変化が顕著になる。これを抑制するために我々は Chirped Pulse Amplification(CPA)という手法により増幅を行った。CPA では figure 2 のように pulse stretcher によりパルスを引き伸ばし、ピーク強度を抑えて増幅を行うことで非線形光学効果を抑制している。その後空間部分で回折格子対によってパルス圧縮を行い高出力のフェムト秒パルスを生成している。Table 2 に我々が構築した CPA の各装置通過後の出力とパルス幅を示す。

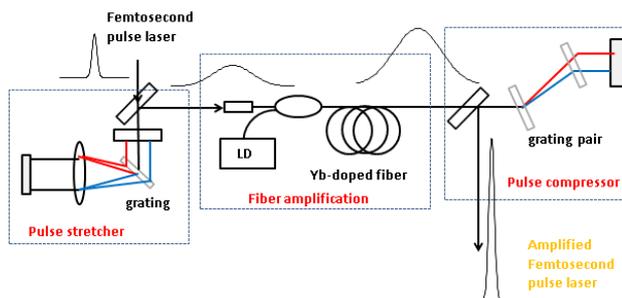


Figure 2: The schematic of Chirped Pulse Amplification.

Table 2: The performance of Chirped Pulse Amplification

	Seed	Pulse Stretcher	Fiber Amplification	Pulse compressor
出力	41mW	31mW	208mW	184mW
パルス幅 (FWHM)	1.37psec	44.4psec	45.8psec	298fsec

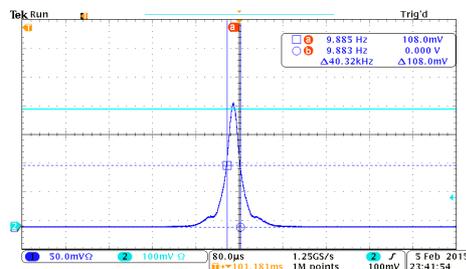


Figure 3: Pulse form after Chirped Pulse Amplification measured by autocorrelation.

この結果より増幅器を通過後フーリエ限界に近いフェムト秒オーダーのパルス幅まで圧縮されることを確認した。増幅器前後でスペクトルの形状が変わっていなかったことから十分非線形光学効果を抑制できたことが確認できた。

しかし、Pulse stretcher 後のレーザープロファイルが悪く、ファイバ増幅器へのカップリングが悪かったため、出力が低下してしまった。これを改善するために、新たに 6m の Fiber stretcher を用いて実験を行った。その結果 fiber stretcher とファイバ増幅器内の分散によって 5.82psec まで引き伸ばされることを確認した。その後増幅試験を行ったところ CPA 後の出力が 230mW と先ほどより増加したが、パルス幅は 744fsec と広がってしまった。これは stretcher により十分なピーク強度の抑制ができず、非線形光学効果が顕著に現れたためだと考えられる。実際に増幅器前後でスペクトルを測定したところ顕著な変化が確認された。しかし、後述する SC 光生成時のスペクトルの広がりはこちらの stretcher を用いても大きな違いはなかったため、パルスラジオリシスに用いる際には出力の勝る fiber stretcher を導入した

CPA を用いた。

4. Super Continuum 光(SC 光)生成

前章 CPA によって高出力のフェムト秒パルスが得られることがわかった。そこで、パルスラジオリシスにおけるプローブ光として用いるためにこれを Photonic Crystal Fiber(PCF)[1]に入射し、非線形光学効果による広帯域化を行い、SC 光を生成した。得られた SC 光の出力は 45mW であり、スペクトルは figure 4 に示す。

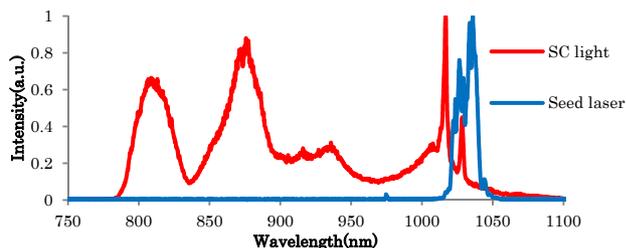


Figure 4: The measured spectrum of Seed laser (Blue line) and SC light (Red line).

本実験の際にはパルスあたりのエネルギーを高めるため繰り返し周波数を 25MHz に下げて実験を行っている。図を見てわかるように PCF 内における非線形光学効果により 1030nm のレーザが短波長領域においては約 800nm 程度まで広帯域化した。今後は、後述するピコ秒パルスラジオリシスへの応用やシステムの改善と評価のために SC 光の更なる高出力化、広帯域化やパルス幅測定を行う予定である。

5. パルスラジオリシス実験

以上で我々が構築した Yb ファイバレーザによって広帯域な極短パルスレーザを生成出来ることを確認したため、実際にパルスラジオリシス実験をすることによりプローブ光としての評価を行った。試料としては超純水を用いて、その中で生じる水和電子による光吸収を 850nm 付近で確認した。全体のパルスラジオリシスシステムの概略図を figure 5 に示す。

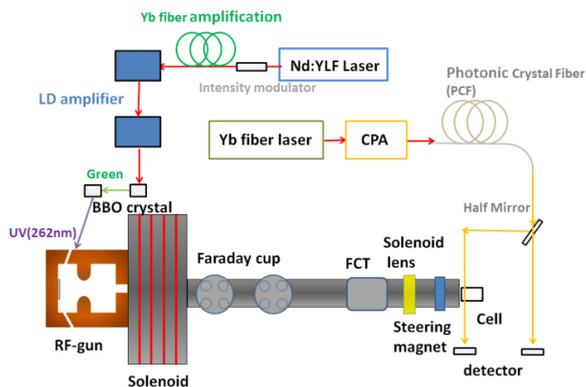


Figure 5: The schematic of our pulse radiolysis system.

パルスラジオリシスにおいては光吸収が電子ビームによって生じる中間活性種の濃度に比例するため、

できるだけ電子ビームを試料に収束して照射する必要がある。そのため我々はソレノイドレンズを用いて、電子ビームの収束を行った。本実験における電子ビームのパラメータを以下の Table 3 に示す。

Table 3: The parameter of electron beam

電荷量	約 2.8nC/pulse
エネルギー	4~5MeV
運転周波数	5Hz
パルス数	5pulse

本実験では Signal を確保するために 5pulse の電子ビームを使用した。これによって得られた水和電子の 850nm における光吸収の時間応答を以下の Figure 6 に示す。

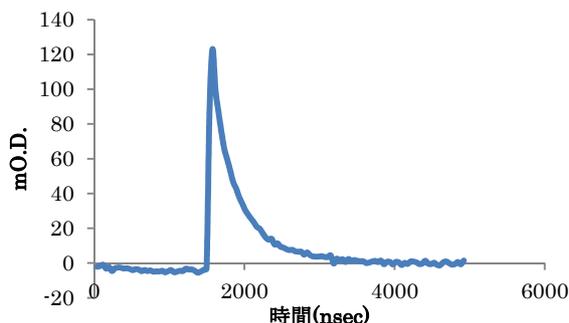


Figure 6: Optical density of hydrated electron at 850nm.

得られたデータから O.D.値の時間応答から減衰時間が約 240nsec 程度であることがわかった。理想的な水和電子の減衰時間は約 1μsec 程度だがこれはデータ取得前に電子線を照射しすぎたことによる試料の劣化と考えられる。今後は低電荷量でも検出できるように電子ビームの収束系や SC 光由来の Noise の改善に努める必要がある。

6. まとめと今後

本実験により我々の構築したフェムト秒レーザによって得られる SC 光がパルスラジオリシス実験におけるプローブ光として有用であるということが確かめられた。今後は CPA によるさらなる増幅により、SC 光のスペクトルの短波長側への拡張を試みると共に、Yb ファイバレーザと電子ビームを同期させるための feedback system を導入し、ピコ秒パルスラジオリシスシステムを構築することを予定している。

参考文献

- [1] Y. Hosaka et al., "Construction of nanosecond and picosecond pulse radiolysis system with super continuum probe", Proceedings of the Ninth Meeting of the Ionizing Radiation and Polymers Symposium, March 2013.
- [2] R. Suzuki et al, "NLPR 法を用いたモード同期 Yb ファ

イバレーザ-の開発”, Proceedings of the 11th Annual meeting of Particle Accelerator Society of Japan August 9-11, 2014, Aomori, Japan.