

パルスラジオリシスシステム高度化へ向けたスーパーコンティニューム光源開発

SUPERCONTINUUM GENERATION FOR THE IMPROVEMENT OF PULSE RADIOLYSIS SYSTEM

佐藤未宇^{#, A)}, 金子悠隆^{A)}, 小柴裕也^{A)}, 坂上和之^{A, B)}, 鷺尾方一^{A)}

Miu Sato^{#, A)}, Yutaka Kaneko^{A)}, Yuya Koshiba^{A)}, Kazuyuki Sakaue^{A, B)}, Masakazu Washio^{A)}

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

^{B)} Photon Science Center of the University of Tokyo

Abstract

Pulse radiolysis is one of the methods for investigating the fundamental process of radiation-induced chemical reactions, and we have been continuously developed the pulse radiolysis system based on a photo-cathode rf electron gun. Since reactive species arise and decay in pico or nano second time scale, such a pulse duration is required for the analytical light. Besides, by using an analytical light with a wide wavelength spectrum, we can detect various active species. It is desirable that the analytical light covers the visible wavelength band because absorption caused by reactive species mainly exist in the visible wavelength region. We considered that the supercontinuum light generated from the second harmonic of an erbium fiber laser is suitable for the pulseradiolysis analytical light. In this study, we developed a laser system for generating supercontinuum light with a broad spectrum in the visible region. In this paper, we report the present status of our laser system and future prospects.

1. はじめに

早稲田大学鷺尾研究室では、レーザーフォトカソード高周波電子銃をベースとしたパルスラジオリシスシステムの高度化を継続的に行っている。パルスラジオリシスは、物質に電離放射線を照射した際に誘起される化学反応の最初期過程を対象とした吸光測定法である。物質が電離放射線照射を受けると、励起状態原子、イオン、ラジカルといった反応性に富む活性種が生成する。このような反応活性種はそれぞれの生成、減衰の時間スケールにおける吸光度により特徴づけられる。パルスラジオリシスでは、電離放射線を物質に照射すると同時に分析光を透過させ、極短時間の間に生成消滅する反応活性種による吸光度変化を測定する。パルスラジオリシスの概念図を Fig. 1 に示す。

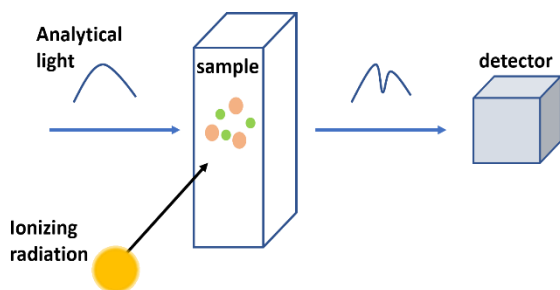


Figure 1: Schematic of pulse radiolysis system.

反応活性種の生成、減衰はナノ秒以下の時間スケールで起こるため、分析光源にもそれと同程度の短パルス性が求められる。また、吸光度変化を測定するため、光強度が高いことも要求される。さらに、パルスラジオリシスにおいて測定対象となる反応活性種の吸収波長は可視光領域にあることが多く、可視光帯をカバーできる光源が

望ましい。Xe フラッシュランプは以上の条件を満たす光源であるが、発光間隔の限界からナノ秒以上の時間分解能を得ることができない。より高時間分解能を有する光源としてフェムト秒レーザーから生成する Supercontinuum 光(SC 光)がパルスラジオリシスの分析光源として優れていると考え、本研究では可視光 SC 光生成へ向けたレーザー系の構築を行った。

2. SC 光の生成方法

SC 光は Photonic Crystal Fiber(PCF)と呼ばれる特殊なファイバーにピーク強度の高いレーザーパルスを入射することで、自己位相変調や四光波混合、誘導ラマン散乱といった種々の非線形光学効果により入射波長を中心として波長が広帯域化することで生成される。PCF は通常のファイバーとは異なり、コア外部のクラッド部分にエアホールが規則正しく配列されている。この構造によって高い光閉じ込め効率を実現し、PCF 内の非線形性が高くなるため効果的に波長広帯域化が起こる。本研究で用いる PCF の断面図を Fig. 2 に示す。

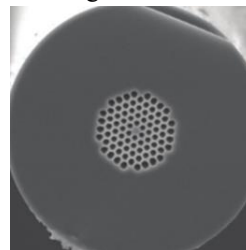


Figure 2: Picture of cross section of PCF [1].

本研究で用いる PCF は iXblue 社の IXF-SUP-2-135-760 であり、諸パラメータを Table 1 に示す。

[#] no151-terrahe@asagi.waseda.jp

Table 1: Parameters of the PCF

Core Diameter	1.71 [μm]
Cladding Diameter	135 [μm]
Length	3 [m]
Zero Dispersion Wavelength	772 [nm]
Nonlinear Coefficient	105 ± 10 [$\text{W}^{-1}\text{km}^{-1}$]

本研究では可視光スペクトルを有する SC 光を目的とするため、PCF に入射するレーザーの波長が可視光であることが望ましい。したがって本レーザー系では、発振波長 1550nm の Erbium Fiber Laser の二次高調波 (775nm) を生成し、それを PCF へ入射することで可視光 SC 光を得る。PCF に入射するレーザーのピーク強度が 10kW 以上であれば十分に広帯域な SC 生成が期待でき[2]、本研究ではその程度のピーク強度を有する二次高調波を生成できるようにレーザーシステムを構築した。

3. SC 光生成へ向けたレーザーシステム

3.1 レーザーシステムの概観

本研究で構築したレーザーシステムの概観図を Fig. 3 に示す。

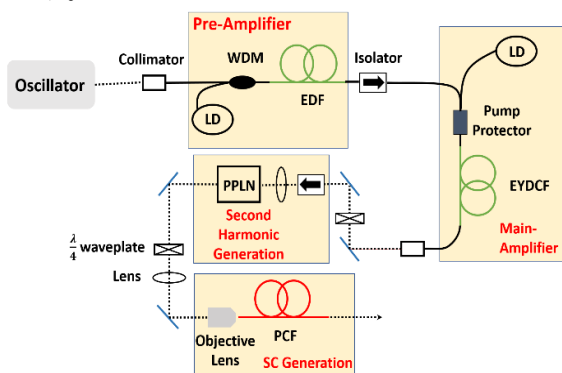


Figure 3: Schematic of our laser system.

発振器では Erbium-doped Fiber(EDF)を利得媒質として 1550nm の短パルスレーザーを発振する。発振器の出力が不十分なため二段階の増幅により出力を増幅する。一段目の前置増幅器では EDF を利得媒質として使い、二段目の主増幅器ではより強力な励起光を導入でき、大幅な増幅が可能な Erbium-Ytterbium 共添加ダブルクラッドファイバー(EYDCF)を利得媒質として用いている。その後、波長変換デバイスとして Periodically Poled Lithium Niobate(PPLN)を用いることで 1550nm のレーザー光の二次高調波を生成し、それを PCF に入射し SC 光を生成する。現状では PCF 入射が最適化されておらず SC 光は得られていない。

3.2 発振器

Figure 4 に発振器の概観図を示す。

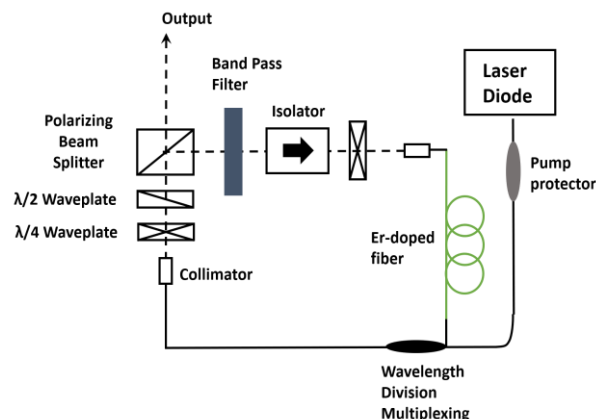


Figure 4: Schematic of the oscillator.

発振器で用いている EDF は Liekki Er 110-4/125 であり、ファイバー長は 45cm である。波長 980nm, 励起出力 400mW の励起光を導入し、1550nm の短パルスレーザーを発振させている。Table 2 に発振器の性能を示す。

Table 2: Performance of the Oscillator

Repetition Frequency	52.8 [MHz]
Average Power	52.0 [mW]
Pulse Width	865 [fs]
Peak Power	1.14 [kW]

3.3 増幅部

前置増幅器で用いている EDF は発振器と同じもので、長さ 85cm である。波長 980nm, 光強度 137mW の励起光を導入しており、前置増幅器直後の出力は 49.0mW である。発振器直後の出力と比べると出力は増大していないが、コリメータ入射の際の損失を補う目的で前置増幅器を設けている。その後、主増幅器で出力を大幅に増幅する。主増幅器後のレーザーパラメータを Table 3 に示す。

Table 3: Laser Performance after the Main-Amplifier

Average Power	647 [mW]
Pulse Width	158 [fs]
Peak Power	77.7 [kW]

主増幅器で用いている EYDCF は、CorActive 社の DCF-EY6/128 であり、長さは 4m である。励起光は波長 980nm, 光強度 2.47W である。また、EYDCF の群速度分散の値が負(-10ps/nm/km)であるため、メインアンプを通過することでパルス幅が圧縮され、出力増幅と相まってピーク強度の高いレーザーが得られる。

3.4 二次高調波生成

高強度に増幅された 1550nm のレーザー光を PPLN に入射し、二次高調波を生成する。得られた二次高調波

の波長スペクトルを Fig. 5 に示す。また、二次高調波の諸パラメータを Table 4 に示す。

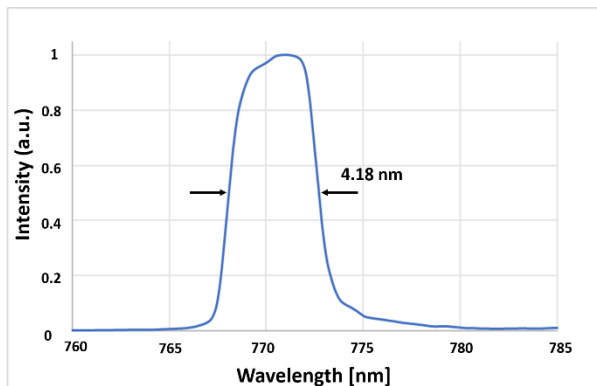


Figure 5: Spectrum of second harmonic.

Table 4: Parameters of the Second Harmonic

Average Power	247 [mW]
Spectral Width	4.18 [nm]
Fourier Limit Pulse Duration	378 [fs]

フーリエ限界パルス幅をもとに算出されるピーク強度は 12.4kW であり、目標のピーク強度が達成されたと考えられる。

4 SC シミュレーション

得られた二次高調波によってどのような SC 光が生成するかシミュレーションを行なった。シミュレーションは PCF 中のレーザーの伝搬を表す非線形シュレディンガー方程式を数値的に解くことで行っている。以下に非線形シュレディンガー方程式を示す[3]。

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{\alpha}{2}A - \sum_{k \geq 2} \frac{i^{k+1}}{k!} \beta_k \frac{\partial^k A}{\partial t^k} = i\gamma \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t}\right) (A(z,t) \int_{-\infty}^{\infty} R(t') |A(z,t-t')|^2 dt') \quad (1)$$

非線形シュレディンガー方程式は中心周波数 ω_0 のパルス電場の包絡線 $A(z,t)$ に関する伝搬距離と時間の偏微分方程式である。式(1)右辺の $R(t)$ が PCF における非線形応答を表している。 $R(t)$ の設定は[4]によった。 α はファイバーの減衰係数、 β は伝搬係数、 γ は非線形屈折率 $n_2(\omega)$ と実効モード面積 $A_{eff}(\omega)$ を用いて以下で定義される非線形係数である。

$$\gamma = \frac{\omega_0 n_2(\omega_0)}{c A_{eff}(\omega_0)} \quad (2)$$

シミュレーションコードは[5]にオープンコードとして公開されているものを利用した。入射光のピーク強度が高いほど波長スペクトルは広帯域化するが、ピーク強度を大きく設定してしまうと計算が止まってしまうため、実際の値よりも小さく設定する必要がある。したがって、シミュレーションにおける入射光のピーク強度は 2kW とし、それ以外のパラメータは本系に即した値を用いてシミュ

レーション計算を行なった。得られた SC 光のスペクトルを Fig. 6 に示す。

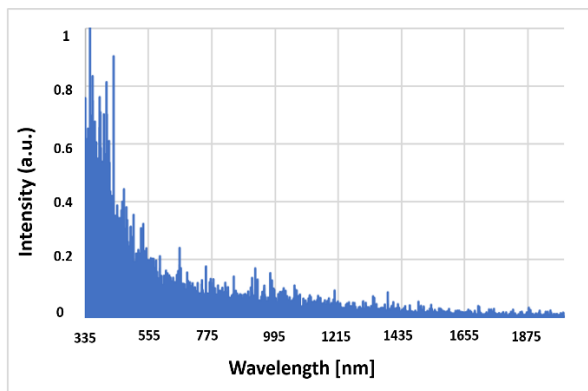


Figure 6: Result of the simulation.

Figure 6 を見ると短波長側、長波長側ともに波長が広帯域化されるとわかる。特に強度は可視光側で高くなっている。実際の二次高調波のピーク強度はシミュレーションで設定した値よりも高いため、本研究で構築したレーザー系によって目的の可視光領域をカバーする SC 光の生成が可能であると見込まれる。

5. まとめと今後

本研究ではパルスラジオリシスの分析光源としての SC 光を生成すべく、それに向けたレーザー系を構築した。発振波長 1550nm の Erbium Fiber Laser の二次高調波を生成し、それをシード光として PCF に入射し SC 光を得る。現状では PCF 入射が最適化されておらず SC 光は生成していないものの、シミュレーションによる予測から、広帯域な SC 光を生成するに足る、十分なピーク強度を有する二次高調波が得られている。今後は PCF 入射の最適化を行ない、SC 光を生成する。そして得られた SC 光のパラメータを測定、評価し、それを用いたパルスラジオリシス実験を行なう。

参考文献

- [1] <https://www.photonics-bretagne.com/wp-content/uploads/2019/09/SUPPCPF-Combined-Spec-Sheet-032019.pdf>
- [2] N. Nishizawa *et al.*, "Generation of 0.45-1.38 μ m visible to near-infrared widely broadened supercontinuum using Er-doped ultrashort-pulse fiber laser system", *Opt. Soc. Am. B.*, Vol. 26, No. 3, March 2009, pp. 426-431.
- [3] J.M. Dudley *et al.*, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber", *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 78, October 2006, pp. 1135-1184.
- [4] A.A. Rieznik *et al.*, "Optimum Integration Procedures for Supercontinuum Simulation", *IEEE Photonics Journal*, Vol. 4, No. 2, April 2012, pp. 552-560.
- [5] <http://www.freeopticsproject.org/Downloads.html>