

分光便利帳

光電子増倍管での2光子吸収過程を用いた フェムト秒光パルスの自己相関測定

筑波大学物理工学系 服部利明

10フェムト秒程度の超短光パルスの時間幅やパルス波形を測定するためには、非線形光学効果をうまく使い、かつ十分に高い時間分解能を持った測定法が必要である。ここでは、非常に高感度でありかつ比較的簡便な方法として、光電子増倍管における2光子過程を用いた自己相関測定について述べる。

最近の固体レーザー技術の発達によって、フェムト秒レーザーパルスの応用範囲の裾野が大いに広がってきている。どの方面に応用するにしろ、パルスの時間幅や波形といった光パルスの基本的な特性は、きちんと測定しておく必要がある。フェムト秒のパルス波形を直接測定できる装置は、今のところ存在しないので（最も速いストリーク・カメラでも、時間分解能は数百フェムト秒である。）、何らかの非線形な過程を利用して、いわゆる相関測定を行うことになる。すなわち、パルス同士を時間をずらしながら重ね合わせて、どのくらい時間パルス同士の重なりが残っているかを測定することにより、パルス幅やパルス波形を知るのである。

相関法によるパルス幅測定法のうち、従来、最もよく用いられて来たのは、非線形光学結晶における第2高調波発生（SHG）を用いた強度相関測定によるものである。この方法では、KDP（ KH_2PO_4 ）やBBO（ $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ）などの非線形結晶に、二つに分けた後可変遅延を付けた二つのフェムト秒パルスを重ねて集光し、そこから発生するSHGの強度を遅延時間の関数として観測するものである。二つのパルスを重ねる方法として、非同軸法と同軸法がある。数十フェムト秒より長いパルスの測定では、主に、別々の方向からきた二つのビームを、レンズによって集光し、その集光点のみ二つのビームが重なる方法（非同軸法）がとられる。この場合、二つのビームの中間に出現するSHGの強度を測定することにより、強度相関：

$$\int I(t)I(t-\tau)dt \quad (1)$$

が測定できる。ここで、 $I(t)$ は、パルスの強度波形、 τ は、遅延時間である。

20フェムト秒程度より短いパルスでは、非同軸に重ね合わされた二つのビームの間の遅延時間が、ビームの中の位置によって異なることが無視できなくなる。その結果、ビームスプリッターを用いて二つのビームを再び一つに重

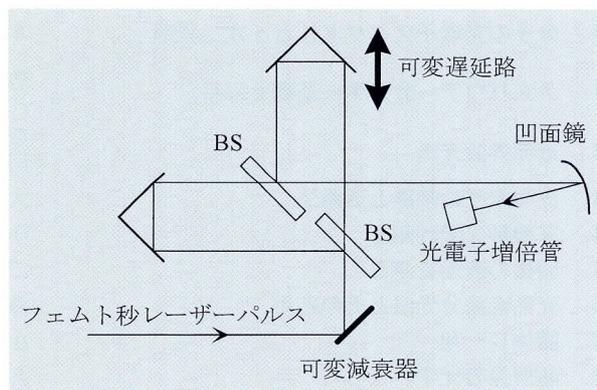


図1 実験配置図。BS：ビームスプリッター。

ね合わせたのち、非線形結晶に集光する方法（同軸法）が取られる。また、非線形結晶は、非常に薄い（数十 μm 程度）ものを用いて、結晶中を伝搬する途中で群速度分散によりパルスが広がるのを防ぐ。この場合、測定されるSHG強度は、

$$\int |E(t) + E(t+\tau)|^4 dt \quad (2)$$

のようになる。ただし、 $E(t)$ は、光の電場振幅である。ここには、片方のパルスだけから発生するSHGや、いくつかのクロス・タームが入り込んでおり、単純な強度相関ではないが、便宜上これも強度相関と呼ばれることが多い。

さて、上の式は、要するに重ねあわされたビームの光強度の自乗を時間積分したものに過ぎないので、何らかの方法で光強度の自乗に比例する信号が得られれば、この目的のためには十分であることがわかる。そのような方法として、フォトダイオードにおける2光子吸収を用いた例が既に報告されていたが、我々は、きわめて高感度な光検出器である光電子増倍管（PMT）における2光子吸収に由来する光電子放出過程を用いて、高感度な自己相関測定が可能であることを見出した¹⁾。

実験配置は、図1のようなものを用いる。レーザーは、自作のモード同期チタン・サファイア・レーザーで、中心波長800 nm、パルス幅16 fsの光を発生する。用いたPMTは、浜松ホトニクス社の1P28で、この波長では感度がなく、これより短波長に感度を有するものである。同軸に重ねた光を、凹面鏡を用いてPMTの光電面上に集光する。強い光を入射すると光電面が破壊されてしまうこともあるPMTであるが、実は、光電子放出に必要なだけの光子エネルギー以下の光では、簡単には破壊は起きず、集光することにより、入射光強度の2乗に比例して光電流が生じる。すなわち、2光子吸収過程により、光電流が生じていることが分かる。結果として得られた強度相関波形は、図2のようになり、ほぼ理想的な波形が得られた。PMTは、きわめて感度の高い光検出器であるので、この方法を用いれば、フォトダイオードなどを用いるのと比べ

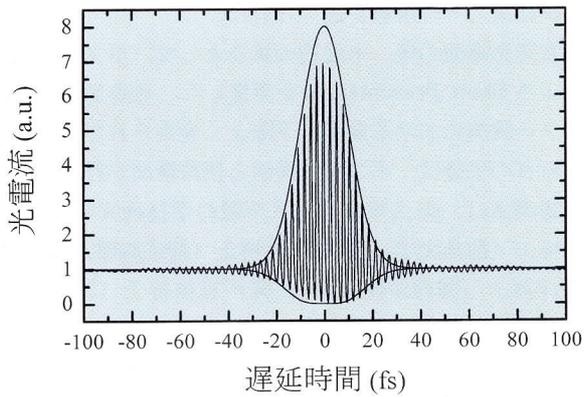


図2 光電子増倍管 1P28を用いて測定した、16フェムト秒の光パルスの自己相関波形。16フェムト秒のガウス型パルスに対する理論曲線の包絡線とよく一致していることが分かる。

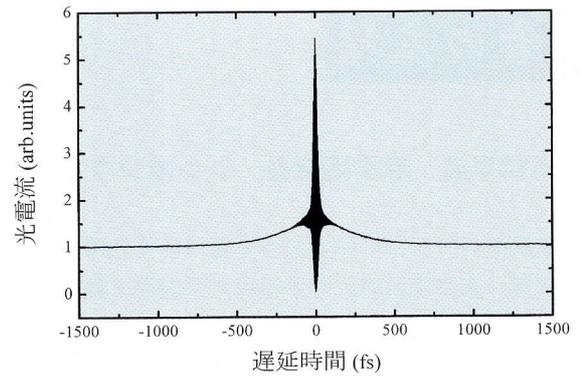


図3 光電子増倍管 R2557を用いて同様に測定した、光電流の遅延時間依存性。

て、はるかに弱い光でも自己相関測定が行える。

面白いことに、1P28とほぼ同じ分光感度を持つ別のPMT (R2557) を用いて同じ測定を行うと、図3のように、長く(時定数270 fs)裾を引く曲線が得られた²⁾。これは、光電流に寄与する2光子吸収過程が、2段階で起こっており、中間状態の寿命が270フェムト秒であることを意味している。この中間状態は、1光子に対する応答では

見えないので、光電材料の電子親和力より低いエネルギーを持つものである。それが非線形光学過程によって初めて観測にかかったのである。

参考文献

- 1) T. Hattori, Y. Kawashima, M. Daikoku, H. Inouye, and H. Nakatsuka: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L809 (2000).
- 2) T. Hattori, Y. Kawashima, M. Daikoku, H. Inouye, and H. Nakatsuka: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 4793 (2000).