

気体を用いたチャープパルス上方変換による中赤外ポンプ・プローブ分光

Ultrabroadband mid-infrared pump-probe spectroscopy by using chirped-pulse upconversion technique with a gas

○ 白井英登¹、葉恬恬²、野村雄高¹、羅志偉²、藤貴夫¹ (1. 分子研、2. 台湾交通大)

○ Hideto Shirai¹, Tien-Tien Yeh², Yutaka Nomura¹, Chih-Wei Luo², Takao Fuji¹

(1. Institute Molecular Science, 2. National Chiao Tung Uni.)

E-mail: shirai@ims.ac.jp

分子の大きく異なるエネルギー間の相関や、半導体に生成されるキャリアなどにおけるダイナミクスの詳細を調べるためには、広帯域な中赤外領域でのポンプ・プローブ分光が有用である。最近、分子研の藤らは気体を非線形媒質としたチャープパルス上方変換を用いて、200–5000 cm^{-1} のバンド幅を有する超広帯域中赤外光を単一ショットで計測することに成功した [1]。

本講演では、上記手法を組み合わせたポンプ・プローブ分光系を構築し、中赤外領域における Ge の反射率変化から、キャリアダイナミクスを評価したので、その結果を報告する。

光源はチタンサファイア増幅器 (30 fs, 800 nm, 1kHz, 0.85 mJ) であり、出力光を中赤外発生用の光、チャープパルス光およびポンプ光に分岐した。プローブ光である中赤外光 (7 fs, 200–5000 cm^{-1}) はフィラメンテーション法により発生させ [2]、Ge に集光した。チャープパルス光 (0.4 ps, 800 nm) は、増幅器からの出力光を 4 枚の BK7 (10 mm) と 1 枚の ZnSe (5 mm) にブリュースター角で透過させることによって得た。ポンプ光 (30 fs, 800 nm) は光学チョッパーを用いて 500 Hz に変調した。ポンプ光パルスで 1 パルスおきに遮ることにより、プローブ光のパルス列に対してポンプ光の照射と非照射が交互になるようさせ、ショット毎の反射率変化を測定できるようにした。試料を反射した中赤外光パルスとチャープパルス光は、軸外し放物面鏡を用いて窒素中に集光させ、四光波混合過程にて中赤外光を可視光へと変換した。検出には可視光用の分散型分光器と EMCCD を用いた。得られた四光波信号は簡単な演算によって元の中赤外スペクトルへと再現させた [1]。

図 1(a) に Ge における中赤外領域の反射率の変化を示す。通常では計測の難しい 200–5000 cm^{-1} という帯域において、キャリアに起因した反射スペクトルの変化を明確に計測することに成功した。反射スペクトルからドルーデモデルを用いてキャリア濃度を求めることができる (図 1(b))。実線は拡散方程式を用いて求めた理論値であり、ドルーデモデルより求めた値と非常に良い一致を示した。

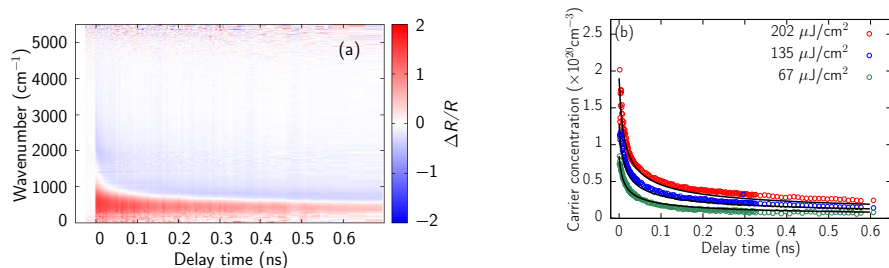


図 1: (a) Ge における中赤外領域の反射率変化 (b) ドルーデモデルより求めたキャリア濃度。実線は拡散方程式により求めた理論値。

[1] Y. Nomura, et al. Opt. Express **21**, 18249(2013).

[2] Y. Nomura, et al. Opt. Express **20**, 24741(2012). T. Fuji and Y. Nomura, Appl. Sci. **3**, 122(2013).