

波長 2 μm 帯での二光子誘導放出観測に向けたモード同期レーザーの開発

戸倉川研究室 三井峻平

1. はじめに

二光子誘導放出はエネルギーギャップ未満の2光子を同時に誘導放出しながら下準位に遷移する過程である。また、二光子吸収が非線形な吸収作用を示すのに対して二光子誘導放出は非線形な増幅作用を示すことが予想されている[1]。本研究では二光子誘導放出のモード同期パルス発生に利用することを考えた。

モード同期は一般に強度変調を利用してパルスを発生させる。現在、モード同期発生機構に用いられる可飽和吸収効果は光強度に応じて吸収が少なくなる損失変調効果によって強度変調を得ている。これとは対照的に二光子誘導放出は光強度に応じて増幅率が大きくなる利得変調効果による強度変調が期待できる。つまり、新たなモード同期発生機構として二光子誘導放出が利用できると考えられる。これによって変調深度の任意制御など従来のモード同期発生機構では難しかった新たな光制御が可能だと期待している。本論文では二光子吸収断面積の測定とモード同期レーザー発振器内の高い光強度を利用した二光子誘導放出の観測実験の報告を行っている。

2. 原理

2.1 二光子吸収

二光子吸収は1929年にM. Göppertによる理論予測された[2]。その後、現在までに二光子顕微鏡を始めとして様々な応用がなされている。

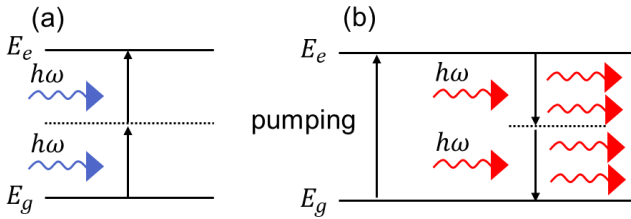


図 1. (a)二光子吸収と(b)二光子誘導放出の概念図

図 1.(a)が示すように二光子吸収はエネルギーギャップ未満の2つの光子を同時に吸収し、上準位へ遷移する過程のことである。二光子吸収の項が含まれた光の吸収は単位時間あたりに単位面積を通過する光子数 $F(\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1})$ で表すと媒質中の添加イオン量 N と反転分布量 ΔN を用いて

$$\frac{dF}{dz} = -(N - \Delta N)\sigma_{OPA}F - (N - \Delta N)\sigma_{TPA}F^2 + \dots \quad (2.1)$$

とべき展開で表される。ここで一光子吸収断面積 $\sigma_{OPA}(\text{cm}^2)$ 、二光子吸収断面積 $\sigma_{TPA}(\text{cm}^4 \text{ sec})$ である。典型的な希土類レーザー媒質において一光子吸収断面積は $10^{-20} \sim 10^{-22} \text{ cm}^2$ オーダーになる。その一方、希土類レー

ザー媒質の二光子吸収断面積の値はオーダー感の把握も難しい。これは簡便で高感度な非線形光学係数の測定手法であるZ-scan法の開発以前の1980年代の報告が多く、その測定値も”rough estimate”であるとされていたこと[3]。また、近年の希土類レーザーに多く用いられる一光子遷移は ff 遷移であるが、二光子吸収の測定では $f-d$ 遷移の測定が中心となっており遷移則が異なっていること。以上の二点から希土類レーザー媒質における二光子吸収断面積の値の概算が難しかった。

また、二光子吸収スペクトルについて一光子吸収スペクトルの二倍をそのまま適用できるわけではないことに注意したい。ラポルテの選択則より一光子吸収は上準位と下準位のパリティは異なる遷移が許容となる。しかし、二光子吸収の場合は中間準位が存在するためパリティは同じ場合に遷移が許される[4]。しかし、どちらの過程も同じ遷移双極子モーメントが関わってくるため遷移線のピーク位置は一致する[5]。参考までに有機材料ではあるが一光子吸収スペクトルと二光子吸収スペクトルの比較を図2に示す。

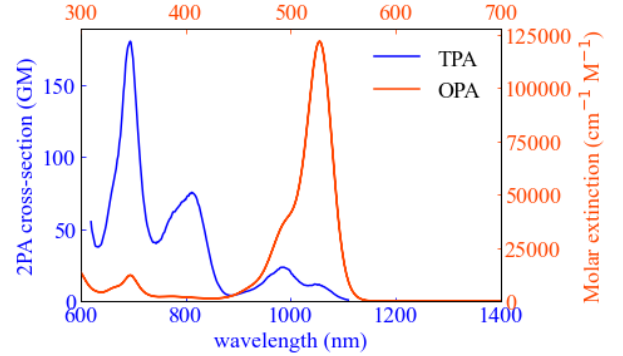


図 2. メタノール中のRhodamine 6Gの二光子吸収断面積 (TPA)と一光子吸収断面積(OPA)の比較[6]

2.2 二光子誘導放出

二光子誘導放出の先行研究例では1970年前後においてガス媒質中[7]で2008年には半導体および量子井戸レーザーで観測が報告されている[8]。また、固体レーザー媒質での二光子誘導放出の観測実験の構想自体は古くは1969年から行われており、色素レーザーの共同発明者であるP. P. Sorokinがフラッシュランプ励起QスイッチNd³⁺添加ガラスレーザーによる1.38 μm光を用いてRubyの0.69 μmの遷移を利用した二光子誘導放出を例として特許が認められている[9]。また、近年においては2009年にスーパーコンティニューム光源によって得られた2 μm光を用いたYb³⁺添加ファイバーの1 μmの遷移を利用した二光子誘導放出の観測を目指した研究例がある[10]。しかし、これらの研究グループからその後二光子誘導放出の観測の報告はされていない。この原因

として二光子誘導放出を観測ができるほどの光強度が入射されていないと考え、本研究では新たに実験系を構築し実験を行った。

図 1.(b)が示すように二光子誘導放出はエネルギーギャップ未満の2光子を同時に誘導放出され下準位に遷移する過程である。ここで、二光子誘導放出を含む光の増幅は単位時間あたりに単位面積を通過する光子数 F (photon $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) で表すと反転分布量 ΔN を用いて

$$\frac{dF}{dz} = \Delta N \sigma_{OPSE} F + \Delta N \sigma_{TPSE} F^2 + \dots \quad (2.2)$$

と表せる[1]。ここで一光子誘導放出断面積 $\sigma_{OPSE}(\text{cm}^2)$ 、二光子誘導放出断面積 $\sigma_{TPSE}(\text{cm}^4 \text{ sec})$ である。式(2.2)が示すように入射光子数 F に対して非線形に増幅作用を示すことがわかる。また、ファイバー媒質中での増幅モデルの計算もされているが[1]この増幅モデルの計算では二光子吸収断面積と二光子誘導放出断面積のオーダーが一致していると仮定し、計算が行われていた。その結果、観測に向けて MW~GW/ cm^2 程度の光強度が必要だと試算していた。しかし、前述の通り二光子吸収断面積の測定の報告は少なかった。そのため、この計算では二光子吸収断面積の値として多く観測されている有機材料の二光子吸収断面積の値($\sim 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ sec}$)を用いて計算が行われている。

2.3 モード同期レーザー

最近のレーザー技術の発達により、モード同期レーザー発振器からの出力でピコ秒(10^{-12} sec)からフェムト秒(10^{-15} sec)オーダーの超短パルス光が得られるようになった。とても短い時間領域に光を閉じ込められることから共振器外部において MW~GW/ cm^2 オーダーの高いピーク光強度を得ることができるようになった。また、モード同期法によるパルス発生は高いピーク光強度を得つつパルスエネルギーを抑えられる。これは材料の破壊を起こさずに非線形光学現象の観測が可能であるといった利点を有する。このような利点からモード同期レーザーは二光子吸収顕微鏡用の光源や非線形光学定数の測定用光源などとして注目を集めている[11]。

モード同期を発生させる素子としてリアル可飽和吸収体と疑似的可飽和吸収体が存在する[12]。前者のリアル可飽和吸収体は共振器に可飽和吸収効果を持つ光学素子であり、代表的な素子として半導体可飽和吸収鏡 (Semiconductor Saturable Absorber Mirror: SESAM) が存在する。SESAM は入射される光強度が低いときは吸収を示すが、光強度が高いときは吸収飽和を起こし吸収が小さくなる。この損失変調効果を利用してパルスを発生させる。

後者の疑似的可飽和吸収体は共振器中の媒質の非線形性を利用して共振器条件の変化を可飽和吸収体として用いる。疑似的可飽和吸収体を用いたモード同期法としてカーレンズモード同期 (Kerr-Lens Mode-locking:

KLM)がある。媒質に高い光強度の光が入射したときにその屈折率 n は光強度 I を用いて

$$n = n_0 + n_2 I \quad (2.3)$$

と表される。 n_0 は線形屈折率、 n_2 は非線形屈折率と呼ばれ、屈折率 n は光強度 I に比例して変化することがわかる。これを光カー効果という。高強度のガウシアンビームが入射する際にカー効果によってレンズ状の屈折率分布を持ち、これをカーレンズと呼ぶ。カーレンズを利用して光強度が高いときにレーザーのビーム径と励起光のビーム径を一致するように共振器を設計することで利得変調を得る。これをソフトアパーチャーKLM と呼び、その模式図を図 3 に示す。

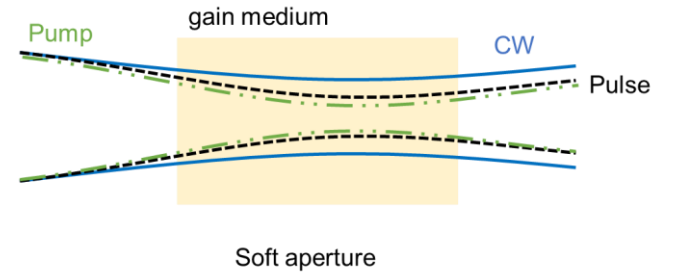


図 3. ソフトアパーチャーKLM の模式図

また、モード同期を得るためには可飽和吸収体において変調深度といったパラメータは重要な意味を持つ。これまでに紹介した可飽和吸収体の変調深度について述べる。リアル可飽和吸収体は材料に依存した物性を持っており、一般に変調深度は設計段階で決定される。一方、疑似的可飽和吸収体は共振器の設計によって変調深度を調整できるが、微小なアライメントの変化でモード同期が発生しなくなるため高度なアライメントの技術が要求される。

既存の可飽和吸収体に対して二光子誘導放出による利得変調はリアル可飽和吸収体と同様に実在の素子として二光子誘導放出媒質を共振器に挿入する。このとき二光子誘導放出媒質の反転分布量によって変調深度を任意制御することが可能となる。これによって高度なアライメント技術を要さず、変調深度を任意に制御可能な可飽和吸収体になりえると考えている。

変調深さの制御以外にも従来の可飽和吸収体では難しかった波長域での利用や高い破壊耐性など二光子誘導放出の疑似的可飽和吸収効果には興味深い応用が考えられる。

2.4 レーザー媒質と二光子誘導放出媒質

二光子誘導放出の観測実験に向けて利得媒質の選択を行った。二光子誘導放出を発生させる媒質としてエネルギー準位が 2 準位しか存在しない Yb^{3+} イオンに着目した。また、 Yb^{3+} イオンの遷移波長は $1 \mu\text{m}$ 帯に存在する。このことから Yb^{3+} イオンによる二光子遷移波長は 1

μm の2 倍の $2\mu\text{m}$ 帯となる。ここで $2\mu\text{m}$ 帯レーザー光源として Tm^{3+} イオンに注目した。これらの利得媒質について Yb^{3+} イオンの蛍光スペクトルの2 倍と Tm^{3+} イオンの蛍光スペクトルのピーク位置が一致するように母材を選択した。その結果、 Yb^{3+} の母材は Sc_2O_3 、 Tm^{3+} の母材は Lu_2O_3 となった。これらのピーク位置の関係について図4に示す。

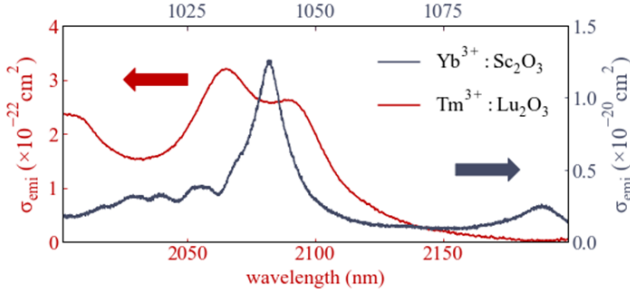


図4. $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ と $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の誘導放出断面積

3. $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の二光子吸収断面積の測定

先行研究では二光子誘導放出断面積は二光子吸収断面積と同じオーダーである仮定し、計算が行われていた[1]。これに基づいて、二光子吸収断面積の測定を行うことで二光子誘導放出の観測に向けて必要な光強度の試算を目的として実験を行った。

3.1 実験構成

二光子吸収の測定では Open aperture Z-scan 法を用いた。この手法は集光させたガウシアンビームのレーザー進行方向のビーム径の変化を利用して、試料の二光子吸収係数の測定などを行う。その実験構成を図5に示す。

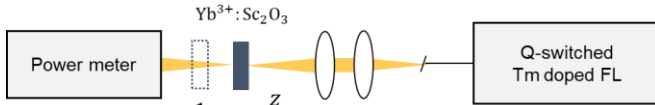


図5. Open aperture Z-scan 法による二光子吸収断面積の測定

今回の測定では二光子誘導放出媒質として用いる $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ (結晶長 3 mm, 添加濃度 2.5 at.%) の二光子吸収断面積の測定を行なった。一般に二光子吸収断面積の測定において薄い試料(レイリー長より十分に短い)が用いられる。これは厚い試料で測定を行なうと光カー効果などの他の非線形光学現象の影響が無視できなくなってくるためである。しかし、厚い試料による測定は二光子吸収断面積の低い媒質などにおいては有効な手法とされている[11]。今回の測定では、オーダー感の把握が目的であり、高い精度の値は必要なかったこと。希土類レーザー媒質における二光子吸収断面積の測定例が多く存在せず、吸収断面積のオーダーの予測も難しかったことから厚い試料で測定を行なった。また、測定用光源とし

て Q スイッチ Tm ファイバーレーザー(中心波長 1965 nm、パルス幅 40 ns、最大平均光出力 8 W、繰り返し周波数 10 kHz)を用いた。

3.2 二光子吸収係数の測定

今回は光強度を変化させながら二光子吸収断面積の測定を行なった。その測定結果を図6に示す。

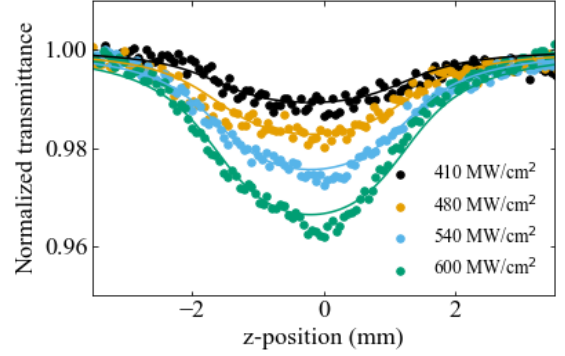


図6. Open aperture Z-scan 法による実験結果

図6において入射光強度に応じた透過率の低下が確認された。これらの透過率変化より以下の厚い試料における二光子吸収係数のフィッティング式[13]を用いてフィッティングを行った。

$$T(x) = \frac{1}{1 + \frac{Q_R}{2} [\arctan(x + l) - \arctan(x)]} \quad (3.1)$$

$$x = \frac{z}{z_0}, \quad l = \frac{L}{z_0}, \quad Q_R = \beta I_0 z_0$$

ここで、 T は正規化透過率、 z は試料位置、 z_0 はレイリー長、 L は試料厚さ、 β は二光子吸収係数、 I_0 は集光位置でのピーク光強度である。また、二光子吸収係数 β は

$$\sigma_{TPA} = \frac{\hbar\omega}{N} \beta \quad (3.2)$$

と表せる。ここで $\hbar\omega$ は入射光子エネルギー、 N は単位体積あたりの添加イオン数を表す。これらの計算結果より二光子吸収断面積は $3\sim 6 \times 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ sec}$ 程度と計算された。また、 Yb^{3+} 媒質ではないが $f-f$ 遷移による希土類レーザー媒質の $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ の二光子吸収断面積は $1.8 \times 10^{-51} \text{ cm}^4 \text{ sec}$ であった[3]。続いて、今回得られた結果から必要な光強度の考察を行った。二光子吸収断面積のオーダーを二光子誘導放出断面積として用いると式(2.3)より二光子誘導放出の項は次のように光強度 I に比例する形に変形できる。

$$\sigma_{TPSE} F = \frac{\sigma_{TPSE}}{\hbar\omega} I \cong 10^{-31} I \text{ cm}^2 \quad (3.1)$$

今回、二光子誘導放出を用いて波長 $2\mu\text{m}$ 光を増幅する。波長 $2\mu\text{m}$ 媒質として $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ の一光子誘導放出断面積 σ_{OPSE} は 10^{22} cm^2 オーダーである。これと同程度の増幅率を示すには光強度 I は $1\sim 10 \text{ GW/cm}^2$ 程度必要

だと試算される。

また、本研究とは直接関係はないがとても興味深いデータが得られたのでその報告をする。最も入射光強度の高い実験結果である図7において二光子吸収によるディップ内に透過率が回復する逆ディップ形状が見られた。

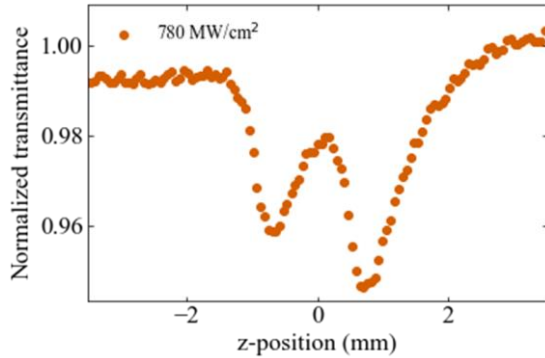


図7. Open aperture Z-scan 法による実験結果(高光強度)

これは二光子吸収飽和による透過率回復の可能性があり、二光子吸収飽和は有機材料においては数多く報告されている[14]。このような非線形な吸収率変化はモード同期レーザーのパルス圧縮などの応用に対して興味深い物性である[15]。また、二光子吸収飽和の代表的な観測例を図8に示す。今回の測定で得られた逆ディップ形状と同様の形状が見られる。しかし、図7では図8と異なり左右の非対称性が見られた。これは結晶内の集光位置によるカーレンズ効果が影響していると考えている。先行研究では薄い試料で測定を行っていたことからカーレンズ効果の影響は小さかったが今回の測定では厚い試料を用いていることから左右非対称な形状になったと考えている。

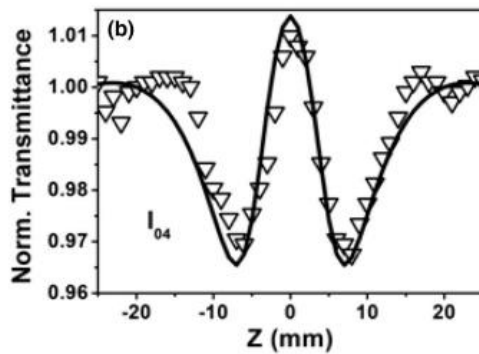


図8. 先行研究で報告された二光子吸収飽和による逆ディップ形状[14]

この二光子吸収飽和の観測例は希土類レーザー媒質においてほとんどなく、実験結果の詳細な検討を行う必要があると考えている。しかし、同励起強度で測定中に結晶の破壊が確認された。その様子を図9に示す。今回の測定では Q スイッチレーザーを光源として用いたため、パルスエネルギーが 28 J/cm^2 と高エネルギーに

なっていたからだと考えている。よって、今回の測定手法では繰り返し測定が行えない。今後、繰り返し測定を行なうためにはパルスエネルギーの低いモード同期レーザーによる測定や光カー効果の無視できる薄い試料における測定など測定手法の課題が残る。



図9. Yb³⁺:Sc₂O₃ 結晶の破壊の様子

4. 二光子誘導放出の観測実験

二光子吸収断面積の測定結果より GW/cm^2 を超える光強度が必要であることがわかった。この光強度を得るために波長 $2 \mu\text{m}$ 帯モード同期レーザーを作成し、そのレーザー発振器内に二光子誘導放出媒質を挿入し実験を行った。

4.1 Tm³⁺:Lu₂O₃ モード同期レーザー

本研究では Tm モード同期レーザーによる波長 $2 \mu\text{m}$ 光によって Yb³⁺ の波長 $1 \mu\text{m}$ の遷移を二光子誘導放出遷移として利用した二光子誘導放出の観測を目指している。実験構成を図10に示す。

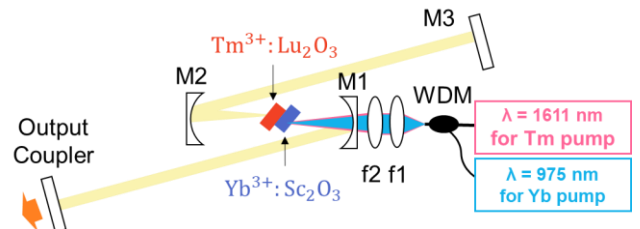


図10. 二光子誘導放出実験構成図

共振器はカーレンズモード同期レーザー共振器では一般的な Z 型共振器となっている。また、用いた結晶は波長 $2 \mu\text{m}$ モード同期レーザー媒質の Tm³⁺:Lu₂O₃ (結晶長:4 mm, 添加濃度:4 at. %) と二光子誘導放出用波長 $1 \mu\text{m}$ 媒質の Yb³⁺:Sc₂O₃ (結晶長:3 mm, 添加濃度:2.5 at. %) であり、励起光に対してブルースター角で配置されている。また、M1/M2 はともに分散補償された凹面鏡(曲率 100/100 mm、分散値 $-125/-300 \text{ fs}^2 @ 2.1 \mu\text{m}$)、M3 は分散補償された平面鏡(分散値 $-1000 \text{ fs}^2 @ 2.1 \mu\text{m}$)、出力結合鏡は透過率 1 % となっている。このときの共振器一周の総分散は -1930 fs^2 となっている。励起光は波長 1611 nm の Tm³⁺ 励起用 Er:Yb 共添加ファイバー-MOPA、波長 975 nm の Yb³⁺ 励起用ファイバー結合 LD とともに同一ファイバー

に結合したあとに、 $f=25.4\text{ mm}$ のレンズ f1 で平行光にし、 $f=75\text{ mm}$ のレンズ f2 で集光している。集光後のビーム半径は $75\times 31\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。

$\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ のみに励起を加えたとき、アライメントを調整することでソフトアパーチャーKLM 動作が得られた。このときの出力特性を図 11 に表す。

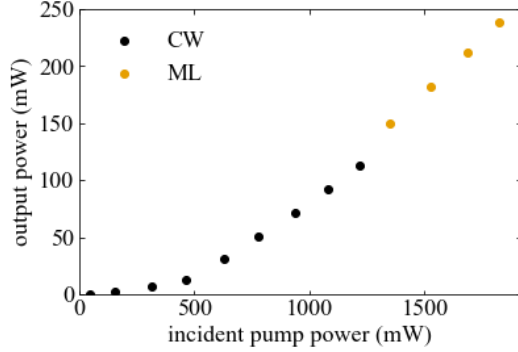


図 11. $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ モード同期レーザー出力特性

出力 150 mW 時にセルフスタート発振した。このときの RF スペクトルとパルス列を図 12 と図 13 に表す。

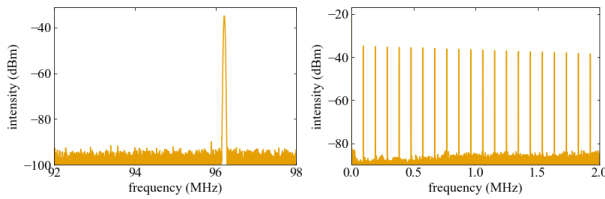


図 12. $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ モード同期レーザー RF スペクトル

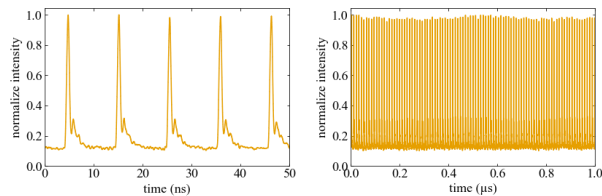


図 13. $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ モード同期レーザーパルス列

これらの時間領域、周波数領域での結果より変調の乗っていない安定したシングルパルスのモード同期がかかっていることがわかった。また、共振器長に一致した 96 MHz の繰り返し周波数が得られている。

さらに $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ モード同期レーザースペクトルと $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の蛍光スペクトルを図 14 に示す。中心波長 2096 nm、スペクトル幅 55.8 nm となっており、パルス幅はフーリエ限界パルス幅を仮定して 83 fs と計算される。図が示すように $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の蛍光スペクトルのピーク位置に近い位置でモード同期発振をしていることがわかる。また、発振スペクトルの長波長側に見えるピークは共振器全体の総分散が負の値を示すときに見

られるソリトンモード同期発振時に典型的にみられる Kelly サイドバンドであると考えられる。

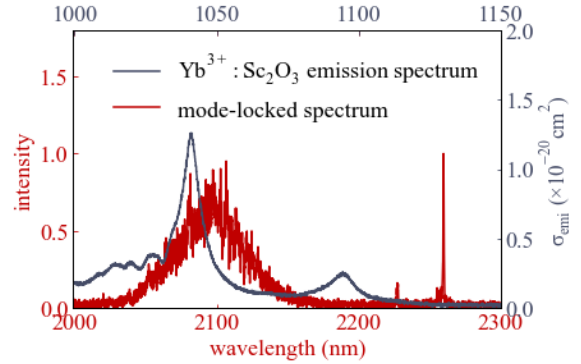


図 14. $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ モード同期レーザースペクトルと $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の蛍光スペクトル

これらの値と共振器の設計から二光子誘導放出媒質上でのピーク光強度は 25 GW/cm^2 程度になると予測される。

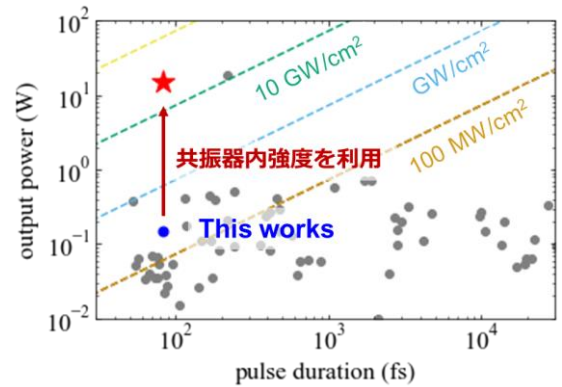


図 15. 波長 $2\text{ }\mu\text{m}$ 帯モード同期レーザー発振器の報告例 (斜め線は繰り返し周波数 100 MHz、今回と同じ集光径を仮定してピーク光強度を計算)[16]

図 15 に先行研究の波長 $2\text{ }\mu\text{m}$ 帯モード同期レーザー発振器の平均出力とパルス幅、斜め線にピーク光強度をまとめたものを示す。ここでピーク光強度の計算には繰り返し周波数 100 MHz、今回と同じ集光径を仮定している。図 15 が示すように共振器内光強度を用いることによって一般的に共振器外で得られる光強度とは桁違いの強度となることがわかる。

この共振器で $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ を連続発振波によって励起 (波長 975 nm、平均出力 400 mW) を行ったが出力特性、スペクトル、時間波形の変化は見られなかった。そこで二光子誘導放出の高感度な測定を行なった。

4.2 二光子誘導放出の高感度測定実験

二光子誘導放出光がノイズに埋もれて観測できなかったと考え、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の励起光に変調 (500, 800, 1000 Hz / 平均出力 200 mW) を加え、二光子誘導放出信号の高感度

測定を行なった。このとき、変調周波数は $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の上準位寿命時間 ~ 0.8 ms に対して長くしたため、反転分布量は十分に変調されるようになっている。また、出射レーザー光を RF スペクトルアナライザーで測定することで変調された二光子誘導放出信号が観測されると期待して実験を行った。

その実験結果を図 16(a)(c)(d)に示す。このとき $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ レーザーではモード同期発振(以下、ML)をしている。比較のために同じ平均出力における連続発振動作(以下、CW)時にも同様の実験を行った結果を図 16(b)(d)(e)に示す。

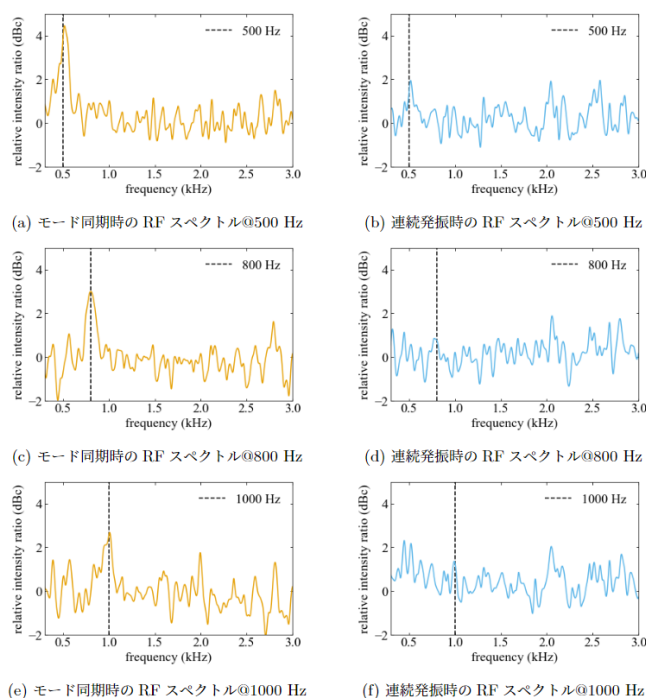


図 16. モード同期時と連続発振時の RF スペクトル比較

ML 時には変調周波数に一致したピークが観測されたが、CW 時には観測されなかった。これはモード同期発振時においてのみ共振器内光強度が高まることから二光子誘導放出による信号だと考えた。

ピークが見られた他の要因について考えた。励起光の抜け光、 Yb^{3+} による自然放射増幅光等が原因だとすると CW 時にピークが見られなかったことを説明できない。また、二光子誘導放出ではなく、二光子吸収の増減が変調として見えている可能性も考えられるが、今回の実験系では Yb 媒質は十分な反転分布状態になっていると計算されており、二光子誘導放出による増幅の影響のほうが大きいと考えている。このため今回観測されたピークは二光子誘導放出の可能性が高いと考えている。

5. まとめ

本研究では二光子誘導放出の固体レーザー媒質での観測を目指して、二光子吸収断面積の測定と二光子誘導放出実験を行った。二光子吸収の測定では $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ での二光子吸収断面積が $3\sim 6 \times 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ sec}$ 程度であると測定できた。また、固体レーザー媒質での観測がなかった二光子吸収の吸収飽和だと考えられる信号も確認された。しかし、厚い試料における測定手法の限界もあり、詳細な値の考察には測定手法の改善が必要である。また、この結果から二光子誘導放出の観測にむけて GW/cm^2 オーダーの光強度が必要だと試算された。二光子誘導放出実験では共振器内に $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ を加えた $\text{Tm}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ レーザーを製作し、カーレンズモード同期発振を得た。このとき中心波長 2096 nm、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ 結晶でのピーク強度が 25 GW/cm^2 のモード同期パルスとなった。また、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の励起光に変調を加えることで励起光に起因する非線形光学現象の信号とレーザー光の信号を分離した。その結果励起光に起因する非線形光学現象の信号が確認され、二光子吸収あるいは二光子誘導放出による信号であると考えている。

今後の展望としてより大きな信号強度での観測を目指して Yb 励起 LD の増設を行っていく。

参考文献

- [1] A. Kerl *et al.*, Proc SPIE, 7386(2009)
- [2] M. Göppert, Naturwissenschaften, **17**, 932–932 (1929)
- [3] L. L. Chase *et al.*, Phys. Rev. B, **34**, 8883–8891 (1986)
- [4] 矢島達夫, レーザー研究, **27**, 130–138 (1999)
- [5] 鎌田賢司, 映像情報メディア学会技術報告, **40.3**, 25–31 (2016)
- [6] KBFI 2018, “Multiphoton Absorption Spectra”, <https://kbfi.ee/chemical-physics/research/nonlinear-spectroscopy/multiphoton-spectra/?lang=en>, (2022)
- [7] S. Barak *et al.*, IEEE Journal of Quantum Electronics, **5**, 448–453 (1969).
- [8] P. Ginzburg *et al.*, Nature Photonics, **2**, 238–241 (2008)
- [9] P. P. Sorokin, U.S. Patent 3483486A, (1969)
- [10] A. Kerl, laval univ Master thesis, (2009)
- [11] R. Sutherland, “Handbook of nonlinear optics”, (Taylor & Francis, 2003)
- [12] 山下真司, レーザー研究, **51**, 6–11 (2023)
- [13] W. P. Zang *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B, **21**, 63–66 (2004)
- [14] A. Gaur *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B, **35**, 2906–2914 (2018).
- [15] B. Yuheda *et al.*, “Methods of laser spectroscopy”, 123–127 (Springer, 1986)
- [16] V. Petrov *et al.*, Proc. of SPIE, **11209**, 112094G (2019)