

11. 時間的インコヒーレント光を使った 超高速時間分解分光

長谷川 敦 司

近年、ピコ秒 (10^{-12} sec) フェムト秒 (10^{-15} sec) という非常に短い時間内に起きる現象に関する研究が光を使って盛んに行われている。超高速現象の観測にはパルス幅の短い超短パルス光を使う必要があるが、この発生及びその観測には高度な技術が必要である。したがって超短パルス光を使って超高速現象を観測するには困難を伴う。そこでもっと容易に超高速現象を観測する方法として時間的インコヒーレント光を使った方法が考えられた。¹⁾ 時間的インコヒーレント光とはパルス幅に比べてその相関時間がきわめて短い光をさしている。時間的インコヒーレント光を使った分光法は時間分解能が光のパルス幅ではなく相関時間が決めているという特徴がある。したがって、見かけ上幅の広いパルス光を使ってもピコ秒、フェムト秒領域の現象測定が可能である。実際、光エコー法によりフェムト秒領域の位相緩和時間の測定がされた。²⁾ しかしながら、物性研究には必須の分布数緩和時間の測定に時間的インコヒーレント光を用いた例はほとんど報告されていなかった。本研究では分布数緩和時間を測定する原理的に新しい方法としてインコヒーレント2レーザーポンプ・プローブ法³⁾と周波数混合型時間分解発光分光法⁴⁾を提案する。さらに有機色素の励起状態の寿命測定においてこれらの方法の有効性を実験的に検証する。

はじめに異なる波長の二つの時間的インコヒーレント光の間に強い強度相関があり、これを使ったポンプ光とプローブ光の波長が違う2レーザーポンプ・プローブ法により分布数緩和時間の測定が可能であることについて述べる。次に発光と励起光の強度相関を使った周波数混合型時間分解発光分光法について述べる。

強度相関は二つの光の強度の時間変化をそれぞれ $I_1(t)$ 、 $I_2(t)$ とすると

$$G_{12}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt I_1(t) I_2(t - \tau) \quad (1)$$

で表される。ここで $I_1(t)$ に対する $I_2(t)$ の遅延時間が τ である。時間的インコヒーレント光の場合には

$$G_{12}(\tau) = G_{12}^0(\tau) + G_{12}^R(\tau) \quad (2)$$

と書け、 $G_{12}^0(\tau)$ は光のパルス幅 (t_p とする) を反映してゆっくり変化する部分、 $G_{12}^R(\tau)$ はノイズバーストと呼ばれ、パルス内での強度ゆらぎの相関を表している。ノイズバーストの半値全幅をとったのが相関時間 (これを τ_c とおく) である。このような光を用い2レーザーポンプ・プローブ法によって試料の励起状態の寿命 (t_r とする) を測定する場合を考える。試料を透過してきたプローブ光強度の τ に対する変化は、 $\tau \ll t_r \ll t_p$ と仮定すると

$$\Delta E_{21}(\tau) = t_r G_{12}^0(\tau) + \tau_c G_{12}^R(0) \exp(-\tau/t_r) \quad (3) \text{ となる。}$$

実際に交叉相関波形を測定した結果を次に述べる。実験配置は図1に示したもので光源としてはQスイッチNd:YAGレーザーの第二高調波光 (パルス幅 ~ 7 nsec、繰返し20Hz、波長532nm) を使った。これをビームスプリッターにより二つに分け一方は色素レーザーの励起に使う。これにより発振した色素レーザー光を光学的可変遅延に通したのち、もう一方の第二高調波光と同一直線上に重ね合わせ、非線形結晶 β -BBOを通す。ここから発生する光の和周波数の光の積分強度を観測する。二つの光の間の相対時間 τ は可変遅延を動かすことによって変え、これにより交叉相関関数 $G_{12}(\tau)$ が測定できる。この結果を図2に示す。図より第二高調波光と色素レーザー光の間に強い相関があることがわかる。また、相関時間は ~ 50 psecであった。

次に2レーザーポンプ・プローブ法により色素の励起状態の寿命を測定した結果について述べる。実験配置は図1の β -BBOの代わりに試料であるDTC色素 (吸収ピーク ~ 580 nm) を置き、第二高調波光がポンプ光、色素レーザー光をプローブ光とした。プローブ

ブ光の波長は $\sim 595\text{nm}$ である。DTC色素透過後のプローブ光は分光器によりポンプ光と分離し検出器に導く。結果を図3に示す。指数関数型の減衰を仮定すると励起状態の寿命 τ_1 は $\sim 150\text{psec}$ であることが判る。また、信号部分と背景の比は ~ 0.6 になりこれは相関波形の測定結果及び(3)式から理論的に予想される $\tau_1 G_{12}^R(0) / \tau_1 G_{12}^D(0)$ の値によく一致している。

また、この結果を確かめるために 100psec の時間分解能を持つストリークカメラシステムによってDTC色素の発光強度の減衰時間を測定した。その結果が図4である。減衰時間の測定値は $\sim 160\text{psec}$ である。これにより2レーザーポンプ・プローブ法の結果は妥当なものであることが判る。

次に時間的インコヒーレント光を使った周波数混合型時間分解発光分光について述べる。図5のような実験配置で行った。二つに分けた時間的インコヒーレント光の一つを試料(DTC色素)に当て、ここからの発光ともう一方の光を非線形結晶($\beta\text{-BBO}$)に入射し、この和周波数の光の積分強度を観測することにより、発光の減衰を測定する方法である。この結果図6に示すように減衰時間は $\sim 110\text{psec}$ と測定されストリークカメラでの測定結果及びポンプ・プローブ法の結果とよく一致した。

このようにパルス幅が数nsecの時間的インコヒーレント光を使った原理的に新しい二つの方法により $\sim 50\text{psec}$ の時間分解能で分布数緩和時間を測定することが可能であることを示した。

references

- 1) N.Morita and T.Yajima, Phys. Rev. A 30, 2525 (1984).
- 2) S.Asaka, H.Nakatsuka, M.Fujiwara, and M.Matsuoka, Phys. Rev. A 29, 2286 (1984).
- 3) F.Minami and A.Hasegawa, Appl. Phys. Lett. (in press).
- 4) S.Asaka and K.Watanabe, Ultrafast Phenomena VI edited by T.Yajima, K.Yoshihara, C.B.Harris, and S.Shionoya (Springer, Berlin, 1988) p.375.

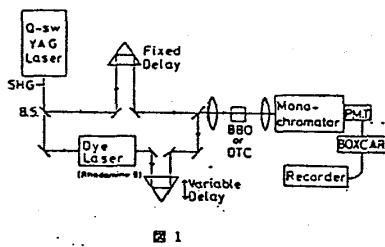


図 1

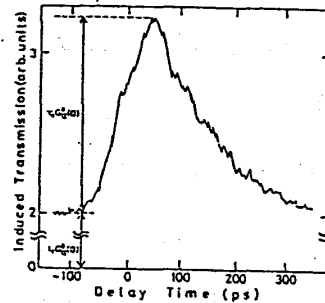


図 3

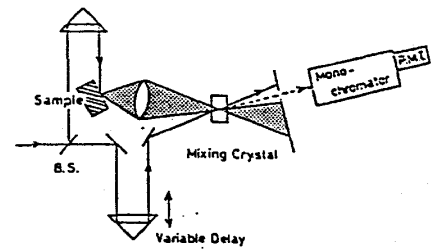


図 5

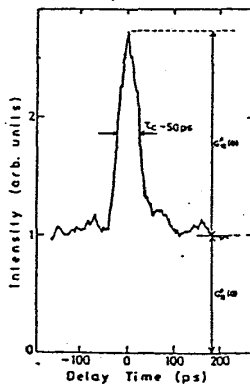


図 2

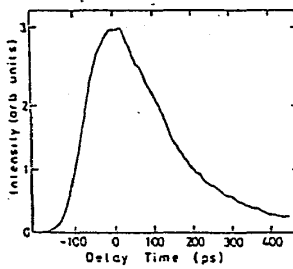


図 4

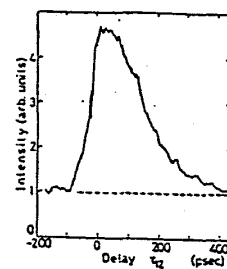


図 6