

周波数軸の高分解能特性を備えた発光寿命測定法の開発

(東工大院理工) ○関口貴郎・浅木森浩樹・金森英人

【序】気体分子の励起状態の寿命測定の手法として広く用いられているのは、パルスレーザーによる発光寿命の測定である。この場合、パルスレーザーの線幅が測定の周波数分解能となる。たとえば広く使われているナノ秒のパルスレーザーの線幅は1 GHz程度であるが、分子にはこれよりも微細なエネルギー構造が存在することが多い。そのためパルス測定では、これらの密接した励起準位に分子をまとめて励起してしまい、個々の励起状態に関する寿命を観測することができない。

パルスレーザーによる時間軸測定は、分子の光パルスに対する応答を観測していることに他ならない。一般に線形システムのインパルス応答（装置関数）は、入力信号にランダム信号を用いて、出力信号との相関を取ることでも得られる（図1）。そこで、CW半導体レーザーに対してM系列信号による擬似ランダム変調を行い、発光信号との相関を取って、分子の発光寿命を測定する手法を開発した。M系列信号とは、人工的に作られる周期的擬似ランダムコードであり、図2のように自己相関関数が δ 関数になる（図の信号はクロック50MHz）。この手法では、CWレーザーの線幅が周波数の分解能となるため、励起状態の微細なエネルギー構造を分離して寿命を測定することができる。時間分解能は変調の基本クロック周波数で決まり、今回用いたものは上限が1 GHzであることから、最高1 nsの時間分解能をもつことになる。

【実験】この測定システムの有効性を確かめるため、RbのD₁線（ $5^2P_{1/2} \leftarrow 5^2S_{1/2}$ 、795.0 nm）の発光寿命を測定した。この遷移の遷移確率は $A = 0.340 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ で、これより自然寿命は29.4 nsと求められる¹。半導体レーザーの注入電流にパルスジェネレーターが発生するM系列信号を乗せ、発光スペクトルのドップラー幅を周波数変調して、光電子増倍管によって発光の信号を得た。M系列信号の設定は、クロック周波数10 MHz、パターン周期123とした。信号はデジタ

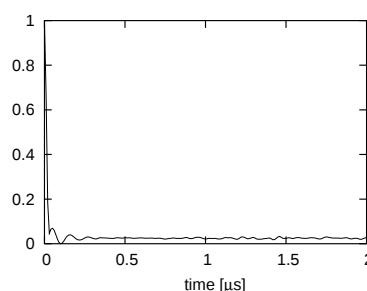


図 2: M 系列信号の自己相関関数

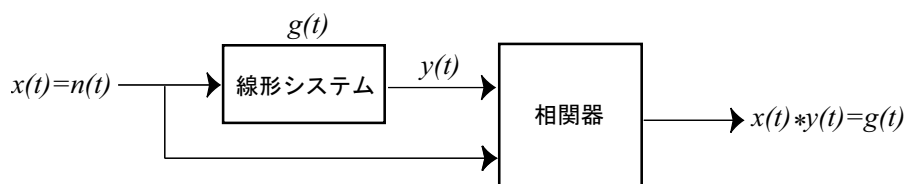


図 1: 相関法

¹CRC Handbook of Chemistry and Physics: CRC Press, 1985

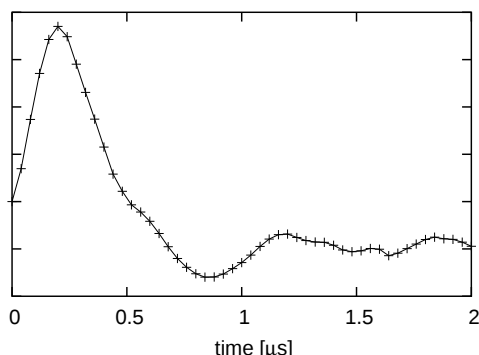


図 3: Rb の発光減衰を表す装置関数

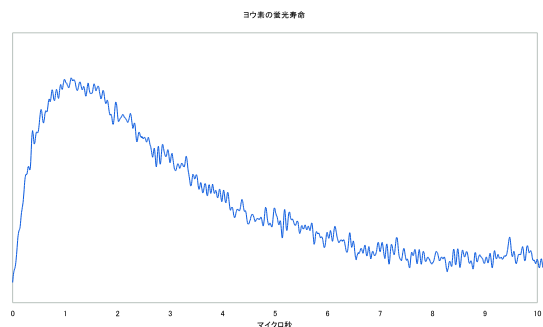


図 4: I_2 の発光寿命

ルオシロスコープで M 系列信号と同期させて取り込み、取り込んだデータを計算機で相関にかけた。

また、このシステムの分子への適用として、ヨウ素分子 I_2 の電子遷移 $B^3\Pi_{0u}^+ \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ についても測定を行った。

【結果】Rb の測定では、発光信号と M 系列信号の相関を計算した結果、図 3 に示すような相関関数が得られた。これから、 $0.5 \mu s$ の寿命が読み取れる。これは上で挙げた自然寿命よりも 1 桁長くなっている。これは主たる原因は Rb の発光が自己吸収されていることであると考えられる。現在、この影響を取り除くために、より高真空の条件で測定を行っている。

一方 I_2 については、図 4 に示すような相関関数が得られ、 $5.6 \mu s$ の寿命が得られた。これは Rb のときの測定結果 $0.5 \mu s$ よりもさらに長いものとなっている。したがって、測定系の遅れとは別の、分子の発光過程で遅らされたものであると考えられる。つまり、この測定で得られた結果は分子の発光寿命であるといえる。

【今後】今回測定した Rb、 I_2 の遷移には分裂幅 100 MHz 程度の超微細構造が存在する。これらを飽和分光法で検出し、励起状態を個々の核スピン準位ごとに分離して寿命を測定することを目指す。これは、パルス測定では分離して得られなかった寿命であり、原子・分子の電子状態への核スピンの寄与について新たな知見を与えるものと期待される。