

(理研) ○藤野竜也, 藤間卓也, 田原太平

超高速分光による分子ダイナミクスの研究はこれまで主として均一な系に対して行われてきたが、現実的な系は高度に不均一である場合が多い。従って、微小な領域または不均一な環境に存在する分子の励起状態ダイナミクスを位置選択的に観測することが重要である。このような観点から時間と空間に対して高い分解能を持つ時間分解顕微分光法の必要性が指摘され、すでにこれまでに活発な研究が行われている。われわれは最近、時間分解顕微分光の新しい手法として蛍光アップコンバージョン顕微鏡を開発し、顕微蛍光分光において初めてフェムト秒の時間分解能を実現した[1]。時間分解蛍光顕微鏡の一つの強力な応用は、試料各点の物性評価を蛍光寿命によって視覚的かつ二次元的に行う、時間分解蛍光二次元イメージの作成である。開発した蛍光アップコンバージョン顕微鏡を用いることにより物質のフェムト秒領域ダイナミクスに基づく時間分解蛍光二次元イメージング（フェムト秒ダイナミクスイメージ）を行うことが可能となったが、その場合には試料の一点一点において時間分解測定を行い、測定した多くのデータから時間分解蛍光二次元イメージを再構成する必要があった。そこで今回は、カーゲート法を用いることにより、非走査で（一度の測定によって）時間分解蛍光二次元イメージを得ることのできる非走査型フェムト秒蛍光二次元イメージ顕微鏡を新たに開発したので報告する。

再生増幅された Ti:sapphire レーザー (Tsunami, Spectra Physics, 800 nm, 1 kHz, 1W) の基本波を LBO 結晶により二倍波を作成し (400 nm, ~20 mW) これを試料の励起光として用いた。励起光はビーム径と高さを調節した後、試料に導いた。試料からの蛍光を倒立型に配置した顕微鏡用対物レンズ (CFI Plan Fluor, 40 \times , N.A. = 0.75, Nikon) によって集め、顕微鏡の外に取り出した。取り出した蛍光を第二対物レンズにより結像させ、これを厚さ 1 mm の溶液セルに封入した二硫化炭素中に導いた。蛍光を二硫化炭素中において、Ti:sapphire レーザーの基本波 (800 nm, ~200 mW) とともに空間的に重ね合わせ、カーゲート法により時間分解測定した。干渉フィルターにより迷光を除去し、時間分解された蛍光を CCD 検

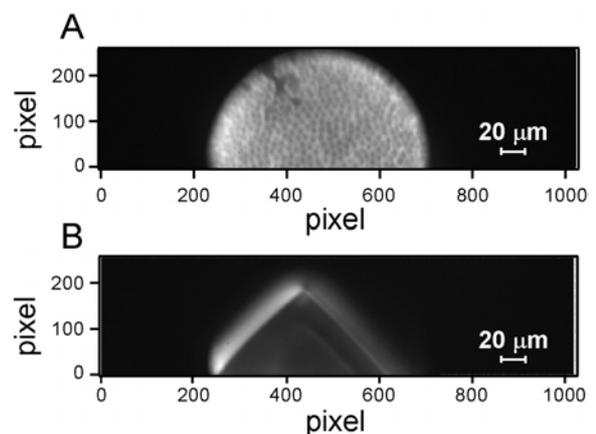


図1. 蛍光ビーズ (A)、 α -ペリレン (B) の定常蛍光像 (520 nm)

出器によりマルチチャンネル検出した。

図1に開発した顕微鏡を用いて観測した波長 520 nm での蛍光色素ビーズ（発光極大 520 nm、粒径 $\sim 5\mu\text{m}$ ）および α -ペリレン微結晶の定常蛍光像を示す。この測定では、カーゲート配置における2つの偏光板を平行に設定することで、時間積算した蛍光像を観測している。図1Aで蛍光ビーズからの発光が、ほぼ均一の強度で観測されていることから、観測する領域において試料が均一の光強度で光励起されていることが分かる。図2にカーゲートの2つの偏光板を垂直とし、ゲート光の導入によって得た α -ペリレン微結晶のフェムト秒時間分解蛍光像を示す。ここに示す時間分解蛍光像は注目する遅延時間の蛍光像から負の時間（ -5 ps ）の蛍光像を引算することにより求めた。光励起直後に α -ペリレン微結晶の蛍光像が観測され、遅延時間の増加とともに蛍光強度が減衰する様子が分かる。 α -ペリレン微結晶を光励起すると、励起直後に生成する自由励起子からの発光が観測され、これが約 2 ps の寿命で減衰することが分かっている[2]。従って図2で観測された蛍光強度の時間変化は、結晶中に生成された自由励起子の減衰過程を表しているものと考えられる。この開発した顕微鏡により、試料や観測点の移動なしにフェムト秒時間分解蛍光二次元イメージの作成が可能になった。講演では測定例を示しながら装置に関する議論を行う。

参考文献

[1] T. Fujino, and T. Tahara, Appl. Phys. B **79**, 145 (2004).

[2] T. Fujino, and T. Tahara, J. Phys. Chem. B **107**, 5120 (2003).

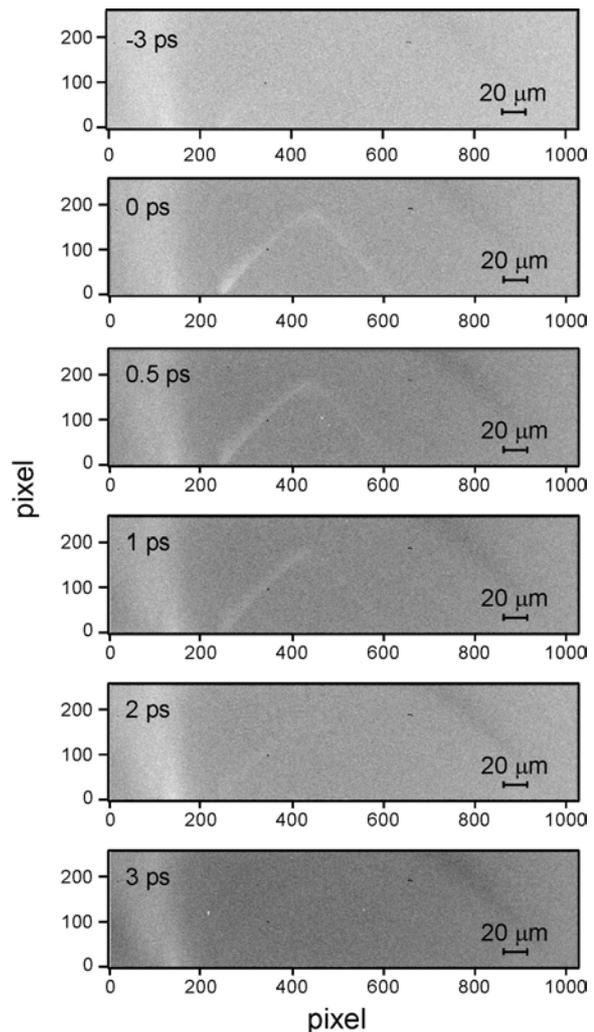


図2. 図1Bの α -ペリレンのフェムト秒時間分解蛍光像（520 nm）