光の検出とデータ処理

第3講 光電子増倍管の出力信号の処理

鈴木 範人・吉川 淳

大阪大学工学部応用物理学科 吹田市山田上 (〒565)

(1974年3月7日受理)

Light Detection and Data Processing
(3) Output Signal of Photomultiplier

Norihito SUZUKI and Atsushi KIKKAWA

Department of Applied Physics, Faculty of Engineering,
Osaka University, Yamadakami, Suita 565

(Received March 7, 1974)

1. はじめに

可視紫外の検知器としては、光伝導セル、光電池など内部光電効果を利用したもの、光電管、光電子増倍管など外部光電効果を用いたものがあげられるが、分光測光という見地に立った場合、S/N その他で問題が生じるのは比較的強度の弱い光をあつかう場合で、そのような場合に用いられるのは光電子増倍管（以下 P.M. と略称）であることから、ここでは話を P.M. にしぼることにしたい。また、P.M. 自身の諸問題については、最近の林のくわしい解説¹⁾もあるので、P.M. の内部の話はさけ、P.M. のまわり、すなわち、入力である光とか出力の様子とかについてややくわしくのべてみたい。P.M. で光の検出を行なう際の問題はどの程度まで高精度で光量が測定できるかということとどの程度まで高速の測光が可能であるかという問題に帰着すると思われる。測光の精度の問題は測定値のゆらぎの問題である。測定値のゆらぎを大別すると、光源のふらつきによるものとか、増幅器の雑音など、光源から観測、記録を行なう個所までに存在するいろいろの部分で理想的なものから外れているために生じるゆらぎと、系が完全に理想的なもの、すな

わち、光源が完全に定常的であり、それを理想的な P.M. で検出し、ドリフトなどのない理想的な増幅器を用いたと仮定したとしても存在するゆらぎに別けられる。前者のゆらぎについては、P.M. が実用期に入る以前から信号のゆらぎを少なくするための工夫がなされ、光学系や信号処理の方式に関する提案が数多くなされ、いろいろのすぐれた方式が測定の目的に応じて使われていた。また今一つの高速測光の問題に関しても意欲的な研究が続けられ多くの方式が開発されている。それに対し、理想的な系でもなお残存する種のゆらぎは光の基本的な性質によるものが主で、これについての本格的な研究が始められたのはレーザーの出現後である。

ここでは、P.M. のまわりの問題として以上のすべてについて議論するには、対象となる範囲があまりにも広大であるということと、文献が完備され、しかも入手が容易である方面では重複をさけるという2つの理由で、光の基本的な性質によるゆらぎを中心に議論を行ない、他の個所は方式の列記にとどめたい。

光の基本的な性質によるゆらぎの問題は、現在はレーザーの散乱光など、一本の線スペクトルの幅の観測に利用されているに過ぎないが、弱い光の観測を行なうとき

の S/N の議論, 特に高速サンプリングなどの場合のそれには欠かせないもので, 近い将来広範囲にわたって利用されるものと思われるので, 一般性のあるものとしてとりあげてみたい。

2. 光電流の処理方式

測光対象の性質, 測光の目的に応じ, 高精度の測定を行なうため, 適当な光電流の処理方式が採られるが, それらの列記を行なう。

2.1 直流測定法

P.M. は理想的な充電電源であるので, 光電流の値は負荷抵抗の値が変わっても変化することはない。したがって, 負荷抵抗 R の電位差 V は, 光電流 I が一定であるとすると, R の値を大きくすればする程 $V=IR$ により大きくなる。適当な R の値を選定することにより, 出力電圧 V をとりあつかい易い値にすることができるので, 最も簡便な処理方式である。また, 負荷抵抗の代りに蓄電器を接続すれば, 光電流が一定であれば, 蓄電器の端子の電位は直線的に増加し, 理想的な光電流の積分ができる。蓄電器の電位, すなわち光電流の積分値は, 高インピーダンスの増幅器 (FET 入力) の増幅器で簡単に測定できる。スパークのような, 変動のはげしい光の光量の測定には, このような積分方式により一定時間の平均値を求めることが必要である。

2.2 交流測定法

入射光を断続し, 光電流の交流増幅を行ない, さらに同期整流を行なう方式で, 微小な光量の変化を測定するのに適している。P.M. には暗電流があり, 直流法では光電流と暗電流の和が信号電流として現われるが, 交流法では暗電流は断続されないで信号としては現われない。一般に, P.M. からの交流信号は前置増幅器で増幅され, ロックイン増幅器などの主増幅器でさらに増幅され, 整流される。この場合の前置増幅器は, 後続の主増幅器にレベルの高い信号を送ることを主な目的としたもので, 雑音指数 (入力側と出力側の S/N の電力比) が 1 に近いものが求められる。増幅器については Martin のまとめたもの²⁾に詳しい。

2.3 高速測定法

高速で変化する光量を測定するもので, 光電流を広帯域増幅器で増幅し, 光電流の時間変化をシンクロスコープで観測する方法と高速のサンプリングを行なう方法がある。前者はくり返しを周期的に行なうことがむづかしい現象に対し, 後者は周期的なくり返しが容易な現象に対して用いられる。光電流の変化を観測する場合には, 前述の直流法のように負荷抵抗 R をむやみに大きくし

て P.M. の出力電圧を高くすることは許されない。P.M. の集電極と出力回路の浮遊静電容量 C (数十 pF) と R の積 $\tau=RC$ で分解時間が決ってしまうからである。この場合にも前置増幅器が用いられ, 浮遊静電容量を小さくするため, 前置増幅器は P.M. のすぐ近くにおかれる。この前置増幅器の主な目的はインピーダンスの変換であり, その出力は同軸ケーブルで主増幅器あるいはシンクロスコープに送られる。

ここでは光電流はパルス状で観測されるが, この光電流パルスは, パルスの各瞬間の高さが, その瞬間に P.M. に同時に入射した光子の数に比例するとみなしている。光の瞬間強度が強い場合にはこのようになり, この現象は多重光電子現象と呼ばれている。後述する光が弱い場合の単一光電子現象の光電流パルスと, 光量の変化を表わす光電流パルスは, はっきり区別しておく必要がある。

高速サンプリング方式は P.M. に供給する高圧あるいはダイノードの一部の電圧をパルス状とし, このパルスが供給されている間だけ光電流を流す方式である。光量の変化が周期的であるときは, サンプリングを行なう位相をゆっくり移動させ, 光量の変化波形をゆっくり求めることができる。分解時間を決定するのは供給パルスのパルス幅であり, P.M. の出力回路の時定数とは無関係であるので, P.M. の負荷として, 高い抵抗値をもった抵抗や, 積分を行なうための蓄電器を接続することもできる。

高速分光測定法には P.M. (市販の) 以外のものを利用する場合がある。それらを含め高速測光については南らのくわしい解説がある^{3,4)}。

3. P.M. の入射光と検出量

P.M. で検出しようとする光の強度が弱くなるにつれて, 測光の精度は次第に低下してくる。すなわち, 測定値のゆらぎが次第に目立ってくる。このゆらぎは, P.M. の増倍過程とか増幅器の雑音に起因するもの他に入射光自身によるものに大きく左右される。定常的な光を雑音が一切存在しないような系で測定したとしても, やはり, 測定値のゆらぎは存在する。このゆらぎの性質を知るために, P.M. で光のどういう物理量が検出されるかということから考える。

元来, P.M. は光波の振幅 (絶対値) の自乗を検出するいわゆる自乗検知器であるといわれているが, これは光が強い場合に近似的に適用できる考え方である。今, 振幅が一定であるような光波を検出しているとする。P.M. が振幅の自乗を検出しているとする, 振幅は一

定であるので測定値は一定であり、何回測定を行っても同じ測定結果が得られる筈である。しかし、実際は、測定の度ごとに測定値が一致するという事はない。このことは、P.M. は振幅に対して感度を持った検知器ではないということを暗示している。そこで、P.M. は一体何を検出しており、検出量のゆらぎは一体どのようなかということを考える。そのためには光波を量子論的にあつかった方が見通しがよく簡単である。光を量子論的にあつかうということは光子を考えるということになる。 $\omega (=2\pi\nu)$ という角周波数の光の1個の光子のエネルギーは $\hbar\omega (=h\nu)$ であるが、光が強いということは、光子が n 個 (エネルギーでは $n \cdot \hbar\omega$) あり、 n が多いということであるとする見方である。振幅が一定の光を P.M. で検出しているという思考実験を進めるため、この光子の数 n というものと、光波の振幅というものはどのような関係にあるかということをしらべる。光波の時間的な振動は $A \cos \omega t$ と書くことができるが、 $\cos \omega t$ を $\exp(-i\omega t)$ と $\exp(i\omega t)$ の和の形で書き、振幅 A を1個の光子のエネルギーのルート $\sqrt{\hbar\omega}$ (振幅の自乗はエネルギー) を単位として光波の時間的な振動を書き直すと

$$\sqrt{\hbar\omega} (ae^{-i\omega t} + a^+e^{i\omega t})$$

となる。振幅を $\sqrt{\hbar\omega}$ を単位として書かれたこの式は、光波を量子論的に書き表したものである。ただ量子論的な記述であるので、振幅を表わす a, a^+ は普通の数ではなく演算子 (振幅演算子) になっている。今 a という実際の振幅を持った光波があるとする、このような光波があるという状態は $|\alpha\rangle$ と書かれるが、この状態 $|\alpha\rangle$ は、振幅演算子 a の固有値 α に属する固有状態と呼ばれ、

$$a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad (1)$$

と書かれる。とにかく、一定の振幅 α の光があるということを、場が状態 $|\alpha\rangle$ にあるという風に表現する。この振幅算子 a, a^+ は量子力学の教科書に出てくる消滅演算子、生成演算子そのものである。ちなみに、これらの演算子はエルミートでない。したがって振幅という物理量は量子論的には測定可能な量ではない。

その場を表わすのに振幅が α である状態 $|\alpha\rangle$ といった表わし方もあるが、光子の数で表わしてもよい。いま、光子の数が n 個あるという状態を $|n\rangle$ とすると、

$$a|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle \quad (2)$$

$$a^+|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \quad (3)$$

という関係がある。 a は n 個光子がある状態 $|n\rangle$ を、 $n-1$ 個光子がある状態 $|n-1\rangle$ に移すので消滅演算子と呼ばれるわけである。 a^+ はその逆である。次に、 $|n\rangle$ にまず a を作用させ、つづいて a^+ を作用させ $a^+a|n\rangle$ をつくと、(2), (3) 式を用いてただちに

$$a^+a|n\rangle = n|n\rangle \quad (4)$$

という結果を得るが、これは状態 $|n\rangle$ は演算子 a^+a の固有値 n に属する固有状態であるということ、さらに換言すれば、 n 個光子がある状態の a^+a という物理量を測定すれば、 n という測定結果が得られるということを物語っている。このようなことから a^+a は個数演算子とよばれている。

Fig. 1. 検知器の1原子モデル

以上の準備にもとずき、P.M. の検出機構を考える。P.M. の光電面のモデルとして1個原子があり、この原子が光を吸収して、光電子を放出するというモデルを考える。光が原子にあたった場合、光は吸収されるか、吸収されないかどちらかである。光の吸収という現象を光の側からみれば光子が1個消滅することになる。すなわち消滅演算子が作用することになる。入射光の状態を $|i\rangle$ として、この現象を式で表わすと、 $a|i\rangle$ となる。ここで光は終状態 $\langle f|$ にうつるが、光は吸収されるかも知れないし吸収されないかも知れないので、われわれは終状態 $\langle f|$ については何も知ることができない。そこで可能な終状態すべてについて和をとる。 $|i\rangle$ から $\langle f|$ にうつる確率振幅は $\langle f|a|i\rangle$ であるが、終状態について和をとったもの $\sum_f \langle f|a|i\rangle$ は光が吸収される確率振幅となる。したがって、光が吸収される確率は確率振幅の自乗 (絶対値の) であることから $\sum_f |\langle f|a|i\rangle|^2$ となるが、これを計算すれば

$$\sum_f |\langle f|a|i\rangle|^2 = \sum_f \langle i|a^+|f\rangle \langle f|a|i\rangle = \langle i|a^+a|i\rangle$$

となる。ただし $\sum_f |f\rangle \langle f| = 1$ である (規格化されているから)。この量が P.M. で検出される量である。 a^+a は個数演算子であるので P.M. は始状態 $|i\rangle$ の光子の個数を測定するものであるということがわかる。いま始状態が光子が n 個ある状態 $|n\rangle$ であるとするすると

$$\langle n|a^+a|n\rangle = \langle n|n|n\rangle = n \quad (5)$$

となり、光子の数が正確に求められる。しかし、始状態

が $|n\rangle$ というような純粋な状態は仮空のもので現実には存在しない。

4. 入射光のゆらぎ

P.M. は量子論的な考え方をすれば、光子の数を検出する検出器であるということをのべたが、光子数しかわれわれには観測できないので、入射光のゆらぎとは、その光子数のゆらぎということになる。そこで、光子数のゆらぎとはどのようなものかということを考えて見る。

まず、ゆらぎが最も小さい光として、振幅 α が一定の光をとりあげ、この光の光子数がどのようなものであるかということを考える。これは、レーザー光の測光を行なう場合の測定値のゆらぎの問題に相当する。振幅 α が一定である光は $|\alpha\rangle$ で表わされるが、この光の光子数がいくらであるかということを知るためには $|\alpha\rangle$ と光子数が n である状態 $|n\rangle$ の関係を見出せばよい。両者の関係を作るために両者の共通の状態から出発する。共通の状態は何もない状態、真空状態である。ここでは振幅 α も光子数 n も 0 であるので、真空状態は $|0\rangle$ とかけられる。この真空状態に生成演算子を 1 回作用させると、 $a^+|0\rangle = \sqrt{1}|1\rangle$ となり光子が 1 個ある状態が得られる。2 回の場合は $a^+a^+|0\rangle = \sqrt{0+1}|2\rangle = \sqrt{1\cdot 2}|2\rangle$ となる。これを n 回行なうと

$$(a^+)^n|0\rangle = \sqrt{n!}|n\rangle$$

となり、光子が n 個ある状態 $|n\rangle$ は

$$|n\rangle = \frac{(a^+)^n}{(n!)^{1/2}}|0\rangle \quad (5)$$

という手法で真空状態から作られる。一方、振幅が一定値 α である状態 $|\alpha\rangle$ は、 $a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle$ という方程式を満す状態であるが、この $|\alpha\rangle$ を $|n\rangle$ で展開すると、

$$|\alpha\rangle = \sum_n |n\rangle \langle n|\alpha\rangle = \langle 0|\alpha\rangle \sum_n \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |n\rangle \quad (6)$$

となる。ここで展開係数 $\langle n|\alpha\rangle$ を求めれば、 $|\alpha\rangle$ と $|n\rangle$ の関係を知ることができる。(5) 式の共役

$$\langle n| = \langle 0|a^n/(n!)^{1/2}$$

および

$$a^n|\alpha\rangle = \alpha^n|\alpha\rangle$$

を用い、スカラー積 $\langle n|\alpha\rangle$ を求めると、

$$\langle n|\alpha\rangle = \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} \langle 0|\alpha\rangle$$

となる。ここで $|\alpha\rangle$ の長さ $\langle \alpha|\alpha\rangle$ を 1 に規格して

$\langle 0|\alpha\rangle$ の値を求めると、(6) 式より

$$1 = \langle \alpha|\alpha\rangle = \langle 0|\alpha\rangle^2 \sum_n \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} = \langle 0|\alpha\rangle^2 \exp(|\alpha|^2)$$

すなわち

$$\langle 0|\alpha\rangle = \exp\left[-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right]$$

となり、

$$|\alpha\rangle = \exp\left[-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right] \sum_n \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |n\rangle \quad (7)$$

という $|\alpha\rangle$ と $|n\rangle$ の関係が求められる。これで目的の、振幅 α が一定の光を測定したときどのような測定値 (光子の数) が得られるかという問題の解答が得られることになった。振幅が一定でも、光子数は測定のために一定とはならずある確率分布をもつというのがその解答であるが、この確率分布がどのような形であるかは、 $|\langle n|\alpha\rangle|^2$ という値を求めればわかる。(7) 式より

$$|\langle n|\alpha\rangle|^2 = \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} \exp[-|\alpha|^2] = p(n) \quad (8)$$

となり、ポアソン分布が得られる。 $|\langle n|\alpha\rangle|^2$ というものは α という一定振幅の光の光子数を測定したとき n という計数値の得られる確率であるが、(8) 式はこの確率分布が、 $|\alpha|^2$ 平均値とするポアソン分布になるということを示している。光子数の平均値 $\langle n\rangle$ は $|\alpha|^2$ に等しいので、平均値に関する限り、P.M. は自乗検知器であるといえるが、ポアソン分布から、その分散が $\langle n\rangle$ というゆらぎが常に存在することがわかる。この場合、分散が $\langle n\rangle$ であるので、標準偏差は $\sqrt{\langle n\rangle}$ であり、 S/N も $\langle n\rangle/\sqrt{\langle n\rangle} = \sqrt{\langle n\rangle}$ という結果が得られる。これが、最もゆらぎの小さい光を測定した場合のゆらぎであり、このような光をポアソン光と呼んでいる。レーザー光のようなコヒーレント光はポアソン光であるが、いわゆるインコヒーレント光は一般的にはポアソン光ではなく、確率分布 $p(n)$ はポアソン分布からずれ、分散は $\langle n\rangle$ より大きくなる。コヒーレント光の場合には、観測時間に無関係に確率分布 $p(n)$ はポアソン分布となるが、インコヒーレント光の場合の確率分布は観測時間 T によって変化するので、それは $p(n, T)$ と書かれる。インコヒーレント光の振幅 α というものは一定ではなく、振幅が α である確率分布はガウス形であるが、このような光はガウス光と呼ばれている。さらにスペクトル線の形状がローレンツ形であれば G-L 光と呼ばれる。G-L 光を観測したときのゆらぎは一般にはコヒーレント光よりも大きく、この大きい分、余分

のゆらぎ (excess noise) は観測時間 T によって変化する。ローレンツ幅を Γ (rad/sec) とすると、 $1/\Gamma$ はコヒーレンス時間と呼ばれるが、 T が $1/\Gamma$ に比較して非常に小さければ、確率分布 $p(n, T)$ はボーズ-アインシュタイン分布となりゆらぎは最も大きい。 T が大きくなるにつれて、分布 $p(n, T)$ は次第にポアソン分布に近づいて行く、確率分布 $p(n, T)$ の違いを表わすのに、分布の高次のモーメントを用いると便利である。分布の0次のモーメントは光子の総数で、1次のモーメントは光子の平均値であり、これらは分布形状に関する情報を含んでいないが、2次以上のモーメントは分布の形状によって異なる。 k 次のファクトリアルモーメントは規格化すると、ボーズ-アインシュタイン分布の場合には $k!$ であるが、ポアソン分布の場合には1である。すなわち、観測時間を0から ∞ まで変化させると分布の k 次のファクトリアルモーメントは $k!$ から1までの間で変化する。このモーメントの値と観測時間 T とスペクトル幅 Γ の間の関係は正確に求められており、たとえば2次のファクトリアルモーメント N_2 は

$$N_2 = 1 + \frac{1}{\Gamma T} - \frac{1}{2(\Gamma T)^2} + \frac{e^{-2\Gamma T}}{2(\Gamma T)^2} \quad (9)$$

である^{5,6)}。確率分布 $p(n, T)$ は T 時間の観測を何回もくり返し、測定された光子計数値を記録すれば容易に求めることができ、それから N_2 の算出を行うことも容易である。一方、観測時間 T というものは正確に決めることができるので、(9) 式を用いてスペクトル幅 Γ を知ることができる。これは光子の計数値のゆらぎを積極的に利用して、スペクトル線幅の測定を行なう話につながる。(9) 式からわかる今一つのことは ΓT が大きくなると N_2 は1になるということである。これは先にのべた観測時間を大きくすれば $p(n, T)$ はポアソン分布になるということを示している。

以上をまとめると、光子数 (光量) を測定した場合、光源が完全に定常的であるとしても、測定値は測定の度ごとに異なりある分布を持つ。そして、入射光がコヒーレント光である場合と、インコヒーレント光で観測時間がコヒーレンス時間に比して極めて長い場合には分布はポアソン分布となり、インコヒーレント光で観測時間とコヒーレンス時間が似ているときには分布はポアン分布からずれ、余分のゆらぎが現われるということになる。前者をポアソン光と呼び、後者を準ポアソン光と呼ぶ。ポアソン光には2種類の光があるが、このうちコヒーレント光は本質的にポアソン光であり、今一つのものは一つの極限状態としてポアソン光になったものであるとい

う区別ははっきりしておく必要がある。

5. P.M. の出力とそのゆらぎ

P.M. は光子を検出するものであり、その出力は光電流パルスの形で出ている。もし、P.M. および増幅器の分解時間内に2個以上の光電流パルスが出る確率が極めて小さいような (弱い光の) 場合には単一光電子現象とよばれ、そうでない場合には多重光電子現象とよばれる。いま単一光電子現象をとりあげ、その場合のP.M. の出力とそのゆらぎについて考える。P.M. の出力パルスは2種類のゆらぎを持っている。その一つは入射光の光子の統計によるもので、いま一つは出力パルスの高さのゆらぎである。光電面から1個の電子が放出されたとする。P.M. の増倍過程は一種の確率過程であるので、増倍率は一定でなくある平均値のまわりに分布をもっており、出力パルスもそれによりさまざまな値を持つことになる。光電流パルスの平均値を測定する方法を光電流法、光電流パルスを高いパルスも低いパルスも同じく1個のパルスとして計数する方法を光子計数法とよぶことにすると、光電流法の場合には2種類のゆらぎが含まれるのに対し、光子計数法では1種類のみのゆらぎとなる。光子計数法では、光電流パルスは広帯域増幅器で1000倍 (前置増幅器で10倍、主増幅器で100倍) 程度に増幅され、波高のべん別が行なわれ、べん別されたパルスは同じ高さのパルスに成形され、計数器で計数される。入射光がポアソン光であり、しかも暗電流がないと仮定すると、両者の場合のP.M. の出力 Q およびそのゆらぎ $Var(Q)$ は次のようになる。

$$\text{光電流法: } \frac{Var(Q)}{\langle Q \rangle^2} = \frac{1}{\langle n \rangle T} \left[1 + \frac{Var(q)}{\langle q \rangle^2} \right]$$

$$\text{光子計数法: } \frac{Var(Q)}{\langle Q \rangle^2} = \frac{1}{\langle n \rangle T}$$

ここで $\langle n \rangle$ は単位時間の平均パルス数、 T は測定値の積分時間、 $\langle q \rangle$ は平均パルス高さ、 $Var(q)$ は増倍過程によるパルスの高さの分散である。このことから、単一光電子現象の場合には光電流パルスの高さをそろえ、パルスの規格化を行なった方が S/N がよい。入射光の強さと時間分解能により、単一光電子現象とみなしてよいかどうかの判別がなされる。入射光の光子数の確率分布がポアソン分布であれば、光電流パルスの数の確率分布もポアソン分布であることが知られているが、(両者の平均値の間には光電面の量子効率が入るが、確率分布は変化しない⁶⁾) 光電流パルス数の確率分布がポアソン分布であるとする、単位時間の平均パルス数

が $\langle n \rangle$ のとき、1個のパルスが装置により $\Delta\tau$ の幅を持つとし、次のパルスがこの時間内に到達して2個のパルスがあたかも1個のパルスのように観測されることになる確率を求めると、

$$1 - \exp(-\langle n \rangle \Delta\tau) \sim \langle n \rangle \Delta\tau$$

となる。たとえば、 $\langle n \rangle = 10^3$ c/s, $\Delta\tau = 10^{-6}$ s とすると、単一光電子現象でないパルスが出る確率は 10^{-3} となる。

以上の変動の議論では P.M. の暗電流は無視したが、現実には暗電流は存在し、暗電流の大部分は光電流と同様パルスの形で現われる。この暗電流パルスの計数率は決して小さいものではなく、弱い光の測定では、暗電流パルス数より光電流パルスの数が少ないといった場面も少なくない。このような測定で S/N の議論を行なうには、暗電流パルスの計数率そのものと同様、暗電流パルスの統計的な性質を問題にしなくてはならない。暗電流パルスの確率分布がポアソン分布であるとき、S/N の向上に関する取扱いが最も楽で、ポアソン分布からずれるとむづかしくなる。暗電流の統計については後述するが、大体ポアソン分布であると見てよいので、暗電流の分布 $p(n)$ はポアソンであると仮定して、微弱光の測定における S/N の向上に関する議論を行なう。

弱い光を測定する場合、光をチョップするが、チョップのしかた、つまり、光を入れる時間と光を切っている時間の割合によって変化し、最適の割合というものがある。そして、この最適の割合は暗電流と光電流の比によって変化するので、この間の関係を求める。いま、 R だけ光を入れたとき、その時のパルスは光電流パルス s と暗電流パルス n の和であるので、パルスの数は $s+n$ 個である。光を $1-R$ だけ切り、暗電流パルスが m 個であるとする、実際の信号 S は

$$S = s + n - Cm \quad \text{但し } C = \frac{R}{1-R}$$

となる。ポアソン分布をした2つのパルス列の和は、その平均値の和を平均値とするポアソン分布であるので S の特性関数 $M(i\lambda)$ は

$$M(i\lambda) = \exp[-(\langle s \rangle + \langle n \rangle + \langle m \rangle)] \exp[(\langle s \rangle + \langle m \rangle)e^{i\lambda}] \exp[m e^{-i\lambda} C]$$

となり、信号の平均値 $\langle S \rangle$ およびその分散 $\text{Var}(S)$ は

$$\langle S \rangle = \langle s \rangle + \langle n \rangle - C \langle m \rangle = \langle s \rangle$$

$$\text{Var}(S) = \langle S^2 \rangle - \langle S \rangle^2 = \langle s \rangle + \langle n \rangle (1+C)$$

Fig. 2. S/N が最大になるチョップのしかた (R だけ光を入れ、 $1-R$ だけ光を切る) と光電流パルス暗電流パルス (r_s/r_n) の関係。

となる。ここで $\{\text{Var}(S)\}^{1/2}/\langle S \rangle$ を最小にするような α を求めると、 R は

$$R = 1 + \frac{r_n}{r_s} - \frac{r_n}{r_s} \left(1 + \frac{r_s}{r_n}\right)^{1/2} \quad (10)$$

となる。ここで r_s , r_n は光電流および暗電流パルスの平均計数率である。この式から、光電流パルスが暗電流パルスに比して極めて少ないような微弱光を測定する場合は $R=1/2$ で、光を入れる時間と切っている時間を等しくした方がよいこと、その逆の場合は光をチョップしない ($R=1$) 方がよいことがわかる。 r_s/r_n の値に対して、最適の R をプロットしたものを Fig. 2 に示す。もし、光電流および暗電流パルスの確率分布がポアソン分布でない場合には以上の議論は成り立たない。

微弱光を測定する場合には、暗電流パルスの数は少なければ少ない程よく、パルスの確率分布 $p(n)$ はポアソン分布であれば条件として最もよくなるが、暗電流パル

Fig. 3. P.M. の暗電流パルスのパルス波高に対するパルス数の分布。実線は常温におけるもの、点線は液体窒素温度におけるもの (10倍に拡大)。

スの数を少なくするにはどうすればよいのか、確率分布 $p(n)$ は実際はどのような分布をしているかということについてふれる。Fig. 3 はある P.M. の暗電流の波高分布である。暗電流パルスの源としては光電面から放出される熱電子によるもの、ダイノードからの熱電子によるものなど熱的なものと、非熱的なものにわけられる。非熱的なものとしては、P.M. の管壁の中に含まれている放射性物質によるもの、増倍中の電子が管壁に衝突した際の蛍光によるもの、残留ガスの励起、発光によるもの等いろいろなことがあげられている。熱的な暗電流パルスは単一電子現象であるのでパルス高さは低い所に分布するが、非熱的なそれは、同時にいくつかの光子が光電面に入射するような形で生ずるものが多く波高が比較的高い所に分布する。熱的な暗電流パルスは P.M. の光電面とかダイノードを冷却すれば減少するが、非熱的なものは減少しない。Fig. 4 は光電面を冷却したときの暗電流パルス数の変化を示したものである。温度を下げて行くと、

$$T^2 \exp(-W/kT)$$

という式に従ってパルス数は減少する。ここで T は温度 (°K) であり W はその面の仕事関数である。しかし Fig. 4 に見られ通り、減少はある温度で止り、後は温度に無関係な値になる。これが非熱的な暗電流パルスであると見られている。

熱的なパルス、非熱的なパルスについて、次に問題に

Fig. 4. P.M. の暗電流パルスの数と温度の関係、文献 7 による。

Fig. 5. P.M. の暗電流パルスの確率分布 $p(n)$. 測定回数は 10^4 回 (常温で中波高のパルスのみをとったもの)。

なるのは、それらの確率分布がどのようなになっているかということであるが、熱的な暗電流パルスはポアソン分布に従っていると考えてよいようである。分布の検定にはいろいろあるが、 $p(n, T)$ およびその高次のモーメントから知るのも一つの方法である。Fig. 5 に熱的な暗電流パルスの $p(n, T)$ の測定値の一例を、Table I に、各パルス高さにおける $p(n, T)$ の 2 次のファクトリアルモーメントの値を示す。パルス高さの比較的低いものはほとんど 1 に近くポアソン分布に従っていると見られるが、パルス高さの高いものの中にはわずかにポアソン分布からのずれが認められるようにも見られる。したがって、P.M. を冷却して、熱的なパルスをおさえ、しかも、暗電流パルスの統計性が問題になるような測定 (たとえば遅延同時計数分光) を行うような場合には注意を要する。

Table I. 暗電流パルスの確率分布の 2 次のファクトリアルモーメント N_2 . パルス高さが増加すると平均計数値 $\langle n \rangle$ は減少する。 $\langle n \rangle$ の減少により N_2 の精度は悪くなるが、パルス高さ 4.0 における値の 1 からのずれは測定誤差をこえている。測定回数は 10^4 回

Pulse height	$\langle n \rangle$	N_2
0.4	1.554	1.003
1.0	1.314	0.999
1.4	1.260	0.995
2.0	1.049	0.977
2.4	0.890	0.997
3.0	0.579	1.010
4.0	0.184	1.173

Fig. 6. 入射光のスペクトル線の形状と P. M. の光電流のパワースペクトル.

以上は P.M. の出力を光電流パルスとして取扱ったいわゆる単一光電子現象としてきたが、光の強度が強い場合、また、光電流を処理する回路の時定数が小さくない場合には多重光電子現象となり、光電流として信号が取扱われるが、P.M. の増倍過程のゆらぎや増幅器の雑音は時定数が比較的大きいため平均操作により無視できるものと仮定しても、光電流にはゆらぎがあり、そのパワースペクトル $P(\omega)$ は、入射光がローレンツ形の線スペクトルである場合

$$P(\omega) = \frac{1}{2\pi} e^{\langle i \rangle} + \langle i \rangle^2 \delta(\omega) + \langle i \rangle^2 \frac{2\Gamma/\pi}{\omega^2 + (2\Gamma)^2} \quad (11)$$

ただし、 i は光電流、 Γ はローレンツスペクトルの幅である。この式の第1項はいわゆるショットノイズ成分、第2項は直流成分、第3項が excess noise の成分である。この excess noise は Fig. 6 のように、一本のスペクトルの波長が異なる部分のビートによって生ずる余分のゆらぎで、光子計数の場合の $p(n, T)$ のポアソン分布からのずれの部分に相当している。スペクトル幅 Γ が大きくなると excess noise の部分は拡がってしまい、ショットノイズと見わけられなくなる。自然光の場合、 Γ は 10^9 Hz である。したがって、 10^9 Hz 以上の帯域中の検出系で信号を扱うようなことをしない限り、excess noise は観測されない。

6. 光量のゆらぎの測定と応用

光量の測定は、光電流パルス数の平均値 $\langle n \rangle$ や光電流の平均値 $\langle i \rangle$ で、確率分布の1次のモーメントに関する測定であり、高次のモーメントすなわちゆらぎの量は単なるゆらぎであり、測定の精度を左右するだけの量であると見られるだけである。そしてポアソン光の場合、標準偏差は、平均値の1/2乗であり、測定時間を長くするとその1/2乗に比例して測定の S/N が大きくなるというこに話がついてしまい、後はどのような手段で希望する測定時間を得るかということ、すなわち、信号

を処理する系の方式、帯域幅の設定や積分のやり方の問題に移行してしまう。さらに、一般の測光においては、入射光はほとんどすべてポアソン光であると考えてさしつかえがない。その理由の一つは取扱う光のスペクトル幅が測定時間の逆数に比して大きい場合が多いということ、今一つは測光する光学系の空間コヒーレンスが高くないということによる。

この光量の測定に対し、光量の測定値のゆらぎを測定することにより、入射光のスペクトル幅とか、偏光度とかを求める測定が近年増加してきている。これは入射光のポアソン光からのずれを見付け、その量から情報を得るもので、確率分布の2次以上のモーメントであるとか、2次以上の相関関数であるとか、光量が1次の量であるとすると2次以上の量を測定することに相当する。

G-L 光でも、観測時間が十分長ければポアソン光として観測されるので、この種の量の測定を行なうには、観測時間をスペクトル幅の逆数の桁まで近づける必要がある。また、光学系のコヒーレンスを高くするため、受光面の面積を小さくする。こうすると、測定値のゆらぎはポアソン光の場合より大きくなっていく。この大きくなったゆらぎを測定する方法と、そこから得られる量について特にスペクトル線の形状の測定を中心にしてのべる。

6.1 光電流のパワースペクトル

光電流を適当な帯域幅をもった増幅器で増幅し、狭帯域のフィルターを通しさらに2乗回路を通し、フィルターの中心周波数を変化させると (Fig. 7), (11) 式のパワースペクトル $p(\omega)$ が求められ、excess noise の形状から入射光のスペクトル線の形状を知ることができる。回折格子の分解能は 10^5 、F-P 干渉計のそれは 10^7 程度であるが、この光電流のパワースペクトルから光のスペクトルを知る方法や次にのべる方法を含め、光のゆらぎからスペクトルの形状を知る方法は分解能でいえば 10^{13} から 10^{14} に達するもので、むしろ、スペクトル幅にして 100 Hz から MHz、分解能にして 10^{12} から 10^8 のところで取扱いが容易である方法である。Fig. 8 に光電流のパワースペクトルの1例を示す。Fig. 8 (a) は一本のスペクトル、(b) は2本のスペクトルを有するもので、スペクトル幅、間隔は共に数百 Hz である。この例の光は

Fig. 7. 光電流のパワースペクトルを求める装置.

Fig. 8a. 1本のローレンツスペクトルを持つ光が入射した場合の光電流のパワースペクトル。

Fig. 8b. 2本のスペクトル線を持つ光が入射した場合の光電流のパワースペクトル。スペクトルの間隔 $\Delta\nu$ が0のもの (a), 150 Hz のもの (b) など。

He-Ne レーザーの散乱光である。散乱体は液体中の微粒子であり、幅は粒子のブラウン運動、間隔は並進運動にもとづくドップラー効果によって生じている。

6.2 光子計数値の統計分布の2次モーメントを用いる法

これは前述のように T 時間に n という光子計数値の確率分布を測定し、分布の高次モーメントを求める方法である。観測時間 T を求めるスペクトル幅の推定値の逆数と似た値に設定して多数回の測定を行ない、計数値を横軸に、その計数値が得られたひん度を縦軸にとると $p(n, T)$ が得られるが、この分布を用い2次のモーメント $\sum_n n(n-1)p(n, T)$ を計算して、(9)式を用いてスペクトル幅 Γ を求める方法である。この2次のモーメントは $\langle n(n-1) \rangle$ と書かれるが、これと1次の量 $\langle n \rangle$, すなわち光の強度を使ってスペクトル幅を知ろうとする方法である。Fig. 9 に $\Gamma T =$ で測定したときの分布 $p(n, T)$ と同じ平均値のポアソン光 ($\Gamma T = \infty$ で測定したものに相当) の分布を示す。この分布の2次のファクトリアルモーメントは 1.437 で、(9)式を用いて得られたスペクトル幅は 410 rad/sec である。ただし観測時間 T は 0.1 sec である。

Fig. 9. 有限のスペクトル幅を持った光の光電流パルスの確率分布 $p(n, T)$ を測定したもの (+印). 同じ平均値を平均値とするポアソン分布を実線で示す。

6.3 遅延同時計数値を用いる方法

光電パルスの確率分布がポアソン分布からずれているということは、パルスの列を、時間的に見ると、かたまったりパルスがやってくる確率が高いかあるいは排他的にまばらにするような傾向があるかどうかである。光子のようなボーズ粒子には前者の傾向があり、これはバンチング効果とよばれている。電子のようなフェルミ粒子には後者の傾向がある。したがって、ポアソン分布からのずれを、確率的な、パルスのかたまり方、すなわち、バンチングの量を知ることにより求めることができる。バンチング量は、光を半透鏡でわけ、2個の P.M. で光

Fig. 10. 遅延同時計数を行なう装置。

子を検出し、一方の P.M. の光電流パルスを遅延回路で遅延させて今一方の P.M. の光電流パルスとの間のコインシデンスをとり計数すれば、光子の相関量が得られるが、この値から知ることができる。遅延回路の代りに一方の P.M. の位置をずらしても同じであるし、Fig. 10 のように 1 個の P.M. の出力パルスを 2 つの道にわけ、一方の道のパルスを遅延させても同じことになる。今、遅延時間を τ とし、入射光がスペクトル幅 Γ の G-L 光であるとする、出力であるコインシデンスレート $R(\tau)$ は

$$R(\tau) \propto 1 + f e^{-2\Gamma\tau}$$

の形で与えられ、 $R(\tau)$ からスペクトル幅を知ることができる。 f は、光学系の空間コヒーレンス、P.M. の暗電流パルス数、さらに入射光の偏光度で決まる常数であり、0 と 1 の間の値を持っている。第 1 項はランダム (ポアソン成分) なパルス列の相関で一定値を示し、その上に第 2 項、すなわち、バンチした成分が対数的な形で現われている。この成分の形からスペクトルの形状を知ることができる。スペクトルの形がガウス形であればこの成分の形はやはりガウス形になる。また、2 本のスペクトル線が入射しておれば、その差の周波数で振動する形が得られる。すなわち、バンチング成分の形をフーリ

Fig. 11. レーザー散乱光の遅延同時計数率。対数的に変化している部分が光子のバンチングを示し、これをフーリエ変換すればスペクトル線の形状がわかる

エ変換すれば、スペクトルの形状が得られる。したがって、この方法は一種のフーリエ分光法とも見られる。Fig. 11 に $R(\tau)$ の 1 例を示す。

この方法を用いるとき、もっとも気をつかうのは遅延回路である。やはり、シフトレジスターとクロックを用いるなどして正確なパルスの遅延を行なった方がよい。単安定マルチバイブレーター等 RC で遅延時間を決める方法を探ると極めて回路は簡単になるが、構成によっては、入力パルスがランダムであることから、確率的に遅延時間が設定時間より短くなるようなゆらぎが生じ、無相関なランダムパルスに対しても、あたかもバンチングが存在するような結果を与える可能性が存在する。

6.4 光電流パルスの時間間隔分布を用いる法

上述の 2 つの分光法は、データーの収集の効率が強度測定に比較するとよくないという欠点を持っている。強度測定の場合は、 10^4 の計数値があれば S/N は 10^2 の測定となるが、確率分布 $p(n, T)$ の各点を同様の S/N で測定するために要する入力パルスの統数は 10^4 個よりはるかに多くなる。遅延同時計数の場合にも、ある遅延点の同時計数値は、同時計数を行なう時間幅が一般に短いので、強度、すなわち、平均計数値よりはるかに小さいものとなり、測定点の精度を高くするには、装置に相当多くのパルスを送り込まなければならない。このような効率の悪さを改善することを目的として、現在開発されつつあるのがこの方法である。光電流パルス列のパルス間の時間が t である確率分布 $p_1(0, t)$ や、パルスを 1 個おきにとり出すとして、その間隔が t である確率分布 $p_2(0, t)$ 、さらに、 k 個おきのその解析が進められている。これらの確率分布はスペクトル幅によって変化するので、分布の測定結果からスペクトル幅を知ることができる。分布の測定は到達時間間隔をパルス高さに変換して波高弁別器で測定する方法その他の方法で行なうことができる。パルス間隔分布の測定のデーターの収集効率は前述のものと変わらないが、これを一定時間 T だけ積分した量 $\int_0^T p_k(0, t) dt$ はスペクトル幅を含んでいるにもかかわらず、光の強度とほぼ同じ程度 ($\int_0^\infty p_1(0, t) dt$ は光の強度) の量であるので強度測定と同じ精度で測り得る量である。したがって他の方法で測定するのがむづかしい弱い光のスペクトル幅の測定を行なう場合には有用であると思われる。

7. おわりに

P.M. の出力のゆらぎは入射光の性質を反映しているが、この間の事情の大略を述べた。この問題は、スペク

トル線の線幅測定という積極的な利用面を持っている。色素レーザーなど波長可変レーザーが、共鳴蛍光測定に用いられる日がきた場合、蛍光とミー散乱やレーレー散乱光との間の判別が必要であるといったスペクトル線幅の測定の必要範囲も将来拡がるものと思われる。一方この問題は、光の強度測定の際の測定値のゆらぎの議論には欠かせない問題である。たとえば、くり返し現象の高速サンプリング測光において、サンプリングゲートの幅は、電子技術の進歩と共に短くなってきており、この幅が、スペクトル線幅の逆数程度で測定がなされることもめづらしくはなくなるであろう。このような場合は、 $p(n, T)$ の高次モーメントは 1 ではなく、入射光はもはや、ボアソン光とはみられないといった場面も生じるかも知れない。

ともかく、電子技術その他周辺技術の進歩にしたがって、P.M. の信号の持つ情報の見方も変わってくることはたしかであろう。

文 献

- 1) 林 達郎：分光研究 **22**, 233 (1973).
- 2) D. H. Martin Ed.: *Spectroscopic Technique* (North-Holland, 1967).
- 3) 南 茂夫, 内田照雄：応用物理 **38**, 789 (1969).
- 4) 南 茂夫, 内田照雄：分光研究 **19**, 187 (1970).
- 5) E. Jakeman and E.R. Pike: J. Phys. **A1**, 128 (1968).
- 6) E. Jakeman and E.R. Pike: J. Phys. **A1**, 406 (1968).
- 7) C.J. Oliver and E.R. Pike: J. Phys. **D1**, 1459 (1968).

正 誤 表 土屋, 堀口：「赤外線化学発光」

本誌 23 巻第 1 号 1~22 頁 (1974)

	誤	正
p. 4 脚 註	$k_{v+1,v} = P_{v+1,v} \sigma Z$	$k_{v+1,v} = P_{v+1,v} Z$
p. 5 左 7 行	$v \geq 12$ で $\Delta E > 0$	$v \geq 12$ で $\Delta E < 0$
"	$v < 12$ で $\Delta E < 0$	$v < 12$ で $\Delta E > 0$
p. 6 式(19)	R 枝	P 枝
式(20)	P 枝	R 枝
p. 7 左10行	$ \mathcal{M} ^2$	$ \mathcal{M}_v ^2$
p. 8 左 8 行	モーメントの小さい	モーメントの大きい
p. 12 Table I		
A) 16行	RM	MR
B) 13行	$O(^1D) + CHF_2$	$O(^1D) + CHF_3$
"	CH_2Cl_2F	CH_2ClF
p. 20 Table IV		
4 行	$\bar{f}_R = 0.66$	0.08
5 行	$\bar{f}_V = 0.08$	0.66
p. 21 文献16)	化学総説 No. 6	化学総説 No. 5
p. 22 文献78)	J.W.M. Smith	I.W.M. Smith