

解説

超高速光現象の計測

小林 孝嘉・三沢 和彦・竹内 佐年

東京大学理学部物理学科 〒113 東京都文京区本郷 7-3-1

(1993年1月6日受理)

Measurement of Ultrafast Optical Phenomena

Takayoshi KOBAYASHI, Kazuhiko MISAWA and Satoshi TAKEUCHI

Department of Physics, Faculty of Science, University of Tokyo,
7-3-1, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113

1. はじめに

本稿で「超高速光現象」とは、ピコ秒およびフェムト秒の超短パルス光によって、物質を非平衡状態（励起状態）へ導き、それから平衡状態（基底状態）へ戻る過程のことをいう。1ピコ秒（ 10^{-12} 秒）あるいはそれ以下の時間領域では、巨視的な物質の変化は全くおきず、対象はほとんどすべて分子や原子、あるいは固体内の電子や、それらの励起状態である。それらの励起状態が基底状態へ戻る過程である「緩和過程」を時間分解計測する手法が本稿の主題である。

特にフェムト秒の時間領域ではそれ自身がフェムト秒の時間分解能を有する検出器がほとんどなく、超短パルスレーザーによる非線形光学過程を利用した計測法に頼る以外にない。このような超高時間分解光学計測を可能にした超短パルスレーザーのパルス幅は、図1に示すように、ここ20年間に極めて速い進歩を示した。特に1980年代前半の超短光パルス発生技術は目覚しく、可視光の周期でわずかに3周期に相当する6fs（fs=フェムト秒= 10^{-15} 秒）パルスの発生が行われ¹⁾、1980年代後半から90年代初頭の現在に至るまで、ますます、高度な技術が応用の展開を可能にした。ある意味では、この発展は極めて高速な現象の観測による種々の物理過程、化学過程、さらには生物過程の理解が必要になってきたことによると言える。

これまでのレーザーによる短パルス発生はほとんどすべてモード同期により行われてきた。レーザー媒質の利得スペクトル幅内には、多数の共振器モード周波数が存

在する。特に制御を行わない場合には、レーザー媒質の利得飽和等による非線形性のためにモード間に結合が起き、モード引き込みやモード競合が起きる。元来レーザー媒質の持っている揺らぎや、自然放出雑音あるいは共振器の機械的、熱的揺動により、モードは極めて複雑な時間変化を無秩序に示すようになる。ここで何らかの非線形性により、他の揺動により揺らぎがないようにモード間を強固に結合させてしまう方法がモード同期であり、その結果、利得スペクトル幅の逆数程度の時間幅をもつ超短パルス発生が可能になったのである。この超短パルス発生はそれ自体が主要な研究対象となり得るが、それだけでなく、新しい超高速現象の分野の研究を切開いていくことになった。以下にこれらの超短パルス光を用いた緩和過程測定法の実際について述べる。

2. 緩和現象とは²⁻⁴⁾

レーザーからのコヒーレント光によって巨視的振動分極がひき起こされたり、基底-励起状態の電子分布密度の変化を誘起されたりした物質は、やがて分極のコヒーレンスの低下やエネルギーの散逸を伴って分極のない基底状態に戻ってゆく。この過程を一般に緩和過程と呼んでいる。この緩和過程はエネルギー緩和と位相緩和の二つに大別でき、それぞれの緩和過程に現象論的な時定数を導入して考えると便利である²⁾。まずエネルギー緩和とは電子の実励起の結果、励起状態の各電子準位の分布密度に変化が起き、それが次第にエネルギーを失いながら基底状態の分布に戻る過程のことで、分布緩和、縦緩和とも呼ばれ、減衰時定数としてエネルギー（分布、縦

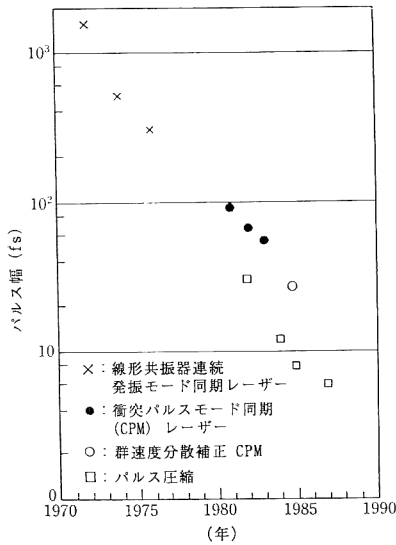


図 1 最短パルス幅の推移

緩和時間 (T_1) で特徴付けられる。それに対し、物質中に誘起された巨視的分極が減衰していく過程を位相緩和過程と呼んでいる。光電場との相互作用を通して微視的分極が誘起され、励起がコヒーレントである時は、その微視的分極は位相を揃えて互いに強め合う干渉効果により、巨視的分極を作り出す。しかしフォノンや荷電担体との散乱を重ねるにつれて各分子の微視的分極の位相は乱れてゆき、それらの重ね合わせとしての巨視的分極は次第に減衰していく。こうして系の同位相に揃っていた微視的分極がばらばらになる過程が純位相緩和過程なのである。この緩和過程は、分極緩和、横緩和とも呼ばれ、その減衰時定数が純位相 (分極、横) 緩和時間 (T_2) である。縦緩和による巨視的分極の減衰を含めて、(全)位相緩和と呼ぶことがある。この位相緩和時間 (T_2) はスペクトルの均一幅の逆数程度になっている。なお、分極に寄与する各電子が周囲の環境の違いにより各々異なる振動周波数に統計的分布をしている (不均一広がりを持つ) 系では、たとえ散乱がなくても微視的分極の位相が時間の経過とともにずれ巨視的分極が減衰するが、これは不均一緩和と呼んで区別している。

電子励起に伴うエネルギー緩和、位相緩和のほかに、振動励起状態からの緩和過程もある。ある振動エネルギーに相当する光を直接吸収するか、あるいは二つのコヒーレントな光の差周波によってラマン振動モードが誘起される過程により特定の振動励起状態に励起された後、格子振動、分子内振動、熱浴等との相互作用により振動の位相情報を徐々に失っていく。これを特に振動位

相緩和現象と呼んでいる。また、分子の場合電子励起とともに分子の振動も励起された場合、すなわち分子が電子励起準位の振動状態 (振電状態) に励起された時は、電子のエネルギー緩和と振動緩和とが重畳して観測される。

3. 測定法

これらの緩和過程を時間分解計測するための代表的な非線形分光法に四光波混合がある。四光波混合とは、振動数 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$, 波動ベクトル $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ をそれぞれ持つ三つの入射光から、物質の三次の非線形光学効果により、振動数 $\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$, 波数ベクトル $\mathbf{k}_4 = \pm\mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2 \pm \mathbf{k}_3$ を持つ第四の光が放出される過程の一般的名称である。その振幅、偏光特性、波長分散は三次の非線形感受率 $\chi^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ によって記述される。 $\chi^{(3)}$ によって記述されるそれら数多くの現象の中には、第三高調波発生や電場誘起第二高調波発生、カー効果等も含まれる。

四光波混合過程には、入射光線数、方向、偏光等によりいくつかの異なる配置があり、それらを図 2 にまとめて示した。以下にさまざまな超高速光現象計測法について、この原理図を用いて述べていくことにする。

3.1 エネルギー緩和過程の測定

エネルギー緩和は、系の励起状態にある電子の分布数

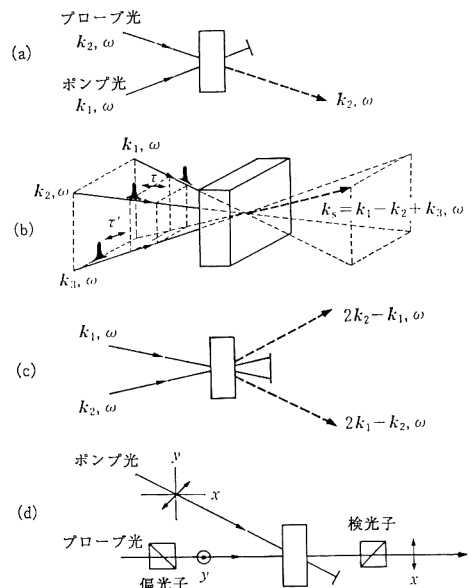


図 2 縮退四光波混合の光学配置 (a) ポンプ-プローブ法, (b) 3ビーム folded boxcars 型, (c) 2ビーム自己回折型, (d) カーシャッター配置.

が変化して基底状態の分布に戻っていく過程であるから、分布の移動を何らかの方法で検出すればよい。それらには、ポンプ-プローブ法、過渡的回折格子法、時間分解発光分光法などがある。以下に例を挙げながらこれら三つの手法について概観する。

3.1.1 ポンプ-プローブ法

ポンプ-プローブ法は図 2 (a) に示す配置で、励起パルス k_1 とそれから適当な時間だけ遅らせた検索光 k_2 を試料へ入射し、試料を透過 (反射) した k_2 方向の検索光強度を測定し、励起したことによる試料の吸収 (反射) 変化量を各遅延時間について求める。四光波混合の観点からすると、 $\omega_2 = (\omega_1 - \omega_1) + \omega_2$, $k_2 = (k_1 - k_1) + k_2$ の非縮退四光波混合ということになる。

系が励起状態になると、まず基底状態の分布の枯渇と遷移終状態の充填により、基底状態で見られた吸収が減少する褪色が見られる。また、励起により分布の生じた励起状態からより高い励起状態への新たな吸収 (誘導吸収) が現れる。この両者はともに状態数の分布が基底状態のそれに戻るとともに減少する。したがって、褪色や誘導吸収の時間変化から励起状態の寿命やエネルギー緩和時間を見積もることができる。ただしポンプ-プローブ法の場合に励起光と検索光がスペクトル的、時間的に重なっている領域では、励起光と検索光とのコヒーレントな相互作用により信号の変化が T_1 のみならず T_2 にも依存しているために、結果の解析、解釈はやや複雑である。このほか、誘導ラマン散乱、誘起位相変調、光シ

ュタルク効果などパルス波形に追従する信号も重畳されるため、留意する必要がある。

図 3 にわれわれの研究室で用いているポンプ-プローブ分光法の配置を示す^{5,6)}。光源は、CW アルゴンレーザー励起の衝突パルス型モード同期 (CPM) リング色素レーザーの出力光を、四段色素増幅器で増幅した波長 625 nm、パルス幅 100 fs、エネルギー 200 μ J、繰返し 10 Hz のパルス列である。これを二つに分け、一方は可変遅延路を通して励起光として試料に集光する。他方は四塩化炭素の入ったセルに集光し、自己位相変調の結果発生したフェムト秒広帯域光 (400~1000 nm) を検索光および参照光として用いてある。これらはポリクロメーターで分光の後、マルチチャンネル検出器で一度に 240 nm の範囲にわたって測定する。

一次元共役高分子の一種 poly[(*o*-trimethylsilyl)phenylacetylene] の薄膜についてポンプ-プローブ法で測定した結果を図 4 に示す⁷⁾。励起光の波長、パルス幅、強度はそれぞれ 625 nm (1.98 eV), 100 fs, 2×10^{16} photons/cm², 測定温度は 10 K である。励起光パルスが試料に達し始める遅延時間 -0.05 ps から低エネルギー領域 (1.2~1.6 eV) に誘導吸収が現れ、そのピーク位置は時間とともに高エネルギー側へとシフトする様子が見られる。一方励起光エネルギーより高エネルギー側では褪色が広がり、その後次第に減衰することがわかる。特に 1.8 eV 付近に見られる誘導吸収ピークは、遅

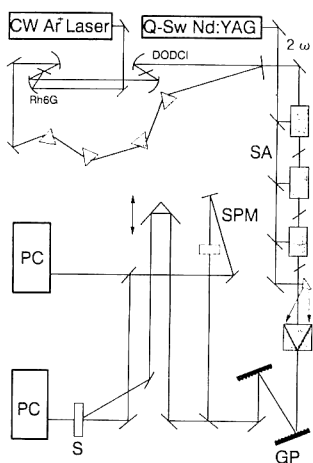


図 3 われわれの研究室で開発したフェムト秒分光装置
SA: 可飽和色素, GP: 回折格子対, SPM: 自己位相変調光発生用セル, PC: ポリクロメーター, S: 試料。

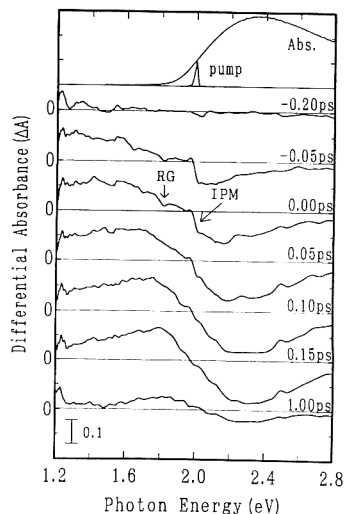


図 4 図 3 の装置で測定した、poly[(*o*-trimethylsilyl)phenylacetylene] 薄膜のフェムト秒過渡吸収スペクトル
RG: ラマン増幅による信号, IPM: 誘起位相変調による分散形信号。

延時間のベキ乗 $t^{-0.65}$ の形で減衰するという特徴的な振舞いを示し、光励起された局在励起状態の一種であるソリトン対による新たな吸収と考えられる。

3.1.2 過渡的回折格子法

過渡的回折格子法も、四光波混合の特殊な場合である。中でも図2(b) folded boxcars 型がいくつかの長所を持つので、以下ではこの配置についてみていく。

まず第一、第二の光パルスをそれぞれ k_1 , k_2 の方向から試料に同時に入射した場合から考えていく。この時二つの入射光が有限の角度で交わるため、それらの干渉の結果、試料内部に $\pm(k_1 - k_2)$ の空間周波数を持つ干渉縞（過渡的回折格子）が三次元的に形成される。ここに適当な遅延時間をおいて第三の検索光を k_3 の方向から入射すると、干渉縞によって回折され、位相整合した $k_4 = k_3 \pm (k_1 - k_2)$ の方向に信号光が放出される。回折光の電場振幅は検索光が入射した時の干渉縞の振幅に比例するため、第三パルスの遅延時間を変えることにより干渉縞が消え去る過程を測定することができる。

過渡的回折格子が形成される光学非線形性の原因は幾つか考えられる。用いた光周波数が電子遷移に共鳴している場合には、入射光線の干渉縞に対応する形で励起状態分布密度が変化することにより、分布の周期的構造が形成される。これによってできる格子を分布格子と呼ぶ。分布の周期的構造に対応して光学定数の周期的な変

調が起こり、回折格子が形成されるわけである。吸収飽和や新たな誘導吸収などの吸収係数の変化が起こる場合の回折格子を振幅格子と呼ぶ。またこれに伴って屈折率も当然変化するが、この場合は、位相格子と呼ぶ。このような機構によって生成された過渡的分布回折格子は、電子分布が基底状態に緩和するにつれてその振幅も減衰するため、回折光強度の時間変化により主にエネルギー緩和過程を研究することができる。さらに光吸収に伴う試料の温度上昇によっても吸収係数や屈折率が変化し非線形性が現れるが、熱的効果は試料内部の熱の拡散過程によって緩和するため、ピコ秒以下の時間スケールでは時間的に分離されることが多い。

3.1.3 時間分解発光分光法

ピコ秒時間領域の時間分解発光分光法では、それ自身時間分解能を有するストリークカメラを用いる方法が最も簡単である。しかし、電気的ジッターにより装置の時間分解能が制限され、1 ps 以下の分解能を得るのは難しく、また装置が高価であることが難点である。

フェムト秒領域の時間分解能をもつ発光分光の例として、和周波ゲート法を用いた Shah らの研究がある⁹⁾。彼らは試料から放出される発光と、それに同期したフェムト秒パルスを非線形光学結晶 LiIO_3 (厚さ 0.3 mm) に入射し、位相整合条件下で発生した和周波成分を検出した。図5に実験装置を示す。色素レーザー (波長 610

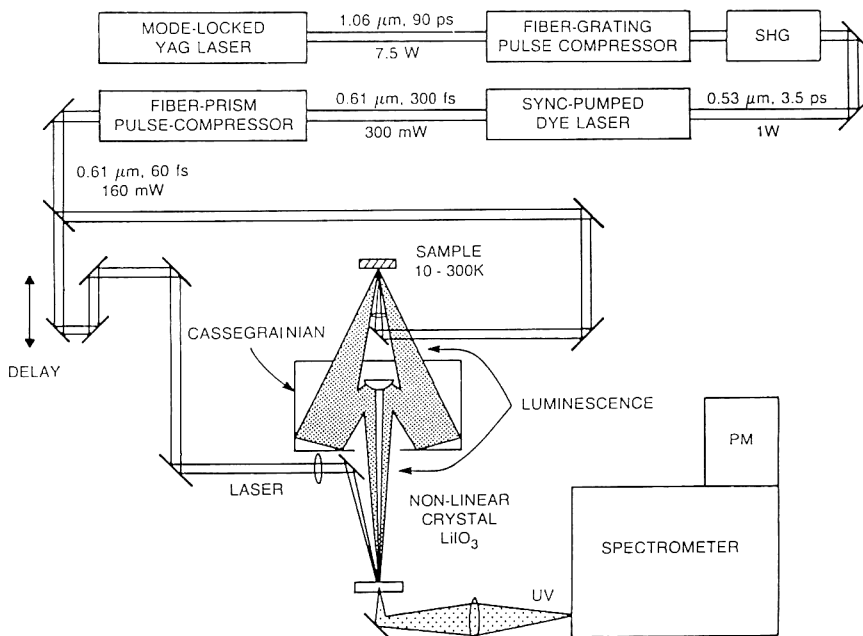


図5 和周波発生法によるフェムト秒時間分解発光分光装置

nm, パルス幅 60 fs) を光源とした発光強度の時間変化は発光とゲート光との時間遅延を変えながら和周波光強度を測定することにより求められる。時間分解能は用いるパルス幅と非線形結晶中での群速度不整合により、約 65 fs であった。

しかしながら、この和周波ゲート法の信号雑音比は極めて悪く、しかも時間分解スペクトルを一度に測定することはできない。われわれは同程度の時間分解能を持った、はるかに高感度のプローブ飽和分光法を新しく開発した⁹⁾。これは、前述のポンプ-プローブ分光装置を用い、これから得られるデータの誘導放出のスペクトルに共存する可能性のある誘導吸収を、プローブ光を強くすることにより飽和させて前者のみ観測することによる。このようにして得られた誘導放出スペクトルから自然放出スペクトルを Einstein の自然放出係数と誘導放出係数の関係から計算により得る方法である。これにより、量子効率 10^{-5} 以下といういわゆる無蛍光性の青相ポリジアセチレンの蛍光スペクトル(図6)、およびその時間依存性(<100 fs)を得ることができた。この方法によれば、もっと量子効率の低い「無蛍光性」物質の蛍光スペクトル測定の一的方法となり得る。

3.2 位相緩和過程の測定

コヒーレントに励起された系の分極状態が、元のランダムな位相関係に戻る位相緩和過程の測定はコヒーレント過渡分光と総称される。位相緩和過程には、電子励起に伴う(電子)位相緩和と振動励起に伴う振動位相緩和等がある。代表的な測定法として、前者では四光波混合(および光エコー)、後者ではコヒーレントラマン分光が挙げられる。ここでは事例を交えながら、これらについて概説する。

3.2.1 電子位相緩和過程の測定

電子位相緩和を測定するには縮退四光波混合法による。すなわち、入射光のすべてが電子遷移に共鳴してい

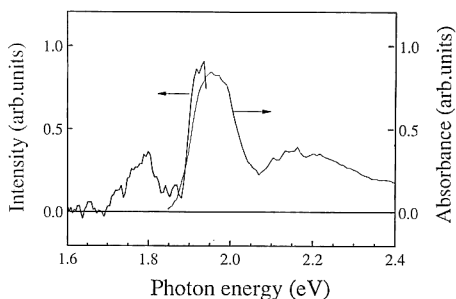


図6 プローブ飽和分光法によって測定した、無蛍光性青相ポリジアセチレンの蛍光スペクトル

る場合で、その時には第一、第二パルスを必ずしも同時に入射しなくてもよい。第一パルスにより試料中に生じた振動分極が位相を保っている間(位相緩和時間以内)に第二のパルスが到着すれば、その分極と第二パルスの光電場との干渉により、3.1.2で述べた過渡的回折格子が形成される。したがって第一パルスと第二パルスの時間間隔を変えながら第三パルスの回折強度を測定していくと、第一パルスによって試料中に生じた分極の干渉性の減衰の様子、すなわち位相緩和過程を時間分解して測定できる。関与するすべての分子が同じ遷移エネルギーを持っている場合(均一広がり)、回折光強度は $T_2/2$ の時定数で指数関数的に減衰する。逆に各分子の遷移エネルギーに分布があり(不均一広がり)、その分布が均一幅より十分広い場合、回折光は光エコーとなり $T_2/4$ の時定数で減衰する。

このように縮退四光波混合の測定では縦緩和と横緩和の両方が関与しており、三つの入射光間の相互の遅延時間の掃引の仕方により、いずれか一方、または両方を測定することができる。特に位相緩和時間の測定では、図2(c)のように2本のパルス光 k_1, k_2 を入射し、 $2k_1 - k_2, 2k_2 - k_1$ 方向に放出される信号光強度を k_1, k_2 間の遅延時間の関数として測定する方法が多く用いられる。この配置を前方自己回折型縮退四光波混合と呼び、上で述べた三光線四光波混合において、 $k_3 \sim k_1$ とおいた場合に相当する。

過渡的回折格子の寿命よりも十分短いパルス間隔で励起光が照射される場合には、過渡的回折格子が蓄積されてエコー信号が強められ、これを蓄積フォトンエコーと呼んでいる⁹⁾。また、短パルスの代りに関与時間の短いインコヒーレント光を用いて位相緩和時間あるいは分布緩和時間をフェムト秒の時間分解能で測定する方法も開発された¹⁰⁻¹⁶⁾。この方法は、上の蓄積エコー効果が現れる場合に最も有効に適用される。

3.2.2 振動位相緩和過程の測定

コヒーレントな振動励起状態を誘起し、その位相がランダムになっていく過程を測定する手法としてコヒーレントラマン分光法がある。非縮退四光波混合過程の一種であるから、配置は前節で説明したものとほぼ同じである。コヒーレントラマン分光の場合、異なる周波数 ω_1, ω_2 を持つ光パルスを k_1, k_2 の方向から同時に入射し、その差周波 $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ に相当する特定の振動モードをコヒーレントに誘起する。この振動が位相を保っている間であれば、遅れて入射した第三パルス (ω_3, k_3) のラマン散乱が引き起こされる。第三パルスの遅延時間を変え

ながらラマン散乱光強度を測定すれば、振動励起状態の位相が乱されていく過程を明らかにできる。散乱の種類によってコヒーレントストークスラマン分光 (CSRS), コヒーレント反ストークスラマン分光 (CARS) 等と分類されている。われわれは、コヒーレントレーザーとインコヒーレント光の両方を用いる方法により振動位相緩和時間を測定する方法を提案し、実際にその測定に成功した¹²⁾。

3.3 干渉計による非線形屈折率の測定

これまで述べてきた非線形分光法において、物質の非線形光学過程の機構を系統的に研究するには、非線形感受率の実部と虚部とを分離することが不可欠である。

われわれのグループでは参照干渉計付き高速フーリエ変換干渉計¹⁷⁾および、周波数領域干渉計¹⁸⁾という2種類のフェムト秒時間分解干渉計を開発し、三次の非線形感受率の実部と虚部とを同時に分離測定する方法を考案した。

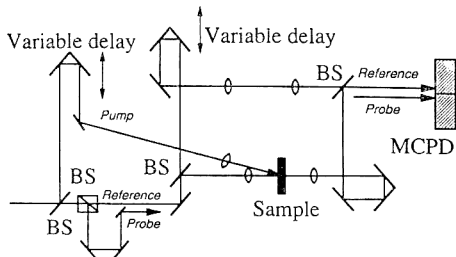


図7 フェムト秒時間分解高速フーリエ変換マッハツェンダー干渉計
BS: ビームスプリッター, MCPD: マルチチャンネルフォトダイオード。

参照干渉計付き高速フーリエ変換干渉計は、図7のような干渉計の一方の光路に試料を入れ、励起光としてフェムト秒パルスレーザーを照射し、光誘起干渉縞変化を測定する。縞の振幅の空間依存性を高速フーリエ変換し、位相と振幅の励起光照射による変化から非線形感受率の実部と虚部を求めることができる。また、励起光と干渉計の検索光の時間遅延を変えることにより、時間応答も測定することができる。

参照干渉計を用いることによって、干渉計の揺動の原因となる機械的振動等による光路差変化および入射ビームの強度・空間的ふらつき両方ともある程度まで補正することができる。10 Hz Qスイッチ Nd:YAG レーザー励起の色素増幅器で増幅した衝突モード同期 (CPM) 色素レーザーを用いて 100 ショット積算で最小検出位相変化 $\lambda/250$ を得ることができた。

われわれの周波数領域干渉計は図8に示すようなマイケルソンの干渉計を利用したフェムト秒位相分光法である¹⁸⁾。非線形感受率の周波数分散 (波長依存) をフェムト秒の時間分解能で知るためには、虚部については上で述べたポンプ-プローブ法が一般的である。しかし実部についてはこのような簡便な方法がなく、固定波長での位相の時間変化¹⁹⁻²¹⁾ が測られた例はあるが、波長分解と時間分解を位相について同時に行った例はない。時間分解分光で位相変化の分散を求めるためにはポンプ-プローブ法で得られた信号についてクラマス・クロニッチ (K-K) 変換が用いられるのが普通だが、全波長領域での透過率変化の情報が必要なために厳密には正しい位相分散は得られない。

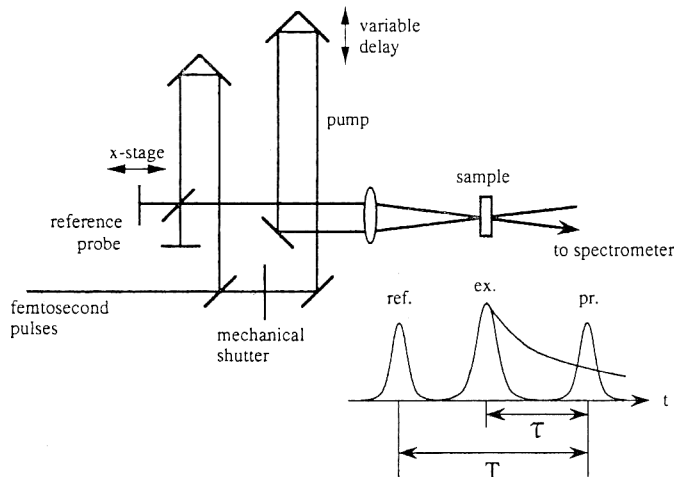


図8 フェムト秒時間分解周波数領域干渉計
ex.: 励起光, pr.: プローブ光, ref.: 参照光。

われわれの新しい方法では、ポンプ-プローブ法の実験配置にミラーとハーフミラーを1枚ずつ加えただけの時間分解干渉計としてはこれまでで最も簡単なものであるが、これで位相分散の測定が可能である。それは周波数領域の干渉を利用しているからである。すなわち時間領域に二つのピーク（プローブ光と参照光）があればそれをフーリエ変換（分光）すると周波数領域に干渉縞が現れる。これは周波数領域に二つのピークがあると時間領域にビートが起こることの全く逆の現象としてよく理解できる。

4. おわりに

ページ数の制限によりモード同期レーザーの発生機構などについては省略した。モード同期レーザー自身、およびそのほかの詳細については筆者の最近著した総説、著書²²⁻²⁵⁾を参照していただければ幸いである。なお、ここで紹介したわれわれの研究室で行われた研究は吉澤雅幸、服部利明、寺峯亨、徳永英司、美濃島薫、黒河賢二、泰地真弘人、安田明央氏らの協力によるものである。ここに著して感謝したい。

文 献

- 1) R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker and C. V. Shank: "Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation," *Opt. Lett.*, **12** (1987) 483-485.
- 2) M. D. Levenson and S. S. Kano: *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, Revised ed. (Academic Press, San Diego, 1988).
- 3) 三沢和彦, 小林孝嘉: "非線形光学過程における超高速緩和計測", *固体物理*, **24**, 11 (1989) 95-103.
- 4) K. Misawa and T. Kobayashi: "Ultrafast dephasing measurement by transient four-wave mixing," *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **182 A** (1990) 125-137.
- 5) M. Yoshizawa, A. Yasuda and T. Kobayashi: "Ultrafast optical response in polydiacetylenes and polythiophene," *Appl. Phys.*, **B 53** (1991) 296-307.
- 6) T. Kobayashi, M. Yoshizawa, U. Stamm, M. Taiji and M. Hasegawa: "Relaxation dynamics of photoexcitations in poly-diacetylenes and polythiophene," *J. Opt. Soc. Am. B*, **7** (1990) 1558-1578.
- 7) S. Takeuchi, M. Yoshizawa, T. Masuda, T. Higashimura and T. Kobayashi: "Confinement effect of photogenerated soliton-antisoliton pair on the ultrafast relaxation in a substituted polyacetylene," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-28** (1992) 2508-2517.
- 8) J. Shah, T. C. Damen and B. Deveaud: "Femtosecond luminescence spectroscopy: Investigation of semiconductor microstructures," *Ultrafast Phenomena VI*, eds. T. Yajima, K. Yoshihara, C. B. Harris and S. Shionoya (Springer, Berlin, 1988) pp. 288-293.
- 9) W. H. Hesselink and D. A. Wiersma: "Picosecond photon echoes stimulated from an accumulated grating," *Phys. Rev. Lett.*, **43** (1979) 1991-1994.
- 10) N. Morita and T. Yajima: "Ultra-high-time-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light," *Phys. Rev.*, **A 30** (1984) 2525-2536.
- 11) S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara and M. Matsuoka: "Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd³⁺-doped silicate glass," *Phys. Rev.*, **A 29** (1984) 2286-2289.
- 12) T. Hattori, A. Terasaki and T. Kobayashi: "Coherent Stokes Raman scattering with incoherent light for vibrational-dephasing-time measurement," *Phys. Rev.*, **A 35** (1987) 715-724.
- 13) T. Kobayashi, T. Hattori, A. Terasaki and K. Kurokawa: "Femtosecond relaxation processes in nonlinear materials studied with incoherent light," *Rev. Phys. Appl.*, **22** (1987) 1773-1784.
- 14) T. Kobayashi, A. Terasaki, T. Hattori and K. Kurokawa: "The application of incoherent light for the study of femtosecond-picosecond relaxation in condensed phase," *Appl. Phys.*, **B 47** (1988) 107-125.
- 15) K. Kurokawa, T. Hattori and T. Kobayashi: "Sub-picosecond molecular dynamics studied by degenerate four-wave mixing with incoherent light," *Phys. Rev.*, **A 36** (1987) 1298-1304.
- 16) K. Misawa, T. Hattori and T. Kobayashi: "Measurement of dephasing time using incoherent light in the Kerr shutter configuration," *Opt. Lett.*, **14** (1989) 453-455.
- 17) K. Minoshima, M. Taiji and T. Kobayashi: "Femtosecond time-resolved interferometry for the determination of complex nonlinear susceptibility," *Opt. Lett.*, **16** (1991) 1683-1685.
- 18) E. Tokunaga, A. Terasaki and T. Kobayashi: "Frequency-domain interferometer for femtosecond time-resolved phase spectroscopy," *Opt. Lett.*, **17** (1992) 1131-1133.
- 19) D. Cotter, C. N. Ironside, B. J. Ainslie and H. P. Girdlestone: "Picosecond pump-probe interferometric measurement of optical nonlinearity in semiconductor-doped fibers," *Opt. Lett.*, **14** (1989) 317-319.
- 20) N. Finlayson, W. C. Banyai, C. T. Seaton, G. I. Stegeman, M. O'Neill, T. J. Cullen and C. N. Ironside: "Optical nonlinearities in CdS_xSe_{1-x}-doped glass waveguides," *J. Opt. Soc. Am. B*, **6** (1989) 675-684.
- 21) C. de C. Chamon, C. K. Sun, H. A. Haus and J. G. Fujimoto: "Femtosecond time division interferometry technique for measuring the tensor components of $\chi^{(3)}$," *Appl. Phys. Lett.*, **60** (1992) 533-535.
- 22) 小林孝嘉, 吉沢雅幸, 三沢和彦, 服部利明: "非線形光学物質の超高速応答", 季刊化学総説 No. 15, 非線形光学のための有機材料, 日本化学会編 (学会出版センター, 東京, 1992) p. 175.
- 23) 小林孝嘉: "第9章 超高速分光技術", 超高速分光技術, 矢島達夫編 (丸善, 1990).
- 24) 小林孝嘉: "超短パルス光をつくる", 金属 (アグネ出版), 3月号 (1992) 91-95.
- 25) 小林孝嘉: "超短パルスレーザー", 物理学最前線, 第30巻 (共立出版, 1992) pp. 99-173.