

矢島達夫

- 1) A. Onuki and K. Kawasaki, *Physica* **111A**, 607–21 (1982).
 - 2) H. Goldstein, “*Classical Mechanics*” Addison-Wesley 2nd Ed. p. 147 (1980).
 - 3) A. Morita and H. Watanabe, *J. Chem. Phys.* **70**, 4708–13 (1979), **73**, 230–34 (1980), **75**, 1320–24 (1981), **77**, 1193 (1982).
- H. Watanabe and A. Morita, *J. Chem. Phys.* **73**, 5884–88 (1980), **75**, 379–82 (1981).

非線形分光法による超高速緩和現象の研究

東大物性研 矢 島 達 夫

非線形過程と緩和過程の関わり合いには種々の様相がある。ここで取上げるのは、非線形光学現象に現われる物質の緩和効果を明らかにし、これを利用して逆に非線形光学現象の観測を通じて緩和情報を得ようとする分光学的研究である。

このこと自体はレーザー分光学の分野で比較的早くから試られていたのであるが、極限的短時間領域 ($\lesssim 10^{-12}$ s) の緩和過程に対しては従来あまり有効な方法がなかった。その方策として我々が主として開発した新しい非線形分光法の理論と実験を総括的に解説する。このような超高速緩和過程の対象は固体・液体・気体・プラズマ・生体などに広く存在し、極限物性の一端として重要である。また、極限短時間域では統計現象の捉え方自体を見直さなければならぬという基本的興味もある。

我々の目的は一般的な方法論の確立にあるので、まず、物質の普遍的モデルとして、非均一拡がりをもつ2準位系に現象論的緩和時間 (T_1 : 縦緩和時間, T_2 : 横緩和時間, T_3 : 交差緩和時間) を導入したものを考える。非線形分光では、これに周波数、波動ベクトル、パルス時刻などの異なる複数個の入射光を加え、その非線形結合効果によって生ずる新しい出力光、又は入射光の変化を観測して緩和情報を求めるのである。大別すると非線形感受率の周波数特性を測定する周波数領域の方法と、過渡的励起に伴う時間変化をみる時間領域の方法とがある。非線形分光法の特徴は、不均一拡がりの影響や、異種の緩和を容易に分離できて信頼性ある緩和情報を与える点にある。

我々は2種の入射光による1光子共鳴3次非線形現象を系統的に調べ、特に超高速緩和の研究に適した方法として(1)共鳴レイリー型光混合、(2)共鳴カー効果、(3)空間パラメトリック効果の手法を開発した。(1)、(2)は周波数領域の方法で、周波数 ω_1 , ω_2 の入射光に対し、(1)は $2\omega_1 - \omega_2$ の出力光を、(2)は ω_2 光の変化を $\omega_1 - \omega_2$ の関数として観測する。(3)は時間領域の方法で、

「凝縮相における非線形光励起と超高速緩和過程の理論」

同一周波数で異なる波動ベクトル $\vec{k}_1, \vec{k}_2$ の入射パルスに対し、 $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ の出力光を入射パルス間隔の関数（相関波形）として観測するもので、フォトン・エコーを一部に含む。これらから T_1, T_2, T_3 またはその結合値が直接に定められ、特に他の方法では困難な T_2 の決定に有力である。上記の諸方法は互に相補的な特徴をもち、また cross check の役割も果す。実験は主に液体及び固体中の色素分子の一重項電子励起状態を対象として行われ、 $10^{-13} \sim 10^{-14}$ s の緩和時間が求められて、緩和機構に関する知見も得られた。周波数領域と時間領域の方法による結果の比較も行われ、その差異の原因が検討されている。

上記の拡張として、3種の入射光や2光子共鳴の場合も取上げられた。また、極短パルスレーザ技術の現状についても紹介された。

次に最近の試みとしてインコヒーレント光源による非線形分光がある。従来、時間領域の分光において時間分解能を支配していたのは、光源のパルス幅 (t_p) や立上り時間 (t_r) であったが、 t_p や t_r が $\lesssim 10^{-13}$ s 程度の領域になると、その生成・制御・測定は困難を極める。一方、時間的にインコヒーレントな光は、ほぼスペクトル幅の逆数に相当する極めて短い相関時間 t_c をもつ。この t_c で時間分解能が決るような分光法が可能になれば、超高速緩和の研究に大いに役立つ。その可能性を探るため、ガウス型ランダム性の入射光に対する空間パラメトリック効果について、 $t_p \gg T_1, T_2 \gg t_c$ の条件で解析を行った。その結果、相関波形にはやはり緩和のみで決る減衰特性が現われ、インコヒーレント光が基本的には幅 t_c のパルス光と同等の役割を果すことが確かめられた。

最後に、緩和が単純な物性定数では表わせないような場合について簡単に言及された。

「凝縮相における非線形光励起と超高速緩和過程の理論」

山口大学教養部 相 原 正 樹

一般に、光励起された非平衡系の中間状態における緩和の様相は、光吸収と光放出の間の種々の相関（時間相関、エネルギー相関、偏光相関、等）に反映される。しかし、凝縮相に対するこの2次の光学過程に関するこれまでの研究は、入射光強度が十分に弱い場合の線形応答にほぼ限られてきた。

一方、原子（分子）気体等の非凝縮相に対しては、非線形光励起による方法が、系の緩和現象を調べるのに通常の線形励起よりはるかに有用な種々の手段を提供することは良く知られている。