

## 論文の内容の要旨

論文題目 **励起子系の超高速コヒーレント非線形光学応答の研究**

氏名 島野 亮

光と物質のコヒーレントな相互作用に起因する非線形光学応答の研究は主に孤立2準位系を中心として発展してきた。最近では原子のレーザー冷却技術の進歩に伴い、純位相緩和を極限的に抑えた極低温原子を準備することが可能となり、これを舞台に、位相相関を持つ複数準位間の量子干渉を利用して線形吸収を低減しつつ共鳴非線形光学応答を増強することや、単一光子と単一原子の結合系なども実現されつつあり、単一光子で動作する究極的な非線形量子素子の実現に向けた研究が活発化しつつある。

さて一方、半導体や絶縁体中のバンド間最低電子励起状態である励起子の存在は非常に古くから知られており、バンド端近傍の光学応答を支配する素励起として様々な物質で非常に詳しく研究されてきた。励起子は価電子帯の正孔と伝導帯の電子とがクーロン相互作用で束縛された状態であるため、特に無機半導体におけるワニエ励起子系では、その吸収スペクトルなどにリュードベリ系列が観測されることなど、水素原子と類似の性質も多い。

この固体内の準粒子である励起子系にも当然、孤立2準位系で発展してきたようなコヒーレントな非線形光学効果が期待されてきた。実際、近年の超短パルスレーザー技術の目

驚ましい発達にともない、光シュタルク効果に代表されるコヒーレントな非線形光学現象が超高速時間領域で固体励起子系でも観測できるようになってきた。コヒーレンスの高いピコ秒フェムト秒の超短パルス光源が比較的安定かつ容易に扱えるようになってきている現在、励起子系が、従来から孤立2準位系で議論されてきたようなコヒーレントな非線形光学応答の新たな舞台になりうるのであれば、基礎的にも応用面からも非常に意味深い。

しかし、線形応答での2準位系との類似性から、即座に非線形応答でも同様の類似性が期待できるかどうかは必ずしも自明ではない。固体においては、特に非線形光学応答では励起状態にある多数の電子（正孔）間の相互作用が無視できず、2準位系の単なる高密度な集合体としてはみなせないからである。本研究ではこのような背景のもとに、固体励起子系の共鳴コヒーレント非線形光学応答が、原子系の非線形性のどのような類似性を持ち、またどのような点で異なるのか、多体系としての励起子系の特徴はどのような形で非線形応答に現れるのか、どのような物性パラメータが励起子非線形応答を特徴づけるのか、といった点を明らかにすることを目指した。

具体的には以下のことを行った。

#### 1) 励起子系の光シュタルク効果の弱く相互作用するボゾンモデル (WIBM) による解釈

本研究では、まず弱く相互作用するボゾン描像に基づいて励起子光シュタルク効果を解釈した。励起子系は希薄な極限ではボゾンとして見なされている。弱く相互作用するボゾンモデル (WIBM) では励起子非線形性の起源を、その理想ボゾンからのずれとしてとらえる。励起子の非調和性には二つ機構が考えられ、一つは位相空間充填効果、もう一つは励起子間相互作用である。本研究では、この弱く相互作用するボゾンモデルにより、励起子光シュタルクシフト量に、励起子間相互作用が係数として顕わに現れることを示した。また、励起子間作用の影響が共鳴近傍で顕著になることもわかった。

#### 2) 近共鳴での励起子光シュタルク効果の実験

次に1) で考察したモデルに基づき、実験的に励起子間の相互作用の評価を試みた。2励起子状態の典型例として、2-1) 安定な励起子分子が存在する CuCl、2-2) 励起子分子が安定でなく、弱く相互作用する励起子としての描像がよいとされる GaAs 量子井戸について、共鳴近傍での仮想励起実験を行った。

2-1) ではコヒーレント非線形光学応答における励起子分子の影響を考察するために、安定な励起子分子が存在する I-VII 族半導体 CuCl を対象に周波数軸上での高分解能分光を用いて光シュタルク効果の測定を行った。その結果、励起子分子準位のラビ分裂が

観測された。このラビ分裂から励起子分子巨大振動子効果について定量的な評価を行うことができた。さらに4章の弱く相互作用するボゾンモデルによる解釈との比較から、励起子分子巨大振動子モデルの妥当性についての見解も得られた。

また固体内非局在電子状態でラビ分裂のような純2準位的なコヒーレントな非線形光学効果が観測された例は殆どない。この結果は、例えば原子系で行われているような量子干渉効果を利用した高効率非線形光学応答など、従来の量子エレクトロニクスのアイデアを固体に応用できる可能性を示しており、大変興味深い。

また高分解能分光を用いたことで、結晶の並進対称性に由来して、結晶内の光学遷移においては波数とエネルギーの保存則が厳密に成り立っていることも明らかとなった。

2-2) では、1) で考察した弱く相互作用するボゾンモデルに基づき、2励起子状態の影響を考察する舞台として、GaAs 量子井戸励起子系を選び、偏光に依存した光シュタルク効果の測定を行った。その結果、ポンプ光とプローブ光の偏光の組み合わせによって、励起子レッドシフトが観測された。2準位原子系では説明のできないものであり、励起子間引力相互作用の重要性がはっきりと示された。そのシフト量から励起子間引力相互作用を定量的に評価し、相互作用エネルギー10meVを得た。また励起子位相空間充填効果の定量的な評価を行い、位相空間充填効果は水素原子様波動関数に基づく計算結果と近い値となっていた。

### 3) 仮想電荷誘起非線形光学応答

DC 電界下での励起子間双極子双極子相互作用に起因する仮想電荷誘起非線形光学効果の観測を行った。この効果は、仮想的に励起された静的分極による瞬時電界遮蔽を利用するものであり、前章までの光シュタルク効果をさらに増大させるものとして特に超高速光変調素子としての期待を集めていたが、逆に光シュタルク効果に埋もれてこれまで明確には観測(区別)されていなかった。本実験は、1) 2) による光シュタルク効果に関する詳細な考察に基づいて初めて可能となったものである。特に、偏光、離調、バイアス電界を最適下して、この効果を抽出することに成功した。観測された VCON によるシフト量はバイアス電界 70kV/cm で、0.07meV であった。これより誘起された仮想電荷分極によるスクリーニング電界は、 $E_s=0.4\text{kV/cm}$  と見積もられた。励起光強度  $0.8\text{MW/cm}^2$ 、(共振器内では  $30\text{MW/cm}^2$  に相当)、ポンプ離調 15meV での値である。励起子間双極子相互作用を考慮した変分計算により見積もられた値は同様の条件で約  $0.1\text{kV/cm}$  となっており、比較的近い値となっているといえる。

本研究では一環して励起子非線形性を弱く相互作用するボゾンモデルに基づいて近共鳴での仮想励起現象を考察してきた。本研究の離調の領域ではこのモデルは現象を比較的よく説明し、励起子間相互作用を特徴づける現象論的パラメータについても定量的な評価も得られた。しかし、さらに今後物質設計を行い、非線形性を増強していくうえではこれらパラメータの理論的な微視的意味づけが不可欠であるし、また実験的にも他の多くの物質で系統的な評価を行うことが重要であろうと考えられる。

また、本研究の近共鳴での測定では、これら励起子間相互作用の効果は、励起子の2準位原子的非線形性とほぼ同程度かそれ以下であった。非常に概略的な表現をすれば、非線形性を増強するためには、如何に励起子間相互作用を大きくするか、あるいはより一般的に如何に電子（正孔）の相関を強くするかが重要であろう。その一例が本研究でもみられた安定な励起子分子系であって、この場合に2準位原子的なラビ分裂が観測されたように、より高効率の非線形応答を追求するうえでは有力候補となると考えられる。3) でみた仮想電荷誘起非線形光学応答は、残念ながら微弱なものではあったが、光領域の非線形応答にとどまらず近年急速に発展しつつある THz 電磁波発生などの展開も期待できる新しい領域であって、異なる物質系などにも応用できれば面白いと考えられる。