

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 島野 亮

本論文は、半導体励起子系共鳴近傍に同調された光に対する超高速コヒーレント非線形光学応答の微視的起源について研究を行ったものである。従来の研究においては試料の不完全性や光源の性質など実験条件に強く依存する要因により、明快な結論に至らなかった効果を、実験法の厳密な吟味、その上での系統的な実験により、統一的に理解できることを示したものである。励起子系のコヒーレントな非線形性を実験的に抽出するためには、実励起キャリアや励起子の蓄積に伴う効果を排除することが重要であり、その為には励起光を非共鳴とすることと、弱励起の極限で3次の非線形効果のみを取り出すことが必須であることが示された。一方で励起子の非線形性の特徴は電子正孔の多体の相関効果が本質的に重要である。

この効果は励起子の共鳴近傍でより顕著となる。そこで励起子系の非線形光学応答の背後にある物理現象を実験的に顕在化させるためには、励起を共鳴からほどほどにずらした条件で、コヒーレントな非線形光学応答を追跡することが有利であることが示された。

これらの考察をもとに、近共鳴の光励起下で励起子系の AC シュタルクシフトを観察する方法を提示し、理論と実験を系統的に比較し、統一的に解釈を試みた。この結果、励起子共鳴領域で観測されたコヒーレントな非線形光学応答の微視的機構は励起子間相互作用と励起子光子相互作用の非調和性として既述できることが示され、物質系によらないより普遍的な描像を得ることが出来た。

以下に各章の内容を要約する。

第1章：序論として、この研究の背景である半導体励起子系の非線形光学応答研究の意義について述べている。特に、既に確立している従来の一電子系の非線形光学応答と対比して励起子系の特徴および留意点を述べている。さらに励起子非線形光学応答のこれまでの理論的背景について紹介し、現状の問題点を整理し、本研究の目的である近共鳴領域での非線形性の研究の必要性と意義について述べ、本研究の位置付けを行っている。

続く第2章、3章では理論および実験について基礎となる事項について述べられている。

第2章：半導体励起子系の電子状態、励起子分子状態、基礎概念となる励起子ポラリトン、についてこれまでの研究で得られている知見をまとめながら説明している。

第3章：実験に用いた試料についてその作製法、光物性的な性質についての基礎評価の結果について述べられている。また実験に用いた光源について説明し、その特徴をまとめている。また超短パルスレーザー技術として実験に用いたフェムト秒パルスの波形整形法についても述べている。さらに実験手法として利用した、非線形偏光分光法、ポンププローブ分光法について述べ、得られる実験データの物理的意味について説明している。

第4章から第7章には本研究の成果が述べられている。

第4章：1章で述べた励起子描像による非線形光学応答の記述、弱く相互作用するボゾンモデル、を励起子光シュタルク効果の記述に適用して、励起子間相互作用の観点から光シュタルク効果を系統的に説明する理論的枠組みを示している。励起子共鳴非線形光学応答における励起子間相互作用（二励起子状態）の役割について述べ、また光シュタルクシフトの量から励起子非調和パラメータの値を単純な形で抽出できることを示している。特に、ポンプ光の偏光依存性、離調依存性について詳細な考察を進め、励起子非調和性の微視的機構を明瞭に分離できることを見いだした。さらに離調の小さい領域での測定が多電子系の特徴である励起子間相互作用の情報を引き出す上で決定的に重要であることを示した。

第5章：二励起子状態にかかわる共鳴コヒーレント非線形光学応答の典型例として安定な励起子分子状態に注目し、I-VII族半導体CuCl単結晶を用いて励起子分子準位に起因する光シュタルク効果の検証を行った。ここでは周波数軸上での高分解能分光法として偏光分光法を利用して、励起子-励起子分子遷移間に共鳴するポンプ光照射下で、励起子分子準位のラビ分裂を観測することに成功した。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い、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を行い、励起子分子巨大振動子モデルの意味についての考察を行っている。また固体内ブロッホ電子状態の非線形光学応答の特徴として、波数保存則の重要性を実証している。

第6章：弱く相互作用する2励起子状態の効果を考察する為に、III-V族半導体GaAs量子井戸励起子系を対象に光シュタルク効果の実験を行った。その結果、ポンプ光とプローブ光が逆周り円偏光の場合に、二準位系では生じえない励起子レッドシフトが観測されることを見出し、励起子間引力相互作用が励起子非線形性に本質的な役割を果たしていることを実証している。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することに初めて成功した。また励起子位相空間充填効果の定量的な評価も行い、水素原子様波動関数に基づく従来の計算および実験とよく一致する結果を得ており、本研究のアプローチの妥当性を示した。

第7章では、前章までの共鳴コヒーレント非線形光学応答について得られた統一的な知見をもとにその応用として、静電界下での仮想電荷誘起非線形光学効果(VCON)の検出に挑戦した。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、応用上も注目を集めて来たが、光シュタルク効果との競合により、これまでその原理実証は困難とされてきた。本研究では、前章までの光シュタルク効果に関する詳細な考察に基づき、偏光、離調、バイアス電界依存性を系統的かつ詳細に吟味し、このVCONの効果抽出することにはじめて成功した。

第8章：本研究で得られた結果がまとめられ、今後の研究の課題と展望が述べられている。

以上の様に、本研究で著者は、半導体励起子系のコヒーレント非線形光学応答を統一的に捉えるための実験法、理論的枠組みを確立した。この結果、励起子系の光制御素子への応用の可能性とその限界を明確に示すことができた。これは光励起された電子正孔系の物理について新たな知見を与えると共に、今後の非線形光学素子やそれを用いた光工学の発展に寄与する知見が得られた。これらは、物理工学の発展への貢献が大きいと認められる。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認める。