

博士論文

励起子系の超高速コヒーレント非線形光学応答の研究

2000年

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

島野 亮

目次

第1章 序論

§ 1—1	はじめに	1
§ 1—2	半導体バンド端における非線形光学応答—理論的背景—	2
1—2—1	平均場近似に基づく半導体ブロッホ方程式の方法	3
1—2—2	平均場近似からの拡張	3
1—2—3	弱く相互作用するボゾンモデル (WIBM)	4
§ 1—3	本論文の目的と構成	7

第2章 励起子・励起子分子系

§ 2—1	バンド構造	1 0
§ 2—2	励起子	1 2
§ 2—3	励起子ポラリトン	1 3
§ 2—4	励起子分子	1 5
§ 2—5	各物質の諸定数	1 5

第3章 実験方法

§ 3—1	試料	
3—1—1	GaAs 量子井戸	1 9
3—1—2	CuCl	2 1
§ 3—2	光源	
3—2—1	ナノ秒色素レーザー	2 3
3—2—2	CW モード同期チタンサファイアレーザー	2 4
§ 3—3	分光法	
3—3—1	ポンププローブ分光法	2 7
3—3—2	偏光分光法	2 8

第4章 近共鳴域での励起子系の光シュタルク効果

—弱く相互作用するボゾンモデルによる記述—

§ 4—1	光シュタルク効果とは	3 3
§ 4—2	励起子系の光シュタルク効果—背景—	3 6

§ 4—3	励起子系の光シュタルク効果 —弱く相互作用するボゾンモデルによる取り扱い—	3 7
第 5 章	CuCl 励起子励起子分子系の光シュタルク効果	4 3
§ 5—1	二光子偏光分光法による励起子分子ラビ分裂の観測	4 3
§ 5—2	k 空間での着衣のモデル	4 7
§ 5—3	励起子分子の巨大振動子モデルと弱く相互作用するボゾンモデル	5 2
第 6 章	GaAs 量子井戸励起子系の光シュタルク効果	5 5
§ 6—1	近共鳴での光シュタルク効果—実験—	5 5
§ 6—2	励起子非調和パラメータの評価	5 8
第 7 章	仮想電荷誘起非線形光学応答	6 2
§ 7—1	量子閉じ込めシュタルク効果	6 3
§ 7—2	仮想電荷誘起非線形光学応答—背景—	6 3
§ 7—3	仮想電荷誘起非線形光学応答—近共鳴での実験—	6 6
第 8 章	まとめと展望	7 7
付録 A	半導体微小共振器の内部電場増強	8 0
謝辞		8 4

第1章 序論

§ 1—1 はじめに

近年、超短パルスレーザー技術の発展に伴い、半導体バンド端近傍の非線形光学応答が超高速の光情報処理、光演算デバイスへの応用の観点から多くの関心を集め、活発な研究が進められている。その中でも、価電子帯の正孔と伝導体の電子とがクーロン相互作用で束縛しあった状態である“励起子”は、結晶中に広がった非局在電子励起状態であることを反映して大きな振動子強度をもつことが知られ、共鳴する光と強く相互作用して大きな非線形光学応答を示すことが期待され、様々な物質系で盛んに研究が行われてきた。

さて、共鳴領域の非線形光学応答は元来、主に原子や分子などの孤立系の一電子励起状態を舞台に発展してきた。これらの系での非線形光学応答は当初、例えば一光子禁制準位を多光子過程により検出したり、あるいは不均一な分布を持つ励起状態のなかから均一な情報を抽出する飽和分光など、線形分光では得られない電子構造を決定する有用な分光法として応用されてきた。これら孤立系の共鳴非線形光学応答は基本的には一体問題であって、いわゆる二準位モデル等、共鳴する少数の固有状態のみを考慮して、摂動計算に基づく非線形感受率 $\chi^{(n)}$ による記述や^{1,2}、光ブロッホ方程式³を用いた取り扱いにより現象がよく説明されている。最近では、分光手段としての応用を超えて、非線形過程に関与する状態間の量子相関効果を利用して、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^{4,5}、また単一光子と単一原子の結合系⁶など、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。

一方、励起子もそ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⁷。特に無機半導体におけるワニエ励起子系では、有効質量近似のもとに励起子を構成する電子と正孔の相対運動は水素原子と同様の方程式に従う。実際、その吸収スペクトルや発光スペクトルなどの線形スペクトルにリュードベリ系列状の離散構造が観測されることなど、水素原子と類似の性質も多い。

この線形応答の類似性から、励起子系の非線形光学応答も多くの場合原子などの孤立系と同様、一体近似に基づく非線形感受率の表現により説明されることが多く、実際、この方法は励起子系の一電子励起状態としての電子構造の理解するうえでは有用であった。しかし、一般には励起子は結晶全体に広がる非局在電子状態であって、本質的に

莫大な自由度を持つ多体系である。特に共鳴領域の非線形光学応答では、原子系のように一個の電子励起状態のみを考えることは一般にはできず、非線形応答の次数に応じて複数個の電子あるいは正孔の励起が寄与しうる。さらにはこれら励起された複数の電子間、正孔間、電子正孔間には互いにクーロン相互作用が働く。

したがって、どのような条件下で原子系で用いられている一体近似に基づく非線形性の記述が成り立ち、またどのような条件下で多体系としての特徴が顕著になるのか、多体効果がどのような形で非線形光学応答に現れるのか、といったことを調べるのが励起子系の共鳴非線形光学応答を理解するうえでは重要となる。さらにはより積極的に光デバイスなどへの応用を考えるうえで、多体系としての励起子系の非線形光学応答をなんらかの物性パラメータで特徴づけることは可能なのか、可能であるとするとはどのような値をもつのかといったことを知ることが物質設計を進めるための土台として重要であり、本研究の目的もそこにある。

さて、ではこれまでこの多体問題としての励起子系の共鳴非線形光学応答はどのように発展してきたのであろうか。以下に二つの代表的な理論的取り扱いを概説する。

§ 1—2 半導体バンド端における非線形光学応答—理論的背景—

この節では励起子系の共鳴非線形光学応答の理論的背景について述べておく。ここではまず、孤立原子系との違いについてもう少し詳しく述べる。原子系では非線形光学応答を引き起こす物理的起源は、電子のフェルミオンとしての性質からくるパウリの排他律である。つまり、最初に光と相互作用して電子が特定の励起状態に遷移した場合には、同じ状態にはもうそれ以上電子が遷移できないことが非線形光学応答の起源となっている。共鳴近辺で、二準位系としての取り扱いがよく当てはまるのもこのためであり、光学応答は光ブロッホ方程式を用いてよく記述される¹⁾。

半導体や絶縁体などの固体系においても、最初に励起されたある波数で指定される伝導帯の電子状態をさらにもう一つ生成することはフェルミオンとしての性質より禁止されるので、このような過程のみに注目すれば原子の非線形性と同じである。しかし固体系では、光学遷移に寄与する電子の数は無数にあって、伝導帯の一つの波数の電子状態が占有されていても、別の波数を持つ電子が励起されうる。その結果、非線形応答は最低次でも4個の電子と正孔を考慮する必要があり、さらにこれらは互いにクーロン相互作用を及ぼし合っている。結局、半導体バンド端の非線形光学応答では

1) 電子、正孔のフェルミオンとしての性質を反映するパウリの排他律に起因する非線

形性

2) 二つの電子正孔対間のクーロン相互作用

がその起源を与えることになる。

1) は、 k 空間で考えると、励起子を構成するバンド間遷移の一部が最初の励起子で占有されていることによるものであり、位相空間充填効果と呼ばれる。具体的には、励起子の振動子強度の減少として現れる。2 準位原子の非線形性と本質的には同じものである。一方 2) は本質的に多体問題であって厳密には解けず、なんらかの近似が必要になる。その一つが以下に述べる平均場近似の方法である。

1-2-1 平均場近似に基づく半導体ブロッホ方程式の方法

この手法では、励起子の構成要素である価電子帯の正孔と伝導帯の電子のハミルトニアンから出発し、電子正孔間のクーロン相互作用を平均場近似のもとに取り入れて電子、正孔それぞれの粒子数（ポピュレーション）と電子正孔間の分極を求める。

さて、分極は電子正孔の 2 体の相関（コヒーレンス）として定義される。この分極の方程式は、4 体の相関を含む。4 体の相関の方程式はさらに高次の相関を含む。このようにして、クーロン相互作用の効果は分極の方程式に階層構造を与える。Haug と Koch⁸ は平均場近似に基づき 4 体の相関を 2 体の相関の積で近似し、半導体ブロッホ方程式（Semiconductor Bloch Equation, SBE）を導いた。半導体ブロッホ方程式は、2 準位系のブロッホ方程式に平均場的クーロン相互作用の補正を加えたものとなっている。これは、この二つの電子正孔対の位相相関を無視する近似であり、乱雑位相近似とも呼ばれる。このため、SBE は位相相関が遮蔽されるような高密度励起下での非線形光学現象をよく説明する反面、弱励起下でのコヒーレントな非線形光学過程を必ずしも再現しない。

1-2-2 平均場近似からの拡張

さてコヒーレントな超短パルス光源の発達にともないコヒーレントな非線形光学応答の実験的研究も進歩し、励起子共鳴四光波混合の偏光依存性など前述の平均場近似の方法では説明できない結果が観測されるようになり、平均場近似で無視された 4 体の相関の重要性が見直されるようになってきた。この平均場近似からの拡張として、Axt と Stahl ら^{9,10,11} は、ある次数の非線形光学応答にのみ着目する場合はその次数に応じた高次の相関項のみを考慮すれば十分であり、運動方程式を閉じた形として近似できることを示した。この手法は Dynamics Controlled Truncation Scheme (DCTS) と呼ばれ、特に 3 次の非線形光学応答における高次の相関の効果を説明することが示されている^{12,13}。

しかし一方でこれらフェルミオン描像に基づくこれら半導体ブロッホ方程式の手法、およびその拡張としての DCTS は、電子、正孔間の多体クーロン相互作用を正面から扱うために、実験結果の解釈は多くの場合数値計算との比較によりなされることになる。このような数値計算では非線形光学応答の背景にある物理的描像を抽出することは困難で、どのような物性パラメータが非線形応答を支配しているのかも明確ではない。この方法と対極に位置づけられているのが以下に述べる励起子ボゾン描像である。

1—2—3 弱く相互作用するボゾンモデル (WIBM)

励起子は希薄な極限ではボゾンとして扱うことができる。この極限では励起子共鳴非線形光学応答を、励起子間の相互作用、あるいは励起子間の相関関数¹⁴という形でとらえることはより自然であるように考えられる。これ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ことに対応する。三次の非線形光学応答の範囲で考えると、一個目の励起子が励起されている場合に、さらにもう一つの励起子を追加する場合に生じる非調和性を考察することになる。このような励起子非線形性の記述は、弱く相互作用するボゾンモデル (Weakly Interacting Boson Model, WIBM) とよばれる^{15, 16}。Saiki ら¹⁷は、種々の半導体励起子共鳴で四光波混合測定を系統的に行いその時間応答の偏光依存性をこの WIBM に基づいて解釈し、二励起子状態の位相緩和エネルギーについて詳細な考察を行っている。さらに近年 Gonokami ら^{18, 19}は、GaAs 半導体量子井戸微小共振器での励起子共鳴四光波混合測定を行い、その偏光依存性が励起子のスピンの依存した励起子間相互作用を現象論的に取り入れた WIBM でよく説明されることを見出した。

WIBM では、1s 励起子共鳴近傍の非線形光学応答に着目し、位相空間充填効果、および 1s 励起子間のスピンの依存した励起子間相互作用、励起子分子を考慮して、現象論的有効ハミルトニアン

$$\begin{aligned}
 H = \sum_{\sigma=\pm} & \left\{ \hbar\omega_c b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma} + \frac{\nu_c}{V} \hbar R b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma} b_{\sigma} - \sqrt{\frac{V}{\nu_c}} \mu \left[b_{\sigma}^{\dagger} \left(1 - \frac{\nu_c}{V} b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma} \right) E_{\sigma} + h.c. \right] \right\} \\
 & + \hbar\omega_c B_{\sigma}^{\dagger} B_{\sigma} \\
 & + \frac{\nu_c}{V} \hbar W b_{+}^{\dagger} b_{+}^{\dagger} b_{-} b_{-} + \sqrt{\frac{\nu_c}{V}} \hbar K (b_{+}^{\dagger} b_{-}^{\dagger} B + B^{\dagger} b_{+} b_{-})
 \end{aligned} \tag{1-1}$$

を導入する^{20, 21}。 b_{\pm}, B はスピン $\sigma = \pm$ の励起子消滅演算子、励起子分子消滅演算子、 $\hbar\omega_c, \hbar\omega_b$ は励起子および励起子分子エネルギー、 μ はバンド間双極子モーメント、 E_{\pm}

は右（左）回り円偏光、 v_e, V は励起子の体積および量子系の体積である。励起子の双極子モーメントは $\sqrt{\frac{V}{v_e}}\mu$ である。 v は位相空間充填効果を表す変数である。 R, W は同種スピン、異種スピン励起子間の相互作用エネルギーであってそれぞれ $J_z = \pm 2, J_z = 0$ の 2 励起子状態にエネルギーシフト、 $\langle \pm 2 | H | \pm 2 \rangle - 2\hbar\omega_e = 2\frac{v_e}{V}R, \langle 0 | H | 0 \rangle - 2\hbar\omega_e = \frac{v_e}{V}W$ を与える。 K は束縛状態としての励起子分子の寄与を表す。WIBM と等価なエネルギー準位図を図 1—1 に示す。ここで注意したいのは、 W や R で表される二励起子状態は、励起子間の相互作用を実効的に表しているものであって、励起子系の固有状態ではないということである。つまり、これら相互作用する二励起子状態の共鳴構造が存在するわけではない。一方、励起子分子は励起子系の新たな固有状態（演算子）であって、これは共鳴構造として観測にかかるものである。

このモデルは、GaAs 量子井戸微小共振器強結合系での縮退四光波混合測定を非常によく説明し、その四光波混合信号励起スペクトルの偏光依存性から非調和パラメータ W, R, v の相対比が見積もられている。

WIBM では励起子共鳴非線形光学応答を、 W や R などの少数の非調和パラメータを用いて記述できるため、物理的な見通しがよい。しかし一方で、励起子間の相互作用をこのような単純化した定数として近似できることは決して自明でなく、理論的にも実験的にもより詳しくその微視的意味付けと適用範囲を調べていくことが課題となっている。

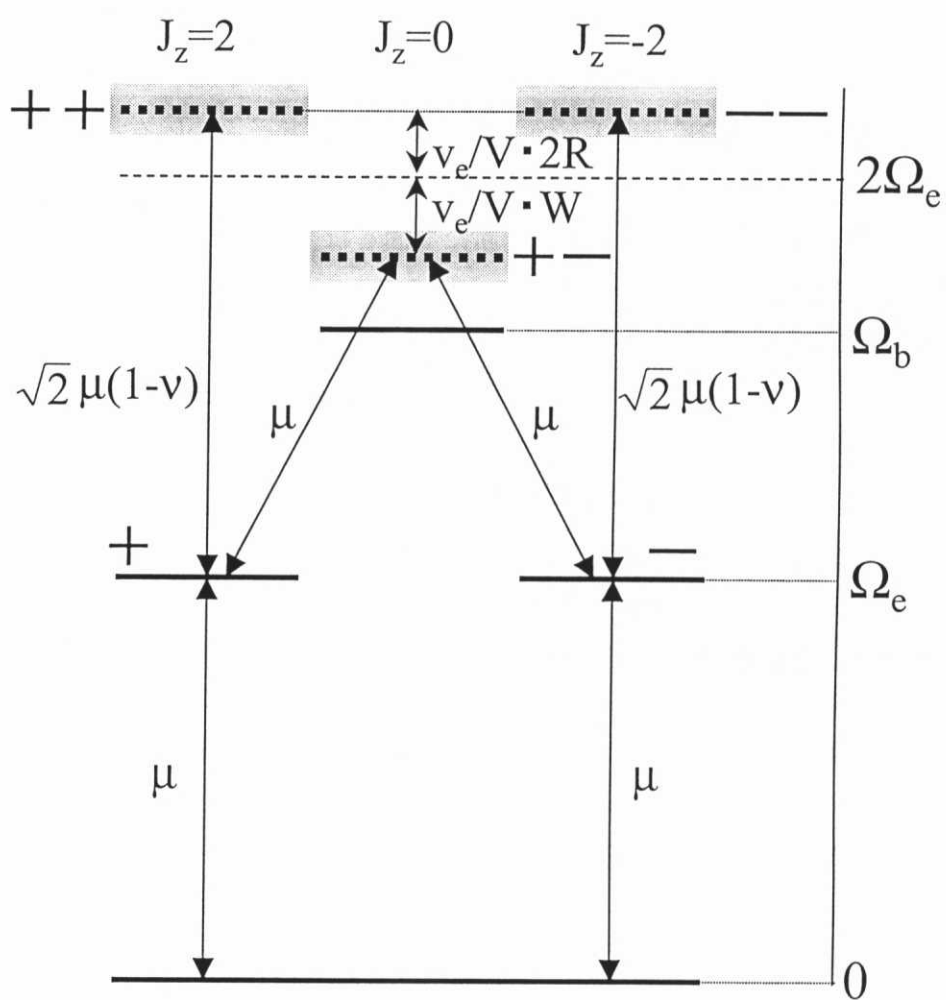


図 1 - 1 弱く相互作用するボゾンモデルに対応するエネルギー準位図

§ 1—3 本論文の目的と構成

以上に述べたように、超高速非線形光素子の有力な候補として半導体の励起子共鳴でのコヒーレント非線形光学応答が注目されてきたが、その微視的発現機構は未だ曖昧な点が多く、特に従来の原子系などで用いられる一体近似に基づく単純な非線形光学応答の取り扱いと比較して、具体的にどのような類似点、相違点があるのか、多体系としての励起子非線形光学応答の特徴はなんであるのか、といったことについての明確な理解は得られていなかった。その一つの要因として、実励起されたインコヒーレントなキャリアや励起子が引き起こす様々な緩和過程と、多体系としての励起子系が本来的にもつコヒーレントな非線形性とが渾然一体となり問題が複雑化してしまうことが挙げられる。本研究では、これらインコヒーレントな効果をできる限り回避して、励起子のコヒーレントな非線形性を顕在化し、その背景にある励起子非線形性の微視的起源についての理解を得ることを目的とする。そのために本研究では、実励起を生じない仮想励起（非共鳴励起）の実験に注目し、かつ励起子の特徴を損なわない程度にほどほどに非共鳴にすることで励起子非線形性の特徴をできる限り単純な形で抽出することを試みる。さらに励起子ボゾン描像に基づいて問題を整理し実験結果を統一的に解釈し、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）の役割を考察する。また物質系としては、二励起子状態の二つの典型例として、安定な励起子分子の存在する I-VII 族半導体 CuCl と、弱く相互作用する二励起子状態をとる III-V 族半導体 GaAs に注目する。

以下に本論文の構成を述べる。

第 2 章では、本研究で対象とする物質 CuCl、GaAs についてそのバンド構造、励起子構造や、励起子、励起子分子の基礎的事項、物性パラメータをまとめる。

第 3 章では、本研究で使用した試料、光源、分光法について述べる。試料はその作成法、基礎スペクトルを示す。光源については、高分解能ナノ秒レーザー、モード同期チタンサファイアレーザーおよびその波形整形について説明する。また分光法として用いたポンププローブ分光法、偏光分光法について述べる。

第 4 章では、まず二準位原子系の光シュタルク効果について概説した後、弱く相互作用するボゾンモデルに基づいて、近共鳴域での励起子系の光シュタルク効果の理論的考察を行う。特に離調の小さい領域で、励起子光シュタルクシフトに励起子間相互作用の効果が顕著に現れることを示し、孤立原子系との違いについて考察する。

第5章では、二励起子状態の典型例として、励起子分子の効果を検討する。特に、安定な励起子分子が存在する I-VII 族半導体 CuCl を対象に行った光シュタルク効果の実験を示し、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。並進対称性を持つ結晶内のコヒーレント非線形過程の特徴として、 k 空間での記述の重要性を指摘する。また励起子分子巨大振動子モデルについての考察を行う。

第6章では、第4章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、応用上も重要な物質である III-V 族半導体 GaAs 量子井戸の励起子系を選び、偏光に依存した光シュタルク効果の測定を行う。実験結果を弱く相互作用するボゾンモデルに基づいて整理し、位相空間充填効果、励起子間引力相互作用についての定量的な評価を行なう。

第7章では、第6章までで得られた励起子共鳴コヒーレント非線形光学応答についての理解のひとつの応用として、DC 電界下での量子井戸励起子を仮想電荷誘起非線形光学効果の観測を行う。この現象は、DC 電場を介する新たな非線形光学効果として応用上も大変関心を集めてきたが光シュタルク効果との区別が難しく長年の懸案となってきた問題であり、本研究での光シュタルク効果に関する詳細な考察に基づいて、初めてその確認が可能となった。

第8章では本研究の成果を総括し、励起子系の共鳴コヒーレント非線形光学応答における残された課題と今後の展望を述べる。

参考文献

- ¹ Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Willey & Sons, Inc., New York, 1984
- ² R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Inc., Boston, 1992
- ³ L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms*, Dover Publications, Inc., New York, 1987
- ⁴ S. E. Harris, L. V. Hau, *Phys. Rev. Lett.* 82, 4611 (1999)
- ⁵ L. Hau, S. Harris, Z. Harris, Z. Dutton, and C. Behroozi, *Nature* 397, 594 (1999)
- ⁶ C. J. Wood, T. W. Lynn, A. C. Doherty, A. S. Prkins, H. J. Kimble, *Science* 287, 1447 (2000)
- ⁷ 例えば、E. I. Rashba and M. D. Sturge, "Excitons", vol2 of *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, edited by V. M. Agranovich and A. A. Maradudin, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1982
- ⁸ H. Haug and S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*, World Scientific, Singapore, 1990
- ⁹ V. M. Axt and A. Stahl, *Z. Phys. B* 93, 195 (1994)
- ¹⁰ V. M. Axt and A. Stahl, *Z. Phys. B* 93, 205 (1994)
- ¹¹ k. Victor, V. M. Axt, and A. Stahl, *Phys. Rev. B* 51, 14164 (1995)
- ¹² M. Lindberg, Y. Z. Hu, R. Binder, and S. W. Koch, *Phys. Rev. B* 50, 18060 (1994)
- ¹³ W. Schafer, D. S. Kim, J. Shah, T. C. Damen, J. E. Cunningham, K. W. Goosen, L. N. Pfeiffer, and K. Kohler, *Phys. Rev. B* 53, 16429 (1996)
- ¹⁴ Th. Ostreich, K. Schonhammer, and L. J. Sham, *Phys. Rev. B* 58, 12920 (1998)
- ¹⁵ O. Akimoto and E. Hanamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* 29, 50 (1970)
- ¹⁶ E. Hanamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* 33, 1537 (1974)
- ¹⁷ 斎木 敏治 博士論文 (1993 東京大学) :T. Saiki, M. Kuwata-Gonokami, T. Matsusue, and h. Sakaki, *Phys. Rev. B* 49, 7817 (1994)
- ¹⁸ M. Kuwata-Gonokami, S. Inouye, H. Suzuura, M. Shirane, R. Shimano, T. Someya, and H. Sakaki, *Phys. Rev. Lett.* 79, 1341 (1997)
- ¹⁹ M. Shirane, C. Ramkumar, Yu. P. Svirko, H. Suzuura, S. Inouye, R. Shimano, T. Someya, and H. Sakaki, M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. B* 58, 7978 (1998)
- ²⁰ Yu P. Svirko, M. Shirane, H. Suzuura, and M. Kuwata-Gonokami, *J. Phys. Soc. Jpn.* 68, 674 (1999)
- ²¹ 電子正孔のハミルトニアンから出発して、1 s 励起子間の相互作用に高次 (2 p 以上) の励起子の影響を繰り込むことにより、(1-1) に対応する有効ハミルトニアンが導かれている : J. Inoue, T. Brandes, and A. Shimizu, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 67, 3384 (1998)

第2章 励起子・励起子分子系

本章では、本研究で対象とする直接遷移型半導体、Ib-VIIb 族 CuCl 及び IIIb-Vb 族 GaAs について述べる。どちらも結晶構造は低温で閃亜鉛鉱型 (Zinc Blend, ZB) をなす。結晶 (ZB 型) の対称性は、空間群 T_d^2 に属する。また本研究で用いた GaAs 量子井戸構造は二次元系のため対称性が低下し D_{2d} となる。

§ 2—1 バンド構造

伝導帯

軌道は s-like (既約表現: Γ_1) であり、スピンに関して 2 重縮退している。対称性は

$$\Gamma_1 (l=0) \cdot \Gamma_6 (s=1/2) = \Gamma_6 (j=1/2)$$

となっている。

価電子帯

軌道部分は p-like (Γ_5) であり 3 重縮退、スピンも含めると 6 重縮退である。対称性は

$$\Gamma_5 (l=1) \times \Gamma_6 (s=1/2) = \Gamma_7 (j=1/2) + \Gamma_8 (j=3/2)$$

となる。 Γ_7 とは 2 重縮退、 Γ_8 は 4 重縮退である。

Γ_7 と Γ_8 は、スピン軌道相互作用により分裂する。GaAs に代表される ZB 型直接半導体では、通常エネルギー的に Γ_8 がより Γ_7 上になる。CuCl の場合は、価電子帯に Cu 3d 電子の混成が強く効いてスピン軌道相互作用の符号が逆となり、 Γ_7 が Γ_8 より上になる (図 2—1 (a))。 Γ_8 は、有限の波数 k で kp 摂動項により二つのバンドに分裂し、 Γ 点近傍でそれぞれ有効質量の異なる二つの正孔、重い正孔 (heavy hole, hh)、軽い正孔 (light hole, lh) バンドとして扱われる (図 2—1 (b))。量子井戸構造では有効質量の違いが量子閉じ込めエネルギーに反映されて、 Γ 点でも $j_z=3/2$ (hh) と $1/2$ (lh) とで縮退が解ける (図 2—1 (c))。ここで量子化軸 z は井戸の成長方向である。

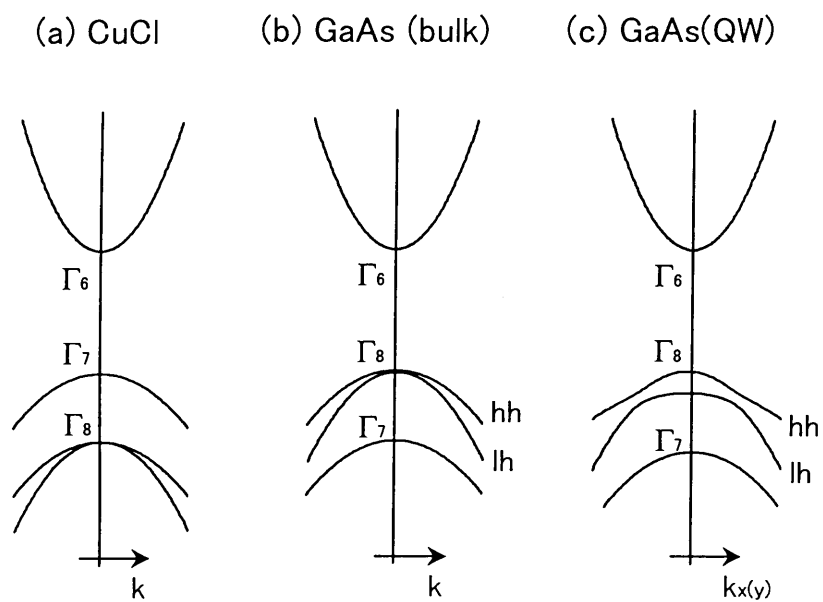


図2-1 バンド構造

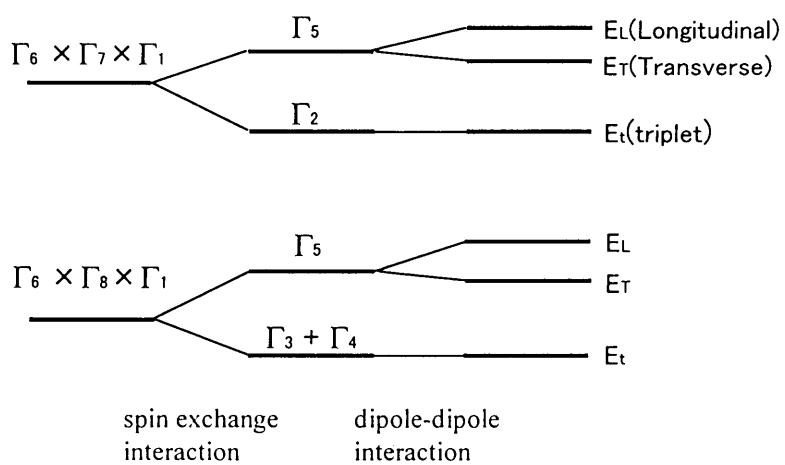


図2-2 励起子構造

§ 2—2 励起子

前述の Γ_6 伝導帯の電子と Γ_7 、 Γ_8 価電子帯の正孔から二つの励起子が構成される。

CuCl

$\Gamma_6-\Gamma_7$ 、 $\Gamma_6-\Gamma_8$ に対応する励起子は、それぞれ Z_3 励起子、 $Z_{1,2}$ 励起子と呼ばれる。

これらの励起子はワニエ励起子の代表例として古くから、光物性研究の対象となってきた。本研究で対象とするのはこの Z_3 1S 励起子である。

1s 励起子の包絡関数を考えるとその対称性は

$$\Gamma_6 \times \Gamma_7 \times \Gamma_1 = \Gamma_2 + \Gamma_5$$

となる。 Γ_2 励起子と Γ_5 励起子（3重縮退）は交換相互作用により分裂する。 Γ_2 励起子はスピン三重項であり、光学的に不活性である。 Γ_5 励起子はスピン1重項であり、さらに双極子-双極子相互作用により、一つの縦波励起子と二つの横波励起子（二重縮退）に分裂する。この横波励起子が光学活性である。

$Z_{1,2}$ 励起子については同様に 1s のみを考えるとその対称性は

$$\Gamma_6 \times \Gamma_8 \times \Gamma_1 = \Gamma_3 + \Gamma_4 + \Gamma_5$$

となる。 $\Gamma_3 + \Gamma_4$ 励起子（5重縮退）と Γ_5 励起子（3重縮退）は交換相互作用により分裂する。 $\Gamma_3 + \Gamma_4$ 励起子はスピン3重項であり光学不活性である。 Γ_5 励起子はスピン1重項であり双極子-双極子相互作用により一つの縦波励起子と二つの横波励起子（二重縮退）に分裂する。

図2—2にこれらの励起子のエネルギーレベルと対称性を示す。

GaAs 量子井戸

GaAs 量子井戸では Γ 点でも $j_z = 3/2$ (hh) と $1/2$ (lh) とで Γ_8 価電子帯の縮退が解ける。重い正孔 (hh) バンドは Γ_6 の対称性を持ち、この正孔から構成される 1shh 励起子の対称性は

$$\Gamma_6 \times \Gamma_6 \times \Gamma_1 = \Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_5$$

である。二重縮退の Γ_5 励起子が光学活性となる。

§2-3 励起子ポラリトン

さて光学活性な励起子（横波励起子）が励起されると、結晶内に分極が生じる。分極は横波励起子エネルギーで振動をするので、電磁場を放出する。放出された電磁場は再び分極を誘起する。このようにして、結晶内に於て分極場と電磁場は互いに結合して新たな連成モード、励起子ポラリトンを形成する¹。

ポラリトンの分散

以下に、ポラリトンの古典モデルを述べ、系の光学的性質を記述する誘電関数を導く。簡単のため等方的媒質を考え、透磁率は1とする。また緩和は無視する。

Maxwell の方程式

$$\epsilon_b \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} - c^2 \Delta \mathbf{E} = -4\pi \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} \quad (2-1)$$

と分極の方程式

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} + \omega_l^2 \mathbf{P} = \alpha_0 \omega_l^2 \mathbf{E} \quad (2-2)$$

を連立する。ここで ω_l は分極の固有振動数、 α_0 は静的分極率である。また ϵ_b は媒質の下地誘電率であり、注目する振動子以外の振動子の寄与をこれに含める。平面波解 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t))$ を考え、(2-1)、(2-2)を連立して、

$$\mathbf{P} = \frac{\alpha_0 \omega_l^2}{\omega_l^2 - \omega^2} \mathbf{E} \quad (2-3)$$

を得る。誘電関数 $\epsilon(\omega)$ は、定義

$$\epsilon(\omega) \mathbf{E} = \epsilon_b \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P} \quad (2-4)$$

より、(2-3)を用いて、

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \epsilon(\omega) = \epsilon_b + \frac{4\pi \alpha_0 \omega_l^2}{\omega_l^2 - \omega^2} \quad (2-5)$$

となる。また縦波周波数 ω_l は、 $\epsilon(\omega_l) = 0$ より

$$\omega_l = \omega_l \sqrt{1 + \frac{4\pi \alpha_0}{\epsilon_b}} \quad (2-6)$$

と求まり、これを用いて(2-5)は

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \epsilon(\omega) = \epsilon_b \frac{\omega_l^2 - \omega^2}{\omega_l^2 - \omega^2} \quad (2-7)$$

と表せる。(2-5)または(2-7)はポラリトンの分散関係を与える。 $\omega_t < \omega < \omega_l$

の領域では波数が純虚数の減衰波となり、この領域の光は全反射を示す。分散関係上ではギャップが生じることになり、これをL-Tギャップ Δ_{LT} という。

空間分散効果

励起子はそれ自身有効質量をもった粒子のように振る舞うので、上述の分散に加え、並進運動による分散を加え合わせる必要がある。即ち、 $\omega_l \rightarrow \omega_l + \frac{\hbar k^2}{2m_{ex}}$ として

誘電関数の表式は

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b + \frac{4\pi\alpha_0\omega_l^2}{(\omega_l + \frac{\hbar k^2}{2m_{ex}})^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \quad (2-8)$$

となり、 ω だけでなく、波数 k の関数にもなる（二次の空間分散効果）。ここで m_{ex} は励起子の有効質量であり、 γ は現象論的に取り入れた緩和定数である。

図2—3にCuClのパラメータを用いた分散曲線を示す。空間分散効果も考慮されている。横波励起子ポラリトンの二つの分枝はそれぞれ、UBP (Upper Branch Polariton)、LBP (Lower Branch Polariton) と呼ばれる。

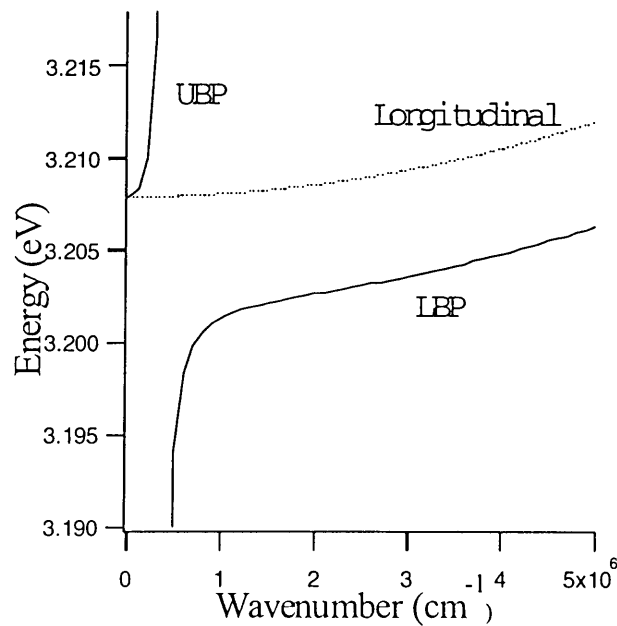


図2—3 ポラリトンの分散関係

§ 2-4 励起子分子

ワニエ励起子は水素原子様の状態であり、水素原子が水素分子をつくるように二つの励起子が結合して励起子分子がつくられる。その束縛エネルギーは電子と正孔の質量比に依存する。質量比が1に近づく程束縛エネルギーは小さくなるが、いかなる質量比においても束縛状態として励起子分子が存在することが理論的に示されている²。実験的にはその存在は Souma ら³、Mysyrowicz ら⁴により、CuCl に於て初めて観測され、他にも CuBr、red-HgI₂、ZnSe、CdS、GaAs 等においてもその存在は確認されている。

Souma らは、CuCl をルビーレーザー (6943 Å) で二光子強励起した際、3919 Å 付近に弱励起では見られない発光帯が生じることを見出した。この発光帯は、高密度に生成された励起子が融合して励起子分子をつくり、この励起子分子が光を放出して励起子状態へ緩和したものと解釈された。この発光は M 発光と呼ばれ、その観測は、励起子分子の状態を知るうえで非常に重要な測定手段となっている。

<励起子分子の二光子吸収>

励起子分子の生成には、上述のように高密度に励起された励起子の融合による過程の他に、二光子吸収により直接生成される過程も考えられる。その可能性は Hanamura⁵により理論的に予言され、Gale ら⁶、Nagasawa ら⁷により CuCl に於て確認された。

Gale らは、ルビーレーザー励起の色素レーザーを用いて、CuCl の励起子共鳴エネルギーの低エネルギー側に二光子吸収帯があることを観測した。また Nagasawa らは窒素レーザー励起の色素レーザーにより、励起子分子発光帯の励起スペクトルを測定し、二光子励起による励起子分子の生成を確認している。

CuCl の励起子分子はその最低エネルギー状態が Γ_1 対称性(全対称)を持ち⁸、またその束縛エネルギーが 32meV と非常に大きいことから、これまで非常に詳しく調べられ系である。非線形光学応答における励起子分子の影響を考慮するうえでも、最適の系であると考えられる。

§ 2-5 各物資の基礎物性定数

本研究で用いた CuCl、GaAs の基礎物性定数を以下にまとめておく。

CuCl

結晶構造	立方晶(ZincBlend 型)	空間群	Td_2
格子定数	5.41 \AA ⁹		
バンドギャップ	3.396 eV ¹⁰		
電子有効質量	$0.5m_0$ ¹¹		
正孔有効質量 (Γ_7)	$2.0m_0$ ¹¹		

(m_0 は電子の静止質量)

Z_3 励起子

横波励起子	$\Omega_T=3.2022 \text{ eV}$ ^{12,13}
縦波励起子	$\Omega_L=3.2079 \text{ eV}$ ^{12,13}
L-T ギャップ	$\Delta_{LT}=5.7 \text{ meV}$ ^{12,13}
有効質量	$m_T=2.3m_0$ ^{12,13}
	$m_L=3.14 m_0$ ^{12,13}
結合エネルギー	$\Gamma_{ex}=190 \text{ meV}$ ¹⁴
下地誘電率	$\epsilon_b=5.59$ ^{12,13}

Γ_1 励起子分子

エネルギー	$\Omega_m=6.3722 \text{ eV}$ ^{12,13}	(二光子共鳴 $\Omega_m/2=3.1861 \text{ eV}$)
結合エネルギー	$G_{mol}=34 \text{ meV}$	
有効質量	$M_{mol}=5.29m_0$ ^{12,13}	

$Z_{1,2}$ 励起子

エネルギー	$\Omega_{ex}=3.275 \text{ eV}$ ¹⁵
結合エネルギー	$G_{ex}=198 \text{ meV}$ ¹⁵

フォノン

LO フォノン	$\Omega_{LO}=25.9 \text{ meV}$ ¹⁶
TO フォノン	$\Omega_{TO}=20.2 \text{ meV}$ ¹⁶
LA フォノン (音速)	$u=3.6 \times 10^5 \text{ cm/s}$ ¹⁷

GaAs

結晶構造	立方晶 (ZincBlend 型)	空間群	Td_2
格子定数	5.65 \AA ¹⁸		
バンドギャップ	1.519 eV ¹⁹		
電子有効質量	$0.067 m_0$ ²⁰		
正孔有効質量 (Γ_7)	$0.48 m_0$ (hh), $0.087 m_0$ (lh) ²¹		

Γ_5 励起子

横波励起子	$\Omega_T = 1.515 \text{ eV}$ ¹⁹
L-T ギャップ	$\Delta_{LT} = 0.08 \text{ meV}$ ²²
有効質量	$0.55 m_0$ (hh) $0.15 m_0$ (lh)
結合エネルギー	$G_{ex} = 4.2 \text{ meV}$ ¹⁹
下地誘電率	$\epsilon_b = 12.6$ ²³

Γ_1 励起子分子 (量子井戸)²⁴

エネルギー	$\Omega_m = 3.029 \text{ eV}$
結合エネルギー	$G_{mol} = 1 \text{ meV}$

フォノン

LO フォノン	$\Omega_{LO} = 36.3 \text{ meV}$ ²⁵
LA フォノン (音速)	$u = 4.7 \times 10^5 \text{ cm/s}$ ²⁶

参考文献

- ¹ J. J. Hopfield, Phys. Rev. 112, 1555 (1958)
- ² O. Akimoto and E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn. 33,1537 (1972)
- ³ H. Souma, T. Goto, T. Ohta, and M. Ueta, J. Phys. Soc. Jpn. 29, 692 (1970)
- ⁴ A. Mysyrowicz, Phys. Lett. 26A, 615 (1968)
- ⁵ E. Hanamura, Solid State Commun. 12, 951 (1973)
- ⁶ G. M. Gale and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. 32, 727 (1974)
- ⁷ N. Nagasawa, N. Nakata, Y. Doi, and M. Ueta, J. Phys. Soc. Jpn. 39, 189 (1975)
- ⁸ E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn. 39,1506 (1975); E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn. 39,1516 (1975)
- ⁹ J. Plendl and L. C. Mansur, Appl. Opt. 11, 1194 (1972)
- ¹⁰ S. Lewonczuck, J. Ringeissen, and S. Nikitine, J. Phys. (Paris) 32,941 (1971)
- ¹¹ B. Honerlage, C. Klingshirn, and J. B. C. Grun, Phys. Stat. Solidi (b) 78, 59 (1976)
- ¹² T. Mita, K. Sotome, and M. Ueta, J. Phys. Soc. Jpn. 48, 496 (1980)
- ¹³ T. Mita, K. Sotome, and M. Ueta, Solid State Commun. 33, 1135 (1980)
- ¹⁴ A. Goldman, Phys. Status Solidi (b) 81, 9 (1977)
- ¹⁵ A. Bivas, C. Marange, J. B. Grun, and C. Schwab, Opt. Commun. 6, 142 (1972)
- ¹⁶ T. Nanba, K. Hachisu, and M. Ikezawa, J. Phys. Soc. Jpn. 50, 1579 (1981)
- ¹⁷ T. H. K. Barron, J. Birch, and G. K. White, J. Phys. C 10, 1617 (1977)
- ¹⁸ J. B. Mullin, B. W. Straughan, C. M. H. Driscoll, and A. F. W. Willoughby, Inst. Phys. Conf. Ser 24, 275 (1975)
- ¹⁹ D. D. Shell, Phys. Rev. B 6, 3750 (1972)
- ²⁰ F. Farbe, Phys. Status Solidi (a) 9, 259 (1972)
- ²¹ A. L. Mears and R. A. Stradling, J. Phys. C 4, L22 (1972)
- ²² R. G. Ulbrich and C. Weisbuch, Phys. Rev. Lett. 38, 865 (1977)
- ²³ R. Sooryakumar and P. E. Simmonds, Solid State Commun. 42, 287 (1982)
- ²⁴ R. T. Phillips, D. J. Lovering, G. J. Denton, and G. W. Smith, Phys. Rev. B 45, 4308 (1992)
- ²⁵ O. K. Kim and W. G. Spitzer, J. Appl. Phys. 50, 4362 (1979)
- ²⁶ H. J. Mcskimin, A. Jayaraman, and P. Andreatch, J. Appl. Phys. 38, 2362 (1967)

第3章 実験方法

本章では実験に用いた試料、光源、実験手法について述べる。

§ 3—1 試料

本研究では、MBE 成長による GaAs 単一量子井戸、気相成長法による CuCl 薄片単結晶を用いた。以下それぞれについて詳しく述べる。

3—1—1 GaAs 量子井戸

本研究では GaAs 基板上に MBE 成長された GaAs/AlAs 単一量子井戸¹を用いた。単一量子井戸で十分な光学濃度を得るために試料は共振器構造になっている。図 3—1 に試料構造を示す。共振器は GaAs 単一量子井戸層 (12nm) と AlAs 障壁層 (67nm) で構成されている。GaAs 励起子共鳴の波長約 800nm の光に対する半波長微小共振器となっており、量子井戸は共振器の中心 (腹) に位置している。反射鏡は、厚さ $\lambda/4$ の低屈折率層 (AlAs) と高屈折率 ($\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$) 層を交互に積層した分布ブラッグ反射鏡 (DBR) で構成されている。DBR のペア数は基板側、表面側でそれぞれ 20 ペア、8.5 ペアである。屈折率から理論的に見積もったそれぞれの実効反射率は基板側で 0.99、表面側で 0.9 となっている。

試料は基板側、表面側の DBR 層がそれぞれ n 型 p 型にドーピングされた p-i-n 構造になっており、量子閉じ込めシュタルク効果により励起子共鳴エネルギーを系統的に変化させることができる。空乏層は共振器長に等しいため、比較的小さな外部印加電圧 (1 V 程度) でも量子井戸層にかかる実効電場は 100kV/cm におよぶ非常に大きなものとなる。

図 3—2 にいくつかのバイアス電場下での試料の反射スペクトルを示す。共振器共鳴によるディップと励起子吸収に起因するディップが観測されている。本研究ではこの量子閉じ込めシュタルク効果による励起子エネルギーシフトを利用して励起子とポンプ光離調依存性を系統的に調べた。

なお本研究で用いた試料は図にみられるように励起子と共振器光子の結合が弱く、固有モード分裂は観測されない。すなわち、いわゆる共振器ポラリトンを形成するには共振器光子寿命が短く (本試料では 220fsec)、共振器光子、励起子をそれぞれ独立なモードとして扱ってよいことになる。

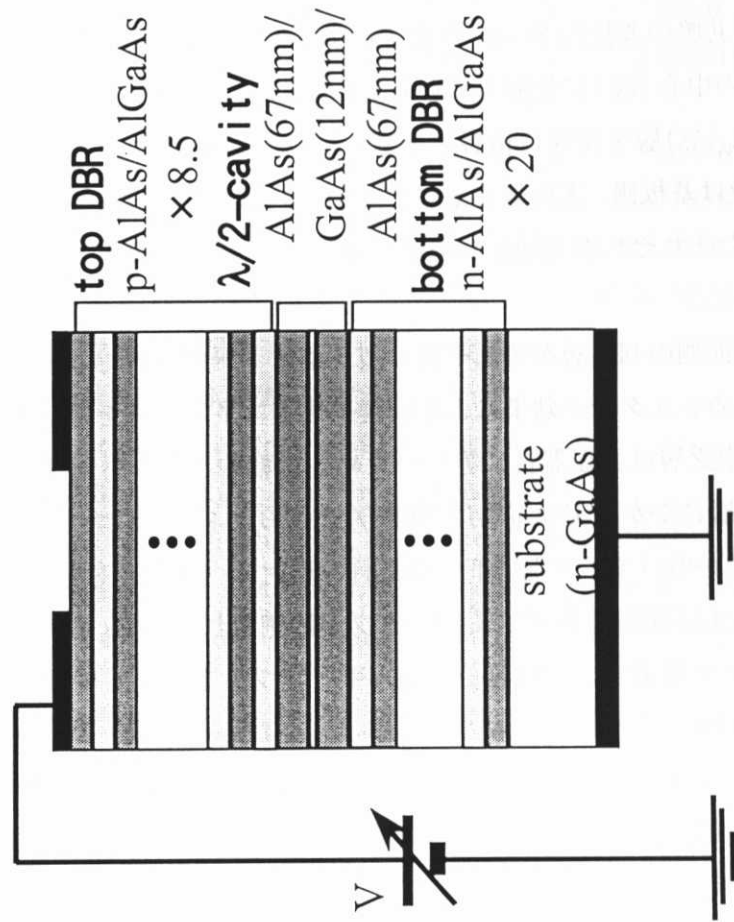


図 3-1 半導体量子井戸微小共振器構造

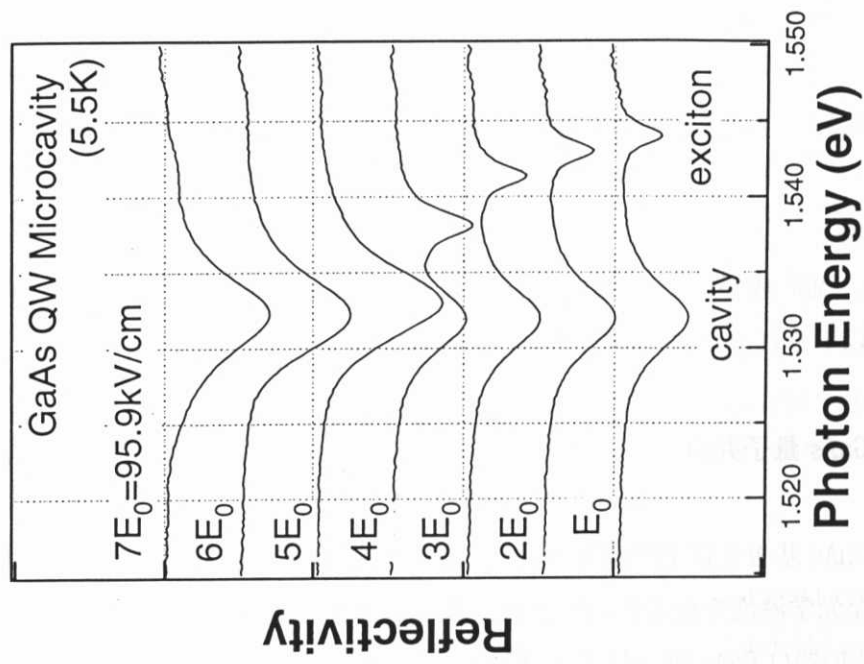


図 3-2 いくつかのバイアス電場下での
反射スペクトル

3—1—2 CuCl

本研究で用いた CuCl 単結晶は、水素及びアルゴンガス雰囲気中で気相成長法により作製した。まず市販の CuCl 特級粉末（純度 90%）を 3 回真空蒸留した後、ゾーンメルティング法による精製したものを原料とする。ゾーン管は 60 回通過させている。成長管は外径 20mmφ のパイレックス管と石英管をつないだものを用い、中性洗浄液、王水、蒸留水で洗浄する。成長管は、窒素トラップを用いて真空排気しながらバーナーでゆっくりベイクする。管が冷めたら、アルゴンガスで満たしてから真空系より取り外し、CuCl 原料を数 mg とり、管の先端部に入れ数 cmHg の水素ガスと 20~30cmHg のアルゴンガスを封入し融点の低いパイレックス管の部分で封じる。封じた後、管を電気炉に入れ、CuCl の融点 420℃ よりやや低い 405℃ 程度に保つ。炉の温度分布は試料の部分を頂点とした台形をしている。この状態で 4~5 日置くと、炉の出口付近に薄片状（厚さ 1μm~50μm）の単結晶が成長する。成長を確認した後、炉の電源をきり、結晶表面の様子を注意深く観察しながら、良質の結晶を厳選し、歪みがかからないよう極力注意して管より取り出し、試料とする。サンプルホルダーには真鍮のものを用いる。

試料の良し悪しは通常、液体ヘリウム温度での反射、発光スペクトル測定により判断する。比較的良質と考えられる試料の反射スペクトルの一例を図 3—3 に示す。光源には浜松ホトニクス社製高安定 Xe ランプによる白色光を用い、分光器は 1 m の分光器（日本分光、CT100T）を使用した。分解能は 0.07 Å ある。反射スペクトルによる試料の評価は、その反射帯の形状、Z₃ 縦波励起子エネルギーでの落ち込み具合、干渉縞などに注目する。反射ピークに分裂が生じると試料に歪みがかかっているものと判断される。干渉縞は試料の厚さ、多層膜構造の有無等の情報を与える。図に示した試料は厚さ 13 μm と判断した。尚、短波長側 368, 366nm 付近に Z₃ 励起子 n=2, 3 準位による構造である。

同じ試料の発光スペクトルを図 3—4 に示す。発光スペクトルでは自由励起子発光、束縛励起子発光などから、試料の不純物、欠陥の濃度等を定性的に評価する。不純物や欠陥由来の準位が飽和しないように励起光は弱励起下であることが重要である。そこで、励起光源には Xe ランプの光を UV フィルターに通し、紫外部のみを取り出して用いた。励起光のエネルギーは Z_{1,2} 励起子よりも高エネルギー側となっている。発光スペクトルには自由励起子 (FE) 発光の他に、1LO、2LO フォノンサイドバンド、束縛励起子発光 (I₁, I₂) が観測されている。

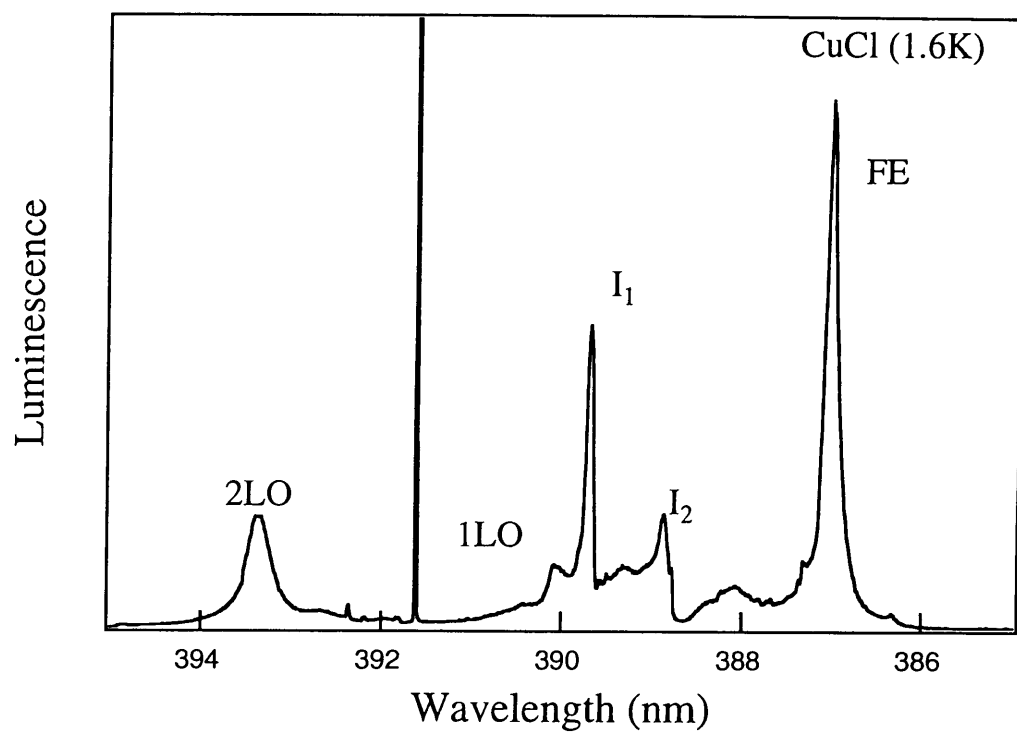


図 3 - 3 発光スペクトル

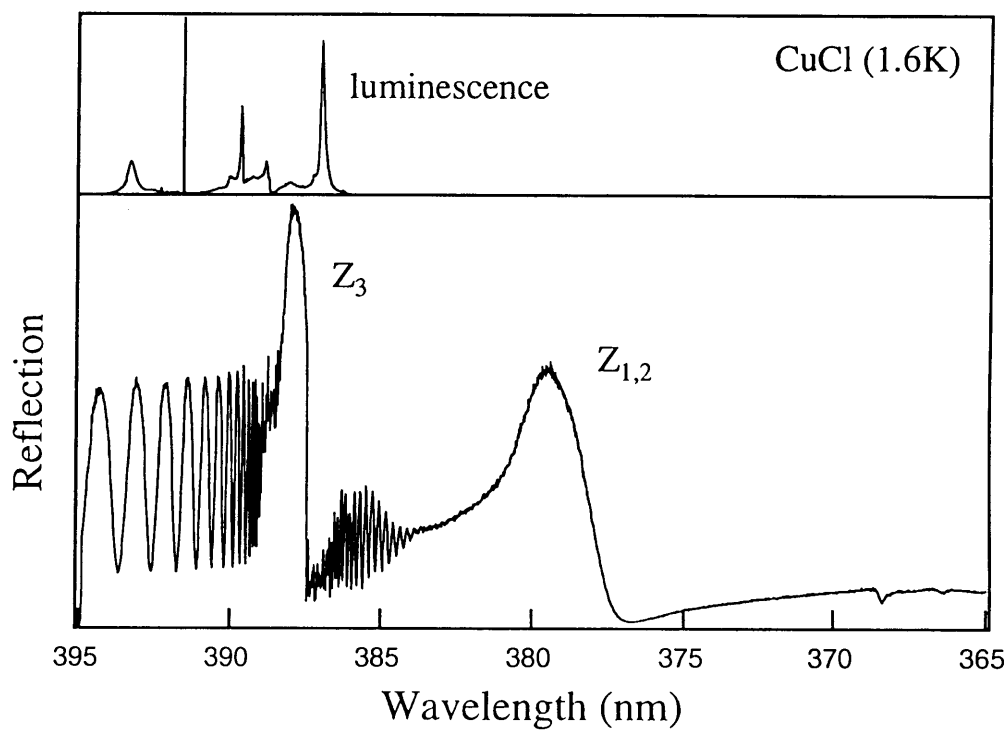


図 3 - 4 反射スペクトル (下) と発光スペクトル (上)

§ 3—2 光源

本研究では対象とする物質系、必要とする時間分間能、スペクトル分解能、強度に応じていくつかの光源を使い分けた。ここでまとめて簡単にこれらの光源について述べる。

3—2—1 ナノ秒色素レーザー

このレーザーは CuCl 用高分解能光源として用いた。色素励起光源はエキシマレーザー (XeCl, 308nm Lambda Physic 社 LPX120) を使用した。パルス幅は 20nsec、繰り返し 10Hz、出力は最高で約 150mJ/pulse である。エキシマレーザーの出力はビームスプリッターで分けて同時に数台の色素レーザーを励起した。

図 3—5 に色素レーザーの構成図を示す。共振器は、石英ウェッジ基板、色素セル、レンズ、回折格子 (ホログラフィック型 3600 本/mm)、及びミラーから構成される。レーザーのスペクトル線幅を狭くするために、回折格子は斜入射で使用し、回折格子照射断面積が大きくなるようにした。色素は α -NND (トルエン-エタノール混合溶媒) を用いた。色素の循環は行っていない。発振波長は 387–398nm である。レーザー線幅は、半値全幅で約 0.02 Å ($\sim 20\mu\text{eV}$)、パルス幅は 3 ~ 7 nsec である。出力は数 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ である。発振波長はミラーを回転して行う。連続掃引する場合は、ミラーをロータリーエンコーダー内蔵マイクロメーターを通して、ステップモーターで回転させた。回転角に対応するエンコーダー出力を記録し波長に校正した。

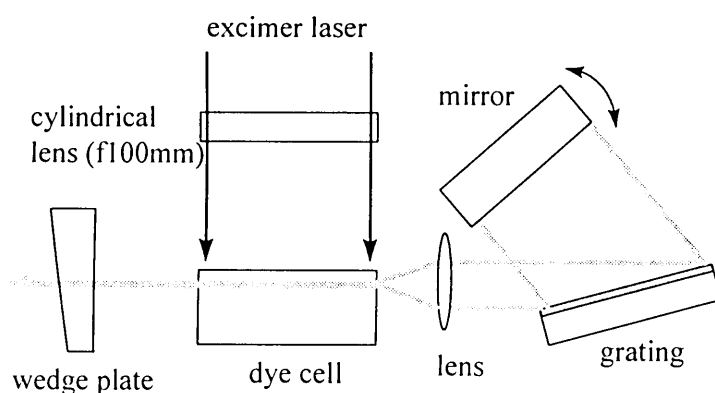


図 3—5 ナノ秒色素レーザー

3—2—2 CWモード同期チタンサファイアレーザー

この光源は主に GaAs 量子井戸励起子系の実験に使用した。CWA_r イオンレーザー (Coherent 社 I310) からの出力 8W を励起光源とする、チタンサファイアレーザー (コヒーレント社 MIRA) である。カーレンズ受動モード同期を用いており、繰り返し 76MHz、平均出力 800mW、中心波長は 700–900nm、典型的なパルス幅は約 160fsec である。スペクトル幅は約 9 nm、エネルギー幅 (バンド幅) にして 17meV である。群速度分散補正プリズムの調整によりスペクトル幅は 8nm から 20nm まで変化する。分散補正をプリズム対から GT 干渉計に切り替え、さらに複屈折フィルターの波長選択性を厳しくすることで、ピコ秒パルス出力も可能となっている。この場合のパルス幅は 2psec、スペクトル幅 0.4nm (0.7meV) である。ピコ秒動作では波長選択素子である複屈折フィルターを外部からステップモーターで制御して、連続波長掃引も行える。この場合、連続掃引範囲は波長 800nm 近辺で約 20nm 程度である。

分散補正回折格子対を用いたスペクトルフィルタリング

上記のモード同期チタンサファイアレーザーは、ピコ秒フェムト秒の切り替えが比較的容易で状況に応じて便利な使い分けが可能であるが、その中間的なパルス幅あるいはスペクトル幅が必要となることも少なくない。本研究でも近共鳴での仮想励起現象の研究において近共鳴での振る舞いを調べる上でポンプ光のスペクトル幅を狭める必要が生じた。強度に余裕があればフェムト秒パルスからなんらかの波長分散素子を用いてスペクトル上でフィルターをかければよいわけだが、単に分光器などの波長分散素子によりスペクトルを切り出すと、回折格子などの分散素子によりパルス内での波長による時間差 (チャープ) が生じてパルス幅が必要以上に広がることになる。この分散素子によるチャープの効果を補償するために、本研究では図 3—6 に示すような分散補正回折格子対によるスペクトルフィルターを用いた²。ここでその構成を簡単に述べておく。

回折格子対の中間位置では時間軸情報が図の上下方向での空間情報へフーリエ変換される。ここにマスク (スリット) を置き、その中心位置により切り出すパルスの中心波長を、スリット幅によりスペクトル幅を変化させることができる。回折格子は刻線数 1800 本/mm のホログラフィック型のものを使用した。図 3—7 に入力、出力パルスのスペクトルとその強度自己相関波形を示す。実線はガウスフィットである。フィルター入射前でパルス幅 (自己相関波形の半値全幅) は 160fsec、スペクトル幅は 18.5nm、フィルター後でパルス幅 0.9psec、スペクトル幅 2.7nm となっている。時間バンド幅積はそれぞれ 1.35、1.09 となっており回折格子による分散の補正が効いていることがわかる。

ちなみにガウシアンパルスの場合のフーリエ変換リミットでの時間バンド幅積は0.624である。フィルター入射前ですでに大きな値となっているのは本モード同期レーザー自身の出力特性であると考えられる。

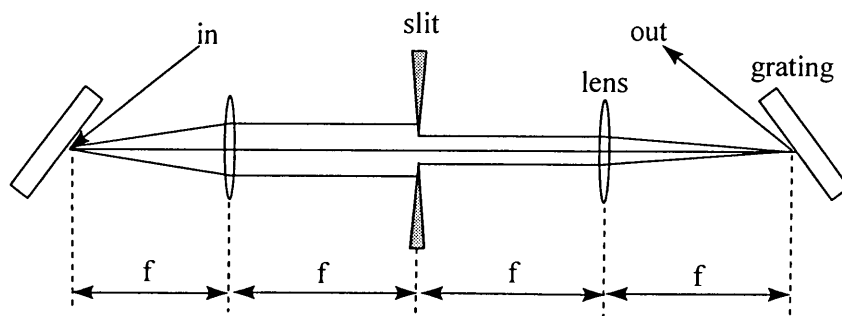


図3—6 分散補正回折格子対によるスペクトルフィルター

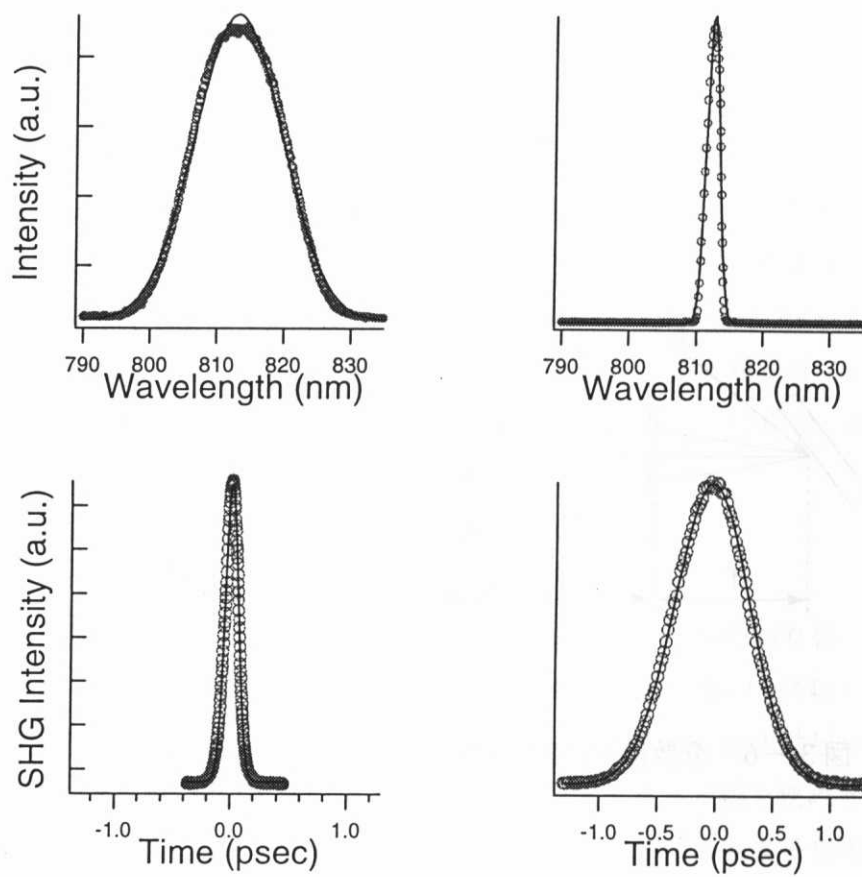


図3—7 フィルター入力（左）と出力（右）のパルスのスเปクトル幅と強度自己相関波形。実線はガウスパルスによるフィット。

§ 3—3 分光法

3—3—1 ポンププローブ分光法

ポンププローブ分光法は、時間分解非線形分光法としてもっとも一般的に用いられている手法である。本研究では GaAs 量子井戸系の光シュタルク効果の実験、電荷誘起非線形光学応答の実験に用いた。概念図を図 3—8 に示す。ポンププローブ分光法では、ポンプ光照射によって誘起された系の誘電率変化を、それと時間遅延 τ のついたプローブ光の反射率の変化 $\Delta R/R$ あるいは透過率変化として測定するものである。 $\Delta R/R$ 、あるいは $\Delta T/T$ を τ の関数として測定することによって、系の状態のダイナミクスをパルス幅の時間分解能程度で追跡することができる。

ポンプ光はレーザの出力をそのまま用いる場合もあれば、本研究のようになんらかの選択励起を行うためにある程度の単色性をもたせる場合もある。可視領域のポンププローブ分光では、プローブ光は自己位相変調により発生させた白色光源を使用する場合が多いが、本研究ではモード同期フェムト秒レーザ自身がすでに広いスペクトル幅を有しているので、これをそのまま白色光的に使用した。プローブ光の試料からの反射あるいは透過光は冷却 CCD カメラ (OMA) 付き分光器に導き、ポンプ光の on と off でのスペクトルをそれぞれ測定することで $\Delta R/R$ あるいは $\Delta T/T$ を得る。プローブが単色の場合は、光電子増倍管やフォトダイオードなどの光検出器で直接検出する。この場合、スペクトル情報を得るためにはレーザ自身の波長を掃引することになる。

ポンプ光とプローブ光の時間遅延依存性は、どちらかの光路に時間遅延用並進ステージを組み入れ、その光路長を変化させることで得られる。本研究では並進ステージのマイクロメータをステップモータにより測定器と連動して動かした。

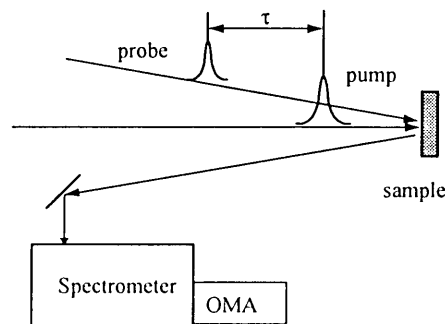


図 3—8 ポンププローブ分光の概略図（反射配置）

3—3—2 偏光分光法

この分光法は CuCl 励起子励起子分子系の実験に用いた。通常のポンププローブ分光が、ポンプによって誘起された誘電率変化を、プローブ光の反射あるいは透過の強度変化として検出するのに対し、偏光分光法はプローブ光の偏光の変化として検出する。偏光の変化のみを信号として検出するため、基本的にはバックグラウンドリーな分光法であり、非常に高感度な分光法である。当初この分光法は、高感度なドップラーフリーな分光法として Wieman ら³により開発された。彼らはこの手法を用いて水素および重水素のバルマー β 線の観測に利用して、超微細構造の観測に成功している。

その後、Liao ら⁴は偏光分光法を Na 原子の 3s-5s 二光子遷移の分光に応用した。これは Wieman らの吸収飽和型の分光ではなく、s-s 二光子遷移の偏光選択則を利用するものである。s-s 遷移では、左右逆回り円偏光の二光子の組み合わせによって二光子遷移が可能となる。そこで左回り円偏光 (σ_-) のポンプ光の周波数 Ω_2 を固定して直線偏光のプローブ光の周波数をその近辺で変化させる。但し Ω_0 は二光子遷移の周波数である。直線偏光は左右逆回り円偏光の組み合わせと見なすことができるため、左回り円偏光のポンプ光と直線偏光プローブ光の右回り成分が結合して二光子遷移を起こす。一方、プローブ光の左回り成分は遷移には寄与しないので、二光子共鳴点 $\Omega_0 - \Omega_2$ においてプローブ光の両円偏光成分間に吸収係数の差 $\Delta\alpha$ 及び屈折率 Δn の差が生じる。 $\Delta\alpha$ 、 Δn は複素屈折率変化の虚部および実部に対応し、それぞれ円二色性、旋光性をもたらす。この結果試料を透過したプローブ光は主軸の傾いた楕円偏光となる。この偏光回転角から、複素屈折率の実部の変化、すなわち二光子共鳴分散を測定することができる。

このように偏光分光法は高精度、高感度な分光法として主に原子分光の分野で応用され微細構造の観測、ラムシフトの精密測定などに用いられてきた。Kuwata^{5,6}はこの分光法を固体励起子系の分光に応用した。CuCl 励起子分子の二光子遷移はまさに原子の s-s 遷移と同じ偏光選択則をもつため、上述の二光子偏光分光法が使えるのである。Kuwata はこの二光子偏光分光法を用いて、CuCl 励起子ポラリトンおよび励起子分子を対象に波数空間での詳細な分光を行った。偏光分光法は非線形屈折率変化を偏光状態の変化を通して定量的に測定ができるため、半導体励起子共鳴における非線形感受率の評価に応用されている。

以下に本研究で用いた二光子偏光分光法について詳しく述べる⁶。

図 3—9 にその原理を示す。結晶にはほぼエネルギーの等しい直線偏光プローブ光 (Ω_1)

と左回り円偏光 (σ_-) のポンプ光 (Ω_2) を入射する。 Ω_1 と Ω_2 の和は Γ_1 励起子分子準位のエネルギーと等しくなるようにする。

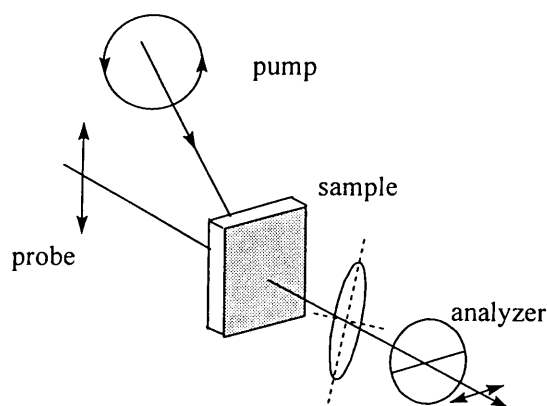


図 3—9 二光子偏光分光法の概念図

さて、励起子分子の Γ_1 対称性により、その二光子遷移は原子における s-s 遷移と同様に、左右逆回り円偏光の組み合わせに対して許容となる。直線偏光プローブ光を左右円偏光の重ね合わせとみなすと、この偏光選択則によりプローブ光の右回り円偏光成分 (σ_+) のみがポンプ光 (σ_-) と組み合わさって励起子分子を形成することとなる。これはプローブ光の右回り円偏光成分に対する複素屈折率に変化を引き起こす。一方には複素屈折率変化は生じない。その結果プローブ光の右回り円偏光成分間に屈折率差 $\Delta n = n_+ - n_-$ が生じる。この Δn の実部 $\text{Re}(\Delta n)$ はプローブ光に旋光性をもたらし、その虚部、 $\text{Im}(\Delta n)$ は円二色性を引き起こす。その結果試料を透過したプローブ光は主軸の傾いた楕円偏光となる。

さて左回り円偏光 (σ_-) 励起下での、プローブ光の電場振幅 $E_1(z)$ は、進行方向を z 軸にとると次の方程式にしたがって結晶中を伝搬する。

$$\frac{dE_1}{dz} = i(k_0 + \Delta k(z) \hat{J}_-^s) E_1(z) \quad (3-1)$$

ここで k_0 はポンプ光がないときのプローブ光の波数、 $\Delta k(z)$ はプローブ光の成分に誘起された波数の変化であり、上述の Δn を用いて

$$\Delta k(z) = \frac{\Omega_1}{\hbar c} \Delta n$$

と表される。 \hat{I} および \hat{J}_- は Jones 行列で、次式を満たす。

$$\begin{aligned}\hat{I}\sigma_{\pm} &= \sigma_{\pm} \\ \hat{J}_-\sigma_{\pm} &= j_{\pm}^-\sigma_{\pm}, \quad j_{\pm}^- = \begin{cases} 1(\sigma_+) \\ 0(\sigma_-) \end{cases}\end{aligned}\quad (3-2)$$

ここで σ_{\pm} は、 σ 成分を表す単位 Jones ベクトルであり、この基底を用いて直線偏光プローブ光は

$$\mathbf{E}(z) = E_+(z)\sigma_+ + E_-(z)\sigma_- \quad (3-3)$$

と書ける。(3-1) 式は簡単に積分できて、試料通過後のプローブ光の電場は次のようになる。

$$E_{\pm}(l) = E_{\pm}(0) \exp i(k_0 l + \delta) \sigma_{\pm} + E_{\mp}(0) \exp i(k_0 l) \sigma_{\mp} \quad (3-4)$$

ここで

$$\delta = \int_0^l \Delta k(z) dz = \frac{\Omega_1}{\hbar c} \int_0^l \Delta n(z) dz \quad (3-5)$$

であり、 l は試料の厚さを表す。簡単のためポンプ光の試料中での減衰を無視して、 $\Delta k(z)$ は z によらないとすると (3-5) 式は

$$\delta = \Delta k \cdot l = \frac{\Omega_1}{\hbar c} \Delta n \cdot l \quad (3-6)$$

となる。

さてこの励起子分子生成に伴うプローブ光の偏光変化をもとの直線偏光と直交する検光子により観測する。検光子の Jones 行列を \hat{P}_A とすると検光子を通過するプローブ光の信号強度 I_{sig} は

$$I_{\text{sig}} = \frac{c}{8\pi} \left| \hat{P}_A \mathbf{E}_1(l) \right|^2 \quad (3-7)$$

と表される。入射プローブ光の偏光を x 軸方向、検光子の方角を y 軸方向にとると

$$\mathbf{E}_1(0) = E_1(0) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{P}_A = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3-8)$$

となる。式 (3-4) から式 (3-8) より、 $\delta \ll 1$ の近似のもとに信号強度 I_{sig} は次式により表される。

$$I_{\text{sig}} = \frac{1}{4} |\delta|^2 I_0 = \frac{1}{4} \left| \frac{\Omega_1}{\hbar c} \Delta n l \right|^2 I_0 \quad (3-9)$$

ここで

$$I_{\text{sig}} = \frac{c}{8\pi} \left| \mathbf{E}_1(0) \right|^2 \exp(-\alpha l) \quad (3-10)$$

でありポンプ光がないときの試料透過直後のプローブ光強度を表す。 α は線形な吸収係

数である。

三次の非線形光学過程では屈折率変化 Δn は、三次非線形感受率 $\chi^{(3)}$ を用いて

$$\Delta n = \frac{2\pi\chi^{(3)} |\mathbf{E}_2^m|^2}{n_0(\Omega_1) \cdot 2} \quad (3-11)$$

と表される。 n_0 はプローブ光のエネルギー Ω_1 での線形な屈折率である。

\mathbf{E}_2^m はポンプ光の試料内部での電場振幅であり外部入射電場 \mathbf{E}_2^{out} とは試料表面での反射の補正、および試料中での線形な吸収を考慮して次式により関係づけられる。

$$|\mathbf{E}_2^m|^2 = \left| \frac{2}{n_0(\Omega_1) + 1} \right|^2 |\mathbf{E}_2^{out}|^2 \frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha l} \quad (3-12)$$

ここに α は Ω_2 での線形な吸収係数である。

以上より、透過率の直交偏光成分は次式により表される。

$$\frac{I_{sig}}{I_0} = \frac{1}{16} \left(\frac{\Omega_1 l}{\hbar c} \right)^2 \left| \frac{2\pi\chi^{(3)}}{n_0(\Omega_1)} \right|^2 |\mathbf{E}_2^m|^4 \quad (3-13)$$

スペクトルは $\chi^{(3)}$ の絶対値を反映してローレンツ型になり、信号強度はポンプ光強度の二乗に比例することがわかる。

参考文献

- ¹ 田中和典 修士論文 (1993、広島大学)
- ² 江馬一弘 博士論文 (1991、東京大学)
- ³ C. Wieman and T. W. Hansh, Phys. Rev. Lett. 36, 1170(1976)
- ⁴ D. F. Liao and G Bjorkland, Phys. Rev. A15, 2009(1977)
- ⁵ M. Kuwata, J. Phys. Soc. Jpn.53, 4456(1984)
- ⁶ 桑田 真 博士論文 (1984、東京大学)

第4章 近共鳴域での励起子系の 光シュタルク効果 —弱く相互作用するボゾンモデルによる記述—

本章では、1章に述べた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にあてはめて、その理論的定式化を行う。特に励起子間の相互作用および励起子分子の効果を統一的に取り入れて、励起子共鳴エネルギーの光シュタルクシフトを議論する。光シュタルクシフトに励起子間相互作用がどのように反映されるのか、2準位原子系の光シュタルク効果との類似点、相違点は何か、という観点から離調依存性、偏光依存性について考察する。

§ 4—1 光シュタルク効果とは

まず2準位原子系の光シュタルク効果について説明しよう。光シュタルク効果に代表される強いレーザー場と相互作用する原子系の光学応答の研究は、レーザーの発明を契機としていわゆる飽和分光を源として発展してきた。飽和分光の最大の魅力は不均一拡がりの中から均一幅の情報を抽出することであり、主に気体原子を対象とした高分解能精密分光として進められてきた。その過程で、強いレーザー光の照射下での吸収線のシフト¹や分裂²、共鳴蛍光における側帯波³などが見出されるようになり、光と物質の強い相互作用が物質系の光学応答に劇的な変化をもたらすことがわかってきた。これら強いレーザー場によって誘起される吸収線のシフトや分裂は、静電場下でのシュタルク効果に対比して光シュタルク効果あるいは動的 (AC) シュタルク効果と呼ばれている。いまや光シュタルク効果は、原子の感じるポテンシャルを制御してその重心運動を操作したり、高効率非線形光学過程への応用⁴など、より積極的な光制御技術として用いられるに至っている。

ここでは二準位原子の光シュタルク効果について明快な描像を与えてくれる“着衣の原子” (Dressed Atom) モデル⁵について述べ、準位のシフトや分裂について定量的な表式を導いておく。このモデルでは原子と相互作用する光の場を摂動として扱わず、原子、光、及び原子—光結合系の固有状態を直接全ハミルトニアンを対角化することにより求める。

まず相互作用がない場合の2準位系、輻射場のハミルトニアンはそれぞれ以下のように表せる。

$$H_A = \hbar\omega_0|e\rangle\langle e| + |g\rangle\langle g|$$

$$H_L = \hbar\omega(a^\dagger a + 1/2)$$
(4—1)

ここで二準位系の $|e\rangle, |g\rangle$ 上準位、下準位の固有状態、 $a^\dagger(a)$ は光子の生成（消滅）演算子である。

一方、双極子近似のもとでは輻射場と原子系との間の相互作用は

$$H_{A-L} = g(|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|)(a^\dagger + a)$$
(4—2)

と表せる。 g は結合定数である。

ここで全系の無摂動の固有状態 $|e, N\rangle, |g, N+1\rangle$ を考える。 N は系の光子数である。近共鳴($\omega \approx \omega_0$)の場合にはこの二つの準位はほぼ縮退している(図4—1(a))。相互作用が加わった場合の新たな固有状態は、全系のハミルトニアン $H_A + H_L + H_{A-L}$ を対角化すればよく、無摂動の固有状態を用いて回転波近似のもとに

$$|1(N)\rangle = \sin\theta|g, N+1\rangle + \cos\theta|e, N\rangle$$

$$|2(N)\rangle = \cos\theta|g, N+1\rangle - \sin\theta|e, N\rangle$$
(4—3)

となる。

ここで θ は

$$\tan 2\theta = \frac{\Omega'_R}{\Delta}$$
(4—4)

で定義され、 Ω'_R, Δ は一般化されたラビ周波数および離調

$$\Omega'_R = \sqrt{\Delta^2 + \Omega_R^2}, \quad \Omega_R = 2g\sqrt{N}/\hbar$$

$$\Delta = \omega_0 - \omega$$
(4—5)

である。各固有エネルギーは

$$E_{1(N)} = (N + \frac{1}{2})\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\omega_0 + \frac{1}{2}\hbar\Omega'_R$$

$$E_{2(N)} = (N + \frac{1}{2})\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\omega_0 - \frac{1}{2}\hbar\Omega'_R$$
(4—6)

となる。離調ゼロではそのエネルギー差はちょうどラビ周波数に等しく、この効果はラビ分裂と呼ばれる。この反発により生じる二つの状態はマイクロ波領域の実験に因んで Autler-Townes 二重項⁶と呼ばれることもある。低エネルギー側に大きく離調した場合の遷移のエネルギーは、

$$E_{2(N)} - E_{1(N)} \approx \hbar\omega_0 + \frac{\hbar\Omega_R^2}{2\Delta}$$
(4—7)

となり、第二項が光シュタルク効果による高エネルギーシフト（ブルーシフト）を与える。離調の大きい極限では光シフトは光強度に比例し、離調に反比例する。

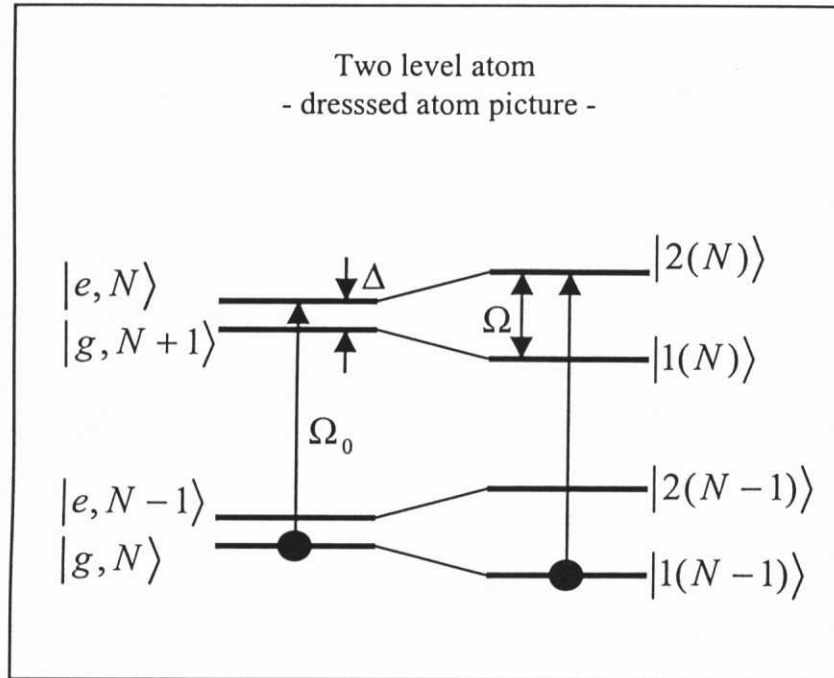


図4-1 (a) 二準位原子系の光シュタルク効果

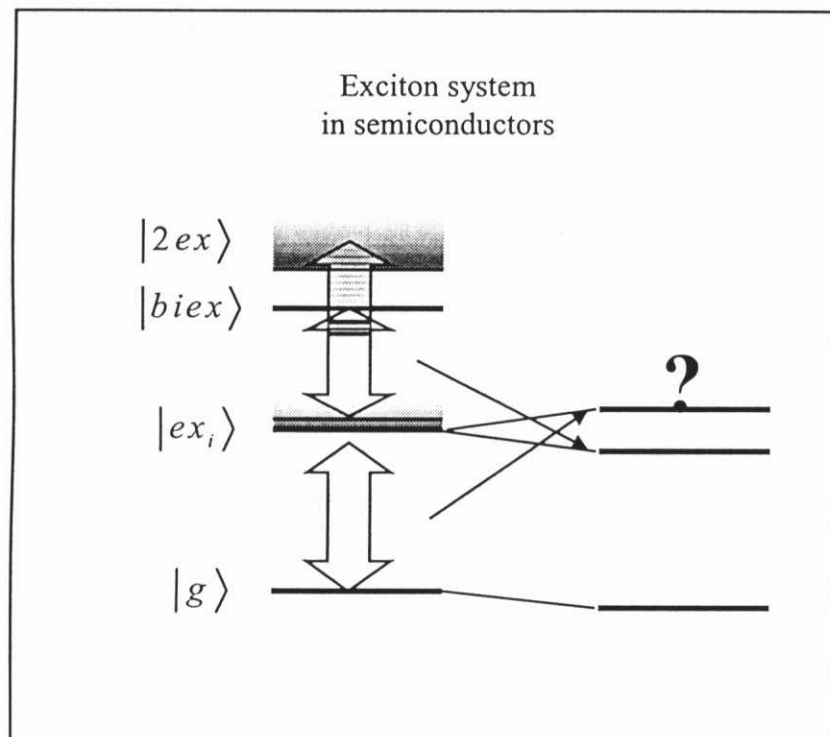


図4-1 (b) 励起子系の光シュタルク効果

§ 4—2 励起子系の光シュタルク効果—背景—

さて、半導体励起子系はその吸収スペクトルに水素原子的なリュードベリ系列が観測されることなど、その一電子励起構造に関しては原子系と多くの類似性を示す。では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効果を、励起子系で観測することは可能であろうか。励起子は結晶内に非局在化した状態であって、均一幅も原子に比べると数桁広いため、観測可能なスペクトル変化を引き起こすのに必要な励起光の強度も原子系に比べると桁違いに大きくなってしまふ。またこの強い励起光によって高密度に生成された励起子やキャリア間の散乱によって、系のコヒーレンスが急速に乱されてしまふ。したがって如何に実キャリアによるインコヒーレントな効果を回避して、コヒーレントな過程を抽出するかが重要となる。

励起子系の光シュタルク効果の最初の観測はFrohlich ら⁷により、Cu₂O 励起子系でなされた。これはナノ秒レーザーによる準定常状態下の実験であり、1S-2P 準位間に共鳴する強いレーザー光照射下で誘起された1S 励起子準位の変化が吸収スペクトルを通して観測されている。1s-2p 準位間に共鳴するポンプ光が基底状態からは透明領域にあり、実励起を生じないことが鍵となっている。その後 Mysyrowicz ら⁸により、GaAs 量子井戸励起子系で、低エネルギー側に大きく離調されたフェムト秒パルス照射下でパルス幅(150fs)に瞬時的に追隨する励起子ブルーシフトの観測が報告され、実験結果は原子系に倣って着衣の励起子モデルで定性的に説明された。この実験を契機として励起子光シュタルク効果は、キャリア寿命に制限されない超高速光スイッチとして強い応用上の関心を集めることとなった。基礎的な興味としても、低密度の極限ではボゾンとして振る舞う励起子系が、非調和極限の2準位原子モデルで扱ってよいかどうかは自明でなく、励起子光シュタルク効果発現の微視的機構の解明を目指して多くの理論的、実験的研究が進められてきた。

その過程で、

- 1) ポンプ光の離調が励起子束縛エネルギーに比べて十分大きいときは、バンド間遷移の振動子強度を持つ2準位原子系と同等であること^{9,10}
- 2) 起子束縛エネルギーの数倍程度の離調では、上記バンド間遷移の振動子強度を持つ2準位系に、位相空間充填効果の補正を加えたもの¹¹

として理解できることが明らかとなってきた。これらの特徴は励起子がフェルミオンである電子と正孔で構成され、したがってその非線形性発現の機構が2準位原子と同じ

くパウリの排他率に起因することを示している。このような類似性が妥当となるのは、励起子間相互作用あるいはクーロン相互作用における高次の相関の効果といった多体効果を反映するエネルギースケールに比べて離調が十分大きい領域である。

これまでの実験の多くが主に比較的大きな離調で行われていたのは、以下のような理由がある。

通常、励起子系では、原子系と異なって、実励起によるインコヒーレントな効果为了避免のために励起光のエネルギーは励起子共鳴の低エネルギー側に設定する必要がある。すなわち、光源のスペクトル幅 $\delta\Omega_p$ 、離調 Δ_p 、励起子位相緩和時間 T_2 の間に、

$$\Delta_p > \delta\Omega_p, T_2^{-1} \quad (4-8)$$

の関係が満たされている必要がある。この場合、励起光と物質系との相互作用を特徴づける時間スケールは概ね離調の逆数 Δ_p^{-1} となる。このような条件下での励起は、系に実励起を残さない¹²と言う意味で仮想励起と呼ばれる。これまでの実験では光源として主に使用されていたフェムト秒パルスが広いスペクトル幅を持つために、仮想励起の条件を満たす離調はかなり大きな値となっていた。例えば、例えば 100fs のフーリエ変換限界のガウシアンパルスのスペクトル幅は波長 800nm で 9.3nm、エネルギーにして 18meV になる。このような大きな離調では励起子光シュタルク効果はバンド間の双極子を持つ 2 準位系としてさして違わない結果になっていたわけである。

しかし、共鳴に近づくとこのような単純化が許されなくなるわけであり、また逆にこのような領域でこそ、励起子間相互作用という形で、多体系としての励起子系の非線形光学応答の特徴が顔を出してくると思われる。このことを次の節で議論する。

§ 4-3 励起子の光シュタルク効果

—弱く相互作用するボゾンモデルによる取り扱い—

では、1 章で述べた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効果を考察してみよう。

具体的な定式化に入る前に、励起子をボゾンとみなすモデルと着衣の原子モデルとの対応を考えてみよう。

着衣の原子描像では、光シュタルクシフトは、状態 $|e, N\rangle$ 、 $|g, N+1\rangle$ の準位反発として理解できた。一方、励起子系の場合、2 準系と異なり 1 励起子状態の上にさらに 2 個、

3 個の励起子状態を考えることができる。したがって最低次では、 $|2ex, N-1\rangle$ 、 $|1ex, N\rangle$ 、 $|g, N+1\rangle$ の三つのがエネルギー的に縮退することになる。新たな固有エネルギーはこの三つの状態間の相互作用を考慮すればよいことになる。励起子が調和振動子である場合、すなわち 2 励起子状態 $2ex$ がエネルギー的な非調和性をもたず、また 1 励起子から 2 励起子への遷移のモーメントも 1 励起子のそれと同じである場合、1 励起子状態のエネルギーシフトは生じない[†]。逆に、励起子間に相互作用があって、2 励起子状態への遷移のモーメントの非調和性とエネルギーの非調和性があるからこそ、励起子系の光シュタルク効果が生じることとなる（図 4—1 (b)）。

この励起子の非調和性を、より具体的な形で取り入れたのが 1 章で述べた弱く相互作用するボゾンモデルであり、以下このモデルを励起子光シュタルク効果に応用し、光シュタルクシフトを定式化しておく。

まず 1 章で述べた WIBM のハミルトニアン（1—1）から、以下のように定義される実効的な励起子分極および励起子分子分極

$$p_{\pm} = \sqrt{\frac{v_e}{V}} \left\langle b_{\pm} - \frac{v_e}{V} v b_{\pm}^{\dagger} b_{\pm} b_{\pm} \right\rangle, \quad p_b = \sqrt{\frac{v_e}{V}} \langle B \rangle \quad (4-9)$$

に対する運動方程式を 3 次の範囲内で導くと

$$\begin{aligned} i \frac{\partial p_{\pm}}{\partial t} &= \omega_e p_{\pm} + \left[2R |p_{\pm}|^2 + W |p_{\mp}|^2 \right] p_{\pm} + K p_b p_{\mp}^* \\ &\quad - \frac{\mu E_{\pm}}{\hbar} (1 - 4v |p_{\pm}|^2) \\ i \frac{\partial p_b}{\partial t} &= \omega_b p_b + K p_{+} p_{-} \end{aligned} \quad (4-10)$$

が得られる^{††}。この式が示すように、WIBM における励起子間相互作用の導入は、調和振動子の運動方程式に現象論的に非調和項 W 、 R を加えることに対応している。また位相空間充填効果が振動子強度（双極子モーメント）の減少を与えることもわかる。

[†] $N=1$ の場合は、2 励起子を考えることはできず、結果として強度に依存しない励起子分裂が得られるがこれはボラリトンの LT 分裂に他ならない。

^{††} この WIBM による分極の運動方程式（4—10）と等価な運動方程式が 1—2—2 に述べた DCTS の方法からも得られている。励起子共鳴近傍の非線形応答を議論するかぎりでは、フェルミオン描像とボゾン描像は、高次のクーロン相互作用を先に考慮して最後に励起子を構成するか、最初に励起子を構成しておいてクーロン相互作用を励起子間の相互作用という形で導入するかの違いであり、高次のクーロン相互作用を摂動として扱える場合には両者に対応関係が得られるのは自然である。

さて実際の実験では励起子光シュタルク効果は、強い非共鳴ポンプ光照射下で誘起される励起子共鳴エネルギーの変化がプローブ光の吸収あるいは反射の共鳴線のスペクトル変化として観測される。

共鳴線のシフトを求めるには、ポンプ光およびプローブ光電場

$$E = E_p e^{-i\omega_p t} + E_l e^{-i\omega_l t} + c.c. \quad (4-11)$$

に対しての分極応答を考え、ポンプ光の効果を繰り込んだ形での分極の固有振動数を考えればよい。ただし最低次でプローブ光電場振幅に対して1次、ポンプ光に対して2次までを考慮し、離調 $\Delta = \omega_0 - \omega_p$ がラビ周波数 $\mu E_p / \hbar$ より十分大きいとの条件のもとに解く。実験に対応して、ポンプ光、プローブ光の各偏光状態に対応する表式を定常状態で導いておくと、

1) σ_+ ポンプ σ_+ プローブ下では

$$p_{l+} = \frac{\frac{\mu E_{l+}}{\hbar} (1 - 4\nu |p_{p+}|^2)}{\omega_e - \omega_l - i\gamma + 2R |p_{p+}|^2 + 4\nu \frac{\mu E_{p+}}{\hbar} p_{p+}^*} \quad (4-12)$$

$$\delta\omega = \omega_{eff} - \omega_e = (2R + 4\nu\Delta) \left| \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right|^2$$

となる。第2項はいわゆる位相空間充填効果によるシフトである。これは2準位原子系のシュタルクシフト $2 \frac{|\mu E_{p+}|^2}{\Delta}$ に増強因子 2ν だけ乗じたものになっている。この因子は励起子飽和密度 n_s に関連して $2\nu = (n_s v_e)^{-1}$ で表される。 v_e は励起子の体積である。この増強因子 2ν は、水素原子様 1S 励起子波動関数について解析的に求められており、三次元で 7/2、二次元で 16/7 となっている^{11,13}。離調 Δ が大きい場合はこの項が主となる。一方、第1項は励起子間相互作用によるものでその影響は離調の二次で効くため、近共鳴で重要になることが予想される。

2) σ_- ポンプ σ_+ プローブ下では

$$p_{i+} = \frac{\frac{\mu E_{i+}}{\hbar}}{\omega_e - \omega_i - i\gamma + W_{eff} |p_{p-}|^2} \quad (4-13)$$

$$\delta\omega = \omega_{eff} - \omega_e = W_{eff} |p_{p-}|^2 = \left[W - \frac{K^2}{\omega_b - \omega_i - \omega_p - i\gamma_b} \right] \left| \frac{\mu E_{p-}}{\Delta} \right|^2$$

を得る。

第一項は異なるスピン (左右逆回り円偏光励起) 励起子間の相互作用から生じるシフトである。シフトの符号は離調によらず W の符号のみで決まっている。一方 [] 内第二項は励起子分子からの寄与である。分母にプローブ光周波数 ω_i が含まれているので完全な形では解かれていない。あえて第一項 (W) を無視して解くとシフトは

$$\delta\omega = -\frac{K^2}{\Delta - \varepsilon_{bi}} \left| \frac{\mu E_{p-}}{\Delta} \right|^2, \Delta - \varepsilon_{bi} + \frac{K^2}{\Delta - \varepsilon_{bi}} \left| \frac{\mu E_{p-}}{\Delta} \right|^2 \quad (4-14)$$

の二解で与えられる。 ε_{bi} は励起子分子の束縛エネルギーである。この結果は励起子準位の分裂を表している。

σ_+ ポンプ σ_+ プローブの場合と同様、励起子間相互作用の影響は離調に関して高次で効くため近共鳴で重要になると考えられ、逆に近共鳴での光シュタルクシフトの振る舞いから、励起子間相互作用を特徴づけるパラメータ R 、 W についての情報が得られると考えられる。

以上、本章では、弱く相互作用するボゾンモデルに基づいて励起子光シュタルク効果の定式化を行った。特に励起子間相互作用および励起子分子の効果がどのような形でどのような条件下で励起子シュタルクシフトに反映されるのかということに主眼を置き、光シュタルクシフトの離調依存性、偏光依存性について考察した。

最後に表 4-1 に (4-12) から (4-14) で導いた、 $\Delta > \gamma_{ex}, \varepsilon_{bi}$ の離調での、ポンプとプローブの偏光配置 (σ_+, σ_+)、(σ_-, σ_+) それぞれに対する励起子光シュタルクシフトを整理しておく。

	σ_+ ポンプ, σ_+ プローブ	σ_- ポンプ, σ_+ プローブ
位相空間充填効果	$4v\Delta \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$	---
励起子間相互作用	$2R \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$	$W \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$
励起子分子	---	$-\frac{K^2}{\Delta} \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$ $, \Delta - \varepsilon_{bi} + \frac{K^2}{\Delta - \varepsilon_{hi}} \left \frac{\mu E_{p-}}{\Delta} \right ^2$

表 4 - 1 ポンプとプローブそれぞれの円偏光配置に対する
励起子光シュタルクシフト

参考文献

- ¹ F. Y. Wu, S. Ezekil, M. Ducloy, and B. R. Mollow, *Phys. Rev. Lett.* 38,1077 (1977)
- ² H. R. Gray and C. R. Stroud, *Opt. Commun.* 25,359 (1978)
- ³ R. E. Grove, F. Y. Wu, and S. Ezekil, *Phys. Rev. A* 15,227 (1977)
- ⁴ S. E. Harris, *Physics Today* 36, July (1997); L. V. Hau, S.E. Harris, Z. Dutton, C. H. Behroozi, *Nature* 397,594 (1999)
- ⁵ 詳しくは例えば、C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, "Atom-Photon Interaction", John Wiley and Sons, Inc, 1992 New York など
- ⁶ S. H. Autler and C. H. Townes, *Phys. Rev. Lett.* 100, 703 (1955)
- ⁷ D. Frolich, A. Nothe, K. Reimann, *Phys. Rev. Lett.* 55, 1335 (1985)
- ⁸ A. Mysyrowicz, D. Hulin, A. Antonetti, A. Migus, W. T. Masselink, H. Morkoc, *Phys. Rev. Lett.* 56, 2748 (1986)
- ⁹ M. Combescot and R. Combescot. *Phys. Rev. B* 40, 3788 (1989)
- ¹⁰ M. Joffre, D. Hulin, A. Migus, and M. Combescot, *Phys. Rev. Lett.* 62, 74 (1989)
- ¹¹ S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, H. Haug, *Phys. Rev. B* 37, 941 (1988)
- ¹² 実際には、二光子吸収等の高次過程を通して実励起が生じることが指摘されている : W. Knox, D.S.Chemla, D. A. B. Miller, J. B. Stark, and S. Schmitt-Rink, *Phys. Rev. Lett.* 62, 1189 (1989)
- ¹³ H. Haug, and S. W. Koch, "Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors", World Scientific, 1990, Singapore

第5章 CuCl 励起子励起子分子系の 光シュタルク効果

CuCl は、励起子の束縛エネルギーが 198meV と非常に大きく、また励起子分子が安定に存在する系としても知られその束縛エネルギーは 34meV と他の半導体に比べても非常に大きい。第2章でも述べたように、励起子分子の存在が最初に確認されたのもこの系であり、その発光緩和過程や分散関係などが、励起子分子—励起子発光や二光子吸収、二光子ハイパーラマン散乱などにより詳細に調べられている。また低温下では励起子分子とフォノンとの相互作用が小さいことも特徴で、弱励起下で励起子分子の位相緩和エネルギーは 20 μ eV 程度と固体中の非局在電子励起状態としては特異的に鋭い共鳴線幅を持つ¹。このため、光シュタルク効果における励起子分子の影響を調べる上では最適の系であると考えられる。

§ 5—1 二光子偏光分光法による励起子分子ラビ分裂の観測

本章では、図 5—1 (a)に示すように、励起子—励起子分子間遷移に共鳴するポンプ光を照射し、光シュタルク効果における励起子分子の影響を調べた²。励起子—励起子分子間遷移に共鳴するポンプ光は励起子分子の大きな束縛エネルギーのために基底状態からは透明領域にあり、実励起によるインコヒーレントな効果を避けることが可能となっている。

さて励起子は原子などの孤立系と異なり結晶全体に広がった状態である。このため波数 k がよい量子数となり、結晶中を伝播する光と強く結合して新たな連成モード、励起子ポラリトンを形成する。したがって、図 5—1 (a)に示した孤立三準位モデルは正確でなく、実際には励起子ポラリトンを考慮する必要がある。図 5—1(b)に励起子ポラリトン、励起子分子の分散関係に基づくモデルを示す。実線がポラリトンおよび励起子分子の分散であり、波線は後に述べるポンプ光により誘起される光シュタルク効果を表している。

実験では、励起子—励起子分子間に共鳴するポンプ光により誘起される励起子分子準位の変化を観測することとした。そのために高感度高分解能分光法として3章に述べた二光子偏光分光法を用いた。二光子偏光分光法により実験で観測するのは図 5—1(b)に示すように波数 $K=2k_0$ の励起子分子準位である。 k_0 は二光子共鳴における励起子ポラ

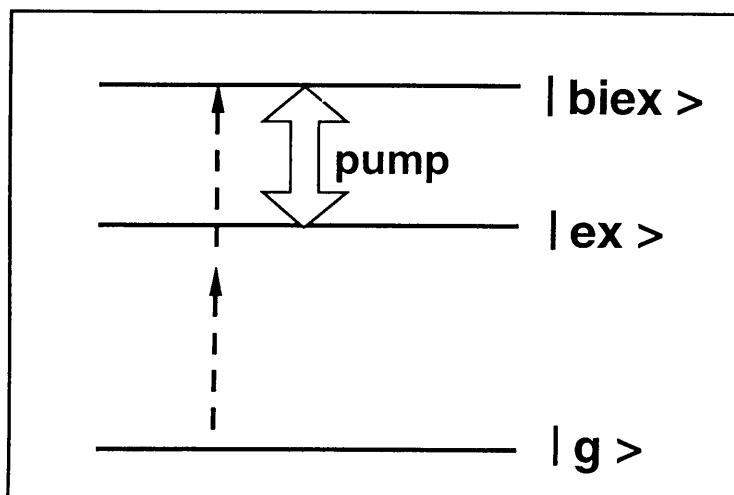
リトンの波数である。さてこの波数 $\mathbf{K}=2\mathbf{k}_0$ の励起子分子の発光過程を考える。結晶内での遷移は、波数とエネルギーの保存則を満たす二状態間で許容となる。したがって、波数 $\mathbf{K}=2\mathbf{k}_0$ の励起子分子が発光過程により下枝ポラリトン (Lower Branch Polariton、以下 LBP と呼ぶ) に遷移する場合、二通りの過程が考えられる。一つは二光子吸収の逆過程である。もう一つは、より波数の大きな ($\sim 3\mathbf{k}_0$) LBP へと遷移する過程であり、この際に放出される光 (結晶中ではこれもポラリトンとなる) は M_T 発光と呼ばれる。励起子分子がこの M_T 発光により遷移する LBP の波数を \mathbf{k}_1 とする。

そこで、この M_T 発光に対応する波長のポンプ光を共鳴的に試料に照射することを考える。ただし、波数の保存則から波数 $\mathbf{K}=2\mathbf{k}_0$ の励起子分子が波数 \mathbf{k}_1 の LBP と相互作用するためには、ポンプ光としては $\mathbf{k}_p=2\mathbf{k}_0-\mathbf{k}_1$ の波数を持つ必要がある。このために、プローブ光と逆方向からポンプ光を照射する。

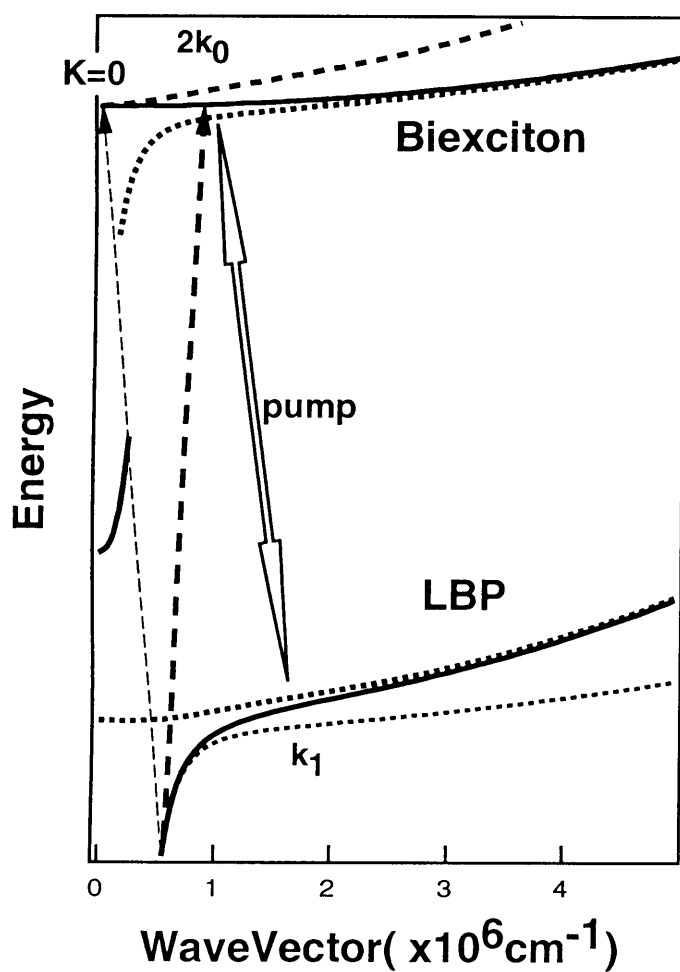
実験配置を図 5—2 に示す。光源には XeCl エキシマレーザー励起の色素レーザーを二台用意した。繰り返しは 10Hz、パルス幅は 5nsec である。スペクトル幅は分解能を上げるため極力狭くし、半値全幅で約 20 μ eV となっている。色素はともに α -NND を用いた。ポンプ光は、さらに α -NND の循環セルで一段増幅し、約 50MW/cm² までの強度が得られた。

一台の色素レーザー (dye laser 2) は、励起子-励起子分子を結合させるポンプ光に用いる (beam 3)。もう一台のレーザー光 (dye laser1) は二本に分け (beam 1, beam 2)、二光子偏光分光法により、励起子分子準位の振る舞いを高感度に検出する。波長は、dye laser2 は励起子分子の M_T 発光線付近 ($\sim 3910 \text{ \AA}$, 3.170eV) に固定し、dye laser1 を二光子共鳴 ($\sim 3890 \text{ \AA}$, 3.186eV) 前後で掃引する。波長掃引をモニターするために、エアーギャップエタロン板を用いている。ポンプ光も含めて三本の光は、試料面で空間的・時間的に一致する様に注意する。試料面における各 beam の直径は、beam 1、2、3 でそれぞれ、100 μ m、150 μ m、200 μ m とした。beam 1、2 は十分弱励起にしてそれぞれ、数 kW/cm²、十数 kW/cm²、程度、beam 3 は可変 ND フィルターにより、10 kW/cm² \sim 1 MW/cm² の範囲で変化させた。

Babinet Soleil 補償板はクライオスタットやレンズなどによる光学的異方性を打ち消すために使用し、beam 2、3 のない状態で消光比 10^{-5} 台まで得ることができた。試料は、気相成長により作製した CuCl 薄片単結晶 (厚さ数 2-15 μ m) で、面の美しいものを厳選して用いた。これを、歪みがからないよう極力注意して真鍮製ホルダーに取付け、ヘリウムガス冷却型クライオスタット内に設置する。測定はすべて低温下 (4.2K) で行なった。



(a) Three level model



(b) Polariton picture

図 5—1 励起子励起子分子間の光シュタルク効果

(a) 3 準位モデル (b) ポラリトンモデル

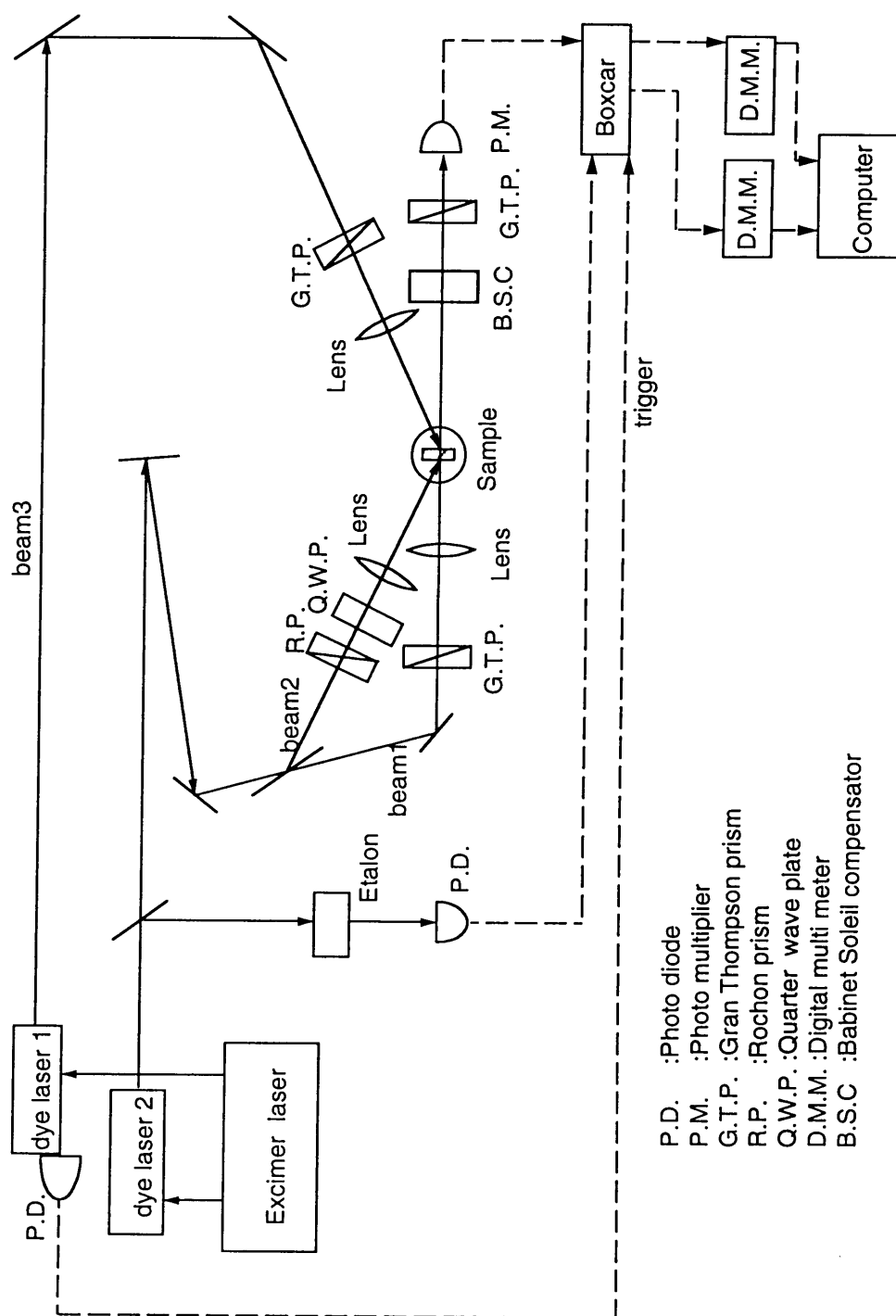


図 5—2 実験配置

図 5—3 に二光子偏光分光スペクトルのポンプ光強度依存性を示す。ポンプ光強度は最大で 350kW/cm^2 の範囲で変化させた。ポンプ光の波長は励起子—励起子分子間共鳴 (3.17009eV) に丁度合わせ (ゼロ離調)、プローブ光の波長励起子分子二光子共鳴近傍で掃引した。ポンプ光強度ゼロで観測される一本の励起子分子二光子共鳴スペクトルが、ポンプ光強度の増加と共に分裂し、かつその分裂幅が増加していくのがわかる。

図 5—4 にはポンプ光強度は固定し、ポンプ光の波長 (離調) を励起子—励起子分子共鳴 (3.17009eV) 近辺で変えた際の、二光子共鳴スペクトルを示す。ポンプ光の離調によって、励起子分子準位が準位交差的な振る舞いをしていることがわかる。また離調が大きい場合にスペクトルに二つのピークが観測されるが、これはポンプ光がなくても観測された。この二本のピークは励起子分子の波数 $K=0$ と $K=2k_0$ の共鳴に対応している。励起子分子の並進運動による分散によりこの二つの波数間にわずかながらエネルギー差 $E_{bi}(2k_0) - E_{bi}(0) = \hbar^2(2k_0)^2 / 2M_{bi}$ が生じ、これが分離されて観測されている。今の実験配置では二光子偏光分光に用いる二つのビームは同方向から入射しているので、本来 $K=0$ の励起子分子は観測にかからないはずであるが、一方のビームが試料裏面で反射し、もう一本のビームとカウンタープロパゲイトに組み合わせさせて、この波数 $K=0$ の励起子分子を作ってしまう。但し、この $K=0$ の共鳴は試料によっては必ずしも見えないものもあり、試料の厚み、プローブの入射角に依存するものと考えられる。

さて図から光シュタルク効果による準位交差を示しているのは波数 $K=2k_0$ の励起子分子であり、波数 $K=0$ の励起子分子はポンプ光の影響を受けていないように見える。これは結晶内の遷移においてエネルギーと波数の保存則が厳しく成り立っていることを示している。

§ 5—2 k 空間での着衣のモデル

さて、これらの結果は励起子—励起子分子系があたかも 2 準位系のように振る舞っていることを示している。この結果は前章で考察した光シュタルク効果における励起子分子の寄与の項 (4—14) とよく対応している。(4—14) で示した励起子準位シフトは励起子分子準位についても生じる。ポンプ光は励起子—励起子分子間にはほぼ共鳴している。すなわち、 $\omega_p \approx \omega_b - \omega_c = \omega_c - \varepsilon_{hi}$ であり、励起子とポンプ光との離調 $\Delta \approx \omega_c - \omega_p = \varepsilon_{hi}$ であることを考えると、励起子準位の光シュタルクシフトは (4—14) 式から、

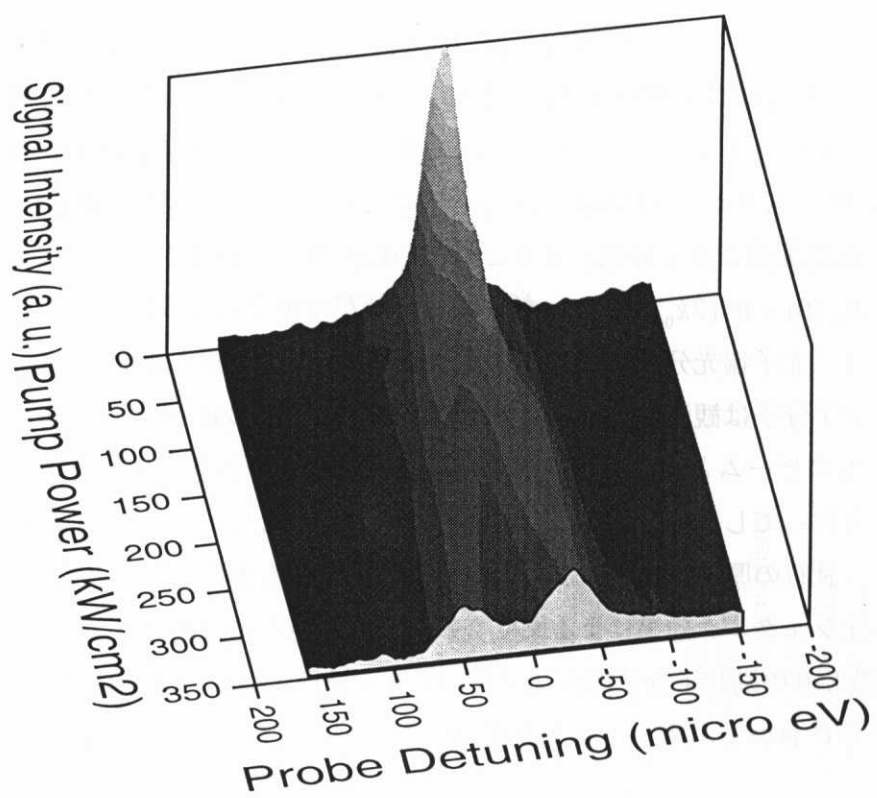


図 5-3 二光子偏光分光スペクトルのポンプ光強度依存性

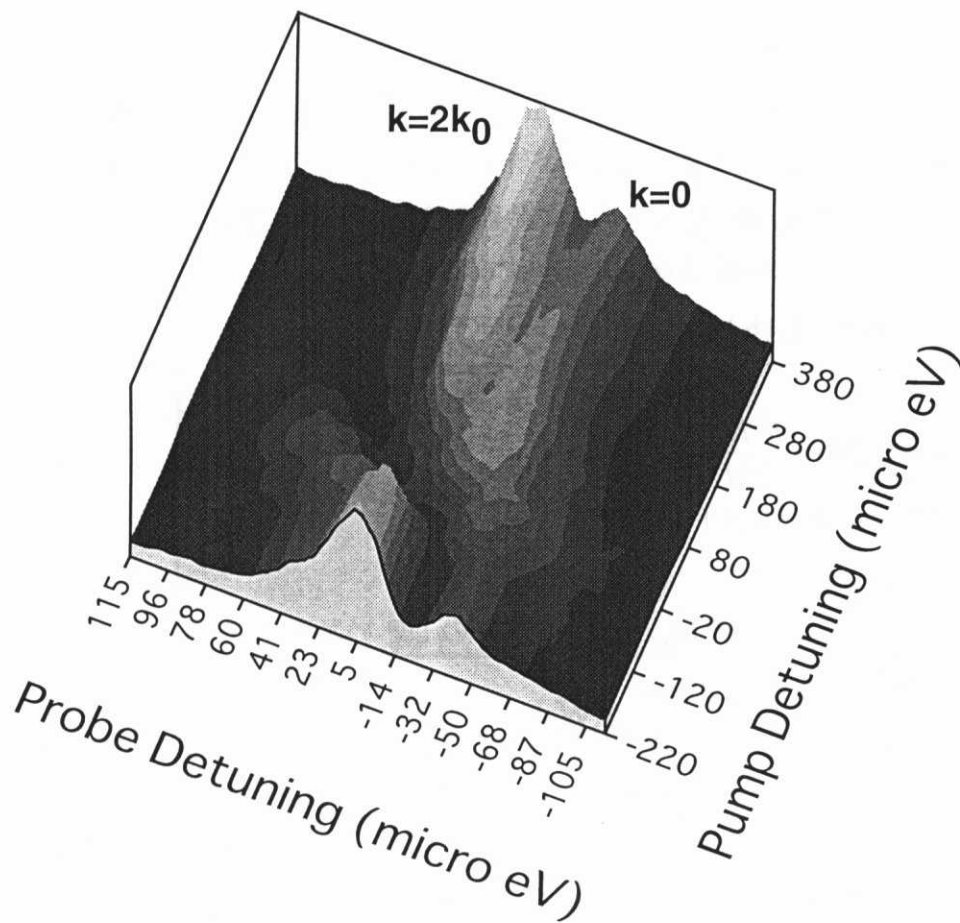


図 5 - 4 二光子偏光分光スペクトルのポンプ波長依存性

$$\hbar\delta\omega = \pm \frac{K^2}{\Delta_{bi-ex}} \left| \frac{\mu E_p}{\epsilon_{bi}} \right|^2 \quad (5-2)$$

で与えられる。ここで Δ_{bi-ex} は励起子—励起子分子間遷移のエネルギーを基準としたポンプ光の離調である。(5-2) は実効的双極子モーメント $\mu_{bi} = \frac{K}{\epsilon_b} \mu$ を持つ2準位原子系

の光シュタルク効果と見なすことができる。

さて、今の場合の2準位系とは、図5-1 (b) に示した波数 $\mathbf{K}=2\mathbf{k}_0$ の励起子分子準位と波数 $\mathbf{k}=\mathbf{k}_1$ のLBPである。ポンプ光子(ポラリトン)の結晶中での波数を $-\mathbf{k}_p$ とすると、波数保存則から $\mathbf{k}_1=\mathbf{K}+\mathbf{k}_p=2\mathbf{k}_0+\mathbf{k}_p$ である。この波数空間上での2準位系のラビ分裂は、原子の着衣のモデル(dressed model) に倣って

$$\Omega_{\pm} = \frac{\Omega_1(\mathbf{K}) + \Omega_2(\mathbf{K}) \pm \sqrt{[\Omega_1(\mathbf{K}) - \Omega_2(\mathbf{K})]^2 + \Omega_R^2}}{2} \quad (5-3)$$

$$\Omega_1(\mathbf{K}) = \Omega_B(0) + \frac{\hbar^2 K^2}{2M} \quad (5-4)$$

$$\Omega_2(\mathbf{K}) = \Omega_{EP}(\mathbf{K} + \mathbf{k}_p) + \Omega_{EP}(\mathbf{k}_p) \quad (5-5)$$

$$\Omega_R = \mu_{bi} E_p \quad (5-6)$$

と表すことができる。ここで $\Omega_{EP}(\mathbf{k})$ は波数 \mathbf{k} のLBPのエネルギー、 $\Omega_B(\mathbf{K})$ は波数 \mathbf{K} の励起子分子のエネルギーである。

上式より、既知のポラリトン分散関係に基づいて、ポンプ光により誘起される励起子、励起子分子のラビ分裂の様子を計算したものが図5-1 (b) の点線である。

また式(5-3, 4, 5, 6) からわかるように実験で得られた励起子分子の分裂幅から、励起子—励起子分子間遷移の実効的双極子モーメントの大きさ μ_{bi} を見積もることができる。図5-5 にポンプ離調ゼロでの実験で得られた分裂幅の強度依存性を示す。ただし、 $K=0$ の共鳴の影響をさけるため、分裂の高エネルギー側の分枝のみを強度の関数としてプロットしてある。励起強度に関して1/2乗で増加しているのがよくわかる。この係数より、実効的双極子モーメントを見積もると $\mu_{bi}=4.2e\text{\AA}$ となる。

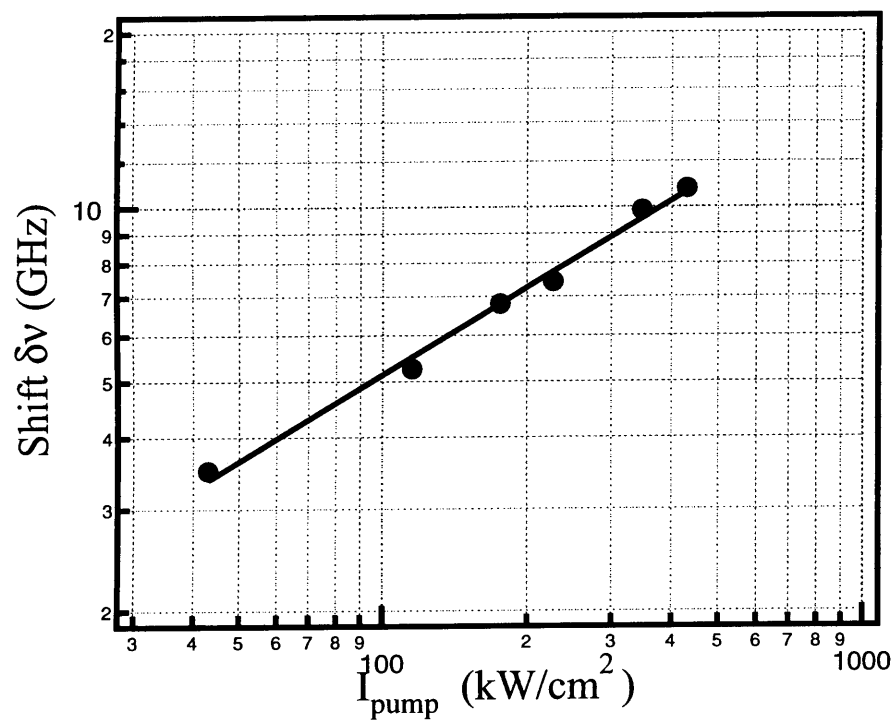


図 5-5 励起子分子光シュタルクシフトの励起強度依存性

§ 5—3 励起子分子の巨大振動子モデルと弱く相互作用するボゾンモデル

前節で得られた双極子モーメント $\mu_{bi}=4.2e\text{\AA}$ から、振動子強度と双極子モーメントとの関係式

$$f = \frac{2m_0\Omega}{\hbar^2} \frac{\mu^2}{e^2} \quad (5-7)$$

を用いて励起子—励起子分子間遷移の振動子強度を見積もると、 $f_{bi}=15.4$ という値を得る。 m_0 は電子の静止質量 $511\text{keV}(m_0c^2)$ である。

一方励起子の単位胞あたりの振動子強度は、LT 分裂値の値 $\Delta_{LT}=5.7\text{meV}$ から

$$f_{ex} = \epsilon_b \epsilon_0 \frac{m_0 c^2}{Ne^2 (\hbar c)^2} (\Omega_L + \Omega_T) \Delta_{LT} \quad (5-8)$$

を用いて、 $f_{ex}=0.00586$ となる。ここで、 N は単位胞あたりの価電子数 $4/(5.41\text{\AA})^3$ 、下地誘電率 $\epsilon_b=5.59$ 、励起子横波エネルギー $\Omega_T=3.2022\text{eV}$ 、 $\Delta_{LT}=5.7\text{meV}$ を用いた。

励起子—励起子分子間の遷移の振動子強度は、励起子の振動子強度に比べ非常に大きな値となっており、その比として

$$\frac{f_{bi}}{f_{ex}} = 2.5 \times 10^3 \quad (5-9)$$

という値が得られる。

これは励起子分子の巨大振動子効果と呼ばれるものである^{3,4}。

励起子分子の巨大振動子効果は、励起子分子を構成する二個の励起子の相対運動を表す波動関数 $g(\mathbf{r})$ を用いて

$$\frac{f_{bi}}{f_{ex}} = \frac{2[\int g(\mathbf{r}) d\mathbf{r}]^2}{v} \quad (5-10)$$

と表される。 $1/v$ は単位格子の体積中の振動子の数である。励起子分子は二電子の励起状態である。従って、励起子を中心として励起子分子の半径内にある全ての電子が遷移に寄与できるため、励起子—励起子分子間遷移は大きな増強効果を受けると考えられる。Akiyama ら⁵⁶は、励起子分子二光子共鳴励起下での発光寿命測定を行い、その寿命 50psec からにより $f_{bi}/f_{ex} \sim 3300$ という値を報告している。本研究でのラビ分裂から得られた値はこの発光寿命から得られた値と比較的よく一致している。

さて、(5—10) 式の定義によると励起子分子の半径が大きい程、言い換えれば束縛エネルギーの小さい励起子分子系ほど、励起子分子の巨大振動子効果は大きくなるこ

とになってしまう。この議論は物理的には不自然であり、この点に関して Ivanov らは、励起子分子二光子遷移を巨大振動子モデルではなく、二つの励起子ポラリトンの融合過程としてとらえるべきであると主張している（バイポラリトンモデル）⁷。本研究の WIBM に基づく光シュタルク効果の解析は、この二つの描像に対応関係を与えてくれるように考えられる。

WIBM では励起子分子の生成は二つの 1 s 励起子の融合として取り入れられており⁸、励起子分子の寄与による光シュタルクシフトは（4—14）式、 $\frac{K^2}{\Delta - \epsilon_{bi}} \left| \frac{\mu E_p}{\Delta} \right|^2$ により与えられている。前述したように、励起子—励起子分子間遷移にポンプ光がほぼ共鳴し、かつ、励起子分子束縛エネルギーが大きい場合には、励起子とポンプ光との離調 $\Delta \approx \omega_e - \omega_p = \epsilon_{bi}$ をほぼ定数として、上記シフトは実効的双極子 $\mu_{bi} = \frac{K}{\epsilon_{bi}} \mu$ を持つ 2

準位的な光シュタルクシフト $\frac{|\mu_{bi} E_p|^2}{\Delta_{bi-ex}}$ へと帰着する。CuCl 励起子分子の場合にはその

束縛エネルギーが 32meV と大きいため、この描像がよく当てはまると考えられる。しかし、励起子分子の束縛エネルギーが小さい場合はこのような描像よりはむしろ励起子—励起子融合過程の描像がより現実的であると考えられる。実際、励起子—励起子融合過程の確率を表す係数をあえて逆に励起子分子巨大双極子により表せば、 $K = \epsilon_{bi} \frac{\mu_{bi}}{\mu}$ と

なり、 $K \propto a_{bi}^{-1/2} \rightarrow 0$ ($a_{bi} \rightarrow \infty$) [$\because \epsilon_{bi} \propto a_{bi}^{-2}, \mu_{bi} \propto a_{bi}^{3/2}$]

から励起子分子半径に関する発散の問題は生じないことがわかる。

以上、本章では二励起子状態のひとつの典型例として励起子分子に注目し、非線形光学応答における励起子分子の効果を検討するために、励起子分子が安定な系である CuCl を対象に光シュタルク効果の実験を行った。その結果、励起子分子のラビ分裂が観測され、励起子—励起子分子間遷移が巨大双極子を持つ二準位原子的な振る舞いを示すことが見出された。WIBM による考察との比較を行い、この巨大振動子モデルは励起子分子が大きな束縛エネルギーを持ち、二励起子のエネルギーから大きく分離されているかつ、ポンプ光がちょうど励起子—励起子分子間遷移に共鳴している場合に正当化されることがわかった。また固体内非局在電子励起状態の特徴として、結晶の並進対称性を反映してコヒーレントな非線形光学過程において波数とエネルギーの保存則が厳密に成立していることも明らかとなった。

参考文献

- ¹ M. Kuwata-Gonokami, R. Shimano, J. Iwamatsu, H. Akiyama, T. Kuga, and M. Matsuoka, Phys. Stat. Solidi.(b)159, 347 (1990)
- ² R. Shimano and M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. Lett. 72, 530 (1994)
- ³ A. A. Golovin, JETP Lett. 17, 478 (1973)
- ⁴ E. Hanamura, Solid State Commun. 12, 951 (1973)
- ⁵ H. Akiyama, T. Kuga, M. Matsuoka, and M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. B42, 5621 (1990)
- ⁶ 秋山英文 博士論文 (1991、東京大学)
- ⁷ A. L. Ivanov, H. Haug, L. V. Keldysh, Physics Reports 296, 237-336 (1998)
- ⁸ 励起子分子を構成する二つの 1 s 励起子は互いに相互作用してその波動関数は純粋な 1 s 励起子のものから変形していると考えられる。これは、励起子分子を構成する励起子として高次の励起子 (n=2, 3...) が混ざりこむことに対応する。この意味で、WIBM で取り入れた励起子分子の寄与は、高次の励起子の影響がその係数に繰り込まれているとみなすべきものである。最近、Tokunaga らは CuCl を対象に二光子共鳴励起された励起子分子から励起子リユードベリ系列への発光 (励起子逆系列発光) の詳細な測定を行い、バイポラリトンモデルによる解析に基づき励起子分子波動関数のこれら高次の励起子の混成の影響を定量的に評価している: E. Tokunaga, A. L. Ivanov, S. V. Nair, Y. Masumoto, Phys. Rev. B 59, R7837, (1999)。その結果、1 s 励起子に対する高次励起子の成分比が 3 桁以下という結果が報告されている。

第6章 GaAs 量子井戸励起子系の 光シュタルク効果

GaAs 系は励起子のボーア半径が大きく（約 10nm）、励起子の束縛エネルギーも小さい。直接遷移型化合物半導体としてはより共有結合性が強く、前節の CuCl との対極に位置づけられる。CuCl とは対照的に励起子分子の束縛エネルギーは小さく、二励起子状態としては、励起子分子だけでなくその他様々な散乱状態が重要となってくる。したがってこのような系の非線形光学応答を理解するうえでは、励起子間にどのような相互作用が働いているのか、あるいはどのような二励起子状態をとりうるのかということが本質的に重要となる。実際これまでの四光波混合測定などから、二励起子間の相互作用形態が明らかとなりつつあり、励起子間引力、斥力相互作用などの特徴的な変数が相対量として求められつつある¹。そこで本章では4章で議論したように、インコヒーレントな効果や緩和の影響を避けてより正確かつ定量的に励起子非線形性を評価する実験手法として近共鳴での光シュタルク効果に注目し、その偏光依存性、離調依存性を詳細に測定し、弱く相互作用するボゾンモデルに基づいて励起子間相互作用の定量的な評価を行った。

§ 6-1 近共鳴での光シュタルク効果—実験—

試料は第3章に述べた GaAs 単一量子井戸を用いた。単一量子井戸は井戸層揺らぎによる不均一性を避けるうえで重要である。単一量子井戸で観測に十分な光学濃度（励起子吸収）を得るために、試料は微小共振器構造になっている。但し、共振器の Q 値は十分低いため固有モード分裂は見え、反射スペクトルにみられる励起子ディップを励起子共鳴エネルギーの敏感なプローブとして用いることができる。試料は循環型冷凍機に取り付け、全ての測定は低温（5～10 K）で行った。光源には高繰り返しモード同期チタンサファイアレーザーを用いた。パルス幅は 160fsec、スペクトル幅は 20meV 程度である。レーザーの出力をビームスプリッターで二つに分け、一方をそのままプローブ光として用いた。もう一方は光波形整形によりスペクトルフィルターをかけパルス幅 2psec、スペクトル幅 2meV 程度まで狭帯化して、近共鳴ポンプ光とした（本論文 § 3-2 参照）。ポンプ光の波長は共振器共鳴波長 804nm に固定し、量子閉じ込めシュタルク効果により励起子エネルギーを変化させることで離調依存性を系統的に調べた。測定は反射配置で行い、プローブ光の反射スペクトルを、50cm の分光器に取り付けられたオプ

ティカルマルチチャンネルアナライザー (CCD-OMA) により測定した。

図 6—1 に観測された光シュタルクシフトの様子を示す。ポンプ光と励起子の離調は 5.6meV、ポンプ光強度は共振器外で 60kW/cm²、ポンプパルス幅は 2 psec である。励起子エネルギーシフトはポンプパルスに追従して瞬時的であり、大きい離調の場合に問題とされている多光子励起による実励起による影響が殆ど見えない。これは近共鳴のために、ポンプ光強度が従来の実験に比べて、低く抑えられているためである。

さて光シュタルクシフトはポンプ光の偏光によって全く異なる結果を与えた。プローブと同じ向きの円偏光では励起子ブルーシフトを、逆回り円偏光ではレッドシフトが観測された。このレッドシフトは 2 準位原子モデルでは説明ができず、励起子間相互作用の影響が現れていると考えられる。

さて、これらの結果を第 4 章で導いた弱く相互作用する励起子モデルに基づいて考察してみる。(4—1 2 ~ 1 4) を再びまとめると $\Delta > \gamma_{ex}, \epsilon_{bi}$ 範囲で WIBM では、励起子光シュタルクシフトはポンプとプローブの偏光配置(σ_+, σ_+)、(σ_-, σ_+)それぞれに対して、

	σ_+ ポンプ, σ_+ プローブ	σ_- ポンプ, σ_+ プローブ
位相空間充填効果	$4v\Delta \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$	---
励起子間相互作用	$2R \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$	$W \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$
励起子分子	---	$-\frac{K^2}{\Delta} \left \frac{\mu E_{p+}}{\Delta} \right ^2$

で与えられる。

離調が大きい場合、(σ_+, σ_+)偏光配置では位相空間充填効果によるブルーシフトが支配的であり、(σ_-, σ_+)偏光配置では励起子間相互作用 W の項が支配的であると考えられる。逆回り円偏光配置で励起子レッドシフトが観測されることは、 W が負であることを意味し、異なるスピンを持つ励起子間に引力が働くことを意味している。

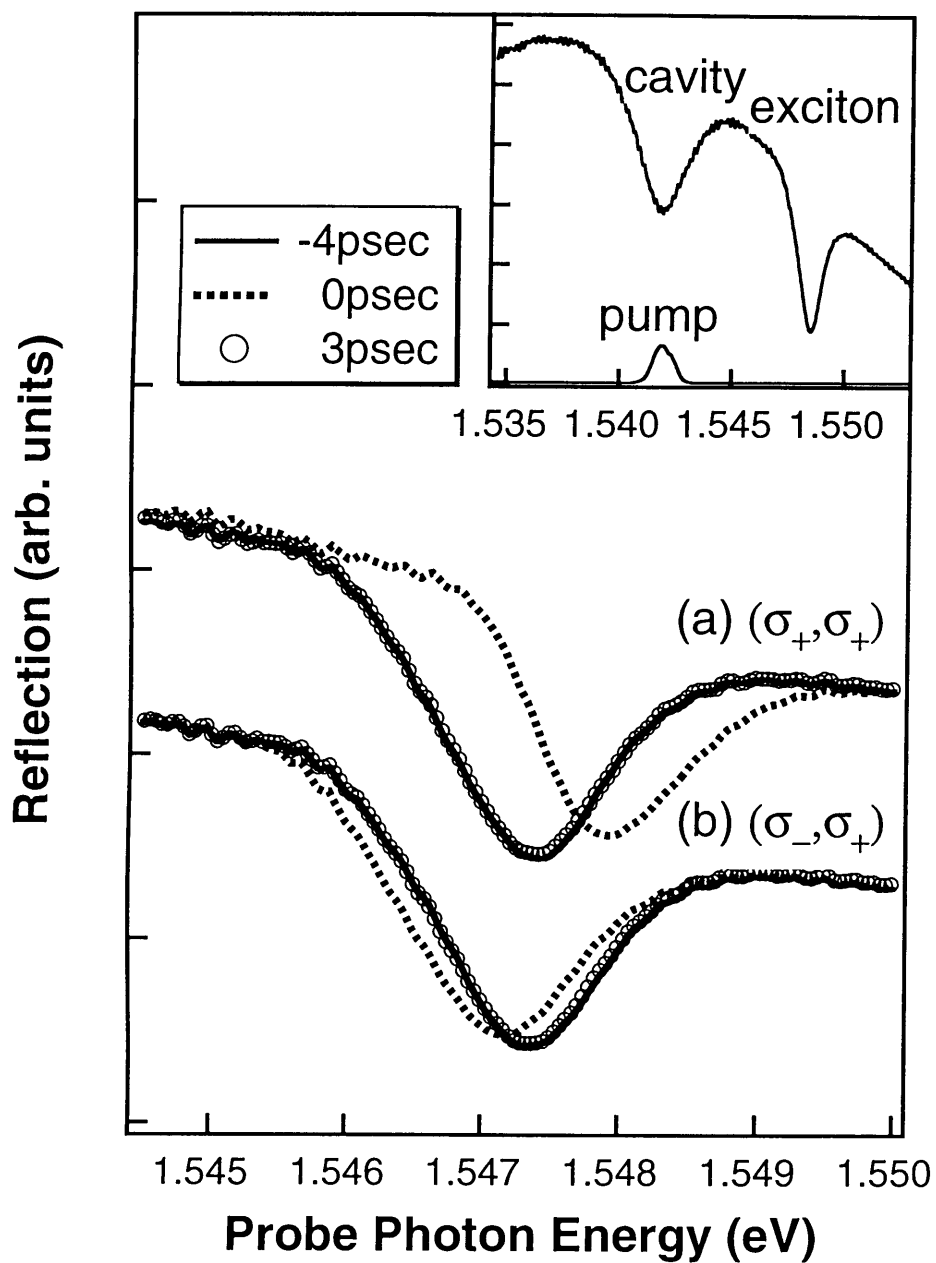


図 6-1 hh 励起子光シュタルクシフトの偏光依存性

ポンプとプローブの偏光は(a): (σ_+, σ_+) 、(b): (σ_-, σ_+) 。

ポンプ光強度は 60 kW/cm^2 。プローブのポンプに対する遅延時間は-4psec (実線)、0psec (点線)、3psec (白丸)。挿入図は広い範囲でプロットした線形な反射スペクトルとポンプスペクトル。

図6—2には各円偏光配置での光シュタルクシフトのポンプ離調依存性を示す。励起光強度は共振器外で $60\text{kW}/\text{cm}^2$ である。点線は、離調依存性としてそれぞれ (σ_+, σ_+) 偏光配置では Δ^{-1} 、 (σ_-, σ_+) 偏光配置で Δ^{-2} を考慮して、離調の大きい領域でフィットした曲線である。 (σ_+, σ_+) 偏光配置ではほぼ Δ^{-1} に比例し、この領域では位相空間充填効果が支配的であることがわかる。一方、 (σ_-, σ_+) 偏光配置では Δ^{-2} 依存性を示す励起子間引力的相互作用が主な寄与をしていると考えられる。離調の小さい領域でのずれはより高次の効果によるものと考えられる。ただし、 (σ_-, σ_+) ではシフトが減少する方向にずれているが、これは次章で扱う電場効果によるものと考えられる。

§ 6—2 励起子非調和パラメータの評価

さてこのフィッティングの係数から位相空間充填効果 v と励起子間引力相互作用 W について見積もることができる。まず共振器内部電場の共振器外電場に対する増強因子は反射スペクトルから評価すると、 $|E_p^{\text{in}} / E_p^{\text{out}}| = 38$ となる（付録A）。次にバンド間の双極子モーメントを求めてみる。まずバルク GaAs の LT 分裂の実験値 $\Delta_{LT} = 0.08\text{meV}$ より前章と同様、単位胞あたりの励起子振動子強度は

$$f_{\text{ex}} = \epsilon_b \epsilon_0 \frac{m_0 c^2}{N e^2 (\hbar c)^2} (\Omega_L + \Omega_T) \Delta_{LT}$$

より、 $f_{\text{ex}} = 1.00 \times 10^{-4}$ を得る。ここで、 N は単位胞あたりの価電子数 $4/(5.65\text{\AA})^3$ 、下地誘電率 $\epsilon_b = 12.6$ 、励起子横波エネルギー $\Omega_T = 1.515\text{eV}$ を用いた。 $m_0 c^2$ は電子の静止質量 511keV である。さて励起子双極子モーメントは単位胞あたりの振動子強度と

$$f_{\text{ex}} \cdot \frac{V}{u^3} = \frac{2m_0 \Omega_T}{\hbar^2} \frac{\mu_{\text{ex}}^2}{e^2}$$

で関係づけられる。 V は結晶の体積、 u^3 は単位胞体積である。これと励起子双極子モーメントとバンド間遷移の双極子モーメントの関係 $\mu_{\text{ex}} = \mu_{\text{cv}} \sqrt{V / \pi a_B^3}$ から、バルクに対して $\mu_{\text{cv}}^{3d} = 3.6\text{e}\text{\AA}$ と見積もられる。励起子ボーア半径は 12nm とした。さて、量子井戸では、さらに量子閉じ込めを反映して因子 $\sqrt{3/2}$ がかかって²、結局 $\mu_{\text{cv}}^{2d} = 4.4\text{e}\text{\AA}$ を得る。最終的に本実験でのラビ周波数は $\mu E_p = 0.9\text{meV}$ となる。この値と観測された光シフト量

$$v = 1.0$$

$$W = -9.8\text{meV}$$

という値が得られた。

位相空間充填効果については水素原子様波動関数の場合解析的に求められており二次元の場合は 1s 波動関数

$$\psi_{1sk} = \frac{\sqrt{2\pi}a_B}{(1 + (ka_B/2)^2)^{2/3}}$$

より $\nu = 8/7$ が得られており^{3,4}、また実験的にも GaAs/AlGaAs 多重量子井戸での光シユタルク効果の観測⁵からこの値とのよい一致が報告されている³。本実験で得られた GaAs 単一量子井戸励起子についての結果 $\nu = 1$ は、この値に非常に近く、水素原子様波動関数が良い描像を与えていると考えられる。また過去の実験との整合性からも、共振器構造による内部電場増大の評価（付録 A）に基づく本実験の解析が妥当なものであることを示しているといえる。

励起子間引力相互作用 W は励起子束縛エネルギーを越える大きな値となっているが、実際には結晶の体積による規格化因子を考慮した $\frac{\nu_e}{V}W$ が非調和エネルギー（二励起子エネルギーからのずれ）を表し、これは束縛エネルギーに比べて十分小さな値となると考えられる。 ν_e は励起子の体積である。

相対比 W/ν については四光波混合¹から得られた値 -6meV と本実験の値 -9.8meV とで比較的良い一致を得ている。また W と R の値については最近、非線形偏光回転測定の実験からも求められておりそれぞれ $W \sim -30\text{meV}$, $R \sim 2\text{meV}$ と評価されている⁶。偏光回転による評価では、共振器の電場増強効果が高次で作用すること、実励起の効果が生じることなどから本章での光シユタルクシフトの測定に比べ誤差が生じやすいことを考慮すると、むしろ比較的近い値が得られているといえる。

W あるいは R などの値は二励起子の固有状態に対応するものではなく、励起子間相互作用の結果生じる実効的な二つの 1s 励起子間の非調和エネルギーとして現象論的に導入されたものである。本研究では、これを定数と仮定するモデルに基づいて、比較的よく実験結果を説明することができ、またその値についても評価することができた。逆に、これら非調和パラメータを定数とみなす単純化がどのようなエネルギー（離調）範囲で有効であるか、言い換えればより広いエネルギー範囲では W や R がどのようなスペクトル構造を持っているか、を詳細に調べることは、励起子間相互作用についてより深い理解を得るうえでは重要であり、今後の課題としたい。

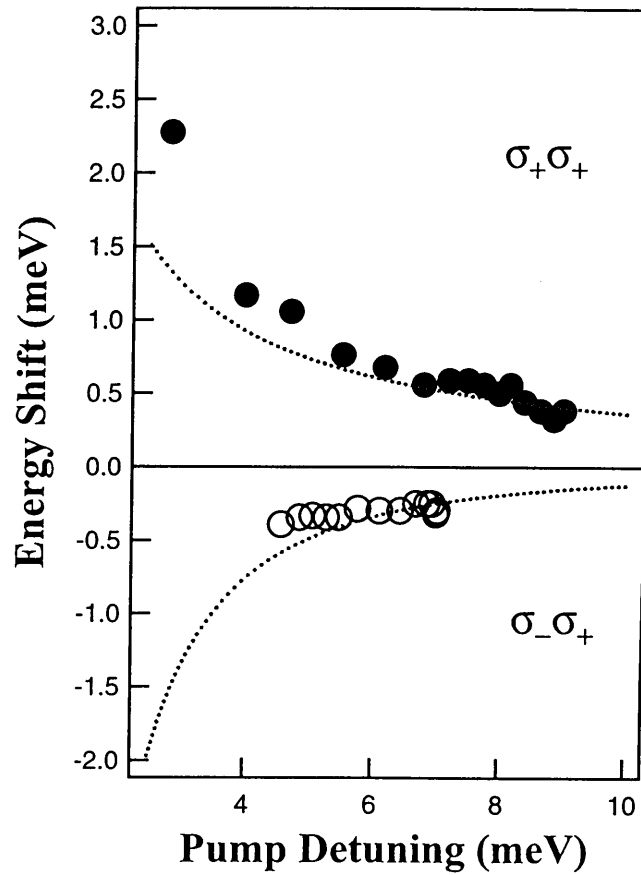


図 6-2 各円偏光配置での光シュタルクシフトの離調依存性。
 黒丸はポンプとプローブが同じ円偏光の場合、白丸は逆回り円偏光の場合。
 点線は同じ円偏光、逆回り円偏光の偏光配置について、それぞれ離調 Δ に関して、 Δ^{-1} 、 Δ^{-2} 依存性でフィットしたもの

参考文献

- ¹ M. Kuwata-Gonokami, S. Inouye, H. Suzuura, M. Shirane, R. Shimano, T. Someya, and H. Sakaki, Phys. Rev. Lett. 79, 1341 (1997)
- ² M. Yamanishi and Y. Suemune, IEEE J. Quantum Electron., QE-20,745 (1984)
- ³ S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, H. Haug, Phys. Rev. B 37, 941 (1988)
- ⁴ H. Haug and S. W. Koch, Chap16 in “Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors”, World Scientific,1990, Singapore
- ⁵ A. Von Lehmen, J. E. Zukker, J. P. Heritage, and D. S. Chemla, Opt. Lett.11,609 (1986)
- ⁶ C. Ramkumar, T. Aoki, R. Shimano, Y. P. Svirko, T. Kise, T. Someya, H. Sakaki, and M. Kuwata-Gonokami, J. Phys. Soc. Jpn. 68, 2439 (2000),

第7章 仮想電荷誘起非線形光学応答

本章では、前章までで得られた励起子系のコヒーレント非線形光学応答についての知見をもとに、その応用として仮想電荷誘起非線形光学応答 (Virtual Charge induced Optical Nonlinearity, VCON) の観測にとりくんだ。静電界下の量子井戸構造で非共鳴励起により仮想内部電荷分極を生成し、瞬時的な内部電界変調を起こす VCON のアイデアは、Yamanishi¹と Chemla ら²により独立に提唱され、回路の RC 時定数に制限されない超高速の非線形光素子への期待から多くの関心を集めてきた。しかし、これまで実験的には VCON の存在はいまだ明確には確認されておらず、その検証は長年の懸案となっていた。その最大の要因は光シュタルク効果との区別が困難であることにあった。本章では、前章までの励起子光シュタルク効果に関する詳細な知見をもとに、VCON の抽出を試みた。

§ 7-1 量子閉じ込めシュタルク効果

ここではまず本章の土台となる量子閉じ込めシュタルク効果 (Quantum Confined Stark Effect, QCSE)^{3,4,5}について述べる。

量子井戸にその井戸面に垂直に電界が加わった場合、電子（正孔）の感じるポテンシャルは図 7-1 (a) に示すように傾く。これに対応して、価電子帯、伝導帯サブバンド準位の波動関数は歪みまたそのエネルギーも変化する。例えば、サブバンド内最低準位の 1e、1hh の波動関数は、それぞれ片側の界面に押しつけられる。その結果 1e-1hh 間遷移は、低エネルギーシフトし、振動子強度は減少する。量子井戸厚 L が十分薄く量子閉じ込めエネルギー $\hbar^2\pi^2/2mL^2$ に比べて電界によるポテンシャル変化 eEL が十分小さい場合は電界効果は摂動として扱うことができ、そのエネルギーシフト量は水素原子 1s 状態と同様、電界の 2 乗に比例する。有限の厚さの井戸でも、変分計算によれば電界が十分弱い場合は、同様に電界の 2 乗に比例し、井戸厚に関しては 4 乗に比例することが示されている³。この静電界下での量子井戸に見られる電界効果は量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE) と呼ばれる。QCSE は、半導体バルク系での電界効果（フランク・ツェルディッシュ効果^{6,7}）に比べて、高電界下（ $\sim 100\text{kV/cm}$ ）でも量子閉じ込めのために電子と正孔が解離（電離）することがないため、極めて大きな電界効果をもたらす。例えば、 95\AA GaAs 量子井戸ではその 1e-1hh 励起子の共鳴エネルギーは束縛エネルギー

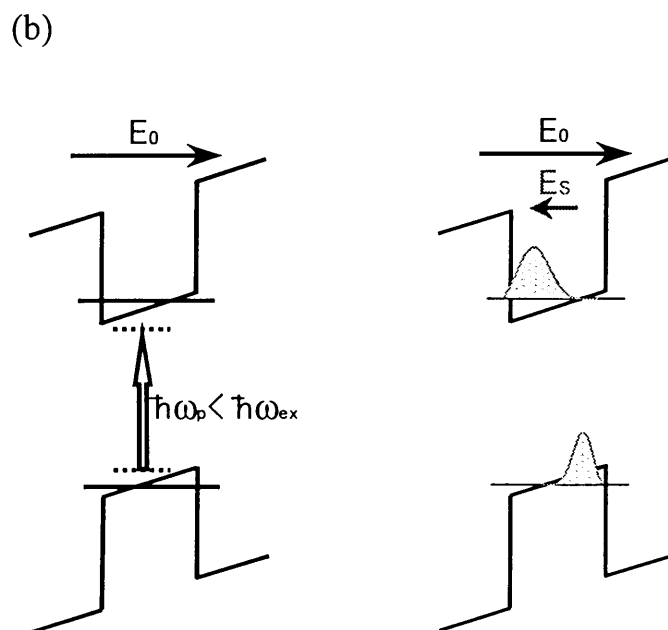
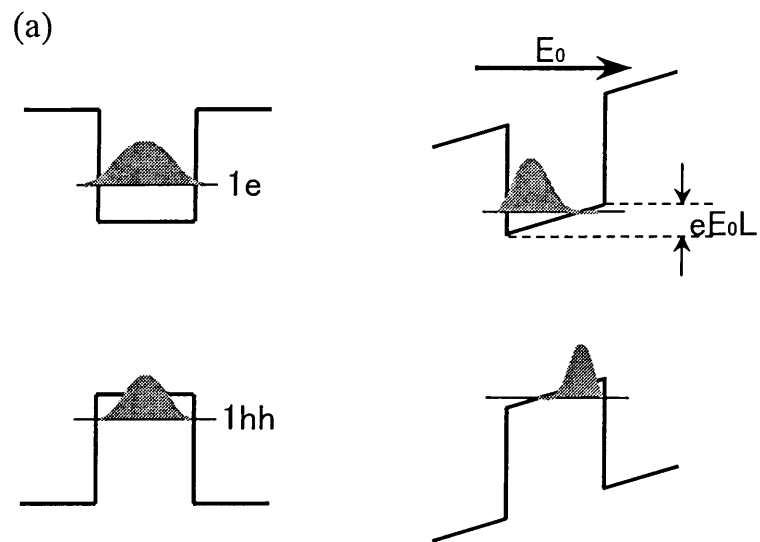


図 7 - 1 (a) 静電界下での量子井戸ポテンシャル
(b) 仮想励起による遮蔽電界の生成

の2倍以上の20meV近いシュタルクシフトを示す⁴。

§ 7—2 仮想電荷誘起非線形光学応答—背景—

量子閉じ込めシュタルク効果を用いた電界変調型光素子は、効率が高いこと、微細化が可能であることなどから、現在実用化されている10 Gbit/s光伝送から次世代の数10 Gbit/sまでの帯域を担うもっとも現実的な技術として、応用面で精力的な研究が進められている。しかし、電氣的な変調を利用する限り、回路が必然的に持つRC時定数の制限からさらなる高速化を計るのは困難である。そこでRC時定数の制限を受けない新たな技術が必要とされている。その一つの試みとして、光励起キャリアによる内部電界変調の利用が検討されてきた。静電界下でキャリアが励起されると、内部電荷分極が誘起される。その結果、部分的にバイアス電界が遮蔽され実効的な電界変調効果がもたらされるわけである。しかしこの場合の応答時間はキャリア寿命で決まってしまう、如何にキャリアを短寿命化するかが課題となり、例えば、キャリアを電界印加部分から掃出するなどの手法⁸により高速化が検討されてきた。しかし、やはり実励起を利用する限り超高速(1psec以下)の応答を実現するのは困難といえる。

この電界遮蔽を非共鳴励起光により仮想的に行なおうというのが仮想電荷誘起非線形光学応答(Virtual Charge induced Optical Nonlinearity, VCON)である。非線形感受率を用いて表現すれば、VCONは静電界を介した非線形電荷分極 $P^{(3)}(0) = \chi^{(3)}(0; 0, -\omega_p, \omega_p) E_{dc} E_p^* E_p$ に起因する非線形光学過程である[†]。 $\chi^{(3)}(0; 0, -\omega, \omega) E_{dc}$ を実効的な二次非線形感受率 $\chi^{(2)}$ とみなせばこれはいわゆる光整流に他ならず、入射励起パルスの包絡線に追従する瞬時電圧パルスの発生⁹や瞬時光電流発生¹⁰などのアイデアが提案されている。実験的にも仮想電荷分極の存在は、GaAsバルク結晶での非共鳴ポンプ光照射により発生するテラヘルツパルスの観測¹¹から確認されている。この非線形電荷分極が引き起こす光領域での非線形光学応答^{††}がVCONであって、RC時定数の制限を受けない超高速非線形光素子への応用から多くの興味を集

[†] $\chi^{(3)}(0; 0, -\omega, \omega)$ は、非線形感受率の ω に関する交換関係からQCSEによる電気光学効果を表す $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, 0, 0)$ に等しい。

^{††} この効果は実効的な非線形感受率

$\chi_{eff}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega_p, \omega_p) = \chi^{(3)}(-\omega; \omega, 0, 0) \chi^{(3)}(0; 0, -\omega_p, \omega_p) E_{dc}^2 / \epsilon_b$ により表現される。右辺第一因子はQCSE効果、第二因子が非線形電荷分極の生成に対応している。

めてきた。この VCON の効果を確認する手段としてもっとも直接的なものは、内部遮蔽電界生成に伴う励起子ブルーシフトの観測である。実キャリア励起の場合と同様、非線形電荷分極による内部電界は外部バイアス電界を遮蔽し、QCSE による励起子レッドシフトを引き戻し瞬時的なブルーシフトを生じさせると考えられるからである。しかし、このような光領域の非線形応答としての VCON の存在については実験的には未だ明確な結論が得られていない。これは、競合過程として励起子光シュタルク効果が存在し、VCON との分離が困難であるからである。実際フェムト秒パルスの広いスペクトル幅の制約から通常行なわれてきた離調の大きい領域（～50meV）でのポンププローブの実験では、VCON によるブルーシフトは光シュタルク効果に覆い隠されて観測されないことが報告されている¹²。

VCON による励起子ブルーシフトを示唆する唯一の例として非対称結合 GaAs/AlGaAs 量子井戸で行なわれた実験¹³があるのみだが、依然光シュタルクシフトとの区別に曖昧さが残っている。そこで本章では、前章までに明らかとなった励起子光シュタルク効果についての知見をもとに VCON の抽出を試みた。実際、以下に述べるように VCON による励起子シフトの振る舞いは、離調やバイアス電界に関して光シュタルクシフトとは必ずしも同じではないことがわかる。

図 7—1(b)に示すように、QCSE 下にある量子井戸に生成されたキャリアは静的な電荷分極を生じる。1e-1hh1S 励起子を考えると、電荷分極密度は

$$P_{dc} = -eNL_z^{-1} \int dz \left\{ |\varphi_{1e}(z)|^2 - |\varphi_{1hh}(z)|^2 \right\} \quad (7-1)$$

で与えられる¹⁴。ここで $\varphi_{1e(1hh)}(z)$ は 1e(1hh)サブバンドの z 方向包絡関数である。

N は励起子面密度であり、1e-1hh 間の双極子モーメント、ポンプ光電場振幅 E_p 、励起子共鳴とポンプ光離調 Δ を用いて

$$N = \frac{\mu_{1e-1hh}^2}{\Delta^2} |E_p|^2 \quad (7-2)$$

で表される。この電荷分極を源として印加電界と逆向きの遮蔽電界

$$E_s = P_{dc} / \epsilon_b \quad (7-3)$$

が生じる。 ϵ_b は量子井戸の下地誘電率である。

この仮想的な遮蔽電界は量子閉じ込めシュタルク効果 QCSE により低エネルギーシフトした励起子共鳴を高エネルギー側に引き戻す（ブルーシフト）と考えられ、そのシフト量はバイアス電界について最低次で

$$\delta\Omega = E_s \frac{\partial\Omega}{\partial E_{dc}} \propto \frac{\mu^2}{\Delta^2} |E_p|^2 E_{dc}^2 \quad (7-4)$$

で与えられる。

光シュタルク効果の場合、離調が大きい領域では前章にみたように、最低次で離調の -1 次で生じる 2 準位的な光シュタルクシフトが主となり、(7-4) 式にあるように -2 次で生じる VCON が埋もれてしまうと考えられる。

そこで本研究では、離調の小さい近共鳴での偏光に依存したポンププローブ測定を行い、VCON の効果を抽出することを試みた。

§ 7-3 仮想電荷誘起非線形光学応答—近共鳴での実験—

実験は前章と同じく反射型のポンププローブ分光、試料も同じく GaAs 単一量子井戸微小共振器を用いた。ポンプ光の波長は同様に波形整形によるスペクトル切り出しを行った後、共振器共鳴に固定し、QCSE により励起子共鳴を変化させて離調を制御した。図 7-2 に線形な反射スペクトルから得られたヘビーホール励起子、共振器のディップ位置のバイアス電界依存性を示す。実線は二次曲線でのフィッティングであり、励起子共鳴エネルギーが電界について二次で低エネルギーシフトしているのがわかる。また前章でも述べたように、共振器の Q 値は低く励起子—共振器の結合モードは形成されず、弱結合系とみなすことができる。

前章光シュタルク効果の実験に用いた試料と異なる点は、共振波長がより長波側（低エネルギー側）に設計されていることである。この試料では、共振波長が短波長側にある場合に比べ、同じ離調を得るためにはより高電界を必要とする。したがって、(7-4) 式にあるように高電界下で有利となる VCON の効果が強調されるものと考えられる。また偏光配置としてはプローブ光の偏光を右回り円偏光 (σ_+) ポンプ光を左回り (σ_-) の逆回り円偏光配置に着目した。これは VCON の効果がポンプ光の偏光に依存しないと考える一方で、光シュタルク効果において最も大きく現れる位相空間充填効果による 2 準位的シフトが禁制となるからである。

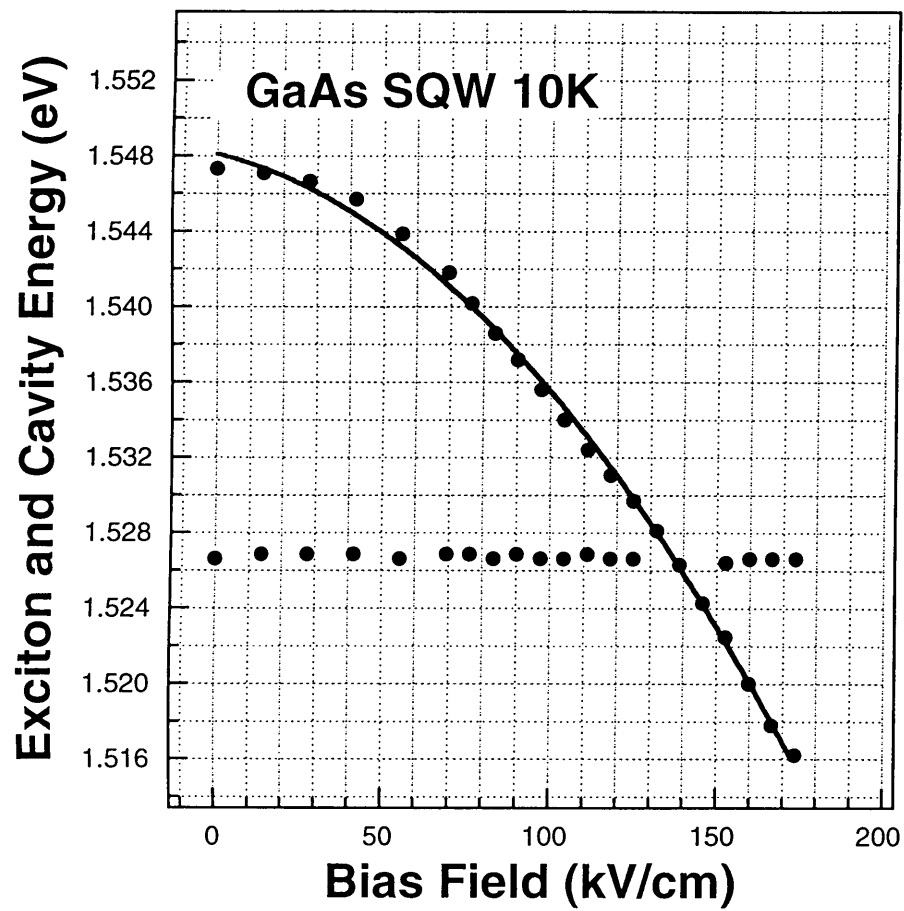


図 7-2 hh励起子エネルギーのバイアス電界依存性。
共振器共鳴エネルギー (1.527eV)も同時にプロットしてある。
実線は、二次曲線でのフィッティング。

さて仮想励起 (VCON) の実験の前にまず、実励起キャリアによる電界遮蔽効果の検討を行うために励起子共鳴励起によるポンププローブ測定を行った。量子井戸層でのバイアス電界は 34kV/cm である。励起強度は 100kW/cm^2 であり、励起子面密度は $2 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ と見積もられる。図 7—3 に励起子共鳴励起下に於ける反射スペクトルを示す。ポンプ照射とともに、励起子ブルーシフトが生じ、このシフトは図 7—4 に示すように 85 psec の寿命をもって減衰した。この時定数は励起子再結合によるものと考えられる。図 7—4 にはオフセットとして定常的に生じるブルーシフトがみられるが、この時定数は 1 秒 程度の極めて長い寿命を持ち、なんらかの捕獲準位に束縛された実電荷による電界遮蔽の効果であると考えられる。一方 85 psec の寿命を示すブルーシフトが実励起された量子井戸励起子による電界遮蔽効果であることを確かめるために、比較として同じ井戸幅、共振器構造を持つノンドープの GaAs 量子井戸で同様のポンププローブ測定を行った。結果を図 7—5 に示す。信号が小さいため差分スペクトルでプロットしてあるが、励起直後の二次微分的なスペクトルは励起子ブロードニングを意味し、時間の経過とともに吸収の減少 (ブリーチング) に変わる。励起子共鳴エネルギーのシフトを表す分散型の差分スペクトルは観測されない。これより、バイアス電界下の試料で見られた励起子ブルーシフトは、実励起された励起子による電界遮蔽効果である考えられる。

さて次にポンプ光の波長を励起子共鳴の低エネルギー側に位置する共振器波長に一致させて仮想励起の実験を行った。図 7—6 にポンプ光照射下での励起子共鳴での反射スペクトルを示す。離調は 9.5meV 、励起強度は共振器外で 0.4MW/cm^2 である。前章の低電界下での測定と異なり、逆回り円偏光の組み合わせでも励起子ブルーシフトが観測されている。またこのシフトはポンプ光に追隨して瞬時的であり、仮想励起現象であることも確認された。比較のために、図 7—7 に離調が同じで印加電界のみ異なる場合の反射スペクトル変化を示す。それぞれの試料で共振器波長が異なるために、同じ離調を得るための電界が異なることに注意したい。分散型のスペクトルは励起子共鳴のシフトを意味し、低電界下でのレッドシフトが高電界下でブルーシフトに変化しているのがわかる。

この結果は、高電界下で有利となる VCON によるブルーシフトが支配的となり、低電界下で観測されていた励起子間引力相互作用によるレッドシフトに勝ったためと考えられる。しかし、逆回り円偏光下で観測される励起子ブルーシフトの起源としては、実は VCON 以外にも量子井戸のライトホール励起子による光シュタルクシフトが存在する

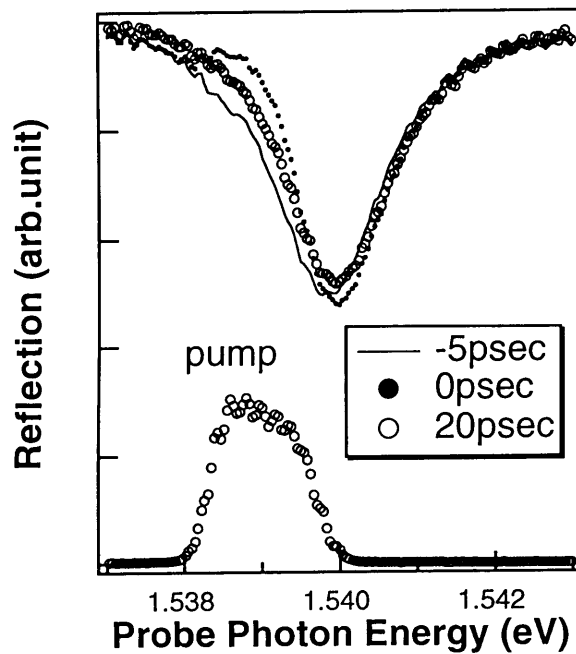


図 7-3 励起子実励起下でのhh励起子共鳴での反射スペクトル。
 バイアス電界は34kV/cmで固定。励起強度は100kW/cm²。
 プロブパルスのポンプパルスに対する遅延時間は
 それぞれ-5psec（実線）、0psec（黒丸）、20psec（白丸）。

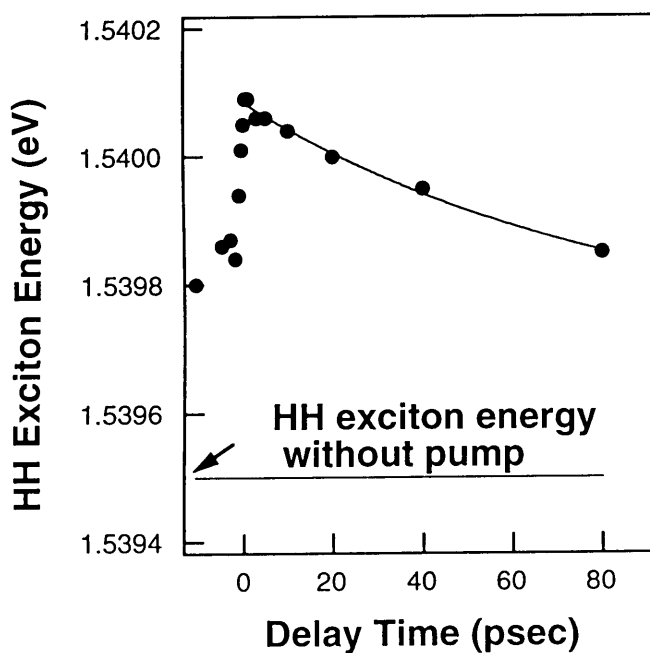


図 7-4 電界下(34kV/cm)での実励起による励起子シフトの
 ポンプ時間遅延依存性。実線は指数関数によるフィット（寿命85psec）。

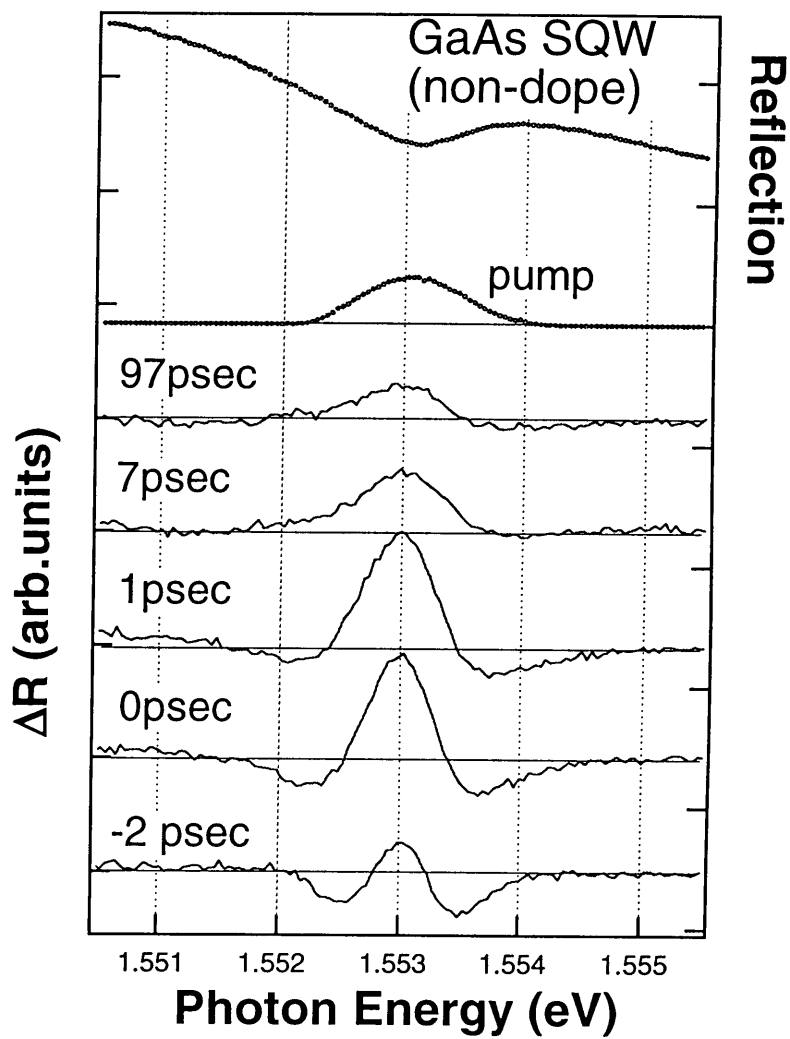


図 7-5 無電界下でのhh励起子共鳴励起による差分反射スペクトル。
いくつかのプロブ-ポンプ遅延時間についてプロットしてある。
最上段は線形な反射スペクトルとポンプスペクトル。

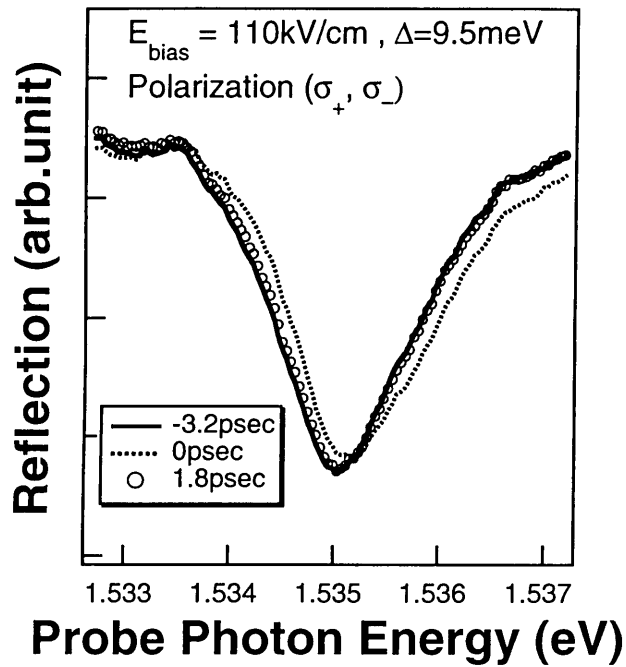


図 7-6 高電界下(110kV/cm)、仮想励起下でのhh励起子近傍での反射スペクトル。離調は9.5meV。プローブ-ポンプ時間遅延は-3.2psec (実線)、0psec (点線)、1.8psec (白丸)。

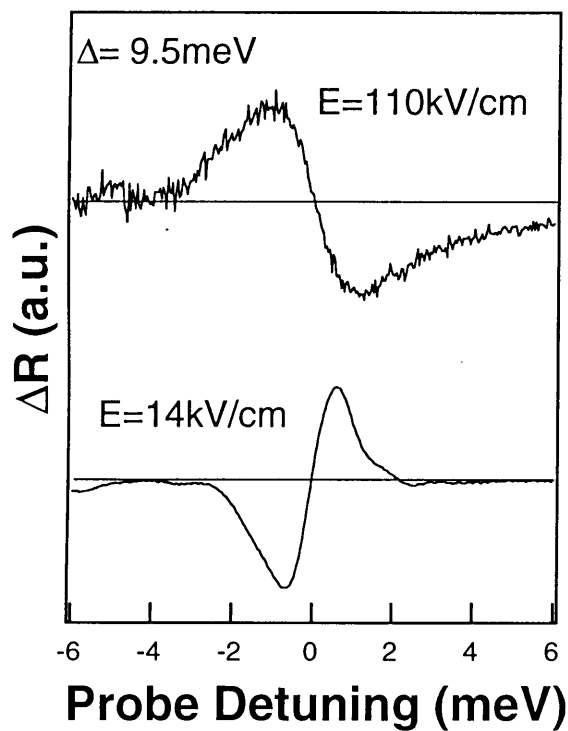


図 7-7 同じポンプ離調9.5meVでの、高電界下(110kV/cm)と低電界下(14kV/cm)でのhh励起子近傍での差分反射スペクトル

ことが図 7—8 に示す偏光選択則からわかる。非共鳴ながらも σ_- ポンプ光により $J_z=-1/2$ の電子と $J_z=1/2$ の lh から構成される lh 光シュタルク効果を通して、 $J_z=-1/2$ 伝導帯電子準位が高エネルギー側に押し上げられ、結果として σ_+ で観測されるヘビーホール励起子準位もブルーシフトすることになる。

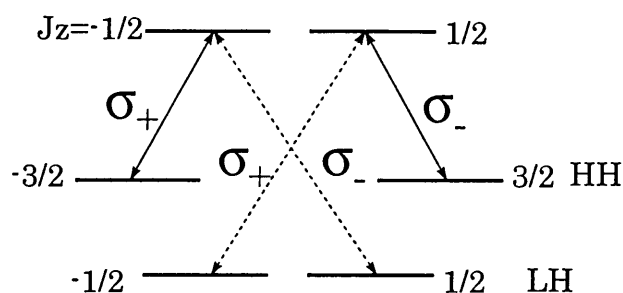


図 7—8 量子井戸励起子の偏光選択則

さて実験に用いた量子井戸ではヘビーホールとライトホールのエネルギー差は 17meV である。このためヘビーホールにとって 10meV~20meV の近共鳴の測定でも、ライトホールにとってのポンプ離調 Δ_{lh} は 27-40meV と大きい。この領域ではライトホールの影響は離調の 1 次で作用する位相空間充填効果に起因する 2 準位的光シュタルクシフトが支配的であると考えられる。この点を考慮して表 7—1 に各円偏光配置での、低エネルギーポンプ ($\Delta_{hh} > 0$) により生じる hh 励起子エネルギーシフトをまとめておく。

	σ_+ pump, σ_+ probe	σ_- pump, σ_+ probe
heavy hole OSE	$(4\nu\Delta_{hh} + 2R) \left \frac{\mu_{hh} E_p}{\Delta_{hh}} \right ^2$	$W \left \frac{\mu_{hh} E_p}{\Delta_{hh}} \right ^2$
light hole OSE	---	$2\nu \frac{ \mu_{lh} E_p ^2}{\Delta_{lh}}$
VCON	$E_{dc}^2 \left \frac{\mu_{hh} E_p}{\Delta_{hh}} \right ^2$	$E_{dc}^2 \left \frac{\mu_{hh} E_p}{\Delta_{hh}} \right ^2$

表 7—1 hh 励起子エネルギーシフトの各円偏光配置での要素

逆周り円偏光配置に注目すると、ライトホールの光シュタルクシフトは離調に関して一次、 Δ_{hh}^{-1} で作用し、VCONは最低次で二次、 Δ_{hh}^{-2} で作用する。さらにVCONの効果は、低電界では、電界の2乗で増加する。そこで系統的に離調依存性（電界依存性）を測定することでより正確にVCONの効果の評価できると考えられる。結果を図7—9に示す。ポンプ光の波長は共振器に固定している。バイアス電界の増加とともにQCSEにより励起子共鳴は低エネルギーシフトしてポンプ光波長に近づき、離調は小さくなることに注意したい。励起光強度は共振器外で $0.8\text{MW}/\text{cm}^2$ である。ポンプとプローブの偏光はそれぞれ、 σ_- 、 σ_+ である。

さてこの偏光配置では、表7—1に示したように励起子シフトには、励起子間引力相互作用、VCON、ライトホールの三つの寄与が存在すると考えられる。

まず、VCONの効果を検討しない場合の理論曲線が図7—9点線である。ライトホールによる光シュタルクシフトの大きさは、低電界かつ離調の大きい領域で観測されるブルーシフトから見積もった。また励起子間引力相互作用については前章の光シュタルク効果からの評価を用いた。VCONの効果を見無視した場合、高電界、すなわち離調の小さい領域では、 Δ^{-2} で作用する励起子間引力の効果は、 Δ^{-1} で作用するライトホールによるシフトの増加を抑えて全体として、ブルーシフトは減少する。実験結果は、高電界域でブルーシフトが増加しておりこの増加分がVCONからの寄与であると考えられる。そこで、このVCONの寄与も加えて計算したのが図7—9の実線である。実験では $80\text{kV}/\text{cm}$ より高電界部でシフトが飽和しているのが見られる。これは、高電界域では振動子強度の減少に伴ってVCONを電界に関して二次の効果として近似することが妥当でなくなるためと考えられる¹⁴。

さて観測されたVCONによるシフト量はバイアス電界 $70\text{kV}/\text{cm}$ で、 0.07meV と見積もられる。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、(7—4)式より $E_s=0.4\text{kV}/\text{cm}$ と見積もられる。これはポンプ離調励起光強度 $0.8\text{MW}/\text{cm}^2$ 、（共振器内では $30\text{MW}/\text{cm}^2$ に相当）、バイアス電界 $70\text{kV}/\text{cm}$ 、ポンプ離調 15meV での値である。精度としては、シフト量自身の測定誤差として $\pm 20\%$ 程度、また内部電場の評価の精度として $\pm 10\%$ 程度であることを考えると、得られたスクリーニング電界の値の誤差は $\pm 40\%$ 程度あるといえる。励起子間双極子相互作用を考慮した変分計算^{15, 16}により見積もられた値は同様の条件で約 $0.1\text{kV}/\text{cm}$ となっており、比較的近い値となっているといえる。

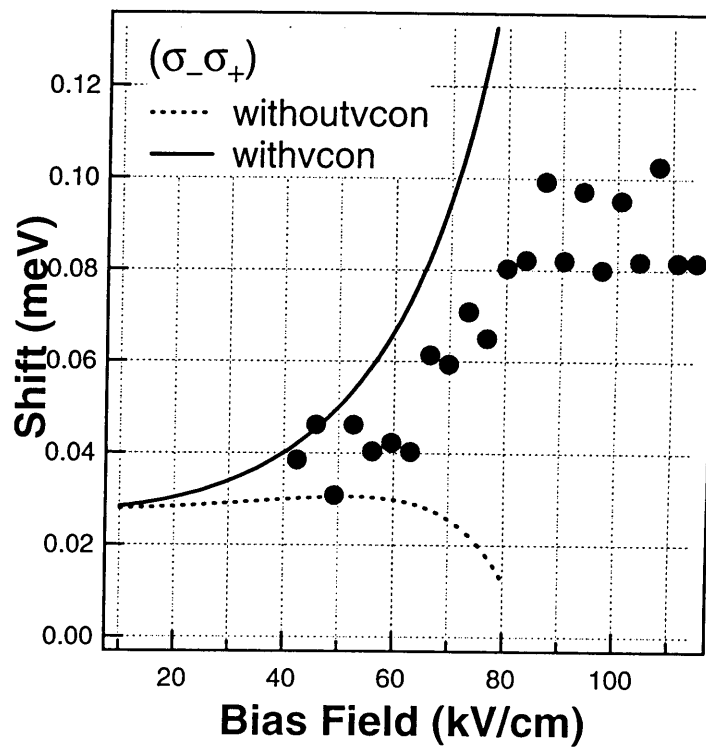


図7-9 逆回り円偏光配置でのhh励起子シフトのバイアス依存性（黒丸）。
実線（点線）はVCONを考慮した（しない）場合の理論曲線。

以上、本章では、これまでの励起子共鳴コヒーレント非線形光学応答について得られた理解の応用として、静電界下での仮想電荷誘起非線形光学効果 (VCON) の観測に取り組んだ。仮想励起された電荷分極が引き起こす光非線形性は、RC 時定数に制限されない超高速光—光変調の観点から応用上多くの関心を集めたが、同様の仮想励起現象である光シュタルク効果に埋もれてしまうことからその明確な実験的検証は困難であり、長年の懸案となっていた。本研究では、偏光、離調、バイアス電界依存性を詳細に吟味して、光シュタルク効果との区別を行い VCON を抽出することに成功した。

残念ながらその効果は微弱ではあったが、逆にその存在を敏感に確認する手法が得られたことは今後、物質設計を行いこの効果を最適化していく上では重要である。7 – 2 節でも述べたように、VCON は実効的非線形感受率 $\chi_{eff}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega_p, \omega_p) = \chi^{(3)}(-\omega; \omega, 0, 0) \chi^{(3)}(0; 0, -\omega_p, \omega_p) E_{dc}^2 / \epsilon_b$ により表され、 $\chi^{(3)}(0; 0, -\omega, \omega)$ は非線形感受率の ω に関する交換関係から QCSE を表す $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, 0, 0)$ に等しいから、結局 VCON を増強するうえでは QCSE が大きい程よいということになる。QCSE の高効率化に関しては、如何に量子閉じ込めシュタルクシフトを大きくし、かつ高電界下での電子正孔の波動関数の空間分離に伴う光学遷移の振動子強度の減少を抑えるかが本質的であり、実用レベルで様々な試みがなされている。井戸幅の最適化¹⁷や、バンド不連続の大きなヘテロ材料系の利用による量子閉じ込めの増強など、VCON の可能性を検討するうえでも QCSE の高効率化に関する今後の展開に期待したい。

本論文では、バイアス電界依存性を考察する際に、VCON を引き起こす励起子間双極子双極子相互作用と、前章までに考察した励起子間引力相互作用、励起子分子の寄与を分離し、後者についての電界効果は無視して扱った。電界誘起の励起子非線形性が大きくなった際にはこれら励起子間相互作用や励起子分子についても電界効果が生じると予想され、VCON と分離せずに統一して扱うことは今後の理論的課題として大変意義深く、また弱く相互作用するボゾンモデルの枠組みをより詳しく吟味するうえでも重要であろう。

参考文献

- ¹ M. Yamanishi, Phys. Rev. Lett. 59, 1014 (1987)
- ² D. S. Chemla, D. A. B. Miller, and S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. Lett. 59, 1018 (1987)
- ³ G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang, and L. Ezaki, Phys. Rev. B 28, 3241 (1983)
- ⁴ D. A.B. Miller, D. S. Chemla, T. Damen, A. C. Grossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, Phys. Rev. Lett. 53, 2173 (1984)
- ⁵ D. A.B. Miller, D. S. Chemla, and S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. B 33, 6076 (1986)
- ⁶ W. Franz, Z. Naturforsch. A13, 484 (1958)
- ⁷ L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP 34, 788 (1958)
- ⁸ K. Obata et al., Appl. Phys. Lett. 57, 419 (1990); G. Hayashi, et al. IEEE, QE-29, 2655 (1993)
- ⁹ A. Shimizu and M. Yamanishi, Phys. Rev. Lett. 72, 3343 (1994)
- ¹⁰ Y. Yafet and E. Yablonovitch, Phys. Rev. B 43, 12480 (1991); E. Yablonovitch, J.P. Heritage, D. E. Aspnes, and Y. Yafet, Phys. Rev. Lett. 63, 976 (1989)
- ¹¹ B. B. Hu, X.-C. Zhang, and D. H. Auston, Phys. Rev. Lett. 67, 2709 (1991)
- ¹² W. H. Knox, D. S. Chemla, D. A. B. Miller, J. B. Stark, and S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. Lett. 62, 1189 (1989)
- ¹³ H. Q. Le, J.V. Nryniewicz, W. D. Goodhue, and V. A. Mims, Opt. Lett. 13, 859 (1988)
- ¹⁴ 正確には、サブバンド内の分極も考慮しなければならず、このサブバンド間の仮想分極はバンド間の分極(7-1)を打ち消すように働く：山西正道、応用物理 58、1696 (1989)
- ¹⁵ T. Hiroshima, E. Hanamura, and M. Yamanishi, Phys. Rev. B 38, 1241 (1988)
- ¹⁶ 廣嶋透也、博士論文、1992年 東京大学
- ¹⁷ S. Nojima, and K. Wakita, Appl. Phys. Lett. 53, 1958 (1988)

第8章 まとめと展望

本章では本研究についての成果をまとめ、今後の課題と展望について述べる。

本研究は超高速非線形光素子としての期待を担う半導体励起子共鳴近傍でのコヒーレント非線形光学応答の微視的起源の解明を目的とし、特に1章で提起した問題点、すなわち多体系としての励起子系の特徴はどのような条件下、どのような形で非線形光学応答に現れるのか、原子系に代表される孤立一電子系の非線形性との類似点と相違点は何なのか、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、といった点について明らかにすることを主眼とした。

このテーマは既に多くの研究が行われてきたが、特に共鳴領域での非線形応答は、試料の不完全性による外因的な緩和の影響に敏感であったり、また実励起キャリアや励起子蓄積に伴うインコヒーレントな効果のために、正確な評価が困難であった。本研究ではこれら阻害要因を回避するために、励起光を非共鳴としかつ弱励起下で3次の非線形性のみを抽出することに着目した。

しかし一方で、励起子系の非線形性の特徴を理解するうえでは、非共鳴励起は不利な方向に働く。励起子非線形光学応答では電子正孔の多体の相関効果が本質的に重要でありこれは励起子の共鳴でより顕著となると考えられるからである。そこで励起子非線形光学応答の特徴を実験的に顕在化させその微視的機構の解明に迫るために、励起光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重要であると考えた。この観点から本研究では、共鳴近傍での励起子光シュタルク効果に注目した。その結果、従来ほとんど調べられていなかった近共鳴での光シュタルク効果の振る舞いから、励起子非線形性を支配する励起子間相互作用を単純な形で抽出できることを見出した。

実験では、二励起子状態の典型例として安定な励起子分子系 (CuCl) と、弱く相互作用する二励起子系 (GaAs 量子井戸) についての測定を行い、その離調依存性やポンプとプローブの偏光依存性から、励起子間相互作用について定量的評価を行った。

理論的考察として、励起子間相互作用 (引力、斥力) と位相空間充填効果を考慮した弱く相互作用するボゾンモデルにより、非線形応答を統一的に説明されることが明らかとなり、励起子非調和性についての普遍的な描像を得ることができた。また物質パラメータとしての励起子非調和性を定量的に評価することができた。

以下章ごとに成果をまとめ、残された課題を挙げていく。

まず第4章では、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することで、励起子間相互作用

用の観点から励起子光シタルク効果を系統的に説明する理論的枠組みを示すことができた。また光シタルクシフトが、励起子間相互作用（二励起子状態）を直接反映していること、そのシフト量から励起子非調和パラメータを単純な形で抽出できることを見出した。特にポンプ光の偏光依存性、離調依存性について考察を行い、励起子非調和性の微視的機構を明瞭に分離できることがわかった。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がわかった。

また、励起子が結晶の体積に比例して大きな双極子モーメントを持つからといって、大きな非線形光学応答を示すということにはならないことも、励起子光シタルクシフトの考察から示された。

第5章では、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タルクシフトの検証を行った。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た。

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た。

第6章では、弱く相互作用する2励起子状態の効果を考察するために、応用上も重要な物質系と考えられるIII-V族半導体 GaAs 量子井戸励起子系を対象に光シ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明らかにした。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することに初めて成功し、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結果とよく一致する結果を得て、本研究のアプローチの妥当性を示すことができた。励起子間斥力相互作用に関しては位相空間充填効果に埋もれて観測できなかったが、このことはこの斥力相互作用が小さいことを示しており、これまでの四光波混合測定による励起子非調和パラメータの相対的評価とも整合性のとれた結果となった。

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)の観測に挑戦した。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、光シタルク効果と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て、この VCON の効果を抽出することにはじめて成功した。本研究では、VCON を引き起こす励起子間双極子双極子相互作用と、前章までに考察した励起子間引力相互作用、励起子分子の寄与を分離して扱った。電界誘起の励起子非線形性が大きくなった際には励起子間引力や励起子分子についても電界効果が生じると予想されこれらを分離せずに統一して扱うことが必要になると考えられるが、これは今後の課題とする。

最後に今後の展望を述べる。

本研究では近共鳴での仮想励起現象に注目することで、緩和や実励起の影響をさけてコヒーレントな励起子共鳴非線形光学応答を抽出し、実験結果を励起子描像に基づいて統一的に解釈することができた。励起子間相互作用を特徴づける非調和パラメータについても定量的に評価をすることができた。今後さらに積極的に物質設計を進め、より大きな光非線形性を求めていくうえでは理論的にはこれら非調和パラメータの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、物質パラメータとしての励起子間相互作用について系統的な評価を行うことが重要であろう。

本研究の範囲内では、これら励起子間相互作用の効果は、励起子束縛エネルギー程度の離調では位相空間充填効果による 2 準位原子的非線形性とせいぜい同程度であった。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、さらに一般的には、如何に電子（正孔）間の相関を強くするかが重要であろう。本研究で調べた安定な励起子分子系はその一例であって、CuCl で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。またラビ分裂のような孤立二準位系で観測されていた現象が固体内非局在電子状態でも系をうまく選ぶことにより実現できるということは、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の量子エレクトロニクス アイデアの応用も抱かせて興味深い。

第 7 章でみた仮想電荷誘起非線形光学応答 (VCON) は、残念ながら本研究で対象とした GaAs 量子井戸では微弱なものではあった。しかし、静的な双極子双極子相互作用に起因する非線形光学応答は、半導体励起子にとどまらず誘電体への応用や、有機無機問わず広く共通する応用課題であって、その存在が確認できたことは今後のこれら他の物質系を調べていく上で重要であろう。また VCON の最大の特徴でもある超短電圧パルス発生は、THz 電磁波発生への応用という意味でも今後の展開として興味深い。

付録 A 半導体微小共振器における内部電場の増強

ここでは半導体量子井戸微小共振器における内部電場増強因子の計算について述べる。共振器反射鏡は、第3章の試料構造で示したように $\lambda/4$ の厚さの高屈折率と低屈折率層の交互積層多層膜で構成されるいわゆる分布ブラッグ反射鏡 (Distributed Bragg Reflector, DBR) である。そこで誘電体多層膜の反射、透過解析に一般的に用いられているマトリックス法¹を用いて量子井戸層における内部電場の計算を行った。

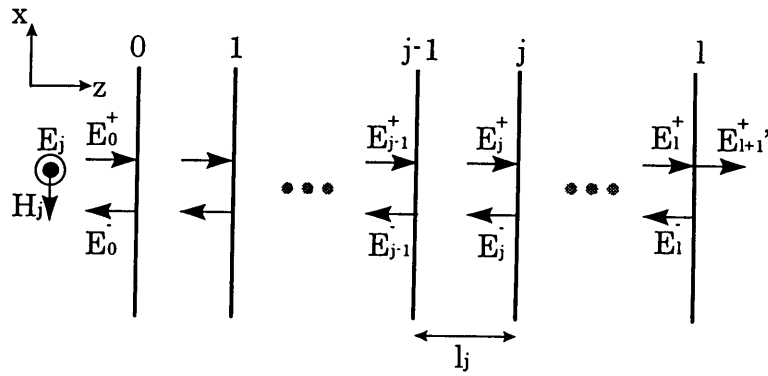


図 A-1 多層膜構造のモデル

特性マトリックス

図 A-1 に示すように積層方向を z 軸にとり入射電場の偏光を y 軸方向にとり、境界 j の左側での電場および磁場 $(0, E_j, 0)$ 、 $(H_j, 0, 0)$ とする。垂直入射について考えると E_j 、 H_j は、右向き、左向きに進む電場成分 E_j^+ 、 E_j^- を用いて

$$E_j(z) = E_j^+ \exp i k_j z + E_j^- \exp -i k_j z \quad (\text{A-1})$$

$$H_j(z) = \sqrt{\epsilon_0 / \mu_0 n_j} (-E_j^+ \exp i k_j z + E_j^- \exp -i k_j z) \quad (\text{A-2})$$

と表せる (時間依存成分 $\exp(-i\omega t)$ は省略している)。ただし、各境界 j で $z=0$ とする。 n_j は境界 j の左側部 (j 層と呼ぶ) の屈折率であり、 k_j は j 層での波数 $k_j = 2\pi n_j / \lambda_j$ である。境界 j では $z=0$ として

$$\begin{pmatrix} E_j \\ H_j \end{pmatrix} = U_j \begin{pmatrix} E_j^+ \\ E_j^- \end{pmatrix} \quad (\text{A-3})$$

となる。ここで

$$U_j = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -Y_j & Y_j \end{pmatrix}, \quad Y_j = \sqrt{\epsilon_0 / \mu_0 n_j} \quad (\text{A-4})$$

である。さて $j-1$ 面右側部の電場振幅を、 E_j' とすると、(A-1)から

$$E_j' = E_j^+ e^{-i\delta_j} + E_j^- e^{i\delta_j} \quad (\text{A-5})$$

となる。 δ_j は j 層 (厚さ l_j) での位相シフト、 $\delta_j = k_j l_j$ である。 $j-1$ 面での電場についての境界条件を考えると

$$E_{j-1} = E_j' = E_j^+ e^{-i\delta_j} + E_j^- e^{i\delta_j} \quad (\text{A-6})$$

であり、同様に磁場についても

$$H_{j-1} = \sqrt{\epsilon_0 / \mu_0} n_j \left(-E_j^+ e^{-i\delta_j} + E_j^- e^{i\delta_j} \right) \quad (\text{A-7})$$

最終的に(A-3)、(A-4)、(A-6)、(A-7)から

$$\begin{pmatrix} E_{j-1} \\ H_{j-1} \end{pmatrix} = M_j \begin{pmatrix} E_j \\ H_j \end{pmatrix}, M_j = \begin{pmatrix} \cos \delta_j & \frac{i \sin \delta_j}{Y_j} \\ -i \sin \delta_j \cdot Y_j & \cos \delta_j \end{pmatrix} \quad (\text{A-8})$$

を得る。

行列 M_j は j 層の特性マトリックスと呼ばれる。多層膜構造の場合、全体としての特性マトリックスは、各層の特性マトリックスの積として表すことができる。

反射率、透過率の計算

ここでは、特性マトリックスによる反射率および透過率の表式を導いておく。

図 A-1 に示す 1 層からなる多層膜全体の特性マトリックスを M とし、入射波を E_0^+ 、反射波を E_0^- 、透過波を E_{l+1}^+ とする。

$$\begin{pmatrix} E_0 \\ H_0 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} E_l \\ H_l \end{pmatrix} \quad (\text{A-9})$$

であり、 E_{l+1}^- 成分がないことを考え、(A-3)から

$$\begin{pmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{pmatrix} = U_0^{-1} M U_{l+1} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} E_{l+1} \quad (\text{A-10})$$

を得る。

これより振幅反射率 r 、および振幅透過率 t は

$$r = \frac{E_0^-}{E_0^+} = \frac{[U_0^{-1} M U_{l+1}]_{21}}{[U_0^{-1} M U_{l+1}]_{11}} \quad (\text{A-11})$$

$$t = \frac{E_{l+1}^+}{E_0^+} = \frac{1}{[U_0^{-1} M U_{l+1}]_{11}}$$

により求まる。

DBR 微小共振器

前述の方法により本研究で使用した GaAs 量子井戸微小共振器のエネルギー反射率、透過率、および内部電場増強因子の計算を図 A-2 に示す。励起子と共振器との離調は 5.5meV として計算した。内部電場増強因子は、量子井戸中心部での電場振幅 E_{QW} の、入射電場振幅 E_0 に対する比として定義する。

試料構造は第 3 章に示したものであり、その特性マトリックス各層の特性マトリックスを用いて

$$M = M_{air} - (HL)^{N_{top}} H (L' \ H' \ L') (HL)^{N_{bottom}} M_{sub}$$

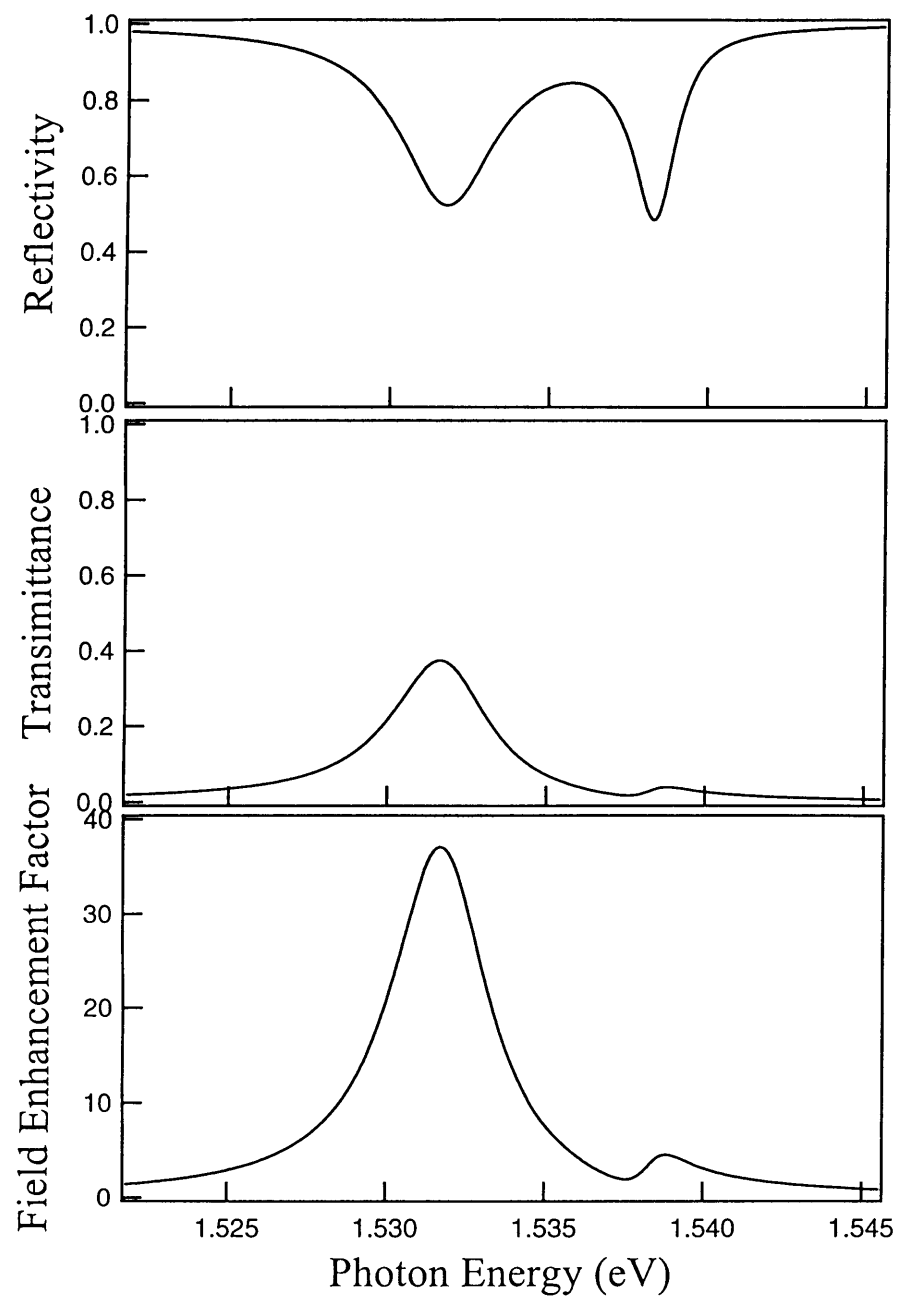
により表される。 N_{top} (N_{bottom}) は空気側 (基板側) の DBR の枚数であり、本研究の試料では $N_{top}=8$ 、 $N_{bottom}=20$ である。各特性マトリックスの構成を表にまとめておく。

構成物質	厚さ	屈折率
M_{air} : 空気		1
H: $Al_{0.2}Ga_{0.8}As$	$\lambda/4$	3.45
L: AlAs	$\lambda/4$	2.98
L' : AlAs	$\lambda/4$ (67nm)	3.5
H' : GaAs QW	12nm	$n(\omega)$
M_{sub} : GaAs 基板		3.59

GaAs 量子井戸部の屈折率 $n(\omega)$ には、励起子共鳴の効果を古典線形分散モデルにより取り入れた。

参考文献

-
- ¹ 鶴田匡夫、応用光学 II 培風館



図A-2 マトリックス法により計算した反射, 透過, 内部電場増強因子スペクトル

謝辞

本研究は東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻五神研究室において行われたものです。本研究を遂行し、このような一編の論文にまとめるにあたり、多くの方々の貴重なご指導、ご協力を頂きました。ここに感謝の意を表します。

五神 真教授には、卒論生として研究室に入ってからの実の長きに渡り、時には寢食を忘れる程に熱心に、親身にご指導頂きました。物理への取り組み方に始まり、実験の方針、豊富なアイデアには幾度となく感銘を受け、また窮地を救っていただきました。また一見見落としがちな実験結果に深淵な物理が潜んでいることを身にしみて感じる事ができました。ここに深甚の謝意を表します。

広島大学、山西正道教授、角屋 豊助教授とともに半導体微小共振器構造中の GaAs 量子井戸励起子系の研究（本論文 6、7 章）を行えたことは大変貴重な財産となりました。ご提供いただいた極めて良質の GaAs 量子井戸の試料で実験を行なえたことは、本研究を系統的に進めるうえで極めて重要でありました。ここに心より感謝いたします。

清水富士夫教授（現電気通信大学）には、輪講などを通じて非常に多くの的確な御指摘、御助言を頂きました。

科学技術振興事業団 ERATO プロジェクトの Yuri P. Svirko 博士には本論文第 4 章の励起子光シュタルク効果の励起子ボゾンモデルに基づく理論的考察を進めるうえで多くの御協力をいただきました。

江馬一弘助手（現上智大学助教授）には、卒論生として研究生活が始まって以来多くの面でお世話になり、また超短パルスレーザー技術に始まり実に多くのことを教えて頂きました。

斎木敏治博士（現東京大学講師）には、大学院研究生活を通じて本研究の基礎となる励起子非線形光学応答について多くのことを教えて頂きました。

清水研究室、森永実助手（現電気通信大学）、香取秀俊助手（現東京大学助教授）には研究生活全般に渡っていろいろな形でお世話になりました。

科学技術振興事業団 ERATO プロジェクトの芦田昌明博士には、本論文をまとめるにあたり、多くのご協力を頂きました。

五神研究室、清水研究室で研究生活をともにした多くの方々には大変お世話になりました。

東京大学、清水 明教授、宮野健次郎教授、秋山英文助教授、岡本 博助教授には本論文の審査委員を務めて頂き、本論文をまとめるにあたり適切な御指摘、御助言をいただきました。

御指導、御協力頂いた以上の方々に改めて厚く感謝の意を表します。