



|              |   |
|--------------|---|
| Title        | Theory of nonlinear optical response in spatially dispersive media  |
| Author(s)    | 石原, 一   |
| Citation     | 大阪大学, 1990, 博士論文  |
| Version Type |   |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/37298">https://hdl.handle.net/11094/37298</a>   |
| rights       |   |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

|         |  |         |          |
|---------|--|---------|----------|
| 氏名・(本籍) | いし<br>石  | はら<br>原 | はじめ<br>一 |
| 学位の種類   | 工  | 学       | 博 士      |
| 学位記番号   | 第  | 9 3 3 7 | 号        |
| 学位授与の日付 | 平成 2 年 9 月 28 日  |         |          |
| 学位授与の要件 | 基礎工学研究科物理系専攻   |         |          |
|         | 学位規則第 5 条第 1 項該当   |         |          |
| 学位論文題目  | Theory of nonlinear optical response in spatially<br>dispersive media<br>(空間分散性媒質における非線形光学応答の理論) |         |          |
| 学位論文題員  | (主査)<br>教 授 吉森 昭夫 教 授 西田 良男 助教授 張 紀久夫<br>(副査)<br>教 授 望月 和子 教 授 菅 滋正                              |         |          |

### 論文内容の要旨

最近、半導体その他の非金属結晶の薄膜、細線、微粒子などに閉じ込められた励起子による非線形光学効果とそのサイズ依存性が注目を集めており、応用的関心も伴って広範囲の研究者が興味をもっている。このような系はその空間分散性（或は非局所応答性）の故に注目すべき性質を示す。しかし従来の理論的研究においては、密度演算子の摂動展開による 3 次の非線形感受率  $\chi^{(3)}$  の中に現われる、異常なサイズ依存性を持つ項が正しく取り扱われなかったり、また基底に用いる励起子状態が正しく与えられていなかった。そのため  $\chi^{(3)}$  のサイズ依存性に対する記述が不十分であった。またこれまで物理量を計算するための非局所的な理論が存在しなかったため非線形光学応答のサイズ依存性についての正しい検討がなされていなかった。そこで本論文では空間分散性媒質における  $\chi^{(3)}$  の正しい計算方法を示し、得られた  $\chi^{(3)}$  のサイズ依存性を解析した。さらに光学スペクトル等の物理量を計算するための非線形光学応答の非局所的な理論の定式化と、その一つの応用例に対する数値的解析を行った。

具体的には本論文前半（第 2 章）において、まず局所的 2 準位モデルを用い、任意の入射周波数の場合について異常サイズ依存項の問題を検討し、次の結果を得た。

- (1) 2 つのタイプの項、すなわち中間状態として 1 励起子状態のみ経由する項と、同じく 2 励起子状態を経由する項の間で相殺が起こり、異常サイズ依存項は残らない。
- (2) パウリの排他律によって 2 原子励起状態の自由度が制限された分だけ相殺を免れ、単位体積あたりの  $\chi^{(3)}$  は従来知られた孤立 2 準位原子の場合と一致する。次に同様の相殺が空間分散性媒質の場合でも起こることを示すため、一次元周期格子上のフレンケル励起子モデルに対して  $\chi^{(3)}$  を計算した。同計算に

より、異常サイズ依存項の相殺が空間分散性媒質の場合でも一般的条件下、すなわち任意のサイズにおいて、また共鳴、非共鳴によらず起こることをサイト表示の  $\chi^{(3)}$  に対して示した。さらに結果として得られた  $\chi^{(3)}$  を長波長近似を用いて数値的に解析し、(1)系のサイズが小さい領域において  $\chi^{(3)}$  はサイズによる増大を示し、やがて飽和することがわかったが、(2)そのようなサイズ領域は励起子のエネルギー分散の大きさと緩和時間によって決まる、ということが明らかになった。また局所 2 準位モデルの場合と比べると、エネルギー分散の存在によって  $\chi^{(3)}$  は増大し、スペクトルの形状においても大きな違いが生ずることがわかった。

本論文後半(第3章)においては、従来線形応答の分野で展開してきた非局所理論、すなわち張による ABC-free 理論を非線形光学応答に拡張し、一次元フレンケル励起子モデルについて、ミクロなサイズ領域における光学スペクトルの計算を行った。本計算では(1)これらのスペクトルと、同じモデルの長波長近似による  $\chi^{(3)}$  を比較することによって非局所的な効果と思われる両者の違いを、また(2)励起子間相互作用を導入することによって励起子分子の存在が  $\chi^{(3)}$  の 1 励起子共鳴に及ぼす顕著な効果を見い出した。

このようにして非線形光学応答における非局所性の研究に対する本理論の有用性を示した。

### 論文審査の結果の要旨

大きな非線形光学応答を示す物質の探求が今日盛んに行われているが、なかでも薄膜、微粒子、量子井戸等に、閉じ込められた励起子を利用する方法が注目を集めている。この種の系では従来の非線形光学物質と違って、非局所性が本質的な役割を担っている。

本論文では、この非局所性を正面から扱う理論を展開し、特に以下の 2 点について詳しい考察を加えた。第 1 部では、厳密に解けるモデルを用いて、非局所性を持つ系の 3 次非線形感受率のサイズ依存性と飽和および相殺の問題を精密に考察し、諸項間の相殺が非常に重要な役割を果たすこと、それに伴ってサイズ増大の飽和が物理的に納得のゆく形で得られることを示した。また、サイズとともに励起子の並進エネルギーによる 3 次非線形感受率の増大も存在することを明らかにした。

第 2 部では、非局所的非線形応答の信号強度を計算するための理論的枠組みを、線形応答の場合についてすでに作られている非局所性論の拡張として、建設し、それを用いた数年計算により、はじめて非線形応答(ポンプ・プローブ分光)の非局所的計算に成功した。

以上のように、本研究は、従来の非線形光学に非局所性という新しい要素をもちこみ、それにともなう重要な効果を、厳密に解けるモデルによって、信頼できる形で導出したものであり、博士論文として、十分価値のあるものと認められる。