

Title	Nonlocal theory of the pump-probe spectroscopy for CuCl thin slabs under the pumping of exciton-biexciton transitions
Author(s)	松浦, 直紀
Citation	大阪大学, 1995, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39797
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	まつ 松 うら 浦 なお 直 き 紀
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 1 2 0 5 2 号
学位授与年月日	平成 7 年 7 月 2 5 日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科 物理系専攻
学位論文名	Nonlocal theory of the pump – probe spectroscopy for CuCl thin slabs under the pumping of exciton – biexciton transitions (CuCl薄膜中の励起子・励起子分子間遷移の強励起下におけるポンプ・プローブ分光の非局所光学応答理論)
論文審査委員	(主査) 教授 張 紀久夫 (副査) 教授 鈴木 直 教授 西田 良男

論文内容の要旨

本論文では、量子力学と電磁気学の第1原理に沿って定式化されている非局所光学応答理論を用いて、「薄膜中の励起子・励起子分子系に対するポンプ・プローブ分光」に関するこの理論の実用的定式化と、CuClをモデル系とする大がかりな数値計算を行った。解くべき問題は多くの未知数に対する連立3次方程式に帰着されたが、この際、共鳴・非共鳴条件を詳しく検討することにより、結果に影響することなく数値計算量を減少させる有効な近似を見出し、それにより膜厚 $d = 1 \mu\text{m}$ 程度まで計算可能となった。

この定式化を用いて、プローブ光 (ω) の透過率、反射率、吸収率とポンプ光によるそれらの変化を数値計算した。それらの信号強度が、膜厚と ω の値によって変化する様子から以下の様な知見を得た。ポンピングによる (1) 励起子分子準位への2光子吸収と (2) サイズ量子化された励起子準位のシフト (optical Stark shift) 及び準位幅の共鳴増大が起る。(3) ω の光に対する内部電場と誘起分極は顕著な空間変化を示し2光子吸収スペクトルとの明確な対応がある。(4) 膜厚の増大と共に波数保存則が発達する。

次に、計算結果を東京大学・長澤グループによる厚さ $1500 \text{ \AA} \sim 23 \mu\text{m}$ の CuCl 薄膜の実験と比較した。その結果、厚さ 1500 \AA の薄膜については、実験結果を良く再現する事ができたが、厚さ $1 \mu\text{m}$ の (実際的に十分厚い) 薄膜については、上枝ポラリトンに対する共鳴形状が実験と異なる点、実際に現れる下枝ポラリトンに対する共鳴構造が小さくしか現れない点で不満足な結果となった。これは、張が以前に行った、バルク誘電率の非線形変化という描像での計算結果と同様であった。そこで張が定式化に用いた Haug による誘電率と、ここで用いた3次の非線形感受率を解析的な形で比較し、その類似性を明らかにした。また応答の非局所性が理論中のどのパラメーターにどのように反映されているかを調べた。

更に、上述の理論と実験の不一致の原因として、実験に用いた試料に面欠陥が含まれていた可能性を考え、対応する計算を行った。この際、面欠陥のモデルとしては励起子及び励起子分子の重心運動に対する無限に強い反発型の面状デルタ関数ポテンシャルを用い、それぞれの重心運動の波動関数が面欠陥の位置でゼロになるとした。その結果、下枝ポラリトンに対する共鳴構造は大きくなり実験との対応が改善されたが、上枝ポラリトンに対する共鳴形状は改善されな

かった。この問題は実験の詳細な再検討と共に、今後の課題である。

以上により、非局所応答理論が非線形分光にも十分役に立ち、光エネルギーと試料サイズにより敏感に変化する誘起分極と電磁場が豊かな物理現象に結びつくことが判明した。なかでも重要なことは、共鳴条件下では、外部での波長が試料より大きくても、内部電場の空間変化は顕著であり、尚かつその空間パターンは共鳴準位と共に大きく変化することである。

論文審査の結果の要旨

本論文は、最近開発され多角的な展開を見せている非局所光学応答理論を応用して、半導体薄膜における励起子系の3次非線形光学過程のうち、これまでこの方法では扱われたことのない光学的シュタルク効果を理論的に考察したものである。この理論的枠組みは物質系の量子論的コヒーレンスを保存する応答理論で、メゾスコピック系の応答を広いサイズの領域にわたって記述することのできる有効な方法であり、考察した非線形過程はポンプ光で励起子・励起子分子間の遷移を強励起したとき励起子領域のプロープ光スペクトルに生じる変化を見るものである。

この応用に対する定式化の重要な眼目の一つは、一般論から期待される多元連立3次方程式において、物理的考察から重要な項と不要な項とを識別し、サイズ(膜厚)の大きな系まで数値計算が可能になるような有効な近似法を見出すことであったが、本論文では共鳴条件の正確な考察から極めて単純な結果を得た。すなわち、ポンプ項はそれ自身を線形の範囲で解き、その結果をプロープ光に対する非線形繰り込み項として用いれば良いことが分かった。この結果1 μm までの膜厚まで数値計算が可能となった。これにより、励起子・励起子分子間の遷移における波数選択則が膜厚増加とともに成長する様子や、2光子吸収や光学的シュタルク効果がこの方法でどのように記述されるかを詳しく検討することが可能となった。

100 - 500Å の膜厚領域では、励起子のサイズ量子化準位の間隔が準位幅にくらべて十分大きく、プロープ光をさまざまなサイズ量子化準位に共鳴(または非共鳴)させることが意味をもつ。プロープ光スペクトルのポンプ光エネルギーに対する依存性は、プロープ光が誘起する分極の空間変動の大きさと型に強く依存するが、それはプロープ光がどの準位に共鳴するかによって大きく変化する。この様子は上述の非線形繰り込み項によって簡潔に記述されることがわかった。プロープ光エネルギーを固定したポンプ光に対するスペクトルは「励起子準位のシュタルクシフト」「励起子分子への2光子吸収」「ポンプ光による励起子準位幅の増加」の3つの異なる効果を同時に含むことも示された。

1 μm 膜厚領域ではポンプ光の波数はサイズ量子化波数の間隔よりずっと大きく、励起子・励起子分子間の遷移は波数空間で垂直ではない。この場合のポンプ・プロープスペクトルは(厳密な波数選択則の成り立つ)バルクで期待されるエネルギー位置に大きな構造を示し、膜厚有限の反映である干渉縞とバルクの反映である波数選択則が共存する。また干渉縞のポンプ光によるシフトからサイズ量子化励起子のシュタルクシフトが見いだされた。

この理論を「ポンプ効果を含むバルク誘電関数と表面での付加的境界条件」を組み合わせた既存の理論と比較したが、両者は数値的のみならず解析的にもよく似ていることがわかった。これより、上述のシュタルクシフトがバルク励起子準位の期待されるシフトによく対応していることが理解される。10 - 20 μm の薄厚に対するポンプ・プロープ実験の結果で説明されていない部分を理解する試みとして、面欠陥を含む薄膜についても上と同様な計算を行った。

以上のように、本論文は非局所応答理論の新しい応用分野を開拓し、物質の量子論的コヒーレンスを反映する形で、半導体薄膜のポンププロープ型の非線形光学効果を明瞭に記述する結果を導いた。よって博士論文に値するものと判定する。