

称号及び氏名	博士（工学） 保田 英樹
学位授与の日付	平成21年3月31日
論文名	「Nonlinear Transient Response of Weakly Confined Excitons in Nano-to-Bulk Crossover Regime」 (ナノバルク間クロスオーバー領域の弱閉じ込め励起子の非線形過渡応答)
論文審査委員	主査 石原 一 副査 堀中 博道 副査 内藤 裕義 副査 萱沼 洋輔

## 論文要旨

半導体の電子遷移に共鳴する光を入射したとき、価電子帯から伝導帯に電子が励起され、電子と正孔がクーロン引力により互いに束縛し合って運動する励起子が形成される。励起子は電子-正孔対の相対運動と重心運動の自由度を持ち、重心運動のコヒーレンス長よりも小さいサイズの結晶内に閉じ込められた場合、光学応答には特異なサイズ依存性が現れる。このような閉じ込め系の光学応答を考える際、結晶サイズが共鳴光の波長に比べて十分小さい領域においては、通常、内部光電場の空間構造を無視する長波長近似 (Long Wavelength Approximation: LWA) が用いられる。この近似領域では、量子状態の離散化や励起子振動子強度の結晶サイズに比例した増大などの現象が知られ、応用的な動機からも良く研究されてきた。一方近年、結晶サイズの増大とともに内部光電場の空間構造が無視できなくなり、LWA 的な描像が成り立たなくなる状況が注目され始めた。このような非長波長近似(非 LWA) 的なサイズ領域においては、内部光電場と励起子重心運動の空間的相関が重要となる。例えば、光波動と励起子波動の位相が整合する特定のサイズ領域において、非線形信号強度の異常増大や巨大輻射シフトなどの特異な光学応答が明らかにされている。このような非 LWA 的な光学応答に関する理論研究は、周波数軸上での解析が先行しているが、近年行われ始めたフェムト秒パルス励起による研究においては、非 LWA 的なサイズ領域の非線形信号スペクトルが周波数軸上の解析から単純には予測できないものであることが分かってきており、実時間解析のための新しい理論的手法が必要となっていた。

このような背景の下、本研究では、非 LWA 領域における超高速非線形応答の物理を明らかにすべく、この領域の研究のため先行的に開発されてきた実時間解析の手法を、周波数軸上、時間軸上の両面からの本格的な解析に使えるように拡張した。また、フェムト秒パルス励起下における非線形スペ

クトルが励起子ポラリトンの誘起分極スペクトル構造を反映していることに着目し、線形、非線形解析の両手法を用いて、実験の非線形信号スペクトルの解析を行ない、非 LWA 領域特有の非線形過渡応答の機構を明らかにした。さらに、その成果をもとに、フェムト秒パルス波形と薄膜設計による非線形信号制御の可能性について提案を行なった。本論文では、これらの研究成果を、以下の 8 章にまとめている。

第 1 章では、本研究の背景と研究目的について述べている。

第 2 章では、本研究の基礎となる理論解析の手法について説明している。特に、本研究においては、実験で観測された非線形信号スペクトルの解析を行なうため、スペクトル的情報を与えない従来の実時間解析の手法を、それを保持する形に拡張している。また、フェムト秒パルス励起下における非線形信号スペクトルが、励起子ポラリトンの誘起分極スペクトル構造を反映する理由についても、考察をおこなった。本研究では、これらの解析手法を用いて、実験で観測された非線形信号スペクトルの再現を試みている。

第 3 章では、フェムト秒 (約 110fs) パルス励起下の CuCl 薄膜 (膜厚約 187nm) の縮退四光波混合 (DFWM) 信号スペクトルの解析を行ない、非 LWA 的なサイズ領域における弱閉じ込め励起子の DFWM 信号スペクトルの特質を議論した。定常解析と実時間解析の両手法を用いて、実験で観測された DFWM 信号スペクトルが、励起子-輻射結合系の特異なポラリトン構造に起因するものであることを明らかにした。一方、ポンプ光-プローブ光間の遅延時間に依存した DFWM 信号より見積もられる励起子の緩和時間は、定常解析で予測される緩和時間よりも見かけ上一桁程度短いことが明らかになった。本研究では、この現象が、3 次の非線形光学過程を通じた多準位の励起子状態間の複合的な干渉効果によるものと考え、入射パルス幅を徐々に変化させた際の時間特性の変化を調べた。その結果、モード解析から予想される結果と実験結果の間の緩和時間の見かけ上の不一致が、多準位励起子間の複合的なビート干渉に起因するものであることを明らかにし、上の考えを裏付けた。

第 4 章では、より薄い CuCl 薄膜 (約 30nm) に閉じ込められた励起子の、フェムト秒 (約 110fs) パルス励起における DFWM 信号スペクトルの解析を行なった。実験で観測された DFWM 信号スペクトルは、定常解析で予測された DFWM 信号スペクトルと大きく異なる形状をもつことが明らかになったが、本研究では、この違いが、パルスに含まれる多くの周波数成分の非線形相互作用によるものと考え、信号スペクトルが計算できるように拡張した実時間解析の手法を用い、入射パルス幅をピコ秒からフェムト秒まで徐々に変化させて入射したときの DFWM 信号スペクトルの変化を調べた。その結果、定常解析で得られた DFWM 信号スペクトルから、実験で観測された DFWM 信号スペクトルへの変化が、矛盾なく説明できることを明らかにした。

第 5 章では、第 3 章で考察した多重ビート干渉について、より深く考察するため GaAs 多層薄膜による DFWM 実験の解析を行なった。本研究では、多準位系を考慮した密度行列の運動方程式をもとに 3 次の摂動計算を行ない、準位数を増やしていったときの多重ビート間の干渉の変化について、簡単なモデルを用いて考察を行なった。その結果、実験で観測されたビート構造の変化と類似の変化を確認した。本研究ではさらに、実時間解析によって実験結果の再現を試みた。その結果、実験のビート構造の変化が、非 LWA 的なサイズ領域における弱閉じ込め励起子準位間の多重干渉に起因するものであることが明らかになった。

第 6 章では、フェムト秒 (約 110fs) パルス励起下の CuCl 薄膜 (膜厚約 68nm) 弱閉じ込め励起子の DFWM 信号スペクトルの温度依存性実験の解析を行なった。実験では、DFWM 信号スペクトルが温度の

増大とともに、励起子準位毎に特異な変化を示すことが明らかになった。本研究では、温度パラメータとして非輻射緩和定数を変化させて DFWM 信号スペクトルおよび誘起分極スペクトルの変化を調べ、実験で観測された DFWM 信号スペクトルの特異な温度依存性が、輻射緩和と位相緩和の競合が温度により変化するために現れることを明らかにした。特に、超高速応答を示す励起子ポラリトンほど強い温度耐性を示すことが明らかになったが、これは位相緩和により励起子コヒーレンスが破壊される前に、超高速の輻射緩和が生じていることを示唆する結果である。

第7章では、フェムト秒パルスと薄膜設計による非線形信号制御の可能性について提案を行なった。本研究では、異なる2枚の薄膜にわたる二励起子状態の基底まで取り入れた多層薄膜系の実時間解析の手法を新たに開発し、層数・薄膜間隔等の変化による非線形パルス応答制御の可能性について考察を行なった。その結果、薄膜間の遅延を伴う各層内の励起子間の協同効果により、DFWM 信号の緩和特性が制御できることを示した。

第8章では、以上の成果を総括し、本研究の結論をまとめている。

## 審査結果の要旨

本論文は、ナノからバルクのクロスオーバー領域のサイズを有する試料に閉じ込められた励起子と光の非線形相互作用の問題を、励起子波動関数と光波動の空間的インタープレイと入射パルスのスペクトル幅を適切に取り入れて議論している。基礎となった理論的手法は光学応答解析の従来の標準的解析手法（長波長近似:LWA）を超えた新たな理論であり、それを用いて、非長波長近似領域において現れる特異な超高速非線形応答を予言し、また種々の実験結果を説明している。得られた主な結果は、以下の項目に要約できる。

(1) フェムト秒（約 110fs）パルス励起下の CuCl 薄膜（膜厚約 187nm）の縮退四光波混合（DFWM）信号スペクトルの解析を行ない、非 LWA 的なサイズ領域における閉じ込め励起子の DFWM 信号に現れる高速な輻射緩和時間が、励起子-輻射結合系の特異なポラリトン構造に起因するものであることを示し、また多準位励起子間の複合的なビート干渉が見かけの緩和速度をさらに高速にすることを明らかにしている。

(2) より薄い膜厚（約 30nm）の CuCl 薄膜におけるフェムト秒（約 110fs）パルス励起による DFWM 信号の解析を行なっている。実験で観測された DFWM 信号スペクトルは、定常解析で予測された DFWM 信号スペクトルと大きく異なる形状をもつが、本研究では、この違いが、パルスに含まれる多くの周波数成分が 3 次の非線形光学過程を通じて非線形相互作用するものとして解析し、実験結果が矛盾なく説明できることを明らかにしている。

(3) GaAs 多層薄膜弱閉じ込め励起子の DFWM 実験の解析を行ない、DFWM 信号が方形パルスに含まれる励起子準位数に依存して、特異なビート構造の変化を示すことを明らかにしている。特に、実時間解析を用いて実験結果の再現を試み、実験のビート構造の変化が、非 LWA 的なサイズ領域における弱閉じ込め励起子準位間の多重干渉に起因するものであることを明らかにしている。

(4) フェムト秒（約 110fs）パルス励起下の CuCl 薄膜（膜厚約 68nm）弱閉じ込め励起子の DFWM 信号スペクトルの温度依存性実験の解析を行なっている。DFWM 信号スペクトルが温度の増大とともに、励起子準位に依存した特異な変化を示す実験結果が、励起子が光と結合することによって緩和する輻射緩和機構と、温度による位相緩和機構との競合により説明できることを示した。

以上の結果は、光波動と物質励起波動のインタープレイが重要となる非長波長領域での新奇な超短パルス応答の様相を初めて明らかにしており、長波長近似を超えた新しい光物性研究に道を拓く結果である。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識とを有することを証したものである。