

論文内容の要旨

博士論文題目

混晶中の励起子系における不規則性によって誘起された光学非線形性

氏 名

吉川 寧一

(論文内容の要旨)

実際の物質は完全結晶のように規則的ではなく、様々な不規則性が物質の状態を複雑に変化させる。新しい物質探索は、しばしば異なる種類の物質を混合することにより行なわれるが、不規則系は並進対称性を持たないために理論的解析が困難であり、その物性の基礎的な理解はいまだ得られていない。不規則性が光学過程に及ぼす影響として最も重要かつ基本的な問題は、光スペクトルの広がりや緩和現象である。本論文では、不規則系における励起子に関する光スペクトルの広がりやの物理的背景を明らかにするために、2連光パルスによる過渡的四光波混合の理論的解析を行ない、以下のような結果を得た。まず、理論モデルとして2元混晶中のフレンケル励起子を考え、広いパラメータ範囲で適用可能なコヒーレントポテンシャル近似を用いて2体のグリーン関数を求めることにより、2連光パルスによる過渡的四光波混合の信号光強度の時間変化を表す解析的表式を導出した。その結果、光スペクトルの不均一性を示すパルス間隔に依存した信号光の時間変化は、第2パルス前後の励起子状態の量子相関(数学的にはバーテックス補正)が本質的な役割を果たすことを示した。有限のパルス幅を持つ励起パルスに対して得られた解析解に表れる2重エネルギー積分を数値的に求めることにより、種々のパラメータを広く変化させた場合の過渡的四光波混合の時間応答を計算した。具体的には、2種類の原子のエネルギー差と励起子バンド幅との比の増大と共に光スペクトルが均一広がりから不均一広がりへクロスオーバーする様相を定量的に明らかにした。また、非共鳴周波数の増大と共にスペクトルの不均一性が増加することを示し、特に中間的な非共鳴状態において不規則系に特有な振動的なエコー信号を見出した。熱浴による動的緩和現象と異なり、熱浴のゆらぎの相関時間によりクロスオーバーが決まるのではなく、長時間領域でもフォトンエコーが生じ、不規則系における励起子系は強い非マルコフ性を有することが示された。これは、吸収スペクトルのピークエネルギー近傍での自己エネルギーの強いエネルギー依存性、およびそれに伴う強い量子相関によるものである。

以上のように、本論文は、広いパラメータ範囲の不規則性に適用できる過渡的四光波混合の理論的定式化を行い、不規則系での励起子による光スペクトル広がりやの性質を定量的に解析した。熱浴による均一広がりやと不均一広がりやのクロスオーバーとは異なる不規則系に特有なスペクトル広がりやと散逸のメカニズムを初めて明らかにした。従来は、原子エネルギーの空間的揺らぎが小さい場合の解析解、あるいは小さな系での数値解に限られていたが、本論文による適用範囲の広い解析的研究により、不規則系の非線形光学に関する今後の研究が大きく前進することが期待される。

(論文審査結果の要旨)

実際の物質は完全結晶のように規則的ではなく、様々な不規則性が物質の状態を複雑に変化させる。新しい物質探索は、しばしば異なる種類の物質を混合することにより行なわれるが、不規則系は並進対称性を持たないために理論的解析が困難であり、その物性の基礎的な理解はいまだ得られていない。

不規則性が光学過程に及ぼす影響として最も重要かつ基本的な問題は、光スペクトルの広がりとの緩和現象である。本論文では、不規則系における励起子の光スペクトルの広がりとの物理的背景を明らかにするために、2連光パルスによる過渡的四光波混合の理論的解析を行ない、以下のような結果を得た。

1) 理論モデルとして2元混晶中のフレンケル励起子を考え、広いパラメータ範囲で適用可能なコヒーレントポテンシャル近似を用いることにより、過渡的四光波混合の信号光強度の時間変化を表す解析的表式を導出した。

2) 光スペクトルの不均一性を示すパルス間隔に依存した信号光の時間変化は、第2パルス前後の励起子状態の量子相関(2体のグリーン関数のバーテクス補正)が本質的な役割を果たすことが示された。

3) 2種類の原子のエネルギー差と励起子バンド幅との比の増大と共に光スペクトルが均一広がりから不均一広がりへクロスオーバーする様相を定量的に明らかにした。

4) 非共鳴周波数の増大と共にスペクトルの不均一性が増加することを示し、特に中間的な非共鳴状態において不規則系に特有な振動的なエコー信号を見出した。

以上のように、本論文は、広いパラメータ範囲の不規則性に適用できる過渡的四光波混合の理論的定式化を行い、不規則系での励起子による光スペクトル広がりとの性質を定量的に解析し、その物理的背景を明らかにした。従来は、原子エネルギーの空間的揺らぎが小さい場合の解析解、あるいは小さな系での数値解に限られていたが、本論文による適用範囲の広い解析的研究により、不規則系の非線形光学の研究が大きく前進することが期待され、学術的価値が高い。よって、審査員一同は本論文が博士(理学)の学位論文として価値あるものと認めた。