

長沢信方, 桑田 真

参考文献

- 1) 中山正敏, 科学, **53** (1983) 497.
- 2) J. F. Clauser, Phys. Rev. **D9** (1974) 853.
- 3) M. Kuwata and N. Nagasawa, Solid State Commun., **45** (1983) 937. 本研究会報告
- 4) M. Nakayama, Solid State Commun., **45** (1983) 821.
- 5) M. Nakayama, ISQM における報告

CuCl における光誘起による励起子ポラリトンのモード相関

東大・理 長沢信方, 桑田 真

光の反射, 屈折という現象は, 物質の光学的性質の中でも最も基本的なものである。通常の現象論によれば, これらはマックスウェルの境界条件から導かれるフレネルの反射屈折の法則によって理解できる。ここで媒質の光に対する応答を特長づけているものは誘電関数である。半導体や絶縁体結晶のいわゆる基礎吸収端と呼ばれる領域においては, 誘電応答に対する主な寄与は, 励起子と呼ばれる電子的素励起であることが知られている。

励起子はある有限な有効質量をもつ粒子として結晶中を移動するため, この様な場合には媒質中のある点での誘電応答はその点での電場だけでは決らず, いわゆる非局所的応答となる。その結果, 誘電関数 $\tilde{\epsilon}$ は光の周波数 ω のみならず波数 k の関数となる。従ってこの媒質中での光の分散関係は, 方程式 $(ck/\omega)^2 = \tilde{\epsilon}(k, \omega)$ の解として求まる。この様な媒質を空間分散媒質と呼ばれる。いま等方的な結晶媒質でかつ励起子構造が単純な場合には, 励起子の縦振動エネルギー, $\hbar\omega_L$, より高いエネルギー領域では, k は ω の二価関数となる。すなわち, ω が等しく k の大きく異なる二つの独立なモードが媒質中に共存できる。これらのモードの量子が励起子ポラリトン (以下ポラリトンと略称することにする。) と呼ばれているものである。

さて, レーザー光の様に光子密度の高い光が物質と相互作用すると, 物質のいろいろな非線形応答が現われる。半導体において知られている, 励起子が二ヶ束縛した量子である励起子分子が, 二光子吸収によって励起される過程はその一例である。

いま, $\hbar\omega_2 > \hbar\omega_L$ の領域の光と, もう一つの $\hbar\omega_1$ という光との組合せで励起子分子を励起することにしよう。このとき $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$ が励起子分子のエネルギーに一致する所で二光子共鳴が生じるが, 励起子分子の分散を反映して, $\hbar\omega_2$ の各分枝のポラリトンから励起子分子への共鳴

エネルギーが異なる。また、 $\kappa\omega_1$ の光の強度が他方に比べて十分に弱い場合には、この光に対する各共鳴での光の吸収量は、 $\kappa\omega_2$ をもつ各分枝のポラリトンのポピュレーションに比例すると考えて良い。つまり、空間分散効果によって共存している各ポラリトン分枝のポピュレーションを、実験的に求めることができる訳である。ここでは、CuClという代表的なイオン性半導体結晶を例として、これが実際にできることを示した。この際、二光子吸収を直接測定する代わりに、より感度の良い二光子偏光分光法を用いた。

我々はこの方法によって各分枝にあるポラリトンの量を、分光学的に求めることが実際にできることがわかったので、次に十分に強い別のレーザー光で、それぞれの分枝にあるポラリトンを選択的に励起子分子へ遷移させたとき、それぞれの分枝のポラリトンの量がどう変化するかを調べてみた。その結果、ある分枝のポラリトンを選択的に励起子分子へ励起させると、確かにその量は大きく減少した。しかし意外なことには、その時もう一方の分枝にあるポラリトンの量も、同じ程度減少することがわかった。これは互に独立なモードであるはずの状態間に、強い相関のあることを示している。一方、同様な実験条件下では、 $\kappa\omega_2$ の光についての結晶表面での反射光強度も、強い光の照射下では、問題となる相関に呼応して効率良く減少することもわかった。しかも、同様な条件下で実際我々が実測した、二光子共鳴に伴う非線形誘電率の変化から予想される反射率の変化に比べて、この反射率の変化量は桁違いに大きいものであった。以上の様に我々がみつけた光学現象は、通常の現象論的理解がしにくそうなものである。

中山はこれらの現象を一つの量子論的モデルに基いた理論によって統一的に説明することを試みた。 ω が等しく k の大きく異なる二つのポラリトン状態を結びつける適当な相互作用をみつけ出したり、通常半古典論にもとづく高次の摂動計算によって、大きな反射率の変化にみあう誘電率の変化を評価することに比べると、確かに中山理論は、今問題となる現象を簡単に理解する上で都合が良い。もし今問題としている現象がこの理論で扱っている対象にふさわしいものであれば、この現象は、量子論でなくては説明のできない現象の巨視的な表われと解釈できることになり、いわゆる「量子力学における観測の問題」とのからみで興味深い対象となりうる。

しかしながら、現在の段階ですぐこの結論に到達する訳にはいかない様に思える。なぜなら実験的な立場から考えると、なお定量的に吟味すべきいくつかの点が未解決のまま残されているからである。我々は近い将来、この理論が問題の現象を理解する唯一の解となるかどうかを、より鮮明にできる様な実験を試みたいと考えている。

尚我々の実験に関する第一報は、M. Kuwata & N. Nagasawa: Solid State Commun. 45 (1983) 937-940 "A New Experimental Aspect of Exciton Polaritons in Spatially Dis-

矢島達夫

persive Region of CuCl”としてすでに公表した。ここで我々の実験結果に興味をお寄せ下さり、多くの有益な御意見をいただいた中山正敏、花村栄一、矢島達夫、豊沢豊先生始め他の多くの方々に感謝いたします。

長沢氏らの実験についてのコメント

東大・物性研 矢島達夫

長沢氏らの「CuClにおける励起子ポラリトン及び反射光の相関」に関する実験結果を解釈するに当たって、問題点を整理し、明らかにすることを試みた。

量子論が、古典論を極限として含む、より一般的な理論であるとする立場から言えば、ある観測された現象が、量子的な現象か、古典的な現象かと問うことは無意味である。意味があるのは、(A)量子論でも古典論でも説明できる現象か、(B)量子論をもち込まなければどうしても説明できない現象かと問うことであり、そのいずれであるかを明らかにすることが重要である。

ここでは、論点を明確にするために、この実験結果を説明するために、光の量子的描像(光子その他)が必要不可欠であるかどうかということに問題を限定する。(ポラリトンについても或程度迄は光に準じて考えることができよう。)

実験に用いられたレーザー光源は $n \gg 1$ (n は 1 モード当りの光子数) の性質をもつ。よく知られているように、このような光はよい近似で古典的波動として記述でき、それと物質との相互作用に関する諸現象は、自然放出やゆらぎを含む問題を除くと、半古典論(光のみ古典的に扱う)でよく説明できる筈である。事実、従来、レーザー自体も含めて、レーザー光による線形、非線形光学現象の大部分が、この線に沿って充分説明されている。今回の実験もその実験条件から考えれば、普通にはこの範疇(前の分類でいえばA)に属すると考えられるので、まずこの線で説明する可能性を徹底的に追求する必要がある。もし、その通りの現象であるとするれば、光を古典的に扱っても量子的に扱っても同じ結果に到達する筈で、そのことを示すことによって完全な理解が得られることになる。

一方、観測された現象が(A)ではなく(B)であることを主張するためには、かなり容易ならざる困難がある。もし、そうだとすれば、これは一般原則から大きく外れた特異な現象ということになるから、その特異性がどこからどのように生ずるのかを定量的に明らかにしなければならない。この実験における光や物質の条件には、特に意図した極限条件などはなく、普通に