



第二図：強いレーザー光で駆動される二準位電子系からの発光スペクトル。 $\Delta = -1$ とし、図中の数字は $\chi\tau_c$ の値を示す。 χ が大きくなるとともに、発光スペクトルは鋭くなる様子が読みとれる。

励起子格子系における動的共鳴二次光学過程

山口大・教養 相原正樹

阪大・理 小谷章雄

非平衡状態へ過渡的に励起された物質系の緩和のダイナミクスに関する典型例の一つに、パルス光励起による共鳴二次光学過程が有る。この問題は、最近のパルスレーザーの著しい進歩により、数十ないし数百フェムト秒の超高速緩和現象が実時間で直接に観測が可能になってきている事と相まって、今後の重要課題と思われる。共鳴散乱光の時間分解スペクトルは、強結合局在電子格子系に関する豊沢らの議論 [1] と、Hizhnyakov [2]、及び、花村と高河原による励起子分子に対する現象論 [3] の他は、筆者の知る限りでは、時間とエネルギーとの不確定性関係と抵触し正しい結果を与えていない。その困難さは、量子力学において時間は演算子ではなく、時間とエネルギーとの不確定性関係の直接証明が存在しない事と密接に関係している。そこで、時間分解スペクトルの定式化における重要な点は、光子の観測過程を考慮に入れる事である。ただし、測定装置に関する不必要に詳細な考察はかえって混乱をまねくので、出来る限り本質的な点だけに留めなければならない。そこで筆者らは、光子測定装置のアドミッタンス関数にその本質的な点が含まれている事に着目して、共鳴二次光学過程の時間分解スペクト

ルの基礎公式を導出し, それを励起子格子系に適用した [4]。

励起子は, 局在電子と異なり, 励起子の空間分散効果により中間状態が連続的に分布するため, ラマン散乱とホット・ルミネッセンスの関係は, より微妙でかつ興味深い様相を呈する。つまり, 励起子の反跳運動のため, フォノンの放出あるいは吸収を伴った光励起の中間状態においてエネルギーを保存し得る過程が, かなり広い励起エネルギー範囲で生ずることである。ところが, 従来の励起子の共鳴光散乱の理論的研究は, 単色光励起による定常的現象に限られていた。本報告では, パルス励起による共鳴散乱光の時間分解スペクトルにより, 中間状態における非平衡状態の励起子の, フォノンによる緩和のダイナミックスを実時間で直接明らかにする。得られた結果は, まず, 平均入射光周波数 Ω_1 が $\Omega_1 < \hbar^{-1}\epsilon + 2\omega_{LO}$ (ϵ は $k=0$ の励起子のエネルギー, ω_{LO} は LO フォノン周波数) の場合は, ラマン線の強度は, $\hbar(\Omega_1 - \omega_{LO})$ のエネルギーを持つホットな励起子の緩和定数で指数関数的な減衰を示す。次に, $\Omega_1 > \hbar^{-1}\epsilon + 2\omega_{LO}$ の場合は, 入射パルスにはほぼ従った速い減衰を示す他に, パルスの立ち下りの所で振動的振舞を示す。これらの結果は, LO フォノンの放出を伴った中間状態での励起子のエネルギー $\hbar(\Omega - \omega_{LO})$ が $\epsilon + \hbar\omega_{LO}$ より小さい場合には励起子は LA フォノンのみによるゆっくりした緩和を示すが, 逆の場合には, 中間状態の励起子は LO フォノンによるはるかに速い緩和を示すことによる。つまり前者の場合には, 中間状態での励起子の緩和がゆっくりしているためホット・ルミネッセンスとなっていることが, 二次放出光の時間変化として直接現れていることになる。これに対して, $\Omega_1 > \hbar^{-1}\epsilon + 2\omega_{LO}$ の場合には, 中間状態で励起子と LO フォノンの相互作用が強く, 虚過程が寄与した上記のような異なった時間変化を示す。この場合は, もはやホット・ルミネッセンスではなく, ラマン散乱としての性格を強く持っている。このように, パルス励起による時間的振舞を調べることにより, ラマン散乱とホット・ルミネッセンスの関係に関するさらに深い理解を得ることができる。

[1] Y. Toyozawa, A. Kotani and A. Sumi, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 42, (1977) 1495.

[2] V. Hizhnyakov, Technical Report of ISSP. Ser. A, No. 860 (1977).

[3] E. Hanamura and H. Takagahara, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 47, (1979) 410.

[4] M. Aihara and A. Kotani, Solid State Commun. Vol. 46, (1983) 751.