

光学過程における緩和の諸問題

物性研 豊 沢 豊

光の吸収，放出または散乱のスペクトル形状は，これら各過程の終状態，始状態，中間状態での電子-格子緩和のダイナミクスを物語っている。単色光定常励起下の通常のスペクトルのほかに，パルス光励起下の時間分解スペクトルも重要な知見を提供する。

光学過程をめぐってしばしば聞かれる素朴な質問 — 素過程としての“所要時間”はどれ位か？ 高次素過程と低次素過程のカスケードとはどう区別するのか？ — は，実は緩和過程の本質ともかかわる基本的な問題をふくんでいる。最も簡単な例題である2準位系の共鳴蛍光¹⁾では，自発放射による自然幅 γ （縦緩和）だけしかない場合，時間幅 Δt ($< \gamma^{-1}$)のパルス共鳴光（スペクトル幅は $> \gamma$ ）をあてるとそれは Δt 内に一旦realに吸収され， γ^{-1} だけ経過してからルミネッセンスとして放出されるが，単色光定常照射では2次光学過程としての弾性散乱が γ^{-1} 時間内に起る。この2準位系で位相緩和（ γ' ）も起る場合には，単色光定常照射に対し弾性散乱光のほかにルミネッセンスもあらわれ²⁾，後者は $(\gamma' + \gamma)^{-1}$ 時間内にrealに吸収された光が γ^{-1} 時間後に再放出されたものである。

逆のslow modulationの例として，格子と強く相互作用する局在電子の光励起と緩和を考えよう³⁾。励起エネルギーの格子振動によるゆらぎ幅 D がそのまま吸収スペクトル幅を与える（Franck-Condon原理）のは，吸収過程が起る D^{-1} 時間内（不確定性原理による）に格子が静止していると考えてよい（ $\omega \ll D$ ，これはslow modulationの条件に外ならない）からである。しかしこれはフォノンエネルギー ω より粗い分解能でみるときの話であって，スペクトルのフォノン構造を分解できるだけの単色性をもった光は，当然ながら吸収過程に $\geq \omega^{-1}$ の時間を要し，Franck-Condon原理の適用対象とならない。緩和励起状態への遷移に対応する鋭いゼロ・フォノン線をみるにはさらに $\gg \omega^{-1}$ の時間を要し，実際これはFranck-Condon状態からの完全緩和に要する時間に対応していて辻褄があっている。このように光学素過程の所要時間は如何なる光（スペクトル幅，パルス幅）を用いて何をみようとすることに依るのである。

次に結晶の母体原子の局在励起が次々と隣接する原子へ移動してゆく励起子を考える。そのバンド幅 B が局所的ゆらぎ D より大きいときは，吸収線幅はmotional narrowingを起して $D \times (D/B)^n$ （ n は1, 2, 3次元結晶でそれぞれ1/3, 1, 3）になり，またLorentzianの半値幅に相当する緩和レート $\gamma(E)$ が光エネルギー E の関数となるため，吸収線形はLorentzianから

ずれる。特に吸収ピークの低エネルギー側で $r(E)$ は指数関数的に減少するが、このエネルギー領域は格子振動の不規則ポテンシャルによる局在励起子状態に対応し、自由励起子のフォノンによる散乱レートという $r(E)$ 本来の意味が変質してしまっている⁴⁾

このように一口に緩和といっても、現実の物理系でのそれは、緩和時間という少数のパラメータによって一般論風に記述できる状況よりはるかに広く深く、それぞれの物理系にはそれぞれの新しい物理がある。またどのような局面をどの角度からとらえるかによって物事がちがってみえてくることも、すでにのべた通りである。緩和現象と光スペクトルの関係は、このような基本的問題をじっくり考えるのに大変よい場となっているように思う。

文 献

- 1) W. Heitler: “*The Quantum Theory of Radiation*” (Oxford, 1954) p. 196.
- 2) R. Kubo, T. Takagahara and E. Hanamura: *Solid State Communication* **32** (1979) 1.
- 3) 豊沢豊: 「統計力学の進歩」久保教授還暦記念事業会編 (裳華房, 1981) P. 174.
- 4) Y. Toyozawa: in “*Organic Molecular Aggregates*”, ed. by P. Reineker, H. Haken and H. C. Wolf, Springer, 1983) p. 90; Tech. Rep. ISSP Ser. A No. 1366.

コヒーレント過渡光学現象の統計理論

東大・工 花 村 榮 一

磁気共鳴や多くの非線型光学現象はブロッホ方程式で記述されてきた。ここでは電子系に対する熱浴の効果は、横緩和時間 T_2 を用いて記述された。しかし、一般には電子系をとりまく環境の効果は電子系の遷移エネルギーの周波数揺動 $\delta\omega(t)$ としてとり込むべきである。さらに、多くの場合には熱浴の多数の素励起が周波数揺動に関与する。そのときには、周波数揺動 $\delta\omega(t)$ はガウス過程となり、熱浴の効果は2体の相関関数のみで記述でき、さらに Doob の定理により次の形にあらわされる:

$$\langle \delta\omega(t_1) \delta\omega(t_2) \rangle = (\delta\omega)^2 e \times p[-|t_1 - t_2|/\tau_c]. \quad (1)$$

(1) 周波数揺動の相関時間 τ_c と大きさ $\delta\omega$ はフォトンエコーの実験から有効に決められる。 $\pi/2$ パルスと π パルスの時間間隔を τ とするとき 2τ に現われるエコー信号の強度は、 $\tau < \tau_c$