

「凝縮相における非線形光励起と超高速緩和過程の理論」

同一周波数で異なる波動ベクトル $\vec{k}_1, \vec{k}_2$ の入射パルスに対し、 $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ の出力光を入射パルス間隔の関数（相関波形）として観測するもので、フォトン・エコーを一部に含む。これらから T_1, T_2, T_3 またはその結合値が直接に定められ、特に他の方法では困難な T_2 の決定に有力である。上記の諸方法は互に相補的な特徴をもち、また cross check の役割も果す。実験は主に液体及び固体中の色素分子の一重項電子励起状態を対象として行われ、 $10^{-13} \sim 10^{-14}$ s の緩和時間が求められて、緩和機構に関する知見も得られた。周波数領域と時間領域の方法による結果の比較も行われ、その差異の原因が検討されている。

上記の拡張として、3種の入射光や2光子共鳴の場合も取上げられた。また、極短パルスレーザ技術の現状についても紹介された。

次に最近の試みとしてインコヒーレント光源による非線形分光がある。従来、時間領域の分光において時間分解能を支配していたのは、光源のパルス幅 (t_p) や立上り時間 (t_r) であったが、 t_p や t_r が $\lesssim 10^{-13}$ s 程度の領域になると、その生成・制御・測定は困難を極める。一方、時間的にインコヒーレントな光は、ほぼスペクトル幅の逆数に相当する極めて短い相関時間 t_c をもつ。この t_c で時間分解能が決るような分光法が可能になれば、超高速緩和の研究に大いに役立つ。その可能性を探るため、ガウス型ランダム性の入射光に対する空間パラメトリック効果について、 $t_p \gg T_1, T_2 \gg t_c$ の条件で解析を行った。その結果、相関波形にはやはり緩和のみで決る減衰特性が現われ、インコヒーレント光が基本的には幅 t_c のパルス光と同等の役割を果すことが確かめられた。

最後に、緩和が単純な物性定数では表わせないような場合について簡単に言及された。

「凝縮相における非線形光励起と超高速緩和過程の理論」

山口大学教養部 相 原 正 樹

一般に、光励起された非平衡系の中間状態における緩和の様相は、光吸収と光放出の間の種々の相関（時間相関、エネルギー相関、偏光相関、等）に反映される。しかし、凝縮相に対するこの2次の光学過程に関するこれまでの研究は、入射光強度が十分に弱い場合の線形応答にほぼ限られてきた。

一方、原子（分子）気体等の非凝縮相に対しては、非線形光励起による方法が、系の緩和現象を調べるのに通常の線形励起よりはるかに有用な種々の手段を提供することは良く知られている。

この非線形光応答を凝縮相に適用することによって生ずる多様な現象を通して、その非平衡状態での緩和過程がより明確にとらえられることが期待される。最近、これに関する実験がいくつか報告されているが、その理論的取扱いは、緩和時間記述による現象論にとどまっている。

本報告は、緩和時間の現象論的導入は記述できない非マルコフ性を有する一般の凝縮相に適用し得るコヒーレントな非線形光応答の微視的理論に関するものである。凝縮相では通常、系と熱浴との相互作用がかなり強く、緩和時間がピコ秒あるいはそれ以下になることが多い。この様な場合は、観測の時間スケールが熱浴の相関時間 τ_c と同程度となるため、熱浴の影響は単に系の指数関数的緩和を生じさせるのではなく、熱浴の位相記憶効果に寄因した興味ある現象を引き起こす。

これを非線形光応答を通じて最も直接的に捉えるには、異なった2つの励起の存在に直接依存する（つまり、単なる線形応答の重ね合せでない）現象を観測すればよい。それには、時間領域における2連光パルス励起と、周波数領域における2周波光励起の方法がある。

まず、2連光パルス励起の場合は、キュムラント展開の方法により、全時間領域で比較的良好な近似でコヒーレントな非線形散乱光強度の時間変化を求めることができる。その結果、 τ_c より十分長い時間領域では通常の横緩和時間で指数関数的減衰を示すが、 τ_c と同程度の時間領域では熱浴のコヒーレントな運動を反映した特徴的な過渡現象が現れる。ここで特に強調しておきたいのは、2連光パルス励起の有用な点として、第2パルス以後の時間積分強度はパルス間隔 τ_s の関数としてやはり上述の特徴的振舞を示し、これはピコ秒時間領域での非マルコフ的緩和現象を実際に観測するのに非常に有力な手段を提供する。また、さらに τ_c より短い時間領域では、熱浴の位相記憶効果の最も顕著な結果として、 $2\tau_s$ の時刻にフォトン・エコーが現れる。

一方、2周波光励起の場合は、リゾルベント展開と射影演算子の方法により、入射周波数の差 $\omega_2 - \omega_1$ の関数としてコヒーレントな散乱光強度 $I(\omega_2 - \omega_1)$ を求めることができる。その結果、系と熱浴の相互作用が弱い散逸系に対しては、矢島により現象論的に求められた Resonant Rayleigh-type Optical Mixing (RROM) の表式が再現されるが、系と熱浴との相互作用が強くなると、熱浴の有色性、すなわちそのスペクトル構造が関与する現象が生ずる。これは、単に T_1 と T_2 の周波数依存性をもたらすだけでなく、系の素励起の自己エネルギー $\Sigma(\omega_2 - \omega_1)$ の形が $I(\omega_2 - \omega_1)$ の形に直接に反映されるようになる。特に、 Σ が熱浴の運動を特徴づけるある周波数でかなりはっきりしたピークを持つ場合には、これはいわゆる Coherent Anti-Stokes Raman Scattering (CARS) の凝縮相に対する微視的理論になっている。これまでは、RROMとCARSは相異なる現象とされてきたが、凝縮相においては

両現象が不可分に互いに関連して $I(\omega_2 - \omega_1)$ を決めており、このことが非マルコフ性という立場から統一的に理解される。

半導体中の深い欠陥準位を介した多重フォノン 無輻射再結合によって誘起される動的欠陥反応

筑波大学物質工学系 住 齊

最近、半導体中の深い欠陥準位の周りでおこる非熱平衡現象に対する関心が、基礎及び応用の両分野において非常に高まっている。まず応用の面から見ると、デバイス中に注入された少数担体が深い欠陥準位に無輻射捕獲されそこで再結合する際に放出される大量のフォノンが、深い欠陥の周りの格子を激しく揺り動かし、深い欠陥自身を移動させたり、その周りに新たな欠陥を発生させたりする¹⁾。この現象は、再結合増強欠陥反応と呼ばれ、光放出ダイオードや半導体レーザなどの注入型デバイスの劣化の主原因とみなされている²⁾。また基礎の面から見ると、この現象は、局所的に放出された大量のフォノンが結晶全体の熱平衡に緩和する前のごく短時間の間におこる非熱平衡現象の一つの典型と見なしうる。(この現象は、例えば、天空から巨大な隕石が地面に激突し、その瞬間におこる地震によって、地割れが出来たり、家が倒れることとでもたとえようか。) 少数担体注入前のデバイスの劣化は、或る活性化エネルギー E_A を伴っておこる。少数担体を注入すると劣化の速度は非常に速くなる。このとき劣化の速度を Arrhenius plot すると、傾きが E_A より非常に小さいきれいな直線にのることがわかっている。従って、再結合増強欠陥反応は、無輻射再結合による単なる局所的温度上昇によるものではなく、放出された非平衡フォノンが熱平衡に緩和する途中に、欠陥反応を司る反応座標を励振させることにより反応の活性化エネルギーを減少させることによるものである。この現象を記述する理論³⁾ を発表した。

1) L. C. Kimerling : Solid-State Electronics 21 (1978) 1391.

2) 林巖雄：第 15 回半導体物理学国際会議報告(京都, 1980) p.57.

3) 住 齊：第 16 回半導体物理学国際会議報告(Montpellier, 1982) (掲載予定)