

CuCl 高品質薄膜の超短パルス励起による非線形光学信号の増強

Enhancement of Nonlinear Optical Signal

Using Ultrashort-pulse Excitation in CuCl High-quality Thin Films

○一宮 正義^{1,2}、佐伯 昂²、馬越 隆之²、木下 岳³、石原 一³、芦田 昌明²

(1. 滋賀県大工、2. 阪大院基礎工、3. 阪府大院工)

○Masayoshi Ichimiya^{1,2}, Subaru Saeki², Takayuki Umakoshi², Takashi Kinoshita³,Hajime Ishihara³, Masaaki Ashida²

(1.Univ. of Shiga Pref., 2.Osaka Univ., 3.Osaka Pref. Univ.)

E-mail: ichimiya.m@e.usp.ac.jp

我々は、結晶品質の高い半導体微小構造中に生じる光と閉じ込め励起子との長距離にわたるコヒーレント結合について着目し、CuCl 高品質薄膜において 100 fs 級の超高速励起子輻射緩和や室温下での縮退四光波混合といった特異な非線形光学応答の観測に成功してきた [1]。しかし、室温においては四光波混合の信号強度が著しく減少するという課題があり、原因として光波との整合性が高い励起子モードの巨大な輻射幅に対して励起パルスの線幅が狭く、効率的な励起ができていなかったことが挙げられる。そこで、本研究ではパルス幅を圧縮することによって励起光の線幅を拡張して巨大な輻射幅と同等にし、室温における位相緩和を凌ぐ超高速励起子モードの応答効率増大を目的とした。

CuCl 薄膜は分子線エピタキシー法に電子線照射を組み合わせた新奇成膜法によって作製し [2]、中心エネルギーを CuCl の横波励起子エネルギー (3.2022 eV) に調節したチタンサファイアレーザーの第二高調波を用いて過渡回折格子 (TG) のスペクトル及び遅延時間依存性による励起子輻射緩和特性の測定を行った。また、レーザー基本波のパルス幅を 110 fs から 60 fs まで圧縮することにより、励起光の線幅を 20 meV から 44 meV まで増大させて各測定を行った (図1の点線)。図1は CuCl 高品質薄膜における TG スペクトルである。光-励起子長距離結合に起因する複数のピーク構造を持つ特異なスペクトル形状が観測されたが、線幅 44 meV 励起下では輻射幅の大きい励起子モード ($n = 4, 5$) の相対強度が増大するという結果が得られた。図2は最も輻射幅が大きい $n=4$ 励起子モードの輻射緩和特性である。輻射緩和の理論計算値から得られる輻射緩和時間を時定数としてパルス形状を考慮した指数関数でフィッティングを行った結果 (赤線)、30 fs 級の超高速輻射緩和を示していることが明らかになった。講演では、室温下での応答効率についても言及する。

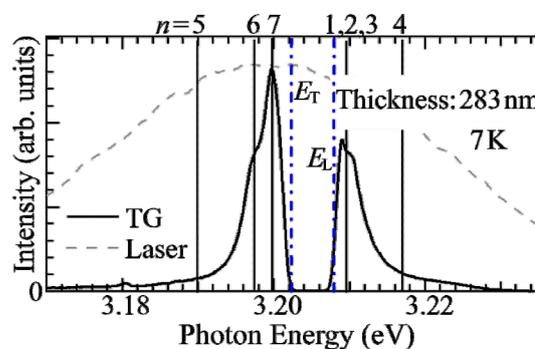
[1] M. Ichimiya *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 257401 (2009).[2] M. Ichimiya *et al.*, J. Cryst. Growth **378**, 372 (2013).

図1 CuCl 薄膜における TG スペクトル。 E_T 、 E_L は横波及び縦波励起子エネルギー。

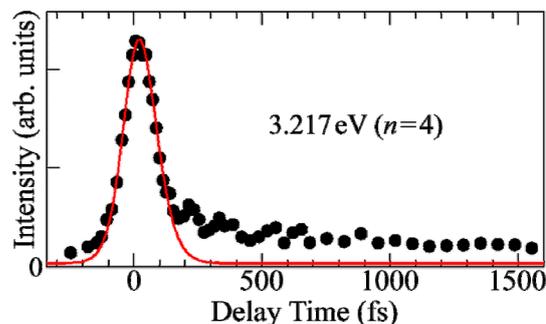


図2 図1の低エネルギー側成分における TG 信号強度プローブ光遅延時間依存性。