

審査の結果の要旨

氏名 木下 雄斗

本論文は 6 章からなる。第 1 章は序論としてテラヘルツ科学ならびに、本論文の対象物質である強誘電体、強磁性体、極性半導体など反転対称性の破れた物質に関する研究の背景について概観した後、本研究の目的を述べている。第 2 章は、本論文で用いた実験方法であるテラヘルツ帯から可視域における定常分光測定法、フェムト秒レーザー励起によるテラヘルツ電磁波測定法、テラヘルツ電磁波発生を利用したイメージング測定法、ポンププローブ分光測定法について説明している。第 3 章は、数々の強誘電体からのテラヘルツ電磁波の観測結果、第 4 章は、強磁性体からのテラヘルツ電磁波の観測結果、第 5 章は、極性半導体からのテラヘルツ電磁波の観測結果について述べられている。第 6 章は研究の総括である。

本論文は、空間もしくは時間反転対称性の破れた物質にフェムト秒レーザーを照射することによるテラヘルツ電磁波発生、ならびにその発生機構の解明を研究課題とする一方で、テラヘルツ電磁波発生を利用したドメイン可視化法の開発や新たなダイナミクス抽出法の開発にも重点をおいた論文である。

第 3 章では、無機ならびに有機強誘電体からテラヘルツ電磁波の発生に成功した結果について述べている。強誘電性を示す $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ 、 $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 、 BiFeO_3 単結晶試料において観測された広帯域のテラヘルツ電磁波の詳細な偏光依存性を測定する一方で、テラヘルツ帯から紫外域に至る定常光学スペクトルを測定することにより、テラヘルツ電磁波の発生機構が光整流によることを明らかにしている。さらに、電気分極の向きが異なる強誘電ドメインから発生するテラヘルツ電磁波は位相が π 異なることを利用し、レーザーを試料上でスキャンしながら発生するテラヘルツ電磁波の電場振幅の空間依存性を測定することで、強誘電ドメインの可視化に成功した結果についても述べている。本手法の長所は、非破壊であること、電気分極の符号を含めて測定出来ること、多軸性強誘電体にも適用可能なことである。さらに、電荷秩序相において光誘起相転移を示すことが知られている有機強誘電体 $\alpha\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$ においては、新たに反射型のテラヘルツ電磁波検出系を構築し、テラヘルツ帯に複数のピーク構造を有する狭帯域なテラヘルツ電磁波の検出に成功している。この起源として、テラヘルツ帯の偏光フォノンスペクトル測定やポンププローブ分光を行い、弱励起の場合は、電荷秩序と結合した分子振動により狭帯域なテラヘルツ電磁波が発生すること、強励起の場合は、光誘起相転移に伴う瞬时分極消失が支配的であることを明らかにした。第 4 章では、室温でフェリ磁性を示す LiFe_5O_8 ならびに $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ からテラヘルツ電磁波の発生に成功し、その起源が、

Fe の $d-d$ 遷移を共鳴励起することによるスピン反転に起因した磁化の減少を介した磁気双極子放射であることを明らかにした。さらに、 LiFe_5O_8 においては、磁化の向きによって発生するテラヘルツ電磁波の位相が π 異なることを利用し、発生するテラヘルツ電磁波の電場振幅の空間依存性を測定することで、磁場下における磁気ドメインの可視化に成功した結果について述べている。これはテラヘルツ電磁波発生を利用した磁気イメージングの初めての例である。また、 $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ においては、反射配置において、詳細な励起スペクトルを測定し、Fe の $d-d$ 遷移を共鳴励起すると、テラヘルツ電磁波発生の効率が上昇することを見出した。また、定常光学スペクトルを測定することによりテラヘルツ電磁波の発生・伝播・検出を考慮した波形のシミュレーションを行い、実験結果と比較することで、磁化ダイナミクスが抽出できる手法について議論している。第 5 章では、大きなスピン軌道相互作用によるラシュバ分裂によってスピン縮退が解けている物質である BiTeBr を対象として行った実験結果について述べている。円偏光励起によってスピンを選択的に励起することで、光のヘリシティに依存したテラヘルツ電磁波の発生に成功し、その起源が光起電力効果に由来する電流変調であることを明らかにした。特に、従来の半導体で知られている光デンバー効果によるテラヘルツ電磁波発生と比較し、約 3 倍、テラヘルツ電磁波の電場振幅が大きいことを見出した。

このように、本論文では、数々の反転対称性の破れた系においてフェムト秒レーザー誘起テラヘルツ電磁波の発生に成功し、その発生機構を明らかにする研究を行った。さらに、テラヘルツ電磁波発生を利用したドメイン可視化法の開発や新たなダイナミクス抽出法の開発を行った。

なお、本論文の第 3 章、第 4 章、第 5 章は、貴田徳明、岡本 博各氏との共同研究であり、それに加え、第 3 章は、有馬孝尚、齋藤充、伊藤利充、森初果各氏との、第 4 章は、小野瀬佳文、井口雄介、徳永祐介各氏との、第 5 章は、笹川崇男、加納 学各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって開発及び実験・解析・考察を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。