

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 今坂 光太郎

レーザーパルス光の高次高調波発生はこれまで主に希ガスに  $10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$  オーダーのきわめて強い光パルスを照射することにより実現されてきた。通常の摂動論的な非線形光学効果を用いた高調波発生とは全く異なり、非摂動論的な高次高調波発生では、希ガスの外殻電子を束縛しているクーロン力に匹敵する大きな光電場により、電子がトンネルイオン化により放出され、さらに光電場による加速と再衝突過程を経て高次の高調波光が発生される。高調波の次数は時には 100 次を超えることもある。近年、この高次高調波発生が固体中でも起こることが報告され、これによりこれまでの気体媒質による高次高調波発生で必要であった巨大な実験装置が不要となり、小型、簡易、かつ安定な系での高次高調波発生の可能性が開けてきた。本論文は、この固体での高次高調波発生と金属ナノ構造を用いたプラズモン増強場を組み合わせることにより、比較的低強度の光パルスを増強して、局所的に強い光場を作り、固体における高次高調波の発生を試み、さらにその特性について詳しく調べたものである。

論文は 6 章から構成されている。

第 1 章は序論であり、研究の背景、目的、論文の構成が述べられている。

第 2 章では高次高調波発生の原理が述べられている。摂動論的な現象と非摂動論的な非線形光学効果の違い、従来の気体を用いた高次高調波発生の原理に続き、固体における高次高調波発生の原理とその機構についてこれまでの研究がまとめられている。また、以降の実験結果の解釈のための準備として、固体中の電子のダイナミクスの解析についても述べられている。

第 3 章からが本研究のオリジナルな成果となる。第 3 章では、GaSe における高次高調波の発生とその解析について述べられている。この章では光の場のプラズモニック増強は用いず、中赤外レーザー光の直接照射により高次高調波を発生させ、GaSe における高次高調波の発生の性質と機構を明らかにした。特にこれまで GaSe ではバンドギャップを超える波長域の高次高調波を発生させた例はなかったが、本研究では、波長 210 nm の 10 次高調波の発生を実現した。これは GaSe における高次高調波の報告例としては最短波長である。バンドギャップ以下の波長域では、バンド内電流による電子の加速度運動が高次高調波発生の主な機構であるが、バンドギャップを超える波長域ではこれに加えてバンド間分極も高次高調波の発生に寄与すると考えられる。本研究では、発生する高次高調波光のチャープ、モード間の位相遅延、高調波スペクトルの結晶方位角依存性等を測定することにより、発生している高調波がバンド間分極によるものであることを明らかにした。

第 4 章は金属ナノアンテナを用いた、プラズモニック増強場を用いた固体の高次高調波発生に関するものである。600 nm × 300 nm × 100 nm 程度の大きさの金ナノアンテナを 2

次元アレイ上に ZnO 表面上に作成し、金ナノアンテナに局在型表面プラズモンを励振し、発生した増強場により ZnO からの高次高調波を発生させた。増強場は金ナノアンテナ単独の効果に加えて、アレイ状に配列させたことによる増強効果も加わり、9次の高調波（波長 220 nm）まで観測することができた。この時の励起光強度は 20 GW/cm<sup>2</sup> であり、金ナノアンテナによる増強場を用いない場合に比べて 10~10<sup>3</sup> 倍程度の変換効率の向上を実現した。また、ナノアンテナの方向、入力光の偏光、結晶の方位の相互の関係と、発生する高次高調波の次数の関係から、発生に寄与しているのは金ナノアンテナではなく、ZnO 結晶そのものであることを確認した。

第5章では、埋め込みアンテナによる固体の高次高調波発生を増強について、検討が行われている。第4章では、ZnO 結晶の表面上に金ナノアンテナを積み上げていた。この場合、プラズモニックな効果により増強された光の場のほとんどは空気中に存在しており、この部分は高次高調波発生に寄与していなかった。そこで、金ナノアンテナを ZnO 結晶中に埋め込んで、増強場を結晶中に作ることで、さらなる高効率化の実現を目指した。ここでまず単一の金ナノアンテナでは誘電体中に分極電場が発生し、これが逆に増強場を打ち消してしまうことが分かった。ところが、金ナノアンテナを2次元アレイ状に配列すると、埋め込みの効果が強く表れることが明らかになった。これは埋め込まないアレイでは、ナノアンテナからの放射光が空気中と ZnO 中の両方を伝搬することになり、屈折率の違いにより空気中と結晶中での波長の違いにより打ち消しあいが起こってしまうが、埋め込み構造にすることにより、放射光のほとんどが結晶中を伝搬し、全て同波長、同位相での強め合いが起こることにより、より大きな増強が実現されることが分かった。これにより5次高調波までは約 100 倍の発生効率の向上が見込めることを数値シミュレーションにより見積もった。ただし7次以上の高調波では、光子のエネルギーが ZnO のバンドギャップを超えてしまうため、媒質による吸収が無視できず、最適条件が変化することも明らかになった。

第6章は「総括」と題し、各章の主要な成果をまとめて総括し、本論文の結論、及び将来展望について述べている。

以上、これを要するに、本論文は、固体媒質を用いた高次高調波発生に関して、その発生メカニズムの詳細を検討、解明するとともに、プラズモニック増強場を用いた発生効率の向上を実現した。本論文の成果により、従来の気体媒質による方法よりも、出力の小さいレーザーで効率の良い高次高調波の発生が可能であることが実証され、媒質が固体であることも含めて、システム全体の小型化への道筋を示した。また結晶方位による発生する高次高調波の特性を逆に利用して、位相や偏光の制御が可能であることも示した。これらにより全固体 EUV アト秒光源の小型化、高繰り返し化と、発生光の多彩な制御、さらには高次高調波をバンド構造のプローブとして用いることの可能性を示しており、本論文の成果は物理工学上も重要なものである。よって、本論文は、博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。