

# 論文審査の結果の要旨

氏名 齋藤 成之

高強度レーザー物理分野のうち、高次高調波発生 (HHG) によるアト秒パルスを用いた研究は、物質中の電子のダイナミクスを直接観測・制御できるため、アト秒科学として注目されている。特に水の透過率が比較的高い「水の窓」領域のコヒーレント軟X線パルス (光子エネルギー: 284 eV~543 eV) は、X線ホログラムの作製を始めとし、生体分子の直接観測が可能なることから特に注目されている。また、一般に軟X線パルスを用いれば、物質中の元素選択性をもつ吸収分光実験が可能となる。したがって、HHGによって発生する「水の窓」領域のアト秒軟X線パルスを用いた超高速過渡吸収分光実験は、物質と光の相互作用をよりよく理解するための強力な手法となり得る。

論文提出者は、所属するグループで開発された BIBO ベースの光パラメトリック・チャープパルス増幅 (BIBO-OPCPA) システムの赤外光出力 (中心波長~1.6  $\mu\text{m}$ 、パルス幅~11 fs) を用い、He 原子を媒質として~400 eV のアト秒軟X線パルスをプローブ光として発生するとともに、BIBO-OPCPA システムの赤外光出力の一部をポンプ光とする超高速過渡吸収分光実験システムを構築した。試料として NO 及び N<sub>2</sub>O 分子を用い、光子エネルギー400 eV 近傍で過渡吸収分光実験を行い、有益な知見を得た。

本論文は英文で全8章と付録A~Eからなる。第1章は序論であり、本研究の位置づけと目的を簡潔にまとめている。第2章では、研究の背景説明として、HHG のメカニズムとスケーリング則、X線吸収分光の概略、及び、X線過渡吸収分光の先行研究についてまとめている。第3章では、本研究で用いた BIBO-OPCPA システムとその特性評価についてまとめている。まず、OPCPA の原理と BIBO 結晶中での縮退 OPA について述べた後、BIBO-OPCPA システムについて説明している。その後、論文申請者が開発した“plasma fluorescence”を用いた赤外光パルスの波形測定について述べている。測定の結果、パルス幅 11 fs (FWHM) が得られ、スペクトル位相も中心部分ではほぼ平坦であることが確認できた。

第4章では、HHG と過渡吸収分光用ビームラインの開発についてまとめている。ビームラインは、HHG チェンバー、発生した HHG パルスを集光するためのトロイダルミラーを収納したトロイダルチェンバー、試料チェンバー、及び、平面結像回折格子とX線 CCD カメラの検出系を収納した回折格子チェンバーからなる大掛かりなものである。装置全体を概観した後、各チェンバーの詳細について説明している。最後にアト秒時間分解ポンプ・プローブ分光を実現するための HeNe ビームを用いた能動安定化について述べている。能動安定化を使用した場合、18 分間で 33 as RMS が達成されており、高速遅延ジッターを含めた全遅延安定性もアト秒時間分解過渡吸収測定に十分な 100 as 以下と見積もった。

第5章では、「水の窓」領域で発生した高調波パルスの特性評価についてまとめている。Heの最適圧力3.6 barにおいて、光子エネルギー500 eV以上を達成した。また、Heを用いたときの photon flux を400 eVにおいて、 $6.0 \times 10^5$  photons/s/1%bandwidthと見積もった。さらに、Ar、N<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、Tiを試料として、静的な吸収スペクトルを測定し、開発したビームラインのエネルギー分解能を評価した。特に、N<sub>2</sub>に対する結果から、光子エネルギー400 eVにおいて、 $E/\Delta E \sim 400$ と評価した。

第6章では、NO分子に対する超高速過渡吸収分光の実験結果とその解釈をまとめている。まず、プローブ光のパルス幅として、HHG過程における2種のトラジェクトリーの寄与を始めとし、パルス幅に影響を与える様々な効果を考慮することにより、安全な見積りとして820 as以下の単一アト秒パルスが得られていると評価した。過渡吸収分光スペクトルの解析からは、まず、アト秒時間分解電子ダイナミクスとして、赤外ポンプ光の高強度電場によってNO分子中に誘起された分極に伴う $2\omega$ 振動(周期2.7 fs)を観測した。また、フェムト秒分子振動ダイナミクスとして、NO<sup>+</sup>イオンの電子基底状態ポテンシャル上の振動波束を観測した。さらに、過渡吸収スペクトルに現れるサブピコ秒スケールのダイナミクスをポンプ光によって誘起された非断熱的分子配列に伴う吸光度の変化によって説明した。

第7章では、N<sub>2</sub>O分子に対する超高速過渡吸収分光の実験結果とその解釈をまとめている。基本的には、NO分子に対して観測されたのと同様の現象を観測したが、幾つかN<sub>2</sub>Oに特有の現象も観測された。まず、 $2\omega$ 振動に関しては、中心のNに関する振動の振幅よりも端のNに関する振動の振幅の方が大きいこと、即ち、分子内のサイト依存の効果を初めて観測した。また、フェムト秒分子振動ダイナミクスに関しては、中心のN原子に関する効果が支配的で、幾つかモデルがある中で、中性N<sub>2</sub>O分子の基底状態の振動波束の一部がN<sub>2</sub>O<sup>+</sup>イオンのポテンシャル上に励起されるLochfraß(点蝕)モデルによる解釈が有力と指摘した。さらに、サブピコ秒スケールの非断熱的分子配列に伴う吸光度の変化については、中性N<sub>2</sub>O分子の分子配列だけでなく、N<sub>2</sub>O<sup>+</sup>イオンの分子配列の効果の存在を超高速過渡吸収分光実験で初めて指摘した。

第8章では、本研究のまとめと今後の展開について述べている。なお、付録A～Eでは、A：X線回折格子の詳細、B：N<sub>2</sub>分子の過渡吸収分光、C：過渡吸収測定におけるノイズ源、D：400-nmポンプ光源の開発、及び、E：分子ADK(Ammosov-Delone-Krainov)理論について、簡潔にまとめている。

以上の様に本研究では、超高速過渡吸収分光実験システムを構築した上で、NO及びN<sub>2</sub>O分子を試料として過渡吸収分光実験を行い、アト秒科学の進歩に貢献する有益な知見を得た。本研究は、板谷治郎氏、石井順久氏らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって超高速過渡吸収分光用ビームラインの開発、実験、及び、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、審査委員全員が博士(理学)の学位を授与できると認める。