

論文の内容の要旨

高調波発生における偏光の選択則と伝搬の効果 の探究

(Experimental study on the polarization selection rules and propagation effects in optical harmonic generation)

小松原 航

1960年に T. H. Maiman が初めてレーザー光の発振に成功してからおよそ60年が経ち、非線形光学は著しい発展を遂げてきた。近年では、再生増幅や、2018年にノーベル物理学賞を受賞したチャープパルス増幅(Chirped Pulse Amplification)に代表される技術革新によって、高強度・高繰り返しのレーザーパルスが安定的に出力されるようになり、精密な高調波発生の実験が可能になってきた。

高調波発生では電場と非線形媒質の対称性が重要な役割を果たし、発生する高調波を決定する。このような入射電場の偏光と非線形媒質の対称性に基づく選択則は、系の詳細によらず対称性のみから導出することができるため非常に強力である。これまで、選択則を利用した高調波発生によって、通常では発生させることのできない円偏光の高調波を発生させることができ、分子のキラリティ測定や磁気二色性の実験などに幅広く応用されている。また、生じる高調波の次数から選択則を利用して非線形媒質の相や物性を評価しようという研究もなされている。

高調波発生を考えるうえでもう一つ重要な要素として位相整合が挙げられる。高調波発生はコヒーレントな現象であるため、各々の原子・分子から生じる高調波の位相を考えると、つまり、位相整合を考慮することが必須である。特に、Tight Focusing Limit(TFL)における高調波発生は Loose Focusing によるものとは性質が異なることが知られており、強度依存性や強度の伝搬距離依存性に特異な性質が生まれることが知られている。

これまで議論してきた対称性の選択則と位相整合は、高調波発生におけるフォトンスピンの角運動量保存則と運動量保存則に対応する。そして、高調波発生は関与したフォトン数によってその非線形過程が特徴づけられる。

高調波は高強度電場の中で運動する電子のダイナミクスを反映するため、物質中の電子

と電場の相互作用を正確に理解するためには、生じた高調波がどのような非線形過程を経て生じたか把握することは非常に重要である。しかしながら、近年の高調波実験の発展に伴い、偏光操作や二色励起等の入射電場の制御や、高調波の伝搬の影響によって、高調波発生過程が複雑になり、関与する光子を正確に同定することが困難になってきている。

そのため、本博士論文では、高調波発生過程において、偏光の選択則と位相整合、すなわち、スピン角運動量と運動量保存則を詳細に評価し、高調波発生に関与する光子の授受を解き明かすことを目的とする。

2章では、高調波発生における光子のスピン角運動量と運動量保存則がどのように実現されるのかを例証するために、非同軸入射による高調波発生を扱う。ここでは、入射電場を楕円偏光に調整した場合の高調波の回折を初めて観測し、高調波が回折するメカニズムを光子の保存則によって説明した後、高調波特有の強度依存性に基づいて、保存則が成り立つことを理論的に示すことに成功した。

3章では、固体高調波発生において関与している光子を正確に抽出するために、回転ドップラーシフトを利用して、高調波発生の非線形過程を分離する手法を提案し、実験的に初めて確かめることに成功した。

4章では、最初に TFL 条件における3倍波発生の理論を概観する。ここでは、先行研究に従い、3倍波の強度依存性が基本波強度の3乗ではなく5乗に比例することや、3倍波強度の伝搬距離依存性が集光点で最大値を取り、そのあと著しく減衰することを確認する。次に空気中での3倍波の強度依存性を測定し、位相整合による影響に加えて、自己収束やプラズマ発生に代表される非線形効果によっても強度依存性は変化することを実験的に初めて発見した。

5章では、TFL 条件において偏光制御した場合の高調波発生について議論する。ここでは、スピン角運動量保存則から予想される強度依存性は位相整合によって変更されることを理論的に示した後、実験や数値計算によって確認した。次に、スピン角運動量保存則と位相整合の効果が相互作用した場合、生じる高調波の強度がどのようなになるのか実験と数値計算によって確かめた。

6章では、本博士論文で得られた知見をまとめ、今後の展望について述べる。高調波発生を光子の保存則から考えることができる理由は、高調波がパラメトリックプロセス、すなわち反応の前後で関与した物理量が保存する過程であることに基づいている。2章で得られた知見は、高調波発生はまさにパラメトリック過程であるということを示している。3章で示した回転ドップラー効果を用いた高調波過程の分離や、5章で示した偏光の選択則と位相整合の効果の融合による高調波発生の実験結果は、光子の保存則を考えることで見通し良く、そして保存則を考えないと正確に解釈できないことを例証するものである。また、この保存則は高調波の次数、すなわち摂動・非摂動関係なく成立するものである。したがって、本研究の知見は、発生する各々の高調波においてどのような強度で発生するのかを予想できる指針につながると考えられる。すなわち、高調波発生過程において、偏光の選択則と位相整合、すなわち、スピン角運動量と運動量保存則を詳細に評価し、高調波発生に関与する光子の授受を解き明かすことが本質的に重要であることを示し、本博士論文の目的を果たしたと考えられる。本博士論文で得られた知見は、今後高調波発生における分光手法や高調波発生の完全制御に向けて活かされていくと期待している。