

審査の結果の要旨

氏名 園 直樹

固体を光励起したとき、その光の振動周期の中の応答を観測するサブサイクル分光は、強い電場パルスに対する固体の応答を調べる上で、また、周期電場の下での電子系の新規応答を探索する上で有効な手法である。最近、中赤外パルスを励起に用いたサブサイクル分光が行われるようになってきた。中赤外パルスは、高電場を印加できること、様々なフォノンを共鳴励起できることから、固体の新しい電子状態制御のための励起光としての利用が期待されている。中赤外パルスは、通常、マルチサイクルのパルスとして得られる。そこで、中赤外パルスを励起（ポンプ）光としてサブサイクル分光を行えば、周期外場のもとで形成されるフロッケ状態と呼ばれる新しい非線形励起状態を観測できる可能性がある。

以上の背景のもと、本研究では、中赤外パルスをポンプ光に用いたサブサイクル分光測定系の構築を行った。さらに、それを用いて、強相関係においてフロッケ状態の観測を目指した。強相関係は、光や電場に対して大きな応答を示すことが知られているが、これまでにそのフロッケ状態を観測した研究はない。本論文では、1次元モット絶縁体において、中赤外パルスでフォノンを共鳴励起したときに生成するフォノンドレスト状態と呼ばれるフロッケ状態の一種を観測した結果、および、2次元モット絶縁体において、非共鳴の条件で中赤外パルスを照射したときに生成する光ドレスト状態と呼ばれる典型的なフロッケ状態を観測した結果が述べられている。

本論文は6章からなる。第1章には、序論として、フェムト秒パルスを用いた通常のポンププローブ分光、および、中赤外パルスを用いたサブサイクル分光が概説されている。また、これまでのフロッケ状態に関する研究が紹介されている。

第2章には、サブサイクル分光系の構築が詳述されている。チタンサファイア再生増幅器の出力で励起した2台の波長変換器から得られる二つの近赤外パルスを非線形結晶に入射することにより、周波数が可変な中赤外パルスを発生させたこと、時間幅10フェムト秒以下の可視パルスと組み合わせることによって、周波数が28から40テラヘルツの中赤外パルスの電場波形の測定に成功した結果が述べられている。

第3章には、中赤外パルスの位相を安定化した結果が述べられている。中赤外パルスの電場波形を常に測定し、その位相を一定にするように光路長の揺らぎを補正するフィードバック制御を行った結果、位相の揺らぎを20時間で1フェムト秒以下に抑えることが可

能になったことが示されている。

第4章には、構築したサブサイクル分光系を用いて、一次元モット絶縁体である K-TCNQ (テトラシアノキノジメタン) において、フォノン励起によりフロッケ状態の一種であるフォノンドレスト状態が形成されることを実証した結果が述べられている。まず、分子間の電荷移動と結合した二つの分子内振動モードを中赤外パルスで共鳴励起したときの可視域の反射率変化に現れる振動構造の測定から、電子状態が、分子内振動の周波数の倍波、和周波、差周波の周波数で変調されることが示された。次に、反射率変化のプローブエネルギー依存性を測定したところ、観測される振動の強度が、分子内遷移のエネルギーを中心に分子内振動の周波数だけ低周波および高周波にシフトした二つのピークを示すことがわかった。理論解析の結果を参照することにより、この二つのピークが、一光子禁制な分子内遷移に関するフロッケ状態によるものであると結論された。

第5章には、二次元モット絶縁体である銅酸化物 $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ において、中赤外パルス励起により典型的なフロッケ状態である光ドレスト状態が形成されることを実証した結果が述べられている。この系を中赤外パルスで励起すると、反射率変化に電場の2乗の包絡線に沿った成分と電場の2倍の周波数で振動する成分が観測される。二つの成分のプローブエネルギー依存性を三次の非線形効果に基づいて解析することにより、励起子準位付近にフロッケ状態が形成されることが示された。

第6章には、本論文の総括が述べられている。

なお、第2章と第3章の結果は、山川貴士、北尾貴之、森本剛史、宮本辰也、貴田徳明、岡本博 (東京大学)、第4章および第5章の結果は、大瀧貴史、山川貴士、北尾貴之、酒井大輝、森本剛史、宮本辰也、岡本博 (東京大学) 各氏との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって研究を遂行したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上から、本論文は、位相安定な中赤外パルスを用いたサブサイクル分光系を構築した点、モット絶縁体において、中赤外パルスを用いた振動励起および電子励起により形成されるフロッケ状態の観測に成功した点から、物性科学の発展に大いに貢献するものである。したがって、博士 (科学) の学位を授与できると認める。

(1997字)