

論文審査の結果の要旨

氏名 金島 圭佑

本論文は、「Strong electric field processes in solids induced by an intense mid-infrared light source (高強度中赤外光源によって誘起される固体中の強電場過程の研究)」と題した実験研究を全 12 章からなる英文で記述したものである。第 1 章から 3 章までが第 I 部を構成しており、序論・理論的な背景・先行研究について述べられている。第 4 章から 8 章までが第 II 部を構成しており、高強度中赤外パルス光源の開発について述べられている。第 9 章から 11 章までが第 III 部を構成しており、第 II 部で開発した光源を用いた固体中の強電場過程に関する分光実験について述べられている。第 12 章は結言であり、本研究のまとめと今後の展望について述べられている。

高強度超短パルスレーザー技術の進展に伴い、高強度光電場と気相の原子・分子との極端な非線形相互作用に関する研究が近年活況を呈している。その一方で、固体との相互作用を対象とした研究はほとんど行われてこなかった。その理由は、広く用いられている高強度チタンサファイアレーザーの波長域が近赤外域(1.5 eV)にあるため、強い光電場を固体に印加すると、多光子イオン化に伴うプラズマ生成により、極めて短い時間スケールで固体が破壊されてしまうためである。したがって、固体と高強度光電場との相互作用を研究するためには、光子エネルギーが小さく、かつ、高強度の光パルスを用いる必要がある。また、トンネルイオン化を始めとする極端な非線形相互作用に伴う現象は、光電場の振動周期よりも短い時間スケールで起こることが知られている。このような現象の解明に当たっては、印加した光電場の 1 振動周期よりも短い時間スケールで時間分解分光を行うこと(サブサイクル分光)が重要となる。以上に述べた背景の下で、本論文では、高強度中赤外パルス光源の開発、及び、固体中の強電場過程という未踏の領域における新現象の発見とその解明を目的とした研究が行われた。

第 II 部では、固体中の強電場過程の研究を行うための、高強度中赤外パルス光源の開発と、それを用いたサブサイクル分光システムの開発について述べている。第 6 章では、二波長同時光パラメトリック増幅(dual-wavelength OPA)と名付けられた新手法の提案・実証実験、及び、dual-wavelength OPA を用いた 50 MV/cm を超える電場振幅をもつ搬送波一包絡線位相(carrier-envelope phase, CEP)が安定化された高強度中赤外パルス光の発生について述べている。Dual-wavelength OPA は、中赤外光を発生させるための差周波発生に寄与する離散的な 2 つの波長成分を、1 台の光パラメトリック増幅器で同時に増幅する手法であり、従来の手法に比べて長期的な CEP 安定性が良いことが実験的に示されている。第 7 章では、サブサイクル分光においてプローブ光として用いられる、時間幅 6.5 fs の可視パルス光発生実験について述べている。ガス媒質中でのフィラメンテーションによるスペクトル広帯域化と、誘電体多層膜鏡によるスペクトル整形・パルス圧縮とを組み合わせ

せた新手法を提案・実証しており、本手法によって滑らかで安定したスペクトルを持つ、分光応用に適した超短パルス光が得られることが示されている。第 8 章では、電気光学サンプリング法による中赤外電場波形の実時間測定について述べられている。非線形光学結晶として紫外から中赤外域まで透明な LiGaS_2 を用い、また、サンプリング光として 6.5 fs の可視パルス光を用いることにより、1周期が 30 fs に満たない中赤外パルス光の振動波形を完全測定することに成功している。

第 III 部では、高強度中赤外パルス光をセレン化ガリウム (GaSe) 結晶中に集光することで生じる非摂動的な現象の分光研究について述べている。第 10 章では、 GaSe 結晶中で発生した固体高次高調波の偏光解析実験について述べている。高次高調波スペクトルを、中赤外パルス光の偏光に対して平行な成分と垂直な成分とに分解して測定し、中赤外光の偏光方向と結晶軸との相対角に対する依存性を詳細に調べた。その結果、高調波スペクトルの相対角依存性には、結晶の対称性を反映した周期変調が観測された。非線形光学テンソルによる解析を行い、観測された相対角依存性は摂動的な非線形光学の枠組みでは説明できないことを明らかにした。また、2 次元的なバンド分散のなかを運動する電子による高調波発生モデル計算を行い、観測された相対角依存性の特徴を再現することに成功している。以上の実験および解析の結果から、固体高次高調波の発生過程においては、結晶の 2 次元的なバンド分散の形状が重要となることを明らかにした。第 11 章では、高強度中赤外パルス光によって誘起された GaSe 結晶の吸収変調を、サブサイクル時間分解分光によって測定した結果について述べている。印加電場が 10 MV/cm に満たない領域では、Franz-Keldysh 効果の特徴が顕著に観測されたのに対して、10 MV/cm を超える電場が印加された際には、中赤外電場の振動に追従した極性応答が観測されたことを報告している。

以上のように、本研究では、新手法による高強度中赤外パルス光源の開発に成功したことに加えて、開発した光源を用いた分光測定によって固体中の強電場過程に関する新たな知見を多数得ている。特に、固体高調波の偏光解析実験により、固体高調波発生において 2 次元的なバンド分散を考慮する必要性を初めて示したことは、高調波発生過程に関する理解を大きく前進させた点で大きな意義をもつ。また、サブサイクル時間分解分光による Franz-Keldysh 効果の観測や、中赤外電場に追従する極性応答の観測は、本研究において初めてなされたものであり、固体中の強電場過程の先駆的な研究として高く評価される。なお、本論文の研究内容は指導教官らとの共同研究であるが、実験の計画と遂行、結果の解析と考察など、研究の大部分は論文提出者が主体となって行ったものと判断される。

以上を持って、論文審査委員会は全員一致で博士(理学)の学位を授与できると認める。