

論文審査の結果の要旨

氏名 湯本 郷

六方格子構造を形成する単層炭素原子からなるグラフェン中の電子は、低エネルギー領域で線形なエネルギー分散を示すことから無質量ディラックフェルミオンとみなすことができる。この様なグラフェンに垂直に強磁場を印加すると、通常の2次元電子系中の等間隔ランダウ準位とは異なり、テラヘルツ (THz) ~ 中赤外領域に非等間隔なランダウ準位からなるエネルギースペクトルが形成される。したがって、ランダウ量子化されたグラフェンは、磁気光学応答の格好の研究対象である。また、強い磁場中に置かれたグラフェンは、ランダウ準位間の光学遷移双極子モーメントが大きいことが特徴であり、実験的に発生可能な電場強度でもラビ周波数が光パルスのキャリア周波数を超える様な極端非線形光学領域での物性研究が可能となる。論文提出者は、強い磁場中に置かれたグラフェン試料を用い、THz ポンプ-THz プローブ磁気光学分光実験を行ってランダウ量子化した単層グラフェンの THz 帯超高速非線形光学応答を明らかにする研究を行った。

本論文は英文で全7章からなる。第1章は序論であり、無磁場下でのグラフェンの大きな光学非線形性と磁場中でのグラフェンの磁気光学分光について解説した後、本研究の目的と論文の構成を説明している。第2章では、グラフェンの基本的な性質を電子状態の性質、ディラック電子のランダウ量子化、非等間隔ランダウ準位の光学的性質の順に解説している。第3章では、偏光分解 THz 分光の原理について解説している。まず、THz 時間領域分光 (THz-TDS) について、THz パルスの発生法と検出法について説明した後、THz-TDS の実験系について説明している。次いで、THz 磁気光学分光についてファラデー回転と偏光状態の記述法、グラフェン中のファラデー回転、偏光状態の検出法の順に説明している。第4章では実験の詳細について、説明している。まず、グラフェン試料とレーザー光源について説明し、予備的実験として位置づけている単一 THz パルスの透過実験でファラデー回転角と楕円率を測定する方法について述べた後、本研究のメインである THz ポンプ-THz プローブ磁気光学分光について、実験系の詳細と THz ポンプ-THz プローブ信号の測定法を説明している。

第5章はランダウ量子化したグラフェン中での超高速非線形 THz 応答の観測と題し、本研究の主要な結果をまとめている。まず、単一 THz パルスの透過実験では、ファラデー回転角と楕円率のスペクトルを測定し、入射 THz パルスの電場強度の増大と共に、ファラデー回転が抑制されること、特に THz パルスの電場強度が 25 kV/cm でほぼ完全にファラデー回転が消失する様子を観測した。そこで、この現象の超高速ダイナミクスを明らかにするために、THz ポンプ-THz プローブ磁気光学分光実験を行った。その結果、磁場強度 3 テスラ、ポンプ THz パルスの電場強度 45 kV/cm の励起下で、ファラデー回転の超高速な抑制と回復が起こることを初めて観測した。さらに、右回り及び左回り円偏光のプ

ローブ THz パルスに対するポンプ光誘起差分伝導率スペクトルを評価したところ、非線形 THz ファラデー回転現象が、右回り及び左回り円偏光に対して、それぞれ absorption bleaching と induced absorption によって起こることも明らかにした。この発見は、高強度非共鳴ポンプ THz パルスがキャリア分布の激しい変化を引き起こし、ランダウ準位の著しい上昇が伝導帯だけでなく、フェルミエネルギーよりもずっと低い価電子帯でも起こっていることを示している。

第6章では、第5章で観測された非線形 THz 応答のミクロなメカニズムを解明するために、非共鳴過程を対象としているため回転波近似を用いずに密度行列要素に対するマスター方程式を用いて行った数値シミュレーションの結果について論じている。実験結果から予測されるポンプ THz パルスによって誘起されたキャリア分布の著しい再配分を再現することに成功した。また、ランダウ準位間のマクロな分極が強く駆動される結果、フェルミエネルギーから離れたランダウ準位間の分極も振動し始めることを見出した。さらに、マルチパルス THz パルスの照射により高調波が発生する可能性についても指摘した。この場合、非摂動論的光-物質相互作用を固体物質で探究できる可能性がある。続く第7章では、本研究のまとめと前章の最後で議論した高調波発生が今後の課題となることを指摘している。

以上の様に、本研究は単層グラフェンを試料とする極端非線形光学領域での光物性研究を開拓するものと位置づけられ、実際に複数の新しい知見を得ることに成功している。本研究は、島野亮氏、松永隆佑、及び、グラフェン試料を作成した日比野浩樹氏（関西学院大学）との共同研究ではあるが、論文提出者が主体となって実験、データ解析、数値シミュレーション、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。