

# 論文審査の結果の要旨

氏名 加藤 康作

本論文は、「Observation of the phase differences of near-threshold high-order harmonics generated in atoms and molecules (原子および分子から発生する高次高調波のイオン化限界近傍における位相差の観測)」と題した実験研究を6章からなる英文で記述したものである。第1章から3章で序論・背景・実験手法を述べた後、4章から5章にかけて実験結果とその考察が述べられ、第6章で本研究のまとめと今後の展望を述べている。

高強度超短パルスレーザー光を原子や分子に集光して得られる高次高調波の発生原理は、高強度光電場下でのトンネルイオン化、連続準位中での電子波束の加速、および再結合、という三つの過程に基づくものとして広く理解されている。この「3ステップモデル」は、強電場近似(strong-field approximation, SFA)に基づいており、高次高調波の特徴をよく説明することが知られている。また、SFAに基づく定式化によって、分子軌道形状を高次高調波スペクトルから再構成する分子軌道イメージングが実現している。しかしSFAはいくつかの仮定を伴う近似理論であるため、その適用範囲は必ずしも明確ではない。SFAで説明できない未解明の現象を見いだすことは、高次高調波発生過程に関するより深い理解に繋がり、より精密な分子軌道イメージングへの展開が期待出来る。本論文では、SFAを適用可能な高次高調波の光子エネルギー範囲がイオン化ポテンシャル以上であることに着目し、光子エネルギーがイオン化ポテンシャルよりわずかに大きい領域での高次高調波のスペクトル位相の精密測定を通してSFAが成り立たない現象の探索を行った。

具体的には、第4章で示されるように、希ガス原子と分子を用いて高次高調波発生実験が行われ、二波長イオン化における光電子のサイドバンド計測(RABBIT法)によって隣接する $(2n-1)$ 次と $(2n+1)$ 次の高次高調波間の相対位相が決定された( $n=6\sim 9$ )。続いて第5章では、測定された高次高調波の相対位相と系統的な誤差の起源に関する議論が行われた。まず、SFAで予想される高次高調波の相対位相との比較によって、サイドバンドの次数が大きくなるにつれて相対位相が増加する傾向が説明された。相対位相のオフセットについて実験日による違いが見られるため、高次高調波を発生するガス媒質のプラズマ分散とレーザー光のミスアライメントの影響についてオーダー評価を行い、両者が

観測された位相オフセットの原因となりうることが示された。以上の結果を考慮した上で、Ar 原子と CO<sub>2</sub> 分子においてイオン化閾値に最も近い 11 次と 13 次の高次高調波の位相差が SFA で予想される値と有意に異なることが示された。一方、N<sub>2</sub> 分子に関しては、SFA で予想される値に近い傾向が見られた。SFA では記述できない二つの過程として、クーロンポテンシャルを考慮した電子波束の伝播および再結合に伴う位相シフトの影響を理論的に見積もったが、観測されたスペクトルシフトを説明するには至らなかった。

以上のように本研究では、原子あるいは分子で発生するイオン化閾値近傍の高次高調波に関して、二光子イオン化を利用した光電子分光に基づき詳細なスペクトル位相測定を行い、Ar 原子と CO<sub>2</sub> 分子に関して従来の理論的枠組みでは説明できない特異な位相差が存在することを明らかにした。その起源について、従来の理論的枠組みだけでなく、それを越えた理論の検討も多角的に行い、既存の枠組みでは説明できない新しい物理過程の存在が示唆されるという結果が得られた。この成果は、高次高調波の位相測定が高次高調波発生過程の検証に非常に適した手段であることを示しただけでなく、従来の高次高調波発生に関する理論的枠組みをさらに前進させる可能性を含んでいる点で、その意義は大きい。よって本論文の内容は、博士論文として十分評価に値すると判断される。なお、本論文の内容の一部は、英文雑誌に投稿予定である。また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、研究の大部分において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た。