

論文審査の結果の要旨

氏名 酒見 悠介

本論文は5章からなる。第1章では序論、2章では理論的な背景を述べた後、3章と4章で実験結果とその考察を述べ、5章でまとめを述べている。

第1章は序論である。高強度フェムト秒レーザーパルスが引き起こすトンネルイオン化や高次高調波発生において、分子軸とレーザー電場の向きがなす角度に対する高調波スペクトルやイオン化確率の依存性は、分子軌道の形状と密接に関係している。しかし、その詳細な関係性は明確には分かっておらず、実験と理論、異なる理論、異なる実験の間で不一致が見られることもめずらしくない。従来の実験とは違った解析をおこなったり、違った性質を持つ分子を対象としたりすることで、高次高調波発生やトンネル電離過程の物理をより深く理解し、正確な分子軌道イメージングへと発展できることが期待される。本論文では、搬送波包絡線位相(carrier-envelope phase, CEP)が制御された超短パルスが持つ電場の正負非対称性、極性分子が持つ反転非対称性に着目することで、高強度フェムト秒レーザーパルスと分子の相互作用について新しい情報が得られるという発想に基づき、配列した分子からの高次高調波発生の CEP 依存性、及びOCS分子のトンネルイオン化の配向依存性を研究するという目的が述べられている。

第2章では、本研究の理論的な背景について述べている。原子のトンネルイオン化については、Ammosov, Delone, Krainov によるいわゆる ADK 理論、分子のそれについては、分子軌道 ADK 理論と弱電場漸近理論、高次高調波発生については Lewenstein モデルが概説されている。

第3章では、超短パルスレーザーの CEP が、配列分子からの高次高調波スペクトルに与える効果を調べ、そのメカニズムを考察している。偏光と平行及び垂直に配列した N₂ 分子、平行およびランダムに配列した CO₂ 分子からの高調波スペクトルを測定した。スペクトルのカットオフ領域にはフリッジのような構造があり、これが CEP に依存して移動する様子が見られた。これをフーリエ変換して解析したところ、ピークの位置と、ピークの位相の CEP 依存性が分子の種類や配列に依存しないことが分かった。高次高調波アト秒パルス列の簡単なモデルを使うことで、上記の依存性は、発生したアト秒パルス間のチャープ (ハーモニックチャープ) に起因することを明らかにした。高調波スペクトルの CEP

依存性は過去にも研究されているが、フリッジ構造の CEP 依存性とハーモニックチャープを直接結びつけたのは初めてで、FROG-CRAB や RABBIT といった従来法に比べて簡単にハーモニックチャープを測定できる可能性も示唆している点で、有意義な成果である。

第4章では、極性分子である OCS のトンネルイオン化の配向依存性について述べている。OCS を楕円偏向パルスでトンネルイオン化し、光電子とイオン後の解離で生成するイオンの運動量をコインシデンス測定することで、分子座標系で見た光電子角度分布を測定している。この測定を、初めて全ての解離チャンネルについておこなった。その結果、 S^+ 、 CO^+ 、 CS^+ と関連した電子は O 原子の側から出やすいのに対し、 O^+ と関連した電子は S の側から出やすいという興味深い現象を発見した。 O^+ が生成する解離チャンネルの研究自体、おそらく初めてである。実験結果を明確に説明するにはいたらなかったが、異なる分子軌道からのトンネルイオン化、イオン化後の多光子励起が複雑に関与していることが示唆されている。

第5章は結論であり、本論文のまとめと展望が述べられている。

以上のように本研究では、超短パルス電場の CEP に依存する正負非対称性や、OCS 分子の反転非対称性に着目し、分子配列技術や電子・イオンコインシデンス測定技術を使って、高次高調波のチャープとスペクトル構造の関係、トンネルイオン化の配向依存性と解離チャンネルの相関等について、新しい知見を得ることに成功している。本論文の成果は、トンネルイオン化や高次高調波発生の測定が、強レーザー場と分子の相互作用過程や分子軌道の形状を調べる手段として適していることを示し、その発展を促進する可能性を持つ点で、またこれらの現象を記述する理論の発展に寄与する可能性を含む点で、その意義は大きい。

なお、本論文第3章は、嶺本紳一郎、加藤康作、酒井広文との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験条件の最適化、測定及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。また、第4章は、嶺本紳一郎、酒井広文との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験の考案、測定系の設計・開発・構築、測定及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。