

京都大学	博士 (理学)	氏名	永井 恒平
論文題目	Mid-infrared Non-perturbative Nonlinear Optics in Atomically Thin Semiconductors (原子層半導体薄膜における中赤外領域の非摂動非線形光学)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>高強度の光電場が固体中の電子と非摂動的に相互作用することで出現する新たな電子状態は、物質の新しい機能性や超高速な量子制御法の開拓につながることから盛んに研究が進められている。特に、中赤外域の光子が可視や紫外域の光子に変換される高次高調波発生は、非摂動論的な電子応答を研究するための最も単純かつ強力な手段であり、多くの半導体において観測されてきた。しかし、高強度な光電場下においては、高エネルギーな電子状態が関与するとともに、1電子のコヒーレントなダイナミクスだけでは記述できない多体相互作用が存在し、対象物質特有の異方性やバンド構造の特異性などと相俟って、高次高調波発生メカニズムの解明を難しくしている。そのような状況下で、高強度光電場下の固体の電子状態の性質を一般的に支配する物理を探求することが課題となっている。</p> <p>本研究ではそのような電子状態の性質を一般的に記述しうる概念として動的対称性に注目した。動的対称性は空間と時間の対称操作の積で定義される対称性であり、高次高調波発生メカニズムの偏光選択則を一般的に記述しうる概念として期待されている。しかし、固体中では高強度光照射下でのインコヒーレントキャリアの蓄積やそれに伴う多体効果が時間並進対称性を崩す可能性があるため、動的対称性の有効性は非自明であった。</p> <p>本研究では固体における動的対称性の有効性を理解するために2つの実験を行った。実験においては微視的な高次高調波発生メカニズムとは独立におこる伝搬効果の影響をさけるため、薄膜材料である単層遷移金属ダイカルコゲナイドを実験試料として用いた。まず、高次高調波発生と類似の現象である半導体中の高次サイドバンド発生メカニズムの円偏光および直線偏光選択則を実験的に決定した。この選択則を説明するために、高次サイドバンド発生を「フロケ系におけるラマン散乱」とみなす新たな物理的描像を提案し、理論的に選択則が包括的に理解できることを示した。この結果は動的対称性が高強度光で駆動された半導体の性質をよく記述する概念であることを示している。</p> <p>次に、パルス幅の中に蓄積されたインコヒーレントなキャリアが高次高調波発生に与える影響を調べた。そのために、高次サイドバンド発生と同じ実験セットアップを用いて、インコヒーレント光キャリアによる高次高調波発生強度の増減を次数ごとに明らかにした。これを理論的に検討するために、半導体ブロッホ方程式をベースとした数値計算を行ない、実験結果との比較を行った。その結果、得られた光キャリアドーピング効果を再現するためには、電子散乱の効果も考慮する必要があることがわかった。これは固体における高次高調波発生メカニズムを理解するためには、これまで重要視されてこなかった多体相互作用の一つである電子散乱の寄与が重要であることを示している。さらに、数値計算の結果から、電子散乱の効果は高強度光電場下の時間並進対称性を崩すほどは大きな効果ではないこともわかった。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

本論文では、高強度の光電場と固体の電子系の相互作用に関する研究を高次の高調波発生やサイドバンド発生に着目して進めている。これまで、高強度の光電場を物質に照射すると、摂動論の理解を超えた様々な非摂動論的電子ダイナミクスが現れることが明らかになってきた。このような非摂動論的な光学現象を一般的に記述しうる概念が動的対称性である。動的対称性は周期駆動系であるフロケ系に特有の対称性として理論的に定式化され、実験で得られた原子気体における高次高調波発生の偏光選択則の理解に適用できることが示された。しかし、高強度の光電場下の固体の電子系に対しての実験的検証例はほとんどなかった。本論文では半導体における動的対称性の有効性を検証するために2つの実験を行っている。前半では高次サイドバンド発生、後半では高次高調波発生という非摂動論的光学現象に関する実験を行っている。試料として単層の遷移金属ダイカルコゲナイドを用いることで、伝搬効果を取り除いてこれらの現象に関してその微視的な理解を可能にしている。

動的対称性はこれまで原子気体における高次高調波発生を舞台に研究された例があるが、本論文ではそれを世界で初めて高次サイドバンド発生に対する理解に展開している。実験においては、励起光および発生するサイドバンドを精密に偏光制御することによって、高次サイドバンド発生の円偏光選択則と直線偏光選択則を系統的に決定した。また理論的に選択則を導くために、高次サイドバンド発生をフロケ系に対するラマン散乱という物理的な描像を提案し、動的対称性に基づいて選択則を導出した。この理論的に導かれた偏光選択則は実験的に観測された偏光選択則と完全に一致しており、動的対称性の概念が高強度光下の半導体において有用であることを示している。

本論文の後半では、上記で示した対称性を阻害しうる影響として、光照射中の半導体におけるインコヒーレントキャリアの蓄積や、多体効果に着目している。これらを調べるために、近赤外パルスによりインコヒーレント光キャリアを作った後に高強度中赤外光を照射することで高次高調波発生における光キャリアドーピング効果を調べた。この効果を調べた2つの先行研究においては、どちらも光キャリアをドーピングしたことによる高調波強度の減少を観測しており、それらの起源を別々の多体効果のメカニズムから理解していた。本論文では実験と数値計算を組み合わせることで、複数のメカニズムを比較可能な系統的な解析を行っている。その結果、これまでの高次高調波発生の実験においてはあまり重要視されてこなかったインコヒーレントキャリアによる多体効果が実験の再現に不可欠であることを明らかにした。特に、励起誘起位相緩和過程が最も重要であることを明らかにした点は高く評価される。さらに、インコヒーレントキャリアの生成は高強度中赤外光の照射中にも起きていることを数値計算から明らかにした。このインコヒーレントキャリア生成が時間並進対称性に影響するかを数値計算によって評価し、この効果は動的対称性を崩すほどの影響は与えていないことを指摘している。

以上のように、本論文では高強度光駆動下での半導体における動的対称性の概念の有用性を示した。これは対称性の概念に基づいた半導体における非摂動論的な光学現象の一般的理解や今後の物性の量子制御への展開が期待される重要な成果である。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和4年1月21日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 2022 年 4月 1日以降