

(続紙 1)

| | | | |
|---|---------------------------|----|--------|
| 京都大学 | 博士 (理学) | 氏名 | 中川 耕太郎 |
| 論文題目 | 固体からの高次高調波発生におけるバンド内遷移の効果 | | |
| (論文内容の要旨) | | | |
| <p>近年、レーザー技術の進歩により物質に強電場を印加することができるようになり、新しい非線形光学現象が観測されるようになった。固体からの高次高調波発生はその一つであり、発生メカニズムを解明するために精力的に研究が行われている。電子のバンド間の遷移とバンド内の遷移が重要であることが理論的に示唆されているが、実験的に二つの遷移の寄与を切り分けて議論する研究はなされていなかった。本論文は、固体のバンド内電子遷移に注目し、固体高次高調波発生における役割を実験的に明らかにする研究を行ったものである。</p> <p>第1章では、高次高調波発生に関するこれまでの研究の流れを簡潔にまとめ、本研究の目的を述べている。高次高調波発生が初めて観測された気体において、高次高調波の特性や発生メカニズムについて紹介している。次に固体からの高次高調波発生の特性について紹介し、気体からの高次高調波発生と異なる応答を示すことを述べている。固体からの高次高調波発生を議論するうえで重要な半導体ブロッホ方程式について紹介し、バンド内遷移とバンド間遷移の定義について述べている。</p> <p>第2章では、実験に使用したナノ構造物質である半導体ナノ粒子とグラフェンの基礎特性と励起光である中赤外光やテラヘルツ (THz) 光の発生方法についてまとめている。特に、中赤外光発生に関して、自作の光パラメトリック増幅器を用いたシステムについて、その仕組みや性能を詳しく紹介している。</p> <p>第3章では、半導体ナノ粒子からの高次高調波発生の実験結果について説明している。量子閉じ込め効果により、半導体ナノ粒子では電子準位のエネルギー間隔が開き、バンド内遷移の抑制が期待される。CdSeナノ粒子からの高次高調波発生効率の粒径依存性を測定し、3 nm以下の粒径のナノ粒子においては粒径の減少とともに高調波発生効率が減少することを見出した。また、一次元モデルを用いて、離散化した電子準位と高次高調波発生効率の関係を議論した。半導体ナノ粒子を用いてバンド内遷移を制御できることを実験的に示し、固体からの高次高調波発生において、その発生効率がバンド内遷移によって決定されることを示した。</p> <p>第4章では、ポンプ・プローブ測定を用い、THz光によりバンド内の電子のエネルギー分布を変調したグラフェンからの高次高調波発生を議論している。THz光照射により、偶数次 (6次) の高調波が発生し、奇数次 (5次・7次) の高調波が減少することを示した。THz光と高調波発生用の中赤外光の遅延時間依存性を測定し、偶数次高調波の強度がTHz電場に追従することから、偶数次高調波の発生はTHz電場による反転対称性の破れに起因することを明らかにした。奇数次の高調波の減少はTHz光の通過後も継続し、奇数次の高調波強度の減少がホット電子の生成と緩和に起因していることを示した。バンド間遷移の抑制が奇数次の高次高調波発生を減少させることを議論している。直線偏光と楕円偏光の中赤外光励起下での奇数次高調波の減少率を比較し、楕円偏光励起下では低次のバンド間遷移が支配的であり、バンド間遷移とバンド内遷移の結合がグラフェンからの高次高調波発生において重要であることを明らかにした。</p> <p>第5章では本研究から得られた結論と今後の展望を述べている。</p> | | | |

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

固体からの高次高調波発生が観測されて以降、その高効率化を目指して発生メカニズムの解明が精力的に行われている。気体とは異なる高調波特性から、固体ではバンド構造を反映した発生メカニズムであることが示唆されており、電子のバンド間遷移とバンド内遷移の重要性が理論的に議論されている。特に固体固有のバンド内遷移が高次高調波発生にどのように寄与するのかを実験的に明らかにする必要がある。本論文では、量子閉じ込め効果による離散的な電子準位をもつ半導体ナノ粒子と線形分散でゼロギャップの電子構造を持つグラフェンのナノ構造物質を用いて実験的研究を行い、固体からの高次高調波発生とバンド内遷移との関係を明確にした。

半導体ナノ粒子は、量子閉じ込め効果によって伝導帯の電子準位が離散化し、離散化した準位間のサブバンドギャップエネルギーが粒径とともに変化する。サブバンドギャップエネルギーの増大とともにバンド内遷移が抑制されることが期待され、半導体ナノ粒子はバンド内遷移の役割を調べる上で理想的な物質である。CdSe ナノ粒子からの高次高調波発生を観測し、その発生効率が粒径3 nm以下では急激に減少することを示した。CdSeナノ粒子より有効質量が大きいCdSナノ粒子では、高調波発生効率が減少する粒径がより小さくなることを示した。この結果はサブバンドギャップエネルギーの増大がバンド内遷移を抑制し、高調波発生効率の減少が起こることを示している。さらに一次元モデルの計算もこの振る舞いを再現し、固体からの高次高調波発生におけるバンド内遷移の重要性を示すことに成功した。

次に、グラフェンを用いた実験ではテラヘルツ (THz) 光の照射でホットな電子を生成し、これによりバンド間遷移を抑制し、高調波強度を操作する実験を行った。THz 光照射によって中赤外光励起により発生する奇数次の高調波強度が減少することを観測した。また、楕円偏光の中赤外光励起では直線偏光励起と比べてTHz光照射由来の奇数次の高調波の減少が大きいことを示した。THz光と中赤外光の遅延時間を変化させた実験と中赤外光とTHz光の偏光角度を変化させた実験から、奇数次の高調波強度の減少がホットな電子分布に由来することを示した。電子温度を変化させた計算から、奇数次高調波の減少と楕円偏光励起下での減少の増大を再現した。以上から、奇数次高調波の減少は、電子準位がホットな電子により占有されることによるバンド間遷移の抑制に起因し、固体高次高調波発生においてバンド内遷移とバンド間遷移の結合が重要であることを明確にした。

以上のように、本論文では固体からの高次高調波発生におけるバンド内遷移の役割を、半導体ナノ粒子とグラフェンを用いて明らかにすることに成功した。本論文の成果はナノ構造物質や外場による固体からの高次高調波発生効率の制御手法を確立したものであり、今後の当該分野の研究発展に大きく寄与するものである。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6年1月18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、合格と認められた。

要旨公表可能日： 令和6年 6月 25日以降