

学 位 審 査 報 告 書

(ふ り が な) 氏 名	ムケシュ ジェワリヤ Mukesh Jewariya
学位 (専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 号
学位授与の日付	平成 年 月 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理学研究科 物理学・宇宙物理学 専攻
(学位論文題目) Resonant Excitation of Large Amplitude Anharmonic Vibrations of Amino Acids Micro Crystals by an Intense Monocycle Terahertz Pulse (高強度モノサイクル THz パルスで駆動されたアミノ酸結晶の非調 和振動)	
論 文 調 査 委 員	(主査) 中 暢子 准教授 高橋 義朗 教授 松田 一成 准教授

理 学 研 究 科

(続紙 1)

京都大学	博士 (理学)	氏名	Mukesh Jewariya
論文題目	Resonant Excitation of Large Amplitude Anharmonic Vibrations of Amino Acids Micro Crystals by an Intense Monocycle Terahertz Pulse		
(論文内容の要旨)			
本論文は、2 準位系のモデルが有効であった電子系とは異なる非線形光学過程が期待される大きな非調和性をもつフォノンに着目し、その非線形分光を可能にする高強度テラヘルツ光の発生をおこなうとともに、アミノ酸単結晶において実際に非線形吸収過程を観測したものである。傾いたパルスフロントをもつフェムト秒レーザーをもちいて、LiNbO₃においてチェレンコフ型の位相整合過程により 200kV/cm のピーク電場強度を持つモノサイクルテラヘルツパルスの発生に成功した。また、非線形吸収においては、フォノン吸収のピーク近傍で吸収飽和、低エネルギー側で吸収増加を見出した。密度行列をもちいた解析から 20 段にもおよぶ「階段かけのぼり過程」が生じていることを指摘した。 本研究では、固体や液体の相転移に関連したソフトな振動モードを励起することが可能なテラヘルツ光（周波数：0.1 から 10 THz、1THz = 10¹² Hz）をもちいた。非線形光学効果を観測するためには高強度のテラヘルツ光が必要なため、大きな 2 次の非線形光学定数をもつ LiNbO₃ 結晶によるテラヘルツ光発生をおこなった。LiNbO₃ 結晶は同軸の位相整合条件をみたさないために、近赤外のフェムト秒レーザーを照射すると、集光することが難しいチェレンコフ型のテラヘルツ光発生が起きてしまう。本研究では、これを回避するためにフェムト秒レーザーのパルスフロントをチェレンコフ角度になるように空間的に傾け、それを LiNbO₃ 結晶に照射することで高強度のテラヘルツ光を発生することに成功した。発生されたチェレンコフ光は指向性を有しており、サンプル位置で 200 kV/cm の電場強度に達した。変換効率として 9×10^{-4} を得ており、量子効率 30% に対応している。高い量子効率を理解するために、発生したテラヘルツ光のスペクトルと LiNbO₃ 結晶を透過した励起フェムト秒レーザーのスペクトルを詳細に調べた。その結果、励起レーザー強度を増加させると、ある強度で両方のスペクトル幅が増大し、同時にテラヘルツ光のピーク強度が非線形に増加することを見出した。これを解析するために、非同軸のパラメトリック増幅過程がカスケード的におきる光学過程を仮定し、励起光強度を定性的に説明する方程式を導いた。 次に、発生した高強度テラヘルツ光をもちいて、アルギニン微結晶を含むペレット試料の透過スペクトルを測定した。まず、低強度極限で透過スペクトルの温度依存性を測定し、10% 以上のピークシフトを観測した。これから、アルギニン分子間振動モードの振動数や非調和パラメータを決定した。高強度のモノサイクルテラヘルツ光を用いることで、アルギニン分子間振動モードが吸収飽和すること、低エネルギー領域において顕著な吸収増加が現れることを見出した。これらの結果は、電場強度が強いときのみを観測されることから、アルギニン分子間振動モードの非調和性に起因することがわかった。この結果を説明するために、多準位系の密度行列の時間発展を回転波近似を用いずに解いた。その結果、得られた非線形透過スペクトルは、非調和ポテンシャルの量子準位に熱分布した振動子が高強度のテラヘルツモノサイクルパルスにより高い準位に励起された結果であり、量子準位数として 20 段にも及ぶ「階段駆け上がり」がおきていると結論した。			

(論文審査の結果の要旨)

テラヘルツ光は 0.1 から 10 THz ($1\text{THz} = 10^{12}\text{ Hz}$) の周波数帯の電磁波であり、固体や液体の相転移に関連したソフトな振動モードを励起することが可能である。特に、大振幅振動の励起は光誘起相転移や光化学反応の素過程の理解を進める上で重要である。多くのソフトモードは本質的に非調和であることから、大振幅の振動をスペクトルの変化として観測できる可能性がある。本論文では、高強度モノサイクルテラヘルツ光を用いて非線形透過スペクトルを測定することにより、アミノ酸単結晶の分子間振動モードにおいて 20 段にも及ぶ「階段駆け上がり」と大振幅振動を世界で初めて観測した。

非線形光学効果を観測するためには高強度のテラヘルツ光が必要である。光整流過程によるテラヘルツ光発生においては、 LiNbO_3 結晶のような大きな 2 次の非線形光学定数をもつ結晶が望ましいが、 LiNbO_3 結晶では通常と同軸の位相整合条件を満たさない。この結晶に近赤外のフェムト秒レーザーを照射するとチェレンコフ型のテラヘルツ光発生が起きてしまい、集光が困難であった。本論文においては、これを回避するために、フェムト秒レーザーのパルスフロントをチェレンコフ角度になるように空間的に傾けて LiNbO_3 結晶に照射することで高強度のテラヘルツ光を発生することに成功した。発生されたチェレンコフ光は指向性を有しており、量子効率として 30 % を達成した。この結果は既に他のグループによって報告されているが、以下に述べるようにテラヘルツ光のスペクトルの強度依存性を精密に調べて、発生メカニズムを明らかにした点が大変高く評価される。申請者らはテラヘルツ光と LiNbO_3 結晶を透過した励起光のスペクトルはある閾値の励起光の強度を境に大きく変化し、後者は 10 THz もの大きなスペクトルシフトをもつことを明らかにした。このスペクトル変化と高い量子効率を説明するために、テラヘルツ光のパラメトリック増幅と励起光のパルス圧縮がカスケード過程として高効率に起きるモデルを提案している。このモデルは結果の定性的な説明に成功しており、 LiNbO_3 結晶における高効率テラヘルツ光発生の理解が大きく前進したことは意義深い。

論文の後半においては、大振幅の非調和振動を観測するために、アミノ酸の一種であるアルギニン結晶の分子間振動モードを対象に非線形分光をおこなっている。まず、吸収スペクトルの温度変化から、非調和ポテンシャルを決定している。次に、高強度のテラヘルツ光を用いて、非線形透過スペクトルの観測をおこない、吸収ピークの飽和と低エネルギー領域での吸収増加を明らかにした。テラヘルツ光をもちいた非線形分光は半導体のキャリア系に関する報告は数多く存在するが、振動系に関するものはほとんど存在しない。その意味で、この結果は非常に新しいものである。この結果を解析するために、密度行列をもちいて非調和振動子の量子準位間の遷移および吸収スペクトルを計算し、ほぼ実験を再現することに成功している。さらに、この解析からモノサイクルテラヘルツパルスによって量子準位数として 20 段にも及ぶ「階段駆け上がり」が誘起されていると結論した。この解析は、通常の電子系の 2 準位系でおこなわれている回転波近似を使わない手法で計算されており、今後の同様の研究の先駆けとなるものである。「階段駆け上がり」は中赤外域でのガス分子の振動モードでも観測されているが、数サイクル中赤外パルスの帯域から 2-3 段がせいぜいであった。本論文で報告されている多段励起は高強度モノサイクルテラヘルツ光によって初めて可能になったものである。

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た。また、平成 22 年 6 月 16 日論文内容とそれに関連した口頭試問を行った。その結果合格と認めた。