

論文審査結果の要旨

氏名 金井恒人

本論文は、高次高調波発生過程における量子干渉現象を利用して、分子軌道の対称性や幾何学的形状の情報を得られることを、実験と理論の両面から検証したものであり、6章から構成されている。

第1章では高強度超短パルス光による高調波の発生と、そのメカニズムである3ステップモデル、それとは独立に発達してきた分子の配列 (alignment) 配向 (orientation) の技術についてレビューしている。第2,3章では、本研究の基礎となるレーザー電場による分子の配列、配向技術の原理について、理論的な考察を加えている。まず第2章では定常静電場と周波数が2倍異なる2つのレーザー電場を組み合わせた場合について一般的な取り扱いを示し、時間依存性のあるシュレディンガー方程式を解いて、断熱近似の範囲で、分子の感じるポテンシャルの角度依存性を求め、1から8Kの低温において、現実的なレーザー電場の元で、FCN分子の配列、配向が実現できることを定量的に示した。この部分は申請者の筆頭論文として公表されている。次に短パルス励起下における非断熱的な場合を考察し、一般的な表式を与えている。第3章では、分子トモグラフィー (断層撮影) という観点から、イオン化と高調波の発生について理論的に詳しく考察している。イオン化、電子の周回飛行、再結合という高調波発生過程の3ステップモデルの量子力学的な取り扱いとして広く受け入れられている Lewenstein モデルに、分子軌道の対称性と波動関数の形状を正しく反映し、更に再結合直前に電子が親イオンのポテンシャルによって加速される効果も取り入れた改良型のモデルを提案している。

第4章では、 N_2 , O_2 , CO_2 分子について実際に行った実験と、その結果について記述している。光源は再生増幅された波長 800nm, 時間幅 50fsのパルスである。真空中にパルス的に放出された分子ガスに、第1のレーザー光パルス (ポンプ光) を照射すると、各分子は回転モーメントのインパルスを受け、初期の配列角度に応じて様々の角速度で回転運動を開始めるが、角速度が量子化されているために、集団としての分子の配列が、周期的に回復 (revival) する。第2のパルス (プローブ光) によって発生する 23 次の高調波とイオンを観測することにより、分子の最低角速度に対応する回転周期 (またはその 1/4, 1/8) に合わせて周期的に現れる信号を観測した。高調波とイオンの同時計測は、申請者の発案になる新しい実験手法であり、高く評価される。高調波とイオンの信号に同時刻にピークが現れることから、イオン化が高調波発生の第一ステップであることを直接的に証明した。さらに、イオンと高調波の増減の符号が CO_2 の場合のみ逆転しているという特異な現象を発見した。この事実から、再結合過程において、平面波で近似される電子波束と親原子に残っている束縛状態の分子軌道の波動関数が量子干渉を起こしており、符号が反転するのは分子軸が偏光方向に対してある特定の角度になったときに減算的干渉が起こり、遷移確率が下がるためであることを突き止めた。逆にこれを利用すれば、波動関数の対称性や核間距離を求めることができ、トモグラフィーの一つの手段となることが示された。この成果は、申請者筆頭の論文として公表済みである。第5章では、楕円偏光したプローブ光を用いて、波動

関数の広がり大きさを求める手法を提案している。直線偏光を用いる場合、電子はイオンを飛び出してからレーザー電場によって直線的に加速され、再び正確に親イオンの場所に戻って来て再結合するが、楕円偏光の場合は、ずれた位置に戻るため、再結合の確率が低くなるのが原子の場合に知られている。N₂分子についてこの効果を調べたところ、分子軸に平行方向と垂直方向で差があることを見出した。これを利用すれば、高調波強度の楕円偏光度依存性から波動関数の広がり大きさを推定することが可能となる。このことをO₂およびCO₂についても実験的に示した。また、N₂分子の場合は、分子軸に垂直方向で量子干渉により31次高調波の発生効率が下がることを見出し、減算的量子干渉の効果であると結論した。上記2つの例によって、電子波束の量子干渉効果を明確に示した成果は画期的であり、当該分野に於いて注目を浴びている。第6章は以上のまとめである。

本研究のテーマは、酒井研究室で継続的に行われてきた分子の配列配向技術を基盤として行われたものであり、複数の共同研究者が関与しているが、第2章の断熱的な場合の理論的取り扱いおよび第3章のLewensteinモデルの改良は、本人が中心になって行ったものである。また、第4章、5章に関しては、実験から解析までほとんど申請者自身の判断のもとで行われており、随所に本人の独創的な発想が盛り込まれている。

以上の理由により提出された論文は、博士（理学）の学位を授与するにふさわしいものであると、審査委員全員の一致によって判断した。