

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 神田夏輝

周波数が 0.1~10 テラヘルツ (THz) 程度の領域の電磁波はテラヘルツ波と呼ばれ、近年基礎応用両面から、発生検出および応用技術の開拓が進んでいる。この周波数領域は伝導現象と光学現象を繋ぐ領域であり、半導体デバイス的高速動作に向けた研究や、強相関電子系での低エネルギーの励起現象の解明など電子物性研究において重要である。また、多くの分子においてこの周波数は指紋スペクトル領域と呼ばれ、個々の分子の識別や分子の生理学的な機能を解明する上でも重要である。近年の超短パルスレーザー技術の進歩に伴い、この周波数領域の電磁波を活用する技術に革新がもたらされ、その高度化が急速に進んでいる。

一方、超短パルス光は物質との非線形な相互作用により、THz 波の光子エネルギーと同程度のエネルギーをもつ素励起を瞬時的に励起することができる。この過程によって、コヒーレントに駆動された素励起集団は振動の位相と振幅に加え、振動方向の自由度をもつ。これらが電磁波を放射する場合、振動方向の自由度は、放射される THz 電磁波の偏光自由度に対応する。光励起過程を巧みに制御し、誘起される振動を方向自由度も含めて制御することで、THz 波の偏光状態を能動的に制御することができる。これは生体計測応用など THz 波の応用上重要な技術をもたらす。

以上のような背景の中で、本研究では光励起によって生じる物質の状態や光パルスにおいて「時空間モルフォロジー」の概念を新たに導入し、THz 波の偏光制御技術や物質中の THz 振動のベクトル的な制御について新しい方法を提案し実証することを目的とした。

本論文は、8 章から構成されている。以下に各章の内容を要約する。

第 1 章では、本研究の背景及び目的を述べ、本論文の構成について述べている。

第 2 章では、本研究の実験で用いた THz 電磁波発生・検出法について説明している。さらに本研究全体を通じて最も重要な実験技術である THz 領域での偏光計測法について説明している。

第 3 章では、本研究で議論する「光学活性」についてその原理について概説している。鏡映対称性の破れによる掌性 (キラリティー) と光学活性の関係について述べている。さらに、人工キラル構造における光学活性の発現機構についてこれまでに行われてきた議論を概説した上で、それに基づいた設計指針を整理している。

第 4 章では、THz 領域での光学活性を光励起により動的に制御する実験について述べている。半導体基板上に金薄膜キラル格子構造を作製し、光照射によって THz 領域に旋光性が発現することを見いだした。実験とシミュレーションの比較により、金薄膜構造の U 型の形状を反映した光励起キャリアの面内および厚み方向の分布が光学活性を誘起すること

を明らかにした。この結果は、光励起キャリアの三次元キラルモルフォロジーによってTHz波に対する旋光性の制御が可能であることを示したものである。

第5章では、第4章の光誘起THz光学活性の過渡応答測定を行った結果について述べている。キャリア拡散によりキャリア分布のキラリティーが失われ、光学活性が消失することを示した。この過渡応答測定のために、新たな時間分解検出法を開発した。繰り返し76 MHzの高繰返しTHz検出とそれを分周して得られた厳密に同期のとれた低繰返し励起光を用いることで、ns~ μ sの広い範囲かつ高いデータ取得効率で、ポンプとプローブの時間分解とTHz領域での周波数分解を両立させて測定できることを示した。

第6章では、一様媒質に対してパターン制御した光を照射することで、旋光性を誘起する実験について述べている。空間光変調器を用いることでキラルなパターンを持った励起光を生成し半導体基板上に結像し、THz波の偏光特性を評価した。自在な形状のキャリア分布を実現でき、モルフォロジーの動的な制御が可能であることを示した。

第7章では、三重回転対称性を持つ系での誘導ラマン過程の偏光選択則の理解に基づき、THz領域で振動する光誘起磁化のベクトル的な制御を行った実験について述べている。磁気ドメイン分布がランダムなマルチドメイン構造をもつ反強磁性体NiOの単結晶において、その[111]軸が三重回転対称軸になることに着目した。この結晶に[111]軸方向から、偏光をねじったダブルパルスの直線偏光フェムト秒パルスを入射すると、誘導ラマン散乱過程により、反磁性共鳴マグノン振動が任意に設計した楕円軌道に従った磁化振動を行うことを見だし、それを実験で明確に示した。これは、励起パルス光の時間的なねじれを利用して、THz波発生の偏波をベクトル的に制御する新しい手法である。

第8章では本研究のまとめを行い、今後の課題・展望について述べた。

以上のように、本研究ではTHz電磁波や物質中のTHz領域での振動についてその偏波の制御という観点から、時空間モルフォロジー制御という概念を新たに導入し、それを実証したものである。空間のモルフォロジー制御とそれを光励起によって動的に制御することで、光学活性を発現させ、THz電磁波の偏光を能動的に制御できることを示した。また、ダブルパルスの偏光のねじれを、光の時間軸上でのモルフォロジー制御として捉え、THz領域に共鳴をもつ、磁化の振動を位相と振幅に加え振動方向をベクトル的に自在に制御することに成功した。この手法は、2次非線形光学効果を用いたTHz波発生において、最適設計された偏光波形整形光パルスを励起光として用いることにより、周波数およびその帯域を自由に制御できる円偏光THz光源として応用できる。

これらの研究は、THz波の応用上の課題である、偏波制御に新たな指針を与えたものであり、本研究の成果は今後の物理工学の発展に大きく寄与することが期待される。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。