

# 元素選択的な非線形光学応答の検出に成功

## X線自由電子レーザーによる高調波発生

物性研究所 松田 巖、赤井 久純

### 1. はじめに

近年のレーザー光源開発により、これまでにない光学応答がさまざまな物質で観測されている。レーザー開発では特に短波長化が最近著しく進展しており、X線自由レーザー施設 SPring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser (SACLA) などでは軟X線～X線領域の光が利用できる。この波長領域は物質を構成する原子の内殻電子のエネルギー準位に相当しており、吸収分光では物質の吸収端と呼ばれる。この共鳴効果を用いると元素選択的に光物性実験を実施することができ、X線吸収微細構造、広域X線吸収微細構造や共鳴X線散乱などの実験法はこれまで物質科学の発展に大きく貢献してきた。

一方、レーザーを用いると光と物質の非線形光学効果も観測でき、物質中の特殊な秩序や物質界面など、従来の光学実験では視ることのできなかった信号を検出することができる。しかし実際の観測で主に使われている基本波の波長領域はまだ可視光～赤外線である。そのため、さらに短い波長領域での非線形光学効果の研究はまだ未開拓であった。X線自由電子レーザーは大強度と超短パルス性を有しており、さらに物質吸収端に合わせたエネルギーの光を調整できる。そのため本光源を用いれば、図1のような元素選択的な非線形光学の測定が期待でき、反転対称性が破れた環境情報と組み合わせた高度な物性実験が可能である。

### 2. 実験結果と議論

我々は、軟X線レーザーを用いて代表的な非線形光学効果である第2次高調波発生について検証した。実験はSACLA施設の軟X線自由電子レーザー(SXFEL)ビームライン BL1で行った。試料は反転対称性が破れたGaFeO<sub>3</sub>結晶を用いた。図2のように入射した光(振動数 $\omega$ )に対する第2次高調波( $2\omega$ )のエネルギーが物質吸収端(内殻軌道と非占有バンドのエネルギー差)に相当する時、共鳴効果で第2次高調波発生(Second Harmonic Generation, SHG)が増強されることが期待される。

図3(A)はビームライン及び測定システムの全体図である。測定系は反射配置をとり、試料からの光は分光器を通してマイクロチャンネルプレート(MCP)で検出される。

図のようにMCPの位置によって、基本波( $\omega$ )と第2次高調波( $2\omega$ )の強度 $I_{\omega}$ と $I_{2\omega}$ を区別して測定した。図3(B)はGaFeO<sub>3</sub>結晶のFe 3p吸収スペクトルであり、これによるとFe 3pの吸収端は光エネルギー55 eV付近にあるのでSXFELの光エネルギーをこの半分に設定する。入射光のエネルギーを $\hbar\omega = 27.5$  eVとして、入射強度 $I_0$ に対して、 $I_{\omega}$ と $I_{2\omega}$ をプロットすると図3(C)と(D)のようになり、 $I_{\omega}$ では比例するが $I_{2\omega}$ では非線形な依存性が見られる。また吸収端より低い光エネルギー( $2\hbar\omega = 53$  eV,  $\hbar\omega = 26.5$  eV)では、 $I_{2\omega}$ の強度は大幅に小さくなる。図中の点線は $I_0^{\beta}$ に比例する関数でフィッティングしたもので、 $I_{\omega}$ では指数は $\beta = 1.0$  ( $\hbar\omega = 27.5$  eV)であるのに対して、 $I_{2\omega}$ では $\beta = 1.8$  ( $2\hbar\omega = 55$  eV),  $\beta = 2.0$  ( $2\hbar\omega = 57$  eV),  $\beta = 2.0$  ( $2\hbar\omega = 59$  eV)となり、軟X線領域でのGaFeO<sub>3</sub>結晶からのSHG光の検出を意味する。

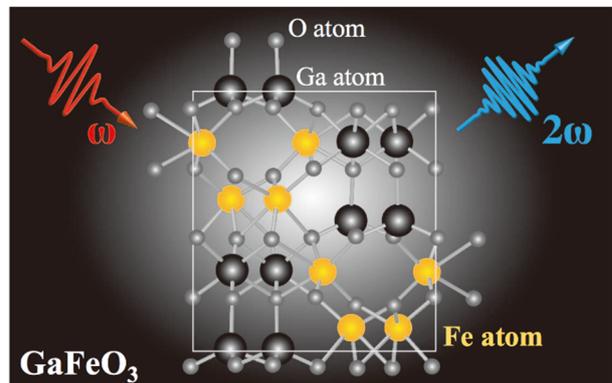


図1 GaFeO<sub>3</sub>結晶における軟X線非線形光学効果の様子。入射した光(振動数： $\omega$ )に対して、その第2次高調波の光( $2\omega$ )が構成するFe原子の内殻共鳴で増大して発生する[1]。

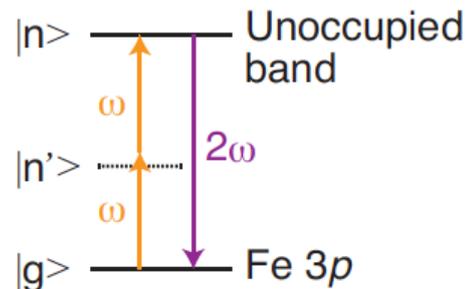


図2 GaFeO<sub>3</sub>結晶のSHG発生におけるエネルギーダイアグラム。アルファベットの $g, n', n$ はそれぞれ基底状態、中間状態、励起状態に対応する[1]。



## 謝辞

本研究は国立研究開発法人科学技術振興機構「X線自由電子レーザー施設重点戦略課題推進事業」と公益財団法人ひょうご科学技術協会「学術研究助成事業」のご支援で実施することができました。

## 参考文献

- [1] Sh. Yamamoto, T. Omi, H. Akai, Y. Kubota, Y. Takahashi, Y. Suzuki, Y. Hirata, K. Yamamoto, R. Yukawa, K. Horiba, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, S. Owada, K. Tono, M. Yabashi, E. Shigemasa, S. Yamamoto, M. Kotsugi, H. Wadati, H. Kumigashira, T. Arima, S. Shin, and I. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 223902 (2018).
- [2] R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal, C. D. Pemmaraju, L. Foglia, A. Simoncig, N. Fabris, P. Miotti, C. J. Hull, A. M. Rizzuto, J.W. Smith, R. Mincigrucci, C. Masciovecchio, A. Gessini, E. Allaria, G. De Ninno, B. Diviacco, E. Roussel, S. Spampinati, G. Penco, S. Di Mitri, M. Trovò, M. Danailov, S. T. Christensen, D. Sokaras, T.-C. Weng, M. Coreno, L. Poletto, W. S. Drisdell, D. Prendergast, L. Giannessi, E. Principi, D. Nordlund, R. J. Saykally, C. P. Schwartz, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 023901 (2018).

