

平成23年10月26日現在

機関番号： 82401

研究種目： 基盤研究(B)

研究期間： 2008~2010

課題番号： 20340081

研究課題名(和文)

パラメトリックなX線非線形過程の理論的・実験的解明と物質科学への応用研究

研究課題名(英文) Theoretical and experimental study on X-ray parametric nonlinear processes for application to material science

研究代表者

玉作 賢治 (TAMASAKU KENJI)

独立行政法人理化学研究所・石川X線干渉光学研究室・専任研究員

研究者番号： 30300883

研究成果の概要(和文)：

X線領域での非線形光学現象であるX線から光学領域へのパラメトリック下方変換を理論的・実験的に研究した。共鳴現象を利用して、パラメトリック下方変換が光学的なファノ効果として観測されることを示し、2次の非線形感受率を実験的に求める式を導き出した。また、2次の非線形感受率が光学領域の局所光学応答を反映していることを理論的に示し、ダイヤモンドを用いて203Åでの光学応答を0.54Å分解能で可視化することに成功した。

研究成果の概要(英文)：

We investigate both theoretically and experimentally parametric down-conversion (PDC) of x-rays into optical region, which is one of nonlinear optical processes in the x-ray region. We find that x-ray PDC is observed as the optical Fano effect and a theory to deduce the second order nonlinear susceptibility from the Fano spectra. We also show that the second order nonlinear susceptibility includes the linear susceptibility at the optical frequency, and succeed in visualizing the local optical response at 203 Å with a resolution as fine as 0.54 Å.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	11,700,000	3,510,000	15,210,000
2009年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
総計	15,000,000	4,500,000	19,500,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：X線、非線形光学、パラメトリック変換、ファノ効果、局所光学応答

1. 研究開始当初の背景

既に50年以上の歴史を持つ可視光領域

の非線形光学は、様々な研究分野での利用はもちろんのこと光ファイバーを介した高速通信の根幹をなすことで現代の高度情報化社会を支える程に

発展し、必要不可欠の科学技術となっている。しかし硬X線（以下単にX線と記す）領域では全く状況が異なっていた。X線光学応答に非線形性が存在することは40年以上前に指摘されている[“Parametric Conversion of X rays”, I. Freund, and B. F. Levine, Phys. Rev. Lett. **23**, 854 (1969).]。にもかかわらず過去に数例の観測報告があるのみで、X線非線形光学は全く未開な領域であった。

数年後には日本、アメリカ、ドイツでX線自由電子レーザーが建設され、世界中の研究者は「近い将来、いよいよX線非線形光学が可能となる」という期待を持っていた。当時でも、可視光領域での非線形光学の発展を鑑みれば、X線非線形光学の可能性は明らかであると考えられていた。なお、2011年現在、日本とアメリカで既にX線自由電子レーザーが稼働している。

このような当時の状況のため、X線非線形光学に取り組んでいたのは我々のグループのみであったが、我々は既存の放射光光源を用いて、1つのX線光子がX線と極端紫外の2つの光子に分かれるパラメトリック下方変換の高精度観測に成功していた[“Interference between Compton Scattering and X-ray Parametric Down-Conversion”, K. Tamazaki, and T. Ishikawa, Phys. Rev. Lett. **98**, 244801 (2007).]。さらに非線形過程が非弾性過程であるコンプトン散乱と干渉している可能性を示す実験結果を得ていた。

2. 研究の目的

X線非線形光学が学術的にも応用上も重要であると考えられる理由は、それが所謂非線形光学の単なる短波長版でないからである。すなわち、可視光領域での非線形性は、非相対論的量子力学のハミルトニアン $H = p^2/2m - epA/mc - e^2 A^2/2mc^2$ の項に起因する。例えば2次の非線形感受率は (pA) の3次の項である。ところがX線の場合、可視光領域では始めに無視される (A^2) の項を含む $(pA)(A^2)$ という形をとると考えられる。 (A^2) の項が陽電子の生成消滅を含む相対論的な項に起因することから、X線の非線形光学応答は可視光領域とは異なる全く新しい非線形プロセスによっていると考えられ、その全容を解明しなければならない。

X線非線形光学の重要な特色の1つに、関わる光子をX線より低エネルギーの全ての波長領域-X線、軟X線、極端紫外、真空紫外、紫外、可視、赤外-に自由に選ぶことが出来る点が挙げられる。例えば3光子が関わる2次の非線形過程の場合、1つの光子はX線より低いエネルギー全てを取り得る。この結果、低エネルギーでの光学応答が非線形感

受率反映されるはずである。一方で元々X線を用いているため、非線形感受率は微視的に定義されなければならない、従ってÅ分解能を持つと考えられる。すなわちX線では線形感受率がÅ分解能での結晶構造解析を可能にしているのと同様に、長波長領域での光学応答をX線の持つÅ分解能で観察することが可能となると期待され、物質科学への応用が可能である。

例えば極端紫外領域を選べば原子間の結合電荷が関わるという予測がある[“Nonlinear X-ray Diffraction. Determination of Valence Electron Charge Distribution”, I. Freund, Chem. Phys. Lett. **15**, 583 (1972).]。さらに紫外・可視領域では微視的な誘電関数、つまり広い逆空間で誘電関数を調べることが出来ると期待される(“Optically Modulated X-ray Diffraction”, I. Freund and B. F. Levine, Phys. Rev. Lett. **25**, 1241 (1970).)。磁気応答は中性子非弾性散乱などにより広い逆空間で測定され、例えば高温超伝導体では $k=(\pi, \pi)$ 付近に特徴的な構造が見られる。ところが低エネルギーでは波長が長いので電荷応答は原点(Γ 点)付近しか見ることが出来ない。X線パラメトリック変換がこの空白地帯を埋める可能性がある。これら40年近く前に提案された応用の可能性は未だに検証すらされていない。

本研究の目的は、実験的・理論的な手法を用いて、上記のようなX線非線形光学の学術的に重要な物理的背景を明らかにし、同時に興味深い応用に関する予測を検証することである。

3. 研究の方法

本研究では、X線(ポンプ光)からX線(シグナル光)と真空紫外-極端紫外領域(アイドラー光)に分かれるX線パラメトリック下方変換(以下X線PDC)を対象とする。

まず、X線PDCを効率良くかつ高精度で測定するための新しい回折計を設計・製作する。

この回折計を利用して、軽元素の内殻励起や価電子帯-伝導帯励起による共鳴効果、偏光依存性などの様々な条件下でX線PDCを系統的に測定し、未知の干渉効果の物理的な背景を明らかにする。さらに、非線形光学で最も重要な物理量である非線形感受率を実験的に決定する方法を確立する。

その上で、様々な回折面(逆格子ベクトル)に関して非線形感受率を実験的に求め、それらを用いて非線形感受率の実空間像を再構成する。この結果から非線形感受率の物理的な意味を解釈する。

4. 研究成果

4-1. X線非線形光学用大型回折計の開発

先行する研究で得た知見を最大限活用して、X線PDCを効率良く測定するための専用の大型回折計を開発した(図1)。特に、後に述べるファノ効果を積極的に利用するために、散乱面が入射X線

と直交するように偏光配置を工夫した。また、長尺ながら高剛性の検出器アームにより高いエネルギー分解能と安定性を実現した。さらに、開発した回折計は様々な調整機構を持つことにより、微弱な信号を見つけるための効率的な調整が可能となっている。

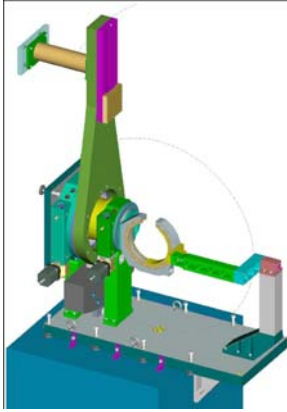


図1. 本研究で開発した大型回折計の概念図。偏光特性を生かした配置で測定できるように工夫されている。また、長尺のアームを搭載することで高エネルギー分解能を達成している。

4-2. 光学的ファノ効果

既にX線PDCと非弾性散乱が干渉する可能性を示す実験結果を得ていたが、その物理的背景が不明であった。このため、最も重要な物理量である非線形感受率を実験的に求めることが出来なかった。我々はこの干渉効果を、量子力学的なファノ効果と仮定して理論的な研究を進めた。そして、データ解析に必要な物理描像として、光学的ファノ効果を導入した。「光学的」という修飾語をつけたのは、離散準位が純粋に光のみの状態であるからである。これと並行して、様々な条件下での実験データの蓄積を行った。その結果、特にアイドラー光が内殻励起に共鳴するとき、干渉の様子が大きく変化することを発見した(図2)。

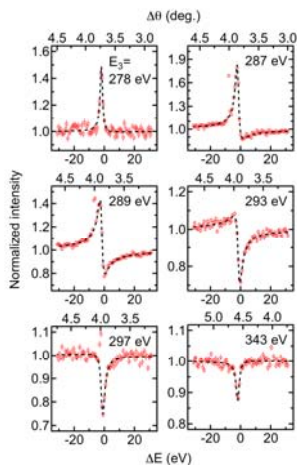


図2. アイドラーのエネルギーが炭素のK吸収端(289 eV)付近にあるときのFanoスペクトル(非線形回折のロッキングカーブ)。共鳴の近傍で形がFano効果に特徴的な変化を示す。

この共鳴付近のデータを、我々が構築した光学的ファノ描像で解析すると、全てが矛盾なく説明できることが判明した。まず、フィッティングパラメータとして現れるアイ

ドラー光の寿命は、文献値と比較的良く一致した。さらに、導出された2次の非線形感受率、 $|\chi^{(2)}_{220}|$ 、は半定量的に予想される値、 $\sim 10^{-19}$ esu、とオーダーが一致した。これらに加えて、 $|\chi^{(2)}_{220}|$ の内殻共鳴付近での振る舞いは、共鳴項と非共鳴項の和として、図3のように自然な形で説明可能なが判明した。

以上により、我々の光学的ファノ描像が、X線PDCで見られる干渉効果を正しく取り扱い、これによって2次の非線形感受率を導き出せることが示された。

さらに、炭素のK吸収端(289 eV)で共鳴が起こると、非線形感受率は10倍以上に大きくなることが判明した(図3)。この幅の狭い共鳴は、内殻励起子に起因すると考えられ、今後より高効率な非線形光学材料を設計する上で重要な知見となると期待される。

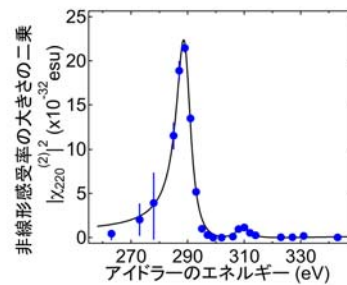


図3. ファノ効果により解析して得た2次の非線形感受率のアイドラー光エネルギー依存性。炭素のK吸収端で共鳴的な増大が起こることが明らかになった。

4-3. 2次の非線形感受率の表式

これまでの研究と上記の成果により、X線PDCが光学的ファノ効果として観測され、そこから2次の非線形感受率を導き出せるようになった。残された大きな問題は、「何が2次の非線形感受率と決定しているのか？」という点である。

X線領域の非線形感受率に関しては、30年以上前にいくつか理論的な考察がなされている。我々はこれらをベースにして、より一般的な取り扱いをすることで、2次の非線形感受率の具体的な表式を導き出した。その結果、式(1)に示すように、アイドラー光の周波数での線形感受率のフーリエ係数が、2次の非線形感受率のフーリエ係数で書き下せることが判明した。

$$\chi_Q^{(1)}(\omega_i) = \frac{2mc\omega_s}{e\theta_{psi}} \chi_Q^{(2)}(\omega_p = \omega_s + \omega_i) \quad (1)$$

ここでQは逆格子ベクトル、 θ は偏光因子、添字はそれぞれポンプ(p)、シグナル(s)、アイドラー(i)を示す。X線の非線形感受率は、オングストロームスケールの構造を持つ。従って、オングストローム分解能でアイドラー光での線形感受率の構造を明らかにできることが分かった。

アイドラー光の波長は原子間距離に比べて非常に長いので、通常は線形感受率の局所的な構造を見ることは出来ない。逆空間で言い換えると、長

波長領域の光学応答は、運動量空間の原点 (Γ 点) 付近しか調べることが出来ない。一方で、磁気応答は中性子非弾性散乱などにより Brillouin ゾーン 全域にわたって調べることが出来る。オングストローム分解能で光学応答を見る事が出来ないことは、光物性研究での大きな制約と考えられてきた。しかし、本研究によって、長波長領域の光学応答をオングストローム分解能で解明することが原理的に可能であることが示された。

なお、「研究の目的」で引用した原子間の結合電荷が見えるとう論文 [Chem. Phys. Lett. **15**, 583 (1972).] は、導出の過程で使っている近似に問題があることが判明し成立しないと考えられる。

4-4. 局所光学応答の可視化

2 次の非線形感受率に関する理論的研究を実証するために、ダイヤモンドに関して、 $Q=(111), (220), (311), (222), (400)$ での X 線 PDC を観測した。この時、アイドラー光のエネルギーは、極端紫外領域の 60~120 eV に選んだ。測定したデータから、4-2 で確立された解析手法を利用して、2 次の非線形感受率のフーリエ係数、 $|\chi^{(2)}_q|$ を決定した。さらに、4-3 の成果を利用して、アイドラー光のエネルギーでの感受率のフーリエ係数、 $|\chi^{(1)}_q|$ を決定した。

しかし、ここで実験的に求めることが出来るのは、絶対値のみで位相情報が欠落している。そこで、位相の取りうる全ての組み合わせを使って、フーリエ合成を行い、 $\chi^{(1)}(r)$ を求めた。これらを検討すると、ある位相の組み合わせのみが、ダイヤモンドの電子密度分布や極端紫外領域での光学応答と矛盾しないことが判明した。

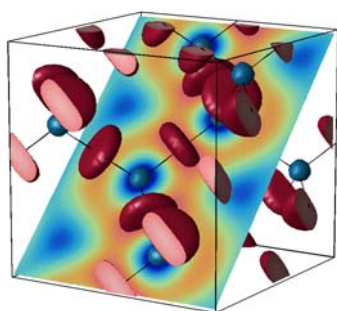


図 4. 波長 203Å (60 eV) での微視的な感受率。1 辺が 3.56 Å の立方体を表示した。各辺は $\langle 100 \rangle$ 方向を向いている。球状と円盤状の領域は、それぞれ内殻電子と結合電荷の寄与に対応する。また、逆の符号を持つことから、振動方向も逆向きとなる。

こうして図 4 に示すように、60 eV でのダイヤモンドの局所的な光学応答を実験的に決定することに成功した。このフーリエ合成の分解能は、0.54 Å に達した。これは、光学

応答を調べている波長、203 Å の 380 分の 1 となり、非常に高い分解能が実現できていることが分かる。特に、回折限界による分解能の下限である半波長 102 Å を遙かに超えて、微視的な情報が得られている。線形過程を使う限り、このような情報を得ることは不可能である。

局所光学応答を詳しく見てみると、60 eV よりも深いところにある内殻電子は、極端紫外光と同位相で動く一方で、束縛の緩い価電子は逆位相で振動していることが実験的に明らかになった。これら 2 つの内、価電子からの寄与の方が大きいため、全体としての光学応答は価電子によって支配されていることが確認された。

4-5. まとめと展望

本研究により、初めて実験的に X 線領域の非線形感受率を求めることが可能となり、さらにそれが線形感受率を内包しているということが判明した。本研究で得られた一連の成果は、X 線領域での非線形光学において初めての系統的な知見であり、このフロンティアを開拓する大きな一歩である。さらに、波長の限界を遙かに超えた微視的な光学応答を調べられるという特徴は、特に物性物理や材料科学の分野で今後大いに利用されると期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

1. Kenji Tamasaku, Tetsuya Ishikawa, "Erratum: Interference between Compton Scattering and X-Ray Parametric Down-Conversion", Phys. Rev. Lett. **102**, 079902 (2009), 査読無し.
2. Kenji Tamasaku, Kei Sawada, Tetsuya Ishikawa, "Determining X-ray nonlinear susceptibility of diamond by the optical Fano effect", Phys. Rev. Lett. **103**, 254801 (2009), 査読有り.
3. Kenji Tamasaku, Kei Sawada, Eiji Nishibori, Tetsuya Ishikawa, "Visualizing the local optical response to extreme-ultraviolet radiation with a resolution of $\lambda/380$ ", Nature Phys. **7**, 705 (2011), 査読有り.

[学会発表] (計 17 件)

1. Kei Sawada, "Negative refraction and non-reciprocal light propagation in

- multiferroics ” , 25th international conference on Low Temperature Physics, 2008年8月8日, RAI Conference Center, Netherlands
2. 玉作 賢治, “X線非線形光学の現状と可能性”, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008年9月21日, 岩手大学上田キャンパス
 3. Kei Sawada, “Berry phase effects on nonlinear optical wave propagation in deformed crystals ” , The 23rd Nishinomiya-Yukawa Memorial International Workshop, Spin Transport in Condensed Matter, 2008年11月13日, 京都大学
 4. 玉作 賢治, “X線非線形光学の現在・過去・未来”, 量子エレクトロニクス研究会, 2009年1月10日, 上智大学セミナーハウス
 5. 玉作 賢治, 澤田 桂, 石川 哲也, “X線パラメトリック変換の共鳴効果”, 第22回日本放射光学学会年会・放射光合同シンポジウム, 2009年1月11日, 東京大学本郷キャンパス
 6. 玉作 賢治, 澤田 桂, 石川 哲也, “X線非線形感受率のエネルギー依存性”, 第64回日本物理学会年次大会, 2009年3月28日, 立教学院池袋キャンパス
 7. 澤田 桂, “非線形光学効果による波束のBerry位相”, 第64回日本物理学会年次大会, 2009年3月28日, 立教学院池袋キャンパス
 8. Kenji Tamasaku, Kei Sawada, Tetsuya Ishikawa, “Recent Progress in X-ray Nonlinear Optics”, 19th International Conference on Laser Spectroscopy ICOLS2009, 2009年6月11日, 北海道屈斜路温泉
 9. Kenji Tamasaku, “Recent progress in x-ray nonlinear optics”, Gordon Research Conference X-ray Physics, 2009年8月3日, Colby college, Waterville, USA
 10. 玉作 賢治, “XFELが加速するX線非線形光学”, GCOEシンポジウム「未踏の光源、X線自由電子レーザー」, 2009年10月23日, 東北大学
 11. 澤田 桂, “位相空間における光のAB効果”, 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月21日, 岡山大学
 12. Kenji Tamasaku, “X-ray nonlinear optics”, The 4th Yamada Symposium on Advance Photons and Science Evolution 2010 (APSE2010), 2010年6月14日, JICA大阪
 13. Kenji Tamasaku, Kei Sawada, Tetsuya Ishikawa, “X-ray nonlinear optics”, The 3rd Workshop on FEL Science: Emerging X-ray Applications in Biological Systems-II, 2010年10月6日, 北海道北湯沢
 14. Kei Sawada, “Berry-phase theory of x-ray dynamical diffraction”, The 3rd Workshop on FEL Science: Emerging X-ray Applications in Biological Systems-II, 2010年10月6日, 北海道北湯沢
 15. Kenji Tamasaku, “Recent progress in x-ray nonlinear optics and future perspectives”, Workshop on Evolution and control of complexity: key experiments using sources of hard x-rays, 2010年10月12日, Argonne, USA
 16. Kei Sawada, “Enhanced translation of x-rays by a Berry-phase effect”, The 41st Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS, 2011年1月4日, Snowbird, USA
 17. 玉作 賢治, 澤田 桂, 西堀 英治, 石川 哲也, “X線PDCによる局所光学応答の解析”, 日本物理学科第66回年次大会, 2011年3月27日, 新潟大学
- [図書] (計0件)
- [産業財産権]
○出願状況 (計1件)
- 名称: 結晶歪み検出方法および結晶歪み検出装置
発明者: 香村 芳樹、澤田 桂
権利者: 独立行政法人理化学研究所
種類: 特許願
番号: 特許 2009-10874
出願年月日: 2009年1月21日
国内外の別: 国内

○取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.riken.jp/r-world/info/release/press/2009/091218/detail.html>

http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2009/091218

<http://bl29www.spring8.or.jp/kt/japanese/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

玉作 賢治 (TAMASAKU KENJI)

独立行政法人理化学研究所・石川 X線干渉光学研究室・専任研究員

30300883

(2) 研究分担者

澤田 桂 (SAWADA KEI)

独立行政法人理化学研究所・石川 X線干渉光学研究室・基礎特別研究員

40462692

(3) 連携研究者

該当なし。