

X線領域における非線形光学の新展開

玉作賢治 独立行政法人理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 澤田 桂 独立行政法人理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 石川哲也 独立行政法人理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要旨 X線領域での非線形光学応答の1つである極端紫外光へのパラメトリック下方変換について理論・実験の両面から調べた。理論面では当該過程について非線形波動方程式を解き、非線形回折のロッキングカーブがローレンツ型となることを導いた。実験面ではパラメトリック下方変換の高精度計測を行った。その結果ロッキングカーブは理論的予測と異なり、非対称であることを発見した。また、その形が極端紫外光のエネルギーによって大きく変化することが判明した。これらの観測結果はパラメトリック下方変換と Compton 散乱との干渉を示していると考えられる。この干渉の物理的背景を探るために、Fano 効果との関連を検討した。

1. はじめに

普通我々は、物質は与えた刺激に比例した応答（線形応答）をすると期待する。例えば、X線の電場、 \mathcal{E} 、に対する応答、つまり誘起される分極、 P 、は、感受率、 χ 、を使って $P = \chi \mathcal{E}$ と書けると期待する。例えば、結晶構造解析の結果が強度によって異なるとしたら、まず試料を疑い、そこに深遠な物理があるとは考えないであろう。これはほぼ正しい。しかし、本稿ではそうでない例外を取り上げる。そのような物質の応答は非線形応答と呼ばれる。例えば2次の非線形感受率、 $\chi^{(2)}$ 、があると、 $P = \chi \mathcal{E} + \chi^{(2)} \mathcal{E}^2$ 、となる。この場合、いつも通りに P/\mathcal{E} を χ とみなすのは間違っている。それにも関わらず、強度によって結果が異なるときは常に試料に問題があるのは、 $\chi^{(2)}$ も \mathcal{E} も小さいためである。非常に長い歴史を持つ光学の分野でも、非線形光学応答の発見¹⁾は、1960年のルビーレーザーの発明の翌年であった。つまりレーザーによって \mathcal{E} を極めて大きく出来るようになってからである。

以下では硬X線（以下単にX線と記述する）に対する物質の非線形な応答を扱う光学、すなわちX線非線形光学、について最近の進展を紹介する。可視光でさえレーザーの出現を待たねばならなかったのに、不思議なことにX線レーザーがなくても一部のX線非線形光学現象は既存の放射光光源で観測出来るのである。光学領域に置き換えると、明るい電球で非線形光学を研究しているようなものである。具体例を示すと、本稿で紹介する実験で利用したX線は、ピーク強度で 2.2 kW/cm^2 に過ぎない。これは TW/cm^2 が簡単に出来る光学領域とは比較にならない、とてもX線非線形光学現象の観測が可能とは思えない。

これにはトリックがあって、後で述べるように真空の揺

らぎ（零点振動）^{2,3)}を利用できるからである。考慮すべき零点振動の数、つまりモード数は短波長になると急激に大きくなる。このため本稿の実験条件の下では、関係する零点振動は非常に強く、 0.1 TW/cm^2 と見積もられる。この強大な零点振動の助けを借りて、“電球”でのX線非線形光学を可能にしているのである。しかし一方で、この真空の揺らぎが反転分布を利用する従来方式でのX線レーザーの実現を困難にしてきたのは皮肉と言うより他にない。

以下では、X線レーザーなしでも上記の理由で観測出来るパラメトリック下方変換について取り上げる。まず次節でパラメトリック下方変換について概説し、その意義を述べる。第3節では実験と比較するために、パラメトリック変換に付随して起こる非線形回折の計算を行う。第4-7節で最近我々が発見した Compton 散乱とパラメトリック変換の干渉について実験結果を示し、第3節と合わせてその背景について考察を行う。最後に第8節で今後の展望を述べる。

2. X→X+EUV パラメトリック変換

パラメトリック下方変換^{4,5)}は、ポンプと呼ばれる光子が物質との相互作用によりシグナルとアイドラーと呼ばれる2つの光子に自発的に崩壊する2次の非線形過程である [Fig. 1(a)]。“パラメトリック”とは、変換の前後で物質の状態が変わらないことを意味する。従って、この過程では光のエネルギーと運動量が保存されなければならない。

エネルギーの保存は、

$$E_p = E_s + E_i, \quad (1)$$

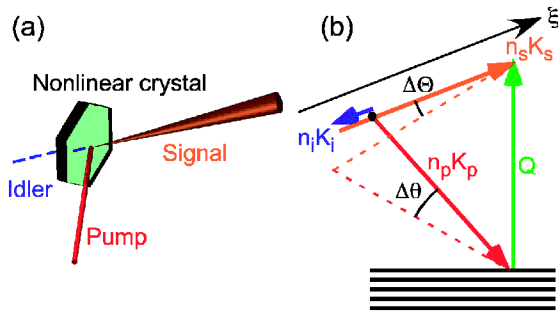


Fig. 1 (a) Schematic view of the parametric down-conversion. (b) The geometry of momentum conservation used for the calculation, and the experiments. The dashed lines show the Bragg diffraction.

と書ける。ここで E は光のエネルギーであり、添字の p, s, i はそれぞれポンプ光、シグナル光、アイドラー光の物理量であることを示す。もう一方の運動量の保存は、屈折率が波長に依存するため工夫が必要となる。例えば、光学領域では屈折率が偏光によって異なる現象（複屈折）を利用する⁵⁾。X線領域では複屈折は Bragg 条件近傍で見られるだけで、シグナル光とアイドラー光が縮退していなければ使えない。そこで屈折率に依存しない、X線ならではの自由度の高い運動量保存が提案された⁶⁾。それは逆格子ベクトル、 Q 、を用いた、

$$n_p K_p + Q = n_s K_s + n_i K_i, \quad (2)$$

というものである。ここで K は真空中の波数ベクトル、 n は非線形媒質中の屈折率である。逆格子ベクトルを使ったため、結果として X 線パラメトリック変換は Fig. 1(b) に示すように“非線形回折”⁷⁾として観測されることになる。

Fig. 1(b)を見ると、 Q の回転により(1)を満たす任意の E_s, E_i の組合せで、(2)の運動量保存が実現できることが分かる。特に E_i が 0 の時よく知られた Bragg 反射に帰着する。このような Q による運動量保存は X 線非線形光学の 1 つの特徴である。

さて具体的に X 線領域でパラメトリック変換を考えると、X 線領域ならではの多様性があることに気付く。ポンプ光が X 線であるために、(1)のもとで E_i の選択肢が極めて広い。つまりアイドラー光は、赤外、可視、紫外^{8,9)}、真空紫外、極端紫外^{7,10)}、軟 X 線、X 線^{6,11-13)} になり得る。一方でシグナル光は常に X 線である。重要なことは、この多様性が単に見かけのものではなく、以下に述べるようにパラメトリック変換に関わってくる物理量の違いとして現れる点である。これが X 線非線形光学のもう 1 つの重要な特徴である。

本稿では、特にアイドラー光が極端紫外 (EUV) 領域にある場合について取り扱う。以下では、この過程を化学反応のように $X \rightarrow X + \text{EUV}$ と記述することにする。この

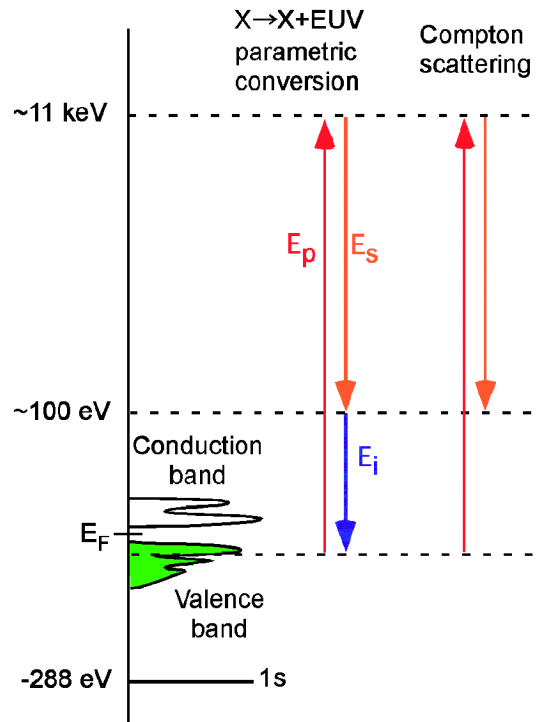


Fig. 2 Schematic energy diagram of diamonds, the parametric down-conversion, and the Compton scattering.

過程を調べる非線形結晶は、色々な意味で素性の良いものを選ばなければならない。そこで我々は IIa 型の人工ダイヤモンド結晶¹⁴⁾を利用することにした。ダイヤモンドは、ほぼ完全な大型単結晶が得られるので非線形回折に適している。また軽元素の炭素のみから構成されるため X 線の吸収が小さく、弱い信号を測定する時に有利である。さらにダイヤモンドの電子系の励起は単純で、 $E_v = 12 \text{ eV}$ 付近の価電子帯-伝導帯励起と $E_c = 290 \text{ eV}$ の内殻励起のみであるため、モデルとして考えやすい (Fig. 2)。

EUV 領域はちょうど内殻と価電子帯の 2 つの励起の間に位置する。アイドラー光を $E_v < E_i < E_c$ とすることで、内殻の電子はアイドラー光に反応出来ず、一方で束縛の浅い価電子は反応出来るような状況を作り出せる。このようにすることで、 $X \rightarrow X + \text{EUV}$ パラメトリック変換から価電子の分布を調べられるという理論的予測がある⁷⁾。通常の (線形応答を使った) 精密構造解析を行うと全電子を見てしまう。ここから結合電荷の情報を抽出するには、内殻の電子分布を計算して差し引く手続きが必要となる。しかし、結合電子の直ぐ内側の軌道は求めようとしている結合電子分布に依存するため曖昧さが残る。もし $X \rightarrow X + \text{EUV}$ パラメトリック変換から結合電子の情報が得られれば、これは相補的な情報として役立つと考えられる。価電子あるいは結合電子は、物質の化学的・物理的性質に強く関わっているため、その情報は物質の発現する様々な性質を理解する上で非常に役に立つと期待される。

3. 非線形回折^{5,15)}

X→X+EUV パラメトリック変換は X 線物理や非線形光学として興味深いだけでなく、応用上も可能性がある。にもかかわらずこれまで全くと言って良い程研究されていないため、X→X+EUV パラメトリック変換がどのように観測されるか不明な点が多い。そこでまずこの点を考察する。

先に述べたように運動量保存の要請のため X→X+EUV パラメトリック変換は、非線形回折によって実現される。この時どのような回折強度曲線(ロッキングカーブ)—シグナル光強度の照射角依存性—になるかを明らかにするために非線形波動方程式、

$$\nabla \times \nabla \times \mathcal{E}_s - (1 + 4\pi\chi_s)K_s^2 \mathcal{E}_s = 4\pi K_s^2 \chi^{(2)} \mathcal{E}_p \mathcal{E}_i^*, \quad (3a)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathcal{E}_i - (1 + 4\pi\chi_i)K_i^2 \mathcal{E}_i = 4\pi K_i^2 \chi^{(2)} \mathcal{E}_p \mathcal{E}_s^*, \quad (3b)$$

を解く。ここで \mathcal{E} は電場強度である。 $\chi^{(2)}$ が零であれば、右辺が無くなり通常の電磁波の伝播を表す。ところが $\chi^{(2)}$ が有限であるので、ポンプ光、シグナル光、アイドラー光の3つの波の間でエネルギーのやり取りが生じる。例えば、(3a)を用いるとポンプ光によりシグナル光を増幅出来ることが分かる。所謂、パラメトリック増幅である。この時 \mathcal{E}_i が“アイドラー(遊動輪)”として働くことがこの名前の由来である。

計算の概略については補遺 A に譲るが、アイドラー光が EUV 領域にある時は、(3)の解は次式で与えられる。

$$A_s(0) = A_s(-l) + \frac{2\pi i K_s^2 \chi_Q^{(2)} / |k_s|}{i\Delta k + \mu_i} A_i^* A_p \quad (4)$$

ここで l は非線形結晶の実効的な厚み、 μ は振幅吸収係数、 k は非線形媒質中の波数ベクトル、 $\Delta k = k_p + Q - k_s - k_i$ は運動量保存からのズレを表す。なお以下では非線形光学に倣って $\Delta k = 0$ を位相整合条件と呼ぶ。また非線形応答とはいえ X 線回折であるので、非線形感受率は Q 番目の Fourier 係数、 $\chi_Q^{(2)}$ 、として現れる。

Fig. 1(b)を見ると、 E_s と E_i を固定して非線形回折のロッキングカーブを測定することは、位相不整合量、 Δk 、をスキャンすることに対応することが分かる。従って、(4)から X→X+EUV パラメトリック変換のロッキングカーブは幅 $2\mu_i$ のローレンツ型となると予想される。これはアイドラー光の消衰距離内で位相整合(運動量保存)が保たれていれば良いと言うことを示している。もし吸収が無かったとすると、[(A3)で $\mu_i = 0$ と置いて積分して]非線形光学でよく知られた sinc 関数を得る。その場合ロッキングカーブの幅は、 Δk で測って π/l 程度となる。EUV 光の消衰距離がサブミクロン程度で、試料の厚みがミリ程度であることから、吸収によってロッキングカーブの幅が

4桁も広げられることが分かる。この広いロッキングカーブは、完全結晶の得られない様々な物質に応用する時に大きな利点となる。

様々な Q に対するロッキングカーブから $\chi_Q^{(2)}$ を見積り Fourier 合成すれば、Å 分解能で $\chi^{(2)}(r)$ を明らかにすることが出来る。もし理論予測の通り X→X+EUV パラメトリック変換が結合電子によって起こるならば、 $\chi^{(2)}$ から Å 分解能でその分布を決定することが出来る。これは全電荷分布で決まる線形感受率の Fourier 係数、 χ_Q 、から構造解析を行うのと同じである。逆に(4)から実際に観測されるシグナル光強度を予測するには、モデルを立てて $\chi_Q^{(2)}$ を見積る必要があるが^{7,15,16)}、本稿ではこれ以上立ち入らない。

なお(4)では(A4)の κ_s を頭わに書いて、第1節で述べたような2次形式で記述出来ることを強調している。しかし、 A_i は零点振動に由来するため事実上定数となり、実際の測定ではポンプ光強度のみに依存する。また、第1節で触れたように短波長では零点振動が極めて大きいので、 A_p が小さくても観測可能となる。

4. エネルギースペクトル¹⁵⁾

以上見てきたように X→X+EUV パラメトリック変換が、非線形回折として実現出来て、そのロッキングカーブはローレンツ型となることが分かった。これと実験結果を比較する前に、シグナル光のエネルギー領域で何が起きているかを見ておく。そこで適当な位相整合条件にして、ダイヤモンドで散乱された X 線の分光を行った。測定は SPring-8 の理研物理科学ビームライン II (BL19LXU)¹⁷⁾ に行った。 $E_p = 11.0$ keV のポンプ光を使い、その強度は 9.3×10^{11} photons/s であった。また分光は湾曲させたゲルマニウム結晶の220反射で行った。この時の測定系のエネルギー分解能は2.2 eV であった。

エネルギーの組合せが $(E_p, E_s, E_i) = (11.0 \text{ keV}, 10.9 \text{ keV}, 100 \text{ eV})$ になる場合を調べた。また Fig. 1(b) のような位相整合を $Q = (1, 1, 1)$ で満たした。以下では簡単のために E_i のみでエネルギーの組合せを指定する。この条件下で(2)を計算すると、111反射から 1.92° だけ高角側に回転させれば位相整合条件が満たされることが分かる。

以上の条件で測定された散乱光のエネルギースペクトルを Fig. 3(a) に示す。横軸は E_p からのエネルギー損失を示す。 $\Delta E = 0$ に見られるピークが弾性散乱に対応する。弾性散乱よりエネルギーの低い領域に Compton 散乱による幅の広いバンドが見られる。Compton 散乱は X 線が電子にエネルギーの一部を渡す非弾性散乱である。よく見るとポンプ光より100 eV 低い Compton 散乱の裾、つまりに10.9 keV に10 photons/s 程度の弱いピークあることが分かる。これが X→X+EUV パラメトリック変換によって生成された $E_s = 10.9$ keV のシグナル光と考えられる。し

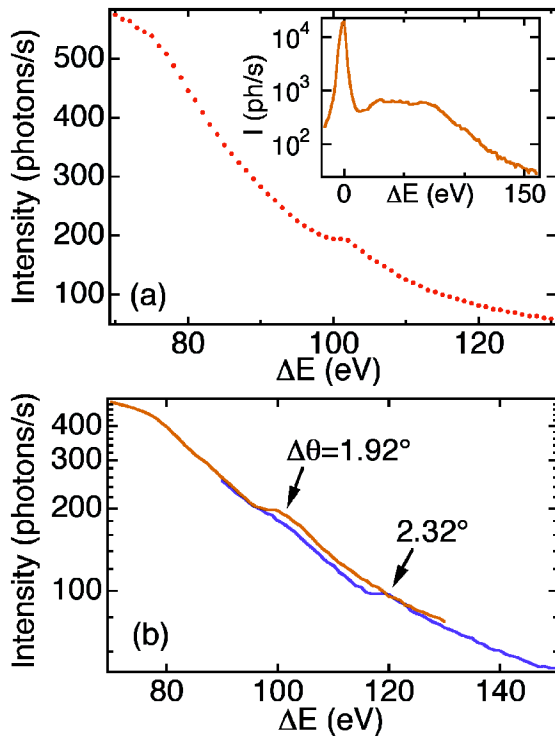


Fig. 3 (a) Energy spectra of scattered x-rays measured under the phase-matching condition for $E_i=100$ eV. Inset shows the spectrum in a wider energy range. (b) Energy spectra measured at $\Delta\theta=1.92^\circ$ and 2.32° .

かし、測定しているのは入射強度に比べて11桁も小さい信号であるので、慎重に吟味する必要がある。

このピークの出自を確認するために、試料をさらに 0.4° だけ回転させて同様の測定を行った。その結果ピークは Fig. 3(b) のように E_s で測って 20 eV 低エネルギー側に移動した。この観測と比較するために、(2) を Fig. 1(b) の位相整合条件のもとで微分して、

$$\frac{d|K_s|}{d\Delta\theta} = -\frac{|K_p||Q|\cos\theta_B}{(n_i+1)[(n_i+1)|K_s|-n_i|K_p|]}, \quad (5)$$

を得る。(5) から 0.4° の回転が与えるシグナル光のエネルギー変化は、 -21 eV であると計算される。この計算値は観測結果と良く一致する。

ピークのエネルギーの位相整合条件依存性だけでは、何らかの Bragg 反射がたまたま条件を満たしている可能性を排除出来ない。そこで結晶を(111)面内で回転させてアジマス依存性を測定した。その結果、 20° 回転させても変化は見られなかった。以上から Fig. 3 で観測されたピークが X \rightarrow X+EUUV パラメトリック変換によることが明らかになった。

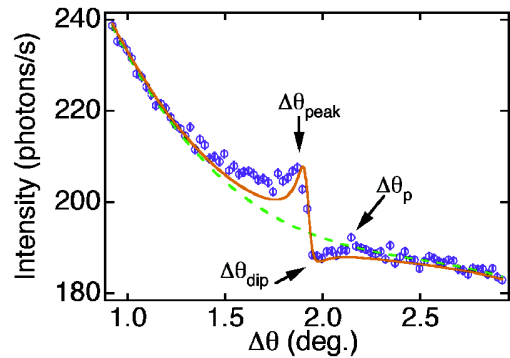


Fig. 4 Rocking curve of the nonlinear diffraction measured at $E_s=10.9$ keV. The dashed line is the polynomial fitting to the background. The solid line is the fitting with (10).

5. $E_i=100$ eV でのロッキングカーブ¹⁵⁾

前節で見られたエネルギースペクトルから定量的な解析が出来るが良いのだが、Compton 散乱に現れる微細な構造—例えば $\Delta E=75$ eV 付近のこぶ—のため、ピーク強度の見積りなどは出来なかった。そこでやはりロッキングカーブで議論する必要が生じる。

Fig. 4 に $E_i=100$ eV で測定されたダイヤモンド111非線形回折のロッキングカーブを示す。横軸の $\Delta\theta$ は Bragg 角, θ_B , から測った角度であり、縦軸は10.9 keV の散乱光の強度である。主に Compton 散乱に起因する右下がりのバックグラウンドの上に、パラメトリック変換されたシグナル光による強度増大が見られる。その角度は、位相整合条件(2)から予測される $\Delta\theta=1.92^\circ$ に一致する。ところが観測されたロッキングカーブは理論的に予測されたローレンツ型ではなかった。ピークは見られたが、その高角側に(4)では全く予想されなかったディップが存在する非対称な形であることが判明した。

まずディップが本当であるかどうかを明らかにしなければならぬ。このために結晶を特徴的な角度に固定して、シグナル光強度の散乱角依存性を測定した (Fig. 5)。はじめにピーク ($\Delta\theta_{\text{peak}}$) を調べた。すると検出器の窓サイズで決まる角度範囲で、強度の増大が起っていた。これは位相整合条件(2)が満たされる範囲でパラメトリック変換が起っていることを示している。全体的に右上がりなのは、Compton 散乱された X 線が試料により吸収される時の角度依存性のためである。次にディップの角度 ($\Delta\theta_{\text{dip}}$) で同様の測定を行うと、同じ角度範囲で強度が減少することが判明した。念のため、ディップの高角側の見かけのピーク ($\Delta\theta_p$) でも測定を行った。この場合はパラメトリック変換の兆候は見られなかった。以上の観測からロッキングカーブにディップが存在する確証が得られた。

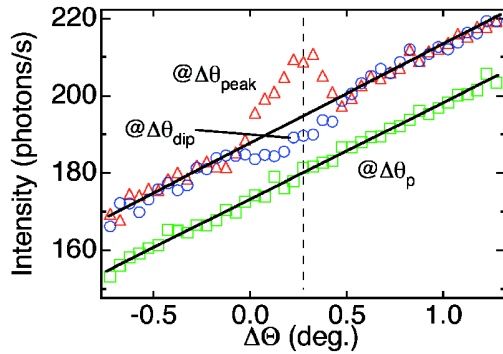


Fig. 5 Scattering angle dependence of the signal intensity with $E_s = 10.9$ keV at three different glancing angles indicated in Fig. 4. The vertical line is the theoretical scattering angle of non-linear diffraction. The data measured at $\Delta\theta_p$ is shifted vertically by -10 for the clarity. The solid lines are provided as a guide to the eye.

6. パラメトリック変換と Compton 散乱との干渉¹⁵⁾

もしパラメトリック変換が起こることで Compton 散乱される X 線が減るのであれば、Compton 散乱は全方位で減るはずである。位相整合条件が満たされる方向でのみ Compton 散乱が減少するという観測結果は、パラメトリック変換と Compton 散乱とが干渉するためと考えられる。しかし、この干渉効果がどのような仕組みで起こるのかは未だに不明である。この節では、現在我々の考えている描像について説明する。

Fig. 4 のロッキングカーブを見ると、分光學でよく知られた Fano 型であることに気付く。Fano 型の共鳴は、連続状態の中に離散準位が埋没している場合に広く見られる現象である¹⁸⁾。我々はロッキングカーブを説明出来る一つの可能性として、Fano 効果との類似性に注目した。今の場合、位相整合したパラメトリック変換が離散準位に対応し、Compton 散乱された状態が連続状態と考えると対応が良い。

Fano 効果は、終状態からは連続状態と離散準位のどちらを通ったかを区別出来ない時に見られる量子力学的な干渉である（これは古典的な Young スリットを考えると分かりやすい）。従って 2 つの過程の終状態は同じでなければならない。ところがパラメトリック変換では 2 個の光子が生成されるが、Compton 散乱では 1 個の光子が生まれ同時に 1 つの電子が励起されるため、終状態が異なる。この時 2 つの異なる状態を結びつけるのが Fano の言う配置間相互作用である。我々のモデルでは、配置間相互作用としてアイドラー光の吸収による電子系の励起を考える。つまりパラメトリック変換された状態を $|\Psi_{param}\rangle$ とし、Compton 散乱された状態を $|\Psi_{Compton}\rangle$ とした時、

$$\langle \Psi_{Compton} | H | \Psi_{param} \rangle = V_{E_i} \quad (6)$$

は有限である。ここで H はハミルトニアンである。この時 $|V_{E_i}|^2$ が配置間相互作用の強さを示す。これは非線形結晶内でのアイドラー光の寿命に他ならない。

以上の仮説のもとに Fano の式、

$$I(\Delta\theta) = I_b(\Delta\theta) + I_0 \left[\frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} - 1 \right], \quad (7)$$

$$\varepsilon = \frac{d|K_s|}{d\Delta\theta} \frac{(\Delta\theta - \Delta\theta_0)}{\Gamma/2}, \quad (8)$$

を用いて、ロッキングカーブにフィッティングする。ここで I_b は主に Compton 散乱によるバックグラウンド、 q は非対称因子、 $\Delta\theta_0$ は位相整合角である。規格化されたエネルギー、 ε 、は位相の不整合量、 Δk 、でも良いが、ここでは与えられた $\Delta\theta$ において位相整合条件を満たすシグナル光の波数とした。このような表示の方が元々の Fano 効果との対応が明快だからである。 $\hbar\Gamma = 2\pi|V_{E_i}|^2$ は、配置間相互作用によって決まる離散準位の線幅を与える。これは前述の議論と(6)により波数表示で、

$$\Gamma = 2\mu_i, \quad (9)$$

で与えられると考えられる。この幅は独立に求められた(4)の幅と一致する。

Fig. 4 に(7)でフィッティングした曲線を示す。このフィッティングでは、 I_b , q , I_0 の他、 Γ もパラメータとした。最も良く実験結果を再現したパラメータは、 $q = 1.6$, $I_0 = 5.5$, $\Gamma = 17.2 \mu\text{m}^{-1}$ であった。 Γ は予想値、 $2\mu_i = 8.6 \mu\text{m}^{-1}$ 、の倍程度である。このズレの原因は、有限の装置分解能による位相整合条件の広がりがあると考えられる。

なお本節の冒頭で述べたように、Fano 効果による説明は現時点では一つの可能性に過ぎないことを強調しておく。この他にも、シグナル光と Compton 散乱された X 線を電場で干渉させることによって Fano 型のロッキングカーブを導くことが出来る。しかし、この場合平均をとった後で干渉項が残るかという難点がある。これらの是非は今後の理論・実験両面からの検証により明らかにされる必要がある。

7. E_i 依存性¹⁹⁾

第 2 節で述べたように X 線パラメトリック変換では自由にエネルギーを選べるので、 $E_i = 40$ eV ($E_s = 10.96$ keV) から 130 eV (10.87 keV) までの広いエネルギー範囲で X \rightarrow X + EUV パラメトリック変換がどうなっているかについて調べた。

Fig. 6 にそれぞれのエネルギーで測定されたロッキングカーブを示す。ここでは角度を位相整合条件からのズレ角、 $\Delta\theta - \Delta\theta_0$ 、で表示している。というのも Bragg 角から

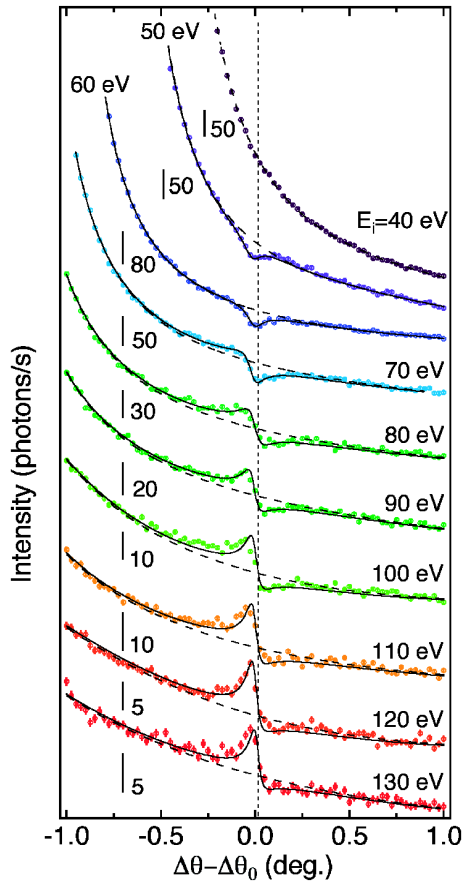


Fig. 6 Rocking curves of the nonlinear diffraction measured around various phase-matching conditions for the idler energies from $E_i=40$ to 130 eV. The vertical bars indicate the scale for each curve. The dashed lines are the polynomial fitting to the background. The solid lines are the fitting with (10).

測った位相整合条件の角度, $\Delta\theta_0$, が, $E_i=40$ eVでの 0.098° から, 130 eVでの 2.52° まで大きく変化するためである。測定されたロックンクカーブには, 計算された $\Delta\theta_0$ でパラメトリック変換による構造が見られている。

まず気が付く点は, ロックンクカーブの形がエネルギーと共に劇的に変化することである。 $E_i=130$ eVでほぼローレンツ型のロックンクカーブは, エネルギーが下がると徐々に非対称になっていく。80 eV付近でピークとディップの大きさが等しくなった後, ピークは小さくなっていき, ディップのみになる。50~60 eVでは, パラメトリック変換と Compton 散乱は打ち消し合っていることが分かる。

このエネルギー変化を定量的に扱うために, それぞれのロックンクカーブを(7)でフィッティングした。フィッティングにより再現した曲線を **Fig. 6** に, パラメータを **Fig. 7** に示す。非対称因子, q , はロックンクカーブの形状を反映して, E_i が大きくなるにつれてディップを表す $q=0$ から, ローレンツ型を表す $q=\infty$ に向けて徐々に大きくなっていく。また信号の見かけ上の強度に関する I_0 は E_i

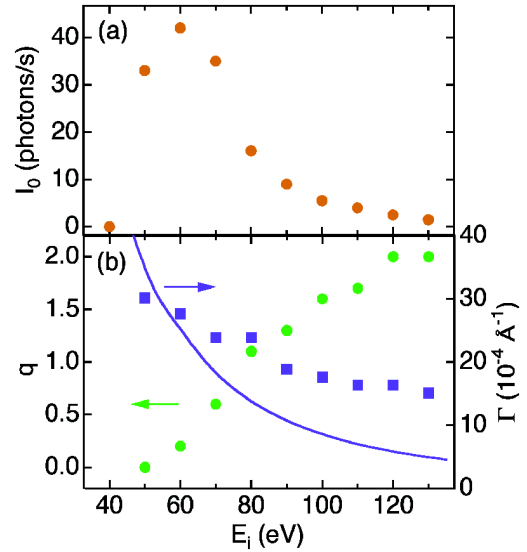


Fig. 7 E_i -dependence of I_0 , q , and Γ . The solid line in (b) is $\Gamma=2\mu_i$.

= 60 eVでピークを持つ。その低エネルギー側では急激に0になる。この依存性は興味深い。なぜなら直感的には $E_p=12$ eV 付近の価電子帯-伝導帯励起に向けて, 共鳴的な信号強度の増大が予測されるからである。しかし, 実際は急激な減少が起こっているのである。

Fig. 6 のフィッティングでは(8)の Γ もパラメータとしたが, これは先の議論によれば(9)で与えられると考えられる。**Fig. 7(b)** にダイヤモンドの振幅吸収係数から計算した Γ を重ねてプロットする。 E_i の小さい領域では比較的良く一致しているが, 大きくなるに従ってズレが現れる。このズレは先に述べたように装置関数に起因すると考えられ, 線幅が狭い高エネルギー側でズレが顕著になっていることを定性的に説明する。なお Fano 効果を仮定すれば, フィッティングパラメータから $\chi_{\text{III}}^{(2)}(E_i)$ を求められるが, 本稿ではこれ以上立ち入らない。

8. まとめと展望

以上が今回発見された $X \rightarrow X + \text{EUV}$ パラメトリック変換と Compton 散乱との干渉効果である。これを定量的に解析して $\chi_q^{(2)}$ を求めるには, 干渉の物理的な描像を明らかにする必要がある。その上でモデル物質であるダイヤモンドで $\chi^{(2)}(r)$ を再構成することが出来れば, どの電子が非線形応答に関与しているが明らかにされる。その結果, 結合電子が応答しているのであれば, 第2節で述べたように $X \rightarrow X + \text{EUV}$ パラメトリック変換の物質科学への応用が開けてくると期待される。このような脚本で, 我々は現在様々な条件下で基礎データの蓄積と理論的検討を続けている。

本稿では, X線非線形光学の内, 2次の非線形応答であるパラメトリック下方変換を取り上げた。その中でも特に

アイドラー光が EUV 領域にある場合について詳しく見てきた。パラメトリック下方変換に限っても、第2節で述べたようにアイドラー光のエネルギーを変えた時に何が $\chi^{(2)}$ を決めるのか不明な領域が存在する。さらにパラメトリック下方変換以外にも、和・差周波発生⁹⁾、2光子吸収²⁰⁻²⁵⁾、2光子発光^{26,27)}、軟X線領域ではあるがコヒーレント Raman 散乱²⁸⁾などが議論されており、一部には実験報告もある。これらを含めた X線非線形光学の全体像については本稿の範囲を超えてしまうので割愛したが、X線非線形光学が X線物理の中で相応の分野を築くだけの内容を持っていることが想像出来ると思う。そして近い将来 X線自由電子レーザーが実現された暁には、X線非線形光学と様々な応用研究が飛躍的に発展するものと期待している。現在は非線形光学から見た末踏領域としての関心の方が高く感じるが、本稿により放射光コミュニティーの中でも X線非線形光学の認知が高まれば幸いである。

謝辞

本研究では理化学研究所の西野吉則博士、田中義人博士、及び東京大学の五神真教授、永長直人教授、東京工業大学の村上修一准教授に有益な助言・議論をして頂いたことをここに感謝する。本稿で紹介した実験の成功は、軌道安定化、低エミッタンス運転、トップアップ運転などの SPring-8 高度化の賜である。これらのプロジェクトに携わってきた SPring-8 関係者に感謝する。また本研究の一部は科研費萌芽研究 (19654045) の助成を受けたものである。

補遺 A. 非線形波動方程式の解

計算を進めるために、“Bragg ケースの対称反射”配置を仮定する。これはポンプ光の入射面からシグナル光が出てくるという意味である。また Fig. 1(b) のように K_s と K_i は反平行とする。電場強度を $\mathcal{E}(r) = A(r) \exp(ikr)$ と書き、 A の空間変化は小さいと仮定する。すると(3)は簡単に出て、

$$\frac{\partial A_s}{\partial \xi} = \kappa_s A_i^* e^{i\Delta k \xi}, \quad (\text{A1a})$$

$$\frac{\partial A_i^*}{\partial \xi} = \kappa_i^* A_s e^{-i\Delta k \xi} + \mu_i A_i^*, \quad (\text{A1b})$$

となる。ここで k_s の方向に ξ 軸をとった [Fig. 1(b)]。また結合定数、 κ は、

$$\kappa_s = 2\pi i K_s^2 \chi_Q^{(2)} A_p / |k_s|, \quad (\text{A2a})$$

$$\kappa_i^* = -2\pi i K_i^2 \chi_Q^{(2)*} A_p^* / |k_i|, \quad (\text{A2b})$$

である。なお本稿では、ポンプ光は十分強くかつ3波の結合は弱い場合を扱うので、ポンプ光の波動方程式は考え

ない。

(A1)を解くのは初等的であるが、非常に道のりが長く本稿の範囲を超えてしまう。そこで簡単のために、(A1b)に含まれるアイドラー光の吸収の効果を(A1a)で $\Delta k \rightarrow \Delta k - i\mu_i$ として取り入れる。なおアイドラー光は ξ の負の向きに進むことを注意しておく。こうすると(A1a)は、

$$\frac{\partial A_s}{\partial \xi} = \kappa_s A_i^* e^{(i\Delta k + \mu_i)\xi}, \quad (\text{A3})$$

となる。 A_i の変化を無視して、 ξ 方向に積分すると、

$$A_s(0) = A_s(-l) + \frac{\kappa_s A_i^*}{i\Delta k + \mu_i}, \quad (\text{A4})$$

を得る。(A4)から分かるように、観測されるシグナル光はアイドラー光のミキシング項に因る。シグナル光のパラメトリック増幅項が無いが、これは(A1)を真面目に解くと κ の高次の項として現れる。なお吸収が無い場合は、(A4)とは表式が異なるが、ミキシング項とパラメトリック増幅項は同じ寄与を与える³⁾。また適切な境界条件の下で(A1)を解くと、(A4)の A_i と $A_s(-l)$ はそれぞれのエネルギーでの零点振動になることが分かる。厳密に言えば、零点振動であることを示すには電磁場の量子化(第2量子化)を行わなければならない。

参考文献

- 1) P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich: Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
- 2) L. Mandel and E. Wolf: “Optical coherence and quantum optics” (Cambridge University Press, 1995), p. 507.
- 3) D. A. Kleinman: Phys. Rev. **174**, 1027 (1968).
- 4) B. Adams: “Nonlinear Optics, Quantum Optics, and Ultrafast Phenomena with X-rays” (Kluwer Academic Publishers, 2003).
- 5) 非線形光学の教科書として R. W. Boyd: “Nonlinear Optics” (Academic Press, 2003); Y. R. Shen: “The Principles of Nonlinear Optics” (Wiley & Sons, 2003); N. Bloembergen: “Nonlinear Optics” (World Scientific, 1996).
- 6) I. Freund and B. F. Levine: Phys. Rev. Lett. **23**, 854 (1969).
- 7) I. Freund: Chem. Phys. Lett. **12**, 583 (1972).
- 8) I. Freund and B. F. Levine: Phys. Rev. Lett. **25**, 1241 (1970).
- 9) P. M. Eisenberger and S. L. McCall: Phys. Rev. A **3**, 1145 (1971).
- 10) H. Danino and I. Freund: Phys. Rev. Lett. **46**, 1127 (1981).
- 11) P. Eisenberger and S. L. McCall: Phys. Rev. Lett. **26**, 684 (1971).
- 12) Y. Yoda, T. Suzuki, X.-W. Zhang, K. Hirano and S. Kikuta: J. Synchrotron Rad. **5**, 980 (1998).
- 13) B. Adams, P. Fernandez, W.-K. Lee, G. Materlik, D. M. Mills and D. V. Novikov: J. Synchrotron Rad. **7**, 81 (2000).
- 14) K. Tamasaku, T. Ueda, D. Miwa and T. Ishikawa: J. Phys. D: Appl. Phys. **38**, A61 (2005); 玉作賢治, 石川哲也: 放射光 **19**, 92 (2006).

- 15) K. Tamasaku and T. Ishikawa: Phys. Rev. Lett. **98**, 244801 (2007).
- 16) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan: Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
- 17) M. Yabashi et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **467-468**, 678 (2001).
- 18) U. Fano: Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
- 19) K. Tamasaku and T. Ishikawa: Acta Cryst. **A63**, 437 (2007).
- 20) I. Freund: Opt. Comm. **8**, 401 (1973).
- 21) F. Ehlötzky: Opt. Comm. **13**, 1 (1975).
- 22) N. Tzoar and M. Jain: Opt. Comm. **19**, 417 (1976).
- 23) M. Jain and N. Tzoar: Phys. Rev. A **15**, 147 (1977).
- 24) N. Tzoar and M. Jain: Opt. Comm. **24**, 153 (1978).
- 25) C. Buth, R. Santra and L. Young: Phys. Rev. Lett. **98**, 253001 (2007).
- 26) Y. Bennett and I. Freund: Phys. Rev. Lett. **49**, 539 (1982).
- 27) R. W. Dunford, E. P. Kanter, S. H. Souhworth and L. Young: Phys. Rev. A **67**, 054501 (2003).
- 28) S. Tanaka and S. Mukamel: Phys. Rev. Lett. **89**, 043001 (2002).

● 著者紹介 ●



玉作賢治

理化学研究所播磨研究所放射光科学総合
研究センター 専任研究員

E-mail: tamasaku@spring8.or.jp

専門: X線光学

【略歴】

1996年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。博士(工学)。理化学研究所マイクロ波物理研究室研究員, 同X線干渉光学研究室研究員を経て, 2008年4月より現職。



石川哲也

理化学研究所播磨研究所放射光科学総合
研究センター センター長

E-mail: ishikawa@spring8.or.jp

専門: X線光学

【略歴】

1982年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。工学博士。高エネルギー物理学研究所放射光実験施設助手, 東京大学工学部助教授, 理化学研究所マイクロ波物理研究室主任研究員を経て, X線干渉光学研究室主任研究員。加速器工学, X線光学等の研究に従事。2006年10月より現職。



澤田 桂

理化学研究所播磨研究所放射光科学総合
研究センター 基礎科学特別研究員

E-mail: sawada@spring8.or.jp

専門: 光学理論

【略歴】

2007年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。博士(工学)。2007年4月より現職。

Recent progress of nonlinear optics in hard x-ray region

Kenji TAMASAKU

RIKEN Harima Institute,
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

Kei SAWADA

RIKEN Harima Institute,
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

Tetsuya ISHIKAWA

RIKEN Harima Institute,
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

Abstract Theoretical and experimental investigation is reported for parametric down-conversion of x-rays into extreme ultraviolet (EUV), which is one of the nonlinear optical phenomena in the x-ray region. A Lorentzian rocking curve is deduced for nonlinear diffraction accompanying with the parametric down-conversion. The measurements with a high signal-to-noise ratio reveal that the rocking curve has an asymmetric shape, which contradicts the calculation, and that the energy of EUV changes the line shape drastically. These observations indicate interference between the parametric down-conversion and Compton scattering. An analogy to Fano effect is discussed.