

「高効率に高次高調波を出す固体物質の探索と超高速スピンドYNAMICSへの応用」
 兵庫県立大学大学院理学研究科 和達 大樹

1 研究の背景と目的

これまでの 20 世紀の物質科学では、物質内の電子の自由度のうち電荷を用いるものが主流であった。これが半導体などのエレクトロニクスを生み出した。21 世紀に入り、電子の自由度のうちスピンを用いるスピントロニクスが盛んに研究されている。スピンは電荷と違い散逸が少ないことから、ロスが少ない輸送が物質内で実現し、省エネルギーに貢献することが大いに期待されている。

スピントロニクスにおいて、強磁性体は特に重要な要素物質であり、特に強磁性体のスピンを磁場でなく超短パルスレーザーにより、1 ピコ秒以下の超高速で制御することが強く求められている。本研究の目的は、上記のような超高速なスピンドYNAMICS測定のために、実験室超短パルスレーザーから高効率に高次高調波発生(HHG)を行うことのできる固体物質の探索を行うことである。このような HHG を超高速な軟 X 線源として用いることにより、SACLA などの X 線自由電子レーザー(XFEL)のような大規模施設と相補的にスピンドYNAMICSを解明することを目標とする。

本研究の独創性は、XFEL と相補的に HHG を用いた元素別スピンドYNAMICSを目指すこと、特に HHG の発生源として固体物質を用いることである。これまで実験室超短パルスレーザーからの HHG は気体からのものが主に研究されており、固体からのものは最近注目され始めたが、まだダイナミクス測定への応用がなされていない。このような状況下で、高効率な HHG を可能にする固体を発見することで、光源開発と物質科学を統一するような、全く新しいダイナミクス研究のパラダイムを作ることができると考えている。

2 研究方法・研究内容

X 線を用いることにより、元素ごとに吸収端のエネルギーを用いて、元素選択的にスピンドYNAMICSを観測することができる。また、スピン状態の観測には、左右の円偏光の吸収率の差である X 線磁気円二色性(XMCD)を使うのがふさわしい。このような背景のもと、我々は、固体 HHG を用いた時間分解 XMCD 装置の開発を目指した。

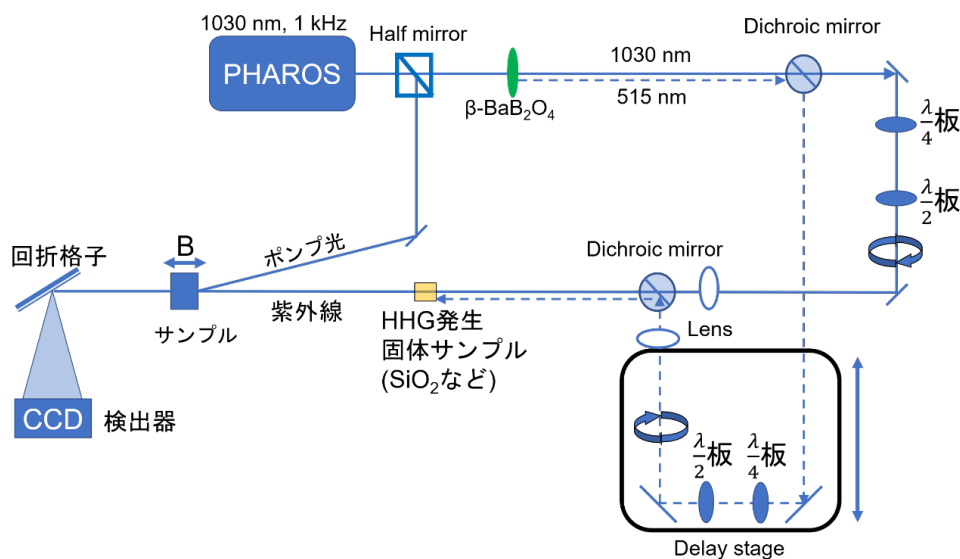


図1 HHG を用いた時間分解 XMCD 装置の概略。

時間分解 XMCD 装置の開発には、ポンプ光パルスレーザーと同期した X 線の発生が必要である。固体による HHG は基本波の奇数次光のほか、気体による HHG では発生しない偶数次光も得られる。そのため、X 線領域における光の連続性が得られる上、発生効率が良い点、取り扱いが気体に比べて容易である点で優れている。取り扱いが容易であるために、より汎用的な研究が可能となり、スピンドYNAMICS 解明の促進につながる。しかし、現在では気体を用いた HHG が一般的であり、固体 HHG はその発生メカニズムなどに未解明な点が多く、開発が遅れている。固体 HHG は気体 HHG と比較し、その発生原理が大きく異なることも知られており、X 線光源として開発の余地が大きい。このような理由から、時間分解 XMCD 装置に固体 HHG による X 線発生を適用し、スピンドYNAMICS 研究への実用化を目指したいと考えた。図 1 に、本研究で目指す装置の概略を示す。

3 研究成果

本研究では、元素別のスピンドYNAMICS の観測を可能とする汎用型実験室装置の開発を目指し、HHG 装置の開発を行った。

(a) 高次高調波の検出装置の建設

高次高調波の検出装置を設計し、組み立てた。本研究では、紫外線から軟 X 線のエネルギー範囲の光の検出するため、高次高調波装置はすべて真空にしなければならない。そのため、我々は、3 つの真空チャンバーを用意し、それぞれ 10^{-5} Pa 以上の真空環境を構築した。3 つのチャンバーはそれぞれ光源側から、高次高調波の発生チャンバー、発生した高次高調波の集光を行うためのミラーチャンバー、高次高調波の検出を行うためのスリット・回折格子・CCD 検出器を備えた検出チャンバーである。発生した高次高調波のうち 8-18 次光の検出を行えるように、回折格子と CCD 検出器の位置調節を行った。

(b) レーザー電場強度の最適化

HHG に必要なレーザー電場が達成しているかどうかにも検討すべき点である。SiO₂ により HHG が引き起こされるためには、 0.6 V/\AA がしきい値である。我々は、焦点距離 $f=200 \text{ mm}$ のレンズでレーザー基本光を集光し直径 $50 \mu\text{m}$ (ナイフエッジスキャンによる値) まで絞った。これにより、最大で 2.1 V/\AA を達成した。この値は過去の文献 (Tran Trung Luu et al., Opt. Lett. **43**, 1790 (2018)) において高次高調波を観測した際のレーザー電場 0.6 V/\AA を超えており、SiO₂ において HHG に十分なレーザー電場を達成したと考えられる。

(c) SiO₂ における第 2 高調波、第 3 高調波の検出

次に SiO₂ を用いた HHG を試みた。SiO₂ に波長 1030 nm の超短パルスレーザー PHAROS を 1 kHz 、 250 mW のパワーでサンプルに集光し、分光器 CCS100 (Thorlabs 社製) による第 2 高調波 (SHG: Second Harmonic Generation)、第 3 高調波 (THG: Third Harmonic Generation) の観測を行った。図 2 にそのスペクトルを示す。このように、整数倍のエネルギーを持つ光 (SHG: 515 nm , THG: $\sim 343 \text{ nm}$) のスペクトルを観測することができた。これらの観測は、それより高次の高調波の発生を反映しており、紫外線以上の HHG 検出に向けて非常に重要なステップである。

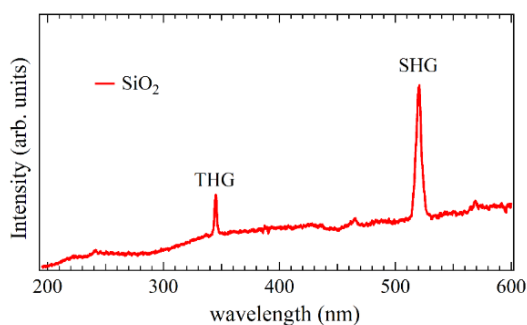


図 2 SiO₂ から発生した第 2 高調波および第 3 高調波のスペクトル。

図 2 SiO₂ から発生した第 2 高調波および第 3 高調波のスペクトル。

(d) HHG 装置の開発

図3に、本研究課題で建設した高次高調波発生装置の写真を示す。超短パルスレーザーとして 1030 nm の波長をもつ超短パルスレーザー-PHAROS を用いている。このレーザーをレンズで集光し、SiO₂ の結晶に照射する。ここで、基本光の整数倍のエネルギーを持つ光が発生する HHG が起こる。ここで発生した光のエネルギーは紫外線、軟X線まで届き、パルスレーザー光の周波数と同期した超短パルスを持つX線を発生させることができる。今回、アルミニウムフィルタとしてピンホールの少ないものを選び、基本光と SHG などの除去を行っている。トロイダルミラーにより、発生した高次高調波をスリットに向かって集光している。スリットの後には、発生した高次高調波を回折格子によりエネルギーごとに分光し、CCD 検出器に入射する配置となっている。

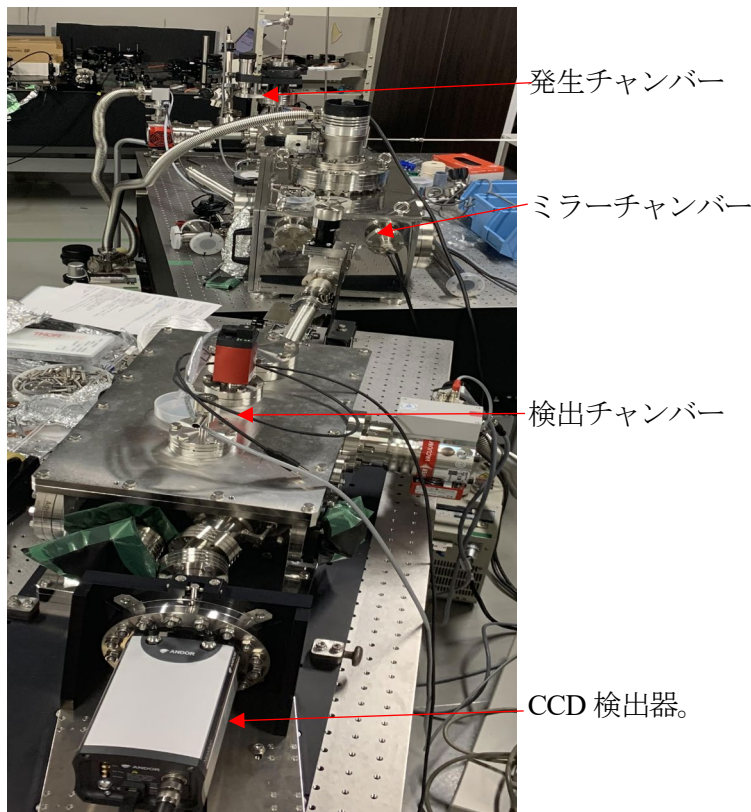


図3 本研究によって建設された HHG 装置の写真。

特に、ミラーチャンバーの位置調整が重要である。ここでミラーとして、トロイダルミラーを用いている。発生した高次高調波はミラーチャンバーに送られ、トロイダルミラーによって集光される。HHG 光源とトロイダルミラー、トロイダルミラーと測定試料の距離は両方とも 1 m に設定され、入射角は 10 度である。トロイダルミラーは、水平方向と垂直方向の曲率が異なる非球面ミラーであり、レンズ・ミラー・レンズの 3 つの光学部品が 1 つになった機能を持っている。トロイダル面の反射だけで波長の影響を受けず、色収差が発生しないという大きな長所がある。今回使用されたトロイダルミラーの基板材質は石英であり、サイズは 120 mm × 15 mm × 12 mm である。曲率半径は、水平面曲率半径: $R_1 = 5758.8$ mm、垂直面曲率半径: $R_2 = 173.65$ mm である。金で約 100 nm の厚さのコーティングがされている。我々は、このトロイダルミラーを調節し、検出チャンバーにおいてスリットに焦点が来るようにした。

次に、回折条件を考慮して、実際どの程度のエネルギーを持つ高次高調波が検出できる

かを検討した。ここでは、300本/mmの反射型回折格子を用い、発生した高次高調波の分光を行った。ここで、どのくらいのエネルギーまで検出できるか、回折格子とCCDカメラの角度などを検討し、検出できる高次高調波の次数などを検討した。今回のセットアップで観測できるのは8-18次光の高次高調波となる。その一方、SiO₂におけるカットオフエネルギーは23次光の27 eVである (Tran Trung Luu et al., Opt. Lett. **43**, 1790 (2018))。

アルミニウムフィルタによる低次光の除去も重要な点である。今回用いたものはNTT-AT社製の厚さ106 nmのフィルタである。このフィルタはミラーチャンバーのミラー後に配置した。基本波やSHGなどの強い低次光がカットされるため、高次高調波のみの観測を可能とする。これはCCD検出器が可視光や赤外光に対して感度をもつため、必須のものとなる。しかし、今のところ検出器には図4のように低次光由来のシグナルのみが観測されており、高次高調波の検出が今後の課題である。

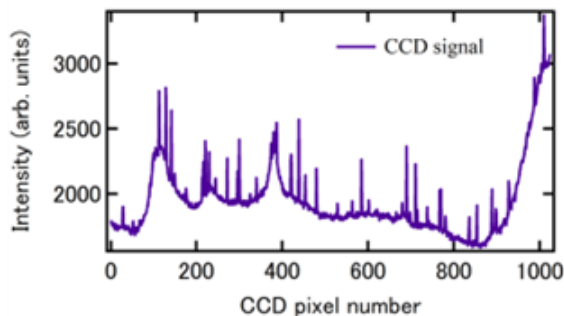


図4 CCD検出器で観測したSiO₂の高次高調波のスペクトル。低次光のシグナルが支配的であり、高次高調波はそれに埋もれている。

以上から、本装置の現状をまとめる。まず、超短パルスレーザーPHAROSが焦点距離100 mmのレンズによって集光され、SiO₂の試料位置において2.1 V/Åの電場を達成している。これはHHGに十分な強度である。発生したHHGはトロイダルミラーによって集光され、検出チャンバー内のスリットの位置に焦点位置がある状態となっている。また、300本/mmの反射型回折格子を用いており、計算の結果8-18次の高次高調波がCCDカメラによって検出できるようになっている。すべてのチャンバーは10⁻⁵Paの真空を達成している。CCD検出器に届く低次光のカットが課題となっている。

4 生活や産業への貢献および波及効果

本研究の成功により、実験室における元素別ダイナミクス測定的光源として、固体からのHHGが最も重要なものとなる。これに伴い測定装置の大幅な簡易化が可能となり、超高速な軟X線によるダイナミクス研究が実験室レベルで可能な普遍的なものとして普及することが考えられる。SACLAなどのX線自由電子レーザー(XFEL)のような大規模施設と相補的に、各実験室に一台のような形での広がりを目指したい。

このような基礎研究としての発見に加え、元素別スピンドイナミクス観測が実験室でも可能になることから、超短パルスレーザー照射による磁化反転などのメカニズム解明が劇的に進むと考えられる。これまでレーザー励起磁化反転の研究例が多い磁性体は、フェリ磁性合金GdFeCo、強磁性合金Pt/Co超格子などの希少金属を含む薄膜であった。今後はレアメタルを含まない系で磁化反転を示す材料系の発見を行い、持続可能な社会につなげる。

このように、電気を使わず光のみで制御ができるスピントロニクスを通じて、持続可能な社会を実現するという大きな波及効果がある。現在のスピンドイナミクス研究が非常に複雑な測定装置を必要としていることを鑑みると、今後高効率なHHGを可能にする固体物質を見つけることで、本分野のさらなるブレークスルーが来ることが予想できる。