

# 高調波発生 of 結晶方位依存性に基づく 5 次非線形感受率の測定

## Measurement of fifth-order nonlinear susceptibility from crystal orientation dependence of harmonic generation

東京大学<sup>1</sup> ○西澤 広貴<sup>1</sup>, 芦原 聡<sup>1</sup>

The University of Tokyo<sup>1</sup> ○Hiroki Nishizawa<sup>1</sup>, Satoshi Ashihara<sup>1</sup>

E-mail: nishi38@iis.u-tokyo.ac.jp

入射光の整数倍の周波数の光である高調波は、レーザーの波長変換や界面の分光などに応用されている。レーザーの高強度化に伴い、3次より高次の高調波が固体結晶で観測されており [1]、紫外・X線領域の光源やアト秒単位の時間分解分光などへの応用が期待されている。波長変換効率の計算や物質の定量分析には、入射光と高調波を結びつける関係式が必要となる。しかし、固体結晶の5次以上の高調波発生について、そのような関係式の報告はなかった。そこで、本研究では、固体結晶の5次高調波発生の解析式を導出した。さらに高調波発生の結晶方位依存性を計測し、解析式によるフィッティングを行うことで、5次非線形感受率 $\chi^{(5)}$ と3次非線形感受率 $\chi^{(3)}$ の定量的な関係を得た。

反転対称性を持つ立方結晶の非線形感受率テンソル $\chi^{(5)}$  [2]により表された、入射光・3次高調波・5次高調波の連立波動方程式を解き、5次高調波強度の解析式を導出した。5次高調波強度の結晶方位依存性は、結晶軸と(001)面内の電場の振動方向がなす角度を $\theta$ として $I(\theta) = \alpha \cos(8\theta) + \beta \cos(4\theta) + \gamma$  ( $\alpha, \beta, \gamma$  は $\chi^{(3)}$ および $\chi^{(5)}$ を含む係数)となる。

中心波長 2.1  $\mu\text{m}$ 、半値全幅 0.2  $\mu\text{m}$ 、エネルギー 1.0  $\mu\text{J}$  のパルスをも、MgO 結晶の(001)面に垂直に入射した時の高調波を計測して、理論式によるフィッティングを行った。

5次高調波強度の入射光強度依存性を Fig.1 に示す。5次高調波強度が入射光強度の5乗に比例する領域が確認できる。5次高調波強度の結晶方位依存性の計測結果を Fig.2 に示す。導出された解析式と一致する結晶方位依存性が計測された。上述の式によるフィッティングにより $\alpha/\beta = -0.06, \beta/\gamma = -0.55$ を得た。これは、 $\chi^{(3)}$ を基準とした、 $\chi^{(5)}$ の解析的な表現に相当する。

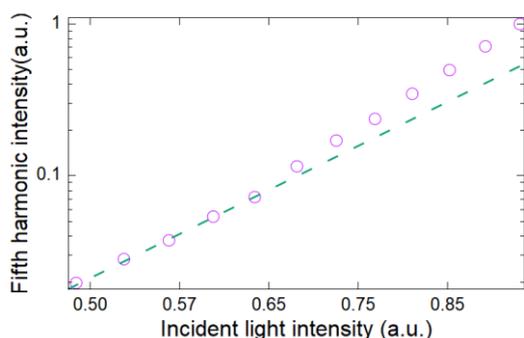


Fig.1 Dependence of the fifth harmonic intensity on incident light intensity. Green dashed line is in proportion to fifth power of incident light intensity.

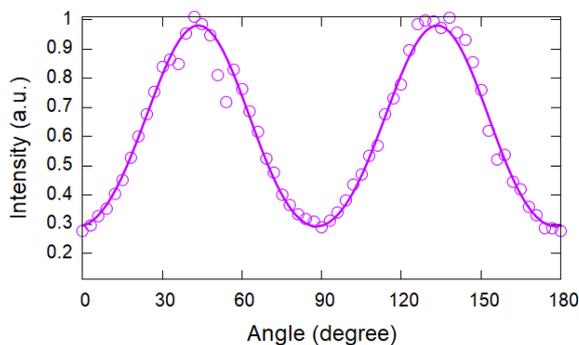


Fig.2 Dependence of the fifth harmonic intensity on orientation of MgO crystal : measured (marked) and fitted (solid line).

[1] Y. S. You, et al. *Nat. Phys.* **13**,345-349 (2017).

[2] S. V. Popov, *Susceptibility tensors for nonlinear optics*. Routledge (2017).