

固体からの高調波発生における回転ドップラーシフトの観測

Observation of Rotational Doppler Shift in Harmonic Generation of Solids

東大院理 ○小松原 航、小西 邦昭、湯本 潤司、五神 真

Graduate school of Science, The Univ. of Tokyo

°Wataru Komatsubara, Kuniaki Konishi, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami

E-mail: komatsubara@gono.phys.s.u-tokyo.ac.jp

電場や非線形媒質の対称性を利用した高調波発生は、円偏光の高調波発生やキラル分子の測定などに応用され、精力的に研究されている[1]。対称性に基づく高調波発生は電場のスピン角運動量(Spin Angular Momentum, SAM)と物質の角運動量の保存則を考えると統一的に理解できる。例えば、円偏光を3重回転対称の物質に入射した場合、逆回り円偏光の第2次高調波が発生する(Fig. (a))。このとき、入射電場の $2\hbar$ のSAMに対して高調波のSAMは $-\hbar$ となるが、物質は離散回転対称性により $3\hbar$ の角運動量を受け取り、SAM保存則が成立する。このとき、物質はこのSAMによって励起されるわけではなく基底状態のままトルクとして角運動量を受け取る。一般的に、結晶が n 重回転対称の場合、 n の整数倍のSAMを受け取ることができる。結晶にSAMを散乱する過程はフォノンにおけるUmklapp散乱の類推で理解することができる[2]。

このような角運動量の授受のプロセスを直接観測することは非常に難しいが、物質を回転させることによって、回転ドップラーシフト(Rotational Doppler Shift, RDS)と呼ばれる、電場とのSAMの授受に対応したエネルギーシフトが生じる[2]。これまでに、角周波数 Ω で回転する3重回転対称の物質から生じる第2次高調波において、 $3\hbar$ のSAMに対応する 3Ω のエネルギーシフトが観測されている[3]。一方、物質が1重回転対称である場合、 $\hbar$ の任意の整数倍のSAMを交換できるため、上記の過程に加えてもう1つのSAMの交換プロセスが生じる(Fig. (b))。この2つのプロセスは、交換されるSAMの大きさが異なる($\hbar$ と $3\hbar$)ため、第2次高調波には異なるドップラーシフトの大きさを持つ成分が観測されるはずである。本研究では、1重回転対称媒質におけるRDSを測定し、実際にこのような2つの過程の観測を試みた。

実験では、円偏光励起によって、4Hzで回転した1重回転対称媒質であるZnO(11-20)面からの高調波を発生させRDSを観測した。2倍波における実験結果をFig. (c)に示す。Fig. (b)にあるSAMの交換から予想される Ω , 3Ω に大きな2つのピークがあることがわかる。次に、3倍波におけるSAMの交換過程と実験結果をFig. (d)に示す。3倍波についてもSAMの交換から予想されるように、 2Ω と 4Ω の2つのメインピークを観測することに成功した。また、予想されるRDS以外の周波数に観測されているシグナルは、入射光の理想的な円偏光からの微小なずれによるものであることが明らかになった。本研究はRDSによってSAMの過程が2つ混在することを初めて実験的に観測したものであり、将来的には物質由来の高調波楕円率化の定量的解析等に応用できると考えられる。

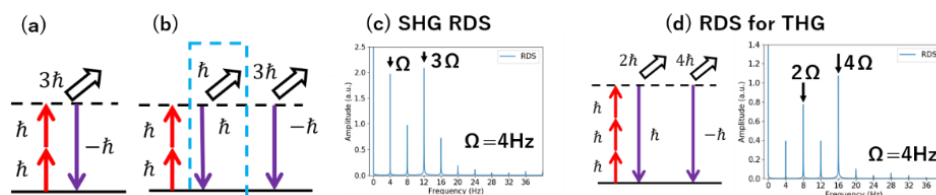


Figure : SAM exchange between photons and the crystal with (a) three-fold and (b) one-fold rotational symmetries. (c) Experimental result of RDS for SHG. (d) SAM exchange for THG and its experimental result of RDS.

[1] A. Fleischer *et al.*, Nat. Photon. **8**, 543 (2014). [2] H. Simon *et al.*, Phys. Rev. **171**, 1104 (1968). [3] G. Li *et al.*, Nat. Phys. **12**, 736 (2016).