

光のトポロジーを使った物性探索

北海道大学 大学院工学研究院 戸田泰則

多様な物性を考える際に、対象となる系を単純化することは、その本質を見きわめる上で重要である。トポロジーは”つながり方”に着目することで、様々な物性探索に適用されてきた。それでは光と物質の相互作用を通して、トポロジー物性を探索することは可能だろうか。そもそも光におけるトポロジーとは一体何だろう。光渦やツイスト光、ラゲールガウス光などの呼び名で知られる光波は、らせん状の波面（等位相面）を持ち、閉曲線に沿った位相変化の積分はトポロジカルチャージ（軌道角運動量）を与える。このとき空間位相変化は、1) 強度暗点、2) 位相特異点、3) らせん状の位相勾配といった従来のレーザー分光に無い特徴を利用可能にする。本授業では、このようなトポロジカル光波の基礎事項について解説し、光波の持つ3つの特徴が光物性領域でどのように活用されているか紹介する。特にトポロジカルな性質を利用した時間分解分光における我々の取り組みについて詳しく解説しようと思う。トポロジカル光波を使った分光は、従来利用されてこなかった空間位相変化に着目する点で革新的である。授業を通して当該領域の新しさ、面白さを伝えられればと考えている。

1 トポロジカル光波の基礎

1.1 トポロジカル光波の概要

本稿で主に扱うトポロジカル光波は、一般的に光渦の名称で呼ばれる。光渦とトポロジーを結び付ける最も大きな特徴は位相特異点の存在であり、伝播に伴う特異点の軌跡は様々な”つながり方”を見せる。このような光波の位相特異点に関係する光物理の歴史は古く、1800年代初期にまでさかのぼる [1]。位相特異点をもつ光波が光渦と呼ばれる所以は、特異点周りの位相勾配にある [2]。レーザー物理のキーワードを使うならば、光波の横モードに特徴を持つことになる。1.2 節にまとめるラゲールガウス光（もしくはラゲールガウスモード）は、主に光渦を単一横モードとして扱うときに使われ、レーザーの誕生と共に早くから特異点光学との関わりが認識されてきた [3, 4, 5]。またレーザー物理では利得媒質との非線型な相互作用を扱うので、ラゲールガウス光の研究は物性物理とも深くリンクし、対象となる媒質も原子ガスから半導体に至るまで広い領域に及ぶ。特に共振器パラメータを考慮すると横モードにおける渦の発現には渦格子の形成を含む様々なパターンが存在し、渦ダイナミクスや相互作用を考える上で理想的な研究対象として広く研究されるようになった [6, 7]。

他方、特異点のつながり方や渦ダイナミクスの観点から考えると、光渦の伝播も重要な研究対象である [8, 9, 10]。渦を形成する位相勾配は、伝播に際してらせん状の等位相面（波面）を描く（図 1(a) 左）。レーザーの基本モードであるガウス光の等位相面は光波断面で二次元平面を形成するから、光渦の波面はきわめて特徴的であるといえる。このようなトポロ



図 1: 本稿で扱うトポロジカル光波の概要: (a) 光渦 ($\ell = 1$ のラゲールガウス光) の波面 (左)、断面位相分布 (中央) および強度分布 (右)、(b) 径偏光渦 (左) と方位偏光渦 (右)

ジカルな波面構造を反映して、光渦はしばしばツイスト光やスパイラル光と呼ばれる。媒質中での伝播は、様々な非線型相互作用を通して、特徴的な渦ダイナミクスや渦系ダイナミクスを形成する [10, 11, 12]。光渦は強度暗点としての特徴を持つので、ダイナミクスの追跡が容易になり、その相互作用や物性を明らかにする上で有効である。光渦、とくにラゲールガウス (LG) 光の強度暗点は光波中心に位置し (図 1(a) 右)、回折限界に制限されない集光特性を持つので、ダイナミクス追跡以外にも、レーザー加工や蛍光色素を使った超解像イメージングに対して有効な手段として活用されている [13, 14, 15]。

つぎに光波の伝播に伴うエネルギーの流れ (ポインティングベクトル) を考えよう。らせん状の位相勾配を持つ光渦は、光波断面内で位相特異点を中心に回転するトルクを与える (図 1(a) 中央)。この回転成分が光波の軌道角運動量に対応することを 1.3 節で示す。1992 年に Allen らによって光渦と光の軌道角運動量の対応関係が示されたことにより [16]、光渦の研究は基礎・応用両面で大きく発展していくことになる。その重要性は、BEC を含む光マニピュレーション、レーザー加工、光情報処理、量子情報処理など多岐に渡る応用研究の多くが軌道角運動量を基盤として展開されている事実からも分かる [12, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29]。

他方、光波はもともと偏光 (電場ベクトル) という自由度を持ち、光学分野では光渦の運ぶ軌道角運動量よりも一般的である。円偏光自由度は電子のスピンと対応するので、物性分野との関わりも深い。1.4 節で取り上げる偏光渦は、偏光が光渦の位相分布と同様の空間分布、すなわち特異点周りに回転対称性を持つトポロジカル光波である。動径方向の偏光対称性を持つ偏光渦は径偏光渦、方位角方向の対称性を持つ偏光渦は方位偏光渦と呼ばれる (図 1(b))。実はベクトル光波としての偏光渦の存在は、スカラー光波としての光渦よりも古くから知られており [30]、光渦同様、レーザーの横モード発振特性のひとつとして研究されてきた [31, 32]。その後、集光された径偏光渦が強い縦電場を形成し、同時に電場に直交する磁場がゼロになるなど、従来の空間的に均一な偏光分布を持つ光波にはない特徴が示され、広く研究されるようになった [33, 34, 35, 36]。

このようにトポロジカル光波は長い歴史を持つと同時に、近年大きな進展が見られる領域である。応用分野も天文光学から生体操作まで、非常に幅広い [19, 37, 38]。これらをひと括りに俯瞰するのは難しいが、いずれも光波の空間特 (異) 性によって得られる機能を活用する点で共通している。この点に絞って、特に本稿で述べる物性探索の観点から基礎事項を次節以降にまとめておきたい。

1.2 ラゲールガウス (LG) 光

光渦の特徴を知るために、真空中を伝播する光波を考えよう。自由空間において光 (電場) の波動方程式は、

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1)$$

で記述されるベクトル波動方程式となる (c は光速)。単色光を仮定すると¹、電場 $\mathbf{E}$ の時間に依存する項は $\exp[-i\omega t]$ とおける。この結果、(1) 式は、見通しの良いベクトルヘルムホルツ方程式として $(\nabla^2 + k^2) \mathbf{E} = 0$ 、もしくは電場の向き (偏光) を無視したスカラーヘルムホルツ方程式として、 $(\nabla^2 + k^2) E = 0$ と表わされる ($k = \omega/c = 2\pi/\lambda$)。ここでは光波断面内に位相の空間分布を持つ場合を考えたいので、近軸近似を用いてさらに変形する。この近似は伝播の際に生じ得る急激な変化を無視することで成り立つ²。いま伝播方向を z 方向にとると、

$$\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} = 0, \text{ or } \left(\nabla_T^2 + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right) E = 0 \quad (2)$$

となる。(2) 式の解は座標系のとり方によって、様々な直交基底のバリエーションが存在する。 $E(\mathbf{r}, z) = u(\mathbf{r}, z) \exp[i(kz - \omega t)]$ とおくと、本稿で扱うエルミートガウス光 (Hermite-Gauss; HG) とラゲールガウス光 (Laguerre-Gauss; LG) は、それぞれ直交座標系と円柱座標系において展開され、

$$\begin{aligned} \mathbf{HG}_n^m : u_{m,n}(x, y, z) &= H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w(z)} \right] \cdot H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w(z)} \right] \\ &\cdot \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{x^2 + y^2}{w^2(z)} \right] \\ &\cdot \exp \left[-i(1 + m + n) \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) \right] \cdot \exp \left[-i \frac{k(x^2 + y^2)}{2R(z)} \right] \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{LG}_\ell^p : u_{\ell,p}(r, \phi, z) &= \sqrt{\frac{2p!}{\pi(p + |\ell|)!}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)} \right)^{|\ell|} \cdot L_{| \ell |}^p \left[\frac{2r^2}{w(z)^2} \right] \\ &\cdot \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{w^2(z)} \right] \cdot \exp[i\ell\phi] \\ &\cdot \exp \left[-i(1 + 2p + |\ell|) \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) \right] \cdot \exp \left[-i \frac{kr^2}{2R(z)} \right] \end{aligned} \quad (4)$$

と記述される。ここではフォーカス位置を原点 ($z = 0$) としている。いずれの場合も最低次の横モードはレーザー光の基本モードであるガウス光 (TEM_{00}) に対応し、高次モードはエルミート多項式 H_m^n (HG; $m, n \geq 0$ は任意の整数値) もしくはラゲール陪多項式 $L_{| \ell |}^p$ (LG; $p \geq 0, \ell$ は任意の整数値) による変調が加わる (表 1)。また、ガウス光を基準にとると、(3,4) 式に現れる各パラメータは表 2 のようにまとめられる。(4) 式の第二列には、光渦の特徴を反

¹パルス光を扱う際は単色光の集合と考えれば良い。

² $\left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right| \leq 2k \left| \frac{\partial E}{\partial z} \right|$, $\left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right| \leq \left| \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} \right|$, $\left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right|$, この近似は光線近似と等価である

表 1: 多項式のまとめ

エルミート多項式	$H_n(u) = (-1)^n e^{u^2} \frac{d^n}{du^n} e^{-u^2} = n! \sum_{m=0}^{\lfloor n/2 \rfloor} \frac{(-1)^m}{m! (n-2m)!} (2u)^{n-2m}$
ラゲール陪多項式	$L_p^{ \ell }(u) = \frac{u^{- \ell } e^u}{p!} \frac{d^p}{du^p} \left(e^{-u} u^{p+ \ell } \right) = \sum_{m=0}^p (-1)^m \binom{p+ \ell }{p-m} \frac{u^m}{m!}$

表 2: 各パラメータ (TEM₀₀ に対して w_0 を $z = 0$ としたとき) のまとめ

名称	パラメータ	単位
パワー	P	W
強度	$I = 2P/(\pi w^2)$	W/m ²
ビーム径 (I/e^2)	$w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2}$	m
ビームウェスト $w(0)$	$w_0 = \lambda/(\pi \text{NA})$	
波面の曲率半径	$R(z) = (z^2 + z_R^2)/z$	
レイリー長	$z_R = kw_0^2/2$	

映した方位角に依存して変化する位相項 $\exp[i\ell\phi]$ が現れる。この項の存在が、光渦の基本モードとして LG モードが扱われる所以であり、 ℓ はトポロジカルチャージに対応する。このとき等位相面を考えると、 z 軸に対してらせん状に変化する波面が描ける。また両式の第三列に現れるモード次数と z に応じて変化する位相項はグイ (Gouy) 位相と呼ばれ、トポロジカル位相の一種である [39, 40]。(3,4) 式から得られる強度分布を代表的な高次モードに対してまとめると、図 2 のようになる。LG モードに現れる円環 (ドーナツ) 状の強度分布は、光波の中心に存在する位相特異点に由来する。ここで、二つの異なる基底 (HG モードと LG モード) は、それぞれ (2) 式の解に対して独立な完全直交系を成すことを強調して

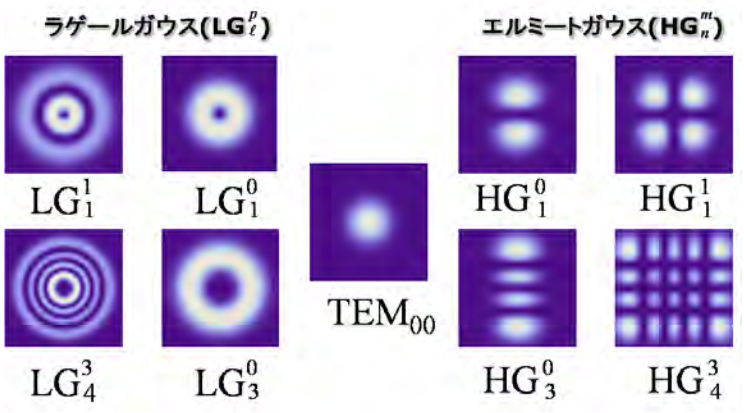


図 2: HG および LG モードの強度分布

おく。すなわち各モードは相互に変換可能である。また本稿で扱うトポロジカル分光では、空間位相を定量化する際に光波の横モードに着目する。近軸近似が成り立つ条件では、対象となる光波を異なる次数を持つ LG モードの線形結合として分解できる。これにより、各モードのパワースペクトルとして空間位相が定量化される。

1.3 光波の軌道角運動量

1992年に Allen らによって LG モードと光の軌道角運動量の対応関係が示されたことは、光渦の基礎・応用両面で飛躍的な進展をもたらした [16]。この対応を理解するために、ポインティングベクトル: $\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H}^3$ を考える。真空中で $\mathbf{S}$ は波数ベクトルと並行であり、波面に垂直な方向をとる。したがって方位角に依存して変化する位相項 $\exp[i\ell\phi]$ が存在すると、 $\mathbf{S}$ は方位角成分を持ち、これが軌道角運動量を与える。言い換えると方位角方向に変化する位相勾配によって形成されたらせん状の波面が軌道角運動量を与えることになる。

らせん状の波面の回転数で決定されるトポロジカルチャージと軌道角運動量を対応させておく。ベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ を用いて電場 $\mathbf{E}$ と磁束密度 $\mathbf{B}$ を表わすと

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \nabla \phi, \quad \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}. \quad (5)$$

ベクトルポテンシャルの時間依存項を $\exp[-i\omega t]$ とし、 $\mathbf{A} = \mathbf{n}u(r, \phi, z) \exp[ikz]$ と表記して⁴近軸近似のもとでローレンツ条件を用いると

$$\mathbf{E} = i\omega \left(\mathbf{n}u + \mathbf{z} \frac{i}{k} (\mathbf{n} \cdot \nabla_T) u \right) \exp[ikz], \quad \mathbf{B} = ik \left(\mathbf{z} \times \mathbf{n}u + \frac{i}{k} \mathbf{n} \times \nabla_T u \right) \exp[ikz] \quad (6)$$

となる。このときポインティングベクトル $\mathbf{S}$ は

$$\begin{aligned} \mathbf{S} &= \frac{1}{2\mu_0} (\mathbf{E}^* \times \mathbf{B} + \mathbf{B} \times \mathbf{E}^*) \\ &= i\omega \frac{1}{2\mu_0} (u^* \nabla_T u - u \nabla_T u^*) + \frac{\omega k}{\mu_0} |u|^2 \mathbf{e}_z + i\omega \frac{\varepsilon_0}{4} (\mathbf{n} \times \mathbf{n}^* - \mathbf{n}^* \times \mathbf{n}) \times \nabla_T |u|^2 \end{aligned} \quad (7)$$

と表わされる。第一項の $\nabla_T u$ により、位相勾配が $\mathbf{S}$ に対して垂直な面内成分（すなわち軌道角運動量）をもたらすことが理解できる。第二項は進行方向のみに与えられる光波の運動量である。他方、第三項の偏光に依存する項は、次に示すようにスピン角運動量に対応する。光の運動量（密度） $\mathbf{p}$ は $\mathbf{p} = (1/c^2) \mathbf{S}$ であり、次式で与えられる。

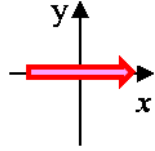
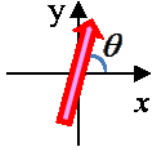
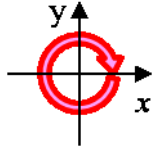
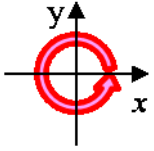
$$\mathbf{p} = i\omega \frac{\varepsilon_0}{2} (u^* \nabla_T u - u \nabla_T u^*) + \omega k \varepsilon_0 |u|^2 \mathbf{e}_z + \omega \sigma_z \frac{\varepsilon_0}{2} \frac{\partial |u|^2}{\partial r} \mathbf{e}_\phi. \quad (8)$$

ここで $\sigma_z = \pm 1$ は円偏光成分に対応し、スピン角運動量に対応する（直線偏光に対して $\sigma_z = 0$ ）。(8) 式より角運動量（密度） $\mathbf{j} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$ が算出される。いま任意の単一 LG モードを考えると、 $u(r, \phi, z) \propto \exp[i\ell\phi]$ なので、 z 方向に伝播する光波の角運動量（密度）は

³ エネルギー密度 $w_E (J/m^3)$ に対して $|\mathbf{S}| = cw_E (W/m^2)$

⁴ $\mathbf{n}$ は偏光を表わす $\mathbf{n} = \alpha \mathbf{e}_x + \beta \mathbf{e}_y$, $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$

表 3: 基本的な偏光状態に対するジョーンズベクトル

直線 (x) 偏光	直線偏光 (任意)	右回り円偏光	左回り円偏光
			
$\begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{bmatrix}$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}$

$$j_z = rp_\phi = \varepsilon_0 \omega \ell |u|^2 - \frac{1}{2} \varepsilon_0 \omega \sigma_z r \frac{\partial |u|^2}{\partial r} \quad (9)$$

となる。便宜的に光波の角運動量とエネルギーの比を表わすと次式のようになり、

$$\begin{aligned} \frac{J_z}{W} &= \frac{\int j_z r dr d\phi}{\int w_E r dr d\phi} = \frac{\ell}{\omega} \frac{\int |u|^2 r dr d\phi}{\int |u|^2 r dr d\phi} - \frac{\sigma_z}{2\omega} \frac{\int \frac{\partial |u|^2}{\partial r} r^2 dr d\phi}{\int |u|^2 r dr d\phi} \\ &= \frac{\ell}{\omega} + \frac{\sigma_z}{\omega} \longrightarrow \frac{\hbar \ell}{\hbar \omega} + \frac{\hbar \sigma_z}{\hbar \omega} \end{aligned} \quad (10)$$

一光子あたりの軌道角運動量は、 $\hbar \ell$ すなわちトポロジカルチャージ ℓ に対応する。くり返しになるが、 $\hbar \sigma_z$ はスピン角運動量であり、円偏光の場合に $\pm \hbar$ の値を持つ。全角運動量は $\hbar j = \hbar(\ell + \sigma_z)$ で与えられるので、例えば $\ell = 1$ の右回り円偏光を持つ光渦の全角運動量は一光子あたり $2\hbar$ 、左回り円偏光に対してはゼロとなる。

1.4 偏光渦

これまでに扱った光渦（もしくは LG モード）は一様な偏光分布を仮定した。本節では光波に偏光の空間分布がある場合を考えよう。偏光は電場 E の振動方向を表わし、伝播軸に垂直な断面内で時間変動するベクトルに対応する。任意の偏光は、2次元平面上の基本ベクトルのベクトル和 ($\mathbf{n} = \alpha \mathbf{e}_x + \beta \mathbf{e}_y$, $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$) に分解可能であり、しばしば表3に示すような行列表記（ジョーンズベクトルと呼ばれる⁵）で記述される。偏光に空間分布がある場合、ベクトルの各成分は位置の関数として $\mathbf{n}(x, y)$ または $\mathbf{n}(r, \theta)$ のように表わされる。特に方位角に対して直線偏光が回転する光波は中心に偏光特異点を形成し、（軸対称）偏光渦と呼ばれる。したがって光渦と同様、円環状の強度分布を示す。図1に示すように軸対称偏光渦は二種類存在し、偏光の方向に応じて径偏光および方位偏光と呼ばれる。ジョーンズベクトルで表記すると、径偏光は中心から放射状に広がる偏光分布 $\mathbf{RP} = \begin{bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{bmatrix}$ 、方位偏

⁵ $\mathbf{J} = \begin{bmatrix} \alpha \\ \beta \end{bmatrix} \longrightarrow \mathbf{n} = [\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y] \mathbf{J}$

光は中心に対して回転する偏光分布 $\mathbf{AP} = \begin{bmatrix} -\sin \phi \\ \cos \phi \end{bmatrix}$ を持つ。中心に特異点が形成されることから理解できるように、偏光渦は光渦と密接に関連している。実際に、径偏光と方位偏光はそれぞれ

$$\begin{aligned} \mathbf{RP} &= \begin{bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{e^{i\phi} + e^{-i\phi}}{2} \\ \frac{e^{i\phi} - e^{-i\phi}}{2i} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} e^{i\phi} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} + \frac{1}{2} e^{-i\phi} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \\ \mathbf{AP} &= \begin{bmatrix} -\sin \phi \\ \cos \phi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{e^{i\phi} - e^{-i\phi}}{2i} \\ \frac{e^{i\phi} + e^{-i\phi}}{2} \end{bmatrix} = i \left(\frac{1}{2} e^{i\phi} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} - \frac{1}{2} e^{-i\phi} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \right) \end{aligned}$$

のように一様円偏光をもつ $|\ell| = 1$ の光渦に分解される。すなわち軸対称偏光渦はトポロジカルチャージ $\ell = \pm 1$ の空間位相勾配を付けた右回りおよび左回り円偏光の重ね合わせである。また符号に着目すると、全角運動量はゼロとなることが分かる。

2 トポロジカル光波の生成と解析

2.1 LG 光の生成

光渦として、単一横モードの LG 光の生成を考える。LG 光は共振器モードの 1 つなので、レーザー発振モードとして直接取り出すことができる。実際、発振条件に応じて出現する LG モードやその複合モードによる特異点が古くから研究されており、現在では光学素子の損傷閾値に制限されない高出力な光渦の生成が実現されている [41, 42]。しかしながら、一般的に 1) 最低次モードでない LG 光を安定に取り出すために共振条件を厳密に最適化する必要がある、2) モードの変換性や制御性が低い等の制約があるため、分光応用などユーザー的な立場で光渦を利用する場合は、通常のレーザー発振モード（最低次ガウスモード）を外部光学系でモード変換する方法が良く用いられる。最も直観的なモード変換は、空間的な位相変調による最低次ガウスモードから LG モードへの変換であり、これはらせん状の空間位相 $\exp[i\ell\phi]$ を形成可能な光学素子（方位角に対して光路差を持つミラーや位相板、液晶型空間位相変調器など）を用いて実現される [43, 44]。モードの純度に制約がない場合は、この変調方法で十分対応可能な場合も多いが、一般的には方位角方向に精度を持つ光学素子の作製や、光波の中心と特異点を厳密に合わせることは難しい。また変調成分と非変調成分は同一方向に伝播するため分離が難しく、空間的なモードマッチングを必要とする分光応用の際には、誤差や精度の低下をもたらす大きな要因となる。2.1.2 節では、このような不必要なモードの混入を避けるため、ホログラム回折格子を用いる方法を解説する [45, 46]。またこれに先立つ 2.1.1 節では、光波のトポロジカルな性質の一種であるグイ位相を用いたモード変換について述べる [47]。いずれもモード変換として良く使われる方法である以上に、光渦の性質を理解するために重要な項目と含んでいる。ただし、いずれの方法も分散の影響を受けるため、広帯域光渦の発生には不向きである。したがって物性探索で良く用いられる超短パルス光渦の生成は、分散の効果を除去する工夫が必要である [48, 49]。

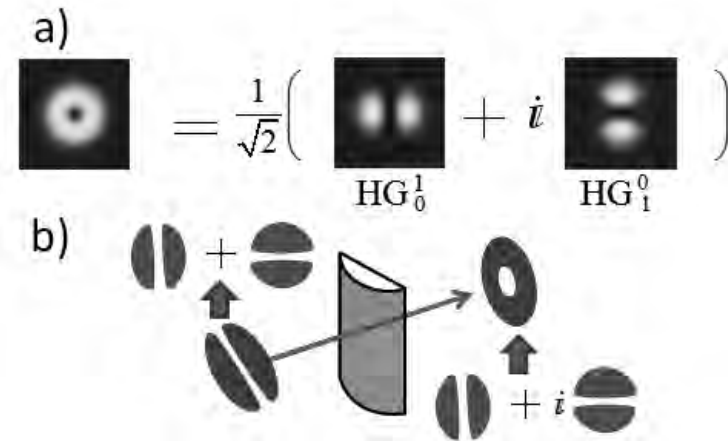


図 3: ギイ位相にもとづくモード変換の概念図

2.1.1 ギイ位相にもとづいたモード変換

1.2節でみたように、LG や HG モードは近軸波動方程式の完全直交系をなす解であり、それぞれ直交座標系もしくは円柱座標系で展開された基底で表わされる。このことはまた、各モードを別のモードの重ね合わせで記述できることを意味している。直観的な対応関係は、図 3(a) に示す例がわかりやすいかもしれない。この図で i は $\exp\left[i\frac{\pi}{2}\right]$ の位相項が加わることに対応するので、 45° 傾けたエルミートガウス光 $HG_0^1(45^\circ) = HG_1^1(x) + HG_0^1(y)$ 、に対して xy 方向に $\pm\frac{\pi}{2}$ の位相差を加えれば、ラゲールガウス光 $LG_{\pm 1}^0$ が得られる。位相差を形成するために、ここでは光波を集光する際に加わるギイ位相に着目してみよう。ギイ位相 $\Phi_G(z)$ は (3,4) 式の $\tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)$ を含む指数関数項に対して $\exp[-i\Phi_G(z)]$ で定義され、

$$\begin{aligned}\Phi_G^{HG}(z) &= \exp\left[-i(1+m+n)\tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)\right] \\ \Phi_G^{LG}(z) &= \exp\left[-i(1+2p+|\ell|)\tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)\right]\end{aligned}$$

のように記述される。したがって光波に加わるギイ位相は、集光したときのレイリー長 z_R に対する光波の伝播 z とモード次数に応じて変化する。このギイ位相に対し xy 方向に非対称な位相差を加えるため、シリンドリカルレンズを用いて $HG_1^0(x)$ と $HG_0^1(y)$ に異なる位相が加わるように調節する [47]。例えば、図 3(b) に示す $HG_0^1(45^\circ)$ の平行光を x 方向のみ集光可能なシリンドリカルレンズに通すと、 $HG_1^0(x)$ に加わるギイ位相 $\Delta\Phi_G^x(0) = \Phi_G^x(0) - \Phi_G^x(\infty) = \frac{\pi}{2}$ 、 $HG_0^1(y)$ に加わるギイ位相 $\Delta\Phi_G^y(0) = \Phi_G^y(0) - \Phi_G^y(\infty) = 0$ となり、位相差

$$\Delta\Phi_G(0) = \Delta\Phi_G^x(0) - \Delta\Phi_G^y(0) = \frac{\pi}{2}$$

となって、ラゲールガウス光 LG_1^0 が得られる。他方、 y 方向のみ集光可能なシリンドリカルレンズに通すと、 $\Delta\Phi_G^x(0) = 0$ 、 $\Delta\Phi_G^y(0) = \frac{\pi}{2}$ から、位相差 $\Delta\Phi_G(0) = -\frac{\pi}{2}$ となるので、 ℓ の符号が反転したラゲールガウス光 LG_{-1}^0 が得られる。実際にモード変換する際は、高次のエルミートガウス光を準備する必要がある。これには共振器モードとして取りだす方法や位

相板を用いる方法などが知られる [50, 51]。高次モードを用いる意味では、らせん状の位相差を加える光学素子を用いたモード変換と大差ないように感じるかもしれないが、簡便性や精度を考慮すると xy 方向の直線的な変調で生成可能な HG 光を用いる利点は大きい。また分光等を用いるためには LG 光を平面波として取り出したいので、一組のレンズ対とシリンドリカルレンズ対を対称となるよう配置した光学系が用いられる。この場合、 $\Delta\Phi_G(z) = \frac{\pi}{2}$ の位相差が加わるようにシリンドリカルレンズの位置を調節する必要がある。

2.1.2 ホログラム回折格子を用いたモード変換

ホログラム回折格子による像再生を用いると、光波の空間位相を再現できる。したがって参照光としてガウス光、物体光に再生したい光渦を仮定したホログラム回折格子を計算して記録しておけば、ガウス光を用いて任意の光渦が得られる。モード変換を考えるならば、LG 光波と最低次ガウス光波の干渉像をホログラム回折格子として準備すればよい [45, 48, 46]。ホログラム回折格子を用いることの大きな利点は、変調光を非変調光と分離して取り出すことができる点である。回折光は回折条件による指向性を持つので、位相変調を受けた光波と受けない光波は空間的に分離される。

ホログラム回折格子の生成には、液晶空間位相変調器 (spatial light modulator: SLM) を用いる方法が一般的である。SLM は 2 次元的に配置された液晶の配向方向を電場で制御することにより、位相変調を加える。ちょうど液晶ディスプレイを光波の透過や反射に対して最適化したものを思い浮かべてもらえればよい。液晶を用いるため光波による損傷閾値が低く、電極の吸収や散乱による光学損失も考慮する必要がある。このことは SLM を用いたモード変換の欠点といえる。光学損失に関しては、回折効率の影響も考慮しなければならない。このように SLM を用いる方法は欠点も多いが、モード変換に対する自由度はきわめて高く、複合モードの生成や動的制御も容易である。

次に、具体的なホログラム回折格子について考えよう。ガウスモードから単一 LG モードへの変換を例にとる。このときホログラム回折格子は z 方向に進行軸をもつ LG モード $E_{LG}(r, \phi, z) = u_{LG} \exp[i\ell\phi + ikz]$ と z 軸から x 方向に微小角 θ 傾いた方向に進行軸をもつ平面波 $E_G(x, y, z) = u_G \exp[i(kz - k\theta x)]$ が作る傾角干渉に対応し、干渉強度 $I(r, \phi, z_0)$ は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} I(r, \phi, z_0) &= |E_{LG}|^2 + |E_G|^2 + E_{LG}E_G^* + E_{LG}^*E_G \\ &= I_{LG} + I_G + 2u_{LG}u_G \cos(\ell\phi + k\theta x) \end{aligned} \quad (11)$$

したがって、ホログラム回折格子として図 4 に示すような x 方向に強度変調されたフォーク型の干渉縞 (特異点付近を除く縞間隔 $2\pi/k\theta$) が得られる。干渉縞の数が上下で変化しており、その分岐点は位相特異点に対応する。このような変調パターンをもつホログラムに対して、あらためてガウス光波を角度 θ で入射すると、透過電場 E_t は

$$E_t \propto E_G I = (I_{LG} + I_G) E_G + E_{LG} I_G + E_{LG}^* E_G E_G \quad (12)$$

となる。第一項は入射光に強度変化のみ加わった 0 次回折、その他の項が LG 光に変換された ± 1 次回折に相当する。

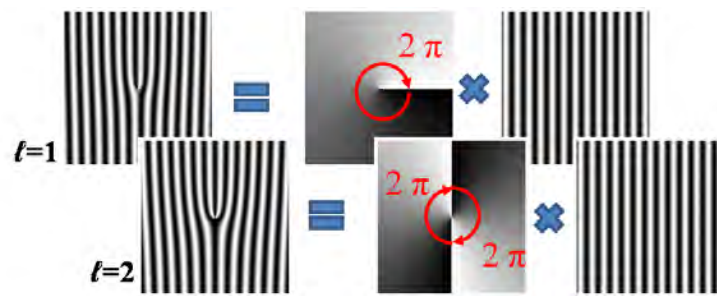


図 4: 方位角方向に位相変調をもつホログラム回折格子

実際に変調パターンを SLM 上で形成する際は、階調と位相変調の間の非線型特性を考慮する必要がある。また先述の通り、本手法は回折損失の影響が大きいので、可能な限り回折効率を高めるような変調パターンが工夫されている。ところで (11) 式で表わされるフォーク型の位相変調パターンは、方位角に依存する位相変調 $\exp[i\ell\phi]$ と回折格子の位相変調 $\exp[ik \sin \theta x]$ の掛け合わせと考えることができる。多光波干渉を考えると高次の回折光波が得られ、このとき方位角方向の位相変調は回折次数 m を用いて $\exp[im\ell\phi]$ となる。したがって一度に複数の次数を持つ LG モード変換が可能であり、これを利用した多重伝送や情報処理への応用が提案されている [22, 23, 28, 29, 52]。

2.2 光渦の解析

光渦の特徴は光波の空間特性に反映されるので、その解析にはエネルギー（波長）や強度、偏光とは異なる 2 次元的な取り扱いが必要となる。空間解析を行う意味では、技術的にイメージングや結像光学に近いと言えるだろう。以下では、光波の空間位相 $\exp[i\ell\phi]$ に着目した干渉測定 (2.2.1 節) と LG 光生成に用いたモード変換の逆過程を利用した解析方法 (2.2.2 節) を紹介する。干渉測定はもっとも直接的な空間位相解析手法として、広く用いられている [5, 53]。2.2.1 節では空間周波数フィルタリングを用いた解析方法を紹介する。他方モード変換を用いた解析手法は、HG モードもしくは最低次ガウスモードの特性を利用する。2.1 節で述べたようにモード変換にはグイ位相を利用する方法とホログラム回折格子を利用する方法がある [54, 46, 55]。詳細は小節に譲るが、前者は HG 光の強度パターン、後者は高次モード特性に着目することで光渦解析に利用される。

2.2.1 干渉測定

単一モードの LG 光とガウス光の干渉像には、図 4 に示した特徴的なフォーク型干渉が形成される。この特徴的な干渉パターンに着目すると、 ℓ の決定が容易である。またガウス光との干渉を得る代わりに、実験的に容易な図 5 に示す自己干渉像から ℓ を決定することもできる。このとき LG モード同士の非同軸干渉は、図の中央に見られるようなフォーク型の干渉パターンを示す。ただしガウス光との干渉と異なり、強度暗点の影響から分岐は明瞭に観測されない。しかしながら干渉縞の数の変化、すなわち分岐数 n から ℓ が見積もられ、被測定光のトポロジカルチャージを ℓ_{obj} 、参照光のトポロジカルチャージを ℓ_{ref} とすると $n = |\ell_{\text{obj}} - \ell_{\text{ref}}| + 1$ で与えられる。つまり、ガウス光との干渉の場合は $n = |\ell| + 1$ 、自己干

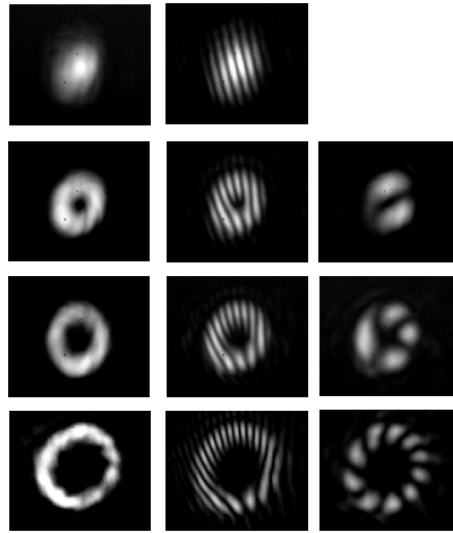


図 5: 自己干渉により検出された干渉像 (He-Ne レーザーを SLM によりモード変換)。干渉前の強度分布 (左) と非同軸干渉 $\theta \neq 0$ (中央) および同軸干渉 $\theta = 0$ (右) における強度分布であり、上から $\ell = 0, 1, 2, 5$ に対応する。

渉の場合は $n = 2|\ell| + 1$ となる。他方、光波を重ね合わせる際に $\theta = 0$ となるような同軸条件を用いると、フォーク型の干渉像は図右に示すような方位角方向の干渉縞に変化する。このとき縞の数は $n = 2|\ell|$ となる。

このように単一モードの LG 光の場合は、容易に ℓ を決定することができる。また特異点は、ガウス光との非同軸干渉に現れる分岐から、その位置を特定できる。しかしながら複合モードからなる光渦に対する干渉パターンは複雑であり、干渉像から空間位相分布を直接推測することが難しい。空間位相分布は、干渉像に対して空間フーリエ解析を行うことで明瞭になる [53]。この目的のためには、強度暗点の無い (特異点を含まない) 参照光、すなわちガウス光による非同軸干渉の使用が望ましい。ガウス光を作成するため、参照光となる光波の一部 (特異点を含まない領域) に対して空間フィルタリングを行い、ガウスモードに変換する方法が用いられる。いま信号光として

$$E_{\text{obj}}(r, \phi, z, t) = \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} a_{\ell,p} u_{\ell,p}(r, z) \exp[i\ell\phi + i(kz - \omega t)] \quad (13)$$

を考える。ここで $u_{\ell,p}$ は (4) 式から $\exp[i\ell\phi]$ の項を独立させた電場成分である。参照光として $E_{\text{ref}} = b \exp[i(k \cos \theta z - k \sin \theta x - \alpha)]$ を考えると、

$$\begin{aligned} I(r, \phi, z_0) &= |b|^2 + \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} |a_{\ell,p} u_{\ell,p}(r, z_0)|^2 \\ &+ b^* \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} a_{\ell,p} u_{\ell,p}(r, z_0) \exp[i(\ell\phi + k \sin \theta x + \beta)] + c.c. \end{aligned} \quad (14)$$

となるので、フーリエ変換を施すと、干渉縞の空間周波数に対応する $k_x = k \sin \theta$ に応じて $I^F(k_x, k_y) = I_{DC}^F(0, 0) + I_{AC+}^F(+k \sin \theta, 0) + I_{AC-}^F(-k \sin \theta, 0)$ の成分に分離できる。 I_{AC+}^F を

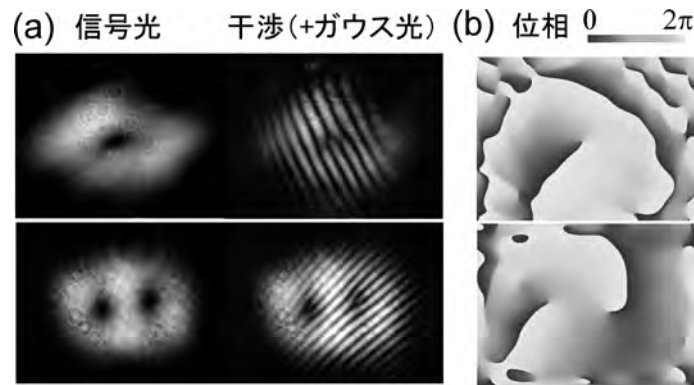


図 6: (a) シリンドリカルレンズ対を用いて生成した $\ell = 1$ の光渦パルス (上) とその SHG (下) の空間像、右はガウス光波との傾角干渉。(b) 干渉の FFT から再生された位相分布。

フィルタリングして逆フーリエ変換すれば

$$I_{AC+}(r, \phi) \exp(-ik \sin \theta x) \propto \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} a_{\ell,p} u_{\ell,p}(r) \exp[i(\ell\phi)] = \sum_{p=0}^{\infty} A_p(r, \phi) \quad (15)$$

となり、空間位相 $\exp[i\ell\phi]$ に対する位相と振幅が求められる。ここで $\exp(-ik \sin \theta x)$ は干渉の際に θ 傾けることに起因する干渉項を取り除くことに対応する。実際の測定例をもとに上記のフーリエ変換から得られた位相分布を図 6 に示しておく [40]。特異点を中心にトポロジカルチャージ ℓ に対応する方位角に変調された位相分布が再生されていることが確認できる (図 (b))。

ここで (15) 式がモード指数 ℓ (トポロジカルチャージ) に対する級数展開になっていることに着目しよう。 $u_{\ell,p}(r, z_0)$ は完全直交系なので、各モードの振幅 $a_{\ell,p}$ は方位角 ϕ に対するフーリエ変換

$$a_{\ell,p}(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} A_p(r, \phi) \exp[i(\ell\phi)] d\phi \quad (16)$$

から求められる⁶。このような ℓ で分解されたスペクトルは軌道角運動量分解 (OAM) スペクトルとして知られる。2.2.2 節ではモード変換手法を用いて OAM スペクトルを測定する手法を解説するが、干渉測定では位相を含めた OAM スペクトルの精密測定が可能なことは、本手法の大きな利点である [53]。

2.2.2 モード変換による OAM スペクトル測定

LG 光と HG 光の光波パターンを比較すると、そのモード次数は HG 光の方が分かり易い。図 2 で比較すると、エルミートガウス光 HG_m^n の次数は xy 方向の節の数で決定されるのに対し、ラゲールガウス光 LG_ℓ^p の次数 ℓ 、すなわちトポロジカルチャージや軌道角運動量は即座に決まらない。2.1.1 節ではシリンドリカルレンズを用いた HG モードから LG モードへのトポロジカル変換を紹介した。このグイ位相を使った対応関係にもとづいて、単一 LG 光

⁶簡単のため $p = 0$ を仮定した。厳密には $A_p(r, \phi) \rightarrow \sum_{p=0}^{\infty} A_p(r, \phi)$

に対して逆変換を施せば、次数 ℓ を HG 光の節の数として決定できる [54]。残念ながら複合モードの場合に適用することは難しいため、分光応用には適さないが、簡便な LG 光の評価としては有効である。

このように強度分布として空間位相情報を取り出すことは、光渦の解析に有効であると考えられる。ここで一連の LG モードの強度分布を振り返ると、 $\ell = 0$ のガウスモードと $\ell \neq 0$ の LG モードには強度暗点の有無、すなわち特異点の有無に起因する強度分布の違いが存在することに気づくであろう。この特徴を使って OAM スペクトルを得る解析手法は、A. Mair らによる単一光子の軌道角運動量測定において報告された [28]。彼らは強度分布の違いよりもむしろモード次数そのものに着目し、単一モードファイバ中では、 $\ell = 0$ の最低次ガウスモードのみ伝播する性質を利用して、最低次モード ($\ell = 0$) と高次モード ($\ell \neq 0$) を分離する検出方法を考案した。この際 ℓ モード分解、すなわち OAM 分解を実現するには、2.1.2 節のホログラム回折格子を用いたモード変換の逆過程 (LG 光 $\rightarrow$ ガウス光) を用いる。(12) 式によると、任意の入射電場 E_i に対する透過電場 E_t の +1 次回折成分は $E_t^{+1} \propto E_{LG} E_G^* E_i = E_\ell E_0^* E_i$ となる。したがって

$$E_i = \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m u_m(r, z) \exp[i m \phi + i(kz - k\theta x)] \quad (17)$$

で表わされる光渦 ($\ell = \sum m$ の複合ラゲールガウスモード) をホログラム回折格子に入射させると

$$E_t^{+1} \propto u_\ell u_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m u_m(r, z) \exp[i\{(\ell + m)\phi + kz + \alpha\}] \quad (18)$$

となり、各トポロジカルチャージ m に対して ℓ シフトした光渦が得られることが分かる。このモード変換 (つまり OAM 変換) を用いると、 $m + \ell = 0 \rightarrow m = -\ell$ のモード成分のみガウス光に変換されるため、先の空間フィルタリングにより $-\ell$ 成分を取り出すことができる。したがってホログラム回折格子のトポロジカルチャージ ℓ を変化させることにより⁷、OAM スペクトルが求められる。この方法で実際に検出されるのは $|a_{-\ell}|^2$ で表わされるパワースペクトルであることに注意して欲しい。これに対して 2.2.1 節で紹介した干渉像をもとにしたフーリエ変換手法では位相情報が得られる点で優れている。しかしながら、干渉測定に要求される安定性やイメージングに要求される信号強度 (もしくは検出に要する時間) を考慮すると、特に微弱光検出に関しては本手法が適している。ただし、回折損失の影響や回折効率のモード依存性に注意する必要がある [55, 59, 60]。

2.3 偏光渦の生成

偏光渦の生成に関しても、光渦同様、発振モードとして直接取り出す方法と [31, 33, 61, 62]、均一偏光光波を用いて外部光学系で偏光変換して取り出す方法がある [33, 63]。ここでは後者の外部変換の手法として、空間分割偏光素子を用いた偏光渦生成方法について取り上げよう。空間分割偏光素子は方位方向に空間依存性を持つ偏光素子であり、軸対称偏光子 (ASP) および軸対称波長板 (AWP) が市販されている。いずれも同心円状に方位角方向に分割さ

⁷ 各 ℓ モードを空間的に分離し、整列させて検出する分光器様の手法も多数考案されている [56, 57, 58]

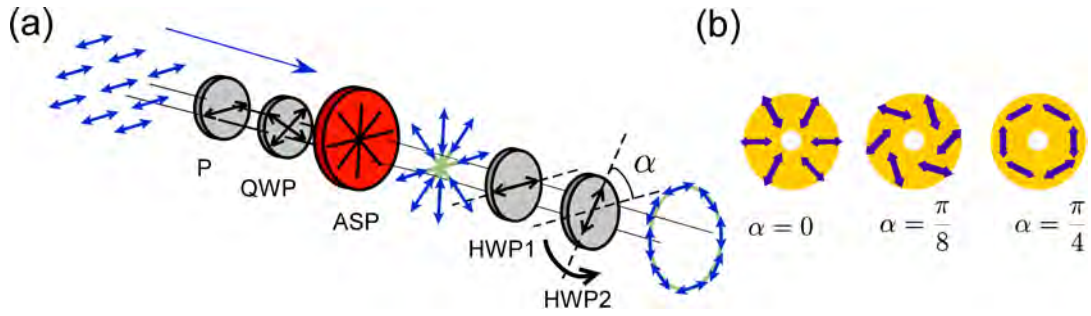


図 7: (a) 軸対称偏光子 (ASP) を用いた偏光渦の生成。直線偏光の光波は $\lambda/4$ 波長板 (QWP) を通過後円偏光となり、ASP を経てに径偏光に変換される。角度 α を付けた 2 組の半波長板 (HWP) で (b) に示す任意軸対称偏光渦が生成される。

れたフォトニック結晶構造が用いられる。ジョーンズ行列はそれぞれ大域的な方位角 ϕ を用いて

$$\text{ASP} = \begin{bmatrix} \cos^2 \phi & \frac{1}{2} \sin 2\phi \\ \frac{1}{2} \sin 2\phi & \sin^2 \phi \end{bmatrix}, \quad \text{AWP} = \begin{bmatrix} \cos \phi & \sin \phi \\ \sin \phi & -\cos \phi \end{bmatrix}$$

のように表わされる。例えば一様右回り円偏光の光波を ASP を透過させると、

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} \cos^2 \phi & \frac{1}{2} \sin 2\phi \\ \frac{1}{2} \sin 2\phi & \sin^2 \phi \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\phi} \begin{bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{bmatrix}$$

となり、光波の偏光として軸対称な径偏光が得られる。同様の変換は、一様直線偏光の光波を AWP を透過させて実現できる。局所的な偏光角の制御は、相対角 α で組み合わせられた二枚の半波長板を透過させることによって可能になる。半波長板 (HWP) のジョーンズ行列は $\text{HWP} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp(-i\pi) \end{bmatrix}$ と表わされるので、組み合わせ半波長板のジョーンズ行列は

$$\text{R}(-\alpha) \cdot \text{HWP} \cdot \text{R}(\alpha) \cdot \text{HWP} = \begin{bmatrix} \cos(2\alpha) & -\sin(2\alpha) \\ \sin(2\alpha) & \cos(2\alpha) \end{bmatrix}$$

と記述できる。ここで $\text{R}(\alpha)$ は角度 α の回転行列を表わす。得られる光波はしたがって

$$\text{R}(-\alpha) \cdot \text{HWP} \cdot \text{R}(\alpha) \cdot \text{HWP} \cdot \text{ASP} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\phi} \begin{bmatrix} \cos(2\alpha + \phi) \\ \sin(2\alpha + \phi) \end{bmatrix} \quad (19)$$

のように大域的な方位角 ϕ と局所的な偏光角 2α の組み合わせで決定される偏光渦となる (図 7)。例えば $\alpha = \pi/4 (45^\circ)$ に設定すると、方位偏光が得られる。ここで位相項に $\exp(i\phi)$ の方位角依存性が生じることに注意して欲しい。偏光渦は大域的な偏光分布を持つと同時に位相分布も発生する。後者の特性を使うと、偏光渦から光渦への変換も可能となる [64]。大域的な位相変化を除きたい場合は、一様直線偏光の光波を使って AWP を透過させればよく、

$$\begin{bmatrix} \cos \phi & \sin \phi \\ \sin \phi & -\cos \phi \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{bmatrix}$$

となる。局所的な偏光角の調節は、先述の組み合わせ HWP を用いて実現される。

最後に生成された偏光渦の評価方法として、検光素子通過後の光波の空間強度分布をもとにした解析が用いられる。しかしながら大域的な偏光特性を定量的に評価するには、従来の解析に大域的な均一性を含める必要がある。そのための解析手法も提案されているが [65]、詳細は文献を参照して欲しい [66, 67, 68]。

3 四光波混合 (FWM) を用いた分光応用

光渦を用いた物性探索として、本節では四光波混合 (Four- Wave-Mixing: FWM) を用いた非線型分光を取り上げる。超短パルスを用いた FWM は、光励起された分極のコヒーレントダイナミクスの観測に広く用いられる。特に半導体励起子系に関しては、励起子重心運動とその散乱過程に関して重要となる均一線幅や位相緩和時間を直接評価可能な手法として知られている [69]。光渦をトポロジカルチャージ ℓ で決定される軌道角運動量 (OAM) を運ぶ光子として考えると、重心運動に OAM 成分が加わった励起子が生成されることになる。FWM は位相情報を直接評価できるため、励起子に転写された OAM を評価できる。OAM が方位角方向の空間的な位相情報を反映していると見なせば、励起子 OAM の時間発展は大域的な位相緩和 (デコヒーレンス) 過程を反映するであろう。このように光渦励起を用いた FWM 分光は、励起子ダイナミクスに対して大域的な空間コヒーレンスという新しい評価軸を与えることになる。また光渦の OAM を電子系にコヒーレント転写することは、応用上も大きな意味を持つ。トポロジカルチャージ ℓ は無限次元の自由度を持つため、これを用いた情報処理の多重化、多次元化が提案されている [22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29]。これを実現するためには、トポロジカルチャージの記録や変調、および制御を行うことが必要となり、OAM をコヒーレント且つ任意に変換する技術が求められる [70, 71, 72]。半導体電子系を用いた FWM によるコヒーレント OAM 変換は、このような多重 (多次元) 情報処理の重要な要素技術と考えられる。

3.1 短パルス光による四光波混合分光 (FWM)

超短パルスを励起光波に用いた FWM について簡単にまとめておきたい。FWM は、三次の非線型光学過程の 1 つである。同一周波数 (波長、エネルギー) で励起を行う場合を縮退 FWM (DFWM)、異なる周波数の励起光を用いる場合を非縮退 FWM (NDFWM) と呼ぶ。いま波数 k_1 、 k_2 を持つ 2 本の光波 (周波数 ω_1, ω_2) を角度 θ で試料に照射する場合を考えよう。このとき試料内部には非線型性を反映した分極の過渡回折格子もしくは励起キャリア密度の過渡回折格子が形成される (図 8(a))。本研究で用いる 2 パルス励起の DFWM では、前者を反映した自己回折光が位相整合条件と呼ばれる波数保存則を満たす $2k_2 - k_1$ 、 $2k_1 - k_2$ 方向に放射される。他方、エネルギー保存則を考えると、自己回折光の周波数は $2\omega_2 - \omega_1$ 、 $2\omega_1 - \omega_2$ で与えられ、DFWM の場合 ($\omega_1 = \omega_2 = \omega$) は ω となる。以下、特に断らない限り 2 パルス励起 DFWM を FWM と記す。

実際の測定では、試料の励起子の共鳴エネルギーに中心周波数 ω を合わせた 2 本のパルス k_1 、 k_2 を時間差 τ をつけて照射する。 k_1 パルスが先に試料に入射し、遅延時間 $\tau (\geq 0)$ 秒後に k_2 パルスが試料に入射する場合を考えよう。 k_1 パルスで励起子を励起すると、基底

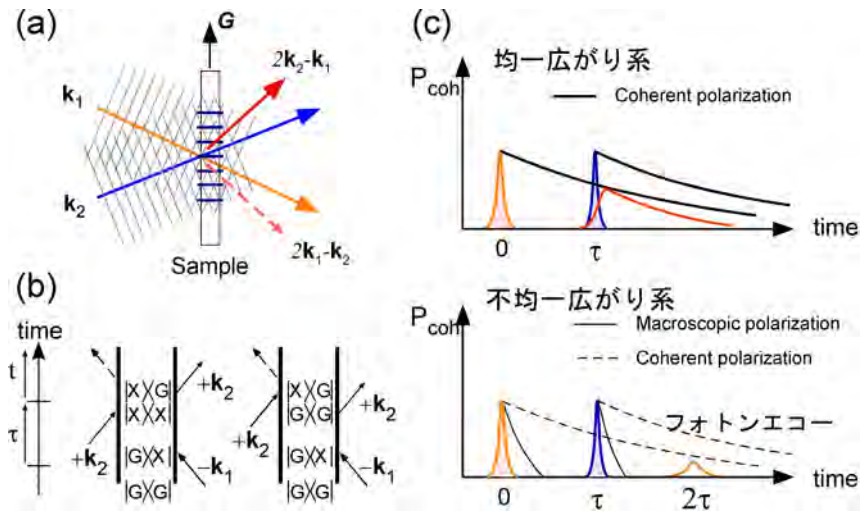


図 8: (a) 縮退四光波混合 (DFWM) の概念図 (透過配置)。 (b) 励起子 2 準位系の FWM 過程を示すファインマンダイアグラム。 (c) 実時間における FWM 過程。

準位 G (真空準位) と励起準位 X (励起子準位) 間に分極が発生する。このとき分極振動が位相 (コヒーレンス) を保持しているならば、 k_2 パルスにより励起された分極との間で干渉生じ、分極の過渡回折格子が形成されることになる。これにより k_2 パルスが自己回折され、 $2k_2 - k_1$ 方向に DFWM 信号が現れる⁸。いま考えている 2 パルス励起 (k_1 、 k_2 パルスによる励起) の DFWM では、この信号光を実時間 t で積分した時間積分強度 (TI-FWM) を検出する。このとき励起子分極の位相緩和は、パルス間の時間差 τ を変化させながら検出される TI-FWM 信号光をサンプリングすることによって得られる。分極回折格子の干渉振幅は励起子分極のコヒーレンスの緩和 (位相緩和) に従って減衰するので、TI-FWM の遅延時間依存性から位相緩和時間 T_2 が見積もられる。信号光波は励起光波と異なる方向に放射されるため、共鳴励起においても励起光の散乱を排除した検出が実現される。これにより、周波数 (スペクトル) 分解を組み合わせた測定 (SR-FWM) が可能である。遅延時間 τ に対して得られる位相緩和情報と同時に測定されるスペクトル形状 (線幅) とを比較することにより、試料中の観測領域がどの程度均一広がり系に近いかを知らることができる。

TI-FWM 信号強度 I_{FWM} は $I_{\text{FWM}}(\tau) \propto \int |\mathbf{P}^{(3)}(\tau, t)|^2 dt$ で与えられる。ここで $\mathbf{P}^{(3)}$ は三次の非線型分極であり、双極子モーメント μ と三次の密度演算子 $\rho^{(3)}$ を用いて $\mathbf{P}^{(3)} = N \langle \mu \rho^{(3)}(t) \rangle$ で与えられる。密度演算子の時間発展は、入射光電場との相互作用と系に固有の緩和で決定される。基底準位 G と励起準位 X からなる 2 準位系に対する FWM 過程に対して位相整合条件と回転波近似を考慮すると、信号に寄与する FWM 過程は図 8(b) に示す 2 種類のダブルファインマンダイアグラムにまとめられる。両者は共に先述の FWM 過程に対応する: k_1 パルス入射後 ρ_{GX} の分極振動として時間発展し、時間 τ 経過後に入射する 2 本の k_2 パルスで ρ_{XG} の分極振動へと反転させられた後、FWM 信号光波を放出する。前者は $e^{i\omega t}$ 、後者は $e^{-i\omega t}$ で伝播するため、不均一広がり系においても位相緩和測定が可能となる (図 8(c))。

三次の非線型分極 $\mathbf{P}^{(3)}$ について具体的な表式をまとめておこう。いま均一広がり系を仮

⁸ $\tau \leq 0$ の場合 (k_2 パルスが先に試料に入射し、 τ 秒後に k_1 パルスが試料に入射する場合)、FWM 信号は $2k_1 - k_2$ 方向に放射される。

定すると、デルタ関数的な直線偏光パルス励起のもと、 $2k_2 - k_1$ 方向成分の三次非線型分極は

$$\begin{aligned} P_{2k_2-k_1}^{(3)}(t \geq \tau, \tau) &= \frac{i}{\hbar^3} E_2^2 E_1^* \exp[i(2k_2 - k_1) \cdot \mathbf{r} - i\omega t] \alpha(t, \tau) \\ \alpha(t, \tau) &= |\mu_{XG}|^4 \exp(+i\omega_X \tau) \exp(-\gamma \tau) \exp(-i\omega_X t) \exp(-\gamma t) \\ &= |\mu_{XG}|^4 \exp[-i\omega_X(t - \tau)] \exp[-\gamma(t + \tau)] \end{aligned} \quad (20)$$

で与えられる。ここで励起子エネルギーを $\hbar\omega_X$ 、双極子モーメントを μ_{XG} とした。 γ は位相緩和レートに対応する。単一 LG モードをもつ k_1 パルス ($\ell = \ell_1$) と k_2 パルス ($\ell = \ell_2$) を用いた励起の場合は位相項に $\exp[i\{(2\ell_2 - \ell_1)\phi\}]$ が加わる。いま空間依存性を無視すると、時間積分による FWM 信号は

$$I_{\text{FWM}}(\tau) \propto \frac{|\mu_{XG}|^8}{\hbar^6} e^{-2\gamma\tau} \int_0^\infty dt |\exp(-i\omega_X t) \exp(-\gamma t)|^2 \propto e^{-2\gamma\tau} \quad (21)$$

となり、 τ に対して位相緩和レート γ の 2 倍の速さで指数関数的に減衰する時間依存性が得られる。位相緩和時間 T_2 を用いると、信号強度の時間発展は $I_{\text{FWM}} = I_0 \exp(-2\tau/T_2)$ となる。

3.2 光渦パルス励起による FWM 分光

本節では、実際の FWM 分光の観測結果をもとに、光渦励起がどのような物性探索を可能にするか考える [70]。ここではバルクもしくは薄膜の窒化ガリウム (GaN) を試料として用いた結果について記す。(21) 式で示されるように、FWM 信号強度は振動子強度の 4 乗に比例する。したがって励起子振動子強度の大きい GaN に対して、比較的容易に大きな信号強度を得ることができる。GaN の励起子共鳴エネルギー (~ 3.5 eV) を考慮して、パルス光源にはモード同期チタンサファイアレーザーの 2 倍波 (パルス幅 ~ 150 fs, 繰返し周波数 76 MHz) を用いている。このパルス光を 2 経路に分割した後、異なる k をもたせてクライオスタット中で低温 (~ 10 K) に保持された試料上にレンズで照射する。片方の経路に直線移動の可能なステージを設け、パルス間の相対距離を変化させることにより遅延時間 τ (k_1 パルスが k_2 パルスより先に到達する時間領域を $\tau > 0$ とする) を変化させる。また今回の測定では平行直線偏光で励起子を励起しているが、円偏光励起や偏光の組み合わせを変化させることにより、スピン選択や多励起子相関の情報が得られる [73]。共鳴励起すると吸収が大きいため、放射された FWM 信号光の検出には反射配置の集光光学系を用いた。信号光は $k_{\text{FWM}}^\pm = 2k_{2(1)} - k_{1(2)}$ 方向に指向性を持って放射されるため、励起光と空間的に分離され、スペクトル分解や空間モード検出、もしくは後述の OAM 分解光学系へと誘導される。光渦励起に用いる LG 光は SLM もしくは軸対称波長板によるモード変換手法 (2.1 節参照) を用いた。

図 9(a) に示すのは、遅延時間 $\tau \approx 0$ における典型的な FWM スペクトルである。このとき信号光は分光器を通して CCD 検出されている。2 本のスペクトルピークは、それぞれ電子-重い正孔励起子 (A 励起子: X_A 、全角運動量 $J_z = \pm 3/2$) と電子-軽い正孔励起子 (B 励起子: X_B 、 $J_z = \pm 1/2$) に対応する。図では励起パルスのスペクトルを合わせて示しているが、そのスペクトル幅は 10 meV と A-B 励起子間のエネルギー差に比べて広く、 X_A と X_B

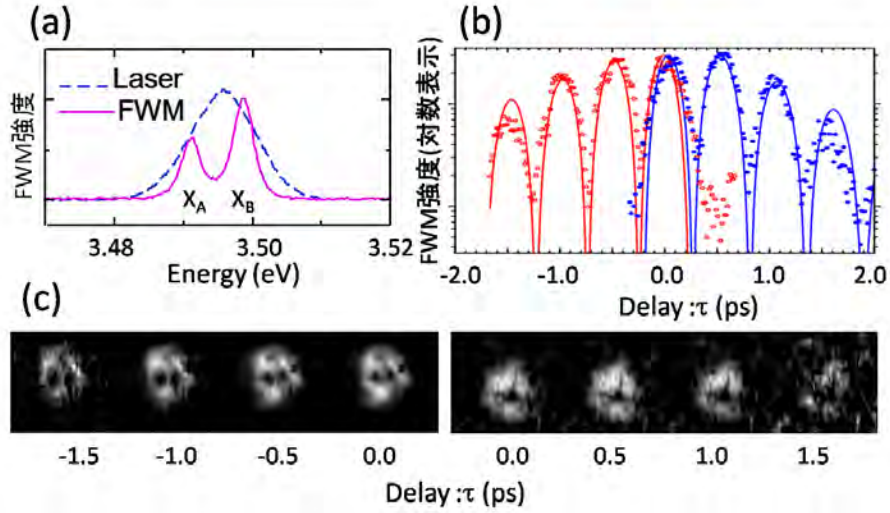


図 9: (a) GaN 励起子の FWM スペクトル。破線は励起パルスのスペクトル。(b) FWM ($k_{\text{FWM}}^{\pm} = 2k_{2(1)} - k_{1(2)}$) の時間発展と (c) 信号光波の空間像。

の両者が同時励起されることがわかる⁹。その結果、FWM 信号の時間発展 (図 9(b)) には、いわゆる量子ビートと呼ばれるコヒーレント振動が観測され、振動周期 ($T_{\text{QB}} = 0.51$ ps) の逆数は励起子間のエネルギー差 (8.3 meV) とほぼ良い一致を示すことが確認できる。この量子ビートを含む信号光 (均一広がり系) の時間発展は、各励起子ピークに対して

$$I_{\text{FWM}} = I_0 [1 + \cos(2\pi/T_{\text{QB}})] \exp(-2\tau/T_2) \quad (22)$$

で表わされる。 $\tau > 0$ で支配的となる信号光は k_{FWM}^{+} 、 $\tau < 0$ の信号光は k_{FWM}^{-} に対応する。フィッティングにより求められる位相緩和時間は $T_2 \approx 1.4$ ps である。

ここで光渦励起を用いた場合の FWM 信号光波の特徴を知るために、まずは遅延時間 τ に対する空間像の変化 (モード変化) を見てみよう (図 9(c))。比較を容易にするために、コヒーレント振動のピークで観測された空間像を示す。この測定では共に単一横モードである k_1 パルス ($\ell_1 = 0$ 、最低次ガウスモード) と k_2 パルス ($\ell_2 = 1$ 、LG モード) で励起子を励起しており、信号光波の強度分布は CCD を用いてスペクトル分解せずにサンプリングした。図に見られる強度暗点の存在は、トポロジカルチャージとして励起子重心運動に OAM が加わることを示しており、 T_2 時間内で保存されていることが示唆される。また放射方向 ($k_{\text{FWM}}^{\pm}$) に応じて暗点の数が異なり、これは OAM 保存則を満たす $|\ell_{\text{FWM}}| = |2\ell_{2(1)} - \ell_{1(2)}| = 2(1)$ のトポロジカルチャージに対応する。ここで LG モードの特異点に対応する強度暗点は、本来 ℓ によらず 1 点に集約されることを思い出そう。 $2\ell_2 - \ell_1$ の FWM 信号の強度暗点が 2 つに分離することは、得られた信号光が純粋な単一 LG モードではないことを意味している [40]。詳細は次節で述べる OAM 分解測定で明らかにするが、 $\ell \geq 2$ モードの特異点分裂は 0 次モード (すなわち最低次ガウスモード) の混入を意味しており、光波混合においてしばしば見られる現象である¹⁰。

⁹このような異種励起子の同時励起は、励起子相関が引き起こす非調和性として FWM スペクトルや、その過渡特性に反映されることが知られている [73]。

¹⁰ $\ell = 1$ の場合は強度暗点の中心からのシフトとして反映される。

得られた FWM 信号のトポロジカルな空間位相をガウス光波との干渉測定を用いて確認しておく。繰り返しになるが、FWM 信号光波が k_{FWM} の指向性を持つことは、空間的な波面の重ね合わせが必要な干渉測定において有利である。2.2.1 節で述べたように、空間位相 $\exp[i\ell\phi]$ の特徴は、ガウス光波との傾角干渉像におけるフォーク型干渉パターンから確認できる。図 10(a) は $\ell_1 = 0, 1, 2$ と変化させたときの FWM 信号光 ($\ell_2 = 1$) の空間像と干渉像である。フォークの分岐から $|\ell_{\text{FWM}}| = 2, 1, 0$ であり、OAM 保存則を満足するモード変換を確認できる。それでは励起子を使った FWM において、OAM はどの程度理想的な変換が行われているだろう。また OAM は T_2 時間内でどの程度保存されているだろうか。FWM 信号光波に対する OAM 分解測定をもとに、定量的な解析結果を次節で示そう。

3.3 FWM 信号の OAM 分解

FWM 信号光に対する OAM 分解測定は、2.2.2 節で述べた SLM によるモード変換と空間フィルタリングの組み合わせにより実現した。OAM 分解された信号は、その後分光器を通して TI-FWM として周波数 (波長) スペクトル分解検出される。以下では A 励起子 (X_A) の結果のみ示す。信号光の OAM スペクトルを示す前に、励起パルス光波のスペクトルを見ておこう (図 10(b) 上段)。理想的には単一横モードとなるはずの励起光においても、LG モード生成の精度により、わずかながら他モードが混在する。空間像から他モードの存在を確認するのは難しいが、OAM スペクトルではサイドモードの存在が定量的に示される。図においてサイドモードとピークモードの強度比 (SMR) を見てみると、およそ 20% 近くにまで達している。ただし生成方法を最適化すると、SMR を 10% 以下に抑えることができることを強調しておく。

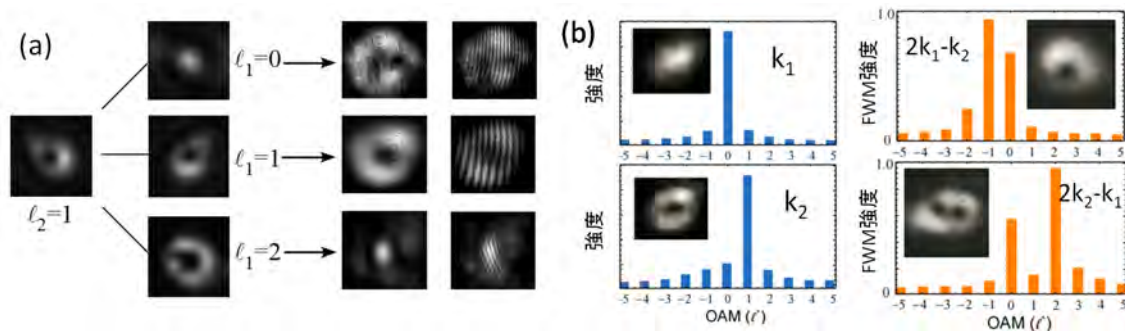


図 10: (a) 異なるトポロジカルチャージ ℓ を持つ k_1 パルスで OAM 変換された FWM 信号光波の空間像と干渉像。励起光波の空間像を合わせて示す。(b) OAM 分解検出された励起光波 (左) および FWM 信号光波の OAM スペクトル。内挿図は空間像。いずれも $\tau \approx 0$ の測定結果。

つぎに、FWM 信号光波の OAM スペクトルを図 10(b) 下段に示す。FWM 信号光波では FWM 過程の OAM 保存則にもとづく $2\ell_{2(1)} - \ell_{1(2)} = 2(-1)$ 成分に対応するピークの外に、最低次ガウスモードが大きな相対比を持って混入していることがわかる。これは前節でも示した空間像における強度暗点の分裂や、中心からのシフトに対応する。励起光波の OAM スペクトルから、LG 光 ($\ell_2 = 1$) にも 20% 程度の割合で最低次ガウス光が混入しているので、信号光波に見られる $\ell_{\text{FWM}} = 0$ 成分は、二つの励起パルスの $\ell_{1,2} = 0$ 成分が寄与している (ℓ_1

はガウスモードが支配的モード)と考えられる。信号光の OAM スペクトルに見られる 70% に達する $\ell_{\text{FWM}} = 0$ 成分は、光波混合の非線型性と中心に強度持つ最低次ガウスモードの特徴で説明できる。すなわち空間的な積分強度の等しい最低次ガウス光と LG 光のピーク強度を比較すると、前者は中心にピークを持つのにに対し、円環上の強度分布を持つ LG 光のピークは円環上の空間的な広がりをもつ。FWM の効率は励起光波のピーク強度の 3 乗に比例するので、LG モードのピーク強度の低下は非線型信号の減少に直接つながる。また OAM 保存則を満たす成分は ℓ の異なる成分同士の FWM によって生成されるため、空間的なオーバーラップを考えると、その変換効率はガウスモード同士のオーバーラップに比べて低下することになる。

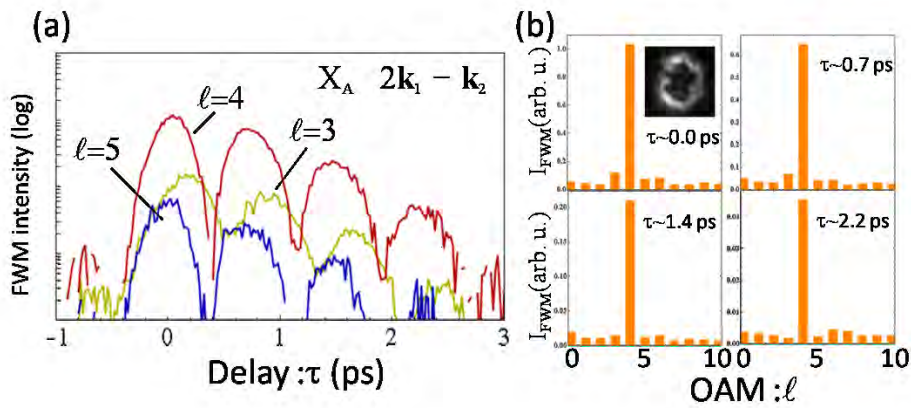


図 11: 励起光パルスに LG 光 ($\ell_1 = -2$, $\ell_2 = 1$) とした場合の (a) OAM 分解 FWM 信号光の時間発展と (b) コヒーレント振動ピークにおける OAM スペクトル。 $\ell_{\text{FWM}} = 4$ が支配モードである。

以上の考察は、高次の $\ell_{1,2} \neq 0$ を使った FWM により、実験的に確かめることができる。図 11 は 2 本の励起光パルスを LG 光 ($\ell_1 = -2$, $\ell_2 = 1$) とした場合の $k_{\text{FWM}} = 2k_2 - k_1$ 方向に放射される FWM 信号光の OAM 分解スペクトルとその時間発展である。図 (b) において、OAM 分解スペクトルのピークは $|\ell_{\text{FWM}}| = |2\ell_2 - \ell_1| = 4$ であり、その SMR は約 10% とほぼ単一 LG モードの信号光が得られている。ここでは、コヒーレント振動のピーク位置で観測された OAM 分解スペクトルを示した。この SMR が遅延時間 τ によらず維持されていることは、図 (a) に示す OAM スペクトル分解して得られた FWM 信号光の時間発展からも確認できる。 $\ell = 4$ モードとサイドモードとの割合は、測定された遅延時間 τ の範囲内で 10% 以下に抑えられ、励起子に転写された OAM は T_2 時間内で良く保存されていると言えるだろう。さらに言及するならば、励起子分極の OAM は T_2 よりも長時間維持されることが出来る。ところで FWM 信号における OAM の保存はどのような物理的意味を持つであろう。ここで (20) 式の三次非線型分極の空間位相 (すなわち OAM) に与える影響を考えてみよう。励起子分極 μ_{XG} やその緩和 γ は位置依存性を持つので、(21) 式は

$$I_{\text{FWM}}(\tau, r, \phi) \propto |\mu_{XG}(r, \phi)|^4 \exp[-2\gamma(r, \phi)\tau] \quad (23)$$

のように表わせる。分かり易い例として、結晶中の欠陥や不純物は励起子重心運動に対して空間的な不均一性をもたらすであろう。また緩和の空間依存性に対しては拡散の影響も考慮

する必要がある。このとき放射される FWM 信号光波は、たとえ単一 LG モードにより励起されたとしても、空間的に不均一な緩和の影響を反映した複数の LG モードの重ね合わせに変化する。このような大域的なデコヒーレンスを調べるため、複数のトポロジカルチャージから成る複合光渦を励起光波として用いる OAM 分解 FWM 分光も試みられている [72]。OAM スペクトルに意図的な広がりを持たせることにより、信号光波 OAM の微小なスペクトル変化の評価が期待できる。

4 偏光渦パルス励起のポンププローブ分光

光渦パルスを使うと電子系の大域的な空間コヒーレンスに対する物性評価が可能になることを 3 節で示した。偏光は電子系に対して対称性やスピンを反映した応答を示す。したがって偏光渦パルスを用いた物性探索は、大域的な電子 (スピン) 秩序に対するダイナミクス評価が期待できる。本節では偏光渦の空間特性を考慮し、リング型の擬一次元導体を測定対象とした測定結果を示そう。対称性にもとづくダイナミクス評価には、ポンププローブ分光による過渡反射率変化を用いる。擬一次元結晶は、その次元性を反映した偏光特性を持つキャリアダイナミクス応答が知られており、リング状につながった構造では径偏光および方位偏光に対する応答特性の違いが期待できる。このような理想的な系を測定対象とすることで、偏光渦パルスを用いた大域的対称性評価の有効性を示したいと思う [74]。

4.1 トポロジカルな電荷密度波

大域的な電子秩序をもつ物質として、本節ではリング型構造を持つ擬一次元結晶を用いる。本節ではその特徴的な物性について簡単にまとめる [75]。擬一次元結晶として本測定で着目するのは、遷移金属トリカルコゲナイド MX_3 である。 MX_3 は代表的な擬一次元物質として知られ、リングやメビウス、8 の字といったトポロジカル結晶が得られることから注目されている [76]。一次元性を反映する大きな特徴は、電子 - 格子相互作用によって発現する電荷密度波 (CDW) である。CDW は電荷密度が巨視的な秩序を有する量子状態であり、その相関長 $\xi_{\parallel}$ は低温で μm オーダーになることが知られている。そのためリング型構造のように端のつながった試料では、閉ループの量子状態を形成することが知られており、磁場中で生じる量子干渉 (アハロノフ - ボーム効果) [77] や CDW 環流を反映するシャピロステップ [78] が観測されている。

CDW 相転移を一次元金属のパイエルス不安定性を用いてまとめておこう (図 12(a))。理想的な一次元金属の電子はフェルミ波数 k_F に従う周期性を持ち、自発的にギャップを開いて系のエネルギーを安定化しようとする (パイエルス不安定性)。このとき格子周期は歪を受けるが、例えば温度を下げて電子エネルギーのギャップ形成によるエネルギー利得が格子歪の損失を上回れば、金属から絶縁体のパイエルス転移が生じる。このとき電荷密度の分布と格子歪は空間周期 (π/k_F) で変調された混成波: CDW を生成する。理想的な一次元物質において、パイエルス不安定性はフェルミ点で生じる。このとき相転移温度は平均場近似のもとで有限な温度 T_{MF} を取る。しかしながら現実の結晶は一次元鎖上の CDW がお互いにクーロン相関を持つ擬一次元構造であるため、実際に観測される相転移温度は、CDW が三次元的な長距離秩序を形成する温度 $T_{3D} (< T_{MF})$ に補正される。

実際に用いた MX_3 物質は NbSe_3 であり、通常は図 12(b) に示すような針状構造 (幅 $\sim$ 数十 μm 、長さ $\sim$ 数 mm) をとる。長手方向が伝導軸 (b 軸) に相当する。単位胞は図に示す 3 種類 6 本の一次元鎖からなり、異なる一次元鎖に対して二度の CDW 相転移 ($T_{3D}=59\text{ K}$ 、 145 K) が観測される。 NbSe_3 の光学スペクトルは遠赤外から近赤外域に現れるドルーデ反射と近赤外から可視・紫外域に至る複数の伝導バンドへの遷移共鳴で形成される。CDW 相転移後はギャップ形成を反映した変化を示すが、プラズマ端自体が緩やかであるため複雑な解析を必要とする。一方、後述するような近赤外光パルス励起による過渡応答はバンド端付近の電子状態が支配的となって現れる。実際、過渡反射率変化に現れる緩和時間は T_{3D} 前後に大きな変化を示し、高感度測定が実現される。また反射率検出の光学遷移にバンド間共鳴を利用すると、複数ある CDW 相の応答を選択的に捉えることも可能である [79]。

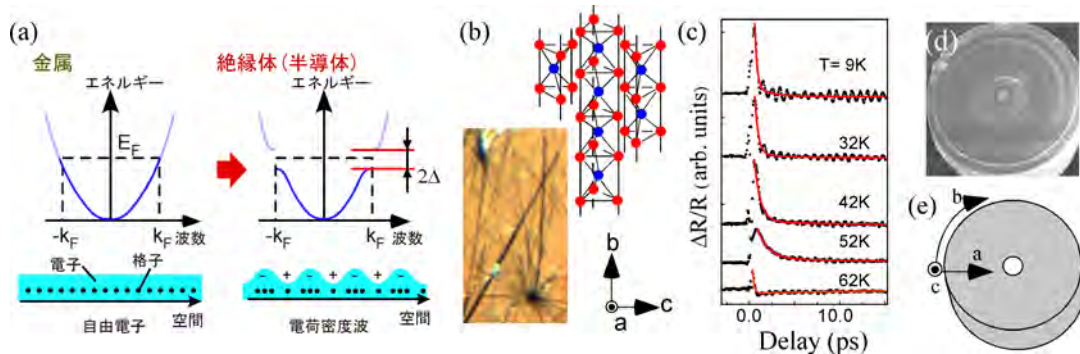


図 12: (a) パイエルス転移の概要。(b) 擬一次元結晶 NbSe_3 の結晶構造。一般的には写真に示すような針状結晶となる。(c) 針状結晶で得られる過渡反射率変化 ΔR の温度依存性。低温で見られるコヒーレント振動は電荷密度波 (CDW) の集団励起。(d) ディスク型 NbSe_3 リング結晶と (e) その結晶軸。

4.2 CDW のポンププローブ分光

可視から近赤外領域の超短パルス光を用いた過渡反射率ポンププローブ分光の原理についてまとめておく。ポンププローブ分光のプロセスを単純化すると、ポンプ光による電子励起に伴う反射率変化 ΔR を時間遅延 τ をもつプローブ光で検出する手法と考えてもらえばよい。ポンプ光による電子励起は、その共鳴条件に応じてコヒーレントな誘導ラマン過程とインコヒーレントな散逸緩和に分類され、前者はポンプ光の偏光と試料の対称性を反映した選択的な励起であるのに対し、後者の過程で励起された電子の偏光特性は失われる。本節で扱う CDW 物質のギャップエネルギー 2Δ は励起に用いる超短パルス光に比べて一桁以上大きな値を持つため、後者の過程に対応する。しかしながら、電子の基底状態が CDW のような秩序を形成している場合、短パルス励起された電子は (励起電子の偏光特性が失われたとしても) その電子秩序を反映した非等方性をコヒーレントに誘起する。その結果プローブ光の偏光に対して過渡反射率変化 ΔR に異方性が生じ、

$$\Delta R(\theta) \propto \Delta R_{\text{iso}} + \Delta R_{\text{aniso}} \cos(2\theta + \varphi) \quad (24)$$

のように表わされる。ここで θ は直線偏光時のプローブ光の偏光角であり、 φ は電子秩序の対称性に応じて加わる位相項である。

それでは NbSe₃ 針状結晶で得られた ΔR を見てみよう (図 12(c))。ポンプ光とプローブ光はパルス幅 ~ 100 fs のモード同期チタンサファイアレーザー (ML-TiS; $\hbar\omega_{probe} \approx 1.52$ eV) および光パラメトリック発振器 (OPO; $\hbar\omega_{pump} \approx 1.06$ eV) を用いた。金属相において励起された電子はバンド内緩和によって瞬時に平衡状態に戻り、ほぼパルス幅で決まる応答のみが見られる。これに対して絶縁相 (CDW 相) の緩和はギャップの形成を反映したピコ秒緩和が観測される。この緩和は CDW ギャップ端における電子の緩和特性を反映している。CDW ギャップは温度が低くなると共に大きくなるため、フォノン放出による基底準位への緩和が支配的となる。これに対して T_{3D} 付近の CDW ギャップはきわめて小さいため、フォノン吸収による電子再励起がフォノン放出による電子緩和と拮抗し、長い緩和時間を示す [80]。また T_{3D} 以下の低温領域で顕著となる振動構造は CDW によるコヒーレント振動である。このとき過渡応答 $\Delta R(\tau)$ は電子応答 ΔR_{sp} と CDW 応答 ΔR_{CDW} に分解され、

$$\Delta R(\tau) \propto \Delta R_{sp} \exp[-\tau/\tau_{sp}] + \Delta R_{CDW} \cos(2\pi\nu_{CDW}\tau) \exp[-\tau/\tau_{CDW}] \quad (25)$$

のように記述できる。ここで τ_{sp} 、 τ_{CDW} は励起電子および CDW の緩和時間、 ν_{CDW} は CDW の振動周波数である。(24) 式に対応させると、 ΔR_{sp} は異方成分 ΔR_{aniso} 、 ΔR_{CDW} は等方成分 ΔR_{iso} である。この対応関係は次節の実験結果で明らかにする。

4.3 リング結晶のポンププローブ分光

図 12(d) は実際に測定に用いた半径約 50 μm のディスク型 NbSe₃ リング結晶である。針状結晶とほぼ同一の作製条件で、針状結晶と共に得られる。ただし針状結晶と異なり、方位角方向に閉じた伝導軸 (b 軸) を有している (図 12(e))。ポンププローブ分光は前節と同様、ML-TiS 発振器とその OPO の組み合わせで行った。したがって過渡反射率変化は ML-TiS 発振器の光 ($\hbar\omega_{probe} \approx 1.52$ eV) の反射光に対して検出している。プローブ光偏光渦パルスは 2.3 節で述べた軸対称偏光板 (ASP) を用いて生成した。アクロマティックな偏光素子を使用することでパルスの分散を抑制してある。

図 13(a)-(f) に示すのは、温度 20 K で得られた針状結晶とリング結晶の均一直線偏光および軸対称偏光に対する ΔR のプローブ偏光角依存性である。軸対称偏光の偏光角 θ' は局所的な偏光角であることに注意して欲しい。 θ' は 2.3 節に示した組み合わせ半波長板の相対角 α によって可変である ((19) 式参照)。図 (b)(e) における $\theta' = 0^\circ, 90^\circ$ は、それぞれ方位偏光渦と径偏光渦に相当し、リング結晶の伝導軸方向とそれに直交する方向をプローブしている (図 (b) 内挿図参照)。 $\Delta R(\theta')$ が針状結晶に対する直線偏光角依存性 $\Delta R(\theta)$ (図 (a)(d)) とほぼ同様の依存性を示し、大域的な擬一次元性を反映していると言える。比較のため、針状結晶の軸対称偏光に対する偏光角依存性を図 (e)(f) に示す。 ΔR の異方性成分は打ち消されていることが確認できる。

ここでコヒーレント振動に着目すると、ほぼ偏光角に依存しない応答が確認できる。ラマン対称性にもとづくと、CDW のコヒーレント振動 (Amplitudon と呼ばれる) は全対称モードであることが知られており、したがってプローブ偏光では ΔR_{iso} 成分に相当すると見なせる。この成分を除くと、 ΔR_{sp} は異方的成分 ΔR_{aniso} に対応していると見なせる。以上を踏まえ、 $I = \Delta R_{sp}/\Delta R_{CDW}$ を $\theta(\theta')$ に対してプロットした結果を図 13(d)-(f) に示す。針状結晶とリング結晶いずれにおいても偏光度 $P = \frac{I_{0^\circ} - I_{90^\circ}}{I_{0^\circ} + I_{90^\circ}} \approx 1.0$ であり、リング結晶に

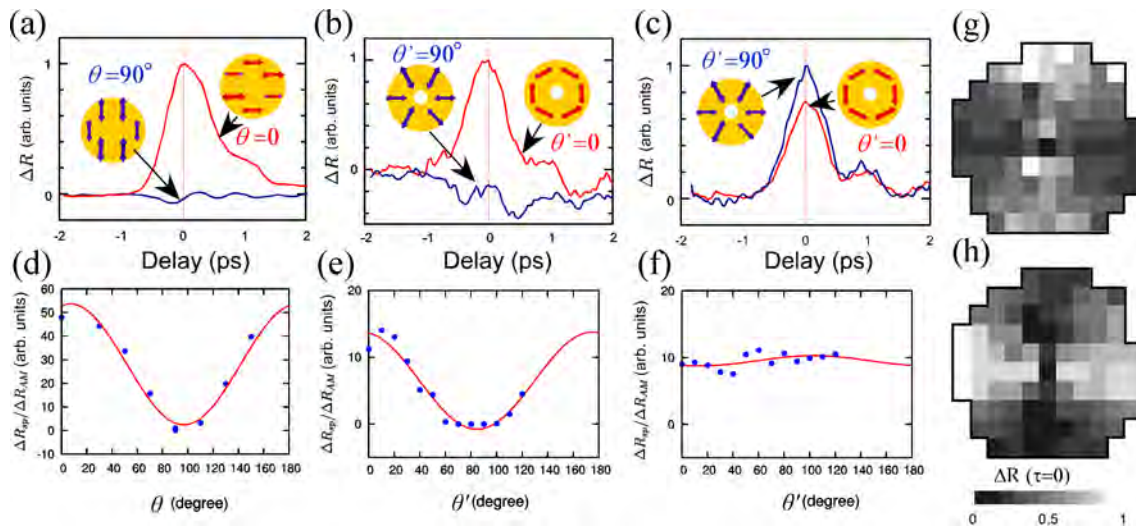


図 13: 過渡反射率変化 ΔR のプローブ偏光依存性: 左から順に針状結晶を均一直線偏光でプローブ、リング結晶を軸対称偏光でプローブ、針状結晶を軸対称偏光でプローブした場合である。右端は直線偏光 (g) $\theta = 0^\circ$ 、(h) $\theta = 90^\circ$ でリング結晶をプローブした場合の $\Delta R(\tau \approx 0)$ の場所依存性 (図 12(d) と対応)。

において大域的な擬一次元性が保持されていることが確認できた。この結果を直線偏光励起を用いた空間分解型ポンププローブ分光の結果と比較しておこう。図 13(g)(h) はプローブ光の偏光を $\theta = 0^\circ$ 、 90° に設定して観測された ΔR_{aniso} をリング結晶上にマッピングした結果である。リング結晶上の伝導軸に平行な偏光配置となる場所で強い応答が検出され、その分布は動径方向に広がっている。しかしながら本測定は励起場所を変化させて観測しているため、方位方向の大域的な一様性を評価できない。これに対して偏光渦を用いた測定では励起領域における偏光特性を一度に直接評価可能であり、大域的な対称性評価が実現されたと言える。

5 まとめ

本稿では光と物質の相互作用を通したトポロジ物理学探索として、トポロジカル光波 (光渦パルスと偏光渦パルス) のレーザー分光への応用について、著者らの取り組みを中心に基礎的事項を解説した。著者の興味は、トポロジカル光波励起を通して大域的な秩序や対称性を明らかにすることであり、具体例として 3 節と 4 節に研究成果を取り上げさせていただいた。当然のことながら偏りがあるため、本稿を手掛かりに参考文献を参照していただきたい。できるかぎり重要な文献のみ掲載するように心掛けたが、日進月歩の当該分野ゆえにページ数に比して多数になってしまったことをお許しいただきたい。

また本稿では、とくにトポロジカル光波になじみのない聴講者を想定して、トポロジカル光波の基礎事項を網羅するように 1 節、2 節にまとめた。これに関しても、解説が不十分な点が多々ある。ひとつは光物性領域で重要となる光渦パルスの生成について一切触れていない。3 節と 4 節で取り上げたサブピコ秒領域の分光では、恐らく単色光波の重ね合わせとして本稿で述べた項目を拡張してもらって構わないと思う。ただし 100 fs 以下の、いわゆる

超短パルスに対しては、分散補償や波面制御、高次モードとしての高効率化、安定性や拡張性など多くの項目を追加・修正する必要がある。加えて言及するならば、時間領域としてモノサイクルのトポロジカル光波の物性探索への応用は、非対称な電場や磁場を生成できるため、興味深い分野である。その意味でテラヘルツ領域の分光を取り上げられなかったのは、著者の浅学非才が理由である。本節で重要性を強調するとともに参考文献を挙げるにとどめたい [81, 82, 83]。

光波の空間パラメータをレーザー分光に適用しようとする試みは、大域的なコヒーレンス評価や軌道角運動量の励起など新しい物性探索を可能にしてくれる。同時に空間特性を評価、保持するための光源や手法開発など技術的な課題も多い。本稿で紹介した著者らの取り組みは、光の空間特性を利用した様々な物性研究の一部に過ぎないが、本講義を通して当該領域に興味を持ていただければ幸いである。

最後にこの場を借りて共同研究者（特に森田教授）に感謝したい。また貴重なご意見をいただいた当研究室博士課程の重松恭平君と世話人の平岡友基（京都大学理学研究科光物性研究室）さんに感謝申し上げる。

参考文献

- [1] W. Whewell, Phil. Trans. R. Soc. Lond. **123**, 147 (1833).
- [2] J. F. Nye and M. V. Berry, Proc. R. Soc. Lond. A: Math. Phys. Sci. **336**, 165 (1974).
- [3] L. A. Lugiato, F. Prati, L. M. Narducci, and G. L. Oppo, Opt. Commun. **69**, 387 (1989).
- [4] M. Brambilla *et al.*, Phys. Rev. A **43**, 5090 (1991).
- [5] M. Harris, C. A. Hill, P. R. Tapster, and J. M. Vaughan, Phys. Rev. A **49**, 3119 (1994).
- [6] J. Jimenez *et al.*, J. Opt. **15**, 044011 (2013).
- [7] I. Carusotto and C. Ciuti, Rev. Mod. Phys. **85**, 299 (2013).
- [8] G. Indebetouw, J. Mod. Opt. **40**, 73 (1993).
- [9] M. J. Padgett and L. Allen, Opt. Commun. **121**, 36 (1995).
- [10] D. Rozas, Z. S. Sacks, and G. A. Swartzlander, Phys. Rev. Lett. **79**, 3399 (1997).
- [11] J. Leach, M. R. Dennis, J. Courtial, and M. J. Padgett, New J. Phys. **7**, 55 (2005).
- [12] S. Franke-Arnold, L. Allen, and M. Padgett, Laser & Photonics Reviews **2**, 299 (2008).
- [13] J. Hamazaki *et al.*, Opt. Express **18**, 2144 (2010).
- [14] S. W. Hell, Nat. Biotechnol. **21**, 1347 (2003).
- [15] S. Bretschneider, C. Eggeling, and S. W. Hell, Phys. Rev. Lett. **98**, 218103 (2007).

- [16] L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman, *Phys. Rev. A* **45**, 8185 (1992).
- [17] T. Kuga *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4713 (1997).
- [18] M. F. Andersen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **97**, (2006).
- [19] L. Paterson *et al.*, *Science* **292**, 912 (2001).
- [20] M. Padgett, J. Courtial, and L. Allen, *Phys. Today* **57**, 35 (2004).
- [21] K. Toyoda *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 143603 (2013).
- [22] G. Gibson *et al.*, *Opt. Express* **12**, 5448 (2004).
- [23] Z. Bouchal and R. Celechovsky, *New J. Phys.* **6**, (2004).
- [24] L. Torner, J. P. Torres, and S. Carrasco, *Opt. Express* **13**, 873 (2005).
- [25] Y. Awaji, N. Wada, Y. Toda, and T. Hayashi, in *37th European Conference and Exposition on Optical Communications, OSA Technical Digest (CD)* (Optical Society of America, ADDRESS, YEAR), p. We.10.P1.55.
- [26] J. Wang *et al.*, *Nat. Photonics* **6**, 488 (2012).
- [27] N. Bozinovic *et al.*, *Science* **340**, 1545 (2013).
- [28] A. Mair, A. Vaziri, G. Weihs, and A. Zeilinger, *Nature* **412**, 313 (2001).
- [29] J. T. Barreiro, N. K. Langford, N. A. Peters, and P. G. Kwiat, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 260501 (2005).
- [30] M. V. Berry, M. R. Dennis, and J. R. L. Lee, *New J. Phys.* **6**, 162 (2004).
- [31] Y. Mushiaki, K. Matsumura, and N. Nakajima, *Proc. IEEE.* **60**, 1107 (1972).
- [32] D. Pohl, *Appl. Phys. Lett.* **20**, 266 (1972).
- [33] Q. Zhan, *Adv. Opt. Photon.* **1**, 1 (2009).
- [34] K. Youngworth and T. Brown, *Opt. Express* **7**, 77 (2000).
- [35] R. Dorn, S. Quabis, and G. Leuchs, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 233901 (2003).
- [36] L. Marrucci, C. Manzo, and D. Paparo, *Phys. Rev. Lett.* **96**, (2006).
- [37] M. R. Dennis, PhD Thesis Bristol University (2001).
- [38] G. Foo, D. M. Palacios, and G. A. Swartzlander, *Opt. Lett.* **30**, 3308 (2005).
- [39] J. Hamazaki, Y. Mineta, K. Oka, and R. Morita, *Opt. Express* **14**, 8382 (2006).

- [40] Y. Toda, S. Honda, and R. Morita, *Opt. Express* **18**, 17796 (2010).
- [41] M. Koyama *et al.*, *Opt. Express* **19**, 14420 (2011).
- [42] J. W. Kim, J. I. Mackenzie, J. R. Hayes, and W. A. Clarkson, *Opt. Express* **19**, 14526 (2011).
- [43] M. W. Beijersbergen, R. P. C. Coerwinkel, M. Kristensen, and J. P. Woerdman, *Opt. Commun.* **112**, 321 (1994).
- [44] R. K. Tyson, M. Scipioni, and J. Viegas, *Appl. Opt.* **47**, 6300 (2008).
- [45] N. R. Heckenberg, R. McDuff, C. P. Smith, and A. G. White, *Opt. Lett.* **17**, 221 (1992).
- [46] A. V. Carpentier, H. Michinel, J. R. Salgueiro, and D. Olivieri, *Am J Phys.* **76**, 916 (2008).
- [47] M. W. Beijersbergen, L. Allen, H. E. L. O. van der Veen, and J. P. Woerdman, *Opt. Commun.* **96**, 123 (1993).
- [48] I. Mariyenko, J. Strohaber, and C. Uiterwaal, *Opt. Express* **13**, 7599 (2005).
- [49] K. Yamane, Y. Toda, and R. Morita, *Opt. Express* **20**, 18986 (2012).
- [50] Y. Yoshikawa and H. Sasada, *J. Opt. Soc. Am. A* **19**, 2127 (2002).
- [51] J. Sato *et al.*, *Opt. Commun.* **277**, 342 (2007).
- [52] R. Celechovsky and Z. Bouchal, *New J. Phys.* **9**, 328 (2007).
- [53] Y. Keisaku, Y. Zhili, T. Yasunori, and M. Ryuji, *New J. Phys.* **16**, 053020 (2014).
- [54] V. Denisenko *et al.*, *Opt. Express* **17**, 23374 (2009).
- [55] Y. Toda, K. Shigematsu, K. Yamane, and R. Morita, *Opt. Commun.* **308**, 147 (2013).
- [56] J. Leach *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 257901 (2002).
- [57] G. C. G. Berkhout *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 153601 (2010).
- [58] M. Malik *et al.*, *Nat. Commun.* **5**, (2014).
- [59] T. Ando *et al.*, *Opt. Lett.* **34**, 34 (2009).
- [60] M. A. Cibula and D. H. McIntyre, *Opt. Lett.* **38**, 2767 (2013).
- [61] R. Oron *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3322 (2000).
- [62] Y. Kozawa and S. Sato, *Opt. Lett.* **30**, 3063 (2005).
- [63] M. Stalder and M. Schadt, *Opt. Lett.* **21**, 1948 (1996).

- [64] Y. Tokizane, K. Oka, and R. Morita, *Opt. Express* **17**, 14517 (2009).
- [65] M. Suzuki, K. Yamane, Y. Toda, and R. Morita, in *Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO EUROPE/IQEC), 2013 Conference on and International Quantum Electronics Conference* (PUBLISHER, ADDRESS, YEAR), pp. 1–1.
- [66] M. R. Dennis, *Opt. Commun.* **213**, 201 (2002).
- [67] F. Flossmann, U. T. Schwarz, M. Maier, and M. R. Dennis, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 253901 (2005).
- [68] G. Milione, H. I. Sztul, D. A. Nolan, and R. R. Alfano, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 053601 (2011).
- [69] J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures* (Springer, ADDRESS, 1999), Vol. 115.
- [70] Y. Ueno *et al.*, *Opt. Express* **17**, 20567 (2009).
- [71] G. Walker, A. S. Arnold, and S. Franke-Arnold, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 243601 (2012).
- [72] S. Kyohhei, T. Yasunori, Y. Keisaku, and M. Ryuji, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 08JL08 (2013).
- [73] T. Aoki, G. Mohs, M. Kuwata-Gonokami, and A. A. Yamaguchi, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3108 (1999).
- [74] Y. Tokizane *et al.*, *Opt. Express* **17**, 24198 (2009).
- [75] P. Monceau, *Adv. Phys.* **61**, 325 (2012).
- [76] S. Tanda *et al.*, *Nature* **417**, 397 (2002).
- [77] M. Tsubota, K. Inagaki, T. Matsuura, and S. Tanda, *Europhys. Lett.* **97**, 57011 (2012).
- [78] T. Matsuura, K. Inagaki, and S. Tanda, *Phys. Rev. B* **79**, 014304 (2009).
- [79] K. Shimatake, Y. Toda, and S. Tanda, *Phys. Rev. B* **75**, 115120 (2007).
- [80] J. Demsar, B. K., and D. Mihailovic, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 800 (1999).
- [81] J. He *et al.*, *Opt. Express* **21**, 20230 (2013).
- [82] G. F. Quinteiro, P. I. Tamborenea, and J. Berakdar, *Opt. Express* **19**, 26733 (2011).
- [83] R. Imai *et al.*, *Opt. Express* **20**, 21896 (2012).