

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 12 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13369

研究課題名(和文) 偏光渦パルスを用いた時間分解コヒーレントポラリメトリ

研究課題名(英文) Time-resolved coherent polarimetry using polarization vortices

研究代表者

戸田 泰則 (Toda, Yasunori)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：00313106

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではビーム断面に偏光の定まらない特異点を有する偏光渦パルスを利用した新規コヒーレント分光(縮退四光波混合分光と呼ばれる非線形レーザー分光を用いた時間分解ポラリメトリ)を開発し、半導体GaN励起子(電子-正孔対)に対して次の項目に関する知見を得ることに成功した：(a) 励起子交換相互作用と歪エネルギーの定量的瞬時評価、特に等方性試料に残留する微小な異方性の高感度かつ高精度な評価、(b) 励起子の対称性破れを反映した偏光特異点ダイナミクス、(c) スピンおよび擬スピン応答およびスピン相関ダイナミクス

研究成果の概要(英文)：We have developed a novel type of coherent spectroscopy (time-resolved polarimetry using nonlinear laser spectroscopy known as degenerate four-wave-mixing) using polarization vortices characterized by a vector singularity on the beam cross-section, and performed the spectroscopy on semiconductor GaN excitons (electron-hole pairs). We successfully obtained the results concerned as follows: (a) quantitative snap-shot evaluations of exciton spin exchange and uniaxial strain energies; especially for small residual anisotropies in isotropic samples; (b) coherent dynamics of the polarization singularities resulting from broken rotational symmetries of excitons, (c) spin and pseudo-spin dynamics and their correlations resulting from excitons interactions.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 偏光渦 縮退四光波混合

1. 研究開始当初の背景

超短光パルスを用いた偏光分光は、素励起ダイナミクスに反映されるスピン応答や微細構造、ラマン振動など幅広い物性探索・機能開拓に用いられる。このような時間分解コヒーレント分光を用いた偏光応答観測は、従来、均一偏光を持つ光波を用いて励起・検出されるのが一般的である。そのため偏光特性の解析には偏光素子の回転による逐次検出が必要となり、必然的にドリフトや熱揺らぎ等に起因するノイズが発生する。申請者は長年にわたって時間分解分光の偏光応答観測に取り組んできたが[1,2]、上記のノイズ低減のために要求される測定系の精度や長時間測定に対する安定性が課題であった。他方、近年取り組んできた軸対称偏光渦パルスの研究を通して[3,4]、偏光渦のビーム断面内で回転する偏光軸の空間分布を利用すれば、全方位の偏光応答を瞬時検出できる可能性があると考えた(図1参照)。

研究開始当初、スピン応答に代表される素励起ダイナミクスの偏光観測は、各偏光応答の逐次検出・解析から求めるのが一般的であり、偏光応答間のコヒーレント相関測定は申請者の知る限り実現されていなかった。例えば従来の均一偏光ビームを用いた分光において、スピン緩和は逐次検出による円偏光成分の差分や偏極率から間接的に見積もられていた[1]。偏光渦を励起に用いた場合、試料の偏光特性は信号光波の強度/偏光の空間分布から解析可能となり、CCD (Charge - Coupled Device) を用いた空間モード検出により最適化が容易となる。また逐次検出の必要なくなるため、測定時間の短縮と低周波ノイズの低減が実現され、高感度な偏光応答検出が期待できる。さらに最も斬新な点として、全方位偏光励起による偏光応答(スピン応答)のコヒーレント励起が可能となり、そのダイナミクスや相関を直接検出できる。

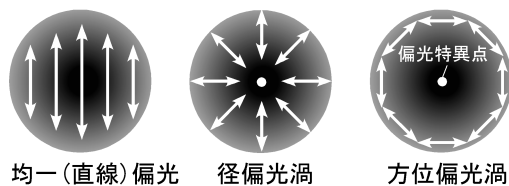


図1：一般的な光波の偏光(左、例として直線偏光の光波断面を示す)と偏光渦(中央、右)の違い。

2. 研究の目的

上記の背景にもとづき、本研究では偏光渦パルスを利用した新しいタイプの時間分解コヒーレント分光(縮退四光波混合分光にもとづく時間分解ポラリメトリ)の開発を目的とした。ビーム断面の場所に依じて360度回転する偏光軸を有する軸対称偏光渦に着目し、全方位偏光応答のコヒーレント同時励起・検出を実現する。これによって偏光素子を回転することなく偏光応答検出が可能

となり、高感度化・高精度化と測定時間短縮が実現される。加えてコヒーレント分光にもとづく偏光応答間の相関検出も期待できる。光波の空間偏光特性を活用することによって、均一偏光励起による逐次検出では得られない新しい時間分解ポラリメトリの創成を目指した。

3. 研究の方法

測定手段として、代表的なコヒーレント分光法である四光波混合(Four - Wave - Mixing: FWM)を用いた。超短パルス光を用いたFWM分光法は、励起子(光励起で生成される電子-正孔対)の分極やスピンのコヒーレントダイナミクスの観測に広く用いられる手法であり、光との相互作用によって生じる奇数高次の非線形光学効果を利用する。本研究では光波の空間パラメータを扱うため、手法の確立には空間分解検出が望まれる。縮退型FWM分光法では励起光と空間的に分離された方向に指向性を持つ信号光が発生するため信号光の直接観測が可能であり、測定および解析手法の確立に有効である。

試料は強いFWM信号光を示すワイドギャップ半導体 GaN(窒化ガリウム)を用いた。特徴的な直線偏光特性を示す一軸歪 GaN 励起子に対して径偏光(方位偏光)渦パルス励起による偏光応答観測を実施した(4.(1))。等方歪をもつ GaN 試料に対する測定結果との比較を通して定量的に評価すると共に、結果をもとに光学系の最適化および解析モデルの構築を行った。つぎに偏光特異点解析(4.(2))とスピン偏極測定を実現し(4.(3))、これらの緩和ダイナミクスを偏光渦パルス対の遅延時間依存性から測定・解析および評価した。スピンドイナミクス観測に関しては、軸対称偏光渦のうち、偏光分布として方位方向に二回対称の直線偏光と円偏光を交互に持つポアンカレビームに着目し、これを励起光としてスピン分解型のFWM分光を実施した。

4. 研究成果

(1) 励起子異方性の高精度・高感度検出

軸対称に全方位の偏光が分布する径偏光渦パルスを生成し(図2(a))、FWM分光法による励起子異方性のスナップショット測定を行った。本項目では強度分布のみから偏光応答解析を実現し、測定時間短縮による高精度化・高感度化を示すことに成功した[5]。

まず一軸歪 GaN 薄膜試料に対する測定結果から測定の有効性を確認した。一軸歪が存在すると、励起子に異方的スピン交換相互作用が働き、直線偏光性を持つ励起子準位が見られる。FWM 信号光の断面強度分布から、励起に用いた径偏光渦の円環状強度分布とは異なる2回対称の強度分布が得られた(図2(b))。励起光の偏光分布にもとづき、強度分布が異方的直線偏光性を反映することを確認した。また A 励起子(電子-重い正孔対)：

X_A)とB励起子(電子-軽い正孔対 X_B)における直交方向の異方性から、偏光特性が異方的交換相互作用に起因することも確認できた。得られた偏光特性から一軸歪と交換相互作用定数を見積もり、得られた物性定数の精度がきわめて高いことから、歪解析に対する有効性を示すことができた。

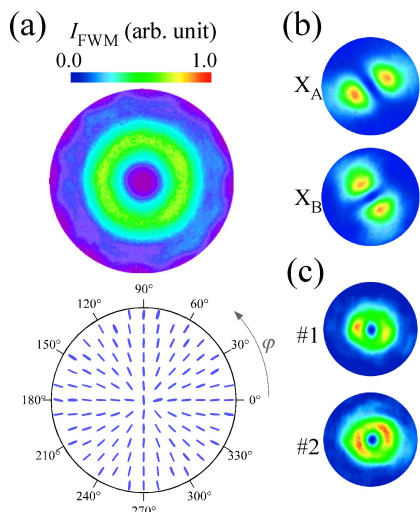


図2 : (a) 励起に用いた径偏光渦パルスおよび偏光分布(直線に見えるのは偏光楕円体)(b)一軸歪試料から得られる異方的な強度分布を持つ信号光、(c)等方試料の異なる場所(#1と#2)で観測された信号光。いずれも強度分布のみで瞬時に異方性を判別できる(詳細は[5]を参照)。

上記の結果を踏まえ、つぎに等方的なGaN薄膜試料に対する測定を行った。基板の影響により試料には二軸歪が誘起されるが、理想的には偏光異方性を持たない。結果から一軸歪試料の場合とは異なり、円環状に近い断面強度分布が観測された(図2(c))。しかしながらわずかに異方成分が残っており、これを定量的に明らかにするため、特異点中心から動径方向の積分強度を算出し、方位方向に対して極座標解析を実施した。見積もられた一軸歪エネルギーは $-0.1 \pm 0.02 \sim 0.3 \pm 0.03$ meVであり、きわめて小さな残留歪であるが、スナップショット測定にもとづく高感度かつ高精度な評価を実現できた。また図(c)に示すように異方性は場所依存性を有しており、結晶中の欠陥や不純物の影響で局所的に残留する異方性を反映することが示された。

(2) 偏光応答ダイナミクス検出

本項目ではFWM信号光における偏光分布、特に微小な摂動に対して感度を持つ偏光特異点の時間発展に着目した。偏光分布を解析するため、ここでは検出に偏光子と検光子を組み合わせた回転位相子法を用い、ストークス解析を通して偏光分布および偏光特異点の正確な定量解析を実現した。その結果、等方的試料における微小な特異点分裂を検出することに成功した。観測された偏光特異点分裂は、励起径偏光渦パルスにおける微小な

空間チャープを起源としており、このチャープが励起子分極の回転対称性破れに対して最低次ガウスモードの摂動光を生じることにより発現する。この摂動光の発生メカニズムについてモデルを用いた数値計算を行い、観測された偏光特異点分裂を再現できた。また解析結果から、特異点の分裂幅や分裂方向が励起子分極の非対称性に依存して時間的に変化することを明らかにした。結果にもとづき、一軸歪GaN試料に対して観測される偏光特異点の分裂幅や分裂方向の時間依存性を再現するとともに、定量的な解析評価を実現した。GaN試料の場合は定常的な歪であるが、例えば光相転移物質など対称性破れの時間的な異方性変化が存在する試料に対して有効な測定手段となり得る。

(3) スピン応答ダイナミクス検出

ポアンカレビームの偏光分布は、ポアンカレ球の子午線上の偏光状態に対応しており、等方試料に対してプロット球上の異なるスピン状態を持つ電子を励起できる。このときスピン状態の応答は、信号光の空間強度分布の対称性に反映され、空間偏光解析を通してスピンドイナミクス検出が実現される。

項目(2)と同様に、検出には回転位相子法を使用し、ストークス解析を通して偏光分布を解析した。等方的GaN試料に対する測定結果から直線偏光と円偏光を同時に持つ二回対称の偏光分布を確認した。さらに詳細な定量解析を実現するため、ストークス(S)パラメータ分布の対称性および大域性を反映させた拡張Sパラメータによる解析を行った[3]。S0パラメータは運動量位相緩和、S1およびS2は擬スピン、S3はスピンドイナミクスにそれぞれ対応する。生成した励起パルスのポアンカレ偏極は98%と極めて良質であり、これに対して等方的GaN試料のFWM信号光におけるスピン偏極率は88%であった。欠陥や不純物、表面状態に応じて対称性は低下するため、結果は妥当と考えられる。

スピン緩和を定量的かつ精度良く見積もるため、S3パラメータの二回対称性に着目し、その対称性の振幅緩和をスピン緩和に対応させた。測定結果は3.0 psと見積もられ、この値は過去のスピン回折格子や発光偏光ダイナミクス観測の結果と良く対応する[1]。ただし、緩和時間はS0から見積もられる運動量位相緩和時間(いわゆる T_2)よりも長く、両者の緩和機構における異なる起源、または同一起源による影響の違いを反映していると考えられる。またS1から求まる擬スピン(スピンの足し合わせによる直線偏光性)の緩和時間は2.0psと見積もられ、スピン緩和との違いが明らかとなった。明確な起源に関しては詳細な解析(試料依存性や温度依存性など)が必要であるが、緩和時間の違いが本質的なものであるならば、励起子分子など励起子相関の影響が関与していることは確実であり、スピン相関測定への道筋を示すこと

ができたと考える。

<引用文献>

- [1] T. Ishiguro, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 90, 011904 (2007).
- [2] Y. Toda, *et al.*, Phys. Rev. B. 90, 094513 (2014).
- [3] M. Suzuki, *et al.*, Opt. Express, 22, 16903 (2014).
- [4] Y. Tokizane, *et al.*, Opt. Express 17, 24198–24207 (2009).
- [5] K. Shigematsu, *et al.*, Appl. Phys. Express, 9, 122401 (2016).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 5 件)

K. Shigematsu, M. Suzuki, K. Yamane, R. Morita, Y. Toda, “Snap-shot optical polarization spectroscopy using radially polarized pulses”, Appl. Phys. Express 9, 122401/1-4 (2016), 査読有, DOI: 10.7567/APEX.9.122401

M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, R. Morita, “Analysis of the Pancharatnam-Berry phase of vector vortex states using the Hamiltonian based on the Maxwell-Schrodinger equation”, Phys. Rev. A 94, 043851/1-7 (2016), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevA.94.043851

K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, and R. Morita, “Coherent dynamics of exciton orbital angular momentum transferred by optical vortex pulses”, Phys. Rev. B 93, 045205/1-8 (2016), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.93.045205

M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, R. Morita, “Extended Stokes Parameters for Cylindrically-Polarized Beams”, Opt. Rev. 22, 179-183 (2015), 査読有, DOI : 10.1007/s10043-015-0023-7

M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, R. Morita, “Full Quantitative Analysis of Arbitrary Cylindrically Polarized Pulses by Using Extended Stokes Parameters”, Sci. Rep. 5, 17797/1-9 (2015), 査読有, DOI : 10.1038/srep17797

[学会発表](計 13 件)

Y. Toda, (Invited) “Coherent spectroscopy using topological lightwaves”, International Workshop on Quantum and Nanoscale Photonics, March 30-30 (2017), Hokkaido University (Sapporo).

戸田泰則, (招待講演) “トポロジカル光波を用いた半導体光物性探索”, 千葉大学キラリティー研究センター 第2回公開シンポジウム, 千葉大学キラリティー研究センター 2017年3月8-9日(2017).

戸田泰則, (招待講演) “トポロジカル光波を使った物性探索”, 応用物理学会・量子エレクトロニクス研究会 「光-物質相互制御～制御技術の進展と新しい物理の探求～」, 上智大学軽井沢セミナーハウス(軽井沢) 12月8-10日(2016).

内古閑隆太郎, 重松恭平, 山根啓作, 森田隆二, 戸田泰則, “ポアンカレビームパルスを用いた GaN 励起子スピンのコヒーレントダイナミクス観測”, 日本物理学会 2016 年秋学会大会, 金沢大学角間キャンパス(金沢市) 9月13-16日(2016).

戸田泰則, (招待講演) “トポロジカル光波を使った物性探索応用”, 日本学術振興会 「先端ナノデバイス・材料テクノロジー第151委員会」理化学研究所(和光), 7月28-28日(2016).

K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, “Rotational Symmetry Breaking in Coherent Dynamics of GaN Excitons Excited by Radially Polarized Pulses”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2016), June 5 - 10 (2016), San Jose Convention Center (USA).

K. Shigematsu, M. Suzuki, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, “Single-Shot Measurements of Anisotropic Excitons via Four-Wave Mixing Spectroscopy with Radially Polarized Pulses”, Optical manipulation and its satellite topics (OMC'16), April 17 - 20 (2016), Pacifico Yokohama (Kanagawa), Japan.

重松 恭平、鈴木 雅人、山根 啓作、森田隆二、戸田泰則, “時空間分解偏光解析から明らかとなった励起子コヒーレントダイナミクスにおける回転対称性破れ”, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月19-22日, 東工大大岡山キャンパス(東京都目黒区).

西坂 拓馬、重松 恭平、山根 啓作、森田隆二、淡路 祥成、戸田泰則, “空間変調光注入同期による面発光レーザーのトポロジカルチャージ制御”, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月19-22日, 東工大大岡山キャンパス(東京都目黒区).

Y. Toda, and K. Shigematsu (Invited) “Coherent dynamics of excitons excited by

singular optical pulses", Japan, Vietnam, Bulgaria and Taiwan Joint Workshop, July 18-20 (2015), National Chiao Tung University, Hsinchu City, Taiwan.

K. Shigematsu, S. Morimoto, M. Suzuki, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, "Coherent Dynamics of Uniaxially-Strained GaN Excitons Excited by Cylindrically Polarized Pulses", Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe and the European Quantum Electronics Conference, June 21 - 25 (2015), International Congress Centre, Munich, Germany.

K. Shigematsu, T. Nishizaka, H. Yuri, K. Yamane, R. Morita, Y. Awaji, and Y. Toda, "Optical feedback control of orbital angular momentum in a vertical-cavity surface-emitting laser using spatial phase modulation", Optical manipulation and its satellite topics (OMC'15), April 22 - 24 (2015), Pacifico Yokohama (Kanagawa), Japan.

重松恭平，戸田泰則，山根啓作，森田隆二，(論文賞受賞記念講演) "Orbital Angular Momentum Spectral Dynamics of GaN Excitons Excited by Optical Vortices", 第76回応用物理学会秋季学術講演会，2015年09月13-16日，名古屋国際会議場(名古屋市)

〔その他〕

<http://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/optphys/exp/Research.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

戸田 泰則 (TODA YASUNORI)

研究者番号：00313106

北海道大学・大学院・工学研究院・教授