

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 16 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360024

研究課題名(和文)モノサイクル域光パルスのスピン軌道相互作用制御とその応用

研究課題名(英文)Control of spin-orbit interaction of optical pulses in the mono-cycle regime and its application

研究代表者

森田 隆二(MORITA, Ryuji)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30222350

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,800,000円、(間接経費) 4,740,000円

研究成果の概要(和文)：サイクル域の光渦パルスの発生，ならびに軌道角運動量可変な超mJ高強度・27 fs超短光渦パルス発生に初めて成功し，また超広帯域光渦パルスの高精度軌道角運動量スペクトル準実時間測定を実証した。さらに，光渦を用いたポンプ・プローブ閉ループ時間分解非線型励起分光法を開発し，GaN励起子の軌道角運動量の緩和時間を評価した。その他，スピン角運動量および軌道角運動量を制御した光渦パルスを用いて，ナノサイズの金属螺旋二重構造を作製することにも初めて成功した。

研究成果の概要(英文)：Few-cycle optical-vortex pulse generation and over-mJ intense, 27 fs optical-vortex pulse generation with programmable topological-charge control were first performed. Furthermore, the measurement of the orbital-angular-momentum spectra of ultra-broadband optical-vortex pulses with high precision was demonstrated in quasi-real time. The time-resolved nonlinear spectroscopy technique using optical vortices as a pump and a probe was developed, enabling us to evaluate the relaxation time of orbital angular momentum of the GaN exciton. In addition, chiral nanostructures of metal were first fabricated by using spin- and orbital-angular momentum controlled optical-vortex pulses.

研究分野：超高速非線型光学，レーザー物理，量子エレクトロニクス

科研費の分科・細目：応用物理学・光工学・光量子科学

キーワード：光量子科学 量子エレクトロニクス 高性能レーザー モノサイクル光パルス スピン軌道相互作用  
位相特異性 偏光特異性

### 1. 研究開始当初の背景

光の軌道角運動量・スピン角運動量は独立に制御することができ、これらが well-defined に同時に存在するとき、これらの相互作用であるスピン軌道相互作用を生じさせることができる。しかし、この光のスピン軌道相互作用を有効に利用した応用例はほとんどない状況であった。

一方、研究代表者らは、モノサイクル域光パルス発生・制御技術と空間的位相・偏光制御技術とを独自に開発しており、超広帯域コヒーレント光渦発生に成功した実績を有していた。

### 2. 研究の目的

本研究は、いままで有効に利用されてこなかった光の持つ位相・偏光の空間的特異性に着目し、申請者らが現在までに独自に開発したモノサイクル域光パルス発生・制御技術、さらには光のスピン軌道相互作用変換・制御技術を用いることにより、(1) モノサイクル域「光渦」・「偏光渦」パルスの高効率発生を行うこと、(2) モノサイクル域光渦・偏光渦の極限時間域において環状ビームである特性、光のスピン軌道相互作用を利用した閉ループ時間分解非線型分光の手法を確立すること、(3) 同上特性、光のスピン軌道相互作用を活かしてプラズマ制御・レーザー加工への応用を行うこと、を目的とする。

### 3. 研究の方法

以下の方法により研究を実施した。

- (1) サイクル域高出力・超短光渦パルスの発生、および軌道角運動量可変な高出力・超短・超広帯域光渦パルスの発生。
- (2) 2次元干渉像を用いた超広帯域高精度軌道角運動量スペクトル測定法の開発。
- (3) 光渦を用いたポンプ・プローブ閉ループ時間分解非線型励起・分光における軌道角運動量スペクトル分解測定法の開発。
- (4) 光のスピン軌道相互作用を活かした金属との相互作用実験。

### 4. 研究成果

- (1) サイクル域高出力・超短光渦パルスの発生、および軌道角運動量可変な高出力・超短・超広帯域光渦パルスの発生

申請者らが既に開発した、分散のない超広帯域光渦発生法により生成した光渦パルスをシード光とし、縮退光パラメトリック増幅およびプリズム対・チャープミラーを用いたチャープ補償を行うことにより、スペクトル帯域 650–950 nm, 2.3 サイクル, 5.9 fs, 56  $\mu$ J の高出力・超短光渦パルスの発生に成功した。図1に、発生させた光渦パルスの時間プロフィールを示す。このパルス幅 5.9 fs は、対応するスペクトルのフーリエ変換限界パルス幅 5.5 fs ときわめて近い値となっており、モノサイクル域における光渦パルス発生

としては、本結果が最初の例である。この発生技術は、本研究の基盤技術である。

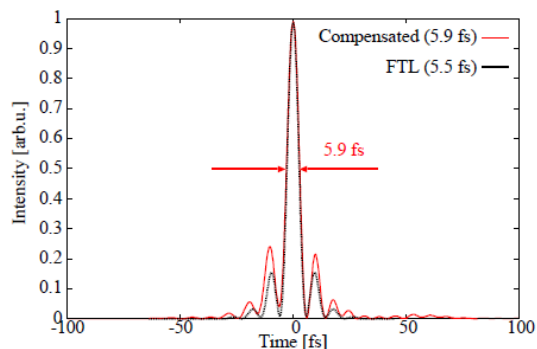


図1 超短光渦パルスの時間プロフィール。

光渦を生成する際、空間位相変調器 (SLM) が用いられることが多いが、回折効率が低いことや超広帯域パルスには空間分散をとまなうという問題点がある。そこで本研究では、前置増幅の後、SLM を含んだ 4f 光学系を用いることにより、空間分散を避け、その後、主増幅を行うことにより、低回折効率を補償する光学系を構築し、軌道角運動量が可変であり超高帯域に適応可能な 1 mJ 出力・27 fs 超短光渦パルス発生を実現した。この手法は、SLM のホログラムパターンを変化させるだけで、容易に光渦の軌道角運動量 (トポロジカルチャージ) を制御することができるという利点を持つ。

図2に発生させた超短光渦パルスのビーム強度プロフィールを示す。(a), (c), (e), (g) が SLM のホログラムパターンを変化させることにより発生させた、それぞれトポロジカルチャージ  $m=0, 1, 2, 3$  の結果である。円柱レンズを通した干渉測定の際の暗線の数  $m$  に対応するので、(b), (d), (f), (h) から確かに所望のトポロジカルチャージが得られていることがわかる。

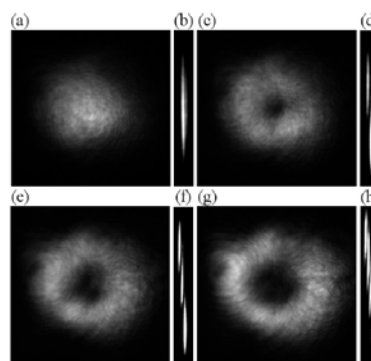


図2 (a)  $m=0$ , (c)  $m=1$ , (e)  $m=2$ , (g)  $m=3$  の軌道角運動量自在制御された超短光渦パルスビームプロフィール, (b), (d), (f), (h) の暗線の数  $m$  に対応する。

- (2) 2次元干渉像を用いた超広帯域高精度軌道角運動量スペクトル測定法の開発

通常、光渦の軌道角運動量を測定するには、

平面波との干渉像の分岐数を数える方法やホログラムパターンを変化させながら、回折強度を測定する手法が用いられる。しかしながら、精確なスペクトル分布を求めるのが困難であったり、超広帯域パルスに適用できない、実時間計測ができないという欠点があった。本研究では、2次元干渉像を用いた、準実時間計測可能な超広帯域高精度軌道角運動量スペクトル測定法の開発を行った。この方法は、被測定対象である光渦と平面波とみなせる光との2次元干渉像を測定し、2次元空間フーリエ変換、空間周波数フィルタリングを行った後、空間逆フーリエ変換を行うことにより、空間座標（方位角）に依存した位相ならびに軌道角運動量スペクトルを求めるというものである。

650–950 nm 超広帯域光渦を切り出した光（700 nm を中心、スペクトル幅 10 nm）に対し、本手法を適用し求めた軌道角運動量スペクトルを図3に示す。ほとんどの成分は軌道角運動量  $m=2$  であるが、1/100 程度のサイドバンドの存在さえ同定できる高精度な測定であることがわかる。

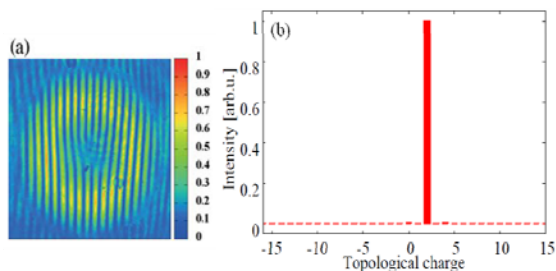


図3 650–950 nm 超広帯域光渦を 700 nm  $\pm$  5 nm で切り出した光渦パルスの (a) 平面波との2次元干渉像, (b) 測定された軌道角運動量スペクトル。

(3) 光渦を用いたポンプ・プローブ閉ループ時間分解非線型励起・分光における軌道角運動量スペクトル分解測定法の開発

光渦を用いたポンプ・プローブ閉ループ時間分解非線型励起分光を行い、軌道角運動量スペクトル分解測定法を確立した。図4にその軌道角運動量スペクトルのダイナミクス測

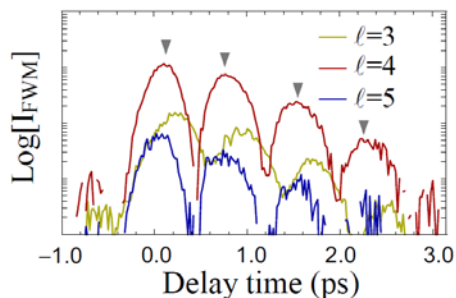


図4 軌道角運動量  $l_1 = -2$  のポンプ光渦と  $l_2 = 1$  のプローブ光渦とによる GaN 励起子からのポンプ・プローブ四光波混合信号(軌道角運動量分解測定結果)。

定結果を示す。これにより、光渦によって励起された窒化ガリウム (GaN) 励起子は、 $\sim 1.5$  ps の位相緩和時間程度、その軌道角運動量を保持していることが明らかとなった。

(4) 光のスピンの軌道相互作用を活かした金属との相互作用実験

ナノ秒時間領域ではあるが、スピン角運動量（偏光）および軌道角運動量を制御した光渦パルスを用いて、金属タンタル (Ta) の加工実験を行い、ナノサイズのニードル構造を作製することに成功した。ビームサイズが 100  $\mu\text{m}$  であるのに対して、このニードル先端曲率は 40 nm 程度である。また、光渦の波面構造を反映して、このニードルは側面に螺旋構造を持つ。光渦の螺旋の向きにより、ニードルの螺旋構造も反転可能である。その典型的結果の電子顕微鏡写真を図5に示す。この結果は、光渦の持つ螺旋波面構造を物質構造に転写した初めての例である。

また、軌道角運動量とスピン角運動量の和である全角運動量の大きさを変化させることにより、ニードルの螺旋の巻き数を制御することも明らかにしている。

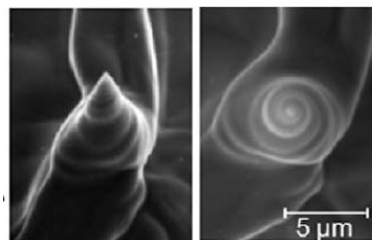


図5 光渦パルスと金属の相互作用により作製された螺旋ナノニードル（電子顕微鏡像）。光渦の波面構造を物質構造に転写することに初めて成功した例である。

## 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 20 件)

① K. Yamane, Z. Yang, Y. Toda, R. Morita, "Frequency-resolved measurement of the orbital angular momentum spectrum of femtosecond ultra-broadband optical-vortex pulses based on field reconstruction", *New J. Phys.* **16** (2014) 053020-1-15, DOI: 10.10088/1367-2630/16/5/053020, 査読有。

② R. Morita, K. Yamane, Z. Yang, Y. Toda, "Ultrafast and ultra-broadband optical-vortex pulse generation and characterization", *Proceedings of SPIE 8999*, Complex Light and Optical Forces VIII (2013) 899931-1-7, DOI:

10.1117/12.2036919, 査読有.

③ M. Sakamoto, K. Oka, R. Morita, N. Murakami, "Stable and flexible ring-shaped optical lattice generation by use of axially-symmetric polarization elements", *Opt. Lett.* **38** (2013) 3661-3664, DOI:10.1364/OL.38.003661, 査読有.

④ Y. Toda, K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, "Efficient Laguerre-Gaussian mode conversion for orbital angular momentum resolved spectroscopy", *Opt. Commun.* **308** (2013) 147-151, DOI: 10.1016/j.optcom.2013.05.050, 査読有.

⑤ M. Sakamoto, K. Oka, R. Morita, N. Murakami, "Generation of the ring-shaped optical lattice using axially-symmetric polarization elements", *Technical Digest of Frontiers in Optics 2013 Conference* (2013), FW4F.6, DOI: 10.1364/FIO.2013.FW4F.6 査読有.

⑥ F. Takahashi, K. Toyoda, S. Takizawa, K. Miyamoto, R. Morita, T. Omatsu, "Chiral structure control of metal nano-needles fabricated by optical vortex laser ablation", *Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2013) CM3H.6*, DOI: 10.1364/CLEO\_SI.2013.CM3H.6, 査読有.

⑦ Z. Yang, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Quasi-real-time Measurement of Orbital Angular Momentum Spectra of Ultra-broadband Optical Vortices from Fork-like Interferograms", *Technical Digest of Quantum Electronics and Laser Science (QELS) Conference (2013) QM3E.2*, DOI: 10.1364/CLEO\_QELS.2013.QM3E.2, 査読有.

⑧ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Amplification of ultrashort optical-vortex pulses with programmable topological-charge control", *Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2013) JW2A.04*, DOI: 10.1364/CLEO\_AT.2013.JW2A.04, 査読有.

⑨ K. Yamane, Z. Yang, K. Shigematsu, Y. Toda, R. Morita, "Measurement of orbital angular momentum spectrum of optical vortices based on electric-field reconstruction in spatial domain", *Technical Digest of Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO EUROPE/IQEC) 2013 Conference on and International*

*Quantum Electronics Conference*, IE-P.34, DOI: 10.1109/CLEOE-IQEC.2013.6801799, 査読有.

⑩ M. Suzuki, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Nonlinear conversion between ultrashort radially- and azimuthally-polarized pulses in an anisotropic media", *Technical Digest of Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO EUROPE/IQEC) 2013 Conference on and International Quantum Electronics Conference*, IF-P.14, DOI: 10.1109/CLEOE-IQEC.2013.6801799, 査読有.

⑪ S. Takizawa, F. Takahashi, K. Toyoda, K. Miyamoto, R. Morita, T. Omatsu, "Silicon chiral bump formed by optical vortex laser ablation", *Technical Digest of Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO EUROPE/IQEC) 2013 Conference on and International Quantum Electronics Conference*, CM-5.4, DOI: 10.1109/CLEOE-IQEC.2013.6801554, 査読有.

⑫ K. Toyoda, F. Takahashi, S. Takizawa, Y. Tokizane, K. Miyamoto, R. Morita, T. Omatsu, "Transfer of light helicity in nanostructures", *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013) 143603-1-5, DOI:10.1103/PhysRevLett.110.143603, 査読有.

⑬ K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, R. Morita, "Orbital angular momentum spectral dynamics of GaN excitons excited by optical vortices", *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** (2013) 08JL08-1-5, DOI:10.7567/JJAP.52.08JL08, 査読有.

⑭ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Ultrashort optical-vortex pulse generation in few-cycle regime", *Opt. Express* **20** (2012) 18986-18993, DOI: 10.1364/OE.20.018986, 査読有.

⑮ K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita, T. Omatsu, "Using optical vortex to control the chirality of twisted metal nanostructures", *Nano Lett.* **12** (2012) 3645--3649, DOI:10.1021/nl301347j, 査読有.

⑯ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Generation of ultrashort optical vortex pulses using optical parametric amplification", *Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2012) JTu1K.4*, DOI:

10.1364/CLEO\_AT.2012.JTu1K.4, 査読有.

⑰ M. Sakamoto, K. Oka, and R. Morita, "Diffraction characteristics of optical and polarization vortices generated by an axially symmetric polarizer", Proceedings of SPIE **8274** (2012) 827414-1-7, DOI: 10.1117/12.910108, 査読有.

⑱ 森田隆二, 戸田泰則, 尾松孝茂, 「位相・偏光特異性を持つ極限光パルスの発生とその応用」, 表面科学 **32** (2011) 748-754, DOI: 10.1380/jssj.32.748, 査読有.

⑲ M. Suzuki, Y. Toda, R. Morita, "Nonlinear propagation effects on high-power optical-vortex pulses in anisotropic crystals", Technical Digest of CLEO (Conference on Lasers and Electro-Optics) Europe, CD5.1 (2011), DOI: 10.1109/CLEOE.2011.5942697, 査読有.

⑳ K. Toyoda, K. Miyamoto, M. Okida, R. Morita, T. Omatsu, "Tilting metal micro-needle fabrication based on optical vortex laser ablation", Technical Digest of CLEO (Conference on Lasers and Electro-Optics) Europe, CM5.5 (2011), DOI: 10.1109/CLEOE.2011.5943337, 査読有.

[学会発表] (計 55 件)

① 滝澤隼, 高橋冬都, 宮本克彦, 比田井洋史, 森田隆二, 尾松孝茂, 「光波の角運動量転写によるシリコン螺旋円錐ナノ結晶」, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 19 日, 青山学院大学相模原キャンパス (相模原市).

② 山根啓作, 本田亜沙美, 戸田泰則, 森田隆二, 「mJ 級高強度トポロジカルチャージ可変超短光渦パルス発生」, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 18 日, 青山学院大学相模原キャンパス (相模原市).

③ 鈴木雅人, 山根啓作, 塩田康之, 岡和彦, 戸田泰則, 森田隆二, 「円筒座標系を基礎とする拡張ストークスパラメータによる軸対称偏光状態の解析」, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 17 日, 青山学院大学相模原キャンパス (相模原市).

④ R. Morita, K. Yamane, Z. Yang, Y. Toda, "Ultrafast and ultra-broadband optical-vortex pulse generation and characterization", 2014 Photonic West, 2014 年 2 月 6 日, Moscone Center (San Francisco, USA).

⑤ 森田隆二, 山根啓作, 戸田泰則, 「超短光渦パルスの発生・制御・特性測定」, レーザー学会学術講演会第 34 回年次大会, 2014 年 1 月 22 日, 北九州国際会議場 (北九州市).

⑥ M. Sakamoto, K. Oka, R. Morita, N. Murakami "Generation of the ring-shaped optical lattice using axially-symmetric polarization elements", The 2013 Frontiers in Optics/Laser Science XXIX (FiO/LS) meeting 2013 年 10 月 9 日, Hilton Bonnet Creek (Orlando, USA).

⑦ 重松恭平, 戸田泰則, 山根啓作, 森田隆二, 「複合光渦励起による励起子軌道角運動量スペクトルダイナミクス」, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 28 日, 徳島大学・常三島キャンパス (徳島市).

⑧ 高橋冬都, 滝澤隼, 宮本克彦, 森田隆二, 尾松孝茂, 「角運動量を持つ光によって形成されたシリコン螺旋構造体」, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 19 日, 同志社大学 (京田辺市).

⑨ 塩田康之, 山根啓作, 戸田泰則, 森田隆二, 覚間誠一, 「高強度かつ広帯域な光渦パルスに適応可能な偏光渦変換器の開発」, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 19 日, 同志社大学 (京田辺市).

⑩ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Programmable Ultrashort Optical-vortex Pulse Generation Using Optical Parametric Amplification and 4-f Configuration", the 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific-Rim (CLEO-PR) 2013, 2013 年 7 月 3 日, Kyoto International Conference Center (Kyoto, Japan).

⑪ Z. Yang, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Frequency-resolved Orbital Angular Momentum Spectrum Measurement of Ultra-broadband Optical Vortices", the 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific-Rim (CLEO-PR) 2013, 2013 年 7 月 3 日, Kyoto International Conference Center (Kyoto, Japan).

⑫ M. Suzuki, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Azimuthally-Polarized Modes of Ultrashort Optical Pulses in an Anisotropic Crystal", the 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific-Rim (CLEO-PR) 2013, 2013 年 7 月 3 日, Kyoto International Conference Center (Kyoto, Japan).

⑬ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, "Amplification of ultrashort

optical-vortex pulses with programmable topological-charge control”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2013, 2013年6月12日, San Jose Convention Center (San Jose, USA).

⑭ Z. Yang, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, “Quasi-real-time Measurement of Orbital Angular Momentum Spectra of Ultra-broadband Optical Vortices from Fork-like Interferograms”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2013, 2013年6月10日, San Jose Convention Center (San Jose, USA).

⑮ K. Yamane, Z. Yang, K. Shigematsu, Y. Toda, R. Morita, “Measurement of orbital angular momentum spectrum of optical vortices based on electric-field reconstruction in spatial domain”, Conference on Lasers and Electro-Optics Europe/International Quantum Electronics Conference, 2013年5月15日, International Congress Centre Munich (Munich, Germany).

⑯ M. Suzuki, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, “Nonlinear Conversion between Ultrashort Radially- and Azimuthally-Polarized Pulses in an Anisotropic Media”, Conference on Lasers and Electro-Optics Europe/International Quantum Electronics Conference, 2013年5月12日, International Congress Centre Munich (Munich, Germany).

⑰ 高橋冬都, 豊田耕平, 滝澤隼, 宮本克彦, 森田隆二, 尾松孝茂, 「光渦レーザーアブレーションによって形成された螺旋ナノニードル」, 第60回応用物理学会春期学術講演会, 2013年3月28日, 神奈川工科大学(厚木市).

⑱ 山根啓作, 本田亜沙美, 戸田泰則, 森田隆二, 「トポロジカルチャージ可変な高強度超短光渦パルス光源の開発」, 第60回応用物理学会春期学術講演会, 2013年3月28日, 神奈川工科大学(厚木市).

⑲ 鈴木雅人, 山根啓作, 戸田泰則, 森田隆二, 「非線型屈折率効果を伴う物質の異方性を用いた光子のスピン軌道角運動量変換 IV」, 第60回応用物理学会春期学術講演会, 2013年3月28日, 神奈川工科大学(厚木市).

⑳ K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, R. Morita, “Orbital-angular-momentum spectral dynamics of GaN excitons excited by optical vortices”, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012 (IWN2012), 2012年10月18日, Sapporo Convention Center (Sapporo, Japan).

㉑ Z. Yang, K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, “Measurement of orbital angular momentum spectrum from fork-like interferogram”, The 73rd JSAP Autumn Meeting, JSAP-OSA Symposia, 2012年9月14日, Ehime University (Matsuyama, Japan).

㉒ 鈴木雅人, 山根啓作, 戸田泰則, 森田隆二, 「非線型屈折率効果を伴う物質の異方性を用いた光子のスピン軌道角運動量変換 III」, 第73回応用物理学会学術講演会, 2012年9月13日, 愛媛大学(松山市).

㉓ 重松恭平, 戸田泰則, 山根啓作, 森田隆二, 「高次光渦励起による GaN 励起子の軌道角運動量分解四光波混合分光」, 第73回応用物理学会学術講演会, 2012年9月13日, 愛媛大学(松山市).

㉔ R. Morita, “Few-cycle optical-vortex pulse generation by parametric amplification”, France-Japan Joint workshop on Advanced Lasers and Nonlinear Optics, 2012年9月3日, Néel Institute, (Grenoble, France).

㉕ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, “Generation of ultrashort optical-vortex pulses in few-cycle regime”, Europhoton Conference 2012, 2012年8月28日, Alba Nova University Centre (Stockholm, Sweden).

㉖ K. Yamane, Y. Toda, R. Morita, “Generation of ultrashort optical vortex pulses using optical parametric amplification”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) and Quantum Electronics and Laser Science (QELS) Conference, 2012年5月8日, San Jose Convention Center (San Jose, USA).

㉗ M. Suzuki, Y. Toda, R. Morita, “Nonlinear propagation effects on high-power optical-vortex pulses in anisotropic crystals”, Conference on Lasers and Electro-Optics Europe 2011, 2011年5月25日, International Congress Centre Munich (Munich, Germany).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

森田 隆二 (MORITA, Ryuji)  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 30222350

### (2) 研究分担者

戸田 泰則 (TODA, Yasunori)  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 00313106