

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月12日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19070

研究課題名(和文)光渦の角運動量が拓くキラルオプティカルマテリアル

研究課題名(英文)Chiral optical materials formed by optical vortex illumination

研究代表者

尾松 孝茂(Omatsu, Takashige)

千葉大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：30241938

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：[1]トランス-シス-トランスの光異性化反応サイクルより短いパルス幅(<2ps)のレーザー光を照射しても、キラルな質量移動が起こらないことが分かった。軌道角運動量の転写はシス体が支配的で表面が軟化した後に力学的に作用することを意味する。また、質量移動はスピン-軌道相互作用によって現れる縦電場の振幅分布、位相分布に支配されることが分かった。

[2]超短パルス光渦を入射させると、光重合が3次的に成長し螺旋ファイバーへ成長することが分かった。直線的なファイバーがまず成長し、その後、ファイバーが急速に捩じれ始めることから、ファイバーの光閉じ込め効果が軌道角運動量転写に大きく寄与していることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

アゾポリマーの螺旋表面レリーフ形成や光重合による自己組織の螺旋ファイバー形成などの現象はこれまですべて1光子吸収を介して光渦の軌道角運動量が物質に転写されたものであった。今回の研究によって2光子吸収などの多光子過程を介しても軌道角運動量が物質に作用することが明らかになった。また、軌道角運動量が作用するのは、主として、吸収のプロセスではなく、ある程度大きな質量として成長した後、力学的に作用することも判明した。これらの研究結果は、光渦の軌道角運動量と物質の相互作用に新たな知見を与えるものである。また、光渦のパルス幅さえ適切に選択すれば、局所的な物質変化がマクロな構造へと成長することも判明した。

研究成果の概要(英文)：We demonstrated chiral surface relief formation in azo-polymers by illumination of tightly focused 1 $\mu$ m picosecond optical vortex pulses. We discovered that the chiral surface relief formation requires several times photo-isomerization cycles. In fact, it is noteworthy that it is difficult to create such chiral surface relief by employing optical vortex pulses with a pulse duration of less than 2 ps. We also successfully created a millimeter scale helical microfiber by irradiating picosecond visible optical vortex pulses to ultraviolet curing resin via a two-photon-photopolymerization. The resulting helical microfibers exhibited a length of 300 $\mu$ m. Also, we could control the helicity of the fibers only by changing the handedness of incident optical vortex pulses.

研究分野：光量子工学

キーワード：光渦 軌道角運動量 スピン軌道相互作用

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

光渦の軌道角運動量が誘導する光力学的効果である「光渦パルスを物質に照射するだけで物質表面にキラルナノ構造ができる」という現象を利用すれば、あらゆる物質の表面を室温大気雰囲気中でキラルナノ構造に加工できる。しかし、パルス幅や波長を変えようとともキラルナノ構造ができるのは、物質表面あるいは物質同士の界面に限定されている。また、パルス幅が数 ps より短くなるとキラル構造そのものができない。したがって、たとえ 3 次元加工の標準光源であるフェムト秒レーザーを光渦に変換して集光しても、キラルナノ構造は物質の内部に創れない。

「なぜ物質内部にはキラルな構造ができないのだろうか?」この謎を解き明かすため、本研究は、「光渦の軌道角運動量がどのようなメカニズムで物質のキラルな質量移動を誘導しキラルナノ構造を創るのか?」その素過程の全貌の解明に挑戦する。また、物質内部でのキラルな質量移動を光で操り、キラルオプティカルマテリアルを創成する。

### 2. 研究の目的

キラリティー(物質の立体構造がその鏡像と空間的に重ならない性質)を制御することは物質科学における普遍的テーマである。光渦とは、螺旋波面に由来する軌道角運動量と螺旋波面の向きで決まるキラリティーを持つ光である。「光渦パルスを物質(金属・半導体・有機薄膜など)に照射すると物質表面でキラルな質量移動が起こり、物質表面にナノスケールのキラルな螺旋構造(キラルナノ構造)ができること」を研究代表者は世界で初めて発見した。

本研究では、物質に軌道角運動量を持つ超短パルス光渦を照射することで時系列に起こる多光子励起吸収、濃度勾配による質量移動、光力学効果などを操り、物質内部でキラルな質量移動を誘導する。

### 3. 研究の方法

#### [1]軌道角運動量が誘導するキラルな質量移動の可視化

アゾポリマーの質量移動はトランス-シス-トランスの光異性化反応サイクル、シス体の濃度による濃度勾配に応じたシス体の拡散、光力学的な質量移動の過程があるが、どのような時間スケールで光渦の軌道角運動量が物質表面でのキラルな質量移動を誘導するのか定量的に評価する。そのために、アゾポリマーの吸収がない赤外超短パルスレーザーを光渦に変換して 2 光子吸収を介してアゾポリマーの表面加工を行う。加工痕を原子間力顕微鏡によって解析して軌道角運動量の効果を定量的に評価するとともに、軌道角運動量が物質のキラルな質量移動を誘導するその瞬間を可視化する。

#### [2]多光子励起による光重合

可視域に吸収を持たない光重合材に可視域の超短パルスレーザーを入射して、局所的な多光子励起を誘導し、光渦の軌道角運動量がどのように物質のキラルな質量移動を誘導するのか解明する。また、できた重合体の構造をレーザー走査型顕微鏡、電子線顕微鏡を用いて可視化する。

### 4. 研究成果

[1]トランス-シス-トランスの光異性化反応サイクルより短いパルス幅(<2ps)のレーザー光を照射しても、キラルな質量移動が起こらないことが分かった。軌道角運動量の転写はシス体が支配的で表面が軟化した後に力学的に作用することを意味する。また、質量移動は円偏光と光渦の結合、すなわち、スピン-軌道相互作用によって現れる縦電場の振幅分布、位相分布に支配されることが分かった。

[2]入射光の光強度の 2 乗に比例して光重合速度が高まることから二光子吸収による重合が支配的に起こっていることを確認した。その上で光渦を入射させると、光重合が 3 次元的に成長し、ミリメートルスケールの螺旋ファイバーへ成長することが分かった。直線的なファイバーがまず成長し、その後、ファイバーが急速に伸び始めることから、ファイバーの光閉じ込め効果が、軌道角運動量転写に大きく寄与していることが分かった。これは 3 次元的に軌道角運動量が転写されたことを示唆する初めての実験結果である。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11 件)

- 1) "Microfabrication of Au film using optical vortex beam," S. Kawagoe, R. Nakamura, R. Tasaki, H. Oshima, M. Higashihata, D. Nakamura, T. Omatsu, Journal of Laser Micro/Nanoengineering, **14**, (1), 31-34 (2019). (査読有)
- 2) "Power-scalable and high-speed orbital angular momentum modulator," J.-F. Bisson, K. Miyamoto, T. Omatsu, Jpn. J. Appl. Phys., **58**, (3), 032009 (2019). (査読有)
- 3) "Tunable near-infrared optical vortex parametric laser with versatile orbital angular momentum states," R. Mamuti, K. Miyamoto, S. Nishida, S. Araki, T. Omatsu, Applied Optics, **57**, (36) 10004-10008 (2018). (査読有)
- 4) "Bottle beam generation from a frequency-doubled Nd:YVO<sub>4</sub> laser," J. C. Tung, Y. Y. Ma, K. Miyamoto, Y. F. Chen, T. Omatsu, Scientific Reports, **8**, 16576 (2018). (査読有)
- 5) "Photopolymerization with light fields possessing orbital angular momentum: Generation of helical

- microfibers," J. Lee, Y. Arita, S. Toyoshima, K. Miyamoto, P. Panagiotopoulos, E. Wright, K. Dholakia, T. Omatsu, *ACS Photonics*, **5** (10), 4156–4163 (2018). (査読有)
- 6) "Nanoscale chiral surface relief of azo-polymers with nearfield OAM light," K. Masuda, R. Shinozaki, Y. Kinezuka, J. Lee, S. Ohno, S. Hayashida, H. Okamoto, D. Sakai, K. Harada, K. Miyamoto, T. Omatsu, *Optics Express*, **26**, (17) 22197-22207 (2018). (査読有)
- 7) "Ultra-widely tunable mid-infrared (6–18 $\mu$ m) optical vortex source," S. Araki, K. Ando, K. Miyamoto, T. Omatsu, *Applied Optics*, **57**, (4), 620-624 (2018). (査読有)
- 8) "Ultraviolet optical vortex generation using a pair of  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystals with inverted orientations," Y. Sasaki, K. Yamaguchi, J. Shibakawa, K. Miyamoto, T. Omatsu, *Applied Optics*, **56** (29), 8075-8080 (2017). (査読有)
- 9) "Wavelength-versatile vortex lasers," T. Omatsu, K. Miyamoto, A. J. Lee, *Journal of Optics*, **19**, 123002/1-17 (2017). (査読有)
- 10) "Ultra-broadband tunable (0.67–2.57  $\mu$ m) optical vortex parametric oscillator," S. Araki, K. Suzuki, S. Nishida, R. Mamuti, K. Miyamoto, T. Omatsu, *Japanese Journal of Applied Physics*, **56**, 102701 (2017). (査読有)
- 11) "Azo-polymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam," K. Masuda, S. Nakano, D. Barada, M. Kumakura, K. Miyamoto, T. Omatsu, *Optics Express*, **25** (11), 12499-12507 (2017). (査読有)

[学会発表](計 26 件)

- 1) Takashige Omatsu, "Optical vortices create chiral nanostructures," The 6th conference on advances in optoelectronics and micro/nano optics, AOM2017, Nanjing, China, 24. April, 2017.
- 2) Takashige Omatsu, "Structured matters fabricated by optical vortex illumination," Cooperative Conference on Materials Research 2017, Jeju island, Korea, 26-30. June 2017.
- 3) Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, "Chiral surface relief fabricated by optical vortex illumination," EMN asia meeting, Metamaterials, China, 8-12. May 2017.
- 4) Takashige Omatsu, "Helical light induced chiral surface relief in azo-polymer thin film," Materials Congress 2017, Rome, Italy, 12-14. June 2017.
- 5) Takashige Omatsu, "Optical vortex induced chiral structures," Chirality 2017, Waseda University, 9-12 July, 2017.
- 6) Takashige Omatsu, "Optical Angular Momentum Establishes Structured Materials," CLEO-PR 2017, Singapore, 7.31-8.3 2017.
- 7) Takashige Omatsu, "Wavelength-versatile Optical Vortex Source Toward Materials Processing," CLEO-PR 2017, Singapore, 7.31-8.3 2017.
- 8) Takashige Omatsu, "Helical light induced chiral mass transport," International Conference on Metamaterials and Nanophotonics 2017, Vladivostok, Russia, 18-22 September 2017.
- 9) Takashige Omatsu, "Optical vortex parametric lasers," 8th International Conference and Exhibition on Lasers, Optics & Photonics 2017, Las Vegas, Nevada, USA, Nov. 15-17, 2017
- 10) Takashige Omatsu, "Chiral structures by optical vortices illumination," International Conference on Materials Engineering and Applications (ICMEA 2018), (Bali island, Indonesia) 14-16 Jan. 2018.
- 11) Takashige Omatsu, "Optical vortex materials processing enables the fabrication of chiral structures," SPIE Photonics West 2018, (San Fransisco, USA) 29 Jan.- 2 Feb. 2018.
- 12) Takashige Omatsu, "Optical vortex laser sources and their applications," Collaborative Conference on Laser Sources, (Victoria, Canada) 8-12 April 2018.
- 13) Takashige Omatsu, "Optical Vortices Create Structured Materials," 2018 Taiwan-Japan Bilateral Symposium in Optics for Intelligent Information Science & Technology: Biophotonics & Agricultural Photonics, (Tainan, Taiwan) 16-20 April 2018.
- 14) Takashige Omatsu, "Creation of Structured Materials with Optical Vortices," CLEO 2018, (San Jose, USA) 13–18 May 2018.
- 15) Takashige Omatsu, "Shrinkage of optical vortex for nano-manipulation," EXCON 2018, 8-13 July 2018 (Nara, Japan).
- 16) Takashige Omatsu, "Structured light beam –Fundamentals and Applications," The São Paulo School of Advanced Science (SPSAS) 2018, 16-27 July, (San Paulo, Brazil) (OSA Traveling Lecturer).
- 17) Takashige Omatsu, "Versatile Optical Vortex Sources," CLEO-PR 2018, W9. Tailored complex optical fields: from twisted light to structured light, 30 July 2018 (Hong Kong).
- 18) Takashige Omatsu, "Twisting light beams," Academic innovation forum for graduate students in optics and materials science for Jiangsu province, Nanjing University, 31st August 2018 (Nanjing, China). (Plenary talk).
- 19) Takashige Omatsu, "Structured light beams possessing orbital angular momentum," The 37th JSST Annual International Conference on Simulation Technology, 19 September 2018 (Muroran, Japan) (Plenary talk)
- 20) Takashige Omatsu, "Structured Materials by Ultrafast Vortex Pulses Illumination,"

International Conference on Ultrafast Optical Science UltrafastLight-2018, 1-3 October 2018 (Moscow, Russia)

21) Takashige Omatsu, “Orbital angular momentum of light pioneers chiral materials science,” Student Conference on Optics and Photonics – 2018, 4-6 October 2018 (Physical Research Laboratory, Ahmedabad, India) (Plenary talk).

22) Takashige Omatsu, “Strucutered light beams”, International OSA network of students 2018, South Africa (Johannesburg, South Africa) 8-12 October 2018. (Plenary talk).

23) Takashige Omatsu, “Can light twist matters?.” Annual Joint Symppoisa on Optics, (Tokyo, Japan) 30th October 2018. (Plenary talk)

24) Takashige Omatsu, “Versatile optical vortex sources,” Advanced Solid State Lasers, (Boston, USA) 7th November 2018.

25) Takashige Omatsu, “Optical vortex twists matters,” KAIX Thematic Fair for Advanced Optical Science, (KAIST, Korea) 13th December 2018.

26) Takashige Omatsu, “Nano/Micro Materials Processing with OAM light fields,” International Conference on Materials Engineering and Applications, ICMEA 2019, Da Namg, 17 January 2019.

〔図書〕(計 2 件)

1) “Optical Vortices Illumination Enables the Creation of Chiral Nanostructures,” Takashige Omatsu, Katsuhiko Miyamoto, Ryuji Morita, Vortex Dynamics and Optical Vortices edited by Hector Perez-de-Tejada, ISBN 978-953-51-2930-1, Print ISBN 978-953-51-2929-5, Published: March 1, 2017 under CC BY 3.0 license, DOI: 10.5772/67073, InTech

2) “Direct Generation of Vortex Laser Beams and Their Non-Linear Wavelength Conversion, Andrew James Lee and Takashige Omatsu, Vortex Dynamics and Optical Vortices edited by Hector Perez-de-Tejada, ISBN 978-953-51-2930-1, Print ISBN 978-953-51-2929-5, Published: March 1, 2017 under CC BY 3.0 license, DOI: 10.5772/66425, InTech

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 3 件)

名称：アミノ酸結晶の製造方法

発明者：千葉大学

権利者：尾松孝茂、宮本克彦

種類：特許

番号：080210

取得年：2018

国内外の別：国内

名称：キラルマイクロファイバーの製造方法及びこれにより製造されるキラルマイクロファイバー

発明者：千葉大学、セントアンドリュース大学

権利者：尾松孝茂、宮本克彦

種類：特許

番号：40101

取得年：2018

国内外の別：国内

名称：光吸収材飛翔装置及び光吸収材飛翔方法、並びに、それを用いた応用

発明者：リコー、千葉大学

権利者：鈴木一巳、吉野正樹、尾松孝茂

種類：特許

番号：502375

取得年：2017

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者 なし

(2)研究協力者 なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に

については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。