

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600105

研究課題名(和文)トポロジカル変換を用いた縮退四光波混合分光の多次元化

研究課題名(英文) Multi-dimensional degenerate four-wave-mixing spectroscopy using topological transformation

研究代表者

戸田 泰則 (TODA, YASUNORI)

北海道大学・工学(系)研究科(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) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：半導体励起子を対象とした時空間四光波混合(FWM)分光を(A)可変制御ラゲールガウス(LG)パルスと(B)高精度軌道角運動量(OAM)分解分光を用いて実現した。励起子OAMダイナミクスから(1)ほぼ完全な励起子重心運動へのOAM変換が可能、(2)OAM変換の不完全性はOAMが0の成分を含むとき顕著になること、(3)バルク試料においてOAM緩和は位相緩和の空間均一性を反映して著しく長くなることを明らかにした。さらにトポロジカルチャージ依存性からロバスト性が示唆された。トポロジカル変換の応用として、面発光レーザーの空間変調光帰還を実施し、横モードに対して高い選択性を持つOAM制御に成功した。

研究成果の概要(英文)：Spatiotemporal four-wave mixing (FWM) spectroscopy of semiconductor excitons was developed by using (A) variably controlled Laguerre-Gaussian (LG) pulses, (B) orbital angular momentum (OAM) resolved spectroscopy with high precision. The observed exciton OAM dynamics indicates that (1) near perfect OAM transfer to the exciton center-of-mass motion is achieved using the LG pulses with nonzero OAM, (2) imperfect conversion becomes significant when the excitation pulses include an OAM-free component (3) an extremely long OAM decay was observed in the bulk sample, which implies a small spatial variation of the exciton dephasing. Moreover, the topological charge dependence of the OAM dynamics suggests a robustness of the exciton OAM. For the application of the topological transformation, a novel spatially modulated optical feedback in a vertical-cavity surface-emitting laser was demonstrated for the first time, where the results show high selectivity of the OAM in the transverse mode.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 コヒーレント分光 縮退四光波混合 光渦 軌道角運動量 励起子物理

1. 研究開始当初の背景

超短パルス励起による縮退四光波混合(FWM)分光は、半導体励起子の散乱過程やクーロン相関を含む多体効果を不均一性に制限されることなく観測できる代表的分光手法であり、時間分解周波数スペクトルやスペクトル分解ダイナミクスのような2次元物性解析を可能にする。しかしながら従来の非同軸2光波励起による縮退FWM分光では、入射・検出方向が位相整合条件による制限を受けるため、空間的な分散特性を高精度に評価することは難しかった。

申請者はFWM分光を利用したワイドギャップ半導体の励起子多体効果および相関ダイナミクスの研究に長年取り組んできた[1]。特に顕微分光を組み合わせた非同軸(従来型)縮退FWM分光では、位相緩和ダイナミクスと多体共鳴の空間分解イメージングに成功し、その相関特性を明らかにした[2]。しかしながら応答変化の空間特性を直接評価するには至っていない。他方、並行して進めてきた光渦ラゲールガウス光(LG)光を用いたコヒーレント分光の研究では、トポロジカル光波の特徴を生かしたパラメトリック変換や物性解析への応用を実現してきた[3,4]。

<引用文献>

- [1] Y. Toda, S. Adachi, *et al.*, Phys. Rev. B 71, 195315 (2005).
- [2] Y. Toda, *et al.*, Phys. Stat. Sol. (c) 6 S684 (2008).
- [3] Y. Ueno, Y. Toda, S. Adachi, *et al.*, Opt. Express, 17, 20567 (2009).
- [4] Y. Toda, *et al.*, Opt. Express 18, 17796 (2010).

2. 研究の目的

上記の背景にもとづき、本研究ではLG光に代表されるトポロジカルパルス光波を用いた縮退FWM分光による時空間多次元解析の実現を目的とした。主にワイドギャップ半導体の励起子系を対象とし、トポロジカル変換にもとづく時空間ダイナミクス(軌道角運動量ダイナミクス)や多体相関観測を通して多次元物性解析の有効性を示し、新規物性開拓と応用展開を目指した。

3. 研究の方法

本研究では、半導体励起子を対象とした時空間FWM分光をトポロジカル変換にもとづく下記手法を用いて構築し、研究を実施した。

(1) 軌道角運動量分解分光の開発

時空間ダイナミクス測定は、FWM信号光の横モード分解(軌道角運動量分解)検出を用いて実現される。信号光の軌道角運動量を高精度に見積もるため、本研究では動径方向に変調されたホログラフィックグレーティングを用いて各空間モードに対して均一な変換効率を実現した。合わせて軌道角運動量スペクトルの高感度検出を実現した。

(2) 可変制御トポロジカル光波

同一励起条件で時空間特性を見積もるため、任意の軌道角運動量分布を有する複合光渦パルス(多モードLG光)を発生させ、これをFWM分光に適用した。励起LG光波の多モード化は、方位方向に制限を加えたホログラフィックグレーティングを用いた。位相整合による変換効率依存性が問題となったが、軌道角運動量の中心値の最適化を行い、励起条件の違いによる影響を低減した。

(3) 外部光帰還による軌道角運動量制御

トポロジカル変換にもとづく応用展開を図るため、本研究では半導体レーザーの横モードに対して光帰還を使った軌道角運動量制御を試みた。LG光の軸対称特性を反映させるため、GaAs系の面発光レーザーを使用し、横モード制御を行うために空間位相変調器を用いた外部光帰還光学系を構築した。

4. 研究成果

(1) 軌道角運動量分解コヒーレント分光

LG光を励起パルス光とするFWM分光を構築し、3-(1)および(2)の手法を利用して軌道角運動量分解測定にもとづく時空間解析を実施した。LG光パルスで励起されたワイドギャップ半導体GaNの励起子重心運動において、その軌道角運動量は空間的な散乱や相関の影響を受けた軌道角運動量の広がりを示す。FWM信号光を軌道角運動量分解することにより、軌道角運動量の広がり起因するモード緩和が位相緩和時間を超えるサブナノ秒のオーダーに到達することを明らかにした。

さらに3-(2)の手法を利用することによって、励起に用いるLG光の軌道角運動量に対する励起子モード緩和の差異を明らかにした。軌道角運動量は方位方向に制限が加わることにより広がりを示す。したがって励起子のモード緩和は方位方向の散乱や欠陥を反映する。合わせて緩和とは独立のモード変化が観測されたが、これは(2)で示す励起子多体相関を反映している。一方、励起子軌道角運動量の緩和時間が励起光の軌道角運動量に対して依存性を示す実験結果は、励起子重心運動が散乱や欠陥に対してロバストであることを示している。このような励起子重心運動のトポロジカルな性質はデバイス応用上きわめて有効であると考え、(3)において半導体レーザーに対して軌道角運動量制御を試みた。

(2) 励起子多体相関ダイナミクスの解明

励起子多体相関に関して、FWMダイナミクスに現れるビート信号解析と強励起条件下におけるスペクトルダイナミクスから調査を行った。前者ではスプリットオフ励起子との相互作用による特異的な振動の存在を明らかにした。また後者の研究から励起強度

に依存した特異的な共鳴を見出した。さらにトポロジカル変換にもとづく多体相関観測として軌道角運動量分解測定の利用を試みた。異種励起子の同時励起において量子ビート信号が観測されるが、通常、軌道角運動量の異なる重心運動に対して大きな変化は見られない。しかしながら LG 光による単一モード励起の場合、散乱等に起因する軌道角運動量の広がり成分に位相の異なるビート信号が検出される場合があり、これがモード変化を引き起こすことを明らかにした。軌道角運動量に広がりを与える散乱成分は空間的に局在しているため、その周囲では多体相関が顕著になる傾向が示された。すなわち空間特性を反映した多体相関の影響が、軌道角運動量に依存する量子ビートの位相シフトとして現れることを見出した。

(3) 面発光レーザーの軌道角運動量制御

励起子軌道角運動量分解測定にもとづく(2)の解析結果から、励起子重心運動のトポロジカルな性質が示唆されている。方位方向の空間的な不均一性が軌道角運動量の広がりや決定するため、モードコヒーレンスは軌道角運動量の次数増加に伴い長く保持されると推測される。実際、理論計算との比較から、実験結果は上記の依存性を良く反映していることが示された。

以上の結果にもとづき、応用上の観点から半導体レーザーの発振横モードに対して軌道角運動量制御を試みた。LG モードに対して空間位相変調器を用いた外部光帰還を施し、軌道角運動量分解測定により発振モード変化を検出・解析した。LG モードの空間制御を実現するため、共振器構造に軸対称性を有する面発光レーザーを用いる。本レーザーは GaAs/AlGaAs 量子井戸を活性相として有しており、フリーラン時の横モード解析から発振しきい値以上で軸対称なマルチモード特性を反映した複数の特異点の存在を明らかにした。方位変調を加えたホログラフィックグレーティングにより、発振モードの軌道角運動量は方位方向の位相変化にしたがってシフトすることが確認され、発振しきい値付近において光帰還による横モードの顕著な変化が観測された。その特性は利得変化と対応しており、トポロジカルチャージ 0 および ± 1 のスイッチング特性を確認することができた。

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)

Masato Suzuki, Keisaku Yamane, Kazuhiko Oka, Yasunori Toda, and Ryuji Morita, "Nonlinear coupling between axisymmetrically-polarized ultrashort

optical pulses in a uniaxial crystal", *Opt. Express* 22, 16903-16915 (2014), 査読有, DOI: 10.1364/OE.22.016903

Keisaku Yamane, Zhili Yang, Yasunori Toda, and Ryuji 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, 053020 (2014), 査読有, DOI: 10.1088/1367-2630/16/5/053020

K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, and R. Morita, "Orbital Angular Momentum Spectral Dynamics of GaN Excitons Excited by Optical Vortices", *Jpn. J. Appl. Phys.* 52, 08JL08 (2013), 査読有, DOI: 10.7567/JJAP.52.08JL08

Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, and S. Adachi, "Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN", *Jpn. J. Appl. Phys.* 52, 08JL03 (2013), 査読有, DOI: 10.7567/JJAP.52.08JL03

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

[学会発表](計8件)

重松恭平, 森本祥平, 鈴木雅人, 山根啓作, 森田隆二, 戸田泰則, "軸対称偏光パルスを用いた GaN 励起子微細構造の四光波混合分光", 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学 2015 年 3 月 21 - 24 日(2015).

Y. Toda, (Invited) "Spatiotemporal coherent spectroscopy using singular optical pulses", The 19th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, March 5-6 (2015), Hiroshima University Faculty Club (Higashihiroshima).

西坂拓馬, 重松恭平, 由利洋樹, 山根啓作, 森田隆二, 淡路祥成, 戸田泰則, "空間変調光帰還による面発光レーザーの高次横モード制御", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 北海道大学(札幌市) 9 月 17 - 20 日(2014).

由利洋樹, 重松恭平, 西坂拓馬, 山根啓作, 森田隆二, 淡路祥成, 戸田泰則, "多重横モード面発光レーザーにおける特異点ダイナミクス", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会

北海道大学(札幌市) 9月17-20日(2014).

K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, "Spatiotemporal decoherence of excitons excited by an optical vortex with multiple orbital angular momentum", Optical manipulation and its satellite topics (OMC'14), April 22 - April 25 (2014), Pacifico Yokohama (Kanagawa), Japan.

Kyohhei Shigematsu; Keisaku Yamane; Ryuji Morita; Yasunori Toda, "Spatiotemporal coherence of GaN excitons excited by an optical vortex with multiple orbital angular momentum", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2014), 6月8-13日(2014), San Jose Convention Center (USA).

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09月25-28日, 徳島大学常三島キャンパス(徳島市)

長谷川明, 戸田泰則, 足立智, 森田隆二, 中山正昭, "強励起条件下におけるワイドギャップ半導体励起子のコヒーレントダイナミクス", 日本物理学会 2013年秋季大会, 2013年09月25-28日, 徳島大学常三島キャンパス(徳島市).

〔図書〕(計2件)

光を使ったトポロジカル物理 M. ハフエジ, J. M. テイラー 戸田泰則 訳, パリジェイ 2015年3月号 pp 42-44

Y. Toda and R. Morita, "Laser Spectroscopy Using Topological Light Beams", Springer Series in Progress in Nanophotonics 3, 2014, pp 83-117, Eds. T. Yatsui and M. Ohtsu

〔その他〕

物性研究電子版(講義ノート)
光のトポロジジーを使った物性探索(第59回物性若手夏の学校)
<http://www.bussei-kenkyu.jp/archives/section/02000>

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

(2) 研究分担者

足立 智 (ADACHI SATORU)

研究者番号: 10221722

北海道大学・大学院・工学研究院・教授

(2) 連携研究者

中山 正昭 (NAKAYAMA MASAOKI)

研究者番号: 30172480

大阪市立大学・大学院・工学研究院・教授