



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	トポロジカル光波を用いたコヒーレント分光法の確立
Author(s)	重松, 恭平
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12821号
Issue Date	2017-06-30
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k12821
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/70878
Type	doctoral thesis
File Information	Kyohei_Shigematsu.pdf



学位論文

トポロジカル光波を用いたコヒーレント分光法の確立

Coherent spectroscopy using topological lightwaves

北海道大学 大学院工学院

応用物理学専攻

重松 恭平

2017年5月25日

謝辞

本研究を遂行するにあたり、多くの方にお世話になりました。この場をお借りいたしまして、心からの感謝の意を表させていただきます。

誰よりも先ず、指導教員である戸田泰則教授に感謝の意を表します。戸田教授には、研究はもちろんのこと、研究生活のあらゆる点でサポートしていただきました。指導教員が戸田教授でなければ、私が本学位論文の執筆に至ることはなかったと思います。また、幅広い研究に携わる戸田教授からご指導いただいたことで多くの経験を積むことができただけでなく、その中から将来やりたいことを自分なりに見つけることができました。後輩の指導が思うようにできず、研究室での役割を満足に果たすことが出来なかったことは非常に申し訳なく思っておりますが、今後少しでも恩を返したいと思っております。6年間、本当にお世話になりました。有難うございました。

また、森田隆二教授にも研究指導していただいた他、プレゼンテーションや論文指導、ティーチングアシスタントとしての雇用等、大変お世話になりました。特に森田教授からご指導いただいたプレゼンテーションの心得は大変参考になりました。教わったことは、今後も大切にしていきます。ありがとうございました。山根啓作准教授とは、三年間同じ部屋で研究を行い、実験の相談やデータの解析等、色々と相談させていただきました。いつもの確なアドバイスをいただけたおかげで、円滑に研究を進めることが出来ました。ありがとうございました。土屋聡助教ならびに寛間誠一助教には、進捗報告会でたくさんの質問やアドバイスをしていただきました。私の拙い発表にも熱心に質問していただけたことは、研究の励みになりました。ありがとうございました。

研究室は異なりますが、応用物理学専攻の皆様にも大変お世話になりました。足立智教授は、私を見かけるたびに気遣ってくださいました。また、足立教授からの研究に関するご質問はいつも鋭く、自分の研究を見つめ直す良い機会となりました。鈴木秀勝准教授には、今回副査を務めていただいただけでなく、授業でお世話になりました。私にとって非常に印象深く、一生懸命に取り組んだ授業でしたので、当時の私のことを覚えていると聞いたときは素直に嬉しかったです。また、西口規彦教授には就職のお世話をしていただきました。教育・研究支援室の鈴木静枝さんにも大変よくしていただきました。多少不躰だったかもしれませんが、気軽に何でも相談できる人が身近にいてくれて大変幸せでした。ありがとうございました。

また、研究室を共にした先輩、同期、後輩の皆様にも感謝いたします。個性豊かな皆様のおかげで、大変楽しい研究室生活を送ることが出来ました。

最後に、私の長きにわたる学生生活を温かく見守ってくれた母に感謝申し上げます。学生を長く続けたことで大分苦労させてしまいましたが、ようやく親孝行できる目処が立ちました。

目次

謝辞	i
第 1 章 序論	1
1.1 研究背景	1
1.1.1 様々な物理系に遍在するトポロジカル欠陥	1
1.1.2 光波におけるトポロジカル欠陥:位相特異点と偏光特異点	3
1.1.3 トポロジカル光波の諸性質と応用	5
1.1.4 トポロジカル光波を用いた物性探索および計測	6
1.2 研究目的	7
1.3 学位論文の構成	7
第 2 章 コヒーレント分光へのトポロジカル光波適用の検討	9
2.1 本章の目的	9
2.2 半導体のコヒーレント分光	9
2.2.1 半導体励起子	10
2.2.2 励起子光学遷移	11
2.2.3 超短光パルス照射時における励起子の緩和ダイナミクス	12
2.2.4 超短光パルスを用いた四光波混合分光	13
2.2.5 三次非線形分極の理論的解析	16
2.3 窒化ガリウム (GaN)	18
2.3.1 結晶およびバンド構造	19
2.3.2 励起子エネルギーの二軸歪依存性	21
2.3.3 一軸歪がもたらす励起子異方性	23
2.3.4 GaN 励起子のコヒーレントダイナミクス	25
2.4 光渦パルスを用いたコヒーレント分光	29
2.4.1 光渦と光の軌道角運動量	29
2.4.2 光渦パルス励起四光波混合分光による大域的空間コヒーレンス測定	33
2.4.3 光渦パルス生成法および軌道角運動量分解測定法の検討	35
2.5 偏光渦パルスを用いたコヒーレント分光	42

2.5.1	偏光渦とストークスパラメータ	42
2.5.2	径偏光パルス励起四光波混合分光に基づくスナップショット偏光計測 . . .	47
2.5.3	偏光渦パルスの発生法と偏光対称性の解析	49
第 3 章	光渦パルスを用いたコヒーレント分光	53
3.1	本章の目的	53
3.2	光渦パルス励起による四光波混合分光実験系	54
3.3	GaN 励起子に対するトポロジカル位相のコヒーレント変換・ダイナミクスの評価	56
3.3.1	干渉パターン測定に基づくトポロジカル位相のコヒーレント変換の評価 .	56
3.3.2	軌道角運動量分解分光に基づくトポロジカル位相のコヒーレント変換およ び大域的空間コヒーレンス評価	59
3.4	大域的空間デコヒーレンスの解析	63
3.4.1	c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における大域的空間デコヒーレンス . . .	64
3.4.2	大域的空間デコヒーレンスに関する考察	65
3.4.3	複合光渦パルス励起による大域的空間デコヒーレンスの励起 OAM 依存性	67
3.5	まとめ	74
第 4 章	偏光渦パルスを用いたコヒーレント分光	75
4.1	本章の目的	75
4.2	径偏光パルスを用いた四光波混合分光実験系	76
4.3	励起子異方性のスナップショット測定	78
4.3.1	一軸歪試料の励起子異方性測定	79
4.3.2	等方歪試料の励起子異方性測定	83
4.4	偏光特異点解析に基づく回転対称性破れの検出	86
4.4.1	偏光特異点分裂: フリースタンディング GaN の場合	86
4.4.2	偏光特異点分裂と時空間偏光ダイナミクス: 一軸歪 GaN の場合	94
4.5	まとめ	98
第 5 章	総括	100
付録 A	点光渦伝播に基づくトポロジカル光波生成の解析	102
付録 B	FWM 信号光における偏光特異点分裂モデル	107
参考文献		112

第 1 章

序論

1.1 研究背景

1.1.1 様々な物理系に遍在するトポロジカル欠陥

トポロジカル欠陥はあらゆる物理系に遍在する普遍的な構造である [1, 2]. 物性分野を例にとると, 第二種超伝導体や超流動ヘリウムにおける渦糸 [3, 4], ネマチック液晶における配向方向の特異点 [5, 6], 固体結晶における転位 [7] 等がトポロジカル欠陥の例として挙げられる. これらのトポロジカル欠陥は対称性破れを伴う相転移の必然的帰結として形成され, 対象となる系の性質やスケールに依らずあらゆる物理系に形成され得る. したがって, 例えば超巨大かつ高エネルギーの系を扱う宇宙物理学においても, 初期宇宙における高温の真空から低温の真空への相転移とそれに伴うトポロジカル欠陥の形成について議論されてきた [8].

なぜこれらは”トポロジカル”欠陥と呼ばれるのだろうか? トポロジーとは, 曲線や平面といった構造のつながりに注目する数学の概念である. 例えば, 図 1.1(a) は転位を含む二次元結晶を実空間で表した図であるが, この構造のどこにトポロジカルな要素が存在するだろうか?

これを理解するためには, 秩序変数 $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ と $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ が形成する空間 (秩序変数空間) を導入する必要がある. 二次元結晶の場合, 秩序変数 $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は転位が存在しない場合の参照原子の位置 [図 1.1(a) のグリッドの交点] からの変位ベクトルとして定義される. このとき, 秩序変数 $\mathbf{f} = (f_x, f_y)$ が形成する空間, すなわち秩序変数空間は二次元平面である. ただし, 参照原子の位置は各原子について任意に決めることができ, これは秩序変数空間に $f_{x(y)} + ma = f_{x(y)}$ (m は任意の整数, a は格子定数) の周期境界条件が課されることに対応する. このような周期境界条件のもとで, 秩序変数空間は境界の貼り合わされたトーラスと等価である.

さて, 図 1.1(a) のように, 転位を囲む閉曲線 C に沿って実空間を移動したとき, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は秩序変数空間においてどのような軌跡を辿るだろうか? 閉曲線 C の上半分 ($1 \rightarrow 2 \rightarrow 3 \rightarrow 4$) に沿って移動したとき, 秩序変数空間において f_y は 0 から負の方向に移動する. 一方, 下半分 ($5 \rightarrow 6 \rightarrow 7$) では, f_y は正の値から 0 に向かって進む. これは, トーラスで考えたとき, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ がトーラスの表面を一周してもとの場所に戻ることに対応する. つまり, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ の軌跡は秩序変数空間上で円を形成し, つながる. これがトポロジカル欠陥と呼ばれる所以である. なお, 秩序変数空間

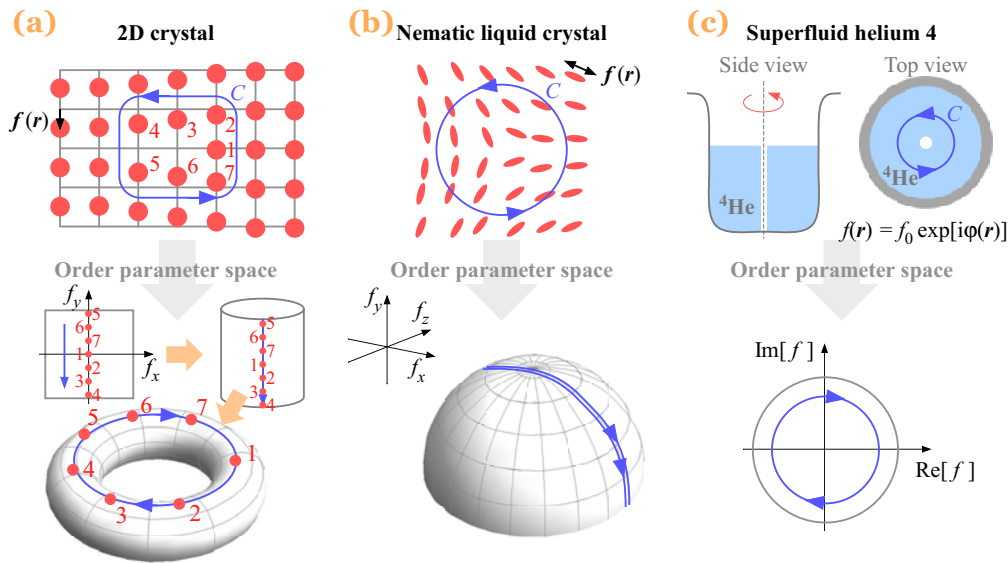


図 1.1 (a) 二次元結晶におけるトポロジカル欠陥 (転位) と対応する秩序変数空間. 原子の位置はドット (赤), 転位が存在しない場合の理想的な原子 (参照原子) の位置はグリッドの交点として示した. 青の曲線は実空間における閉曲線 C と, これに対応する秩序変数空間での軌跡を表す. (b) ネマチック液晶の配向方向特異点と対応する秩序変数空間. (c) 超流動ヘリウム (^4He) における渦糸と対応する秩序変数空間.

間を周回した回数は回転数 (Winding number) と呼ばれ, トポロジカル欠陥を特徴付ける重要なパラメータである. 秩序変数空間上のつながりを持つ構造は, つながりを持たない構造に連続変形できないという性質を持つ. すなわち, 原子を増やしたり減らしたりしない限り, トポロジカル欠陥 (転位) を除去できないことを意味している. なお, 転位が存在しない場合には, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は秩序変数空間上で円を形成しない (格子振動を無視すれば $\mathbf{f}(\mathbf{r}) = 0$ であり, したがって $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は秩序変数空間上で一点に留まる).

秩序変数 $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ および秩序変数空間は対象となる系によって変わる. 例えば, ネマチック液晶のトポロジカル欠陥を議論する際, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は液晶の配向方向として定義される. ネマチック液晶の分子は図 1.1(b) のように細長い棒状の構造を持ち, この分子の長軸の向きが配向方向に対応する. 配向方向を秩序変数 $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ と定義したとき, $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は三次元的な球の空間を形成する (大きさ $|\mathbf{f}|$ は一定とみなされる). ただし, 互いに反対向きの液晶分子同士を区別することはできない ($\mathbf{f} = -\mathbf{f}$) ことから, 実際には秩序変数空間は半球表面である. 閉曲線 C 上において $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ の軌跡が秩序変数空間上でつながる場合, その閉曲線 C 内にはトポロジカル欠陥が存在することを意味している. この場合のトポロジカル欠陥は液晶の配向方向を定義できない方向の特異点である. なお, 図 1.1(b) に示した液晶配向分布は, 秩序変数空間において 2 回同じ軌跡を辿ることに対応している. しかし, この場合の回転数 (Winding number) は, 秩序変数空間が半球であることから 1 であるとみなされる.

また, 超流動ヘリウム (^4He) の渦糸を議論する場合 [図 1.1(c)], 秩序変数 $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は巨視的波動関

数 $f_0 \exp[i\Psi(\mathbf{r})]$ として与えられる (f_0 は定数)^{*1}. 固体結晶やネマチック液晶の秩序変数がベクトルとして定義されていたことに対し, 超流動ヘリウムのようなボース凝縮相の秩序変数は, その巨視的波動関数を反映した複素スカラーで定義される. このとき $f(\mathbf{r})$ は複素平面上の円で表され, これが超流動ヘリウムを扱う場合の秩序変数空間に対応する. 閉曲線 C 上において $f(\mathbf{r})$ の軌跡が円を周回する場合, その閉曲線 C 内に巨視的波動関数の位相 Ψ を定義できない位相特異点 (トポロジカル欠陥) が存在することを意味している.

なお, 同様の位相特異点は波を扱う物理学全般においてその存在が認識されている. 最も古くから認識されている位相特異点は, 月および太陽の重力がもたらす潮流における無潮点であるとされている. 1833 年, W. Whewell は北海において等潮時線 (ある時間において高潮になっている場所を繋いだ線) を一定時間間隔で観測したとき, 等潮時線が無潮点 (潮の高さに変化しない点) の周りで約半日の周期で回転することを発見した [9, 10]. 無潮点は恒久的に潮汐が生じない位相特異点とみなすことができる. 無潮点としての位相特異点の発見の後, 量子力学の分野において, P. A. M. Dirac は 1931 年に磁気単極子の仮説の構築に際してディラックストリングと呼ばれる線状に分布する位相特異点が量子力学的波動関数に表れることを見出した [11]. 磁気単極子に端を発する位相特異点を有する量子波動関数は, 上記の超流動や第二種超伝導体で発現する渦糸を記述する多体波動関数と関連している [12].

1.1.2 光波におけるトポロジカル欠陥:位相特異点と偏光特異点

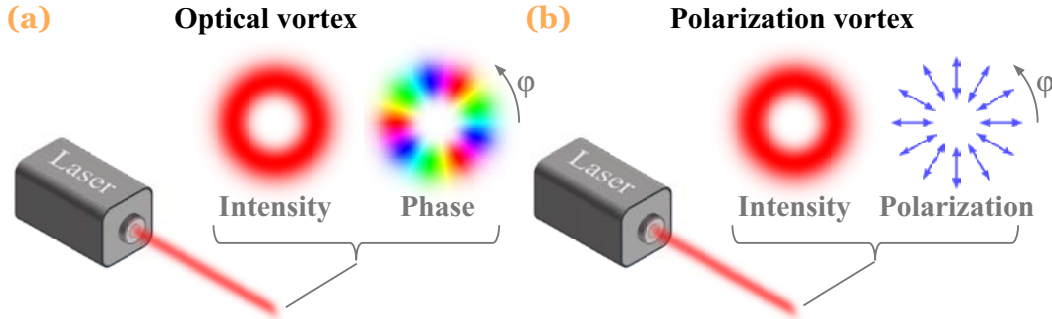


図 1.2 (a) 光渦および (b) 偏光渦の概念図. 光渦についてトポロジカルチャージ $\ell = 3$, 偏光渦についてトポロジカルチャージ $s = 1$ を描画した.

トポロジカル欠陥は光波 (レーザー光) にも存在し, トポロジカル欠陥を有する光波を総称してトポロジカル光波と呼ぶ. 光波には, 振幅, 位相および偏光の自由度があり, このうちトポロジカル欠陥を議論する際の秩序変数として取り扱われるのは位相と偏光の自由度である.

トポロジカル光波のうち, 位相についてトポロジカル欠陥を形成する光波は光渦と呼ばれる. 光渦は $\exp(i\ell\varphi)$ の位相項を持つ光波である. ここで ℓ は任意の整数であり, φ は伝播方向に垂直な平面における方位角である. したがって $\ell \neq 0$ であれば, 図 1.2(a) のように光渦断面において

^{*1} フェルミオンである ^3He には異なる秩序変数が選定され, 秩序変数空間のトポロジーも異なる [1].

φ 方向に位相勾配が形成される．このとき，光渦の光軸は位相を定義できない位相特異点（トポロジカル欠陥）である．なお，位相特異点における光強度は 0 であるため，図のように光渦はリング型の空間像を示す．光渦について秩序変数を $f = \exp(il\varphi)$ として考えたとき，超流動ヘリウム (^4He) の場合と同様に秩序変数空間は複素平面における真円で表される．光渦断面において光軸を囲むように閉曲線 C を定義したとき，秩序変数 f の軌跡は真円を ℓ 回周回する．秩序変数空間における回転数 (Winding number) に対応する ℓ は，トポロジカルチャージとも呼ばれる．

光の位相特異点の本格的な研究は 1974 年に J. F. Nye と M. V. Berry によってその一般性が論じられたことを契機として始まった [13]．彼らは南極氷床からの電波反響 [14, 15] における”異常”の解明の過程で，粗面による散乱により位相特異点が生じることを理論的に明らかにし，超音波を用いてそのデモンストレーションを行った．光の周波数領域における最初の位相特異点は，1979 年に J. M. Vaughan らが観測したクリプトンイオンレーザーの干渉パターンから初めて確認された [16]．これを皮切りに，ヘリウムネオンレーザー [17] や CO_2 レーザー [18] においても位相特異点が観測された．これらの実験的観測に追従する形で理論的解析も進み，P. Coullet らは大きなフレネル数で特徴付けられるレーザー共振器において位相特異点を有するレーザー光が発振され得ることをマクスウェル-ブロッホ方程式に基づく理論研究から明らかにした [19]．このとき，彼らはレーザー物理学に”光渦”という用語を始めて導入した．レーザー共振器から直接光渦を得る方法はその後も発展し [20, 21]，現在では高品質かつ高強度の光渦を得ることが可能となっている．

一方，偏光についてトポロジカル欠陥を形成する光波は偏光渦と呼ばれる．偏光渦は，その断面において φ に応じた異なる偏光を持つ光波である [図 1.2(b) 参照]．偏光は光電場の振動方向に対応し，この偏光方向を秩序変数 $\mathbf{f}$ とみなしたとき， $\mathbf{f}$ はネマチック液晶の場合と同様の半球の秩序変数空間を形成する．ただし，近軸近似のもとでは伝播方向の偏光成分は存在しないことから，実効的な秩序変数空間は半球から次元が 1 つ下った半円である．偏光渦断面において光軸を囲む閉曲線 C に対応する秩序変数 $\mathbf{f}$ の軌跡が半円の秩序変数空間でつながるとき，偏光を定義できない偏光特異点が閉曲線 C 内に存在することを意味している．

光の偏光特異点の歴史は古く，位相特異点の発見以前から認識されていた．19 世紀に E. L. Malus によって日光に直線偏光性が存在することが示された後，D. Brewster, J. Babinet, F. Arago らは太陽近傍に二つの偏光が定義できない点が存在することを発見した [22]^{*2}．太陽光自体は無偏光であるが，大気を構成する窒素分子や酸素分子がもたらすレイリー散乱の偏光特性を考慮すると，多重散乱を無視した場合の天球から地上の観測者に向かう散乱光の偏光方向は，太陽を中心として同心円状に分布する．このような同心円状の偏光分布は太陽がトポロジカルチャージ $s = 1$ の偏光特異点であることを意味している．（混同を避けるため，本研究では偏光特異点のトポロジカルチャージを位相特異点と区別して s と表記する．）しかし， $s = 1$ の偏光特異点は一般に不安定であり，摂動光の存在下で直ちに二つの $s = 1/2$ の偏光特異点に分裂する． $s = 1/2$ の偏光特異点とは，半円の秩序変数空間を 1 回周回する偏光特異点である．偏光特異点に関しては，この $s = 1/2$ の偏光特異点が最も基本的かつ安定な偏光特異点である．日光の場合，摂動光に対

^{*2} 観測者を挟んで太陽と反対側の空にも二つの偏光が定義できない点が存在する．

応するのは多重散乱成分であり、この摂動光によって二つに分裂した偏光特異点が観測されることが出来る [23].

レーザー共振器からの偏光渦の発振も、光渦に比べて早くに実現された。1972 年, D. Pohl はルビーレーザー共振器に複屈折性を示すカルサイト結晶を挿入することでトポロジカルチャージ 1 の偏光渦発振に成功した [24]. また、同じく 1972 年に Y. Mushiaki らは円錐形の光学素子を共振器内に挿入することで偏光渦を選択発振可能であることを示した [25]. 光渦の場合と同様に、現在では様々な利得媒質および共振器デザインによって偏光渦のレーザー発振が可能となっている [26, 27].

1.1.3 トポロジカル光波の諸性質と応用

1.1.2 節では、トポロジカル欠陥に対応する位相特異点および偏光特異点を有する光波が存在することを示し、これらのトポロジカル光波が実際にレーザー光として得られることを説明した。トポロジカル光波は現代光学の中で最も精力的に研究されている領域の一つである [28]. その理由は、従来の光波が持ち得ないトポロジカル光波の特異性や空間特性がもたらす数々の性質にあり、これらを活用した応用の範囲も非常に幅広い。

まず、トポロジカル光波の特異点自体が応用上非常に有用であると言える。トポロジカル光波の特異点を積極的に活用した代表例が STED(Stimulated Emission Depletion) 顕微鏡 [29] である。STED 顕微鏡は光渦の位相特異点 (強度暗点) が事実上の点であり、したがってその大きさが光の回折限界 (波長の半分程度) よりも小さいことを利用した超解像顕微鏡である。STED 顕微鏡は特に生物学で有用であり、大きさ 10-100 nm の細胞内微小構造のライブイメージングを可能とした [30].

また、光渦は光の軌道角運動量という従来の光波には無い物理量を持つ。光が偏光状態に依存するスピン角運動量を持つことは良く知られており [31], このスピン角運動量は複屈折性を持つ物質に回転運動を誘起することが実証されていた [32]. これに対して 1992 年, L. Allen らはラゲールガウスモード (光渦に対応するレーザーの横モード) における運動量を計算し、光渦が偏光状態とは独立かつトポロジカルチャージ ℓ に比例する角運動量を有することを示した [33]. トポロジカル位相に起因するこの角運動量は軌道角運動量に対応し、光渦を照射した微小粒子に光軸を中心とした公転運動を誘起することからその実在が証明された [34]. トポロジカル位相がもたらす新規の回転操作は、生体細胞操作を通じて生物学や生体臨床医学の発展に寄与した [35] だけでなく、マイクロマシン [36] や金属レーザー加工 [37] に代表される工業分野にも応用されている。

軌道角運動量は量子情報通信における情報キャリアとしても注目されている。2001 年に A. Mair らは、パラメトリック変換により発生する光子対が軌道角運動量に関する量子もつれ状態が形成されることを示した [38]. スピン角運動量と軌道角運動量の大きな違いは、スピン角運動量には独立な状態が二つしか存在しないことに対して、軌道角運動量の状態数に本質的な制限は存在しない (ℓ は任意の整数値) ことである。軌道角運動量がもたらす多次元もつれ状態は、特に量子暗号通信において、暗号化の自由度および通信としての安全性を著しく向上させることが期待されている [39]. また、軌道角運動量は本質的ではないものの、古典光通信においても光渦は情報

キャリアとして期待されている．光の横モードを利用した多重通信において，強度分布に回転対称性を有する光渦は各種通信用デバイスとのマッチングが良く，したがって光渦はモード分割多重通信における情報キャリアの筆頭候補である [40]．

他方，偏光渦には偏光特異点周りで全方位直線偏光が分布するという特徴がある．この性質により，例えば，ガラスや金属に偏光渦を照射することで微細かつ自在な表面パターン形成が可能である [41, 42]．また，高い開口数を持つ対物レンズによって偏光渦を集光すると，伝播軸近傍の局所的な領域に伝播方向に平行な縦電場を生じることが知られている [43]．この局所的な縦電場により，例えば，レーザー加工機に偏光渦を適用した場合に，切断効率が均一直線偏光ビームに比しておよそ2倍高くなることが期待される [44]．この他にも，偏光渦がもたらす局所的縦電場は高空間分解能イメージング [45]，ナノ粒子の光操作 [46] 等で積極的に用いられている．

1.1.4 トポロジカル光波を用いた物性探索および計測

1.1.3 節で述べたように，トポロジカル光波の特異性や空間特性が幅広い分野で応用されてきた．これに伴い，トポロジカル光波を自在かつ安定に得るためのホログラム回折格子 [47]，らせん位相板 [48] および軸対称偏光素子 [49] 等の技術が開発されてきた．現在では，X 線 [50] からテラヘルツ光 [51] まであらゆる波長帯域においてトポロジカル光波を生成・制御可能である．加えて時間領域では，モノサイクルを含む超短パルスのトポロジカル光波の発生・制御法も進展している [52]．これらの技術の発達により，多種多様な物質電子系とトポロジカル光波との相互作用の観測やトポロジカル光波を用いた物性計測の基盤が整いつつある．

光渦がもたらす新奇の相互作用として，例えば，遷移選択則における軌道角運動量の寄与が挙げられる．光と物質との相互作用は，エネルギー，運動量，および全角運動量の保存則に支配され，このうち光と物質電子系の間の全角運動量の保存則が遷移選択則に対応している．光渦が軌道角運動量を運ぶことが認識される以前は，遷移選択則は入射光のスピン状態のみに関わる法則として認識されていた．しかし，全角運動量は本来スピン角運動量と軌道角運動量の和で与えられる量であることから，選択則における光の軌道角運動量の寄与が指摘され，これまでにあらゆる物質電子系で検証されてきた [53, 54, 55]．近年の成果として，入射光電場そのものではなく入射光電場の勾配の大きさに依存する四重極子遷移について，単一冷却原子の遷移選択則に軌道角運動量が有効に働くことが実験的に明らかとなった [56]．

また，冷却原子系の巨視的波動関数にトポロジカル光波のトポロジカル位相や偏光をコヒーレントに転写（コヒーレント変換）する試みが盛んに行われており [57, 58]，”singular atom optics”として注目を集めている．この分野の特に興味深い点の一つは，原子の拡散や原子間の相互作用によって多様なトポロジカル現象の発現が期待できることである．例として，冷却原子系の波動関数に対して光渦のトポロジカル位相をコヒーレント変換することによって，トポロジカル位相構造が原子の拡散がもたらす変形に対してロバストであることが示された [59]．加えて，光の偏光（スピン）状態が2状態の重ね合わせで定義されることに対して，原子のスピン状態は多次元で定義されることから，原子系を介することで光では原理的に実現できないトポロジカル偏光（スピン）状態を形成可能である可能性も指摘されている [60, 61]．

分子系においては、光渦を用いたカイラル分子の計測が盛んに研究されてきた [62, 63]. カイラル分子とはその鏡像が元の構造と重ならない分子のことであり、鏡像異性体と呼ばれる反対のカイラリティを持つ分子同士は、それぞれ全く同じ質量、密度、生成熱や分子振動数を持つ。鏡像異性体同士は光との相互作用によってのみ区別可能であり、その構造に依存して円偏光の左回りと右回りに応じて異なる吸収率を持つ (円二色性). 近年、このカイラル分子に位相のカイラリティ (トポロジカルチャージ ℓ の符号に対応) を有する光渦を照射することによって、上記のカイラル応答が増強される可能性が示された [62]. これにより、新規の分子カイラリティ検出が実現できる可能性がある。

上記のようにトポロジカル光波を使った興味深い相互作用の観測・制御が、原子系や分子系を中心に発展しつつある。しかしながら、固体、特にデバイス応用において重要な位置を占める半導体に関しては、現在まで実験報告の数が限られており [64, 65], 未だ開拓の必要性がある。発展途上にある理由は様々であるが、多様かつ強い相互作用の介在する固体物性において、トポロジカル光波の性質を上手く利用し、その性質を反映した応答を選択的に取り出す分光手法の開発が十分確立できていないことに理由の一端があると考ええる。実際、理論的な観点から、トポロジカル光波を用いた電子励起による禁制遷移 [66, 67], 量子リングにおけるリング電流および磁化 [68], 励起子包絡関数の制御 [69] などの可能性が指摘されているが、現実的な測定手法や精度を踏まえた提案には至っていないのが現状である。

1.2 研究目的

本学位論文の目的は、トポロジカル光波の性質に立脚した新規半導体物性探索法および計測法を確立することである。なお、トポロジカル光波は位相および偏光についてトポロジカルな性質を持つため、その性質を反映可能なコヒーレント分光にトポロジカル光波を適用する。トポロジカル光波の性質の内、本研究で着目するのは、(1) 光渦の大域的 (トポロジカル) 位相、(2) 偏光渦断面の全方位直線偏光、および (3) 摂動による偏光特異点分裂である。上記の性質を着目することで、(1) 光励起電子の大域的空間コヒーレンス評価、(2) 異方的遷移確率のスナップショット計測、および (3) 光励起電子系の回転対称性破れ検出法を確立する。これらの研究結果を通し、物性探索および計測におけるトポロジカル光波の有用性を示す。

1.3 学位論文の構成

本学位論文は全 5 章から構成される。

第 2 章では、まず、本研究の基盤の一つであるコヒーレント分光法と、試料として用いた窒化ガリウム (GaN) について特に光学遷移確率の異方性やコヒーレント応答に注目して説明する。その後、光渦と偏光渦のそれぞれについてコヒーレント分光に適用することで明らかとなる物性および可能となる計測についての理論的な検討と、これに必要なトポロジカル光波の生成法および評価法について検討を行う。

第 3 章では、光渦をコヒーレント分光を適用し、半導体電子系へのトポロジカル位相のコヒーレ

ント変換を行う．このとき，光励起電子のコヒーレンスを時空間両面から解析可能な軌道角運動量分解測定を行い，大域的空間コヒーレンスの時間発展について明らかにする．

第 4 章では，偏光渦をコヒーレント分光を適用することで，異方的遷移確率のスナップショット計測を行う．また，得られた結果から測定の確度や精度について検証する．加えて第 4 章では，コヒーレント応答における偏光特異点分裂に注目し，その検出法を確立するとともに，偏光特異点分裂の起源について明らかにする．

第 5 章では総括と今後の展望について述べる．

第2章

コヒーレント分光へのトポロジカル光波適用の検討

2.1 本章の目的

本章の目的は、トポロジカル光波の適用により可能となるコヒーレント分光の新たな機能について考究し、これを実現するために必要なトポロジカル光波の生成および評価法の検討を行うことである。

まず2.2節ではコヒーレント分光法、2.3節では本研究で試料として用いる窒化ガリウム (GaN) について基本事項を説明する。その後、2.4節では、トポロジカル光波の一種である光渦を用いたコヒーレント分光によって、光励起電子の大域的空間コヒーレンス測定が可能となることを説明する。また、大域的空間コヒーレンス測定に際して必要となる励起光渦パルス生成法およびコヒーレント応答におけるトポロジカル位相測定法についても検討する。2.5節では、偏光渦を用いたコヒーレント分光に基づくスナップショット偏光計測によって、試料の異方性および光励起電子の多体相互作用の高確度測定が実現できることを説明する。また、これに必要な偏光渦パルス生成法および偏光解析法について検討する。

2.2 半導体のコヒーレント分光

本節では、半導体コヒーレント分光について基本事項に絞って説明する。まず2.2.1節では、半導体のコヒーレント応答を支配する励起子を導入する。続いて2.2.2節では、励起子光学遷移について定量的に解析する。本研究では、半導体励起子に対するコヒーレント分光法として、超短光パルスを用いた四光波混合分光を採用する。2.2.3節において超短光パルス照射時の励起子の緩和ダイナミクスについて説明した後、2.2.4節において四光波混合分光の概要を述べる。最後に、2.2.5節では四光波混合分光において観測される信号光の起源となる励起子非線形分極の理論的解析を行う。

2.2.1 半導体励起子

半導体を構成する原子の配列がもたらす周期ポテンシャルは、電子エネルギーの波数ベクトル依存性 (バンド構造) を決定する。このバンド構造は、半導体物性を支配する重要な概念である。

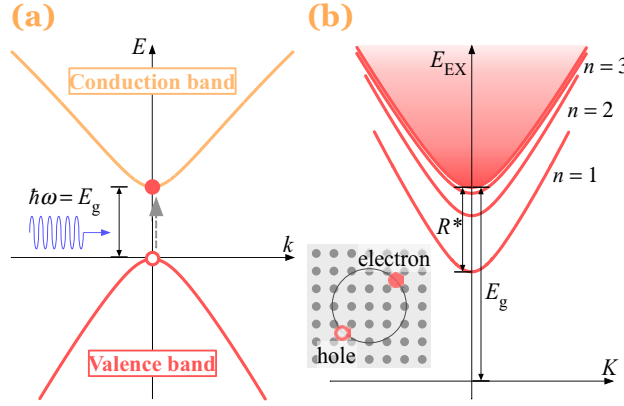


図 2.1 (a) 直接遷移型半導体におけるバンド構造および光励起. (b) 励起子の分散関係. 内挿図は実空間におけるワニエ型励起子の概念図を示している.

半導体におけるバンド構造の模式図を図 2.1(a) に示す。なお、簡単のために本節では 2 バンドモデルを用いる。エネルギーが低いバンドは価電子帯、高いバンドは伝導帯と呼ばれる。平衡状態において、価電子帯は電子によって充填されており、反対に伝導帯は空である。なお、図のように伝導帯下端と価電子帯上端が共に Γ 点 ($\mathbf{k} = 0$) に存在する半導体を直接遷移型半導体と呼ぶ。この直接遷移型半導体のバンドギャップ E_g に相当するエネルギーを持つ光 (エネルギー: $\hbar\omega$, 角周波数: ω) を入射すると、価電子帯の電子は伝導帯へと遷移する。また、この電子遷移に伴って、価電子帯には電子の”空席”ができる。この”空席”は正孔と呼ばれ、電子とは逆の正の電荷をもつ粒子として振る舞う。なお、波数ベクトルの保存則の観点から、波数ベクトル $\mathbf{k}_v$ を持つ価電子帯の電子が波数ベクトル $\mathbf{k}_p$ を吸収して波数ベクトル $\mathbf{k}_c$ の伝導帯に遷移するとき $\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v + \mathbf{k}_p$ が成り立つが、一般に光の波数ベクトルは結晶の波数ベクトルに比べて十分に小さいため、近似的に $\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v$ とみなすことができる。 $\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v$ の関係式は、図 2.1(a) に示したように光学遷移は波数空間において垂直に生じることを意味している。

伝導帯の電子と価電子帯の正孔は互いに符号の異なる電荷をもつため、両者の間にはクーロン相互作用が生じる。このクーロン相互作用によって束縛された電子と正孔を準粒子としてみなすとき、この準粒子を励起子と呼ぶ。励起子は比較的大きな遷移確率 (振動子強度) を持ち、反射、吸収、発光スペクトル等における E_g 近傍の応答に顕著な影響を及ぼす。

励起子は電子と陽子で構成される水素原子と同様の構造を有しており、したがって励起子のエネルギーは水素原子とのアナロジーで考えることができる。水素原子とのアナロジーから、励起子の (束縛) エネルギー R^* は量子数 n_B で特徴付けられる不連続なエネルギーを持ち、次のよう

に与えられる.

$$R^* = \frac{\hbar^2}{2a_B^2} \frac{m_e m_h}{m_e + m_h} \frac{1}{n_B^2}. \quad (2.1)$$

ここで, m_e および m_h はそれぞれ電子と正孔の有効質量を表す. また, a_B は励起子有効ボーア半径と呼ばれ, 励起子の空間的な大きさを表す. a_B は次のように与えられる.

$$a_B = 4\pi\epsilon_0\epsilon \frac{\hbar^2}{e^2} \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}. \quad (2.2)$$

ここで, ϵ_0 および ϵ は真空の誘電率および比誘電率であり, e は電気素量である. 励起子全体としてのエネルギー E_{EX} は, 式 (2.1) にバンドギャップエネルギー E_g と運動エネルギーを加算して次のように与えられる.

$$E^{\text{EX}}(\mathbf{K}) = E_g - R^* + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M}. \quad (2.3)$$

ここで, $\mathbf{K} = \mathbf{k}_c + \mathbf{k}_v$ は励起子重心の波数ベクトルである.

式 (2.3) に基づいて計算した励起子エネルギーの $\mathbf{K}$ 依存性 (分散関係) を図 2.1(b) に示す. 図から明らかなように, 励起子はバンドギャップエネルギー E_g よりも励起子束縛エネルギー R^* だけ低いエネルギー状態である. また, $n_B = \infty$ の連続状態は電子・正孔の非束縛状態 (自由キャリア状態) に対応し, その下端エネルギーが E_g である.

半導体の比誘電率 ϵ は一般に大きく, 半導体電子および正孔の有効質量 (m_e, m_h) は自由電子の質量 (m_0) よりも小さいことから, 励起子における束縛エネルギー R^* は水素原子よりも小さく, ボーア半径 a_B は水素原子よりも大きいことが知られている. 化合物半導体の一種である窒化ガリウム (GaN) を例にとると, $\epsilon = 9.5$ [70] および $m_e = m_h = 0.2m_0$ [71] であることから, $R^* \sim 20$ meV および $a_B \sim 50$ Å が得られる. $R^* \sim 20$ meV は水素原子におけるリュードベリエネルギー 13.6 eV に比べて三桁小さい. また $a_B \sim 50$ Å は水素原子のボーア半径 0.529 Å に比べて非常に大きく, GaN の格子定数 ~ 3.2 Å に比べても一桁大きい. ボーア半径が格子定数に比べて大きいことは, 励起子を構成する電子と正孔が複数の単位格子を隔てて存在することを意味しており [図 2.1(b) 内挿図], このような励起子はワニエ型励起子に分類される.

2.2.2 励起子光学遷移

本節では 2.2.1 節で説明した励起子光学遷移について定量的に解析する. 励起子が存在しない真空状態を $|0\rangle$, 励起子状態を $|\text{EX}\rangle$ と表記すると, $|0\rangle$ から $|\text{EX}\rangle$ への遷移における光学遷移確率 W_{EX} は次のように与えられる.

$$W_{\text{EX}} = \sum_{\mathbf{K}} \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \text{EX} | H_{\text{eR}} | 0 \rangle|^2 \delta(E^{\text{EX}}(\mathbf{K}) - \hbar\omega). \quad (2.4)$$

ここで, $\delta(E^{\text{EX}}(\mathbf{K}) - \hbar\omega)$ はデルタ関数であり, 入射光のエネルギー $\hbar\omega$ が励起子エネルギー $E_{\text{EX}}(\mathbf{K})$ に一致するとき 1 である. H_{eR} は光と電子系の相互作用を記述するハミルトニアンであり, これについては後で定義する. 式 (2.4) で定義した W_{EX} は, Γ 点 ($\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v = 0$) における伝

導帯電子のブロッホ関数 $|u_0^c\rangle(\mathbf{r})$ および価電子正孔のブロッホ関数 $|u_0^v\rangle(\mathbf{r})$ を用いることで、次式で与えられる [72].

$$W^{\text{EX}} \propto \frac{1}{n_B^3} |\langle u_0^c | H^{\text{eR}} | u_0^v \rangle|^2. \quad (2.5)$$

式 (2.5) は W^{EX} が $(n_B)^{-3}$ に比例することを意味しており、したがって $n_B = 1$ の励起子の光学遷移確率が最も大きいことが分かる。以降では、 $n_B = 1$ の励起子状態のみ考慮する。

式 (2.5) における $|\langle u_0^c | H^{\text{eR}} | u_0^v \rangle|^2$ は、光との相互作用 H^{eR} によって状態が $|u_0^v\rangle$ から $|u_0^c\rangle$ に変化する確率 (バンド間光学遷移確率) に対応している。 H^{eR} は一般に、

$$H^{\text{eR}} = -\frac{e}{m_0} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}, \quad (2.6)$$

で与えられる [73]。ここで、 $\mathbf{p}$ は運動量演算子であり、 $\mathbf{A}$ は入射光のベクトルポテンシャルである。入射光として平面波を仮定すると $\mathbf{A}$ は次のように与えられる。

$$\mathbf{A} = \frac{\mathbf{A}_0}{2} \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_p t)] + c.c. = \frac{1}{2} \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_p t)], \begin{pmatrix} A_{0x} \\ A_{0y} \\ A_{0z} \end{pmatrix} + c.c. \quad (2.7)$$

ここで、 $\mathbf{k}$ は光の波数ベクトルであり、ベクトル $\mathbf{A}_0$ は入射光の偏光状態を記述する。 H^{eR} を式 (2.6) で定義したとき、

$$|\langle u_0^c | H^{\text{eR}} | u_0^v \rangle|^2 = |\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{A}_0|^2, \quad \boldsymbol{\mu}_{\text{cv}} = -\frac{e}{2m_0} \langle u_0^c | \mathbf{p} | u_0^v \rangle. \quad (2.8)$$

が得られる^{*1}。ここで、 $\boldsymbol{\mu}_{\text{cv}}$ は遷移行列要素と呼ばれる。式 (2.8) から明らかなように、光学遷移確率 $W_{\text{EX}} \propto |\langle u^c | H^{\text{eR}} | u^v \rangle|^2$ は入射光の偏光状態 $\mathbf{A}_0$ に依存し、この W_{EX} の偏光依存性から光学遷移選択則が導かれる。

2.2.3 超短光パルス照射時における励起子の緩和ダイナミクス

2.2.2 節で定義したベクトルポテンシャル [式 (2.7)] は、入射光として連続光を仮定することに対応する。これに対して、近年では超短パルス光源が普及し、パルス幅 (半値全幅) が 10^{-12} s 以下の光パルスが比較的容易に得られるようになった。励起子寿命 (典型的に 10^{-9} s) よりもパルス幅が十分に短い超短光パルスによる励起について考えたとき、光パルスによる瞬時的な励起がもたらす非平衡状態は種々の緩和過程を経て光パルス到達以前の平衡状態へと緩和する。半導体において緩和過程は、コヒーレント領域、非熱的領域、ホットキャリア領域、および等温領域の4つの時間領域に分類され、それぞれの時間領域において励起子は特徴的なダイナミクスを示す [74]。本論文で注目するコヒーレント分光は、コヒーレント領域における励起子ダイナミクスを明らかにする手法である。

超短光パルスによる励起子励起は試料中に分極 $\mathcal{P}_0$ (真空状態 $|0\rangle$ と励起子状態 $|\text{EX}\rangle$ の重ね合わせ状態) を形成する。分極形成時点において分極の位相は入射光パルスの位相と一致しており、

^{*1} ただし、式 2.7 の第二項は考慮しない。第二項に対する同様の計算は誘導放出に対応する。

分極と入射光パルスの位相には相関関係が存在する (コヒーレントである)。この分極のコヒーレンスは励起子の散乱により時々刻々と失われていく。分極のコヒーレンスは、典型的に光パルスによる励起直後から 10^{-12} s 程度まで保持される。この時間領域をコヒーレント領域と呼ぶ。分極のコヒーレンスを保っている成分 $\mathcal{P}$ が $\mathcal{P}_0$ の e^{-1} に減衰するまでに掛かる時間は位相緩和 (デコヒーレンス) 時間 T_2 と呼ばれ、 $\mathcal{P}$ の時間発展は、

$$\mathcal{P} = \mathcal{P}_0 \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right), \quad (2.9)$$

に従って減衰する。なお、簡単のために、式 (2.9) では $\mathcal{P}$ が光パルス照射 ($t = 0$) 直後から指数関数に減衰することを仮定している (マルコフ近似)。

デコヒーレンスの要因には、フォノンによる散乱、励起子-励起子および励起子-電子散乱、不純物および格子欠陥による散乱などが挙げられる。フォノンによる散乱の効果は試料温度の上昇に伴って大きくなり、したがって T_2 は一般に温度の上昇に伴って小さくなる。また、励起子-励起子および励起子-電子散乱の効果は励起密度およびドーピングの増加によって著しくなる。不純物および格子欠陥による散乱効果については試料の品質に依存し、量子井戸における井戸幅の揺らぎ等も含まれる。なお、式 (2.9) の T_2 には励起子再結合の効果も含み、上記散乱の効果が 0 の極限においても $\mathcal{P}$ は $\exp(-t/2T_1)$ に従って減衰する (T_1 は励起子寿命であり、 T_1 は励起子の数密度 $|\mathcal{P}|^2$ に対する減衰時間として定義されることから因子 2 を含む)。ただし一般に半導体において散乱の効果は大きく、 T_2 から励起子再結合の効果を除いた T_2^* と T_1 について $T_1 \gg T_2^*$ とみなすことができる。

なお、式 (2.9) のように分極の減衰が散乱や再結合の効果を表す T_2 で記述できるのは系が均一広がりとならせる場合であることに注意が必要である。均一広がり系では、光パルスによって励起されるすべての振動子 (励起子) が同じエネルギー $\hbar\omega_{\text{EX}}$ (ω_{EX} : 角周波数) を有する。一方、不均一広がり系は個々の振動子の角周波数が ω_{EX} 近傍で分布する系を指す。不均一広がり系において、角周波数が異なる振動子が形成するマクロな分極の減衰 (自由分極減衰) は個々の振動子の減衰よりも著しく速くなる。自由分極減衰時間 T_{FP} は角周波数の分布関数に依存するものの、近似的に角周波数の広がり $\Delta\omega_{\text{EX}}$ との間に、

$$T_{\text{FP}} \cdot \Delta\omega_{\text{EX}} \sim 1, \quad (2.10)$$

の関係があり、したがって $\Delta\omega_{\text{EX}}$ の増加に伴って T_{FP} は減少する。

次節では半導体における励起子コヒーレンスの観測手法として、四光波混合分光法について説明する。

2.2.4 超短光パルスを用いた四光波混合分光

四光波混合 (Four-wave mixing, FWM) 分光は、非線形分光法に分類される分光手法の一種である。FWM 分光には、励起に用いる光パルスの試料到達時間を掃引しながら光学応答 (FWM 信号光) を観測する方法と、連続光の励起光を用いてその周波数を掃引しながら FWM 信号光を観測する手法が存在するが、超高速の励起子のコヒーレントダイナミクスを感度良く観測する際に

は光パルス励起による FWM 分光が用いられる [75]. なお, FWM 分光に比べてやや単純な線形 (吸収および反射率) 分光でもコヒーレント応答を観測できるものの, 不均一広がり系ではコヒーレンスはパルス幅以内で緩和するため, 線形分光によってコヒーレント応答を観測することは一般に非常に困難である. これに対して, FWM 分光では不均一広がり系においても個々の振動子のコヒーレンスを反映した FWM 信号光を得ることが可能である. 半導体試料に対する FWM 分光は超短パルス光源の普及を契機としてデコヒーレンス時間 T_2 の測定を目指して始まったが, FWM 分光の有用性は T_2 の同定だけに留まらず, FWM 分光は励起子多体効果の解明 [76] やコヒーレント制御 [77] など, 基礎・応用の両方に対して重要な役割を果たしてきた.

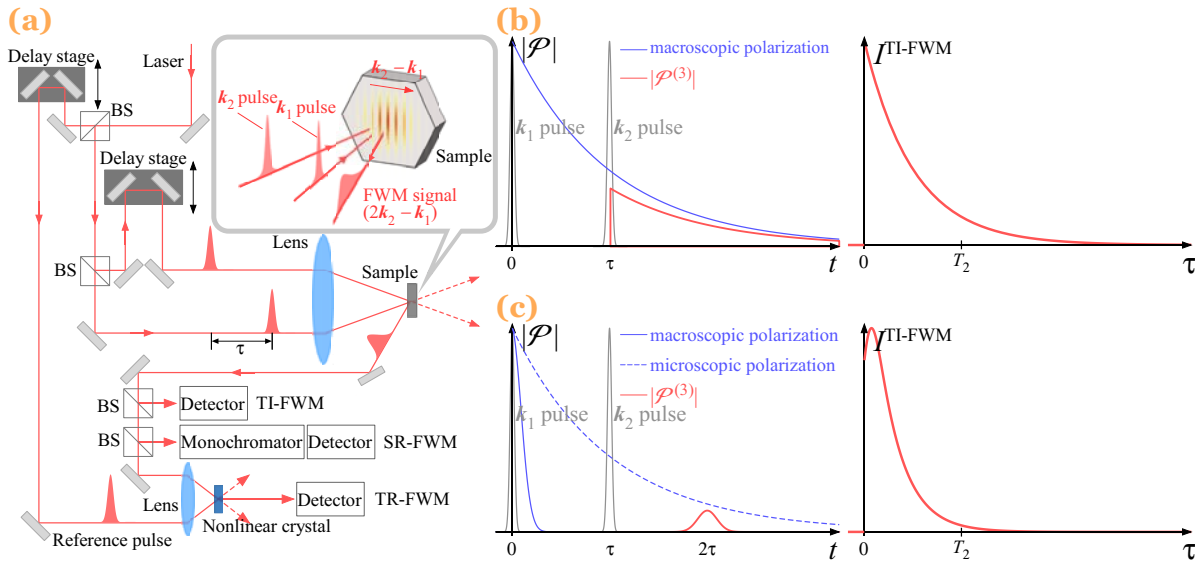


図 2.2 (a) 典型的な FWM 分光実験系. BS: beam splitter, CCD: charge-coupled device. (b) 均一広がり系および (c) 不均一広がり系における励起子分極 $|\mathcal{P}|$ の時間発展および時間積分 FWM(TI-FWM) 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性の模式図. 参考のため, $|\mathcal{P}|$ の時間発展には $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスの包絡線を加えており, $\mathbf{k}_1$ パルスは $t = 0$, $\mathbf{k}_2$ パルスは $t = \tau$ で試料に到達すると仮定した.

図 2.2(a) に典型的な FWM 分光の実験系を示す. 超短パルス光源から得られる光パルスはビームスプリッタ等によって 2 つの同一中心エネルギーを有する光パルスに分離され, その結果生じる光パルス対はレンズによって非同軸に試料に入射される. このとき, パルス間時間差 (遅延時間: τ) は光学ステージ等によって制御される. τ については, 2 つの光パルスをレンズ通過後の波数ベクトル $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ によって区別したとき, $\mathbf{k}_1$ パルスが先に試料に入射する場合を $\tau > 0$ と定義する. このように定義したとき, $\tau > 0$ の場合には $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に高強度の FWM 信号光が観測される. 反対に $\tau < 0$ の場合には, 高強度の FWM 信号光が $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ 方向に観測される. FWM 分光は信号光の観測法によって時間積分 FWM(Time-integrated FWM, TI-FWM), 時間分解 FWM(Time-resolved FWM, TR-FWM), スペクトル分解 FWM(Spectrally-resolved FWM, SR-FWM) に分類される. TI-FWM はパルス的な波形を有する FWM 信号光を直接光検出器によって観測する方法であり, このとき時間積分された信号光強度が測定される. 一方

TR-FWM では、信号光に比べて短いパルス幅を有し、タイミングを制御した参照光パルスと非線形結晶を用いて信号光強度の時間分解測定が行われる。SR-FWM については、分光器を用いて信号光がスペクトル分解される。

FWM 信号光の発生過程については物理的に次のように理解される。なお、簡単のため均一広がり系を仮定する。 $\tau > 0$ のとき、先に試料に入射する $\mathbf{k}_1$ パルスは試料に励起子分極を形成する。時間 τ だけ経過した後 $\mathbf{k}_2$ パルスが試料に入射すると、 $\mathbf{k}_1$ パルスにより形成された分極のコヒーレントな成分と $\mathbf{k}_2$ パルスによって形成される分極とが干渉する。この干渉において、分極間の位相関係が同位相の場合には励起子状態 $|\text{EX}\rangle$ 、逆位相の場合には真空状態 $|0\rangle$ に状態が定まる。FWM 分光における非同軸な $\mathbf{k}_1$ と $\mathbf{k}_2$ パルスの干渉は、試料に励起子状態 $|\text{EX}\rangle$ と真空状態 $|0\rangle$ の周期的な分布を形成する。これは実空間において実効的な回折格子（励起子密度回折格子）が形成されることに対応する [図 2.2(a) 参照]。この密度回折格子による $\mathbf{k}_2$ パルスの自己回折光として、 $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に FWM 信号光が観測される。なお、 $\mathbf{k}_1$ パルスにより形成された励起子分極は散乱によって時々刻々とコヒーレンスを失っていくため、 τ の増大とともに密度回折格子のビジビリティ（コントラスト）が低下する。これにより、FWM 信号光強度は τ の増大に伴って減少する。均一広がり系の場合、 $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向で観測される TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ は次式で与えられるように遅延時間 τ に対して指数関数的に減衰する。

$$I^{\text{TI-FWM}} \propto \Theta(\tau) \exp\left(-\frac{2\tau}{T_2}\right). \quad (2.11)$$

ここで、 Θ はヘヴィサイドのステップ関数である。なお、式 (2.11) における因数 2 は $I^{\text{TI-FWM}}$ が図 2.2(b) に示した三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ の絶対値二乗（の時間積分）に比例するために付与される因子である。一方、不均一広がり系における TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ は次式で与えられる。

$$I^{\text{TI-FWM}} \propto \Theta(\tau) \exp\left(-\frac{4\tau}{T_2}\right). \quad (2.12)$$

式 (2.12) から、不均一広がり系の場合には因数 4 が付与され、 $I^{\text{TI-FWM}}$ が均一広がり系の 2 倍の速度で減衰することが分かる。

$I^{\text{TI-FWM}}$ が二倍の速度で減衰することは、不均一広がり系の場合には FWM 信号光はフォトンエコーとして発生することに起因している。不均一広がり系では $\mathbf{k}_1$ パルスによって励起される個々の振動子のエネルギー $\hbar\omega_{\text{EX}}$ が異なり、したがって個々の振動子はそれぞれ異なる位相の時間発展を示す。このとき、 $\mathbf{k}_1$ パルスによって励起される個々の振動子がコヒーレンスを保持していても、分極全体（マクロな分極）としてのコヒーレンスは急速に失われる [図 2.2(c) 参照]。しかし個々の振動子のデコヒーレンス時間 T_2 以内に $\mathbf{k}_2$ パルスが入射すると、 $\mathbf{k}_2$ パルスは異なる周波数を持つ振動子の位相の発展を時間反転する [73]。 $\mathbf{k}_2$ パルスが実時間 $t = \tau$ で試料に到達するとすると、 $t = 2\tau$ でマクロな分極を構成する個々の振動子の位相が再び揃う。このように位相が揃ったとき、図 2.2(c) のように FWM 信号光がフォトンエコーとして放出される。ただし、 $\mathbf{k}_2$ パルスは散乱によるデコヒーレンスの効果は反転しない。したがって、フォトンエコーの放出までに個々の振動子は均一広がり系の倍の時間 (2τ) 散乱の影響に晒される。その結果、均一広がり系に比して二倍の速さで $I^{\text{TI-FWM}}$ が減衰する。このように信号光強度の減衰は速くなるものの、

FWM 信号光は不均一広がり系においても励起子本来のコヒーレントダイナミクス (デコヒーレンス時間 T_2) を反映する. したがって, FWM 分光によって不均一広がり試料においても励起子のコヒーレントダイナミクスに関して本質的な議論が可能である.

2.2.5 三次非線形分極の理論的解析

高強度の光パルスが試料に入射するとき, 試料に誘起される分極 $\mathcal{P}$ として入射電場の大きさに対して線形な線形分極だけではなく, 入射電場のべき乗に比例する非線形分極が考慮する必要がある. 非線形感受率 χ^n (n は整数) を用いると, $\mathcal{P}$ は

$$\mathcal{P} = \chi^{(1)}\mathcal{E} + \chi^{(2)}\mathcal{E}^2 + \chi^{(3)}\mathcal{E}^3 \dots = \mathcal{P}^{(1)} + \mathcal{P}^{(2)} + \mathcal{P}^{(3)} \dots, \quad (2.13)$$

で与えられる. ここで $\mathcal{E}$ は入射光電場であり, $\mathcal{P}^{(n)}$ は n 次非線形分極である. $\mathcal{P}^{(1)}$ が線形分極に対応しており, 吸収および反射率分光では $\mathcal{P}^{(1)}$ を反映した応答が観測される. また, n が偶数の場合, χ^n は反転対称性を欠く試料においてのみ非零であり, したがって対称性の高い試料において偶数次の非線形応答は観測されない. したがって, $\mathcal{P}^{(3)}$ が一般の試料において観測される最も基本的な非線形分極であり, FWM 分光において観測されるのも $\mathcal{P}^{(3)}$ を反映した信号光である.

本節では三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ の理論的取り扱いについて述べる. 半導体励起子系を独立な (相互作用しない) 二準位系の集合とみなす最も簡単な近似において, $\mathcal{P}^{(3)}$ は光学ブロッホ方程式の枠組みによって計算することができる. 二準位系は $\hbar\omega_{\text{EX}}$ のエネルギーを持つ励起子状態 $|\text{EX}\rangle$ と零エネルギーの真空状態 $|0\rangle$ で構成され, 表記を簡単にするためにそれぞれ $|b\rangle, |a\rangle$ と表す. このとき個々の二準位系の量子状態は複素振幅 C_b, C_a を用いて $|\Psi\rangle = C_{b,j}|b\rangle + C_{a,j}|a\rangle$ で表される. ここで, 個々の二準位系が形成する分極ではなく, 我々が観測可能な二準位系の集合としてのマクロな分極に興味がある場合, 次式で定義される密度演算子 ρ による解析が用いられる.

$$\rho = \sum_j P_j |\Psi_j\rangle \langle \Psi_j| = \sum_j P_j \begin{pmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ba} \\ \rho_{ab} & \rho_{aa} \end{pmatrix} = \sum_j P_j \begin{pmatrix} |C_{b,j}|^2 & C_{b,j}C_{a,j}^* \\ C_{a,j}C_{b,j}^* & |C_{a,j}|^2 \end{pmatrix}. \quad (2.14)$$

ここで, P_j は二準位系の集合のうち $|\Psi_j\rangle$ の状態を持つ二準位系の割合を表す. また, ρ の行列要素に関して $\rho_{aa} = 1 - \rho_{bb}$, $\rho_{ab} = \rho_{ba}^*$ の関係がある. 密度行列 ρ のそれぞれの行列要素の時間発展は, 次の微分方程式で与えられる [74]*2.

$$\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} - \frac{i}{\hbar} (\mu \mathcal{E} \rho_{ba}^* - \mu^* \mathcal{E}^* \rho_{ba}) = 0, \quad \frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t} + (i\omega_{\text{EX}} + \Gamma) - \frac{i}{\hbar} \mu \mathcal{E} (1 - 2\rho_{bb}) = 0. \quad (2.15)$$

ここで μ は遷移行列要素を表し, 最も簡単な近似では定数として取り扱われる. また, $\Gamma = 1/T_2$ は位相緩和レートである. $\mathcal{E}$ は二準位系に入射する光電場であり,

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_{\mathbf{k}}(t) \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\text{p}} t)], \quad (2.16)$$

*2 励起子再結合時間 T_1 について, $T_1 \gg T_2$ を仮定した. また, μ の計算に際して $\exp[i(\omega + \omega_{\text{EX}})t]$ の項を無視した (回転場近似).

で定義する. 独立な二準位系の集合に対して導かれる式 (2.15) は光学ブロッホ方程式と呼ばれ, 励起子分極 $\mathcal{P}$ は二準位系の数密度 N を用いて,

$$\mathcal{P} = N \text{Tr} \{ \mu \rho \}, \quad (2.17)$$

によって計算することができる.

式 (2.15) を解析的に解くことは一般に困難であるため, ρ を入射電場振幅によって次式のようにテイラー展開し, それぞれの項について解を得る方法が良く用いられる.

$$\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \rho^{(3)} + \dots \quad (2.18)$$

ρ を式 (2.18) のように展開したとき, 三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ は入射電場の三乗に比例する $\rho^{(3)}$ を用いて $\mathcal{P}^{(3)} = N \text{Tr} \{ \mu \rho^{(3)} \}$ によって計算できる.

FWM 分光では T_2 に比べて十分にパルス幅が小さい $\mathbf{k}_1$ パルスと $\mathbf{k}_2$ パルスによって $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ の波数ベクトルを持つ三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ を誘起する. また, $\mathbf{k}_2$ パルスは $\mathbf{k}_1$ パルスに対して遅延時間 τ だけ遅れて試料に到達する. このような場合, 式 (2.16) で定義した入射光電場 $\mathcal{E}$ は,

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1} \delta(t) \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_p t)] + \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \delta(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_p t)], \quad (2.19)$$

であることに対応する. ここで $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}$, $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}$ は $\mathbf{k}_1$ パルスおよび $\mathbf{k}_2$ パルスの電場の大きさを表し, 簡単のためそれぞれデルタ関数 $[\delta(t)]$ の包絡関数を持つ光パルスとした. 式 (2.19) で与えられる入射光パルスによって誘起される $\mathcal{P}^{(3)}$ は光学ブロッホ方程式から次のように与えられる [78].

$$\mathcal{P}^{(3)}(t, \tau) \propto \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) |\mu|^4 \exp[i(2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} - i(\omega_{\text{EX}} - \omega_p)(t - 2\tau) - \Gamma t] \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^*. \quad (2.20)$$

このとき, TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{P}^{(3)}(t, \tau)|^2 dt$ は式 (2.11) に帰着する. なお, 不均一広がり系の場合は P_j として $\Delta\omega_{\text{ex}}$ の広がりを持つガウス分布を仮定することによって,

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(3)}(t, \tau) &\propto \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) |\mu|^4 \exp[i(2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} - i(\omega_{\text{EX}} - \omega_p)(t - 2\tau) - \Gamma t] \\ &\times \exp\left[-\frac{1}{4}(t - 2\tau)^2 \Delta\omega_{\text{ex}}^2\right] \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^*, \end{aligned} \quad (2.21)$$

が導かれ, TI-FWM 強度の τ 依存性は式 (2.12) に帰着する.

ここまで, 遷移行列要素 μ を適当な定数として取り扱ってきた. これに対して, μ を式 (2.7) に従って伝導帯および価電子帯のブロッホ関数 $|u_0^c\rangle$, $|u_0^v\rangle$ を用いて定義することで, より現実的な三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ の解析が可能である. 加えて, 式 (2.7) に従って遷移行列要素をベクトルとして取り扱うことによって, $\mathcal{P}^{(3)}$ の偏光依存性の解析も可能である. 式 (2.19) で導入した入射光電場を $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}} \rightarrow \mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}$ のようにベクトルに拡張することで偏光情報を与えたとき, 同じくベクトルに拡張した $\mathcal{P}^{(3)}$ は光学ブロッホ方程式から次のように計算できる [79]*³.

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(3)}(t, \tau) &\propto \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) \exp[i(2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}] \sum_{n, m, n', m'} \mu_{nm}^* (\boldsymbol{\mu}_{nm'} \cdot \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}) (\boldsymbol{\mu}_{n'm'} \cdot \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}) (\boldsymbol{\mu}_{n'm'} \cdot \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1})^* \\ &\times \exp[-i(\omega_{nm} - i\Gamma)(t - \tau)] \exp[i(\omega_{n'm'} + i\Gamma)\tau]. \end{aligned} \quad (2.22)$$

*³ [79] の $t, \tau, \gamma_{n(n')m(m')}$ について, $t \rightarrow t - \tau, \tau \rightarrow -\tau, \gamma_{n(n')m(m')} \rightarrow \Gamma$ とした.

ここで, $\mu_{nm} \propto \langle u_0^{cn} | \mathbf{p} | u_0^{vm} \rangle$ であり, n および m は価電子帯および伝導帯の磁気量子数に対応する. 半導体バンドにおける磁気量子数は, GaN を例にとって 2.3.1 節で説明する. また, $\hbar\omega_{nm}$ は伝導帯 $|u_0^{cn}\rangle$ と価電子帯 $|u_0^{vm}\rangle$ のエネルギー差である.

式 (2.20-2.22) は単純なモデルから導かれた表式であるものの, 平行直線偏光励起および $\tau > 0$ の条件における FWM 信号光をよく再現することが知られており [80], 励起子のコヒーレント応答を解析する上での重要な礎となってきた. 本論文でも式 (2.20-2.22) を用いて FWM 信号光の解析を行う. ただし, 式 (2.20-2.22) で仮定した二準位 (多準位系) は励起子間のクーロン相互作用 (多体相互作用) を含んでおらず, 他の条件で得られる実験結果は式 (2.20-2.22) からの逸脱を示す. 多体相互作用を考慮した理論的枠組みが整備されており, このとき得られる方程式は光学ブロッホ方程式と差別化して半導体ブロッホ方程式と呼ばれる [74]. 多体相互作用の解明は FWM 分光における重要なテーマであるが, 本論文では多体相互作用について簡単に言及したうえで参考文献を挙げるに留める.

多体相互作用がコヒーレント応答に最も顕著に表れている例の一つが負の遅延時間 τ で観測される非零の FWM 信号光である. 式 (2.20-2.22) のステップ関数 $\Theta(\tau)$ から明らかなように, 相互作用しない二準位系 (多準位系) において $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向で観測される TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ は $\tau < 0$ において 0 である. $\tau < 0$ において観測される信号光は励起による緩和 (Excitation induced dephasing, EID) [81, 82] および局所場効果 (Local field effect, LFE) [83, 84] を考慮することによって理解される. EID は励起される励起子の密度の増大に伴ってデコヒーレンス時間 T_2 が減少する効果であり, EID による密度回折格子の変調によって理想的な回折格子として働かなくなるため, 本来 $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ 方向にのみ FWM 信号光が発生する $\tau < 0$ においても $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に信号光が検出される [75]. LFE については, 励起子が感じる電場が入射光電場 $\mathcal{E}$ と他の励起子が形成する分極 $\mathcal{P}$ の和であることを考慮した効果であり, EID とはプロセスが異なるものの $\tau < 0$ における $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向の信号光の起源となる. また, 半導体ブロッホ方程式では考慮されていないものの, 励起子分子も多体相互作用の一つに数えられる. 励起子分子とは励起子間の引力相互作用により二つの励起子が束縛状態を形成する状態を指す. 励起子分子は, 励起子分子を構成する個々の励起子よりも励起子束縛エネルギー分だけ低いエネルギー状態を持ち, したがって SR-FWM において独立なエネルギー成分として検出される [85, 86]. この他にもスピン依存の励起子間相互作用が存在し, 例えば円偏光の入射光によって励起子のスピン状態を制限したとき, 2.3.4 節で説明する量子ビートに位相シフトを生じることが知られている [87, 88].

2.3 窒化ガリウム (GaN)

本節では, 本研究で試料として用いる窒化ガリウム (GaN) について, 特にコヒーレント応答に注目して説明する. まず 2.3.1 節では, GaN の結晶およびバンド構造について簡単に説明する. GaN は異種基板上へのヘテロエピタキシーにより製膜されることが多く, このとき基板との格子不整合および熱膨張率の差異により歪が印加される. 2.3.2 および 2.3.3 節では, 歪が励起子エネルギーや励起子光学遷移における偏光異方性に及ぼす影響について検討しておく. 最後に, 2.3.4 節において, GaN 励起子のコヒーレントダイナミクスについて, 実験結果に基づいて説明する.

2.3.1 結晶およびバンド構造

GaN は周期表の第二周期元素である N を含む半導体であり, 第四周期元素の As を含む GaAs に比べて小さい格子定数を持つ. この小さい格子定数に起因して室温における GaN のバンドギャップ (E_g) は ~ 3.4 eV に達し, この値は代表的な半導体である Si のバンドギャップ ~ 1.1 eV に比べて数倍大きい. この大きな E_g により, GaN は青色 LED[89, 90] や緑・青色 LD[91, 92] の中心材料として注目されてきた. また学術的観点, 特に FWM 分光の観点からは, GaN の弱いスピン軌道相互作用や強い交換相互作用が励起子コヒーレンスに与える影響に注目して研究されてきた [93, 94].

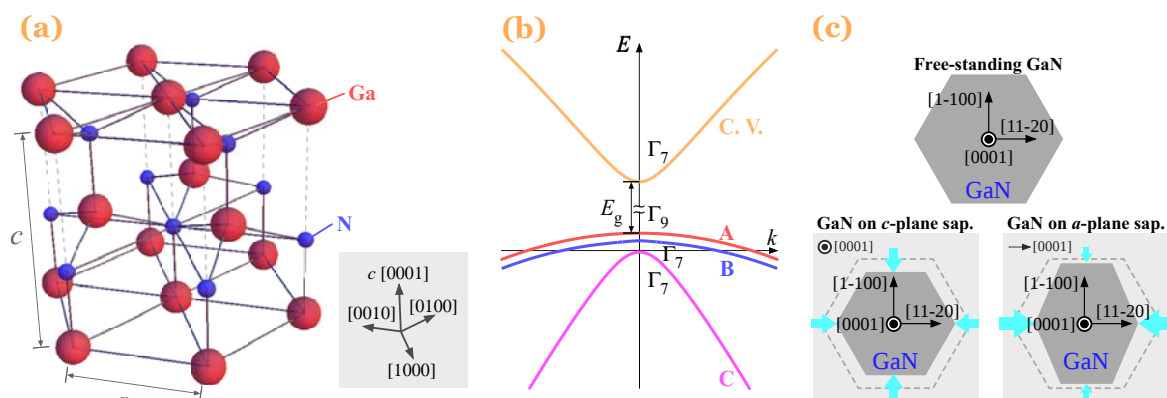


図 2.3 (a) GaN の基本結晶格子の模式図. (b) GaN のバンド構造の模式図. (c) フリースタANDING GaN, c 面サファイア基板上 GaN 薄膜, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜の c 面の模式図. ブロック矢印は GaN に印加されている歪を表す. 背景 (灰色) は基板を表し, 矢印は基板の c 軸方向を示す.

GaN の結晶構造を図 2.3(a) に示す. GaN は III-V 族半導体の一種であり, 同じく III-V 族半導体の AlN や InN, II-VI 族半導体の ZnO, CdS と同様に六方晶系のウルツ鉱型構造に属する結晶構造を持つ. ウルツ鉱結晶構造は異なる 2 つの格子定数 a, c によって基本結晶格子が定義され, GaN の場合 $a = 3.190$ Å, $c = 5.189$ Å である [95]. 基本単位格子における 6 回回転対称軸を c 軸 $[0001]$ と呼び, GaN のウルツ鉱構造は Ga 原子によって構成される六方最密格子と c 軸方向に $5c/8$ だけ平行移動した N 原子によって構成される六方最密格子によって構成される. なお, ウルツ鉱型構造を群論で表記すると点群 C_{6v} で与えられる. ここで, C_6 については前述の通り 6 回回転対称軸が存在することを意味し, 付加記号 v は c 軸を含む垂直面に鏡映面が存在することを示している.

GaN の Γ 点 ($\mathbf{k} = 0$) 近傍のバンド構造の模式図を図 2.3(b) に示す. Γ 点における伝導帯電子は Ga^{+3} の s 型波動関数の特性を持ち, 価電子帯正孔は N^{-3} の p 型波動関数の特性を持つ. したがって, スピン縮退を無視したとき, 電子に関しては自由度 1, 正孔に関しては p_x, p_y, p_z の自由度 3 で特徴付けられる. この自由度を反映して, 図のように伝導帯として 1 つのバンド, 価電子帯として 3 つのバンドが形成される. なお, 慣例に従いこれらの価電子帯を Γ 点でのエネルギー

が高い方からそれぞれ A, B, C バンドと呼ぶ. また, A, B または C バンド正孔と伝導帯電子から構成される励起子をそれぞれ A, B および C 励起子と呼び, X_A, X_B, X_C と表記する. 群論に基づく Γ 点における伝導帯電子の既約表現は Γ_7 , A バンド正孔は Γ_9 , B および C バンド正孔は Γ_7 である. これらの既約表現は, 価電子帯および A, B, C バンドの量子状態が全角運動量子数 J および全角運動量磁気量子数 m_j を用いて, それぞれ $|J, m_j\rangle = |1/2, \pm 1/2\rangle, |3/2, \pm 3/2\rangle, |1/2, \pm 1/2\rangle, |1/2, \pm 1/2\rangle$ で記述されることを意味している [73]. なお, 図から明らかなように, Γ 点において 3 つの価電子帯のエネルギーが異なる. このようにバンドが分裂する要因の 1 つは p 型波動関数を持つ正孔が軌道角運動量を持つことによるスピン軌道相互作用であり, スピン軌道相互作用によるエネルギー分裂幅はスピン軌道相互作用エネルギー Δ_{so} によって特徴付けられる. ただし, エネルギーが高い 2 つのバンドが Γ 点において縮退している閃亜鉛構造の半導体 [71] とは異なり, ウルツ鉱構造の GaN では 3 つのバンド全てのエネルギーが異なる. このようなバンド構造の違いは, ウルツ鉱構造が閃亜鉛構造に比べて対称性が低いために生じる結晶場に起因しており, その効果は結晶分裂エネルギー Δ_{cr} によって特徴付けられる. GaN における結晶分裂エネルギー Δ_{cr} およびスピン軌道相互作用エネルギー Δ_{so} はそれぞれ 10 meV, 18 meV であることが報告されており [96], これらの値から近似的に Γ 点における A バンドと B バンドのエネルギー差として $[\Delta_{cr} + 9\Delta_{so} - \sqrt{(\Delta_{cr} - 3\Delta_{so})^2 + 72\Delta_{so}^2}]/2 \sim 5.1$ meV, B バンドと C バンドのエネルギー差として $\sqrt{(\Delta_{cr} - 3\Delta_{so})^2 + 72\Delta_{so}^2} \sim 17.2$ meV が得られる [97].

前述のようにバンド間エネルギー差が Δ_{so} および Δ_{cr} によってのみ決定されるのは, 結晶に歪が存在しないフリースタンディング GaN の場合に限定される. GaN は異種基板上へのヘテロエピタキシーにより製膜されることが多く, このとき, 基板との格子不整合および熱膨張率の差異により歪が印加される. 歪の影響が無視できない場合, バンド間エネルギー差は Δ_{so}, Δ_{cr} に加えて GaN に印加された歪と変形ポテンシャルによって決定される. GaN のエピタキシャル成長に際して一般的に最もよく用いられる基板は c 面サファイア [98] であり, このときの格子不整合は 13.6% に達する. さらに熱膨張率は GaN よりも基板の c 面サファイアの方が大きいため, 温度低下に伴って GaN のエピタキシャル薄膜の c 面に対して圧縮歪が印加される [図 2.3(b) 参照]. なお, c 面サファイアの熱膨張率は等方的であるため, 圧縮歪が印加されたエピタキシャル薄膜においても GaN のウルツ鉱構造は保持される. このようにウルツ鉱構造を保持する歪は二軸歪と呼ばれる. また格子不整合が大きい c 面サファイア上に成長した GaN 薄膜は非常に多くの欠陥を含むことから, 不整合が比較的小さいサファイアの a 面 (11-20) に GaN をエピタキシャル成長させる試みも行われてきた (格子不整合: サファイアの [0001] 軸に関して 1.6 %, [1-100] 軸に関して 0.6 %)[99]. ただし, a 面サファイアに GaN をエピタキシャル成長させる場合, 熱膨張率が方向によって異なるため, エピタキシャル薄膜に印加される圧縮歪に異方性が生じる. その結果, GaN 薄膜の対称性は 6 重回転対称 C_{6v} から 2 重回転対称 C_{2v} へと低下する [図 2.3(b) 参照]. このような対称性低下を伴う異方的な歪は一軸歪と呼ばれる. 低温での測定が不可欠となるコヒーレント分光において, 歪の影響は励起子のコヒーレント応答に顕著に表れる.

2.3.2 励起子エネルギーの二軸歪依存性

本節では二軸歪の存在下での励起子のハミルトニアンを定式化し、励起子エネルギーを算出する。励起子のハミルトニアン H は、価電子帯のハミルトニアン H_v 、伝導帯のハミルトニアン H_c および電子・正孔間の相互作用によるハミルトニアン H_{exc} を用いて次のように記述できる [100, 101].

$$H = H_c - H_v + H_{\text{exc}}. \quad (2.23)$$

無歪の場合、 H_v は次のように与えられる。

$$H_v = H_{\text{cr}} + H_{\text{so}}. \quad (2.24)$$

H_{cr} は試料の結晶場がもたらすハミルトニアンであり、結晶場分裂エネルギー $\Delta_{\text{cr}} = \Delta_1$ および角運動量演算子 $J_i (i = x, y, z)$ を用いて $H_{\text{cr}} = \Delta_1 J_z$ で記述できる。また、 H_{so} はスピン軌道相互作用がもたらすハミルトニアンであり、スピン軌道相互作用エネルギー $\Delta_{\text{so}} = 3\Delta_2 = 3\Delta_3$ [102] を用いて、 $H_{\text{so}} = \Delta_2 J_z \sigma_z + \Delta_3 (J_x \sigma_x + J_y \sigma_y)$ と記述できる。ここで、 $\sigma_i (i = x, y, z)$ はパウリのスピン演算子である。試料に二軸歪が印加されている場合、 H_v には次のような摂動項が加わる。

$$H_v = H_{\text{cr}} + H_{\text{so}} + (D_1 + D_3 J_z^2) \varepsilon_{zz} + (D_2 + D_4 J_z^2) (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}). \quad (2.25)$$

ここで、 ε は歪テンソルであり、等方的な二軸歪が印加されている試料を仮定し、歪テンソル ε は対角化されているとした。すなわち、

$$\varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zx} = \varepsilon_{xy} = 0, \quad \varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}, \quad \varepsilon_{zz} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}} \varepsilon_{xx}, \quad (2.26)$$

である [98]。 C_{13}, C_{33} はスティフネス係数である。六方晶における応力・歪対応については参考文献 [103] を参照されたい。また、 $D_i (i = 1, 2, 3, 4)$ は変形ポテンシャルであり、電子-格子相互作用によるバンド構造の変化の大きさを与える。 D_1, D_2 については静水圧変形ポテンシャル、 D_3, D_4 については剪断変形ポテンシャルとみなすことができる。 H_{exc} については

$$H_{\text{exc}} = -R^* + \frac{1}{2} \gamma \sigma_h \sigma_e, \quad (2.27)$$

で与えられる。 R^* は励起子束縛エネルギーである。第2項はスピン交換相互作用に対応しており、 γ は交換相互作用定数、 σ_h, σ_e はそれぞれ価電子帯の正孔および伝導帯の電子のスピンに対して作用する演算子である。なお、簡単のために、本論文では R^* および γ を歪に依存しない定数として扱う。 H_c については、

$$H_c = E_{c0} + d_1 \varepsilon_{zz} + d_2 (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}), \quad (2.28)$$

で与えられる。ここで E_{c0} は歪が存在しない場合の伝導帯のエネルギーである。また、 d_1, d_2 は伝導帯に関する変形ポテンシャルである。

ハミルトニアン H を行列として取り扱うとき、励起子エネルギーは H の固有値として得られる。なお、簡単のために、 c 面に平行な偏光によって励起子遷移可能な励起子状態のみを考慮し、基底関数 ($|u_1\rangle, |u_2\rangle, |u_3\rangle, |u_4\rangle, |u_5\rangle, |u_6\rangle$) を、

$$\begin{aligned} |u_1\rangle &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(|X \uparrow\uparrow\rangle + |iY \uparrow\uparrow\rangle), |u_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X \uparrow\uparrow\rangle - |iY \uparrow\uparrow\rangle), |u_3\rangle = |Z \downarrow\uparrow\rangle, \\ |u_4\rangle &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(|X \downarrow\downarrow\rangle + |iY \downarrow\downarrow\rangle), |u_5\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X \downarrow\downarrow\rangle - |iY \downarrow\downarrow\rangle), |u_6\rangle = |Z \uparrow\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (2.29)$$

とする。ここで、 X, Y, Z はそれぞれ価電子帯における p_X, p_Y, p_Z 型波動関数に対応している。また、 $\uparrow, \downarrow$ はスピン状態を表しており、左が価電子帯電子のスピン状態^{*4}、右が伝導帯の電子のスピン状態である。式 (2.29) で定義した基底に対するハミルトニアン H の行列表示は次のように与えられる [104]。

$$\begin{aligned} H &= [E_c - R^*] I_6 - \begin{bmatrix} \Lambda_1 & 0 & 0 & -\gamma & 0 & 0 \\ 0 & \Lambda_2 & \sqrt{2}\Delta_3 & 0 & -\gamma & 0 \\ 0 & \sqrt{2}\Delta_3 & \Lambda_3 & 0 & 0 & 0 \\ -\gamma & 0 & 0 & \Lambda_2 & 0 & \sqrt{2}\Delta_3 \\ 0 & -\gamma & 0 & 0 & \Lambda_1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta_3 & 0 & \Lambda_3 \end{bmatrix}, \\ E_c &= E_{c0} + d_1 \varepsilon_{zz} + d_2 (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}), \\ \Lambda_1 &= \Delta'_1 + \Delta_2 - \frac{\gamma}{2}, \Lambda_2 = \Delta'_1 - \Delta_2 - \frac{\gamma}{2}, \Lambda_3 = D_1 \varepsilon_{zz} + D_2 (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) + \frac{\gamma}{2}, \\ \Delta'_1 &= \Delta_1 + (D_1 + D_3) \varepsilon_{zz} + (D_2 + D_4) (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}). \end{aligned} \quad (2.30)$$

ここで、 I_6 は 6×6 行列の単位元である。また、励起子状態は式 (2.30) のハミルトニアンに対する 6 つの固有ベクトルとして得られる。なお、これらの固有ベクトルに対応する固有値は 3 つの 2 重解として得られ、したがって独立な固有値は 3 つである。これら 3 つの固有値は X_A, X_B, X_C のエネルギー (E_A, E_B, E_C) に対応しており、これらが重解であることは励起子状態が縮退していることを反映している。

計算によって得られた励起子エネルギーの二軸歪依存性を示す。計算に用いたパラメータは表 2.1 にまとめた。図の横軸は面内の歪 $\varepsilon_{xx}, \varepsilon_{yy}$ ではなく、式 (2.26) の関係によって得られる ε_{zz} である。このとき、 $\varepsilon_{zz} > 0$ の場合が圧縮歪、 $\varepsilon_{zz} < 0$ の場合が引っ張り歪に対応している。図 2.4 から、二軸歪の増加に伴って E_A, E_B, E_C が増加していることが分かる。このエネルギーの増加の様子は励起子の種類に依存し、 E_A は ε_{zz} に対して線形に増加するものの、 E_B, E_C は非線形なエネルギー増加を示すことが分かる。このような変化の様子の違いにより、励起子間のエネルギー差は歪に応じて変化する。 c 面サファイア基板上に結晶成長した試料における典型的な ε_{zz} の値は $+0.001$ (圧縮歪)[98] であり、したがって c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における励起子エネルギーおよび異種励起子間のエネルギー差は無歪のフリースタンディングの GaN よりも大きいことが示唆される。なお、表 2.1 のパラメータを用いると、無歪 ($\varepsilon_{zz} = 0$) の場合の励起子エネルギーは $E_A = 3.474$, $E_B = 3.479$, $E_C = 3.497$ eV である。また、図から $\varepsilon_{zz} < 0$ において E_A と

^{*4} すなわち、正孔と反対のスピン状態。

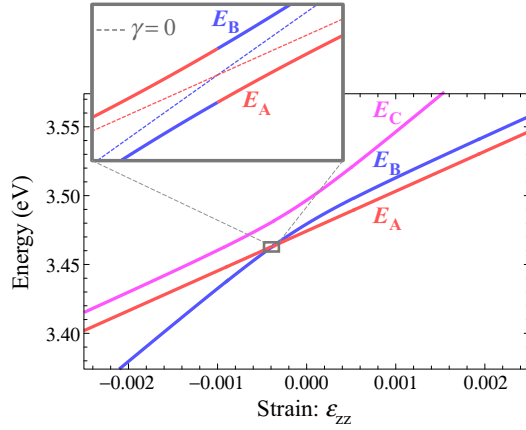


図 2.4 励起子エネルギー E_A , E_B , E_C の二軸歪依存性. 横軸は ϵ_{zz} に設定した. なお, E_A , E_B が交差する点の近傍の拡大図を合わせて示した. 拡大図における点線は $\gamma = 0$ の条件によって得られた E_A , E_B を示している.

表 2.1 GaN の物性パラメータ

parameter	
E_{c0}	3.500 eV
R^*	26 meV [98]
γ	0.6 meV [100]
Δ_{cr}	10 meV[96]
Δ_{so}	18 meV[96]
D_1	-3.0 eV[71]
D_2	3.6 eV[71]
D_3	8.82 eV[71]
D_4	-4.41 eV[71]
C_{13}	106 GPa [71]
C_{33}	398 GPa [71]
d_1	-6.5 eV [71]
d_2	-11.8 eV [71]

E_B のエネルギーが交差することが分かる. 有限のスピン交換相互作用 ($\gamma \neq 0$) が存在下において, このエネルギー交差は反交差であることが知られている [100].

2.3.3 一軸歪がもたらす励起子異方性

a 面サファイア基板上 GaN 薄膜には, 基板の熱膨張率の異方性に起因して異方的な二軸歪 (一軸歪) が印加される. 一軸歪が存在する場合, 励起子のスピン交換相互作用は励起子遷移に光学異方性を生じる. M. Juilier らの解析 [100] に従い, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜における励起子のハミルトニアン $H^{a\text{-plane}}$ を, 式 (2.30) のハミルトニアン H に一軸歪がもたらすハミルトニアンを加えることで次式のように定式化する.

$$H^{a\text{-plane}} = H + \delta_3 \{ |X \uparrow \uparrow\rangle \langle X \uparrow \uparrow| + |X \downarrow \downarrow\rangle \langle X \downarrow \downarrow| - |Y \uparrow \uparrow\rangle \langle Y \uparrow \uparrow| - |Y \downarrow \downarrow\rangle \langle Y \downarrow \downarrow| \}. \quad (2.31)$$

第 2 項が二軸歪の異方成分 (一軸歪) がもたらすハミルトニアンであり, δ_3 は一軸歪エネルギーに対応する. 今回は, 基底 ($|u'_1\rangle, |u'_2\rangle, |u'_3\rangle, |u'_4\rangle, |u'_5\rangle, |u'_6\rangle$) を

$$\begin{aligned} |u'_1\rangle &= |X \uparrow \uparrow\rangle, & |u'_2\rangle &= |iY \uparrow \uparrow\rangle, & |u'_3\rangle &= |Z \downarrow \uparrow\rangle, \\ |u'_4\rangle &= |X \downarrow \downarrow\rangle, & |u'_5\rangle &= |-iY \downarrow \downarrow\rangle, & |u'_6\rangle &= |-Z \uparrow \downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (2.32)$$

と定義する. 式 (2.32) の基底に対応する $H^a\text{-plane}$ の行列表示は次式で与えられる.

$$H^a\text{-plane} = [E_c - R^*] I_6$$

$$= \begin{bmatrix} \Delta'_1 - \frac{\gamma}{2} - \delta_3 & \Delta_2 & \Delta_3 & \gamma & 0 & 0 \\ \Delta_2 & \Delta'_1 - \frac{\gamma}{2} + \delta_3 & -\Delta_3 & 0 & -\gamma & 0 \\ \Delta_3 & -\Delta_3 & \frac{\gamma}{2} & 0 & 0 & 0 \\ \gamma & 0 & 0 & \Delta'_1 - \frac{\gamma}{2} - \delta_3 & \Delta_2 & \Delta_3 \\ 0 & -\gamma & 0 & \Delta_2 & \Delta'_1 - \frac{\gamma}{2} + \delta_3 & -\Delta_3 \\ 0 & 0 & 0 & \Delta_3 & -\Delta_3 & \frac{\gamma}{2} \end{bmatrix}. \quad (2.33)$$

なお, 固有ベクトルを $|u\rangle$ とすると, 試料の c 面に平行な x, y 偏光に対する振動子強度 $|\mu_x|^2$, $|\mu_y|^2$, $|\mu_z|^2$ はそれぞれ $|\langle X \uparrow \uparrow | u \rangle + \langle X \downarrow \downarrow | u \rangle|^2$, $|\langle iY \uparrow \uparrow | u \rangle - \langle -iY \downarrow \downarrow | u \rangle|^2$ に比例する.

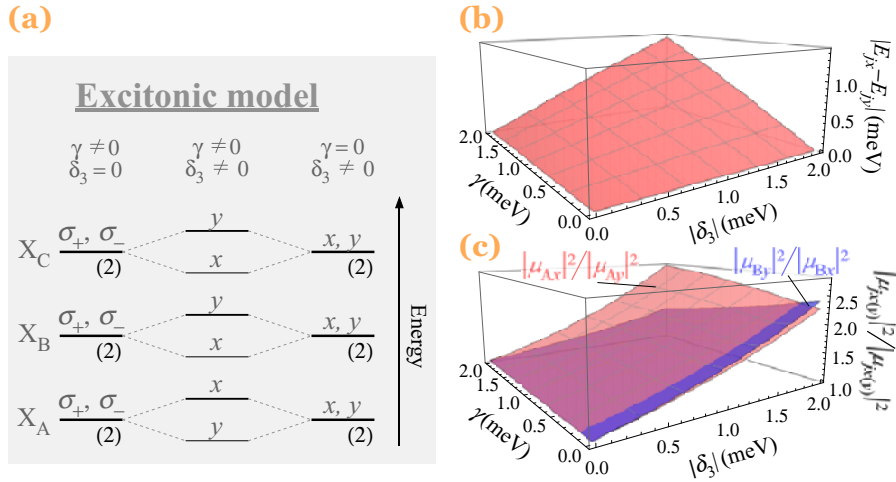


図 2.5 (a) $\gamma \neq 0$ かつ $\delta_3 = 0$, $\gamma \neq 0$ かつ $\delta_3 \neq 0$, $\gamma = 0$ かつ $\delta_3 \neq 0$ のそれぞれの場合の励起子エネルギー. $\sigma_{\pm}, x, y$ は偏光状態を示唆している. (b) 微細構造分裂幅の γ, δ_3 依存性. (c) 振動子強度比の γ, δ_3 依存性.

一軸歪 δ_3 および交換相互作用定数 γ が励起子エネルギーおよび振動子強度の偏光異方性に与える影響を図 2.5(a) によって説明する. $\delta_3 = 0$, すなわち, 試料の二軸歪に異方性が存在しない場合, X_A, X_B, X_C は円偏光 $\sigma_{\pm}$ によって生成され, このとき円偏光の右回り・左回りに関わらず励起子のエネルギーは同じである (縮退している). 一方, $\delta_3 \neq 0$, つまり一軸歪が存在する場合, この縮退が解け, エネルギーが異なる二つの励起子状態が生じる (微細構造分裂). このとき, 歪の異方性を反映して, それぞれの励起子状態に関する振動子強度に異方性が生じ, その結果 x 偏光および y 偏光に対する励起子振動子強度 $|\mu_x|^2$, $|\mu_y|^2$ のどちらか一方が完全に 0 になる. 本論文では, x 偏光に対して非零の振動子強度を持つ励起子状態を X_{jx} と表記し, y 偏光に対して非零の振動子強度を持つ励起子状態を X_{jy} と表記する ($j = A, B, C$). 加えて, これらの励起子のエネルギーを E_{jx}, E_{jy} , 振動子強度を $|\mu_{jx}|^2, |\mu_{jy}|^2$ と表記する. なお, 振動子強度の偏光異方性はスピン交換相互作用が存在しない場合 ($\gamma \rightarrow 0$) にも生じるが, このとき微細構造分裂幅 ($E_{jx} - E_{jy}$) は 0 になる.

式 (2.33) から計算される微細構造分裂幅 $|E_{jx} - E_{jy}|$ の δ_3 , γ 依存性を図 2.5(b) に示す. なお, a 面サファイア基板上 GaN における δ_3 は負の値を持ち, プロット範囲は a 面サファイア基板上 GaN における典型的な値である $1 \leq |\delta_3| \leq 2$ meV の範囲でプロットした. γ に関しては, GaN における典型的な値である $\gamma = 0.6$ meV 近傍においてプロットした. また, 今回は X_A および X_B についてのみ計算を行った (つまり $j = A$ or B). X_A および X_B についての微細構造分裂幅 $|E_{jx} - E_{jy}|$ の δ_3 および γ 依存性は完全に一致しており, 共に δ_3 および γ の増加に伴って大きくなる. ただし, X_A については $E_{Ax} > E_{Ay}$ であるのに対し, $E_{Bx} < E_{By}$ であることに注意が必要である. 図 2.5(c) は振動子強度比 $|\mu_{Ax}|^2 / |\mu_{Ay}|^2$, $|\mu_{By}|^2 / |\mu_{Bx}|^2$ の δ_3 および γ 依存性である. 振動子強度 $|\mu_{Ax}|^2$ と $|\mu_{Ay}|^2$ の間には, $\delta_3 < 0$ において, $|\mu_{Ax}|^2 \geq |\mu_{Ay}|^2$ の関係が成り立ち, その比は $|\delta_3|$ および γ の増大に伴って大きくなるのが分かる. 一方, 振動子強度 $|\mu_{Bx}|^2$ と $|\mu_{By}|^2$ に関しては, $\delta_3 < 0$ において, $|\mu_{Bx}|^2 \leq |\mu_{By}|^2$ の関係が成り立ち, その比は $|\delta_3|$ の増大に伴って大きくなるものの, γ が増大すると減少する. このように, 振動子強度比については δ_3 および γ 依存性が X_A と X_B で異なる.

2.3.4 GaN 励起子のコヒーレントダイナミクス

本節では, GaN 試料に対する FWM 分光の結果を示し, GaN 励起子の基本的なコヒーレントダイナミクスについて確認する.

今回我々が用いた実験系は図 2.2(a) と同等である. 光源はモード同期チタンサファイアレーザの第二高調波であり, この光源から中心エネルギー ~ 3.5 eV, パルス幅 190 fs, 繰り返し周波数 76 MHz のパルス列が得られる. この光パルス列をビームスプリッターによって 2 つに分離した後, 片方の光路に挿入した光学ステージによって遅延時間 τ を制御した. この光パルス対は焦点距離 200 mm のレンズによって液体ヘリウムクライオスタット中で温度 ~ 10 K に保持された試料上に集光照射される. なお, τ は $\mathbf{k}_1$ パルスが $\mathbf{k}_2$ パルスより先に試料に入射する場合を正としており, $\tau > 0$ のとき $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に強い FWM 信号光が観測される. 試料にはフリースタンディング GaN (膜厚 70 μm), c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm), または a 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm) を用いた. 試料到達直前の励起光パルスの平均パワーは 1-5 mW であり, 偏光状態は平行直線偏光 (co-linear) に設定した. 本節では, $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に発生した FWM 信号光に対するスペクトル分解 FWM (SR-FWM) 強度の測定結果を示す. なお, SR-FWM 強度の測定は分光器 ($f = 300$ mm, grating 3600 gr/mm) とペルチェ冷却型 Si-CCD によって実現した.

図 2.6 に基板の異なる 3 種類の GaN 試料に対して測定した FWM 分光の結果をまとめた. 図 2.6(a1) に, フリースタンディング GaN (膜厚 70 μm) について測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ のエネルギー (E) および遅延時間 (τ) 依存性を示す. まず, τ 依存性に注目すると, 図の白線で示した $\tau = 0.0$ ps において $I^{\text{SR-FWM}}$ が最大であることが確認できる. 図 2.6(a2) に $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す. 図から, $I^{\text{SR-FWM}}$ がエネルギー領域において 2 つのピークを持つことが確認できる. ここで $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$ をガウス関数によってフィッティングすると, それぞれのピークに対応するエネルギーとして 3.474 および 3.479 eV が得られた. これらの

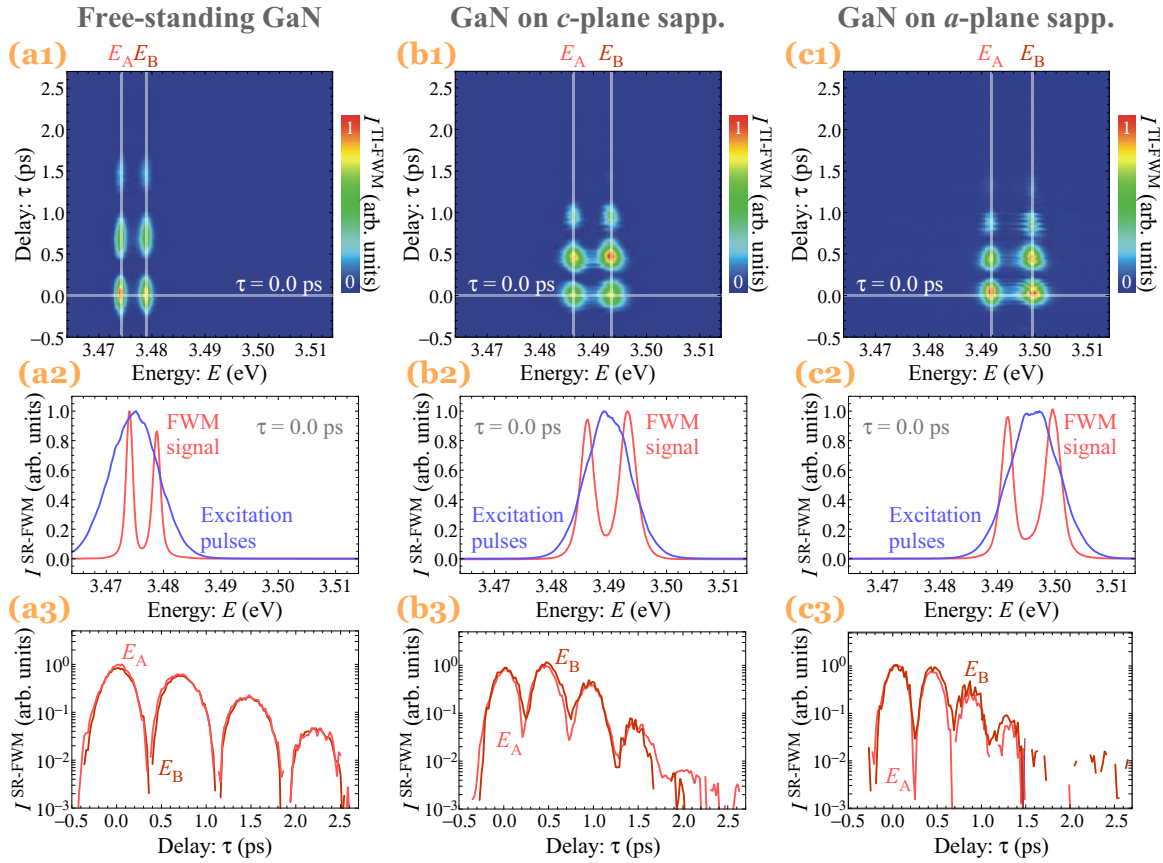


図 2.6 基板の異なる 3 種類の GaN 試料に対する FWM 分光の実験結果. (a1) フリースタンディング GaN (膜厚 $70\mu\text{m}$) に関して測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ のエネルギー (E) および遅延時間 (τ) 依存性. 白線は $\tau = 0.0$ ps, X_A 共鳴エネルギーに対応する $E = E_A = 3.474$ eV および X_B 共鳴エネルギーに対応する $E = E_B = 3.479$ eV を示す. (a2) $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$. 参考のため, 励起光パルスのスペクトルもあわせて示した. なお, 縦軸は最大値によって規格化した. (a3) $E = E_A$ および $E = E_B$ における $I^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性. 縦軸は対数スケールで示しており, 最大値によって規格化した. (b1-3) *c* 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 $2.3\mu\text{m}$) および (c1-3) *a* 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 $2.3\mu\text{m}$) に関して測定した, $I^{\text{SR-FWM}}$ のエネルギー (E) および遅延時間 τ 依存性, $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$, $E = E_A$ および $E = E_B$ における $I^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性.

値は, 2.3.2 節で計算した E_A および E_B に一致する. $I^{\text{SR-FWM}}$ における 2 つのピークは X_A および X_B が同時共鳴励起されていることを意味しており, この同時共鳴励起は励起光パルスの中心エネルギーを E_A と E_B の中間付近に調整することで実現した. エネルギーの異なる励起子の同時共鳴励起は, 励起子波動関数の量子干渉を生じ, その結果として FWM 信号光の時間発展 (τ 依存性) に量子ビートと呼ばれるコヒーレント振動を生じる [105, 106]. 図 2.6(a3) に, $E = E_A$ および $E = E_B$ における $I^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性を示す. 図から, 量子ビートと考えられる $I^{\text{SR-FWM}}$ の τ に対する振動が確認できる. この振動に対して均一広がり系における量子ビートの理論式

[107],

$$I^{\text{SR-FWM}}(E_{\text{A(B)}}, \tau) \propto \left[1 + A \cos \left(\frac{2\pi\tau}{T_{\text{QB}}} \right) \right] \exp \left(\frac{-2\tau}{T_2} \right), \quad (2.34)$$

によるフィッティングを行うと、振動周期 T_{QB} として 0.8 ps が得られた。フィッティングによって得られた T_{QB} は、共鳴エネルギー差 $E_{\text{B}} - E_{\text{A}} = 4.7$ eV から求められる量子ビートの周期 $h/(E_{\text{B}} - E_{\text{A}}) = 0.9$ ps と良く一致していることから、図 2.6(a3) で観測された振動は X_{A} および X_{B} の同時共鳴励起による量子ビートであると結論付けられる。また、式 (2.34) によるフィッティングから位相緩和時間 T_2 として 1.8 ps が得られた。フィッティングから求められた T_2 は、 X_{A} および X_{B} 共鳴の半値全幅 1.5, 1.8 meV から求められる位相緩和時間 1.7, 1.5 ps と良く一致する。この一致は、我々が用いたフリースタンディング GaN が均一広がり系であることを意味している。

図 2.6(b1-3) に、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm) に関して測定した $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す。 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における $I^{\text{SR-FWM}}$ には、いくつかの点で先に示したフリースタンディング GaN の $I^{\text{SR-FWM}}$ からの差異が認められる。まず、図 2.6(a1) と (b1) の比較から、 E_{A} および E_{B} がフリースタンディング GaN に比べて大きいことが分かる。実際に、図 2.6(b2) に示した $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$ に対してガウス関数によるフィッティングを行うと、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に関して $E_{\text{A}} = 3.486$ および $E_{\text{B}} = 3.493$ eV が得られ、フリースタンディング GaN における $E_{\text{A}} = 3.474$ および $E_{\text{B}} = 3.479$ eV よりも大きいことが確認された。共鳴エネルギーの増加は、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に印加されている二軸歪に起因しており、2.3.2 節の計算に基づく、 $E_{\text{A}} = 3.486$ および $E_{\text{B}} = 3.493$ eV は $\epsilon_{zz} = 0.0004$ の二軸歪に相当する。この二軸歪に伴い、共鳴エネルギー差 $E_{\text{B}} - E_{\text{A}} = 7.1$ eV についても、フリースタンディング GaN に比べて大きくなっていることも確認された。なお、 $T_{\text{QB}} = h/(E_{\text{B}} - E_{\text{A}})$ の関係から、共鳴エネルギー差の増大は量子ビートの周期が短くなることに対応している。図 2.6(b3) は $E = E_{\text{A}}$ および $E = E_{\text{B}}$ についての $I^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性である。図の時間発展に対して式 (2.34) によるフィッティングを行うと、 $T_{\text{QB}} = 0.5$ ps が得られた。 $T_{\text{QB}} = 0.5$ ps は、 $E_{\text{B}} - E_{\text{A}} = 7.1$ eV から求められる量子ビート周期 0.6 ps におおよそ一致する。また、位相緩和時間 T_2 については、同じく均一広がり系を仮定した式 (2.34) によるフィッティングから 1.2 ps と見積もられた。この値と共鳴の半値全幅 ~ 3.4 meV から得られる $T_2 \sim 0.8$ ps には差異があり、この差異は我々が用いた c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における不均一性がフリースタンディング GaN に比べて大きいことを示唆している。なお、図 2.6(b3) から量子ビートの第 1 ピークに比べて第 2 ピークが大きくなっていることが確認できるが、これについては励起子分子の影響であると考えられる [108]。

図 2.6(c1-3) に a 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm) について測定した $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す。 a 面サファイア基板上 GaN 薄膜は、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に比べても励起子共鳴エネルギーが大きく、その値は図 2.6(c2) に示した $\tau = 0.0$ ps における $I^{\text{SR-FWM}}$ から、 $E_{\text{A}} = 3.492$ および $E_{\text{B}} = 3.500$ eV と見積もられた。これらの共鳴エネルギーは、二軸歪に換算すると $\epsilon_{zz} = 0.0006$ に対応する。また、共鳴エネルギー差 $E_{\text{B}} - E_{\text{A}} = 7.9$ eV についても c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に比べて増大しており、この影響は図 2.6(c3) に示した $I^{\text{SR-FWM}}$ の時

間発展における量子ビート周期 T_{QB} の減少 (0.4 ps) として観測されている. $I^{\text{SR-FWM}}$ の時間発展における T_2 は, 式 (2.34) によるフィッティングから 1.1 ps と見積もられたが, これは共鳴の半値全幅 ~ 3.2 meV から算出される位相緩和時間 ~ 0.8 ps と良く一致せず, したがって我々が用いた a 面サファイア基板上 GaN 薄膜は不均一広がり系であると考えられる.

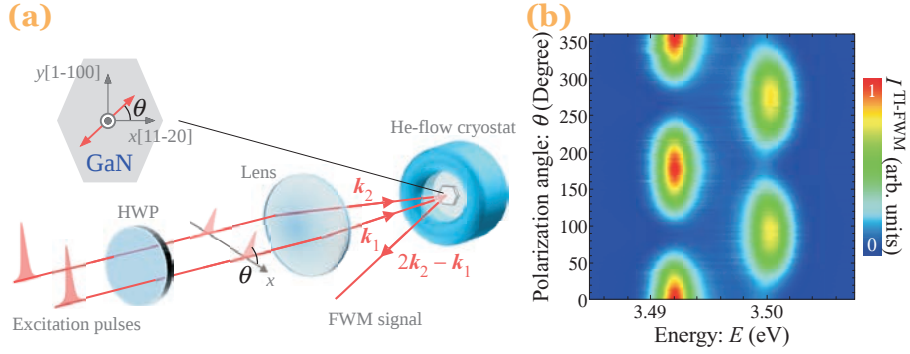


図 2.7 (a) 偏光分解 FWM 分光の概念図. HWP: Half wave-plate. (b) SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ の偏光角度 θ 依存性. 遅延時間は $\tau = 0.0$ ps に設定した. また, $I^{\text{SR-FWM}}$ は最大値によって規格化した.

2.3.3 節の議論から, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜の場合, 試料に印加された一軸歪の影響により励起振動子強度に偏光異方性が発現すると考えられる. これを確認するために, 偏光分解 FWM 分光 [図 2.7(a)] を行った. この偏光分解 FWM 分光において, 直線偏光状態の励起光パルス対の偏光方向は半波長板 (half wave-plate, HWP) によって制御される. なお, 試料の [11-20] 方向に平行な直線偏光を $\theta = 0$ と定義する.

図 2.7(b) に $I^{\text{SR-FWM}}$ の θ 依存性を示す. 遅延時間については $\tau = 0.0$ ps に設定した. また, 励起光パルスの中心エネルギーを E_A と E_B の中間付近に調整することで, X_A および X_B の同時共鳴励起を行った. 図から, $E_A = 3.492$ eV における $I^{\text{SR-FWM}}$ は $\theta = 0, 180, 360^\circ$ において最大値を示すことが分かる. この結果は, X_A が $\theta = 0, 180, 360^\circ$ に対応する [11-20] 方向に平行な直線偏光に対して大きな振動子強度 ($|\mu_{Ax}|^2$) を持ち, これに比べて $\theta = 90, 270^\circ$ に対応する [1-100] 方向に平行な直線偏光に対する振動子強度 ($|\mu_{Ay}|^2$) は小さいことを意味している. 一方, X_B については, [1-100] 方向に平行な直線偏光に対応する $\theta = 90, 270^\circ$ に対して大きな振動子強度 ($|\mu_{By}|^2$) を持ち, [11-20] 方向に平行な直線偏光に対応する $\theta = 0, 180, 360^\circ$ に対する振動子強度 ($|\mu_{Bx}|^2$) は小さいことが確認できる. したがって, X_A と X_B は直交する偏光特性を持つ. この結果は 2.3.3 節の予想と一致する. なお, 図 2.7(b) から, 直交偏光に対する振動子強度比 ($|\mu_{A(B)x(y)}|^2 / |\mu_{A(B)y(x)}|^2$) を見積もることができ, この振動子強度比から試料に印加されている一軸歪のエネルギー δ_3 や GaN 励起子の交換相互作用定数 γ 等の物性値を算定することができる [109].

2.4 光渦パルスを用いたコヒーレント分光

本節では、トポロジカル光波の一種である光渦を用いた FWM 分光によって、励起子分極の大域的空間コヒーレンス測定が可能となることを説明する。まず、2.4.1 節では、光渦を光の固有伝播モードとして取り扱う場合に用いられるラゲールガウスモードについて解説し、光渦が持つ軌道角運動量に基づく光渦の解析が可能であることを示す。2.4.2 節では、光渦パルス励起 FWM 信号光の軌道角運動量を解析することによって、光から励起子分極へのトポロジカル位相のコヒーレント変換および大域的空間コヒーレンス測定が可能となることを示す。2.4.3 節では、これの実現に必要な光渦パルス生成法および軌道角運動量の測定法を検討する。具体的には、光渦パルス生成法として、 q -plate を用いた光渦パルス生成、ホログラム回折格子を用いた光渦パルス生成、不確定性関係に基づく複合光渦パルス生成法、軌道角運動量の測定法として空間モード変換に基づく軌道角運動量分解測定法について検討を行う。

2.4.1 光渦と光の軌道角運動量

固有伝播モードとしての光渦: ラゲールガウスモード

位相特異点を有する光波はすべて光渦に分類されるが、本節では光渦を光の固有伝播モードとして取り扱う場合に良く用いられるラゲールガウスモードについて説明する^{*5}。

ラゲールガウスモードはスカラーヘルムホルツ方程式,

$$\nabla^2 \mathcal{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E}, \quad (2.35)$$

の解の一種である。ラゲールガウスモードに対応する光電場 $\mathcal{E}^{\text{LG}}$ について,

$$\mathcal{E}^{\text{LG}}(r, \varphi, z, t) = \hat{\mathcal{E}}^{\text{LG}}(r, \varphi, z) \exp[i(kz - \omega t)], \quad (2.36)$$

のように伝播項 $\exp[i(kz - \omega t)]$ (k : 波数, ω : 角周波数) を定義したとき、 $\hat{\mathcal{E}}^{\text{LG}}$ は近軸近似条件 $|2ik\partial u/\partial z \gg \partial^2 u/\partial z^2|$ のもとでの円筒座標系におけるヘルムホルツ方程式,

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right) \hat{\mathcal{E}}^{\text{LG}} = 0, \quad (2.37)$$

の解として,

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{E}}^{\text{LG}} = \mathcal{E}_0 u_{p,\ell}^{\text{LG}} = \mathcal{E}_0 & \sqrt{\frac{2p!}{\pi (p+|\ell|)!}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)} \right)^{|\ell|} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w(z)^2} \right) \frac{w_0}{w(z)} \\ & \times \exp \left[-\frac{r^2}{w(z)^2} - i \frac{kr^2}{2R(z)} + i\ell\varphi \right] \exp \left[-i(2p+|\ell|+1) \tan^{-1}(z/z_R) \right], \end{aligned} \quad (2.38)$$

^{*5} 位相特異点を持つ固有伝播モードとしてベッセルガウスモード [110] やマシューモード [111] など存在する。

で与えられる [112]. ここで, p は任意の非負の整数, ℓ は任意の整数であり, それぞれラゲールガウスモード $u_{p\ell}^{\text{LG}}$ におけるモード次数を表す. 式 (2.38) から, ラゲールガウスモードがトポロジカル位相 $\exp(il\varphi)$ を持つことが分かり, したがってモード次数 ℓ はトポロジカルチャージと等価である. $\mathcal{E}_0$ は電場の次元を持つ定数であり, レイリー長 z_R , ビーム径 $w(z)$, 波面の曲率 $R(z)$ はそれぞれ,

$$z_R = \frac{kw_0^2}{2}, \quad w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2}, \quad R(z) = \frac{z^2 + z_R^2}{z}, \quad (2.39)$$

で定義される. ここで, w_0 はビームウェストである. $L_p^{|\ell|}(x)$ はラゲール陪多項式であり,

$$L_p^{|\ell|}(x) = \sum_{k=0}^p \frac{(-1)^k (p + |\ell|)!}{(p-k)! (|\ell|+k)! k!} x^k, \quad (2.40)$$

で定義される. 式 (2.38) における $(2p + |\ell| + 1) \tan^{-1}(z/z_R)$ はグイ位相を表す. このグイ位相は, マルチラゲールガウスモードの伝播に非常に重要な役割を果たすことが知られている [113, 114].

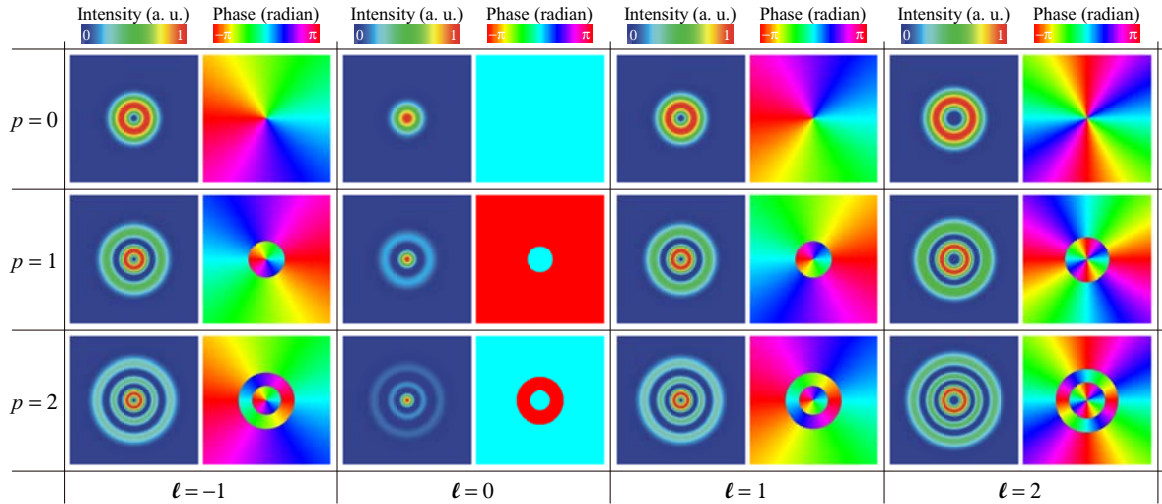


図 2.8 ラゲールガウスモードの強度分布および位相分布.

図 2.8 にラゲールガウスモードの強度 $|u_{p,\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z)|^2$ および位相 $\text{Arg}[u_{p,\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z)]$ の分布を示す. なお簡単のために $z = 0$ を仮定し, $p = 0, 1, 2$ および $\ell = -1, 0, 1, 2$ について示した. まず $p = 0$ の場合に注目して特徴を述べる. $p = 0$ かつ $\ell = 0$ のラゲールガウスモードはレーザーの基本モードである最低次ガウスモードに対応し, ガウス関数型の強度分布を持ち, 断面において一様な位相を持つ. これに対して, $\ell \neq 0$ のラゲールガウスモードの断面には, トポロジカル位相 $\exp(il\varphi)$ を反映した方位角 φ 方向の位相勾配が存在する. この位相勾配は ℓ の増加に伴って大きくなり, ℓ の符号に応じて方向が変化する. なお, 光軸 ($r = 0$) は方位角 φ , すなわち位相を定義できない位相特異点である. 位相特異点における強度は 0 であるため, $\ell \neq 0$ のラゲールガウスモードはリング型の強度分布を持つ. このリング型強度分布において, ピーク強度を示す半径

r_p が $|\ell|$ の増大に伴って大きくなる. 式 (2.38) から, r_p は,

$$r_p = \sqrt{\frac{\ell}{2}} w_0, \quad (2.41)$$

のように計算でき, したがってリングのピーク半径は $\sqrt{\ell}$ に比例して大きくなる.

次に $p \neq 0$ の場合に注目すると, 強度分布は $p+1$ 重のリング構造であることが分かる (ただし, $\ell \neq 0$ の場合). また, 位相分布から, 同心円状に位相のジャンプが生じる p 本の線が分布することが確認できる.

ラゲールガウスモード $u_{p\ell}^{\text{LG}}$ は完全系を形成することが知られている. これは任意の光電場をラゲールガウスモードによって展開できることを意味している. 円筒座標系で定義される任意の光電場 $u^{\text{arb}}(r, \varphi, z)$ を,

$$u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) = \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} C_{p\ell} u_{p\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z) = \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} C_{p\ell} \hat{u}_{p\ell}^{\text{LG}}(r, z) \exp(i\ell\varphi), \quad (2.42)$$

のように展開することを考える. なお, $u_{p\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z) = \hat{u}_{p\ell}^{\text{LG}}(r, z) \exp(i\ell\varphi)$ に従って変数分離した. ここで, 直交関係,

$$\int_{-\pi}^{\pi} \exp(i\ell_1\varphi) \exp(-i\ell_2\varphi) d\varphi = 2\pi \delta_{\ell_1, \ell_2}, \quad \int_0^{\infty} r \hat{u}_{p_1\ell}^{\text{LG}}(r, z) \hat{u}_{p_2\ell}^{\text{LG}*}(r, z) dr = \frac{w_0^2}{2\pi} \delta_{p_1, p_2}, \quad (2.43)$$

から, 式 (2.42) の複素展開係数 $C_{p,\ell}$ は次のように与えられる.

$$C_{p\ell} = \frac{1}{w_0^2} \int_0^{\infty} r dr \int_{-\pi}^{\pi} u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) u_{p\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z)^* d\varphi. \quad (2.44)$$

光の軌道角運動量と軌道角運動量スペクトル

1992 年に L. Allen らによってラゲールガウスモードが軌道角運動量 (Orbital angular momentum, OAM) を持つことが示されて [33] 以降, 光渦は基礎・応用両面において飛躍的な進展をもたらした [115, 116]. ラゲールガウスモードが OAM を持つことは, $\exp(i\ell\varphi)$ のトポロジカル位相から定性的に理解できる. トポロジカル位相 $\exp(i\ell\varphi)$ は, ラゲールガウスモードが図 2.9 のように螺旋状にねじれた波面を持つことを意味している. これは、波面に垂直なポインティングベクトル $\mathcal{S}$ (運動量ベクトルに比

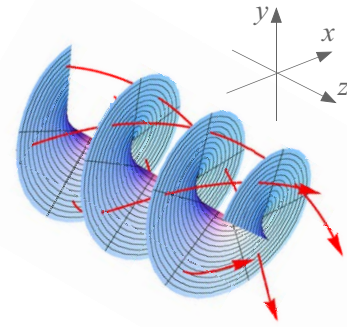


図 2.9 光渦の波面 ($\ell = -1$). 赤線はポインティングベクトルに対応.

例) に方位角 φ 方向の成分が存在することを意味している. このポインティングベクトル (運動量ベクトル) の方位方向成分が OAM に対応する. 近軸近似の範囲内において, ラゲールガウスモードの OAM はトポロジカルチャージ ℓ のみによって決定され *6, 偏光状態に依存しない.

*6 動径次数 p についても運動量との対応が検討されているが [117, 118], 本研究ではこれを考慮しない.

ラゲールガウスモード $u_{p\ell}^{\text{LG}}$ におけるポインティングベクトル $\mathbf{S}$ は、ベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ を、

$$\mathbf{A} = A_0 u_{p\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z) \exp[i(kz - \omega t)] \mathbf{n}, \quad (2.45)$$

と定義したとき、次のように計算できる [33, 119].

$$\mathbf{S} = -\frac{k\omega r |A_0|^2}{\mu_0 R(z)} |u_{p\ell}^{\text{LG}}|^2 \mathbf{e}_r + \frac{\ell\omega |A_0|^2}{\mu_0 r} |u_{p\ell}^{\text{LG}}|^2 \mathbf{e}_\varphi - \frac{i\sigma_z \omega |A_0|^2}{2\mu_0} \frac{\partial |u_{p\ell}^{\text{LG}}|^2}{\partial r} \mathbf{e}_\varphi + \frac{k\omega |A_0|^2}{\mu_0} |u_{p\ell}^{\text{LG}}|^2 \mathbf{e}_z. \quad (2.46)$$

ここで、 $\mathbf{n} = a\mathbf{e}_x + b\mathbf{e}_y$ はラゲールガウスモードの偏光状態を表し、 $\sigma_z = i(ab^* - a^*b)$ は直線偏光 (a, b 共に実数) の場合に 0, $+z$ 方向から見て左回り円偏光 ($a = 1/\sqrt{2}, b = -i/\sqrt{2}$) の場合に -1 , 右回り円偏光 ($a = 1/\sqrt{2}, b = i/\sqrt{2}$) の場合に $+1$ である. 式 (2.46) の右辺第 2 項から、ラゲールガウスモードのポインティングベクトル $\mathbf{S}$ にはトポロジカルチャージ ℓ に比例する方位方向成分が確認でき、これが OAM に対応する. 一方、第 3 項は光波の偏光状態 σ_z に依存する角運動量であり、スピン角運動量を表す.

式 (2.46) から、ラゲールガウスモードにおける一光子当たりの OAM は $\ell\hbar$ であることを示すことができる. 簡単のために $\sigma_z = 0$ としたとき、運動量ベクトル $\mathbf{p} = \mathbf{S}/c^2$ かつ z 方向の角運動量密度 $j_z = rp_\varphi$ の関係から、 $j_z = \epsilon_0\omega\ell |A_0|^2 |u_{p,\ell}^{\text{LG}}|^2$ が得られる. したがって、単位長さあたりの OAM(J_z) は、 j_z の x - y 面内における積分から、

$$J_z = \int_0^\infty \int_{-\pi}^\pi rp_\varphi r dr d\varphi = \frac{\ell}{\omega} I, \quad (2.47)$$

である. ここで I は単位長さ当たりのエネルギーを表し、

$$I = \epsilon_0\omega^2 w_0^2 |A_0|^2, \quad (2.48)$$

で与えられる. 単位長さあたりの光子数 $N_{\text{photon}} = I/\hbar\omega$ で与えられることから、一光子当たりの OAM として $J_z/N_{\text{photon}} = \ell\hbar$ が得られる.

ラゲールガウスモードが完全系を形成することを利用すると、任意電場 u^{arb} の OAM を容易に求めることができる. u^{arb} を展開係数 $C_{p\ell}$ を用いて、

$$u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) = \sum_{p,\ell} C_{p\ell} u_{p\ell}^{\text{LG}}(r, \varphi, z), \quad (2.49)$$

と表したとき、任意電場 u^{arb} における単位長さ当たりの OAM(J_z) として、

$$J_z = \sum_\ell \frac{\ell}{\omega} I_\ell, \quad I_\ell = \sum_p \epsilon_0\omega^2 w_0^2 |A_0|^2 |C_{p\ell}|^2, \quad (2.50)$$

が得られる. ここで、 I_ℓ は、動径モード次数 p に関して積算したエネルギーの ℓ に関する分布に対応する. なお、方位モード次数 ℓ が一光子に換算した OAM に対応することに対して、動径モード次数 p には明確な物理的意味が無いことから、 p に関して積算したエネルギーに対応する I_ℓ が光

渦の解析においてよく用いられる [120, 121]. 本研究では, I_ℓ を OAM スペクトルと呼び, 以降の光渦解析に用いる.

OAM スペクトル (I_ℓ) は, 光電場 u^{arb} の空間フーリエ変換に対応する. 任意光電場を与える式 (2.49) および直交関係式 (2.43) から,

$$\int_0^\infty r \left| \int_{-\pi}^\pi u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) \exp(-i\ell\varphi) d\varphi \right|^2 dr = 2\pi w_0^2 \sum_p |C_{p\ell}|^2, \quad (2.51)$$

が導かれる. 式 (2.51) から, OAM スペクトル (I_ℓ) は,

$$I_\ell = \epsilon_0 \omega^2 w_0^2 |A_0|^2 \sum_p |C_{p\ell}|^2 = \frac{\epsilon_0 \omega^2 |A_0|^2}{2\pi} \int_0^\infty r \left| \int_{-\pi}^\pi u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) \exp(-i\ell\varphi) d\varphi \right|^2 dr, \quad (2.52)$$

で与えられる. 式 (2.52) は, OAM スペクトル I_ℓ が光電場 u^{arb} のトポロジカル位相 $\exp(-i\ell\varphi)$ への射影 (フーリエ変換) に対応することを意味している. したがって, OAM スペクトル I_ℓ の測定は方位角 φ に関する光電場分布を解析することに対応する.

2.4.2 光渦パルス励起四光波混合分光による大域的空間コヒーレンス測定

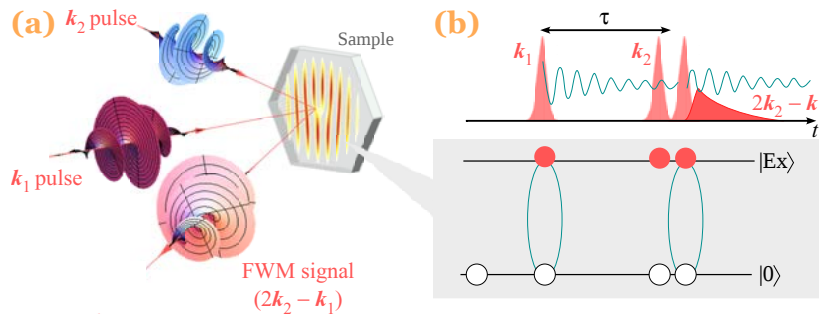


図 2.10 (a) 光渦パルスを用いた FWM 分光の概念図および (b) 対応する二準位系の時間発展.

本節では, コヒーレント分光に光渦パルスを適用することによって, 励起子分極へのトポロジカル位相のコヒーレント変換および大域的空間コヒーレンス測定が可能であることを説明する. なお, 本研究では励起光渦パルスのスポット径 (典型的に $100 \mu\text{m}$) は GaN の励起子有効ボーア半径 ($\sim 50 \text{ \AA}$) よりも十分に大きく, この場合の光渦との相互作用は波面の傾いた平面波との相互作用と等価と考えられるため, 光学遷移選択則における OAM の寄与 [67] は考慮しない.

図 2.10 に光渦パルス励起による FWM 分光の概念図を示す. 励起子エネルギーに共鳴する光パルスを図 2.10(a) のように半導体試料に照射したとき, 試料には励起子分極が誘起される. 二準位系 [図 2.10(b)] を仮定したとき, これは基底状態 $|0\rangle$ と励起子状態 $|EX\rangle$ のコヒーレントな重ね合わせ状態が形成されることに対応する. この分極振動において, 入射光パルスの位相はその初期位相として反映される. ここで, 入射光パルスとしてトポロジカル位相 $\exp(i\ell\varphi)$ を持つ光渦を用いると, 励起子分極にその大域的な空間位相が転写されると考えられる. これは, 入射光パルス

から励起子分極へのトポロジカル位相のコヒーレント変換に対応する。波数ベクトル $\mathbf{k}$ が異なる 2 つの光パルス ($\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルス) を試料に照射したとき、それぞれの光パルスによって誘起される励起子分極の位相関係に応じて量子状態が $|\text{EX}\rangle$ または $|0\rangle$ に定まることで、試料には励起子の密度回折格子が形成される。ここで、上記コヒーレント変換が理想的に実現されることを仮定すると、試料にはトポロジカル位相分布を反映したフォーク型密度回折格子 [図 2.10(a)] が形成されると考えられる。このとき、密度回折格子の自己回折光に対応する FWM 信号光には、そのフォーク型構造を反映したトポロジカル位相が付与される。したがって、FWM 信号光のトポロジカル位相、すなわちトポロジカルチャージ ℓ を解析することによって、コヒーレント変換を評価することができる。さらに、励起子の散乱過程において空間コヒーレンスが保持されると仮定したとき、パルス間時間差 (遅延時間 τ) に関わらず理想的なフォーク型回折格子が形成されることが期待される。したがって、 τ を掃引することによって、励起子分極の大域的空間 (デ) コヒーレンスの評価が可能である。

ここで、FWM 信号光におけるトポロジカル位相について、空間的に均一な二準位系集団を仮定して簡単に考察する。FWM 分光における励起光パルスの光電場 $\mathcal{E}$ はラゲールガウスモード $u_{p\ell}^{\text{LG}}$ を用いて、

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1} \delta(t - t_1) u_{p_1 \ell_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) \exp[i(k_1 z - \omega_p t)] + \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \delta(t - t_2) u_{p_2 \ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) \exp[i(k_2 z - \omega_p t)], \quad (2.53)$$

と定義する。ここで、 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}$ は $\mathbf{k}_{1(2)}$ パルスの電場の大きさを表し、簡単のためにそれぞれデルタ関数の包絡関数を持つ光パルスとした。なお、 $t_{1(2)}$ は $\mathbf{k}_{1(2)}$ パルスが試料に到達する時間を表し、それぞれ $t_1 = 0$ および $t_2 = \tau$ とする。また、 $\mathbf{k}_n / |\mathbf{k}_n| \sim \mathbf{e}_z$ であることを仮定した ($\mathbf{e}_z$ は z 方向の単位ベクトル)。光学ブロッホ方程式の枠組みにおいて、式 (2.53) で与えられる励起光渦パルス対によって発生する FWM 信号光 [三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$] は次のように与えられる [122]。

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = & -\frac{iN}{\hbar^3} |\mu|^4 \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}^2 \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^* \exp[-i\omega_{\text{EX}}(t - 2\tau) - \Gamma t] \\ & \times u_{p_2 \ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) u_{p_2 \ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) u_{p_1 \ell_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r})^* \exp[i(2k_2 - k_1)z]. \end{aligned} \quad (2.54)$$

ここで、 $\hbar\omega_{\text{EX}}$ は $|\text{EX}\rangle$ と $|0\rangle$ のエネルギー差、 Γ は位相緩和レート、 $|\mu|^2$ は振動子強度であり、空間的に均一な二準位系集団を仮定する場合、これらは定数として扱うことができる。また、 N は考慮する二準位系の数密度を表す。ラゲールガウスモード $u_{p\ell}^{\text{LG}}$ が $u_{p\ell}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) = \hat{u}_{p\ell}^{\text{LG}}(r) \exp[i\ell\varphi]$ に従って変数分離できることを利用すると、式 (2.54) から FWM 信号光 $\mathcal{P}^{(3)}$ が $\exp[i(2\ell_2 - \ell_1)\varphi]$ のトポロジカル位相を持つことが分かる。このとき、FWM 信号光 $\mathcal{P}^{(3)}$ の OAM スペクトル I_ℓ は、式 (2.52) から $I_\ell \approx \delta_{\ell, 2\ell_2 - \ell_1}$ である。したがって、理想的な FWM 信号光の OAM スペクトルは、 $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ にのみ有限の値を持ち、この理想的な OAM スペクトルからの差異はコヒーレント変換の不完全性や大域的空間デコヒーレンスを反映する。

2.4.3 節では、光渦パルス励起 FWM 分光に最適な励起光渦パルスの生成法および OAM スペクトル測定法を検討する。

2.4.3 光渦パルス生成法および軌道角運動量分解測定法の検討

q -plate を用いた光渦パルス生成

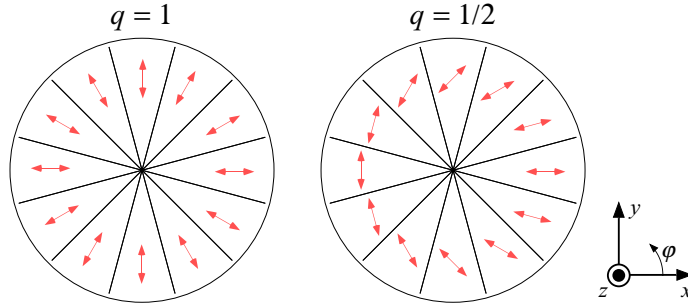


図 2.11 $q = 1$ および $q = 1/2$ の segmented q -plate(SQP) における主軸分布. 分割数 $N = 12$ であり, 矢印の方向は位相子の主軸方向を表す.

q -plate は方位角 φ に応じて主軸の向きが異なる位相子である [123, 124]. この q -plate に円偏光の最低次ガウスモードを入射すると, 透過光として光渦が得られる [125]. また, 主軸の方向が連続的に変化する q -plate の他に, 不連続な主軸分布を持つ q -plate も存在し, これを segmented q -plate(SQP) と呼ぶ (図 2.11). q -plate を用いる利点は, アクロマティックかつ損傷閾値も高いため, 広帯域・高強度の光パルスの光渦変換に適していることである.

q -plate による偏光変換および光渦への変換について簡単に説明する. q -plate の主軸方向は整数または半整数値の q を用いて, $q\varphi$ で与えられる. q -plate が直交直線偏光に与える位相差 (リタデーション) を ϕ_0 とすると, q -plate のジョーンズ行列 $\mathbf{M}(\varphi)$ は,

$$\begin{aligned} \mathbf{M}(\varphi) &= \mathbf{R}(q\varphi) \cdot \mathbf{W}(\phi_0) \cdot \mathbf{R}(-q\varphi) \\ &= \begin{pmatrix} \cos \frac{\phi_0}{2} - i \sin \frac{\phi_0}{2} \cos 2q\varphi & -i \sin \frac{\phi_0}{2} \sin 2q\varphi \\ -i \sin \frac{\phi_0}{2} \sin 2q\varphi & \cos \frac{\phi_0}{2} + i \sin \frac{\phi_0}{2} \cos 2q\varphi \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.55)$$

で与えられる [126]. ここで $\mathbf{R}(q\varphi)$ は回転行列であり,

$$\mathbf{W}(\phi_0) = \begin{pmatrix} e^{i\phi_0/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\phi_0/2} \end{pmatrix}, \quad (2.56)$$

は位相子のジョーンズ行列である. $\phi_0 = \pi$ (半波長板) のとき, q -plate のジョーンズ行列 [式 (2.55)] は次のように与えられる.

$$\mathbf{M} = -i \begin{pmatrix} \cos 2q\varphi & \sin 2q\varphi \\ \sin 2q\varphi & -\cos 2q\varphi \end{pmatrix}. \quad (2.57)$$

式 (2.57) で与えられるジョーンズ行列を持つ q -plate に対して円偏光の入射光 $\boldsymbol{\mathcal{E}}^{\text{SQP-in}} = (1, \pm i)/\sqrt{2}$ を入射したとき, 透過光のジョーンズベクトル $\boldsymbol{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}$ として,

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}} = \mathbf{M} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}^{\text{SQP-in}} = \frac{-i}{\sqrt{2}} \exp(\pm i 2q\varphi) \begin{pmatrix} 1 \\ \mp i \end{pmatrix}, \quad (2.58)$$

が得られる. 式 (2.58) から, q -plate に対して円偏光の光を入射することによって透過光として光渦が得られ, そのトポロジカルチャージ $\ell = \pm 2q$ であることが分かる. ここで, トポロジカルチャージの符号は入射光の円偏光の右回り・左回りにによって決定される.

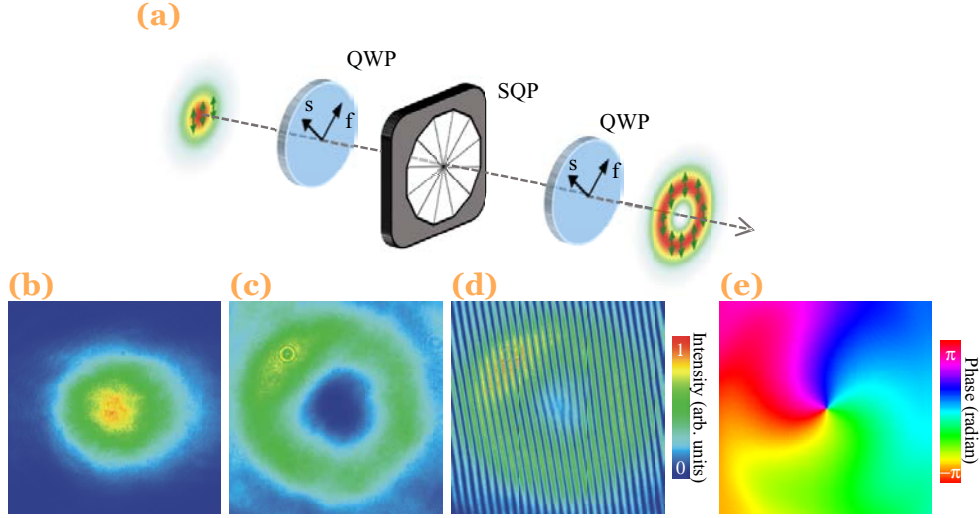


図 2.12 (a) Segmented q -plate (SQP) による光渦パルス生成の概念図 (QWP: quarter wave-plate). (b) 入射光パルスの断面強度分布. (c) 光渦変換後の断面強度分布. (d) 最低次ガウスモードの参照光パルスとの干渉パターン. (e) 干渉パターンの二次元フーリエ変換から求めた断面位相分布.

図 2.12 に q -plate を用いて光渦パルスに変換を行った結果を示す. なお, 今回は均一直線偏光の最低次ガウスモードの光パルスを $1/4$ 波長板 (QWP) によって円偏光に変換した後, 12 分割の SQP に入射した [図 2.12(a)]. 光源はモード同期チタンサファイアレーザーの第二高調波 (中心エネルギー ~ 3.5 eV, パルス幅 ~ 190 fs) であり, 図 2.12(b) に示したようにガウス型の強度分布を有する. また, SQP はフォトニクラティス社製 SWP-355 を用いた. この SQP の仕様については 3.2 節表 3.2 を参照されたい.

図 2.12(c) に SQP 透過後の光パルスの断面強度分布を示す. 図から, SQP 通過後の光パルスがほぼ理想的なリング型の強度分布を有することが確認できる. 生成した光渦パルスの断面位相分布を評価するために, SQP 通過後の光パルスと参照光パルスとの干渉パターンの観測を行った. 干渉パターンに ℓ 本のフォーク型構造が観測されるとき, 被測定光がトポロジカルチャージ ℓ で特徴付けられるトポロジカル位相を持つことを意味している [127, 128]. 図 2.12(d) に観測した干渉パターンを示す. なお, 参照光は入射光と同様に最低次ガウスモードの光パルスであり, 図 2.12(b) とほぼ同等の強度分布を有することを確認している. 図には, 1 本の叉を持つフォーク型のパターンが明瞭に観測されていることが確認できる. この結果は, SQP によって $\ell = 1$ のトポロジカル位相を持つ光渦であることを示唆している.

図 2.12(d) の干渉パターンから, 生成した光渦の断面位相分布を取得することが可能である. この方法は光電場再生法と呼ばれ, 干渉パターンに対して 2 次元空間フーリエ変換を施し, 得られた AC 成分を抽出して逆フーリエ変換を行うことにより被測定光の光電場情報を取得する方法であ

る [129]. このとき, 被測定光の断面位相分布は再生した光電場の偏角として得られる. 図 2.12(e) に光電場再生法によって得られた光渦パルスの断面位相分布を示す. 図から, 光渦断面に位相特異点が存在することが確認できる. また, 球面位相を反映してスパイラル型の位相分布を示しているものの, 任意の動径 r において位相の方位角 φ に対する変化は滑らかであり, 位相特異点を囲む閉曲線を一周したときの合計の位相変化は 2π であることが分かる. したがって, SQP によってほぼ理想的な $\ell = 1$ の光渦パルスが得られていると結論付けられる. なお, φ に対して不連続な主軸分布を持つ SQP によって, 図 2.12(e) のように滑らかな位相分布を持つ光渦パルスが得られることに関しては付録 A で補足する.

ホログラム回折格子を用いた光渦パルス生成

ホログラム回折格子による像再生を用いると, 任意の光電場を得ることができる [130]. したがって参照光として最低次ガウスモード, 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, そのホログラムにレーザーを照射することで光渦を得ることができる. ホログラム回折格子の生成には, 液晶空間位相変調 (Spatial light modulator, SLM) が良く用いられる. SLM は二次元的に配置された液晶の配向方向を電氣的に制御することにより, 入射光に空間位相変調を加えるデバイスである. 液晶を用いるため損傷閾値が低く, 光渦を回折光として取得するため損失も大きいものの, 生成される光渦のトポロジカルチャージが主軸分布によって一意に決定される q -plate とは異なり, ホログラム回折格子の制御により任意のトポロジカルチャージを持つ光渦を得られることがこの手法の大きな利点である.

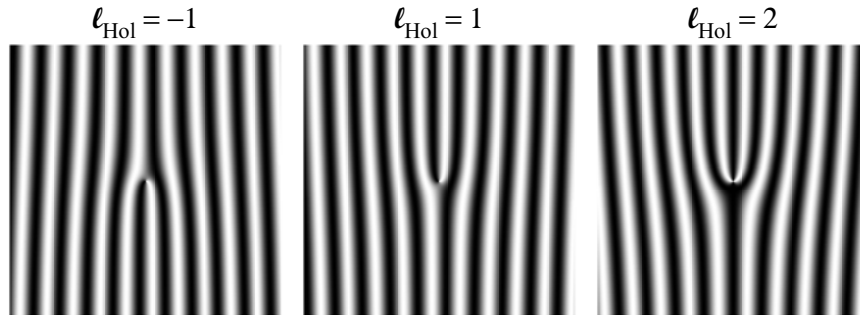


図 2.13 式 (2.59) から計算した $\ell_{\text{Hol}} = -1$, $\ell_{\text{Hol}} = 1$ および $\ell_{\text{Hol}} = 2$ のホログラム回折格子

一般にホログラム回折格子として良く用いられるのは, z 方向に伝播する $\exp(i\ell_{\text{Hol}}\varphi)$ の位相項を持つ光電場 $\exp[i(\ell_{\text{Hol}}\varphi + kz)]$ と z 軸から x 方向に微小角 β 傾いた方向に伝播する平面波 $\exp[i(kz \cos \theta + kx \sin \beta)]$ が $z = 0$ で形成する干渉縞であり, その干渉縞 $I_{\text{interf}}(\mathbf{r})$ は次式で与えられる.

$$I_{\text{interf}}(\mathbf{r}) = |\exp(i\ell_{\text{Hol}}\varphi) + \exp(ikx \sin \beta)|^2 = 2\{1 + \cos(-\ell_{\text{Hol}}\varphi + kx \sin \beta)\}. \quad (2.59)$$

式 (2.59) から計算したホログラム回折格子を図 2.13 に示す. なお, ℓ_{Hol} として $\ell_{\text{Hol}} = -1$, $\ell_{\text{Hol}} = 1$ および $\ell_{\text{Hol}} = 2$ を考慮した. 図のように, $\ell_{\text{Hol}} \neq 0$ の場合, ホログラム回折格子の中

心にはフォーク型の構造が形成される．また，このときのフォークの叉の本数は $|\ell_{\text{Hol}}|$ 本であり， ℓ_{Hol} の符号に応じてフォークの向きが異なる．

最低次ガウスモード $u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, z)$ の入射光に対して，式 (2.59) に比例する (比例係数 A) 位相変調を施したとき，光電場 $\mathcal{E}^{\text{Hol}}$ は次のように与えられる．

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{\text{Hol}}(r, \varphi, 0) &\propto u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \exp[2iA \cos(-\ell_{\text{Hol}}\varphi + kx \sin \beta)] \\ &\propto u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \sum_{n=-\infty}^{\infty} i^n J_n(2A) \exp[in(\ell_{\text{Hol}}\varphi - kx \sin \beta)]. \end{aligned} \quad (2.60)$$

ここで， n は回折次数に対応しており，したがって式 (2.60) は n 次回折光が $\exp(in\ell_{\text{Hol}}\varphi)$ のトポロジカル位相を持つ光渦であることを示している．また， n 次回折光強度は $|J_n(2A)|^2$ に比例することが分かる．ここで， J_n は第一種ベッセル関数である．

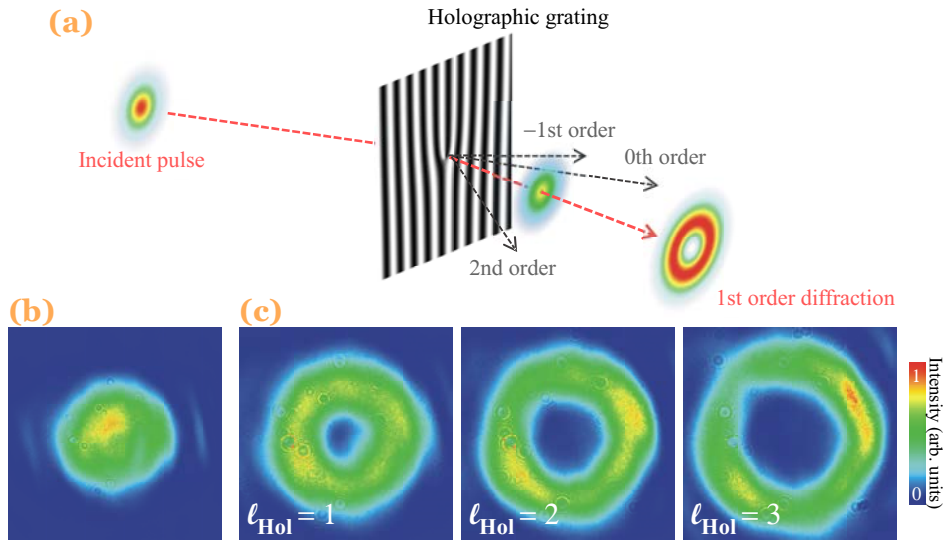


図 2.14 (a) ホログラム回折格子を用いた光渦パルス生成の概念図．(b) 入射光パルスの断面強度分布．(c) $\ell_{\text{Hol}} = 1$, $\ell_{\text{Hol}} = 2$ および $\ell_{\text{Hol}} = 3$ のホログラム回折格子に対する一次回折光の断面強度分布．

図 2.14 に SLM に描画したホログラム回折格子による光渦パルス生成の実験結果を示す．なお，今回は一次回折光 ($n = 1$) について観測を行った [図 2.14(a)]．光源はモード同期チタンサファイアレーザーの第二高調波 (中心エネルギー ~ 3.5 eV, パルス幅 ~ 190 fs) を用いており，この光源の出射光は図 2.14(b) の強度分布で特徴付けられる．今回は，SLM として浜松ホトニクス社製 X10468 を用いた．この SLM の仕様については 3.2 節表 3.1 を参照されたい．

図 2.14(c) に， $\ell_{\text{Hol}} = 1$, $\ell_{\text{Hol}} = 2$ および $\ell_{\text{Hol}} = 3$ のホログラムを SLM に描画した際の一次回折光の強度分布を示す．一次回折光の強度分布は，入射光の波面揺らぎを反映して回転対称性が若干失われているものの，ほぼ理想的なリング強度分布を示していることが確認できる．また， ℓ_{Hol} の増大に伴ってリングの半径が大きくなることが確認できる．この結果は，ラグエルガウスモードの特徴 [2.4.1 節参照] に一致する．したがって，ホログラム回折格子の回折光として，単一

次数のラゲールガウスモード $u_{0\ell_{\text{Hol}}}^{\text{LG}}$ が得られたと言える。なお、ホログラム回折格子によって単一次数のラゲールガウスモード $u_{0\ell_{\text{Hol}}}^{\text{LG}}$ が得られることについては付録 A で補足する。

不確定性関係に基づく複合光渦パルス生成

本節では、複合光渦パルスの生成法について説明する。ここで、複合光渦は様々なトポロジカルチャージ ℓ で特徴付けられる光渦の重ね合わせ状態を指す。これは、複合光渦の OAM スペクトル (I_ℓ) に広がりが存在することに対応する。本節では、簡便かつ制御性に優れた手法として、不確定性関係に基づく複合光渦パルス生成法について説明する。

不確定性関係とは共役な二つの物理量に関する確率分布の広がり (不確定性) の積の下限を与える関係である。有名なハイゼンベルグの不確定性関係は位置の不確定性 Δx と運動量の不確定性 Δp に関する関係であり、このとき x と p のフーリエ変換の関係から不確定性関係 $\Delta x \cdot \Delta p \geq \hbar/2$ が導かれる。OAM スペクトル (I_ℓ) の定義が、

$$I_\ell = \frac{\epsilon_0 \omega^2 |A_0|^2}{2\pi} \int_0^\infty r \left| \int_{-\pi}^\pi u^{\text{arb}}(r, \varphi, z) \exp(-i\ell\varphi) d\varphi \right|^2 dr, \quad (2.52)$$

のように方位角 φ に関する電場分布のフーリエ変換で与えられることは、光子の OAM(ℓ) と方位位置 (φ) の間にも同様の不確定性関係が存在することを示唆している [115, 131]。この不確定性関係を考慮したとき、光の方位位置に関する広がり $\Delta\varphi$ を制限することで、OAM スペクトルの広がり $\Delta\ell$ が大きくなると考えられる。 $\Delta\varphi$ の制限は、例えば、図 2.15(a) のような角開口 (angular aperture) によって容易に実現可能である。図のように、角開口を透過できる角度範囲を φ_0 と定義したとき^{*7}、透過光の OAM スペクトルは次のように与えられる。

$$\begin{aligned} I_\ell &= \frac{\epsilon_0 \omega^2 |A_0|^2}{2\pi} \int_0^\infty r \left| \int_{-\pi}^\pi \Theta\left(\frac{\varphi_0}{2} - |\varphi|\right) u_{00}^{\text{LG}} \exp(-i\ell\varphi) d\varphi \right|^2 dr \\ &= \frac{\epsilon_0 \omega^2 w_0^2 |A_0|^2}{\pi^2} \left(\frac{\varphi_0}{2}\right)^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\ell\varphi_0}{2}\right). \end{aligned} \quad (2.61)$$

式 (2.61) から明らかなように、角開口によってステップ関数的に方位位置広がりを制限したとき、OAM スペクトルはシンク関数型の分布を示す。

図 2.15(b) に式 (2.61) から計算した OAM スペクトルを示す。 $\varphi_0 = 2\pi$ は方位位置を制限しない場合に対応し、このとき透過光は $\ell = 0$ に単一ピークを持つ OAM スペクトルで特徴付けられる^{*8}。一方、 $\varphi_0 \neq 2\pi$ の場合には、 $\ell = 0$ に対する OAM スペクトル広がり ($\Delta\ell$ に対応) が生じていることが分かる。また、OAM スペクトルの $\ell = 0$ に対する広がり成分は φ_0 の減少に伴って大きくなることが確認できる。このように、不確定性関係を利用すると、複合光渦の OAM スペクトルを φ_0 によって制御可能である。また、式 (2.61) では入射光として最低次ガウスモードを仮定したが、 $\ell \neq 0$ のラゲールガウスモードを用いることで $\ell \neq 0$ にスペクトル中心を持つ複合光渦を得ることも可能である [132]。

^{*7} このとき、光子の存在確率の方位位置広がり $\Delta\varphi = \varphi_0/2\sqrt{3}$ に対応する。

^{*8} これは、不確定性積 $\Delta\varphi \cdot \Delta\ell = 0$ であることに対応する。ハイゼンベルグの不確定性関係で考慮される位置 x と

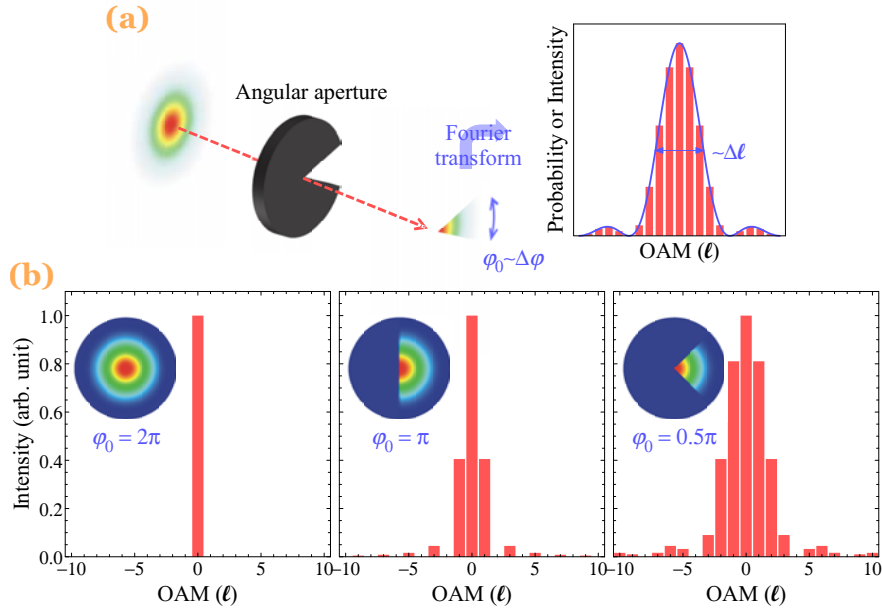


図 2.15 (a) 角開口 (angular aperture) による複合光渦パルス生成の概念図. (b) $\varphi_0 = 2\pi, \pi, 0.5\pi$ の場合における透過光の OAM スペクトルの計算結果. 縦軸は $\ell = 0$ 成分の強度で規格化した.

空間モード変換に基づく OAM 分解測定

本節では光波の OAM の定量評価法について説明する. トポロジカル位相分布を起源とする OAM の定量評価は一般に難しく、多くの研究では定性的解析手法 [133, 134, 135] が用いられてきた. しかし近年では, OAM を精度よく定量評価することが可能となりつつある. OAM の定量評価法は、大きく分けて 2 つ存在する. その 1 つが光電場再生法であり、参照光との干渉パターンに対して 2 次元空間フーリエ変換を施し、得られた AC 成分を抽出して逆フーリエ変換を行うことにより被測定光の光電場情報を取得することができる [129]. このとき、再生した光電場情報に関して式 (2.52) に対応する計算を行うことで、被測定光の OAM スペクトルを算出することが可能である [136]. ただし、干渉パターンのイメージングには安定性や強度が必要であるため、光電場再生法を微弱光に適用することは困難である. 本研究では、微弱な FWM 信号光に適用でき、さらにスペクトル分解測定も同時に行えるモード変換に基づく OAM 分解測定を行う.

図 2.16 にモード変換に基づく OAM 分解測定の概念図を示す. この方法は、 $\ell = 0$ および $\ell \neq 0$ のラゲールガウスモードの強度分布の違いを利用した方法である. $\ell = 0$ のラゲールガウスモードは最低次ガウスモードに対応しており、したがってビーム中心において有限の強度を持つ. 一方、 $\ell \neq 0$ のラゲールガウスモードの中心は位相特異点であるため、ビーム中心における強度は 0 である. したがって、被測定光をホログラム回折格子 (ℓ_{Hol}) に入射し、その一次回折光の中心成分

は異なり、方位位置 φ には周期性が存在する. この周期性により、OAM と方位位置の不確定性関係では不確定性積 $\Delta\varphi \cdot \Delta\ell = 0$ が許容される [131].

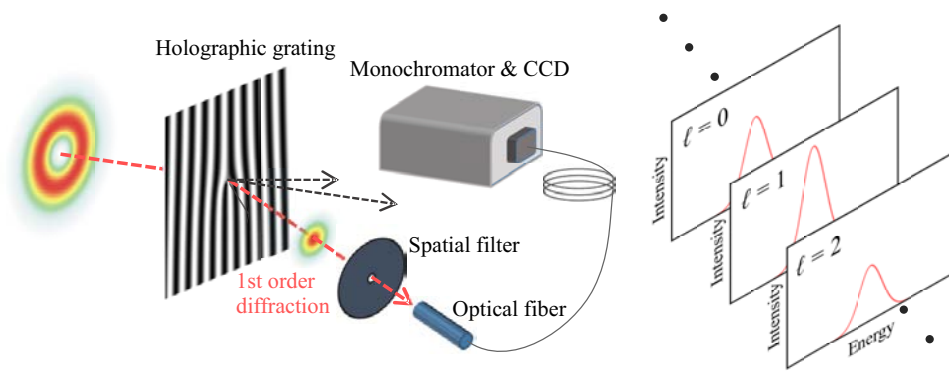


図 2.16 空間モード変換に基づく OAM 分解測定概念図。

を選択することで、最低次ガウスモードに変換された被測定光中の $\ell = -\ell_{\text{Hol}}$ 成分を選択的に測定することができる。中心成分の選択はシングルモードファイバー、あるいは空間フィルターによって実現可能であると考えられる。このようにして選択されたビーム中心成分を分光器および CCD によって検出したとき、被測定光の $\ell = -\ell_{\text{Hol}}$ 成分についてのスペクトル測定が実現される。さらに、ホログラム回折格子を空間位相変調器に描画することにより ℓ_{Hol} を自在に制御することが可能であるため、 ℓ_{Hol} を変化させながら逐次スペクトル測定を行うことによって図 2.16 のように OAM 分解スペクトルが得られる。なお、このような OAM(トポロジカル位相)の定量評価を分光測定に応用した例は過去に無く、本研究の大きな特徴の一つである。

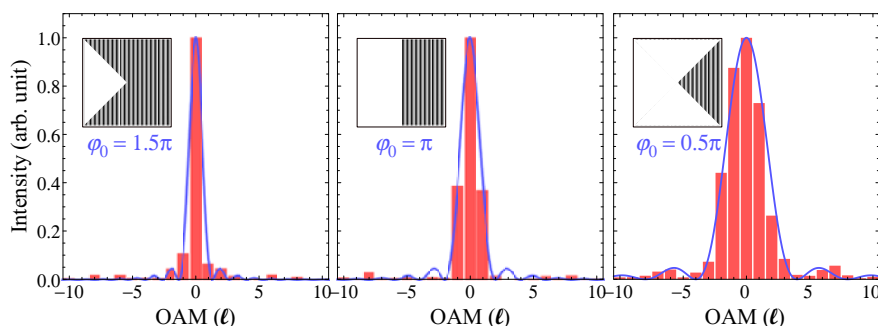


図 2.17 方位広がり φ_0 を 1.5π , 1.0π , 0.5π に制限した最低次ガウスモードに対する OAM スペクトルの測定結果。 φ_0 を制限した光パルスは、方位角 φ に関して回折効率を変調した回折格子 (内挿図) に対する一次回折光として取得した。なお、OAM スペクトルは $\ell = 0$ 成分の強度で規格化している。

本研究では、回折光の中心成分の選択に空間フィルターを用いる。空間フィルターを用いる場合、測定の確度に関して原理的な問題が生じる。被測定光の $\ell \neq -\ell_{\text{Hol}}$ 成分が一次回折光において厳密に強度 0 となるのは、一次回折光の中心のみである。したがって、有限のピンホール径を持つ空間フィルターの透過光には $\ell \neq -\ell_{\text{Hol}}$ 成分が混在すると考えられる。これは、OAM 分解測定にクロストークが生じることを意味している。

本節ではクロストークの影響について検証しておく。クロストークの検証のために、今回は方

位角広がり φ_0 を制御した光パルスを用意した．前節で説明したように，最低次ガウスモードにして方位角広がり φ_0 を制限すると，OAM スペクトル広がりが生じる．レーザー共振器からほぼ理想的な最低次ガウスモードの光パルスが得られていると仮定したとき，その OAM スペクトル広がり φ_0 によってのみ決定され，その分布は式 (2.61) によって与えられる．したがって， φ_0 を制御した光パルスを用意し，測定結果を式 (2.61) と比較することによって，OAM 分解測定の確度を検証することができる．今回， φ_0 を制御した被測定光を得るために，図 2.17 内挿図に示したホログラムを用いた．変調深さを $2\pi - \varphi_0$ の領域に渡って 0 にしたホログラム回折格子を用いると，これらの領域において回折効率が 0 となるため，方位位置の広がり φ_0 に制限された被測定光を生成できる．

図 2.17 に $\varphi_0 = 1.5\pi, 1.0\pi, 0.5\pi$ に制限した光パルスについて測定した OAM スペクトルを示す．なお，光源はモード同期チタンサファイアレーザーの第二高調波（中心エネルギー ~ 3.5 eV，パルス幅 ~ 190 fs）である．また，OAM スペクトルは，光パルスの中心エネルギー ~ 3.5 eV のエネルギー成分について示した．図から， $\varphi_0 = 1.5\pi, 1.0\pi, 0.5\pi$ のそれぞれの場合の測定結果は，重ねて示した理論式 [式 (2.61)] に概ね一致することが確認できる． $\varphi_0 = 1.5\pi, 1.0\pi, 0.5\pi$ について理論式と測定結果の平均自乗誤差を計算すると，それぞれ 1.0×10^{-4} , 3.2×10^{-4} , 1.8×10^{-3} と見積もられた．これらの値から，空間フィルターを用いて OAM 分解測定を行った場合の系統誤差は，支配的な OAM 成分の強度に対して 1-4 % 程度と見積もられた．

2.5 偏光渦パルスを用いたコヒーレント分光

本節では，偏光渦を用いた FWM 分光によって，励起子異方性や多体相互作用の高確度測定が可能となることを説明する．まず，2.5.1 節では，偏光渦に対応するの固有伝播モードとして軸対称偏光モードを導入するとともに，偏光解析に際して必須となるストークスパラメータについて解説を行う．2.5.2 節では，偏光渦パルス励起 FWM 分光によって全方位直線偏光に対する励起子応答を一度に取得でき，これによって高感度偏光測定が可能となることを説明する．続く 2.5.3 節では，偏光渦パルス生成法および空間偏光分布の測定法について検討する．

2.5.1 偏光渦とストークスパラメータ

固有伝播モードとしての偏光渦

軸対称偏光モード (Cylindrically polarized mode, CP mode) に対応する光電場ベクトル，

$$\mathcal{E}^{\text{CP}}(r, \varphi, z, t) = \hat{\mathcal{E}}^{\text{CP}}(r, z) \exp[i(kz - \omega t)] \mathbf{e}_\varphi, \quad (2.62)$$

はベクトルヘルムホルツ方程式 [137]，

$$\nabla \times \nabla \times \mathcal{E}^{\text{CP}} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E}^{\text{CP}}, \quad (2.63)$$

の近軸近似解として得られる．ここで， $\mathbf{e}_\varphi$ は方位方向の単位ベクトルである． $\mathbf{e}_\varphi$ を含むことから，式 (2.62) で与えられるモードは方位方向に平行な偏光を持ち，このような偏光を持つ偏光渦は方

位偏光モードと呼ばれる．式 (2.63) に式 (2.62) を代入し，近軸近似を適用すると， $\hat{\mathcal{E}}^{\text{CP}}$ として

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{E}}^{\text{CP}} \mathbf{e}_\varphi &= \mathcal{E}_0 u^{\text{CP}} \mathbf{e}_\varphi = \mathcal{E}_0 \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left[I_1 \left(\frac{\beta^2 w_0^2}{4} \right) \right]^{-\frac{1}{2}} \exp \left(\frac{\beta^2 w_0^2}{8} \right) \frac{w_0}{w(z)} J_1 \left(\frac{\beta w_0^2 r}{w(z)^2} - i \frac{z_R \beta r}{R(z)} \right) \\ &\times \exp \left[\left(\frac{-1}{w(z)^2} + \frac{ik}{2R(z)} \right) \left(r^2 + \frac{\beta^2 z^2}{k^2} \right) - \frac{\beta^2 z}{2k} \right] \exp \left[-i \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) \right] \mathbf{e}_\varphi. \end{aligned} \quad (2.64)$$

が得られる [138, 139]．ここで， β は定数， J_1 は第一種ベッセル関数， I_1 は第一種変形ベッセル関数である．

式 (2.64) の方位偏光モードは，より一般的な横モードの重ね合わせとして記述することができる．式 (2.64) は， $\beta \ll 1$ および $z = 0$ の条件下で，

$$u^{\text{CP}}(r, 0) \mathbf{e}_\varphi \propto r \exp \left(-\frac{r^2}{w_0^2} \right) \mathbf{e}_\varphi, \quad (2.65)$$

と近似できることから， ± 1 次のラゲールガウスモード $u_{0,\pm 1}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0)$ (2.4.1 節参照) を用いて，

$$u^{\text{CP}}(r, 0) \mathbf{e}_\varphi \propto u_{0,-1}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \mathbf{e}_- - u_{0,1}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \mathbf{e}_+, \quad (2.66)$$

で与えられる．ここで $\mathbf{e}_\pm = 1/\sqrt{2}(\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)$ は円偏光のジョーンズベクトルに対応している．式 (2.66) は，方位偏光モードが逆向きの円偏光を持つラゲールガウスモードのコヒーレントな重ね合わせ状態であることを示している．また，エルミートガウスモード $u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, 0)$ を用いると，式 (2.65) は，

$$u^{\text{CP}}(r, 0) \mathbf{e}_\varphi \propto u_{01}^{\text{HG}}(x, y, 0) \mathbf{e}_x - u_{10}^{\text{HG}}(x, y, 0) \mathbf{e}_y, \quad (2.67)$$

のように記述することも可能である．式 (2.67) は方位偏光モードが直交直線偏光のエルミートガウスモードの重ね合わせ状態であることを意味している．なお，エルミートガウスモード $u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z)$ は，

$$\begin{aligned} u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z) &= \sqrt{\frac{2}{\pi^{2m+n} m! n!}} \frac{w_0}{w(z)} H_m \left(\frac{\sqrt{2}x}{w(z)} \right) H_n \left(\frac{\sqrt{2}y}{w(z)} \right) \exp \left[-\frac{(x^2 + y^2)}{w(z)^2} \right] \\ &\times \exp \left[-\frac{ik(x^2 + y^2)}{2R(z)} \right] \exp \left[-i(m+n+1) \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \right], \end{aligned} \quad (2.68)$$

で与えられる．ここで， m, n は任意の非負の整数である．また，

$$H_m(x) = \begin{cases} m! \sum_{j=0}^{m/2} \frac{(-1)^j (2x)^{m-2j}}{j!(m-2j)!} & \text{if } m \text{ is even} \\ m! \sum_{j=0}^{(m-1)/2} \frac{(-1)^j (2x)^{m-2j}}{j!(m-2j)!} & \text{if } m \text{ is odd,} \end{cases} \quad (2.69)$$

はエルミート多項式である．

式 (2.67) の関係を図 2.18 を用いて補足する．図は直交偏光のエルミートガウスモードおよびそのコヒーレント結合光の強度分布と瞬時電場を表している．ここで瞬時電場は矢印として表されており，矢印の長さが時間 t を固定したときの電場ベクトルの大きさ，矢印の向きが電場ベクトルの方向に対応している．図 2.18(a) から， u_{01}^{HG} の電場ベクトルの方向が $y = 0$ を境に反転し

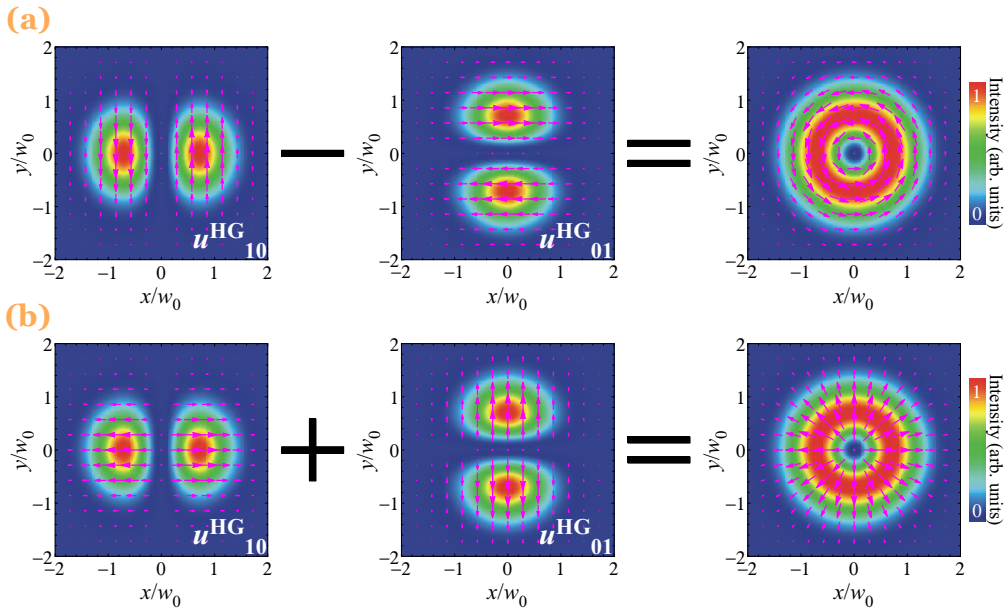


図 2.18 エルミートガウスモード u_{mn}^{HG} の重ね合わせ状態としての (a) 方位偏光モードおよび (b) 径偏光モード. 矢印は瞬時電場の大きさと向きを表す.

ていることが分かる. これは, u_{01}^{HG} の位相が $+y$ 領域と $-y$ 領域で π 異なることを反映している. 一方, u_{10}^{HG} では $x = 0$ で位相の π ジャンプが生じるため, $x = 0$ を境に瞬時電場の方向が反転する. x 偏光の HG_{01} と y 偏光の u_{10}^{HG} を位相差 π で重ね合わせると, 瞬時電場の向きが方位方向に平行なビームが形成される. これは, 式 (2.67) に対応する. なお, u_{10}^{HG} を x 偏光, u_{01}^{HG} を y 偏光に設定して位相差 0 でコヒーレント結合すると, 瞬時電場の向きが動径方向に平行なビームが形成される [図 2.18(b)]. 図 2.18(b) に示した瞬時電場の向きが動径方向に平行なビームは径偏光モードと呼ばれ, 方位偏光モードと合わせて軸対称偏光モードと呼ばれる.

偏光楕円体とストークスパラメータ

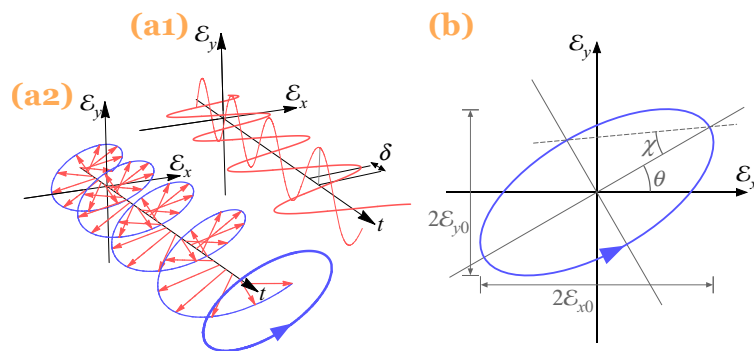


図 2.19 (a1) 光電場の x 成分 E_x , y 成分 E_y および (a2) 電場ベクトル (E_x, E_y) の時間発展. (b) 偏光楕円体の概念図.

前節の図 2.18 において、軸対称偏光モードの偏光状態を瞬時電場分布によって表現した。瞬時電場分布による表現は直観的かつ簡便であるものの、偏光状態の表現法としては不十分である。その理由は、最も一般的な偏光状態である楕円偏光を表現できないためである。ここで、楕円偏光とは直交する光電場成分 $\mathcal{E}_x$, $\mathcal{E}_y$ における位相差 δ が 0 または π ではない場合の偏光状態である。楕円偏光状態の概念図を図 2.19(a1) に示す。図のように $\mathcal{E}_x$, $\mathcal{E}_y$ はそれぞれ直交する方向に振動する。単色光を仮定する場合、振動の角周波数 ω は両成分で同一であるが、一般に両成分間の位相差 δ は 0 や π ではない。2.19(a2) に瞬時電場ベクトルの時間変化を示す。図のように電場ベクトルは時間 t に対して一定ではなく、電場ベクトルが紡ぐ軌跡の $(\mathcal{E}_x, \mathcal{E}_y)$ 平面への射影は楕円を形成する。このような電場ベクトルが紡ぐ楕円形の軌跡を偏光楕円体と呼ぶ。なお、 $\delta = 0$ の場合は電場ベクトルが紡ぐ軌跡は楕円ではなく直線を形成する。この $\delta = 0$ の光は直線偏光に対応している。また $\delta = \pm\pi/2$ かつ電場の振幅が x および y 成分で等しい場合、電場ベクトルが紡ぐ軌跡は真円となる。 $\delta = \pm\pi/2$ かつ電場の振幅が両成分で等しい光は円偏光に分類され、その回転方向は δ の符号によって決定される。

被測定光に関して、偏光楕円体を特徴付けることができれば被測定光の偏光状態を一意に決定できる。1852 年、G. G. Stokes は偏光楕円体を決定する量としてストークスパラメータを考案した [140]。ストークスパラメータは我々が容易に測定可能な光の時間積算 (平均) 強度から算出することができ、したがって可視光の場合に 10^{-15} s に達する電場ベクトルの周期的時間変化を直接追跡することなく被測定光の偏光状態を決定できる。

簡単のため、まず単色光の被測定光を仮定して、ストークスパラメータを定義する。単色被測定光の x 偏光成分の電場 $\mathcal{E}_x$ および y 偏光成分の電場 $\mathcal{E}_y$ は、

$$\mathcal{E}_x(t) = \mathcal{E}_{x0} \exp[i(-\omega t + \delta_x)], \quad \mathcal{E}_y(t) = \mathcal{E}_{y0} \exp[i(-\omega t + \delta_y)], \quad (2.70)$$

のように記述できる。ここで、 $\mathcal{E}_{x0}$, $\mathcal{E}_{y0}$ は x および y 成分の振幅、 δ_x , δ_y は x および y 成分の位相を表し、それぞれ実定数であるとする。なお、式 (2.70) では複素電場を用いて電場を定義したが、実際に観測されるのは式 (2.70) の実部、すなわち、

$$\mathcal{E}_x^{(\text{Re})}(t) = \mathcal{E}_{x0} \cos(\omega t - \delta_x), \quad \mathcal{E}_y^{(\text{Re})}(t) = \mathcal{E}_{y0} \cos(\omega t - \delta_y), \quad (2.71)$$

である。複素電場の実部に関する 2 つの等式 [式 (2.71)] は次の等式に統合することが可能である。

$$\frac{[\mathcal{E}_x^{(\text{Re})}]^2}{\mathcal{E}_{x0}^2} + \frac{[\mathcal{E}_y^{(\text{Re})}]^2}{\mathcal{E}_{y0}^2} - 2 \frac{\mathcal{E}_x^{(\text{Re})} \mathcal{E}_y^{(\text{Re})}}{\mathcal{E}_{x0}^2 \mathcal{E}_{y0}^2} \cos \delta = \sin^2 \delta. \quad (2.72)$$

ここで、 $\delta = \delta_y - \delta_x$ である。式 (2.72) は楕円の方程式であり、式 (2.71) で定義される光が形成する偏光楕円体に対応している。

図 2.19(b) に式 (2.72) から得られる偏光楕円体の典型例を示す。ここで、楕円を特徴付けるパラメータとして、長軸の角度 θ と楕円率角 χ を次のように定義する。

$$\tan 2\theta = \frac{2\mathcal{E}_{x0}\mathcal{E}_{y0} \cos \delta}{\mathcal{E}_{x0}^2 - \mathcal{E}_{y0}^2}, \quad \sin 2\chi = \frac{2\mathcal{E}_{x0}\mathcal{E}_{y0} \sin \delta}{\mathcal{E}_{x0}^2 + \mathcal{E}_{y0}^2}. \quad (2.73)$$

θ は x 軸と偏光楕円体の長軸がなす角度であり [図 2.19(b)], $-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2$ の範囲で定義される. 一方, χ については楕円の長軸と短軸の長さの比を表すパラメータであり, $-\pi/4 \leq \chi \leq \pi/4$ で定義される. また, χ の符号の正負は右回り・左回り楕円偏光に対応する. ここで, ストークスパラメータ S_0, S_1, S_2, S_3 を,

$$\begin{aligned} S_0 &= \mathcal{E}_{x0}^2 + \mathcal{E}_{y0}^2 = \mathcal{E}_x \mathcal{E}_x^* + \mathcal{E}_y \mathcal{E}_y^*, \quad S_1 = \mathcal{E}_{x0}^2 - \mathcal{E}_{y0}^2 = \mathcal{E}_x \mathcal{E}_x^* - \mathcal{E}_y \mathcal{E}_y^*, \\ S_2 &= 2\mathcal{E}_{x0}\mathcal{E}_{y0}\cos\delta = \mathcal{E}_x \mathcal{E}_y^* + \mathcal{E}_x^* \mathcal{E}_y, \quad S_3 = 2\mathcal{E}_{x0}\mathcal{E}_{y0}\sin\delta = i(\mathcal{E}_x \mathcal{E}_y^* - \mathcal{E}_x^* \mathcal{E}_y), \end{aligned} \quad (2.74)$$

と定義すると, 式 (2.73) の θ および χ はそれぞれ,

$$\tan 2\theta = \frac{S_2}{S_1}, \quad \sin 2\chi = \frac{S_3}{S_0}, \quad (2.75)$$

で与えられる. 式 (2.75) から, ストークスパラメータによって被測定光の偏光楕円体を一意に決定できることが分かる. なお, S_0 は x 偏光成分と y 偏光成分の強度の和であり, 光電場全体の強度を表すパラメータである. また, 式 (2.75) から, S_3 は楕円率角 χ を決定するパラメータであり, その符号が右回り・左回り楕円偏光を決定することが分かる. S_1 および S_2 に関しては, その比が長軸の角度 θ を決定する.

ストークスパラメータは準単色光についても定義することができる. 準単色光電場を, 式 (2.70) の振幅 $\mathcal{E}_{x0(y0)}$ と位相 $\delta_{x(y)}$ に時間依存性を取り込むことによって,

$$\mathcal{E}_x(t) = \mathcal{E}_{x0}(t) \exp[-i\omega t + \delta_x(t)], \quad \mathcal{E}_y(t) = \mathcal{E}_{y0}(t) \exp[-i\omega t + \delta_y(t)], \quad (2.76)$$

と記述したとき, 準単色光に対するストークスパラメータは,

$$\begin{aligned} S_0 &= \langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_x^* \rangle + \langle \mathcal{E}_y \mathcal{E}_y^* \rangle, \quad S_1 = \langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_x^* \rangle - \langle \mathcal{E}_y \mathcal{E}_y^* \rangle, \\ S_2 &= \langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_y^* \rangle + \langle \mathcal{E}_x^* \mathcal{E}_y \rangle, \quad S_3 = i(\langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_y^* \rangle - \langle \mathcal{E}_x^* \mathcal{E}_y \rangle), \end{aligned} \quad (2.77)$$

のように定義される [141]. ここで, $\langle \dots \rangle$ が時間平均は表しており, 次の演算に対応する.

$$\langle \mathcal{E}_i(t) \mathcal{E}_j^*(t) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \mathcal{E}_i(t) \mathcal{E}_j^*(t) dt \quad i, j = x, y. \quad (2.78)$$

なお単色光の場合 $[\mathcal{E}_{x0(y0)}(t) \rightarrow \mathcal{E}_{x0(y0)}, \delta_{x(y)}(t) \rightarrow \delta_{x(y)}]$ には, 式 (2.77) は式 (2.74) に帰着する.

ストークスパラメータを導入することで, 次式で与える偏光度 (Degree of polarization, DOP) $\mathcal{P}$ を定義できる.

$$\mathcal{P} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0}. \quad (2.79)$$

$\mathcal{P}$ は偏光状態の時間的一様性を示すパラメータであり, 直交偏光成分がそれぞれ異なる位相の時間発展 $[\delta_x(t), \delta_y(t)]$ を示す準単色光では $\mathcal{P} < 1$ である. 一方, 単色光の場合は, $\mathcal{E}_{x0}, \mathcal{E}_{y0}$ および δ に関わらず恒等的に 1 である.

2.5.2 径偏光パルス励起四光波混合分光に基づくスナップショット偏光計測

半導体のコヒーレント分光において光の偏光は重要なパラメータであり、これまでに励起光パルスの偏光状態の制御による励起子多体相互作用 [142, 143] や試料の歪測定 [109, 144] が行われてきた。コヒーレント分光における偏光渦の利点は、偏光特異点周りで偏光が連続的に変化することを利用した全方位直線偏光応答の同時測定である。この同時測定により測定時間を大幅に短縮できることで、レーザーの中・長期的揺らぎの影響を受けない測定が可能である。加えて、原理的に偏光回転素子の機械的制御を必要としないことから、高精度な偏光分解測定が実現できる。

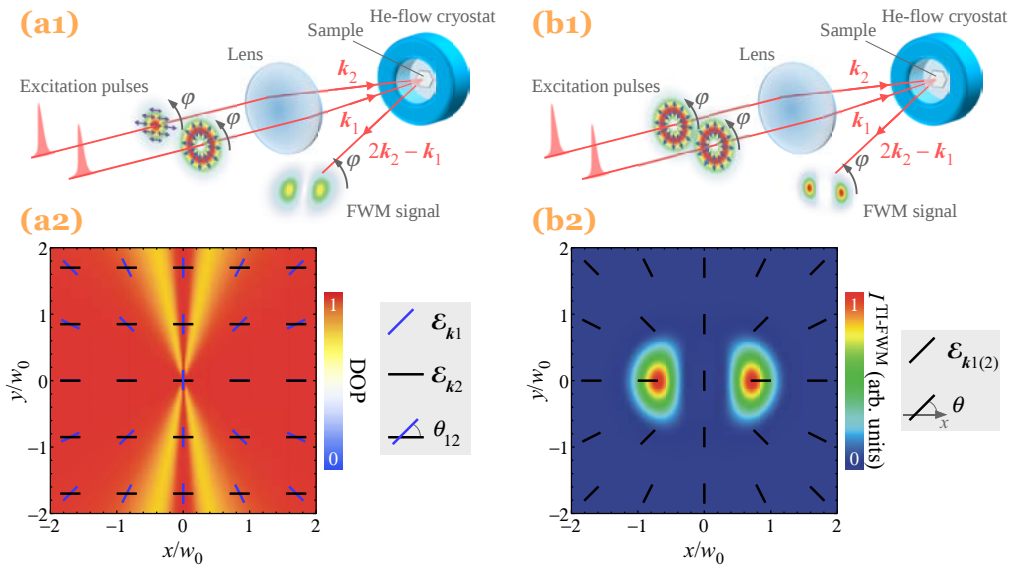


図 2.20 偏光渦パルスを用いた FWM 分光の概念図. (a1) 径偏光パルス励起 FWM 分光を用いた励起による緩和効果 (Excitation induced dephasing, EID) 測定の概念図. (a2) 計算によって得られた FWM 信号光断面における偏光度 (Degree of polarization, DOP) 分布. 参考のために, DOP の空間分布には励起光パルスの偏光楕円体を示した. なお, EID パラメータ $\eta = 4$ meV に設定した. (b1) 径偏光パルス励起 FWM 分光による異方的振動子強度測定の概念図. (b1) 信号光断面における TI-FWM 強度 ($I^{\text{TI-FWM}}$) 分布. ここで, 振動子強度比 $|\mu_x|^2 / |\mu_y|^2 = 2$ に設定した.

図 2.20(a1) に径偏光パルスを用いた FWM 分光の概念図を示す. 図では, $\mathbf{k}_1$ パルスとして径偏光パルス, $\mathbf{k}_2$ パルスとして均一直線偏光 (x 偏光) の最低次ガウスモードの光パルスを仮定した. 径偏光状態であることを反映し, $\mathbf{k}_1$ パルスの偏光角度 θ_1 は $\theta_1 = \varphi$ で与えられるように空間 (方位角 φ) に依存することに対して, x 偏光の $\mathbf{k}_2$ パルスの偏光角度 θ_2 は φ に関わらず 0 である. したがって, 励起パルス対の相対偏光角度 θ_{12} について $\theta_{12} = \theta_1 - \theta_2 = \varphi$ が得られる. つまり, 図 2.20(a1) の実験系で発生する FWM 信号光を方位角 φ について解析することは, 励起パルス対の相対偏光角度 θ_{12} 依存性を解析することと等価であることが分かる. このように, 径偏光パルスを用いた FWM 分光では θ_{12} 依存性を信号光の空間分布として一度に取得できることが特徴で

あり、この特徴によって測定時間が大幅に短縮されることによる高確度測定が期待できる。

FWM 信号光の相対偏光角度 θ_{12} 依存性は、励起子多体相互作用を明らかにするうえで重要である。本節では、多体相互作用として励起による緩和効果 (Excitation induced dephasing, EID) を例に取って説明する。EID は励起子の励起密度 n の増大に伴って位相緩和レート Γ が大きくなる効果であり、 Γ の n 依存性はテイラー展開の第 1 および第 2 項として次のように近似される [145]。

$$\Gamma(n) = \Gamma(n_0) + \frac{\partial \Gamma}{\partial n}(n - n_0). \quad (2.80)$$

ここで、 n_0 は初期状態における励起子密度である。EID を式 (2.80) として光学ブロッホ方程式に取り込んだとき、FWM 信号光 (三次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}$) の実時間 t およびパルス間時間差 τ 依存性として次の式が導かれる [142]。

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(3)}(t, \tau > 0) = & -\Theta(t - \tau) \frac{2iN |\mu|^4}{\hbar^3} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}^2 \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^* \exp[-i\Omega(t - 2\tau) - \Gamma(n)t] \\ & \times \left[\begin{pmatrix} \cos \theta_{12} \\ -\sin \theta_{12} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \cos \theta_{12} \\ 0 \end{pmatrix} \frac{\eta(t - \tau)}{\hbar} \right] \end{aligned} \quad (2.81)$$

なお、計算には磁気量子数の符号が異なる二つの伝導帯および価電子帯から形成される 4 準位系およびデルタ関数型の時間波形を持つ励起光パルス (電場の大きさ $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}$) を仮定した。 $|\mu|^4$ は振動子強度、 $\Omega = \omega_{\text{EX}} - \omega_p$ は伝導帯と価電子帯のエネルギー差 $\hbar\omega_{\text{EX}}$ と励起光パルスの中心エネルギー $\hbar\omega_p$ の差に対応する。また、 N は考慮する 4 準位系の数密度を表し、 $\eta = \hbar N (\partial \Gamma / \partial n)$ は EID パラメータと呼ばれる定数である。式 (2.81) から、 $\eta \neq 0$ の場合について、実時間 t に伴って FWM 信号光の偏光状態が変化することが確認できる。このような t に対する偏光状態の非一様性は、偏光度 (DOP) が 1 より小さいことを意味している。また、 $\theta_{12} = 0$ や $\theta = \pi/2$ では、 t に対する偏光変化が生じないことも確認できる。

図 2.20(a2) に式 (2.81) から計算した DOP の θ_{12} 依存性を示す。なお、径偏光パルスを用いた FWM 分光では $\theta_{12} = \varphi$ の関係があることから、図には DOP の θ_{12} 依存性を信号光の φ に対する分布として示した。図から、 $\varphi = 0$ と $\varphi = \pi/2$ の間で DOP が 1 より小さいことが確認できる。したがって、DOP の空間分布 (φ 依存性) から、EID パラメータ η を直ちに算定することができる。

また、 a 面サファイア基板上 GaN 薄膜のように励起子振動子強度 $|\mu|^2$ に異方性が存在する場合、その異方的振動子強度を径偏光パルスを用いて瞬時に測定することも可能である。図 2.20(b1) は径偏光パルス励起 FWM 分光による異方的振動子強度測定概念図である。今回は、 $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスとして共に径偏光パルスを仮定しており、このとき相対偏光角度 θ_{12} は励起領域全域で 0 である。しかしながら、試料の励起子自体が異方性を持つため、その異方性は FWM 信号光の φ に対する分布として反映される。 x 軸に平行な直線偏光に対する励起子振動子強度を $|\mu_x|^2$ 、 y 軸に平行な直線偏光に対する励起子振動子強度を $|\mu_y|^2$ とすると、径偏光パルス ($\theta = \varphi$) 励起にお

ける TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ は次のように与えられる [144].

$$I^{\text{TI-FWM}}(r, \varphi, \tau) \propto \left(|\mu_x|^2 \cos^2 \varphi + |\mu_y|^2 \sin^2 \varphi \right)^2 \times \left(|\mu_x|^4 \cos^2 \varphi + |\mu_x|^4 \sin^2 \varphi \right) \exp[-2\Gamma\tau] \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}^2(r, \varphi) \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^*(r, \varphi). \quad (2.82)$$

なお, 式 (2.82) の導出においてバンドの磁気量子数は考慮しておらず, 遷移行列要素 $\boldsymbol{\mu}_x = (\mu_x, 0)$ および $\boldsymbol{\mu}_y = (0, \mu_y)$ と基底準位が形成する 3 準位系を仮定した. また, 簡単のために異方的緩和効果を無視し, 位相緩和レートは Γ に統一した. $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}(r, \varphi)$ は極座標系における励起径偏光パルスの電場分布である.

図 2.20(b2) に式 (2.82) から計算した $I^{\text{TI-FWM}}$ の空間分布を示す. 図から, 方位角 φ に応じて $I^{\text{TI-FWM}}$ が変化していることが分かる. この φ 依存性から, 振動子強度比 $|\mu_x|^2 / |\mu_y|^2$ を求めることができる. a 面サファイア基板上 GaN 薄膜の場合, $|\mu_x|^2 / |\mu_y|^2$ から試料に印加されている一軸歪エネルギー δ_3 や交換相互作用定数 γ を決定することができる [109]. したがって, 径偏光パルス励起 FWM 分光によって物性値 δ_3 および γ を瞬時に、すなわち高確度に決定することができる.

次節では, 径偏光パルス励起 FWM 分光実現のための径偏光パルス生成法および偏光評価について検討する.

2.5.3 偏光渦パルスの発生法と偏光対称性の解析

分割 q -plate による径偏光パルスの生成

本節では, 径偏光パルス発生法について解説する. 径偏光モードを得る方法には, 径偏光モードを共振器中で発振する方法と共振器外で径偏光モードに変換する方法がある. 共振器中で径偏光モードを選択的に発振させることで高強度の径偏光モードが得られる [146, 147] 一方, その複雑な共振器構造により安定性や信頼性が損なわれる場合も多い. また, 一部パルス発振が確認されている [26, 27] もの, ほとんどの場合は CW 発振に制限されている. 一方, 共振器外で径偏光モードに変換する方法としては液晶 [148, 149] や光ファイバー [150, 151] を用いる方法が提案されているが, 超短パルスに対して適用可能な手法としては直交偏光のラゲール (エルミート) ガウスモードのコヒーレント結合 [152, 153] またはアクロマティックな SQP(q -plate)[49, 154] による変換が挙げられる. ただし, コヒーレント結合法に関しては, 結合する 2 つのパルス間の時間差を精密に制御する必要があり, 径偏光状態の光パルスを安定に得ることは難しい. 本研究では安定に径偏光パルスを得るために SQP を採用する.

q -plate によって軸対称偏光モードへの変換が実現されることは q -plate のジョーンズ行列を用いて簡単に示すことができる. 2.4.3 節で求めた式 (2.57) で与えられるジョーンズ行列 $\mathbf{M}$ を持つ q -plate に x 偏光の入射光を入射したときの透過光のジョーンズベクトル $\boldsymbol{\mathcal{E}}_{\text{qp}}$ は次のように計算できる.

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}_{\text{qp}}^{\text{SQP-out}} = \mathbf{M}(\varphi) \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos 2q\varphi \\ \sin 2q\varphi \end{pmatrix}. \quad (2.83)$$

$q = 1/2$ のとき式 (2.83) のジョーンズベクトルは径偏光モードに対応している. また, y 偏光の

入射光を入射した場合,

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{qp}}^{\text{SQP-out}} = \boldsymbol{M}(\varphi) \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin 2q\varphi \\ -\cos 2q\varphi \end{pmatrix}, \quad (2.84)$$

である. $q = 1/2$ のとき式 (2.84) のジョーンズベクトルは方位偏光モードに対応する. したがって, q -plate に対する入射光の偏光方向を制御することによって径偏光・方位偏光を制御可能であることが分かる.

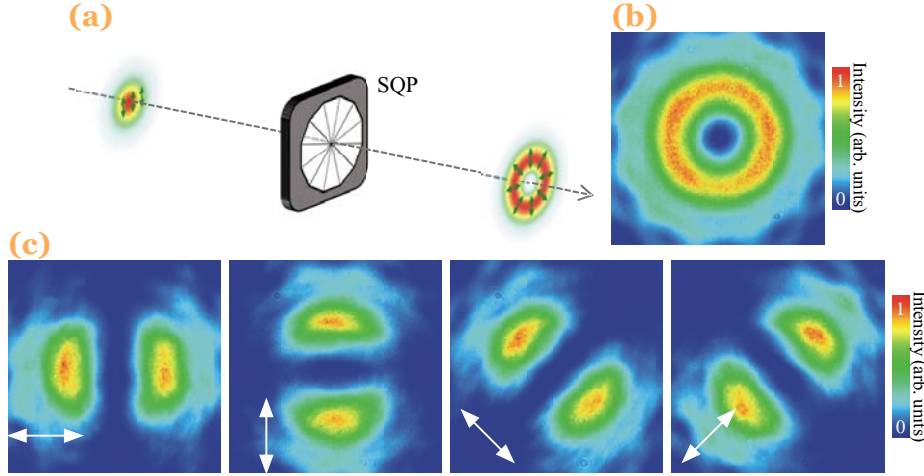


図 2.21 (a) SQP による径偏光モード変換の概念図. (b) SQP によって得られた径偏光モードの断面強度分布. (c) 偏光子透過後の断面強度分布. 矢印は偏光子の透過軸を示す.

本研究では, $q = 1/2$ の SQP に均一直線偏光の最低次ガウスモードを入射することで径偏光パルス生成する [図 2.21(a)]. 図 2.21(b) に SQP[フォトリックラティス社製, SWP-355] によって得られた径偏光モードの断面強度分布を示す. SQP の仕様については 4.2 節表 4.1 を参照されたい. なお, 光源はモード同期チタンサファイアレーザーの第二高調波である (中心エネルギー ~ 3.5 eV, パルス幅 ~ 190 ps). 図から, 得られた径偏光モードはリング状の強度分布を示しており, その中心には偏光特異点に対応する強度暗点が観測されていることが確認できる. 得られた径偏光モードの偏光状態を確認するために, 偏光子の透過光を観測した結果を図 2.21(c) に示す. 図から, 偏光子の透過軸の方向に応じて透過光の強度分布が変化していることが確認できる. また, 図に示した透過光強度分布の透過軸方向依存性は, 偏光特異点を中心として偏光方向が放射状に分布していることを示唆している. この放射状の偏光分布は径偏光モードに対応しており, したがって SQP によって径偏光モードが得られていると結論付けられる.

なお, 今回用いた SQP は方位角に関して 12 分割されており, この分割の影響は図 2.21(b) に示した強度分布における 12 回対称のパターンとして観測されている. このように強度分布には SQP による不連続な偏光変換の影響が見られるものの, 生成した径偏光パルスの方位角に対する偏光変化は次節で明らかとなるように非常に滑らかである. SQP によって方位角に関して滑らかな偏光変化が実現される理由については付録 A を参照されたい.

回転位相子法による空間分解ストークスパラメータ測定

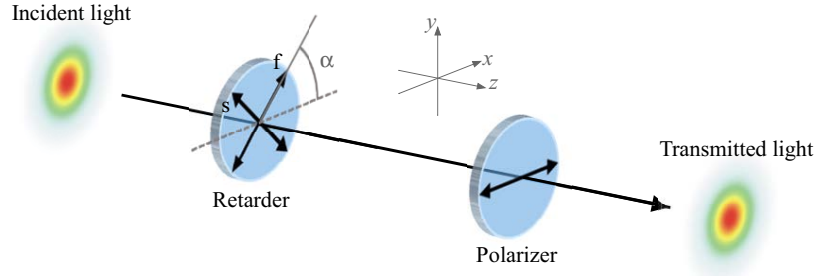


図 2.22 回転位相子法によるストークスパラメータの取得の概念図.

2.5.1 節で説明したように, ストークスパラメータの測定により, 被測定光の偏光楕円体 (偏光状態) を一意に決定することができる. 本節では, 位相子および偏光子を用いた回転位相子法によってストークスパラメータが得られることを示す.

図 2.22 に回転位相子法の概念図を示す. 図のように配置された位相子と偏光子に関して, 位相子のリタデーションおよび主軸の x からの角度をそれぞれ ϕ_0, α とし, 偏光子の透過軸が x 軸に平行であるとする. このとき, 準単色光電場,

$$\mathcal{E}_x(t) = \mathcal{E}_{x0}(t) \exp[-i\omega t + \delta_x(t)], \quad \mathcal{E}_y(t) = \mathcal{E}_{y0}(t) \exp[-i\omega t + \delta_y(t)], \quad (2.76)$$

を持つ入射光に対する透過光の電場 $\mathcal{E}'(t)$ および時間平均強度 $I'(\phi_0, \alpha) = \langle \mathcal{E}' \mathcal{E}'^* \rangle$ は次のように与えられる.

$$\begin{aligned} \mathcal{E}'(t) &= \left(\cos \frac{\phi_0}{2} - i \sin \frac{\phi_0}{2} \cos 2\alpha \right) \mathcal{E}_x(t) - i \sin \frac{\phi_0}{2} \sin 2\alpha \mathcal{E}_y(t), \\ I'(\phi_0, \alpha) &= \left(\cos^2 \frac{\phi_0}{2} + \sin^2 \frac{\phi_0}{2} \cos^2 2\alpha \right) \langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_x^* \rangle + \frac{1}{2} \left(i \sin \phi_0 \sin 2\alpha + \sin^2 \frac{\phi_0}{2} \sin 4\alpha \right) \langle \mathcal{E}_x \mathcal{E}_y^* \rangle \\ &\quad - \frac{1}{2} \left(i \sin \phi_0 \sin 2\alpha - \sin^2 \frac{\phi_0}{2} \sin 4\alpha \right) \langle \mathcal{E}_x^* \mathcal{E}_y \rangle + \sin^2 \frac{\phi_0}{2} \cos^2 2\alpha \langle \mathcal{E}_y \mathcal{E}_y^* \rangle. \end{aligned} \quad (2.85)$$

式 (2.85) からストークスパラメータと透過光の時間平均強度の間には

$$\begin{aligned} S_0 &= I'(\pi, 0) + I'\left(\pi, \frac{\pi}{2}\right), \quad S_1 = I'(\pi, 0) - I'\left(\pi, \frac{\pi}{2}\right), \\ S_2 &= I'\left(\pi, \frac{\pi}{8}\right) - I'\left(\pi, -\frac{\pi}{8}\right), \quad S_3 = I'\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}\right) - I'\left(\frac{\pi}{2}, -\frac{\pi}{4}\right), \end{aligned} \quad (2.86)$$

の関係があることを示すことができる. 式 (2.86) は, 我々が容易に取得可能な時間平均強度からストークスパラメータを決定可能であることを示している.

径偏光モードのように偏光の空間依存性が重要な光を扱う場合, 回転位相子法における検出器として charge coupled devise camera (CCD カメラ) 等の撮像素子が用いられる [155]. 撮像素子を用いることで, ストークスパラメータを空間分解で得ることができ, この空間分解ストーク

スパラメータによって偏光の空間特性を解析可能である．図 2.23(a) および (b) に SQP によって径偏光モードに変換された光パルスの断面強度分布と，CCD カメラを用いた回転位相子法によって取得した空間分解ストークスパラメータ $S_0(x, y)$, $S_1(x, y)$, $S_2(x, y)$, $S_3(x, y)$ を示す．図 2.23(b) から $S_0(x, y)$ はリング型の分布を示していることが確認でき，この $S_0(x, y)$ は位相子および偏光子を介さずに取得した光パルスの強度分布 [図 2.23(a)] にほぼ一致する． $S_0(x, y)$ は光強度そのものを表すパラメータであることから，この一致は妥当である． $S_3(x, y)$ については，パルス断面全域に渡って 0 に近い値であることが確認できる．理想的な径偏光モードの断面には直線偏光のみが存在し，したがって断面全域で楕円率角 $\chi = \sin^{-1}(S_3/S_0)/2 = 0$ であることから，この結果についても妥当であると言える． S_1 および S_2 については $\theta = \tan^{-1}(S_2/S_1)/2$ であることから，偏光楕円体の長軸の傾き θ を決定するパラメータであり，その空間分布は偏光角度の空間依存性 $\theta(x, y)$ を与える．図 2.23(c) に空間分解ストークスパラメータによって得られた偏光楕円体の空間分布を示す．図から $\chi(x, y) \sim 0$ を反映して，各偏光楕円体の短軸は長軸に比べて十分に小さいことが確認できる．さらに偏光楕円体の長軸は動径方向にほぼ平行であることが確認でき，したがって理想的な径偏光モードにおける $\theta(x, y) = \varphi$ の関係が実現されていることが分かる．以上のように，CCD カメラを用いた回転位相子法によって被測定光の偏光分布を解析することが可能である．

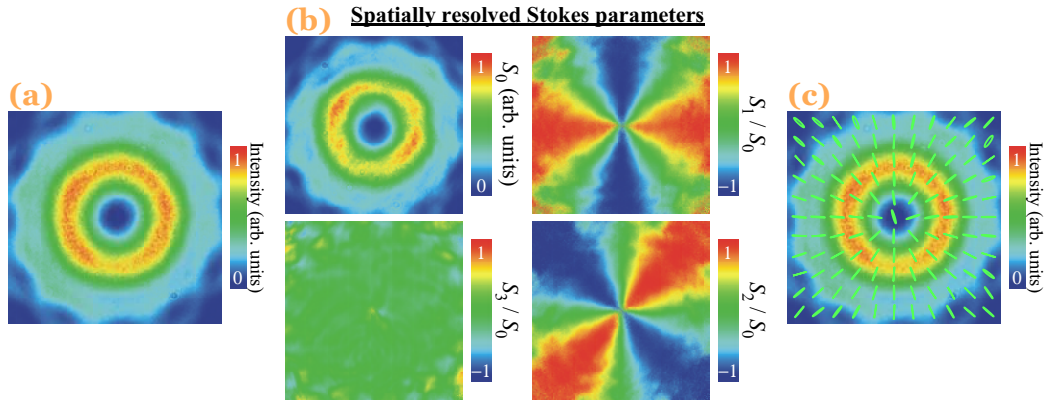


図 2.23 (a) 被測定光の断面強度分布．(b) CCD カメラを用いた回転位相子法によって得られた空間分解ストークスパラメータ．(c) 空間分解ストークスパラメータによって算出された偏光楕円体の空間分布．

第 3 章

光渦パルスを用いたコヒーレント分光

3.1 本章の目的

本章の目的は光渦パルス励起四光波混合 (Four-wave mixing, FWM) 分光によって、半導体励起子系へのトポロジカル位相のコヒーレント変換および大域的空間コヒーレンスの評価法を確立することである。

光渦は $\exp(il\varphi)$ で与えられる位相項を持つ光である。ここで l はトポロジカルチャージに対応する整数値、 φ は光渦断面における方位角を表しており、したがって光渦は φ に対して位相勾配を示すトポロジカル位相を有する。超短パルス化した光渦を半導体試料へと照射したとき、誘起される励起子分極は位相緩和時間内で光渦の大域的なトポロジカル位相を反映すると考えられる。これは励起子分極へのトポロジカル位相のコヒーレント変換に対応している。FWM 分光で観測される信号光は励起子分極の位相情報を直接反映するため、信号光の空間位相情報を取得することによって上記コヒーレント変換を評価できる。また、このとき FWM 分光における励起パルス対のパルス間時間差を掃引することにより、トポロジカル位相が付与された大域的な励起子分極の時空間ダイナミクスを観測することが可能である。なお、トポロジカル位相を光の軌道角運動量 (Orbital angular momentum, OAM) と対応付けたとき、このコヒーレント変換は重心運動に公転運動が加わった励起子を生成することに対応すると考えられる。このとき、運動量緩和に対応する励起子の散乱過程は、励起子重心運動における OAM 緩和を生じる。したがって、光渦パルス励起 FWM 分光により、半導体物理学に励起子 OAM 緩和という新しい物性評価軸を導入することができる。また、固体電子系への OAM のコヒーレント変換は応用上も非常に重要である。OAM は光情報通信の情報キャリアとして注目されており、これの実用化に向けた情報処理のための OAM の自在な制御が模索されている [156]。現在の情報通信の拡張として考えるならば、半導体は有力な候補であり、本研究において励起子系の OAM 特性や制御性を明らかにすることにより、未だ実現されていない OAM 情報処理の足掛かりとなり得る。

空間位相情報を取得するため、本章では FWM 信号光の OAM 分解測定を行う。OAM 分解測定は被測定光を量子化された OAM の値 (トポロジカルチャージ l に対応) に応じて分離測定する手法であり、このとき得られる OAM スペクトルは被測定光の空間位相情報を反映する。本章では、OAM 分解測定を FWM 分光に組み込む (3.2 節) ことで、コヒーレント変換の定量評価を

(HPK) 製, X8267] に z 方向に伝播する光渦 $\exp(il_{\text{Hol}}\varphi)\exp(ikz)$ と z 軸から微小角 β だけ傾いた平面波 $\exp(ik \cos \beta z - ik \sin \beta x)$ が $z = 0$ で形成する干渉パターン (ホログラム回折格子) を描画しており, このホログラム回折格子に光源から出射される最低次ガウスモードを入射することで, 一次回折光として $\exp(il_{\text{Hol}}\varphi)$ のトポロジカル位相を持つ光渦を得ることができる (2.4.3 節参照). なお, 入射光パルスの偏光方向を SLM における液晶の配向方向と一致させることで回折効率を最大にしており, このときの最大回折効率はおおよそ 10 % である. 本研究では, (1) または (2) のいずれかの方法によって発生した $\exp(il_1\varphi)$ および $\exp(il_2\varphi)$ のトポロジカル位相を持つ光渦パルス対を FWM 分光における $\mathbf{k}_1$ パルスと $\mathbf{k}_2$ パルスとして用いる. なお, これら光渦パルス対の間の遅延時間 (τ) は 片方の光路に設置した光学ステージによって制御した.

光渦パルス対は焦点距離 200 mm のレンズを用いて液体ヘリウムクライオスタット中で温度 ~ 10 K に保持された試料上に集光照射される. なお, τ は $\mathbf{k}_1$ パルスが $\mathbf{k}_2$ パルスより先に試料に入射する場合を正としており, $\tau > 0$ のとき $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に強い FWM 信号光が観測される. 本章では, 試料としてフリースタンディング GaN (膜厚 70 μm) または c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm) を用いた. 試料上での $\mathbf{k}_1$ パルスおよび $\mathbf{k}_2$ パルスの集光スポット径は ~ 100 μm と見積もられており, 平均パワーについては ~ 1.0 mW 程度に制限している. なお, 光渦パルスの中心エネルギー ~ 3.5 eV およびスペクトル幅 ~ 10 meV は, 試料の A 励起子 (X_A) および B 励起子 (X_B) を同時共鳴励起可能である.

FWM 信号光に対する OAM 分解測定は, SLM (SLM2, HPK 製, X10468) に描画したホログラム回折格子と空間フィルターによって実現した. SLM2 に l_{Hol} で特徴付けられるホログラム回折格子を描画するとき, 一次回折光のビーム中心に配置された空間フィルターを透過できる信号光の OAM(l) 成分は $l = -l_{\text{Hol}}$ に限定される. したがって, l_{Hol} を制御しながら透過光のスペクトルを検出することによって OAM 分解スペクトルを測定することができる (2.4.3 節参照). スペクトル分解 FWM (SR-FWM) 強度の測定は, 分光器 ($f = 300$ mm, grating 3600 gr/mm) とペルチェ冷却型 Si-CCD によって実現した. 上記 OAM 分解分光測定に加えて, 参照光パルスとの干渉パターンの観測による信号光空間位相の評価も行った. 参照光パルスには同光源から出射される光渦変換前の最低次ガウスモードを用いており, この参照光パルスと信号光の時間オーバーラップは参照光パルスの光路に挿入した光学ステージによって制御した.

本研究で用いた SLM および SQP の仕様を表 3.1 および 3.2 に示す. SLM に関して, ピクセルサイズ ~ 20 μm およびピクセル間のギャップ ~ 0.2 μm は, SLM 入射時の励起光パルスのビーム径 ~ 1 mm に比べて十分小さく, したがってホログラム回折格子を反映した滑らかな位相変調が実現されていると考えられる. また, ホログラム回折格子の格子間隔はピクセルサイズに比べて十分大きく設定しており (典型的に 5gr/mm 程度), したがってピクセルの周期構造に起因する回折光とホログラム回折格子の 1 次回折光の方向は大きく異なると考えられる. そのため, ピクセルの周期構造がもたらす回折光の影響は無視できる. SQP については, 自己クローニングフォトリソニック結晶によって作製された製品を用いており, 波長以下のスケールでの構造制御によって中心および境界の影響が非常に小さくなるように設計されている. 加えて SQP の分割数は 12 であることから, 今回用いた SQP によって高品質の光渦パルスの生成が期待できる (付録 A 参照).

表 3.1 SLM の仕様

	SLM1	SLM2
モデル	X8267(HPK)	X10468(HPK)
設計波長	355 nm	355 nm
画素ピッチ	26 μm	20 μm
画素数	590000	792 $\times$ 600
エリアサイズ	20 mm $\times$ 20 mm	16 mm $\times$ 12 mm

表 3.2 SQP の仕様

	SQP
モデル	SWP-355(PL)
設計波長 (λ)	355 nm
分割数	12
リタデーション	$\lambda/2 \pm \lambda/40$
透過率	95 %

3.3 GaN 励起子に対するトポロジカル位相のコヒーレント変換・ダイナミクスの評価

本節では、フリースタンディング GaN に対して行った FWM 信号光空間位相の観測結果を示し、GaN 励起子分極に対するトポロジカル位相のコヒーレント変換およびその大域的空間コヒーレンスについて議論する。励起光渦パルスのトポロジカル位相が励起子分極に完全にコヒーレント変換される場合、試料にはそのトポロジカル位相を反映したフォーク型の分極回折格子が形成され、その結果トポロジカルチャージ $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ で特徴付けられる FWM 信号光が発生する(2.4.2 節参照)。本節では、まず直観的理解のために行った干渉パターン測定によって、コヒーレント変換を示唆する $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ の信号光が発生することを示す。その後、OAM 分解分光によってコヒーレント変換について定量的解析を行うとともに、OAM 分解分光によって初めて実現できる時間発展 (遅延時間 $\tau \neq 0$) の観測を試みる。OAM 分解 FWM 分光は励起子コヒーレンスを時空間両面から解析する手法に対応しており、したがって OAM 分解 FWM 分光によって大域的空間コヒーレンスの評価が可能になる。OAM 分解分光による観測の結果、位相緩和時間 T_2 に対応する $\tau \sim 2$ ps において $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ の関係が保持されることが明らかとなった。この結果は、光渦パルスによって誘起された励起子分極の大域的空間コヒーレンスが T_2 時間内で十分に保持されることを意味している。

3.3.1 干渉パターン測定に基づくトポロジカル位相のコヒーレント変換の評価

本節では、被測定光の空間位相について直観的評価を行うことができる干渉パターン測定を FWM 信号光に適用した結果について示す。参照光パルスとの干渉パターンに ℓ 又のフォーク型のパターンが検出されるとき、FWM 信号光はトポロジカルチャージ ℓ で特徴付けられるトポロジカル位相を有することを意味している。したがって、フォーク型干渉パターンの又の本数を数えることによって、信号光のトポロジカルチャージ ℓ を同定可能である。さらに、観測された干渉パターンから FWM 信号光の空間位相そのものを算出することも可能である。この方法は光電場

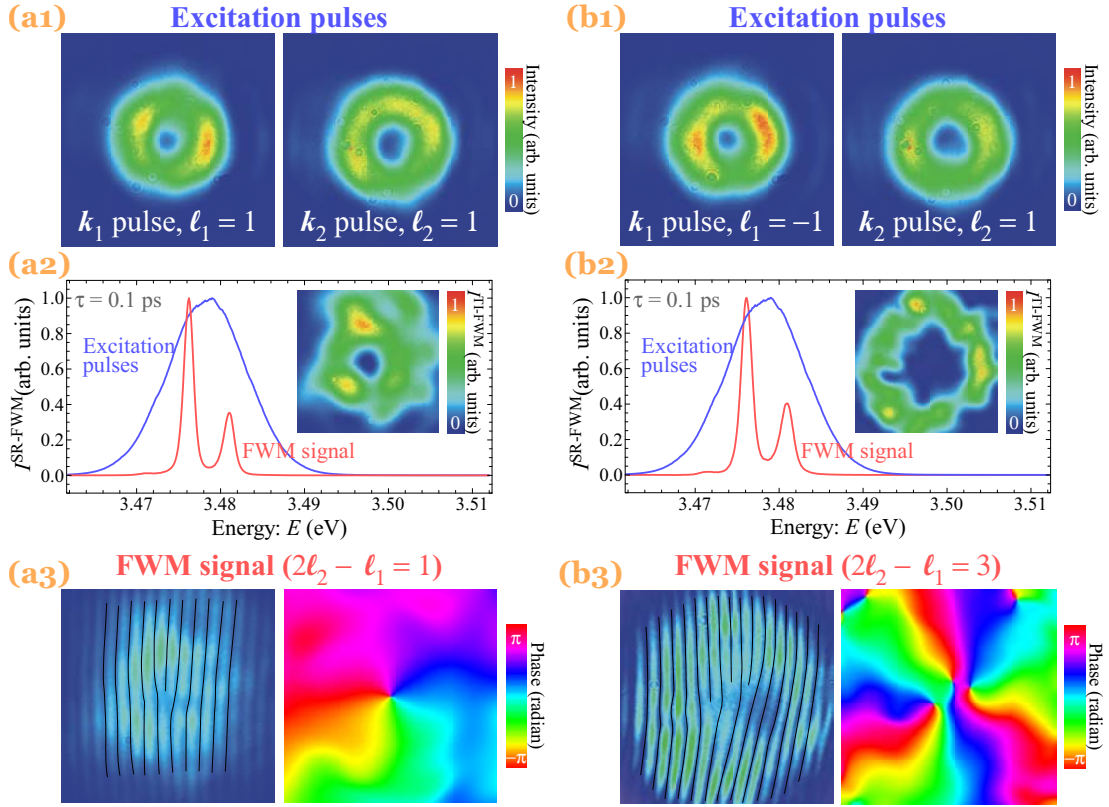


図 3.2 (a1) $l_1 = 1, l_2 = 1$ の場合における k_1 パルスおよび k_2 の断面強度分布. なお, 強度は最大値によって規格化している. (a2) SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$. なお, 参考のために励起パルスのスペクトルもあわせて示しており, $I^{\text{SR-FWM}}$ と励起パルスのスペクトルはともに最大値によって規格化している. 内挿図は信号光空間像であり, 強度 [時間積分 FWM(TI-FWM) 強度 $I^{\text{TI-FWM}}(\tau)$ の空間分布に対応] は最大値によって規格化している. (a3) FWM 信号光と参照光パルスとの干渉パターンおよび干渉パターンの二次元フーリエ変換に基づく光電場再生によって得られた FWM 信号光の断面位相分布. なお, 干渉縞のビジビリティが低い (0.4 程度) ため, 干渉縞の暗線に対応する部分にガイドとして黒の実線を示した. (b1-3) $l_1 = -1, l_2 = 1$ の場合における k_1 パルスおよび k_2 の断面強度分布, $I^{\text{SR-FWM}}$ および励起光パルスのスペクトル, 干渉パターンおよび光電場再生によって得られた FWM 信号光の断面位相分布.

再生法と呼ばれ, 干渉パターンに対して二次元フーリエ変換を施し, その AC 成分に対して逆フーリエ変換を行うことによって被測定光の光電場情報を取得する方法である [129]. このとき被測定光の空間位相分布は, 取得した光電場の偏角として算出される.

図 3.2(a1) に $l_1 = 1, l_2 = 1$ の k_1, k_2 パルスの断面強度分布を示す. k_1 および k_2 パルスは, それぞれ SQP を用いて光渦に変換しており, $l_{1(2)} \neq 0$ を反映したリング型の強度分布が確認できる. なお, 励起パルス対の偏光は平行直線偏光に設定されている. これら光渦パルス対について遅延時間 $\tau = 0.1$ ps に設定し, 試料として用いたフリースタンディング GaN に照射した. 図 3.2(a2) に, 観測された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ を示す. 図から $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ には $E_A = 3.475$ eV および $E_B = 3.480$ eV のピークが確認され, これら 2 つのピークは X_A および

X_B 共鳴に対応する．なお、試料に用いたフリースタンディング GaN における X_A と X_B の共鳴エネルギー差 $E_B - E_A \sim 5$ meV であり、励起パルスのスペクトル幅 ~ 10 meV に比べて小さいため、励起パルスの中心エネルギーの調整によって X_A または X_B を単独で励起することは困難である．上記の理由から、励起パルスの中心エネルギーを X_A および X_B の共鳴エネルギーの中間付近に調整することで、信号光強度が最大にして観測を行った．図 3.2(a2) 内挿図は $\tau = 0.1$ ps で観測された信号光の空間像であり、信号光のトポロジカルチャージ ℓ に関して、 $\ell \neq 0$ を示唆する位相特異点 (強度暗点) が観測されていることが確認できる．

図 3.2(a3) に参照光パルスと干渉させたときの干渉パターン、および干渉パターンの二次元フーリエ変換によって得られた光電場の偏角として算出した FWM 信号光の断面位相分布を示す．なお、干渉パターンの測定に際して、参照光パルスと FWM 信号光の時間オーバーラップは干渉縞のビジビリティ (コントラスト) が最大になるように設定した．干渉パターンには 1 叉のフォーク型のパターンが検出されており、この結果は FWM 信号光が $\ell = 1$ のトポロジカル位相を有することを示唆している．実際に、光電場再生によって得られた断面位相分布から、位相特異点を座標原点とする極座標における方位角 φ に対して位相変化は正の勾配を持ち、位相特異点周りで一周したときの位相変化が 2π であることが確認できる．以上の観測結果から、FWM 信号光は $\ell = 1$ のトポロジカル位相を持つと結論付けられる． $\ell = 1 = 2\ell_2 - \ell_1$ であることから、この結果は励起子分極に励起光渦パルス対のトポロジカル位相が反映されている、すなわちトポロジカル位相のコヒーレント変換が実現可能であることを示唆している．

図 3.2(a3) から、 $\ell_1 = 1$ および $\ell_2 = 1$ の励起光渦パルスを用いて $\ell = 1$ の FWM 信号光が発生することを確認した．しかし、 $\ell = 1$ は $2\ell_2 - \ell_1$ に一致するものの、 $\ell_{1(2)}$ そのものとも一致する．トポロジカル位相のコヒーレント変換が実現可能であることをより明確に示すために、次に $\ell_1 = 1 \rightarrow -1$ に変化させた $\mathbf{k}_1$ パルスを用いた場合について干渉パターンの観測を行った．なお、 $\ell = 1 \rightarrow -1$ はトポロジカル位相のカイラリティ変化に対応しており、このトポロジカル位相のカイラリティは SQP を挟む QWP の主軸方向によって制御可能である (2.4.3 節参照)． $\ell_1 = -1$, $\ell_2 = 1$ の励起光パルスを用いると $2\ell_2 - \ell_1 = 3$ であり、したがってコヒーレント変換が実現されると、励起光渦パルスとは異なる $\ell = 3$ の FWM 信号光が発生することが期待される．

図 3.2(b1) に $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスの断面強度分布を示す．ここで、 $\ell_1 = 1$ と $\ell_1 = -1$ の光渦は全く同じ強度分布を持つため、実際には ℓ_1 の符号が異なるものの、図 3.2(a1) および (b1) の励起光渦パルスの空間像の間にほとんど違いは無い． $\ell_1 = -1$, $\ell_2 = 1$ の励起光渦パルスを用いて X_A と X_B の同時励起を行い、FWM 信号光の空間像を観測した結果を図 3.2(b2) に示す．空間像には $\ell \neq 0$ を示唆するリング型の強度分布が観測されていることが分かる．この FWM 信号光に対して干渉パターンの観測と光電場再生を行った結果を図 3.2(b3) に示す．再生した断面位相分布から、信号光中心近傍において位相特異点が 3 つに分裂しているものの、半径が十分大きい閉曲線上における合計の位相変化は 6π であることが確認された．この結果は、FWM 信号光が $\ell = 3$ のトポロジカル位相を有することを意味している． $\ell = 3$ は $2\ell_2 - \ell_1 = 3$ に一致することから、励起子分極に対するトポロジカル位相のコヒーレント変換が実現可能であると結論付けられる．

なお、位相特異点が 3 つに分裂していることは、信号光に $\ell \neq 3$ の成分が含まれていることを意

味している。今回の場合、この $\ell \neq 3$ の成分は原理的なコヒーレント変換の不完全性を示唆しているわけではなく、励起光パルスが理想的な光渦状態ではないことに起因していることが分かっている。励起光パルスが理想的な光渦状態ではない場合、FWM 過程においてコヒーレントな摂動光を生じる。光渦 $\exp(il\varphi)$ にコヒーレントな微小摂動光が存在するとき、その位相特異点は直ちに $|\ell|$ 個の位相特異点に分裂する。このとき、分裂したそれぞれの位相特異点のトポロジカルチャージは 1 であり、これについては図 3.2(b3) の干渉パターンにおいて 1 叉のフォーク構造が 3 つ検出されていることから確認できる。励起パルスの不完全性 (特に非対称性) がもたらすコヒーレントな摂動光の発生メカニズムについては 4.4 節を参照されたい。なお、励起光渦パルスの不完全性に由来していることから分かるように、この摂動光の影響は定常的であり、したがってダイナミクスの解析においてこの摂動光の影響はほとんど無いと言える。

3.3.2 軌道角運動量分解分光に基づくトポロジカル位相のコヒーレント変換および大域的空間コヒーレンス評価

3.3.1 節では、FWM 信号光の干渉パターン観測を行い、FWM 信号光がコヒーレント変換の実現を示唆する $2\ell_2 - \ell_1$ のトポロジカル位相を有することを確認した。しかし、フリースタンディング GaN では X_A または X_B を単独励起できず、したがって FWM 信号光は X_A および X_B の両方のエネルギー (周波数) 成分を含む。これは干渉パターンに 2 周波数成分が含まれていることを意味しており、その意味で取得した空間位相分布の解釈は曖昧である。したがってコヒーレント変換について正確に評価するためには、トポロジカル位相の評価に加えて分光測定を行うことが必要である。本節では、トポロジカル位相の評価と分光測定が同時に実現できる OAM 分解分光を行う。この方法は、SLM に描画したホログラム回折格子および空間フィルターによって選択された被測定光における所望の OAM (つまりトポロジカルチャージ ℓ) 成分についてのスペクトル分解測定を実現する手法である。これにより、信号光スペクトル中の X_A および X_B のエネルギー成分に関して独立に OAM の評価を行うことができる。さらに、OAM 分解分光を採用することによって干渉パターンのイメージングに必要な強度を信号光に要求する必要性なくなるため、遅延時間に関して $\tau \sim 0$ に制限されずに測定を行うことが可能である。本節では、OAM 分解分光によってコヒーレント変換の定量評価を行うとともに、OAM 分解スペクトルの τ 依存性から大域的空間コヒーレンスの時間発展について評価を行う。

コヒーレント変換の定量評価と OAM スペクトルダイナミクス

図 3.3(a) に励起に用いた光渦パルス対 ($\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルス) の空間像を示す。今回用いた $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスはホログラム回折格子の 2 次および 1 次回折光であり、それぞれ $\ell_1 = -2$ と $\ell_2 = 1$ の光渦パルスである。ここで、 ℓ_1 と ℓ_2 の符号が異なるのは、 $\mathbf{k}_2$ パルスが試料に到達するまでに偶数回ミラーで反射されることに対して、 $\mathbf{k}_1$ パルスは奇数回反射されることで OAM の符号 (トポロジカル位相のカイラリティに対応) を反転しているためである。空間像には、 $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスのそれぞれについて $\ell_{1(2)} \neq 0$ を反映したリング型の強度分布が確認できる。なお、 $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスの偏光は平行直線偏光に設定した。図 3.3(b) に観測した SR-FWM

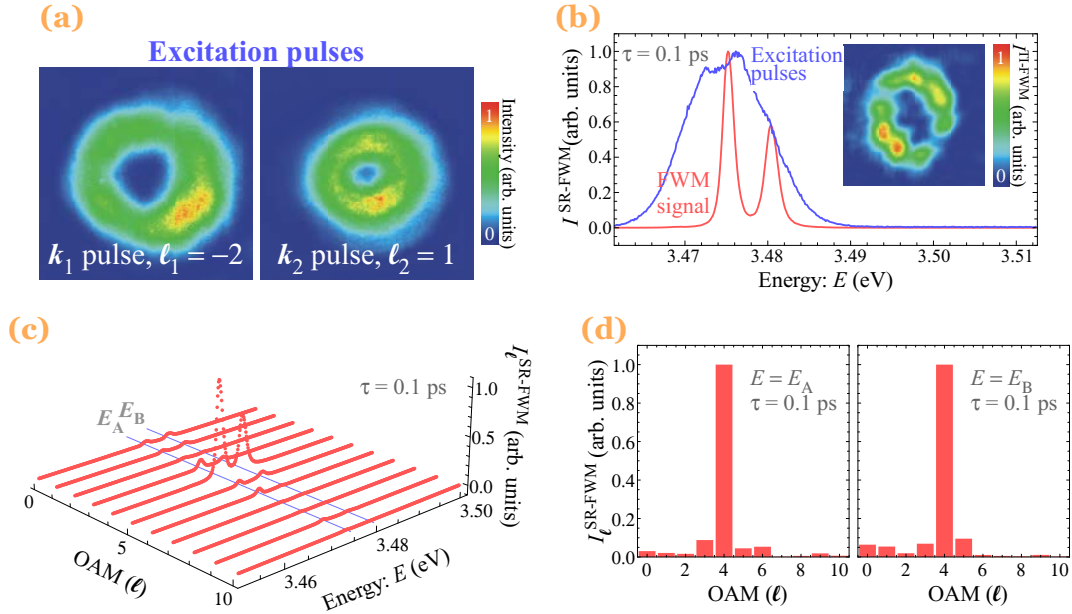


図 3.3 (a) k_1 パルスおよび k_2 パルスの強度分布. k_1 パルスおよび k_2 パルスのそれぞれについて、強度は最大強度によって規格化した. (b) フリースタンディング GaN に対して観測された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$. 遅延時間 τ は 0.1 ps に設定した. 参考のため、励起光渦パルスのスペクトルもあわせて示した. また、内挿図は信号光空間像 (TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ の空間分布に対応) である. (c) OAM 分解分光によって得られた OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$. (d) $E = E_A$ および $E = E_B$ で観測された FWM 信号光の OAM スペクトル. 縦軸は最大の強度を持つ $\ell = 4$ 成分の強度で規格化した.

強度 $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ を示す. 試料には、3.3.1 節と同様に膜厚 $70 \mu\text{m}$ のフリースタンディング GaN を用いており、信号光のスペクトルは遅延時間 $\tau = 0.1$ ps の条件下で測定を行った. $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ には $E_A = 3.475$ eV と $E_B = 3.480$ eV にピークが観測されており、それぞれ GaN 試料における X_A および X_B の共鳴エネルギーに対応する. また、内挿図に示した FWM 信号光の空間像には $\ell \neq 0$ を示唆する強度暗点 (位相特異点) が確認できる.

この信号光に対する OAM 分解分光によって得られた OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ を図 3.3(c) に示す. なお、今回は FWM 信号光 OAM に関して $0 \leq \ell \leq 10$ を満たす OAM 成分について評価を行った. 図から、信号光が $\ell = 4$ について大きな強度を示すことが確認できる. 図 3.3(c) に示した OAM 分解スペクトルについて、 X_A および X_B に対応するエネルギー成分に着目した OAM 成分の分布を図 3.3(d) に示す. これを言い換えると、信号光の $E = E_A$ および $E = E_B$ のエネルギー成分に関する ℓ の分布であり、以降は OAM スペクトルと呼ぶ. OAM スペクトルから、 X_A および X_B について $\ell = 4$ にほぼ単一のピークが観測されており、したがって $\ell = 4$ が支配的な成分であることが分かる. 今回、励起光渦パルスの OAM を $\ell_1 = -2$ および $\ell_1 = 1$ に設定していることから、 $\ell = 4$ は $2\ell_2 - \ell_1$ に一致する. $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ の関係が満たされることは、3.3.1 節の光電場再生の結果と対応する. さらに重要なことは、OAM 分解分光によってコヒーレント OAM 変換を示す $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ を定量的に示すことができたこと

である。

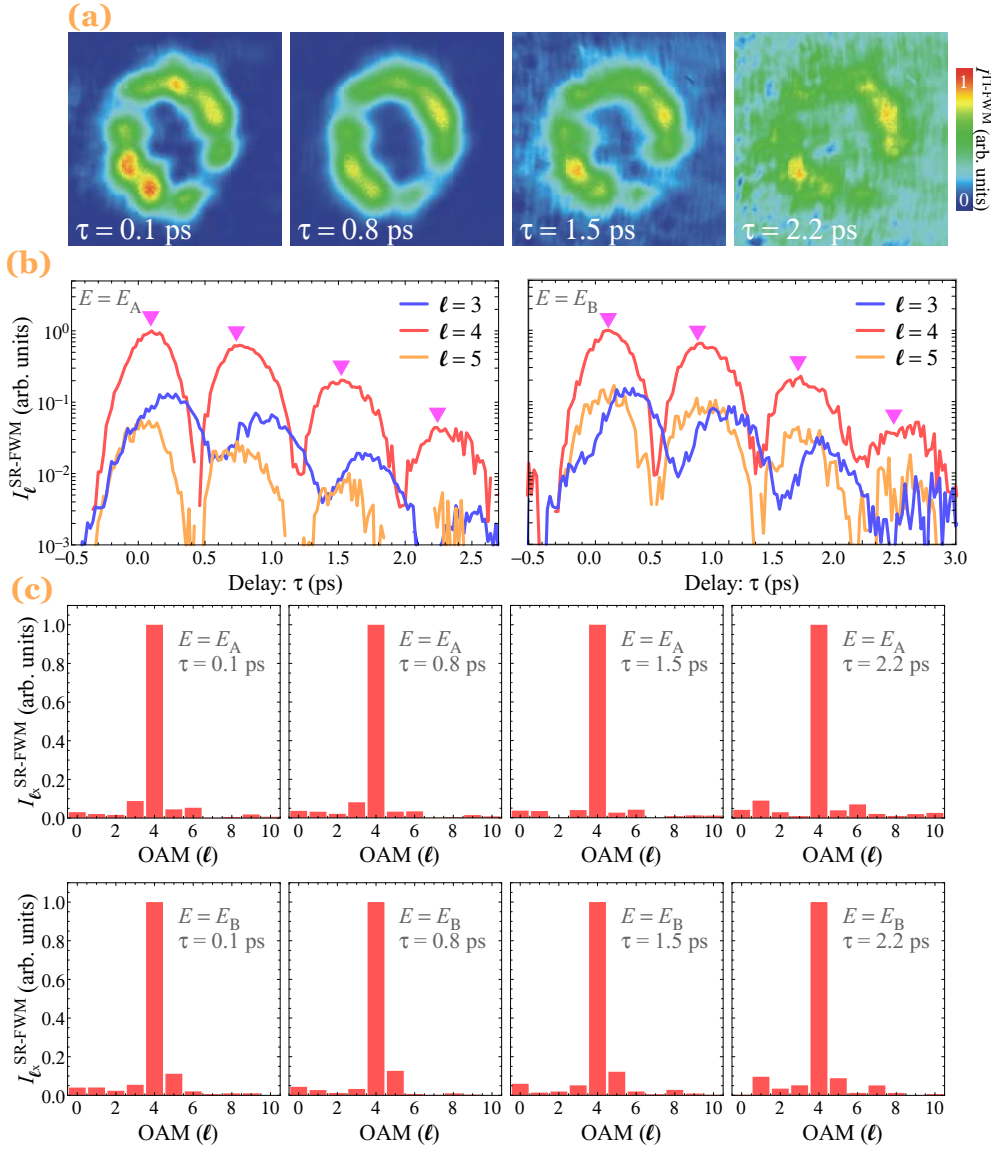


図 3.4 (a)FWM 信号光の空間像の遅延時間 τ 依存性. 空間像は $\tau = 0.1, 0.8, 1.5, 2.2$ ps で観測した. また, それぞれの図において強度は最大値によって規格化した. (b)OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性. $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ は $E = E_A$ および $E = E_B$ についてプロットした. また, OAM については $\ell = 3, 4, 5$ 成分について示した. なお, $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ は最大値によって規格化されている. (c) $E = E_A$ および $E = E_B$ について取得した OAM スペクトルの τ 依存性. OAM スペクトルは (b) の三角の位置に対応する $\tau = 0.1, 0.8, 1.5, 2.2$ ps において観測した. 縦軸に対応する $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ は最大値によって規格化した.

OAM 分解分光では遅延時間 τ を掃引することによって時間発展を観測可能である. 図 3.4(a) は FWM 信号光の空間像の τ 依存性であり, $\tau = 0.1, 0.8, 1.5, 2.2$ ps について観測を行った. 図から, FWM 信号光のリング強度分布が時間発展において保持されていることが分かる. この結果は, 励起子分極においてトポロジカル位相が保持されていることを示唆している. 図 3.4(b)

に OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性を示す. $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ は $\ell = 3, 4, 5$ 成分についてプロットしており, $E = E_A$ および $E = E_B$ のそれぞれについて示した. 図には, X_A と X_B 同時励起を反映した量子ビートが観測されている. $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ の τ 依存性について, 光学ブロッホ方程式から求められる量子ビートの理論式 (2.3.4 節参照) によるフィッティングを行った結果, 量子ビートの周期 $T_{\text{QB}} = 0.8$ ps および位相緩和時間 $T_2 = 1.9$ ps を得た. $T_{\text{QB}} = 0.8$ ps から見積もられる X_A と X_B 共鳴エネルギー差 $E_B - E_A = 5.2$ meV であり, 図 3.3(b) に示した信号光スペクトルで測定された共鳴エネルギー差 5.2 meV に一致する. また, 位相緩和時間 $T_2 = 1.9$ ps から見積もられるスペクトル幅 1.4 meV についても, 図 3.3(b) に示した X_A 共鳴の半値全幅 1.2 meV とほぼ一致することを確認した.

図 3.4(c) に $E = E_A$ および $E = E_B$ で観測された OAM スペクトルの τ 依存性を示す. なお, 図には量子ビートの第 1-4 ピークに対応する $\tau = 0.1, 0.8, 1.5, 2.2$ ps における OAM スペクトルを示した. 図から, $2\ell_2 - \ell_1$ に対応する $\ell = 4$ のピークが励起子量子ビートの第 4 ピーク $\tau = 2.2$ ps まで保持されていることが分かる. この結果は, 励起子分極の大域的空間コヒーレンスが T_2 時間内で十分に保持されていることを明確に示している.

OAM 集中度の導入による大域的空間デコヒーレンス評価

図 3.4(c) から, FWM 信号光において $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ のピークが T_2 時間内で十分に保持されていることが確認できた. しかしながら, OAM スペクトルにおいて $\ell = 2\ell_2 - \ell_1$ のピークは完全に単一ではなく, 有限の強度を持つ $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ 成分が検出されている. $\tau \sim 0$ ps におけるこれらの広がり成分は 3.2 節でも示唆された励起光パルスの非対称性および非等方性を反映した成分であろう. 一方, 励起子重心運動のコヒーレンス、すなわち励起子分極の大域的空間コヒーレンスが失われる場合、これは τ の増加に伴う OAM スペクトル広がりを生じるであろうと予想される. したがって、大域的空間コヒーレンスについて正確に評価するためには、OAM スペクトル広がり τ 依存性を評価することが必要である. 本研究では OAM スペクトル広がり解析のために、次に定義する OAM 集中度 $P_{2\ell_2 - \ell_1}$ を導入する.

$$P_{2\ell_2 - \ell_1}(\tau) = \frac{I_{2\ell_2 - \ell_1}^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)}{\sum_\ell I_\ell^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)}. \quad (3.1)$$

ここで, $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ は図 3.4(b) に示した OAM 分解 SR-FWM 強度である. $P_{2\ell_2 - \ell_1}$ は OAM スペクトル全体に占める $2\ell_2 - \ell_1$ 成分の割合を示すパラメータであり, したがって $P_{2\ell_2 - \ell_1}$ の減少は OAM スペクトル広がり, すなわち大域的デコヒーレンスを意味する. 図 3.5 に, $E = E_A$ および $E = E_B$ のそれぞれについて評価した OAM 集中度 P_4 の遅延時間 τ 依存性を示す. 図から P_4 は T_2 以内に 1 に近い値を示すことが分かり, これは OAM スペクトルにおいて $\ell = 4$ にほぼ単一ピークが確認されたことに対応している. なお, P_4 の τ 依存性には量子ビートと同じ周期を持つ振動が認められるが, この振動の起源については後で考察する. P_4 の遅延時間 τ 依存性について, 量子ビートに同期する減衰振動を持つ関数 $g(\tau) \propto [1 + A \cos(2\pi\tau/T_{\text{QB}})] \exp(-2\tau/T_{\text{OAM}})$ によるフィッティングから OAM 集中度減衰時間 T_{OAM} の見積もりを行うと, T_{OAM} は 100 ps

に達することが分かった^{*1}。すなわち、大域的空間デコヒーレンスは T_2 に比べておよそ二桁長い時間スケール与えられる。この大域的空間デコヒーレンスのメカニズムについては3.4節で詳しく考察するが、局所的な散乱過程で決定される励起子分極の位相緩和 T_2 に対し、 T_{OAM} は大域的な位相緩和のみを反映する。

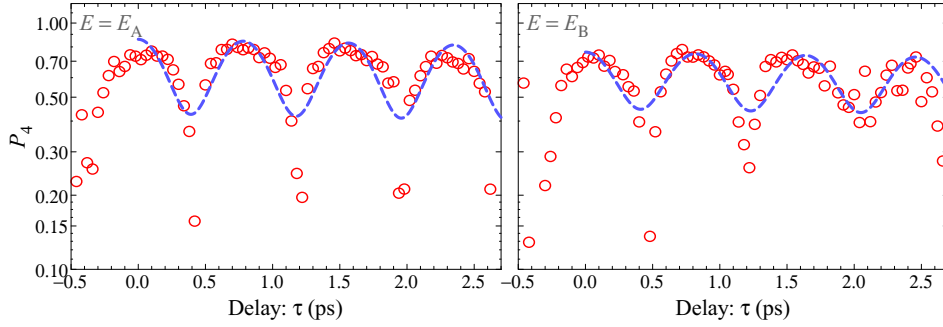


図 3.5 X_A および X_B のそれぞれに関する OAM 集中度 P_4 の時間発展。縦軸は対数スケールである。破線はフィッティングによって得られた量子ビートに同期する減衰振動 $[1 + A \cos(2\pi\tau/T_{QB})] \exp(-2\tau/T_{OAM})$ を示しており、フィッティングによって X_A について $A = 0.33$ および $T_{OAM} = 90$ ps, X_B について $A = 0.26$ および $T_{OAM} = 110$ ps を得た。

ここで P_4 の τ 依存性における量子ビートに同期した振動について考察する。OAM 集中度時間発展に現れる振動は、FWM 信号光の $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ 成分において認められる量子ビート位相シフトに起因している。例えば、図 3.4(b) の $\ell = 3$ の OAM 成分は顕著な量子ビート位相シフトを示していることが分かる (シフト量は T_{QB} の 1/5 程度)。このような量子ビート位相シフトは、励起子のスピン状態に依存する励起子間相互作用によって生じることが知られており [88]、円偏光励起条件での FWM 信号光において検出される。本実験では励起パルスの偏光状態は平行直線偏光であり、したがって理想的には信号光強度の時間発展において量子ビートの位相シフトは生じない。しかし、試料中の欠陥等がもたらす局所的なポテンシャルによって励起子のスピン状態が変化すると、量子ビートに位相シフトが生じることが報告されている [108]。OAM 分解 FWM 信号光における $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ 成分において、このような量子ビートの位相シフトが観測されたことは、FWM 信号光における $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ 成分が試料中に存在する欠陥等に起因した励起子分極の局所性、言い方を変えると励起子の大域的 OAM の阻害要因を反映した信号であると言える。OAM 分解測定は方位方向に周期性をもつ空間モード評価に対応しており、局所的な空間変化は信号光の空間モード変化をもたらす、結果として $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ を生じると考えられる。

3.4 大域的空間デコヒーレンスの解析

3.3.2 節では、フリースタンディング GaN に対する OAM 分解分光を行い、大域的空間コヒーレンスがサブナノ秒に達する非常に長い時間スケールで保持されることを明らかにした。しかし、

^{*1} A は振動のコントラストを与える。また、フィッティングはフーリエ変換によって得られる低周波成分に対して行った。

3.4.1 節で示されるように, c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対して同様の測定を行うと, 大域的空間コヒーレンスは数ピコ秒程度で失われる. フリースタンディング GaN と c 面サファイア基板上 GaN 薄膜の大きな違いの一つに試料の欠陥密度が挙げられる. c 面サファイア基板上にエピタキシャル成長した GaN 薄膜には, およそ 14 % に達する基板との格子定数差により, フリースタンディング GaN に比べて 3 桁程度大きい欠陥密度を有する [157]. したがって試料の欠陥がもたらす, デコヒーレンス (散乱) の空間不均一性が大域的デコヒーレンスの要因の一つであると推察される. このような空間不均一性が大域的デコヒーレンスの要因であると仮定したとき, OAM(ℓ) と方位角 φ の間のフーリエ変換の関係 (2.4.1 節参照) から, 大域的空間デコヒーレンスに励起 OAM $[\ell_{1(2)}]$ 依存性が存在することが予想される. 3.4.3 節では, 複合光渦パルス励起による OAM 分解 FWM 分光を行い, OAM と方位角 φ のフーリエ関係から予想される妥当な励起 OAM 依存性を示すことを説明する.

3.4.1 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における大域的空間デコヒーレンス

本節では c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 $2.3 \mu\text{m}$) に対して行った OAM 分解分光を行った結果を示し, 得られた結果をフリースタンディング GaN の結果と比較する.

図 3.6(a) は今回用いた $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ に対して OAM 分解測定を行った結果得られた OAM スペクトルである. なお, これらの励起光渦パルスは QWP に挟まれた SQP によって光渦パルスに変換した. 図に示した OAM スペクトルから, $\mathbf{k}_1$ パルスは $\ell_1 = 1$, $\mathbf{k}_2$ パルスは $\ell_2 = -1$ に単一ピークが観測されていることが確認できる. また内挿図に示した空間像から, $\ell_{1(2)} \neq 0$ を示すリング型強度分布が確認できる.

図 3.6(b) に観測した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す. なお, フリースタンディングの GaN の場合と同様に, 励起パルスの中心エネルギーを X_A , X_B 共鳴エネルギーの間に調整することによって X_A , X_B 同時励起を行った. 図から, c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に印加される二軸歪の影響により, フリースタンディングの GaN に比べて高いエネルギー ($E_A = 3.487 \text{ eV}$ および $E_B = 3.494 \text{ eV}$) に X_A , X_B 共鳴が存在することが分かる. また, X_A および X_B 共鳴の半値全幅は 3.3 meV であり, フリースタンディング GaN (1.2 meV) に比べて大きくなっていることが確認された. これは, 用いた c 面サファイア基板上 GaN 薄膜が不均一広がり系であることを反映している. 図 3.6(c) に $E = E_A$ で観測された OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性を示す. なお, 3.3.2 節で $E = E_A$ と $E = E_B$ の間に本質的な違いはないことを確認しているため, 今回は $E = E_A$ における結果のみ示す. 図には明瞭な量子ビートが観測されており, その周期 $T_{\text{QB}} = 0.5 \text{ ps}$ は共鳴エネルギー差 6.7 meV から求められる周期 0.6 ps にほぼ一致する.

図 3.6(d) は $\ell = 2\ell_2 - \ell_1 = -3$ 成分に関する OAM 集中度 P_{-3} の τ 依存性である. 図から, P_{-3} が τ の増加に伴って減衰する様子が明瞭に分かる. なお, P_{-3} の τ 依存性にはフリースタンディング GaN の場合と同様に量子ビートに同期する振動が観測され, 3.3.2 節と同様のフィッティングから $T_{\text{OAM}} = 7.8 \text{ ps}$ が得られた. この値はフリースタンディング試料の場合において見積もられた $T_{\text{OAM}} \sim 100 \text{ ps}$ に比べて非常に高速である. P_{-3} の τ 増加に伴う減衰は OAM スペクトルからも明らかである. 図 3.6(e) に量子ビートの第 1-4 ピークに対応する

$\tau = 0.1, 0.5, 1.0, 1.6$ ps で観測された $E = E_A$ における FWM 信号光の OAM スペクトルである。図から、いずれの τ においても FWM 信号光は $2\ell_2 - \ell_1$ に対応する $\ell = -3$ 成分に最大強度を持つことが確認できる。しかし、 $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ の広がり成分に注目すると、 τ の増加に伴ってこれらの成分が大きくなる。実際に隣接サイドモードに対する抑圧比で比較すると、 $\tau = 0.1$ ps における $\ell = -3$ に対する $\ell = -2, -4$ 成分の強度比は $\sim 6\%$ であるのに対して $\tau = 1.6$ ps では $\sim 22\%$ に増加している。

以上から、フリースタンディング GaN に比べて c 面サファイア基板上 GaN 薄膜の方が、 τ の増加に伴う OAM スペクトル広がりが増著であることが分かった。OAM スペクトル広がりは大域的空間デコヒーレンスに対応している。 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜ではフリースタンディング GaN に比べて空間不均一性の影響が増著であることから、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜において OAM 集中度 $P_{2\ell_2 - \ell_1}$ の減衰が速いことは大域的空間デコヒーレンスの要因の一つが試料の空間に依存する散乱過程であることを示唆している。3.4.2 節において、大域的空間デコヒーレンス (OAM スペクトル広がり) と試料の空間不均一性との関係について考察する。

3.4.2 大域的空間デコヒーレンスに関する考察

本節では、大域的空間デコヒーレンス (OAM スペクトル広がり) と試料の空間不均一性との関係について考察する。ここで本節で取り上げる空間不均一性の意味について触れておく。一般的に FWM 信号では空間不均一性に制限されることなく位相緩和を観測できる。実際、本測定においても、スペクトル線幅と均一試料を仮定した場合の位相緩和時間から見積もられる線幅は c 面サファイア基板上 GaN 薄膜について 1.0 : 1.5 の関係にあり、小さいながら測定試料は不均一性を有する。すなわち FWM の時間発展から見積もられる位相緩和時間は空間不均一性に制限されない。他方、OAM 分解 FWM 信号やその OAM スペクトルは、励起子分極によって生成される信号光電場の空間分布 (空間モード) の対称性を反映するため、そのスペクトル広がりには空間不均一性 (より厳密に言うならば、方位方向の対称性) で決定される。極端に言えば、 T_2 時間内であっても、不均一性の度合いに空間分布があれば、OAM スペクトルは広がる。逆に分極自体の位相コヒーレンスが失われても、大域的な位相関係が保持されていれば (すなわち励起子重心運動の OAM が保持されていれば)、OAM スペクトルに広がりには生じない。以降、OAM の大域的な位相関係を阻害する空間不均一性 (大域的空間デコヒーレンスの要因となる不均一性) に着目して議論を進める。

簡単のため二準位系を仮定したとき、光渦状態の $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスによって発生する SR-FWM 信号光 $\tilde{\mathcal{P}}^{(3)}$ は円筒座標空間 $\mathbf{r} = (r, \varphi, z)$ に拡張した光学ブロッホ方程式から次のように得られる [122]。

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{P}}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega, \tau) &\propto \Theta(\tau) \alpha(r, \varphi, \omega, \tau) \\ &\times \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}^* \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) u_{\ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) u_{\ell_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r})^* \exp[i\omega\tau + i(2k_2 - k_1)z]. \end{aligned} \quad (3.2)$$

ここで、励起光パルスの電場 $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t, t_j) = \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1} \delta(t - t_1) u_{\ell_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) \exp[i(k_1 z - \omega_p t)] + \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2} \delta(t - t_2) u_{\ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) \exp[i(k_2 z - \omega_p t)]$ を仮定した。 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_j}$ は電場の大きさ、 $\delta(t)$ はデルタ関数、 $u_{\ell_j}^{\text{LG}} = u_{0\ell_j}^{\text{LG}}$

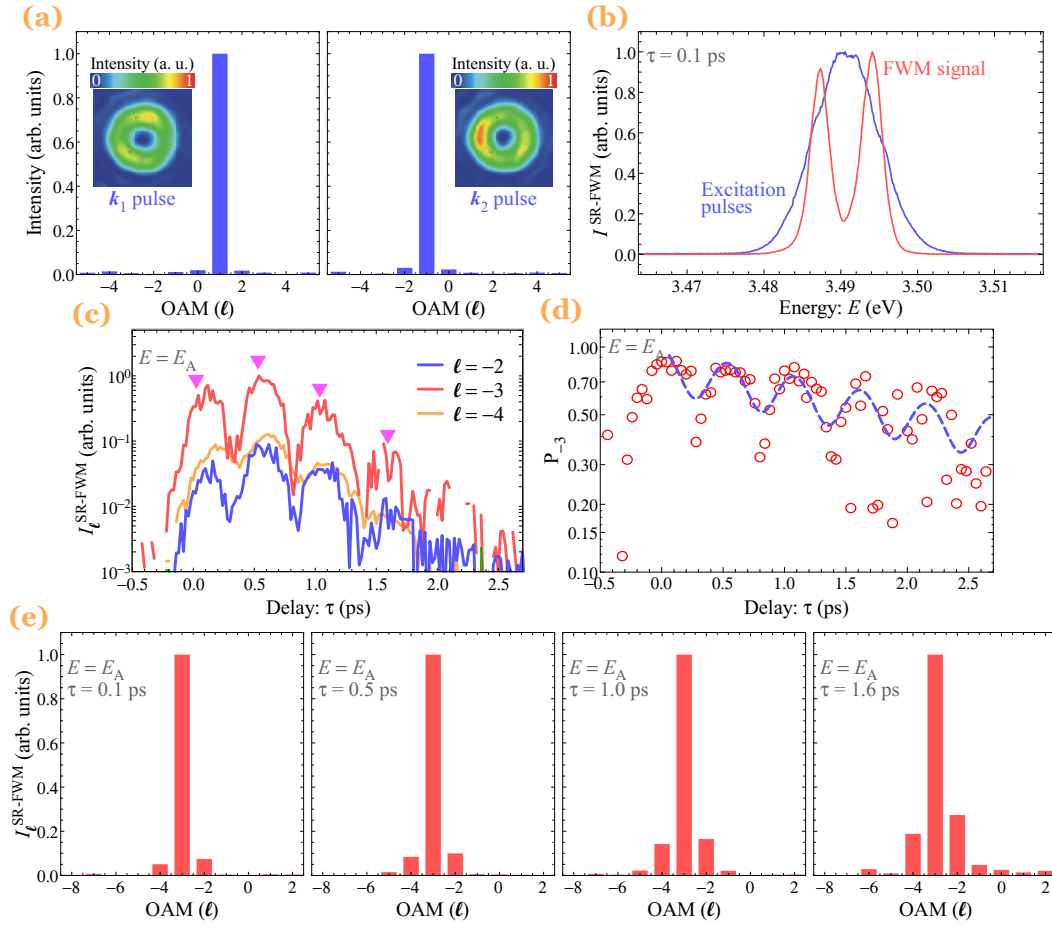


図 3.6 (a) k_1 および k_2 パルスの OAM スペクトル. OAM スペクトルは試料として用いた c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 $2.3 \mu\text{m}$) の X_A 共鳴エネルギー (E_A) に対応する $E = 3.478 \text{ eV}$ のエネルギー成分について示した. なお, 縦軸は最大強度を有するモードの強度によって規格化した. 内挿図は空間像であり, 最大強度によって規格化を行った. (b) $\tau = 0.1 \text{ ps}$ で観測された SR-FWM 強度 ($I^{\text{SR-FWM}}$) および励起光渦パルスのスペクトル. なお, 縦軸は最大強度によって規格化した. (c) $E = E_A$ で観測された OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性. 図には, $\ell = -2, -3, -4$ の OAM 成分についてプロットした. また, 縦軸は最大強度によって規格化した. (d) $E = E_A$ で観測された OAM 集中度 P_{-3} の時間発展. 縦軸は対数スケールである. 破線はフィッティングによって得られた減衰振動を示しており, フィッティングによって $A = 0.21$ および $T_{\text{OAM}} = 7.8 \text{ ps}$ を得た. (e) 量子ビートの第 1–4 ピークに対応する $\tau = 0.1, 0.5, 1.0, 1.6 \text{ ps}$ における FWM 信号光の OAM スペクトル. OAM スペクトルは $E = E_A$ について取得した. また, 縦軸はそれぞれ $\ell = -3$ 成分の強度によって規格化した.

は光渦を固有伝播モードとして取り扱う場合に用いられるラグールガウスモードである (2.4.1 参照). また, t_j は k_j パルスが試料に到達する時間であり, $t_1 = 0$ および $t_2 = \tau$ とした. $\alpha(\mathbf{r}, t, \tau)$ は $z = 0$ に配置された試料における励起子系が関与する項であり, 次のように与えられる.

$$\alpha(r, \varphi, \omega, \tau) = \frac{|\mu(r, \varphi)|^4}{\omega - \omega_{\text{EX}}(r, \varphi) + i\Gamma(r, \varphi)} \exp[-i\omega_{\text{EX}}(r, \varphi)\tau] \exp[-\Gamma(r, \varphi)\tau]. \quad (3.3)$$

ここで、遷移行列要素 μ 、励起子のエネルギー $\hbar\omega_{\text{EX}}$ および位相緩和レート Γ に空間依存性を取り入れた。試料に欠陥や転位などの不均一性が存在する場合、バンド構造の変調や散乱の効果を介してこれらのパラメータに空間依存性が生じると考えられる。一般の FWM 分光では、式 (3.2-3.3) で定義した FWM 信号光の空間積算を観測していることに対応している。つまり不均一性の効果は平均化されている。一方、OAM 分解分光を行う本研究では、式 (3.2-3.3) で与えられた FWM 信号光は異なるトポロジカル位相を持つ光渦に展開される。すなわち、

$$\begin{aligned}\tilde{P}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega, \tau) &\propto \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} \tilde{P}_{\ell}^{(3)}(r, \omega, \tau) \exp(i\ell\varphi), \\ \tilde{P}_{\ell}^{(3)}(r, \omega, \tau) &\propto \int_{-\pi}^{\pi} \tilde{P}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega, \tau) \exp(-i\ell\varphi) \\ &\propto \Theta(\tau) \mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}^2 \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^* \hat{u}_{\ell_2}^{\text{LG}}(r, z)^2 \hat{u}_{\ell_1}^{\text{LG}}(r, z)^* \exp[i\omega\tau + i(2k_2 - k_1)z] \\ &\quad \times \int_{-\pi}^{\pi} d\varphi \alpha(r, \varphi, \omega, \tau) \exp[-i(\ell - 2\ell_2 + \ell_1)\varphi],\end{aligned}\quad (3.4)$$

である。ここでラゲールガウスモード $u_{\ell_j}^{\text{LG}}(\mathbf{r})$ を $u_{\ell_j}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) = \hat{u}_{\ell_j}^{\text{LG}}(r, z) \exp(i\ell_j\varphi)$ に従って変数分離した。OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}(\omega, \tau)$ は、式 (3.4) で定義した $\tilde{P}_{\ell}^{(3)}(r, \omega, \tau)$ の絶対値の自乗を動径 r 方向に積算した $\int_0^{\infty} r dr \left| \tilde{P}_{\ell}^{(3)}(r, \omega, \tau) \right|^2$ に比例する。ここで、式 (3.4) の積分は、 α が空間 (方位角 φ) に依存しない場合に $\delta_{\ell, 2\ell_2 - \ell_1}$ であることが分かる。つまり、試料が完全に均一な場合には信号光に OAM スペクトル広がりを示す $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ 成分は生じない。一方、 α が φ に依存する場合には、 $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1$ について α のフーリエ変換で与えられる有限の成分を持ち、したがってこの場合には OAM スペクトルに広がり観測される。特に大域的空間デコヒーレンスに対応する遅延時間 τ の増加に伴う OAM スペクトル広がり、式 (3.3) から ω_{EX} と Γ の空間的な非一様性によってもたらされると考えられる。 ω_{EX} の不均一性は、 τ に依存する位相変調をもたらすことで、OAM スペクトル広がりを生じる。一方、 Γ の不均一性は振幅変調をもたらす。

式 (3.4) で与えたフーリエ関係から、大域的空間デコヒーレンスには励起 OAM $[\ell_{1(2)}]$ 依存性が存在することが予想される。具体的には、実験結果に基づいて 3.4.3 節で説明する。3.4.3 節では、 $\ell_{1(2)}$ 依存性を励起光パルスとして複合光渦を用いることで観測することを試みる。

3.4.3 複合光渦パルス励起による大域的空間デコヒーレンスの励起 OAM 依存性

本節では、大域的空間コヒーレンスの励起 OAM $[\ell_{1(2)}]$ 依存性を複合光渦パルス励起 FWM 分光によって検証することを試みる。複合光渦とは、様々な OAM を持つ光渦のコヒーレントな重ね合わせ状態である。例えば、 $\mathbf{k}_1$ パルスとして複合光渦パルス、 $\mathbf{k}_2$ パルスとして最低次ガウスモード ($\ell_2 = 0$) の光パルスを用いたとき、 $\mathbf{k}_1$ パルス中に含まれるそれぞれの ℓ_1 を反映した応答は、FWM 信号光の $\ell = 2\ell_2 - \ell_1 = -\ell_1$ の OAM 成分として分離して検出される。これは、複合光渦パルスを用いることによって異なる ℓ_1 に対する応答を一度に測定できることを意味している。このとき、 ℓ_1 依存性は OAM 分解 FWM 信号光の各 $\ell = -\ell_1$ 成分を比較することで検証できる。複合光渦パルスを用いる利点は、複数の ℓ_1 に対する応答を同時に観測することで、レーザーの中長期的な揺らぎの影響を受けず、さらに試料の温度や試料上での励起光渦パルス対のオー

オーバーラップ等に関して同一条件下でそれぞれの ℓ_1 に関する応答の比較を行える点である．このような同一条件下での測定により，確度の高い ℓ_1 依存性測定が実現できる．一方，欠点は複数 ℓ_1 に対する応答を同時に観測することによって，FWM 信号光の OAM スペクトルが若干煩雑になることである．本節では，まず複合光渦励起 FWM 信号光によって得られる特徴的な信号光 OAM スペクトルについて実験結果に基づいて説明する．その後， τ を掃引することによって得られる OAM スペクトルダイナミクスから，大域的空間デコヒーレンスに対する試料の不均一性の影響を ℓ_1 依存性の観点から検証する．

信号光 OAM スペクトルにおける励起光渦パルス間空間オーバーラップの影響

本節では， $\mathbf{k}_1$ パルスに複合光渦を用いた場合に得られる信号光の OAM スペクトルについて説明する．複合光渦は様々な ℓ_1 を持つ光渦のコヒーレントな重ね合わせ状態であり，これを FWM 分光の $\mathbf{k}_1$ パルスとして用いたとき， ℓ_1 の値に応じて $\mathbf{k}_2$ パルスとの空間オーバーラップが異なることを反映した信号光 OAM スペクトルが観測される．

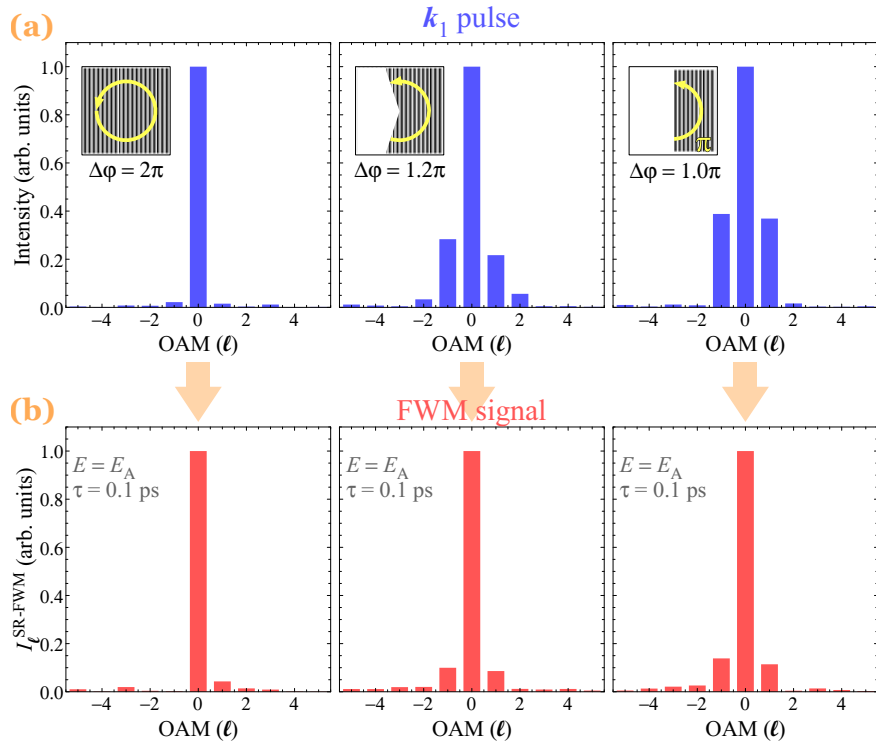


図 3.7 (a) $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルおよび (b) FWM 信号光の OAM スペクトル．それぞれについて，フリースタンディング GaN における X_A 共鳴エネルギー $E_A = 3.475$ eV について取得した．また， $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルの内挿図として複合光渦発生に用いたホログラム回折格子を示した．

図 3.7(a) に今回実験に用いた 3 種類の $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルを示す．なお， $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルは $\mathbf{k}_1$ パルスに対して OAM 分解分光を行うことで取得した．図に示した複合光渦状態の $\mathbf{k}_1$ パルスは，OAM と方位位置の不確定性関係に基づいて生成される．OAM(ℓ) と

方位位置 (φ) は共役な物理量であり, したがってビームに対して方位位置 φ の広がり制限したとき OAM の分布 (OAM スペクトルに広がり) が生じる (2.4.3 節参照). $\mathbf{k}_1$ パルスに対する φ の制限は, 最低次ガウスモード状態の $\mathbf{k}_1$ パルスを内挿図に示すようなホログラム回折格子を用いて回折させることにより実現した. このとき, 通常ホログラム回折格子 [図 3.7(a) における $\Delta\varphi = 2\pi$ のホログラム回折格子に対応] に回折された $\mathbf{k}_1$ パルスは最低次ガウスモードのままであるが, 変調深さを $2\pi - \Delta\varphi$ の領域に渡って 0 にしたホログラム回折格子を用いると, これらの領域において回折効率が 0 となるため, 方位位置の広がりが $\Delta\varphi$ に制限された $\mathbf{k}_1$ パルスを生成できる. 図の OAM スペクトルから, $\Delta\varphi = 2\pi$ の場合には $\ell = 0$ の単一ピークが観測されているものの^{*2}, $\Delta\varphi < 2\pi$ の場合には方位位置の制限を反映した OAM スペクトル広がり ($\ell \neq 0$ 成分) が検出されていることが分かる. また, これらの $\ell \neq 0$ 成分は $\Delta\varphi$ の減少に伴って大きくなり, $\Delta\varphi = 0$ の場合には $\ell = 0$ の OAM 成分に対する $\ell = \pm 1$ の OAM 成分の強度比は 40 % に達する. このような複合光渦は $\ell_1 = -1, 0, 1$ の OAM を同時に有する光渦とみなすことができる. $\mathbf{k}_2$ パルスとして $\ell_2 = 0$ の最低次ガウスモードを用いる場合, $2\ell_2 - \ell_1 = -\ell_1$ であることから各 ℓ_1 成分はそれぞれ信号光の $\ell = 1, 0, -1$ 成分として反映される.

なお, $2\ell_2 - \ell_1 = -\ell_1$ の関係は, 信号光 OAM スペクトルが $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルについて符号を反転させたものと等価であることを示唆している. しかし, 実際に得られる信号光 OAM スペクトルは $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルとは大きく異なる. 図 3.7(b) に図 3.7(a) の OAM スペクトルを持つ $\mathbf{k}_1$ パルスと最低次ガウスモードの $\mathbf{k}_2$ パルスにより発生した FWM 信号光の OAM スペクトルを示す. なお, 試料はフリースタンディング GaN であり, 信号光の OAM スペクトルは X_A 共鳴エネルギーに対応する $E_A = 3.475$ eV について取得した. 図から, $\mathbf{k}_1$ パルスに比べて FWM 信号光の OAM スペクトルの $\ell \neq 0$ 成分が小さくなっていることが分かる. 例えば, $\Delta\varphi = \pi$ の場合の $\ell = 0$ 成分に対する $\ell = \pm 1$ 成分の強度は 15 % 程度であり, $\mathbf{k}_1$ パルスにおける 40 % の 1/3 程度である.

このように, $\ell \neq 0$ の成分が小さくなることについては次のように考えることができる. $2\ell_2 - \ell_1$ の関係を考えると, 信号光の $\ell = 0$ 成分は $\mathbf{k}_1$ パルス中の $\ell_1 = 0$ 成分を起源とする信号光と考えられる. $\ell_1 = 0$ の光渦は最低次ガウスモードであり, 同じく最低次ガウスモードの $\mathbf{k}_2$ パルスと試料上で大きな空間オーバーラップを持つ. 一方, 信号光の $\ell \neq 0$ 成分については, リング型強度分布を持つ $\ell_1 \neq 0$ の光渦とガウス型強度分布を持つ $\mathbf{k}_2$ パルスによって発生する. したがって, 空間オーバーラップは理想的ではない. このとき, FWM 信号光発生効率は低くなり, 結果として FWM 信号光 OAM スペクトルにおいて $\ell \neq 0$ 成分が抑圧される.

この FWM 信号光発生効率について定量的に考えよう. 式 (3.4) から, 試料の不均一性を無視すると, OAM 分解 SR-FWM 信号光 $\tilde{P}_\ell^{(3)}$ は $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_j} u_{\ell_j}^{\text{LG}}(\mathbf{r})$ を $\mathbf{k}_j$ パルス ($j = 1, 2$) パルスの電場分布とすると, $\mathcal{E}_{\ell_2}^2 u_{\ell_2}^{\text{LG}}(\mathbf{r})^2 \mathcal{E}_{0\mathbf{k}_1}^* u_{\mathbf{k}_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r})^*$ に比例する. $\mathbf{k}_1$ パルスが複合光渦であることを考慮して

^{*2} これは不確定積が 0 になることに対応している. ハイゼンベルグの不確定性関係とは異なり, 周期性 $\varphi + 2\pi = \varphi$ を有する方位位置 φ と OAM の不確定性関係は, 不確定積 0 を許容する.

$\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1} u_{\ell_1}^{\text{LG}}(\mathbf{r}) \rightarrow \sum_{\ell} \mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}(\ell) u_{\ell}^{\text{LG}}(\mathbf{r})$ とおくと, OAM 分解 SR-FWM 信号光強度 $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ は,

$$I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}(\omega, \tau) \propto \int_0^{\infty} r dr \left| \tilde{P}_{\ell}^{(3)}(r, \omega, \tau) \right|^2 \propto \frac{1}{3^{|\ell|}} |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}(-\ell)|^2, \quad (3.5)$$

で与えられる. ここで, 因子 3 は非線形分極 $\tilde{P}^{(3)}$ が励起光パルスの三乗に比例することによる因子である. ここで, $|\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}(-\ell)|^2$ は符号を反転した $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルに対応する. 以上から, 複合光渦を $\mathbf{k}_1$ パルスとして用いた場合の理想的な信号光の OAM スペクトル強度分布は, 符号を反転した $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルに $1/3^{|\ell|}$ を乗じたものに等しいことが分かった.

大域的空間デコヒーレンスの励起 OAM 依存性

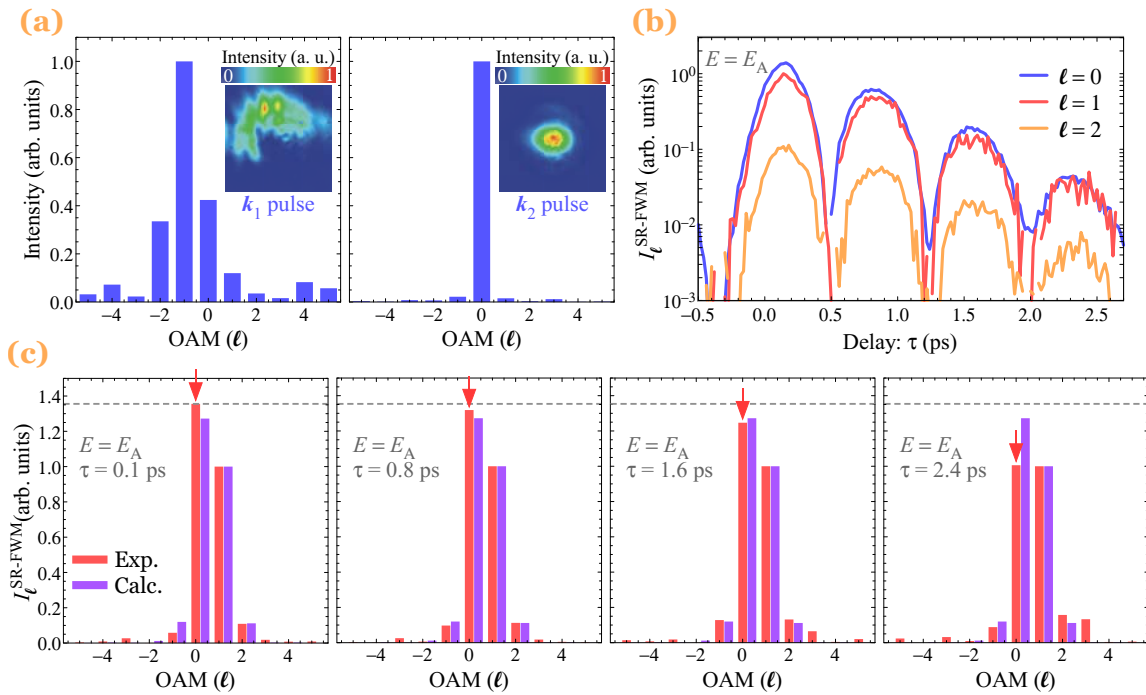


図 3.8 (a) 励起光渦パルスの OAM スペクトル. 内挿図は強度分布である. $\mathbf{k}_1$ および $\mathbf{k}_2$ パルスの OAM スペクトルは, それぞれフリースタンディング GaN の X_A 共鳴に対応する $E_A = 3.475\text{eV}$ のエネルギー成分について取得した. (b) X_A 共鳴エネルギーにおける OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_{\ell}^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性. 図には信号光の $\ell = 0, 1, 2$ 成分についてプロットした. なお, 縦軸は対数スケールであり, 量子ビートの第 1 ピークに対応する $\tau = 0.1$ ps における $I_1^{\text{SR-FWM}}$ によって規格化した. (c) FWM 信号光 OAM スペクトルの τ 依存性. OAM スペクトルは量子ビートの第 1-4 ピークに対応する $\tau = 0.1, 0.8, 1.6, 2.4$ ps において観測した. また, $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルと空間オーバーラップから計算される理想的な OAM スペクトルもあわせて示した. 実験および計算結果のそれぞれについて, $I_1^{\text{SR-FWM}}$ によって規格化した. 矢印は $\ell = 0$ 成分を示しており, 破線は $\tau = 0.1$ ps における規格化 SR-FWM 強度 $I_0^{\text{SR-FWM}}/I_1^{\text{SR-FWM}}$ の値を示す.

図 3.7 から, $\ell = 0$ をスペクトル中心として持つ $\mathbf{k}_1$ パルスに用いたとき, 信号光の $\ell = 0$ 以外の成分は大きく抑圧されることが分かる. これは信号光の ℓ 成分についての OAM スペクトル強

度が、符号を反転した $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトル強度の $1/3^{|\ell|}$ で与えられることを反映している。しかし、この関係から逆算して $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルを設定すれば、異なる ℓ で特徴付けられる OAM 分解信号光を同一強度で発生することができると考えられる。これにより、 $\mathbf{k}_1$ パルスに含まれる異なる ℓ_1 に対する応答を信号光の $\ell = -\ell_1$ 成分として同一強度で比較可能である。

図 3.8(a) に今回用いた励起光渦パルスの OAM スペクトルを示す。今回についても、 $\mathbf{k}_2$ パルスは最低次ガウスモードの光パルスである。 $\mathbf{k}_2$ パルスの OAM スペクトルには最低次ガウスモードであることを反映した $\ell_2 = 0$ の単一ピークが確認できる。一方、 $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルには $\ell = -1$ を中心とした OAM 広がりが見出されている。今回は $\ell = -1$ の光渦パルスに対して方位角広がり $\Delta\varphi = \pi$ に制限する (内挿図参照) ことによって $\ell = -1$ に最大強度を持つ複合光渦パルスの $\mathbf{k}_1$ パルスを取得した。この $\mathbf{k}_1$ パルスは $\ell_1 = -2, -1, 0$ の光渦の重ね合わせ状態のみなすことができ、 $2\ell_2 - \ell_1 = -\ell_1$ の関係を考慮すると、それぞれの ℓ_1 成分を反映した応答は信号光の $\ell = 2, 1, 0$ 成分として得られることが分かる。

図 3.8(b) は $E = E_A$ で観測された OAM 分解 SR-FWM 強度 $I_\ell^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性である。図には、 $\ell = 0, 1, 2$ 成分についてプロットした。なお、試料はフリースタンディング GaN であり、 $E_A = 3.475$ eV である。図から今回用いた $\mathbf{k}_1$ パルスによって、信号光の $\ell = 0, 1$ 成分が比較的近い強度を持って発生していることが分かる。図 3.8(c) は量子ビートの第 1-4 ピークで観測された FWM 信号光の OAM スペクトルである。また、図には $\mathbf{k}_1$ パルスの OAM スペクトルから式 (3.5) を用いて計算した OAM スペクトルも合わせて示している。図から、 $\tau = 0.1$ ps における OAM スペクトルは、試料の不均一性を反映していると考えられる計算結果からの差異が見られるものの、空間オーバーラップを考慮したスペクトルに良く一致していると言える。しかし、遅延時間 τ が増大すると、信号光 OAM スペクトルはこの理想的な OAM スペクトル分布からの大きく逸脱することが確認できる。特に信号強度がほぼ等しい $\ell = 0, 1$ 成分に注目すると、その強度差が時間発展に伴って小さくなっていることが分かる。信号強度が $\ell = 0, 1$ 成分でほぼ同一であることに加えて、励起光渦パルスの平均パワーを 0.7 mW に制限することで励起子密度を非常に小さく設定している ($\sim 5 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$) ため、励起による緩和効果 (EID) の影響が無視できると考えられる [80] ことから、観測された信号光の $\ell = 0, 1$ 成分に関する異なる時間発展は励起 OAM(ℓ_1) の違いを反映した結果であると言える。

図 3.8(c) の OAM スペクトルダイナミクスの意味は OAM 集中度 P_ℓ を評価することによって明確に示される。図 3.9 に P_0 と P_1 の遅延時間 τ 依存性を示す。図から、 P_1 に比べて P_0 が速く減衰していることが分かる。この結果は $\ell_1 = -1$ を反映した信号光の $\ell = 1$ 成分よりも、 $\ell_1 = 0$ に由来する $\ell = 0$ 成分の方が OAM スペクトル広がりが見られることを示している。つまり、励起子分極にコヒーレント変換されたトポロジカル位相の大域的空間コヒーレンスは、 $\ell_1 = 0$ の場合よりも $\ell_1 = -1$ の場合の方が失われにくいことを意味している。

$\ell_1 = -1$ に比べて $\ell_1 = 0$ の大域的空間コヒーレンスが失われにくいという結果について、試料の不均一性に基づいて考察しよう。なお、同じくフリースタンディング GaN から観測された信号光空間像 [図 3.4(a)] から、FWM 信号光に影響を与える欠陥および転位の数是非常に限られて

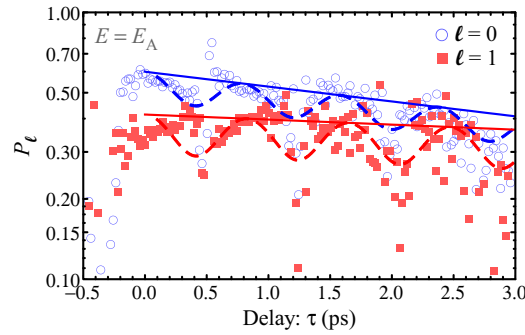


図 3.9 $E = E_A$ で観測された OAM 集中度 P_0 および P_1 の遅延時間 τ 依存性. 縦軸は対数スケールである. 破線はフィッティングによって得られた量子ビートに同期する減衰振動 $[1 + A \cos(2\pi\tau/T_{QB})] \exp(-2\tau/T_{OAM})$ を示しており, フィッティングによって $\ell = 1$ について $A = 0.17$ および $T_{OAM} = 46$ ps, $\ell = 0$ について $A = 0.12$ および $T_{OAM} = 15.6$ ps を得た.

いることを仮定する. このように仮定すると, 図 3.9 で観測された OAM 集中度 P_ℓ の単調減少は, τ に対する周期的変化を与える励起子エネルギー ω_{EX} の不均一性ではなく, 位相緩和レート Γ の不均一性に起因すると考えられる. 局所的な位相緩和レート Γ の不均一性が存在するとき, OAM と方位角のフーリエ関係から導かれる不確定性関係 $\Delta\varphi \cdot \Delta\ell \geq 1/2$ を介して時間発展に伴う OAM スペクトル広がり, すなわち大域的空間デコヒーレンスが生じる.

図 3.10 に位相緩和レート Γ に局所的な不均一性が存在する場合の信号光 OAM スペクトルの計算結果を示す. 簡単のため, 位相緩和レート Γ が試料に存在する 1 つの点欠陥上を除いて均一である場合を考える [図 3.10(a), (d), (g)]. なお, 励起領域から大きく離れた場所に欠陥が存在する場合にはその欠陥の影響は無視できることから分かるように, 欠陥が OAM スペクトル広がりにもたらす影響は欠陥の位置に依存する. 今回は, 各々の ℓ_1 の場合について最も OAM スペクトル広がりが大きくなる欠陥位置について考慮する. また $\mathbf{k}_2$ パルスは, 実験と対応させて最低次ガウスモード ($\ell_2 = 0$) の光パルスとする.

まず始めに, $\ell_1 \neq 0$ の場合について考える. $\ell_1 \neq 0$ の場合, $\mathbf{k}_1$ パルスはリング形状の強度分布で特徴付けられる電場によって励起子分極を誘起する. ここで, このリング上に存在する欠陥では位相緩和レート Γ が異なることにより, $\tau > 0$ において励起子分極の方位角広がり $\Delta\varphi$ に制限が加わる [図 3.10 (f), (i)]. この時, 発生する FWM 信号光には不確定性関係 $\Delta\varphi \cdot \Delta\ell \geq 1/2$ に基づいて $\ell \neq 2\ell_2 - \ell_1 = -\ell_1$ の OAM 成分が生じ, その結果として OAM スペクトルには広がり $\Delta\ell$ が生じる (大域的空間コヒーレンスが失われる). なお, 欠陥が強度分布中心に存在する場合には, FWM 信号光は回転対称性を保つため, OAM スペクトルに広がりには生じない. ここで, 図 3.10(e) および (h) から $\ell_1 = 1$ の場合よりも $\ell_1 = 2$ の場合の方が OAM スペクトル広がり小さいことが分かる. 点欠陥の大きさが一定の値 a の場合, 方位角広がり $\Delta\varphi$ は近似的に $2\pi - a/r_p$ で与えられる. r_p は強度分布におけるピーク半径であり, $r_p \gg a$ とした. r_p は $|\ell_1|$ の平方根に比例するため (2.4.1 参照), a が一定の場合 $\Delta\varphi$ は $|\ell_1|$ の増加に伴って増加する. その結果, 反対に OAM スペクトル広がり $\Delta\ell$ は $|\ell_1|$ の増加に伴って減少する.

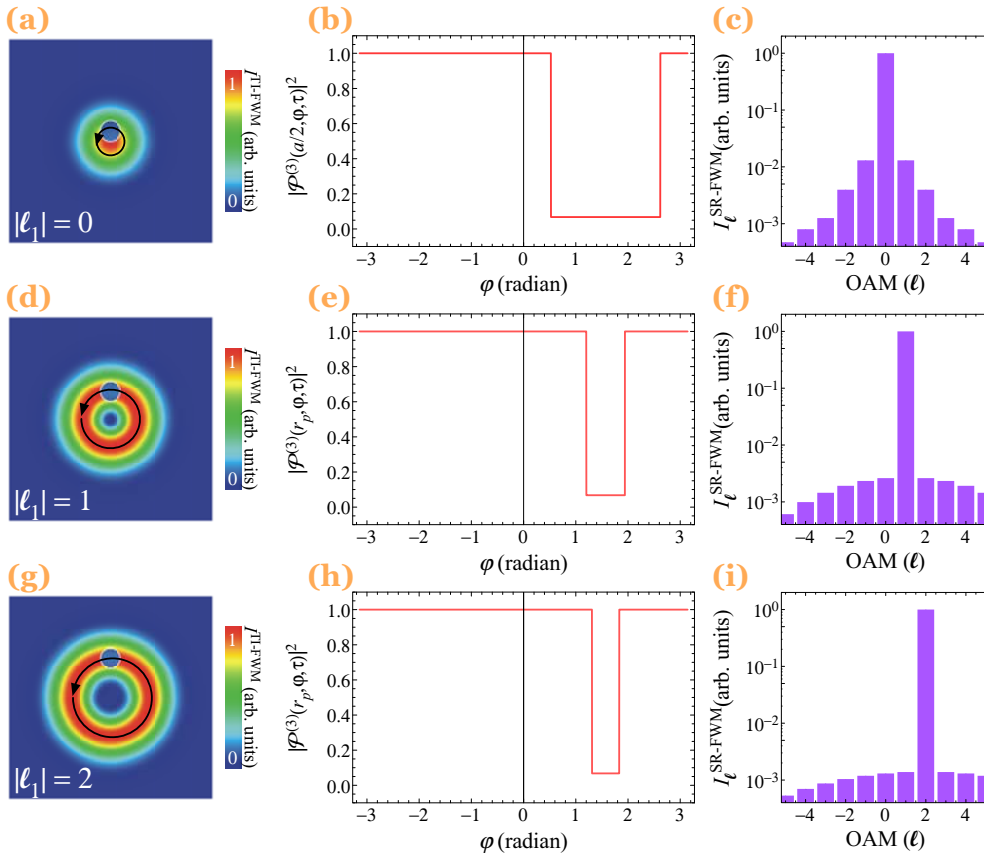


図 3.10 位相緩和レート Γ に局所的な欠陥 (空間的な不均一性に対応) が存在する場合の FWM 信号光の空間像 [(a), (d), (g)], SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ の方位角 φ の分布 [(b), (e), (h)], および OAM スペクトル [(c), (f), (i)] の計算結果. 計算では $|l_1| = 0, 1, 2$ の場合について考慮し, いずれの場合も $\ell_2 = 0$ とした. また, 計算において欠陥上での位相緩和レートを $2\Gamma_0$ とした. ここで, Γ_0 は欠陥が存在しない場所での位相緩和レートであり, 遅延時間 $\tau = 1/\Gamma_0$ に設定した. (a)-(c) は $l_1 = 0$ の場合の計算結果であり, この場合はガウス強度分布の中心付近に欠陥を配置している. (d)-(f) および (g)-(i) はそれぞれ $|l_1| = 1, 2$ の場合の計算結果である. なお, OAM スペクトルは最大強度を持つモード ($\ell = 2\ell_2 - \ell_1$) の強度によって規格化した.

次に $l_1 = 0$ の場合について考えよう. $l_1 = 0$ の場合は, ガウス分布の強度分布を持つ $\mathbf{k}_1$ パルスによって励起子分極が誘起される. この場合, 最も OAM スペクトル広がりが大きくなるのはガウス分布の中心付近に欠陥が存在する場合である [図 3.10(a)]. なお, $l_1 \neq 0$ の場合と同様に, 欠陥が中心に存在する場合には OAM スペクトルに広がりはない. 図 3.10(b) から分かるように, 欠陥は中心からわずかに離れているにすぎないため, 方位角広がり $\Delta\varphi$ は $l_1 \neq 0$ の場合に比べて極端に小さくなる. その結果, OAM スペクトル広がり $\Delta\ell$ は $l_1 \neq 0$ の場合に比べて非常に大きくなり得る. 実際に, 図 3.10(c) における OAM スペクトル広がり成分は $l_1 \neq 0$ の場合に比べて一桁程度大きい. このように $l_1 = 0$ の場合, 大域的空間デコヒーレンスが特に顕著になることは, 図 3.8(c) の結果を説明する.

3.5 まとめ

本章の目的は光渦パルス励起 FWM 分光によって、励起子系へのトポロジカル位相のコヒーレント変換および大域的空間コヒーレンス評価法を確立することである。これを実現するために、本章では OAM 分解分光を導入した。OAM 分解分光により、FWM 信号光の空間位相を定量的に評価できる他、遅延時間 $\tau \sim 0$ に制限されない測定を行うことが可能となった。本章で得られた知見を以下にまとめる。

- (1). トポロジカル位相のコヒーレント変換がほぼ理想的に実現できること
- (2). 大域的空間コヒーレンスが位相緩和時間 T_2 以内に保持されること
- (3). 大域的空間デコヒーレンスの要因の一つに試料の空間不均一性が挙げられること
- (4). 大域的空間デコヒーレンスに OAM 依存性が存在すること

(1). については、従来行われていた干渉パターンのフォークの叉を数える定性的評価 [122, 158] だけでなく、OAM 分解分光によって定量的に示すことができた。これは本研究での大きな進展であると言える。また、(2). についても励起子コヒーレンスを時空間両面から評価した例は過去に無く、OAM 分解分光によって初めて示すことができた。OAM 分解分光によって得られたこれらの知見は学術的に意義深いだけでなく、応用上も有用であると言える。励起子系へとコヒーレント変換・保存された OAM(トポロジカル位相に相当) は、例えば光渦パルスペアを用いたコヒーレント制御 [77] で自在に制御可能と考えられ、したがって本研究は OAM 情報処理のための半導体デバイス実現の足掛かりとなり得る

(3). については、*c* 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対する OAM 分解分光の結果から明らかとなった知見であり、大域的空間デヒーレンスのメカニズムを初めて明らかにできたことは非常に意義深いと考える。また、大域的空間コヒーレンスが不均一性を反映することは、OAM 分解分光が空間不均一性評価法としても有用であることを示唆している。この意味における OAM 分解測定の利点は、試料の空間情報を高感度かつスキャンすることなく評価が行えることである。(4). について、複合光渦を用いた精密な実験によって大域的空間デヒーレンスに励起 OAM 依存性が存在することを示しただけでなく、不確定性関係と結び付けて簡潔に説明できたことは物理としても非常に面白いと考える。

第 4 章

偏光渦パルスを用いたコヒーレント分光

4.1 本章の目的

本章では、偏光渦の一種である径偏光パルスを用いた四光波混合 (Four-wave mixing, FWM) 分光を行い、(a) 励起子異方性のスナップショット測定法および (b) 偏光特異点観測に基づく励起子系の回転対称性検出法を確立する。

(a) 励起子異方性のスナップショット測定では、径偏光パルスの偏光特異点周りで偏光が連続的に変化することを利用する。このような径偏光パルスを試料に照射すると、全方位直線偏光に対する光学応答を一度に取得できる。この手法により測定時間を大幅に短縮できる他、原理的に偏光回転素子の機械的制御を必要としないため高確度な偏光分解測定が実現できる。4.3.1 節では、顕著な偏光異方性を有する a 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対する径偏光パルス励起 FWM 分光を行い、信号光の空間像から異方的励起子振動子強度の定量評価を行う。また、得られた結果から測定の確度を議論する。なお、同様の測定は線形分光でも可能と考えられるが、FWM 分光によって高感度化が実現できる [109, 159]。4.3.2 節では、得られた結果から励起子異方性に対する本手法の高感度性を示す。

(b) では偏光特異点が摂動に対して直ちに分裂するという性質に注目する。4.4.1 節で示すように、フリースタンディング GaN について我々が観測した FWM 信号光には、トポロジカルチャージ $s = 1/2$ を持つ 2 つの偏光特異点が確認された。平行直線偏光励起における信号光は励起光パルスの偏光を保持するため、理想的な FWM 信号光には励起径偏光パルスと同様の $s = 1$ の偏光特異点が検出される。4.4.1 節では、励起径偏光パルスにおける微小な非対称性 (空間チャープ) により、励起子分極の回転対称性が失われると、FWM 信号光に偏光特異点分裂が生じることを明らかにする。なお、光渦のトポロジカル位相 (軌道角運動量, OAM) のコヒーレント変換において特異点分裂が生じることは、半導体励起子系に限らず冷却原子系でも報告されている [158, 160]。位相特異点分裂と偏光特異点分裂のメカニズムには関連があり、したがって本研究で得られた知見は物質電子系を用いた OAM 情報処理 [156] に対しても有用であると考えられる。また、信号光における特異点分裂を検証する場合、非単色光の場合にも適用可能なストークスパラメータ (2.5.1

節参照) から定義される偏光特異点に着目することで信頼性の高い測定および議論が可能である。さらに、偏光特異点分裂における分裂幅や分裂方向が励起子分極の非対称性を反映することを利用すると、偏光特異点分裂の解析から励起子分極における回転対称性破れを特徴付けることが可能である。デモンストレーションに用いたのは a 面サファイア基板上 GaN 薄膜であり、この試料の偏光異方性と上記の空間チャープが相まって FWM 信号光は非常に複雑な時空間偏光ダイナミクスを示す。しかし、このとき偏光特異点に注目することによって、励起子分極の回転対称性 (非対称性) を簡潔に理解することができる。4.4.2 節では、上記の観測結果を通じて回転対称性破れ検出における偏光特異点解析の有効性を示す。

4.2 径偏光パルスを用いた四光波混合分光実験系

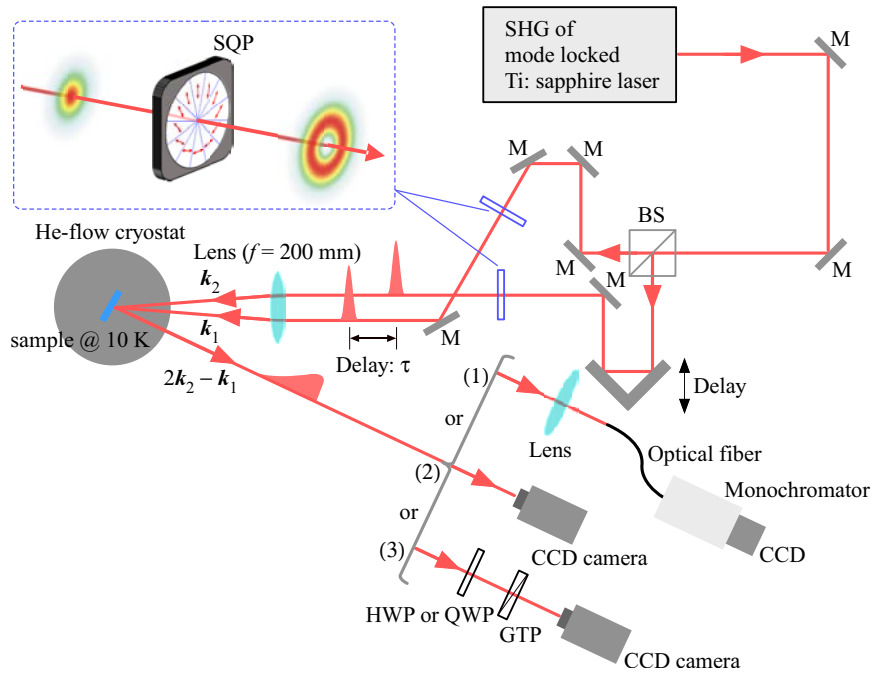


図 4.1 径偏光パルス励起による四光波混合分光実験系。M: mirror, BS: beam splitter, SQP: segmented q -plate, CCD: charge coupled devise, HWP: half-wave plate, QWP: quarter wave-plate, GTP: Gran-Thompson polarizer. 内挿図は SQP を用いた径偏光パルス生成の概念図。

図 4.1 に径偏光パルス励起による FWM 分光実験系を示す。光源はモード同期チタンサファイアレーザーの第二高調波であり、この光源から中心エネルギー ~ 3.5 eV, パルス幅 190 fs, 繰り返し周波数 76 MHz のパルス列が得られる。この光パルス列をビームスプリッターによって 2 つに分離した後、片方の光路に挿入した光学ステージによって遅延時間 τ を制御した。光路が異なる 2 つのパルスは segmented q -plate [SQP, 株式会社フォトニックラティス (PL) 製, SWP-355] を用いて径偏光モードに変換した。SQP は方位角に対して主軸方向が異なる半波長板であり、この主軸分布により均一直線偏光の光パルスを径偏光パルスに変換可能である (2.5.3 参照)。

SQP によって得られた径偏光パルス対は、レンズ (焦点距離 $f = 200$ mm) によって、ヘリウムクライオスタット中で温度 10 K に保持された試料に集光照射した。試料には a 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 or 4.6 μm), c 面サファイア基板上 GaN 薄膜 (膜厚 2.3 μm), または膜厚 70 μm のフリースタンディング GaN を用いた。励起光パルス対の波数ベクトルを $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$ と定義したとき, FWM 信号光は $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ および $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ 方向に発生する。このとき, $\tau = 0$ では $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ および $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ の波数ベクトルを持つ信号光が同強度で発生することを利用して厳密に $\tau = 0$ を設定した。また, 本研究では $\mathbf{k}_1$ が $\mathbf{k}_2$ よりも先に試料に到達する場合を $\tau > 0$ とした。なお, 励起径偏光パルスの平均パワーについては 1-5 mW に設定した。

発生した信号光は, 目的に応じて 3 つの方法で検出した。(1) スペクトル分解 FWM(SR-FWM) 強度の測定は, 分光器 ($f = 300$ mm, grating 3600 gr/mm) とペルチェ冷却型 Si-CCD によって実現した。なお, このときレンズを用いて FWM 信号光全体を分光器に接続された石英バンドルファイバー中に導入した。(2) FWM 信号光の断面強度分布測定は, 12bit CCD カメラ (QImaging 社製, FAST 1394) によって測定した。(3) 空間分解ストークスパラメータ測定は位相子 (HWP, QWP) と偏光子 (GTP) および CCD カメラ (QImaging 社製, FAST 1394) によって実現した (2.5.3 節参照)。ビームスプリッタ等で FWM 信号光を分割することによって, (1-3) の測定を同時に行うことも可能と考えられるが, 一般の光学素子では s 偏光と p 偏光の間で反射率やリタデーションが異なるため, FWM 信号の偏光状態を変調する恐れがある。この理由から, (1-3) の測定は同時に行わず, 必要に応じて順次行った。

表 4.1 SQP の仕様

SQP	
モデル	SWP-355 (PL)
中心波長 (λ)	355 nm
分割数	12
リタデーション	$\lambda/2 \pm \lambda/40$
透過率	95 %

表 4.2 CCD カメラの仕様

CCD camera	
モデル	Fast 1394 (QImaging)
画素数	1392×1040
画素サイズ	$4.65 \mu\text{m} \times 4.65 \mu\text{m}$
露光時間	12 μs -17.9 min
階調数	4096

用いた SQP および CCD カメラの仕様は表 4.1, 4.2 にまとめた。SQP の分割数は 12 であり, したがって高品質の径偏光パルスが得られる (付録 A 参照)。また, リタデーション $\lambda/2 \pm \lambda/40$ は理想的な直線偏光が入射したとき, 変換後の径偏光パルスにおいて 99% 以上の成分が直線偏光であることに対応している。CCD カメラに関しては, 画素サイズ $4.65 \mu\text{m} \times 4.65 \mu\text{m}$ のカメラを用いており, 空間像のスケールはこのピクセルサイズから逆算して求める。また FWM 信号光の空間像の観測に際して, CCD カメラの典型的な露光時間は 10 ms であり, 画素飽和が起こらないように調整した。

図 4.2(a) に径偏光パルスの典型的な断面強度分布を示す。図から, リング型の強度分布が観測されていることが分かる。なお, 径偏光モード変換に際して SQP の中心の位置を精密に制御する

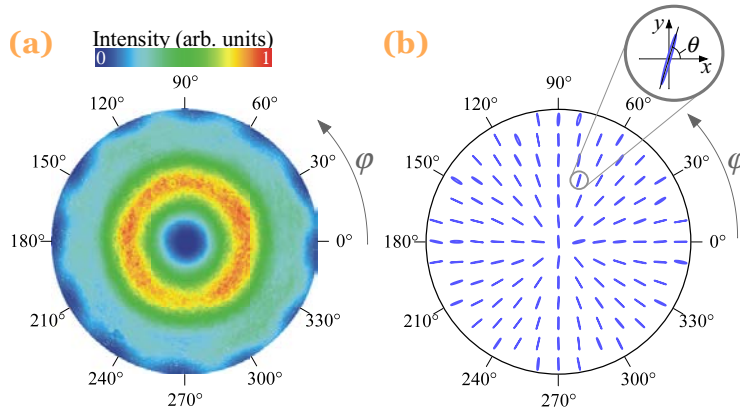


図 4.2 (a) 励起径偏光パルスの断面強度分布. 強度は最大強度で規格化した. また, 図の縁に方位角 φ を度 ($^{\circ}$) 単位で記入した. (b) 励起径偏光パルスの断面偏光分布. 各点の偏光状態は偏光楕円体によって描画した. 原点の位置は, 強度分布 [(a)] の強度暗点の位置に一致する.

ことにより, 励起パルス強度の方位角 (φ) 分布が可能な限り均一になるように調整している. その結果, φ に関してピーク強度の標準偏差 4 % の非常に回転対称性の高い径偏光パルスを得られた. 図 4.2(b) に励起径偏光パルスの断面偏光分布を示す. なお, 偏光分布は回転位相子法によって空間分解ストークスパラメータを測定することによって取得した. 図から, 励起パルス断面全域で偏光楕円体の長軸の大きさは短軸に比べて非常に大きいことが分かる. これは励起パルス対の偏光状態が, 断面全域に渡って直線偏光であることを意味している. また, 偏光楕円体の長軸が動径方向に平行であることも確認できる. これは偏光角度 θ と方位角 φ の間に $\theta = \varphi$ の関係が成り立っている, すなわち径偏光状態であることを意味している. 図 4.2(b) の偏光分布に対して拡張ストークスパラメータ [155] を用いた解析を行った結果, パルス全体に対する径偏光成分のエネルギーは 98% に達することを確認した. この値は, SQP によって得られた径偏光パルスが非常に高品質であることを意味している.

4.3 励起子異方性のスナップショット測定

本節では, 径偏光パルス励起 FWM 分光による異方的振動子強度のスナップショット測定法を確立する. 本節で試料として用いる a 面サファイア基板上 GaN 薄膜には基板の熱膨張率の異方性に起因する一軸歪が印加されており, これにより試料の励起子は $[11-20]$ 方向と $[1-100]$ 方向に平行な直線偏光に対して異なる振動子強度を示す. このとき, 振動子強度の大きさは交換相互作用定数 γ と一軸歪エネルギー δ_3 に依存する (2.3.3 参照). 4.3.1 節では, 径偏光パルスを励起光パルスとする FWM 分光によって, 試料の励起子振動子強度における異方性を信号光の空間像からスナップショット的に測定できることを示す. このとき, 得られた異方的振動子強度から γ を決定するとともに, すでに報告されている値と比較することで測定の妥当性を検証する. また, 試料に印加されている一軸歪エネルギー δ_3 の見積もりを行う. 加えて, δ_3 の膜厚依存性についても議論する. 続いて 4.3.2 節では, c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における偏光異方性を測定する. サ

ファイアの c 面の熱膨張係数に異方性は存在しないため、理想的には c 面サファイア基板上 GaN 薄膜の歪みは等方的 (二軸歪) であり、理想的には振動子強度に異方性は発現しない。しかし、 c 面サファイア基板上 GaN 薄膜において、結晶中の格子欠陥や転位、不純物によって試料位置に依存する微小な一軸歪 ($\delta_3 \sim 0.1$ meV) を生じることが知られている [159]。本章では c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対して上記スナップショット測定を適用し、本測定法がその微小な一軸歪を検出に十分な感度を有することを示す。

4.3.1 一軸歪試料の励起子異方性測定

膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ 試料の測定結果

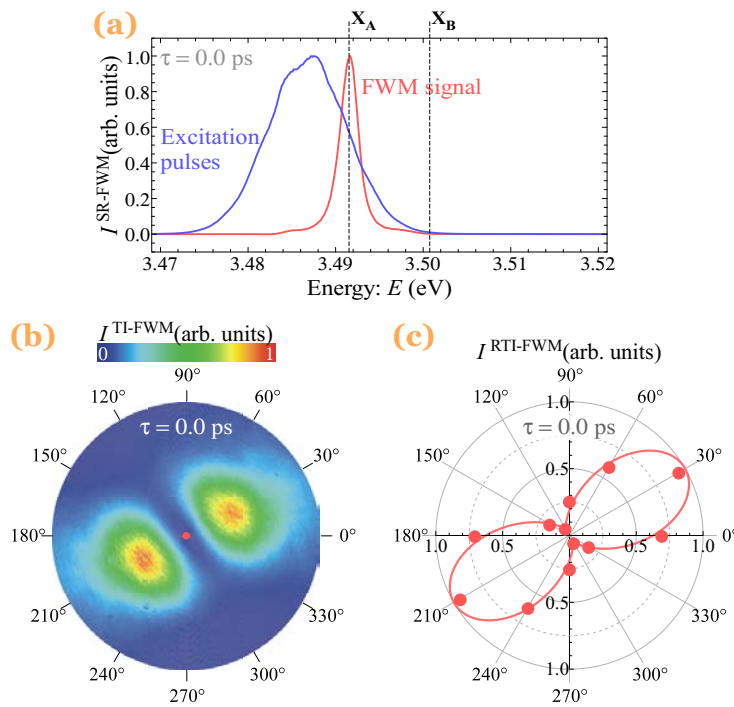


図 4.3 X_A 選択励起条件における測定結果. (a) 測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$. 遅延時間 τ は 0.0 ps に設定した. 図には X_A 共鳴エネルギーに対応する $E_A = 3.492$ eV に単一ピークが観測されている. 参考のため, 励起径偏光パルスのスペクトルを重ねて示した. なお, 縦軸は最大強度によって規格化した. (b) FWM 信号光の空間像. なお, 強度 [時間積分 FWM (TI-FWM) 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ に対応] は最大値によって規格化した. 赤点は極座標変換に際する座標原点に対応する. なお, 方位角 φ は強度分布の外縁に定義した. (c) 動径積分 TI-FWM 強度 ($I^{\text{RTI-FWM}}$) の φ 依存性. $I^{\text{RTI-FWM}}$ は最大値によって規格化した.

図 4.3(a) に膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の a 面サファイア基板上 GaN 薄膜に関して測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}(E, \tau)$ を示す. なお, 遅延時間 τ については, $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ および $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ 方向の FWM 信号光の遅延時間 τ 依存性を観測することで, 厳密に 0 になるように設定した. 図から, $E = 3.492$ eV における単一ピークが確認でき, このエネルギーは試料の X_A 共鳴エネルギー (E_A) に対応する. 今回は X_A からの応答を独立に測定するために, 励起パルスの中心エネルギー

を E_A よりも低エネルギー側に調整し、 X_A 共鳴を選択的に励起した。

X_A 選択励起の場合に観測された FWM 信号光の空間像を図 4.3(b) に示す。図から、信号光強度 [時間積算 FWM(TI-FWM) 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ に対応] が方位角 φ に応じて大きく変化していることが分かる。径偏光パルスは方位角 φ に応じて偏光角度 θ が変化する光パルスであることから、観測された $I^{\text{TI-FWM}}$ の φ 依存性は試料の異方性を反映していると考えられる。

CCD カメラによって得られるピクセル毎の信号強度分布 $I^{\text{TI-FWM}}[x_i, y_j]$ (i, j は整数) の φ 依存性を解析するために、図 4.3(b) の空間像に対して bi-cubic 法による画素補間に基づく極座標変換を行う。この極座標変換により、離散化された極座標位置 $[r_m, \varphi_n]$ (m, n は整数) における TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}[r_m, \varphi_n]$ が得られる。本研究では、 $I^{\text{TI-FWM}}$ の φ 依存性を動径に関して積算した動径積算 TI-FWM 強度 (radially integrated $I^{\text{TI-FWM}}$, $I^{\text{RTI-FWM}}$),

$$I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n] = \sum_m I^{\text{TI-FWM}}[r_m, \varphi_n], \quad (4.1)$$

から評価する。なお、極座標変換を行うに当たり、座標原点 $[0, \varphi_n]$ を正しく設定することが重要である。理想的な信号光強度は φ_n と $\varphi_n + \pi$ の方位角位置で等しくなると考えられることから、 $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ の二回対称性が最も高くなるように決定した [図 4.3(b) 赤点]。

図 4.3(c) に極座標変換によって得られた $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ を示す。図から、 $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ は $\varphi_n \sim 30^\circ, 210^\circ$ において最大値を示し、 $\varphi_n \sim 120^\circ, 300^\circ$ において最小値を示すことが分かる。 X_A は [11-20] 方向に平行な直線偏光に対して大きな振動子強度を示すことから、この結果は、今回測定した試料について $\varphi_n \sim 30^\circ, 210^\circ$ が [11-20] 方向に対応することを意味している。 $\tau = 0$ のとき、 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の $\varphi(=\theta)$ 依存性は光学ブロッホ方程式から次のように与えられる (2.5.2 節参照)。

$$\begin{aligned} I^{\text{RTI-FWM}}(\varphi) \propto & \left\{ |\mu_\xi|^2 \cos^2(\varphi - \varphi_\xi) + |\mu_\eta|^2 \sin^2(\varphi - \varphi_\xi) \right\}^2 \\ & \times \left\{ |\mu_\xi|^4 \cos^2(\varphi - \varphi_\xi) + |\mu_\eta|^4 \sin^2(\varphi - \varphi_\xi) \right\} \\ & \times \int_0^\infty dr |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}(r, \varphi)|^2 |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}(r, \varphi)|^2 |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}(r, \varphi)|^2. \end{aligned} \quad (4.2)$$

ここで、 $|\mu_\xi|^2$ および $|\mu_\eta|^2$ はそれぞれ [11-20] 方向と [1-100] 方向の直線偏光に対する励起子振動子強度である。また、 φ_ξ は [11-20] 方向に対応する方位角 φ であり、 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1(2)}(r, \varphi)$ は試料上における $\mathbf{k}_{1(2)}$ パルスの強度分布である。本研究では、式 (4.2) によるフィッティングを行うことによって振動子強度の見積もりを行う。ただし、 X_A の場合には $|\mu_\xi^A|^2 > |\mu_\eta^A|^2$ であることが分かっているため、この条件をフィッティングにおける拘束条件として課す。ここで、上付き文字 A は X_A についての振動子強度であることを示している。

図 4.3(c) に示した $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ に対して式 (4.2) によるフィッティングを施した結果、振動子強度比 $|\mu_\xi^A|^2 / |\mu_\eta^A|^2$ として 1.92 ± 0.05 が得られた。ここで、誤差 ± 0.05 はフィッティングにおける標準偏差に対応しており、フィッティングには複数回測定によって得られた統計誤差と、今回の実験に用いた入射径偏光パルス電場 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1(2)}(r, \varphi)$ について見積もられた $\int_0^\infty dr |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}(r, \varphi)|^2 |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}(r, \varphi)|^2 |\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}(r, \varphi)|^2$ の φ の標準偏差 $\pm 9.2\%$ を考慮した。

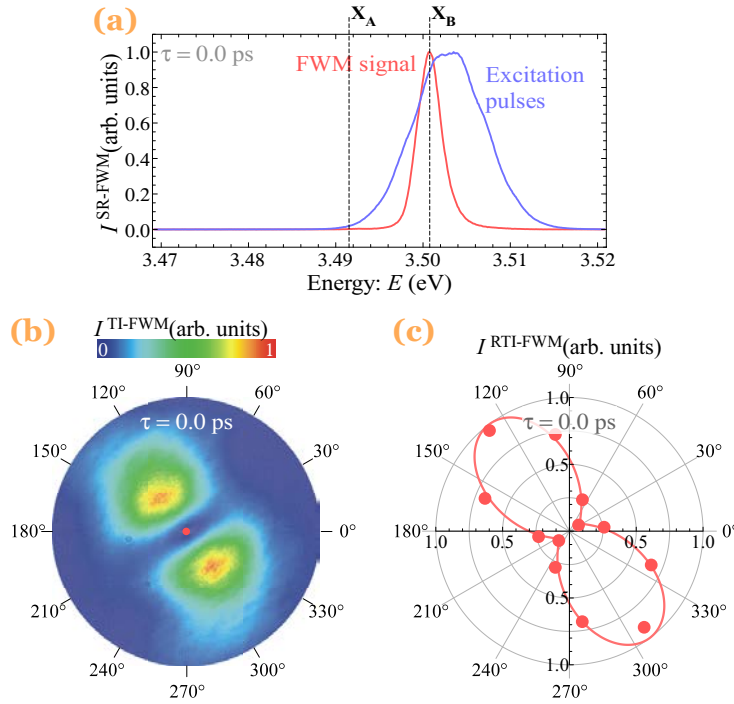


図 4.4 X_B 選択励起条件における測定結果. (a) 測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ および励起径偏光パルスのスペクトル. X_B 共鳴エネルギーに対応する $E_B = 3.501$ eV に単一ピークが観測されていることが分かる. (b) FWM 信号光の空間像. (c) 動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の方位角 φ 依存性.

続いて, X_B に対して異方的振動子強度のスナップショット測定を行った結果を示す. X_B 選択励起は, 励起径偏光パルスにおける中心エネルギーを X_B 共鳴エネルギーより大きくすることで実現した [図 4.4(a) 参照]. 図から X_B 共鳴エネルギーに対応する $E_B = 3.501$ eV に単一ピークが観測されており, X_A 共鳴エネルギーに対応する $E_A = 3.492$ eV のピークが十分に抑圧されていることが確認できる. 図 4.4(b) に FWM 信号光の空間像, 図 4.4(c) に動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ の極プロットをそれぞれ示す. これらの図から, X_B については, $\varphi_n \sim 130^\circ, 310^\circ$ において最大値を示すことが分かり, したがって X_A の結果とおおよそ直交することが分かる. 図 4.4(c) の $I^{\text{RTI-FWM}}[\varphi_n]$ に対して X_A 選択励起の場合と同様に式 (4.2) によるフィッティングを行った結果, 振動子強度比 $|\mu_\eta^B|^2 / |\mu_\xi^B|^2$ として 1.75 ± 0.03 が得られた. なお, フィッティングに際して $|\mu_\eta^B|^2 > |\mu_\xi^B|^2$ の拘束条件を課した.

ここでスナップショット測定の確度を評価するために, 測定した振動子強度比から交換相互作用定数 γ を算出する. 交換相互作用定数 γ は GaN 固有の値であり, 試料に依存しない. したがって, 本測定で得られた γ の値を過去に得られた値と比較することによって, 測定の確度を評価することができる. M. Julier らの解析 (2.3.3 節参照) に基づくと, 本節で得られた $|\mu_\xi^A|^2 / |\mu_\eta^A|^2 = 1.92 \pm 0.05$ および $|\mu_\eta^B|^2 / |\mu_\xi^B|^2 = 1.75 \pm 0.03$ から, 交換相互作用定数 γ として $\gamma = 0.6 \pm 0.2$ meV, 一軸歪のエネルギー δ_3 として $\delta_3 = -1.40 \pm 0.05$ meV が得られた. なお試

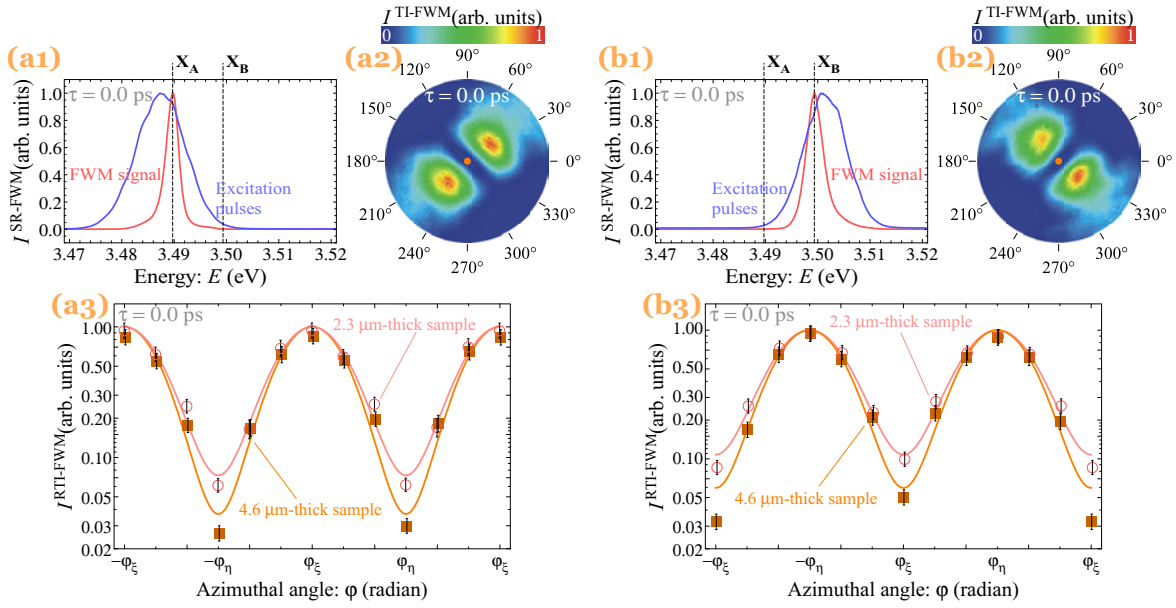


図 4.5 膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ の a 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対するスナップショット偏光測定結果. (a1) X_A 選択励起における SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$. 参考のため, $I^{\text{SR-FWM}}$ には励起径偏光パルスのスペクトルを合わせて示した. なお, 縦軸は最大値によって規格化した. (a2) 信号光空間像. 強度は最大値によって規格化した. (a3) 動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の方位角 φ 依存性. $I^{\text{RTI-FWM}}$ は最大値によって規格化した. また, 縦軸は対数スケールで示した. 加えて, 参考のために膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の試料における結果についてもあわせて示した. エラーバーは, 複数測定から求めた統計誤差と励起径偏光パルス強度の φ に対する不均一性がもたらす誤差を表す. (b1-3) X_B 選択励起における $I^{\text{SR-FWM}}$, 信号光空間像および $I^{\text{RTI-FWM}}$ の φ 依存性.

料に印加されている二軸歪を表す実効的結晶場パラメータ Δ'_1 は, X_A および X_B 共鳴エネルギー差 9.2 meV を考慮して $\Delta'_1 = 28 \text{ meV}$ とした. $\gamma = 0.6 \pm 0.2 \text{ meV}$ は, 反射率分光により得られた $\gamma = 0.6 \pm 0.1 \text{ meV}$ [100] および蛍光測定によって得られた $\gamma = 0.58 \pm 0.05 \text{ meV}$ [161] にほぼ一致する. また GaN と同じ III-V 族半導体であり, 原子間距離が GaN とほぼ同じ GaP において, 交換相互作用定数が 0.6 meV [162] であることから, 本測定で得られた $\gamma = 0.6 \pm 0.2 \text{ meV}$ は妥当であると考えられる. 妥当な γ の値を得られたことから, 今回行ったスナップショット測定によって異方的励起子振動子強度を正確に評価可能と結論付けられる. 加えて, 一軸歪エネルギー δ_3 を $\pm 0.05 \text{ meV}$ の精度で評価できることも確認できた.

膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ 試料の測定結果

前節の結果から, 径偏光パルス励起 FWM 分光によって一軸歪エネルギー δ_3 を $\pm 0.05 \text{ meV}$ の精度で決定できることを明らかにした. 本節では, この高い測定精度を利用して試料に印加された一軸歪エネルギー δ_3 の膜厚依存性測定を試みる. 一般的な傾向として, 膜厚の増加に伴って基板の反対側における歪が緩和されるため, 膜厚の大きい試料の δ_3 は小さくなると予想される.

図 4.5 に膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ の a 面サファイア基板上 GaN 薄膜において測定した SR-FWM 強度

$I^{\text{SR-FWM}}$, 信号光空間像, および動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の方位角 φ 依存性を示す. (a1-3) は X_A 選択励起, (b1-3) は X_B 選択励起における測定結果である. 図 4.5(a1) および (b1) に示した $I^{\text{SR-FWM}}$ から, $E_A = 3.490$, $E_B = 3.500$ eV が見積もられ, 膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の試料に比べてそれぞれ 0.1 eV 程度のエネルギー低下が観測された. 励起子共鳴エネルギーの低下は, 膜厚が $4.6 \mu\text{m}$ に増加したことによる二軸歪の緩和に対応付けることができる. 図 4.5(a2) および (b2) に示した信号光の空間像には, 異方的振動子強度を反映した二重回転対称の強度分布が観測されていることが分かる. 図 4.5(a3) および (b3) に動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の方位角 φ 依存性を示す. なお, 参考のために, 図には前節で得られた膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の試料の結果も示した. 図から今回測定を行った膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ の試料は, X_A および X_B のそれぞれについて, 膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ 試料よりも信号光の最大・最小強度の差が大きくなっていることが分かる. この結果は, 今回用いた膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ 試料が膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の試料よりも大きな振動子強度比を持つことを示唆している. 実際に, $I^{\text{RTI-FWM}}$ の φ 依存性について式 (4.2) によるフィッティングを行った結果, 膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ の試料に関して $|\mu_\xi^A|^2 / |\mu_\eta^A|^2 = 2.28 \pm 0.09 \text{ meV}$, $|\mu_\eta^B|^2 / |\mu_\xi^B|^2 = 2.02 \pm 0.05 \text{ meV}$ が得られ, これらの値から算出された一軸歪エネルギー $\delta_3 = -1.8 \pm 0.1 \text{ meV}$ は膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の試料における $\delta_3 = -1.40 \pm 0.05 \text{ meV}$ よりもその絶対値が大きいことが分かった.

膜厚 $4.6 \mu\text{m}$ の試料の方が一軸歪のエネルギー δ_3 の絶対値が大きいことは, 今回得られた結果が膜厚増加による δ_3 の緩和とは逆の傾向であることを意味している. しかし, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜における光学特性はヘテロエピタキシャル成長時における基板の品質や結晶方位角度差に強く依存することが知られており [163], これによって独立な試料間の δ_3 の関係が一般的な傾向から外れている可能性がある. 実際に, 過去に行われた同一の試料に対する最低次ガウスモードの光パルスを用いた偏光分解 FWM 分光の結果は, 本節の結果と同様の δ_3 の膜厚依存性を示している [159]. したがって, 本節で観測した δ_3 の膜厚依存性は, 試料の特性を正しく反映していると結論付ける.

4.3.2 等方歪試料の励起子異方性測定

4.3.1 節の結果から, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜における直交直線偏光に対する振動子強度比は ~ 2 程度であることが分かった. しかし, ~ 2 程度の振動子強度比であるにも関わらず, 直交励起偏光に対する TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ の比は ~ 20 に達していた. これは FWM の非線形性により $I^{\text{TI-FWM}}$ が振動子強度の 4 乗に比例することに起因しており, この 4 乗則によって小さい振動子強度差を増強して観測することが可能である [109]. したがって, FWM 分光は異方的励起子振動子強度を高感度に測定可能であると言える. 本節では FWM 分光に基づくスナップショット測定の高感度性を示すために, 本測定を c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に適用する. サファイア基板の c 面における熱膨張率は等方的であるため, 理想的には c 面サファイア基板上にエピタキシャル成長した GaN 薄膜の歪に異方性は存在しない. しかし, 格子欠陥や不純物によって二軸歪に異方性が生じ, これが実効的な一軸歪となって c 面サファイア基板上 GaN 薄膜にも励起子振動子強度に異方性が生じることが報告されている [159]. 本節ではこの異方的励起子振動子強度から, c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における実効的な一軸歪エネルギー δ_3 の見積もり

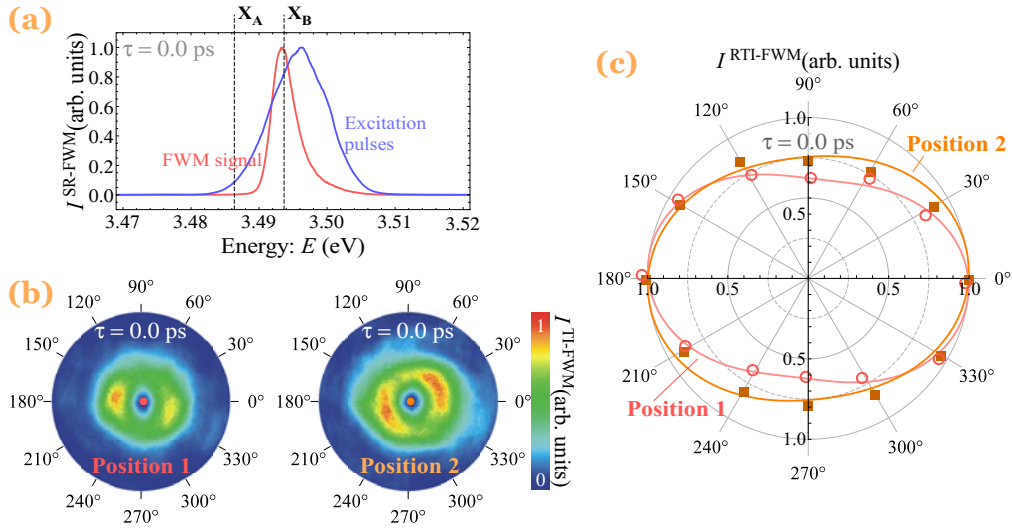


図 4.6 膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対するスナップショット偏光測定結果. (a) X_B 選択励起条件で観測された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$. 図には X_B 共鳴エネルギーに対応する $E_B = 3.494$ eV に単一ピークが観測されている. なお, 参考のため, $I^{\text{SR-FWM}}$ には励起径偏光パルスのスペクトルを合わせて示した. また, 縦軸は最大値によって規格化した. (b) 観測された信号光空間像. 空間像は試料の異なる 2 点で観測された信号光についてそれぞれ示した. なお, 信号光強度は最大値によって規格化した. (c) 動径積算 TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ の方位角 φ 依存性の極プロット. なお, $I^{\text{TI-FWM}}$ は最大値によって規格化した.

を行う.

図 4.6 に膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対して行った径偏光パルス励起 FWM 分光によるスナップショット偏光測定の結果を示す. なお, すでに a 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対する実験結果から GaN における交換相互作用定数 $\gamma = 0.6 \pm 0.2$ meV が決定されており, この値を用いることで X_A または X_B のいずれか一方に関する振動子強度の異方性から一軸歪エネルギー δ_3 を決定することが可能である. 今回は励起子分子の影響を無視するために, X_B 選択励起の結果から δ_3 の見積りを行う. 励起子分子共鳴は X_A および X_B の低エネルギー側に存在し [164], したがって励起光パルスの中心エネルギーを X_A 共鳴エネルギーより低エネルギー側に設定する X_A 選択励起条件では, 励起子分子に対応する応答が同時に検出されることが懸念される. 実際に図 4.3(a) の FWM 信号光のスペクトルには, 励起子分子 (XX_{AA}) に対応すると考えられる微小なピークが X_A 共鳴の低エネルギー側に観測されている. 一方, X_B 選択励起では, 励起径偏光パルスの中心エネルギーを X_B 共鳴より高エネルギー側に設定するため, 励起子分子に起因する信号成分を抑圧することができる. なお, X_B 共鳴の高エネルギー側には X_C 共鳴が存在するが, そのエネルギーは X_B 共鳴エネルギーより 20 meV 以上大きい [98] ため実験結果に影響しない.

図 4.6(a) に膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対して測定された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す. 図から X_A 共鳴エネルギーに対応する $E_A = 3.486$ eV 信号成分が抑圧されており, 共鳴エネルギー $E_B = 3.494$ eV で特徴付けられる X_B の選択励起が実現されている

ことが分かる．図 4.6(b) に測定した FWM 信号光の空間像を示す．なお，信号光空間像は試料上の異なる二点の試料位置に励起光偏光パルスを照射した場合についてそれぞれ示した．図から， c 面サファイア基板上 GaN 薄膜において観測される信号光空間像は等方的ではなく，異方的励起子振動子強度を示唆する二回対称性を示すことが分かる．さらに，最大強度を示す方位角 φ が 2 つの試料位置で異なることが分かる．このような位置依存性は， c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における異方的歪が格子欠陥・不純物に起因するためであると考えられる．図 4.6(c) に，動径積分 TI-FWM 強度 $I^{\text{RTI-FWM}}$ の φ 依存性を示す．一軸歪の存在を仮定して式 (4.2) によるフィッティングを行うと，歪の方向が二点でおよそ 13° 異なり，したがって歪方向が試料位置によって異なることを確認した．また，異方的振動子強度比から算出された一軸歪のエネルギー δ_3 は，二つの位置に関してそれぞれ 0.29 ± 0.03 , 0.17 ± 0.02 meV と見積もられ，二つの位置の間に有意な差が確認できた． c 面サファイア基板上 GaN 薄膜に対して見積もられたこれらの値は， a 面サファイア基板上 GaN 薄膜における一軸歪エネルギー δ_3 に比べておよそ一桁小さく，したがって本節で確立したスナップショット偏光測定は c 面サファイア基板上 GaN 薄膜における 0.1 meV 程度の微小な一軸歪検出に十分な測定感度を持つと結論付けられる．

4.4 偏光特異点解析に基づく回転対称性破れの検出

本節では、径偏光パルス励起 FWM 信号光における空間偏光測定を行い、観測された偏光特異点分裂の起源を明らかにするとともに、励起子分極の回転対称性破れを検出する手法を確立する。まず始めに、フリースタンディング GaN に対して測定された FWM 信号光の空間偏光分布を示し、信号光に有意な偏光特異点分裂が生じることを明らかにする (4.4.1 節)。フリースタンディング GaN において観測された偏光特異点分裂は、励起径偏光パルスにおける微小な空間チャープを起源としており、空間チャープがもたらす励起子分極の回転対称性破れは、偏光特異点分裂に直結する最低次ガウスモードの摂動光を生じる。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によって解析し、観測された偏光特異点分裂を再現する。また、計算による解析から、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することが明らかとなる。4.4.2 節では、FWM 信号光における偏光特異点の分裂幅や分裂方向等の情報から試料に誘起された励起子分極の回転対称性破れの特徴付けを行うことを試みる。デモンストレーションのために用いた試料は a 面サファイア基板上 GaN 薄膜である。この試料における偏光異方性は上記の空間チャープと相まって信号光に非常に複雑な時空間偏光ダイナミクスをもたらすが、このとき偏光特異点に注目することで励起子分極の回転対称性破れ (非対称性) を簡潔に理解できることを示す。

4.4.1 偏光特異点分裂: フリースタンディング GaN の場合

径偏光パルス励起 FWM 信号光の断面偏光および特異点の観測結果

本節では、フリースタンディング GaN (膜厚 $70\ \mu\text{m}$) に対して観測された径偏光パルス励起 FWM 信号光の断面偏光分布を示し、我々が観測した信号光に有意な偏光特異点分裂が生じていることを示す。また、励起光パルスの空間チャープから観測された偏光特異点分裂を再現する。

図 4.7(a) に今回用いた励起径偏光パルスの断面強度および偏光分布を示す。図から、励起径偏光パルスは高い回転対称性を持つリング型の強度分布を示していることが分かる。また、偏光楕円体に注目すると長軸が動径方向に平行である。図 4.7(b) に x 軸からの長軸の傾き θ の等高線図を示す。この等高線図において、等高線が収束している点が偏光特異点に対応する。図から、等高線は 1 点に収束していることが分かり、この偏光特異点はトポロジカルチャージ $s = 1$ の偏光特異点に対応する。

励起径偏光パルスにおいて縮退していた偏光特異点は、FWM 信号光において 2 つの $s = 1/2$ の偏光特異点に分裂する。図 4.7(c) に測定した SR-FWM 強度 ($I^{\text{SR-FWM}}$) を示す。励起径偏光パルスの中心エネルギーは X_A および X_B 共鳴エネルギー ($E_A = 3.475$, $E_B = 3.480$ eV) の中間に調整しており、これによって X_A および X_B の同時励起を行った。図 4.7(d) に FWM 信号光の空間像および断面偏光分布を示す。図から、FWM 信号光が比較的回転対称性の高いリング型強度分布を示していることが分かる。また、偏光楕円体に注目すると、励起光パルスと同様に長軸方向が動径方向と概ね平行であることが分かる。図 4.7(e) に偏光角度 θ の等高線図を示す。図から、励起径偏光パルスにおいて縮退していた偏光特異点が 2 つに分裂していることが確認できる。

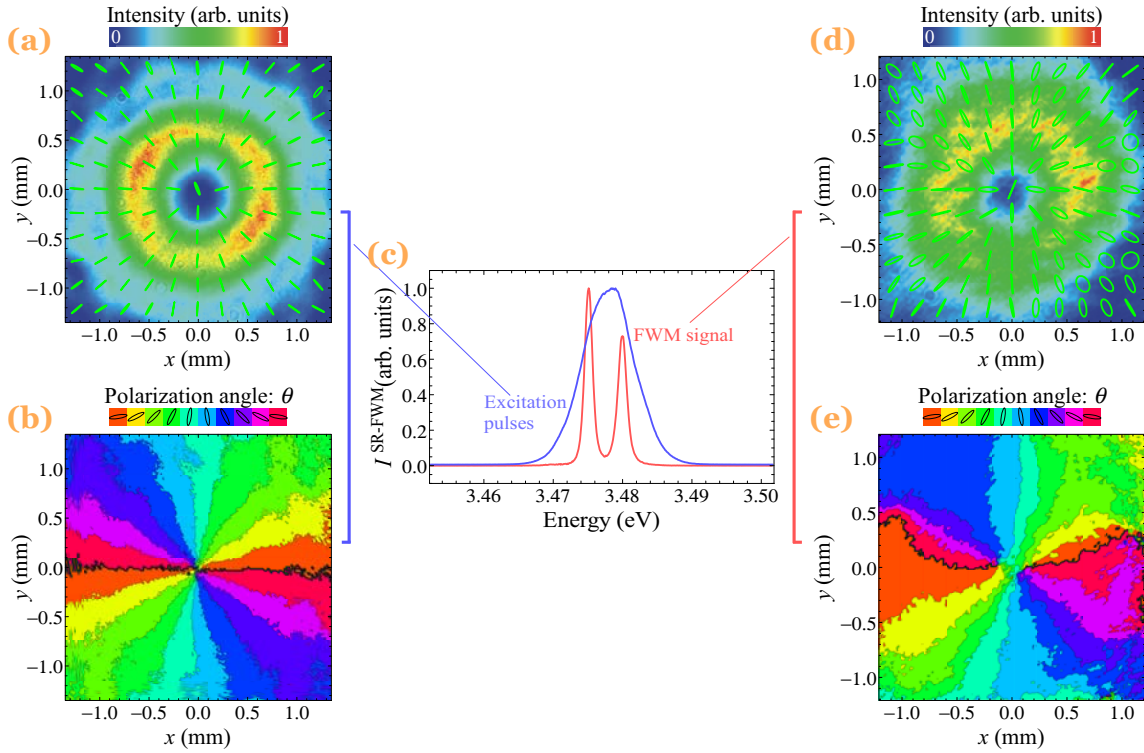


図 4.7 (a) 励起径偏光パルスの断面強度および偏光分布. 強度は最大強度によって規格化した. また, 各点における偏光状態は偏光楕円体によって表現した. なお, リング強度分布においてピークを示す半径 r_p は 0.70 mm と見積もられており, プロット範囲はこの 4 倍とした. (b) 励起径偏光パルスにおける偏光角度 θ の等高線図. (c) 観測された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$. 縦軸は最大強度によって規格化した. また, 遅延時間 $\tau = 0.0 \text{ ps}$ に設定した. 参考のため, 励起径偏光パルスのスペクトルもあわせて示した. (d) $\tau = 0.0 \text{ ps}$ で観測された FWM 信号光の空間像 (TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ の空間分布に対応) および偏光分布. 強度は最大強度によって規格化した. なお, 信号光のリング強度分布のピーク半径 $r_p = 0.60 \text{ mm}$ と見積もられており, 励起径偏光パルスの場合と同様に r_p の 4 倍をプロット範囲とした. (e) 信号光偏光角度 θ の等高線図.

また, 分裂したそれぞれの特異点周りで θ が合計で π 変化していることが分かる. これは, 分裂した偏光特異点のトポロジカルチャージについて $s = 1/2$ であることを示唆している.

図 4.7(e) で示唆された偏光特異点分裂を定量的に特徴付けるために, 信号光断面におけるトポロジカルチャージ s の算出を行う. 今回用いる手法は位相特異点位置を同定するために確立された手法 [165, 166, 167] を基にしているが, 偏光角度 θ に対して同様の解析を行うことによって偏光特異点位置を同定することができる. ただし, 位相の周期が 2π に対応することに対し, 偏光角度 θ は θ と $\theta + \pi$ が等価な偏光状態であることから π の周期性を持つ. したがってトポロジカルチャージ s の評価には, この周期性の違いを考慮する必要がある. 偏光角度分布 $\theta(x, y)$ に関する

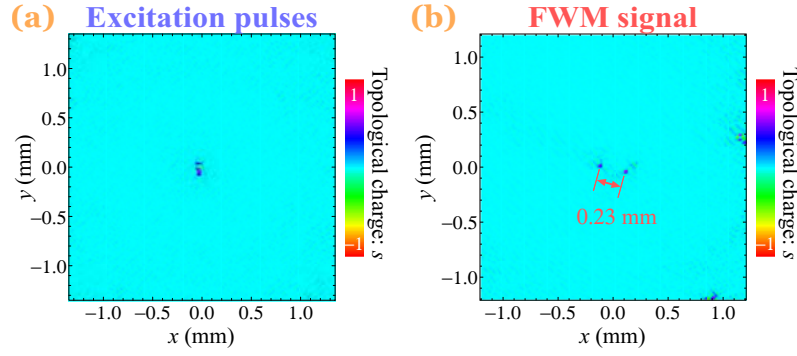


図 4.8 (a-b) 励起径偏光パルスおよび FWM 信号光断面におけるトポロジカルチャージ s の密度プロット。プロット範囲は、励起パルスおよび FWM 信号光共に図 4.7(b) および (e) と一致している。

トポロジカルチャージ s は一般に次のように与えられる [168]*1。

$$s = \frac{1}{2\pi} \oint_C \nabla\theta(x, y) \cdot d\mathbf{l}. \quad (4.3)$$

ここで、線積分は閉曲線 C 上の経路 $\mathbf{l}$ 上で計算される。式 (4.3) の計算において、閉曲線 C が偏光特異点を含む場合は $s \neq 0$ が得られる。今回のように偏光分布が CCD のピクセル分解能で決まる場合 $[\theta[i, j]]$ (i, j は整数), 式 (4.3) に対応する計算は次のように与えられる [165]。

$$s = 2 \times (\nabla_x \otimes \nabla\theta_y + \nabla_y \otimes \nabla\theta_x). \quad (4.4)$$

ここで、係数 2 は位相の場合との周期性の違いを考慮した係数である。 $\nabla\theta_{x(y)}$ は偏光角度 θ に関する勾配の $x(y)$ 成分であり、 θ がピクセルで限定される場合、隣り合うピクセルにおける値の差、

$$\nabla\theta_x[i, j] = \theta[i + 1, j] - \theta[i, j], \quad \nabla\theta_y[i, j] = \theta[i, j + 1] - \theta[i, j], \quad (4.5)$$

によって近似できる。ここで、

$$\nabla_x = \begin{bmatrix} -1/2 & 0 & 1/2 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1/2 & 0 & 1/2 \end{bmatrix}, \quad \nabla_y = \begin{bmatrix} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 0 & 0 & 0 \\ -1/2 & -1 & -1/2 \end{bmatrix}, \quad (4.6)$$

は畳み込み行列である。以上の計算は、注目する位置 $[i, j]$ における s を周りを囲む 8 つのピクセル $[i - 1, j - 1], [i, j - 1], [i + 1, j - 1], [i - 1, j], [i + 1, j], [i - 1, j + 1], [i, j + 1], [i + 1, j + 1]$ によって形成される閉曲線 C に関する線積分から計算することに対応している [166]。このように閉曲線 C によって囲まれるピクセルを 1 つに制限することで、トポロジカルチャージ s が有限値の点、すなわち偏光特異点の位置を可能な限り最も高い空間分解能で特定できる。今回は、上記の計算を図 4.7(b) および (e) の空間偏光分布に適用し、偏光特異点位置の特定およびトポロジカルチャージ s の算出を行った。

*1 本研究では $\theta = \tan^{-1} S_2/S_1$ で定義しており、このとき s は Ref. [168] における Stokes index に対応する。

図 4.8 に励起パルスおよび FWM 信号光断面におけるトポロジカルチャージ s の空間分布を示す. まず励起パルスのトポロジカルチャージ分布 [図 4.8(a)] に注目すると, 中心 ($x = 0, y = 0$) 付近に s が非零の点が局在することが分かる. このとき, s の最大値は 0.57 であり, 理想的な値 1 の $1/2$ 程度であることが分かった. すなわち, 実際には励起径偏光パルスの偏光特異点は 2 つの $s = 1/2$ の偏光特異点に分裂している. ただし, 図 4.8(a) から分かるように, 偏光特異点の分裂幅は非常に小さいと言える. これに対して, FWM 信号光のトポロジカルチャージ分布 [図 4.8(b)] には 2 つの $s \neq 0$ の点が明確に観測されており, これら 2 点は励起パルスの場合に比べて大きく離れていることが分かる. これら 2 つの点に関して s の値はそれぞれ 0.59, 0.48 と見積もられ, それぞれ $1/2$ に近い値を持つことが確認できた. この結果は, FWM 信号光において有意な特異点分裂が生じていることを意味している. なお, 分裂幅は 0.23 mm と見積もられており, この値は信号光のリング型強度分布におけるピーク直径 $2r_p = 1.21 \text{ mm}$ に対して 19 % の大きさに対応する.

回転対称性破れの起源: 励起径偏光パルスにおける空間チャープ

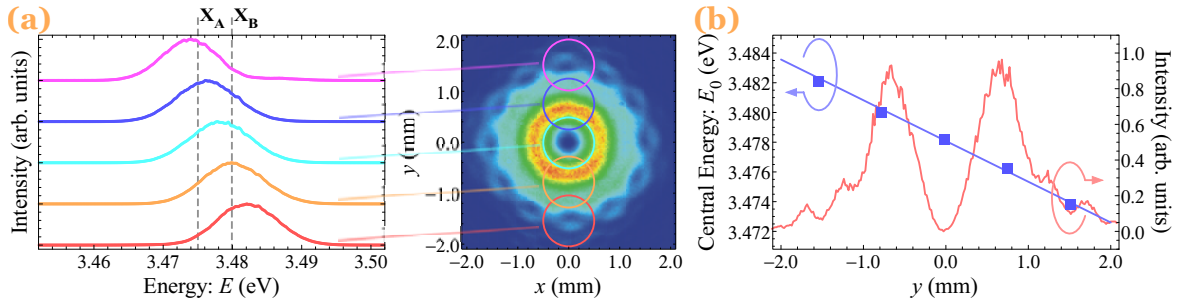


図 4.9 (a) 励起径偏光パルスにおけるスペクトルの y 依存性. 図中の円は空間フィルターによって抽出した領域を表す. (b) 中心エネルギー E_0 の y 依存性. 参考のため, 励起光パルスのプロファイルも合わせて示した.

4.4 節の冒頭で述べたように, 偏光特異点分裂の起源は励起径偏光パルスにおける微小な空間チャープに起因することが分かっている. 図 4.9(a) に励起径偏光に関して測定したスペクトルの空間位置 y 依存性を示す. なお, スペクトルの y 依存性は, 励起径偏光パルスの一部を 1 mm の開口直径を持つ空間フィルターを用いて取得した. 図から, 中心エネルギー (E_0) が y に応じて変化していることが分かる. なお, スペクトル幅 ΔE の変化については E_0 の変化に比べて十分小さいことを確認している. それぞれの空間位置 y におけるスペクトルをガウス関数 $g(E) = \exp[-(E - E_0)^2 / \Delta E^2]$ によってフィッティングすることによって得られた E_0 の y 依存性を図 4.9(c) に示す. 図から, 中心エネルギー E_0 が y に対してほぼ線形に変化していることが分かる. なお, 中心エネルギー E_0 は x 方向ではほぼ一定であることを確認している. 線形チャープを仮定したとき, 中心エネルギー E_0 の y に対する勾配 dE_0/dy は -2.6 meV/mm に相当する.

励起光パルスに空間チャープが存在することは, 励起光パルスと図 4.9(a) の破線で示した

$X_A(X_B)$ 共鳴のスペクトルオーバーラップに空間依存性が存在することを意味している．これにより，励起子分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ の空間分布に非対称性が生じる．次節では，非対称性を持つ $\mathcal{P}^{(3)}$ が径偏光モードと均一直線偏光のガウスモードの重ね合わせ状態であることを，モデルを用いた数値計算によって示す．このような最低次ガウスモードの摂動光は，FWM 信号光に偏光特異点分裂をもたらす．

回転対称性破れによる最低次ガウスモード成分の発現

本節では，空間チャープを持つ径偏光パルスによって試料に誘起された励起子分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ (FWM 信号光に対応) の横モード展開を行う．空間チャープを含む径偏光パルスによって誘起される $\mathcal{P}^{(3)}$ のモデルについては付録 B をされたい．なお，バンドパラメータについては 2.3.2 節の表 2.1 に示した現実的な値を用いる．今回はエルミートガウスモード $u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z = 0)$ を用いて $z = 0$ に配置された試料に誘起された $\mathcal{P}^{(3)}$ の横モード展開を行う．エルミートガウスモードを用いた理由は，観測した空間チャープ (図 4.9) が y 方向に勾配を持つことから，直交座標系で定義されるエルミートガウスモードによる展開が妥当であると考えたためである．本節では， $\mathcal{P}^{(3)}$ の $E = E_A$ のエネルギー成分 $\mathcal{P}_A^{(3)}$ に関して計算したエルミートガウスモード展開結果を示す．なお， $E = E_B$ のエネルギー成分 $\mathcal{P}_B^{(3)}$ についても同じ結論を得られることから，これを省略する．エルミートガウスモード展開は x 偏光成分 $\mathcal{P}_{Ax}^{(3)}$ と y 偏光成分 $\mathcal{P}_{Ay}^{(3)}$ のそれぞれについて，次式に従って個別に行った．

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{P}}_{Ax(y)}^{(3)}(x, y, z = 0, \tau) &\propto \sum_{n,m} C_{nm}^{Ax(y)}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, 0), \\ C_{nm}^{Ax(y)}(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy \hat{\mathcal{P}}_{Ax(y)}^{(3)}(x, y, 0, \tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, 0)^*. \end{aligned} \quad (4.7)$$

式 (B.4) により，モード次数 (m, n) のエルミートガウスモード u_{mn}^{HG} に関する複素モード振幅 $C_{nm}^{Ax(y)}(\tau)$ が得られる．なお， $\mathcal{P}_{Ax(y)}^{(3)} = \hat{\mathcal{P}}_{Ax(y)}^{(3)} \exp[-i(E_A/\hbar - i\Gamma)t]$ であり， $\hat{\mathcal{P}}_{Ax(y)}^{(3)}$ はモード展開に寄与しない伝播項 $\exp[-i(E_A/\hbar - i\Gamma)t]$ を除いた部分を表す ($\hbar\omega_A = E_A$, Γ は位相緩和レート)．励起径偏光パルスの中心エネルギー E_0 については， $E_0(x, y) = 3.479$ eV と $E_0(x, y) = 3.4790 - 0.0026y/w_0$ eV について計算した (w_0 は励起径偏光パルスのビーム径)．前者は空間チャープを無視した場合の計算結果，後者は我々が用いた励起径偏光パルスの空間チャープを反映した計算結果である．

図 4.10(a) に空間チャープを無視した場合の x 偏光成分 $\hat{\mathcal{P}}_{Ax}^{(3)}$ および y 偏光成分 $\hat{\mathcal{P}}_{Ay}^{(3)}$ のモード展開結果を示す．モード展開の結果， x 偏光成分 $\hat{\mathcal{P}}_{Ax}^{(3)}$ については u_{10}^{HG} が最も大きなモード強度 $|C_{10}^{Ax}|^2$ を持ち， y 偏光成分は $\hat{\mathcal{P}}_{Ay}^{(3)}$ については u_{01}^{HG} が最も大きなモード強度 $|C_{01}^{Ay}|^2$ を持つことが分かった．径偏光状態が x 偏光の u_{10}^{HG} と y 偏光の u_{01}^{HG} の重ね合わせで与えられる (2.5.1 節参照) ことから，この計算結果は妥当であると言える．ただし，これら支配的なモード以外にも非零のモード強度を有するモードの存在が確認できる．これらは入射光電場 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1(\mathbf{k}_2)}$ の積 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}\mathcal{E}_{\mathbf{k}_2}\mathcal{E}_{\mathbf{k}_1}^*$ が固有モードではないことに起因するサイドモード成分 [122] であり，特異点分裂には寄与しないことが分かっている．

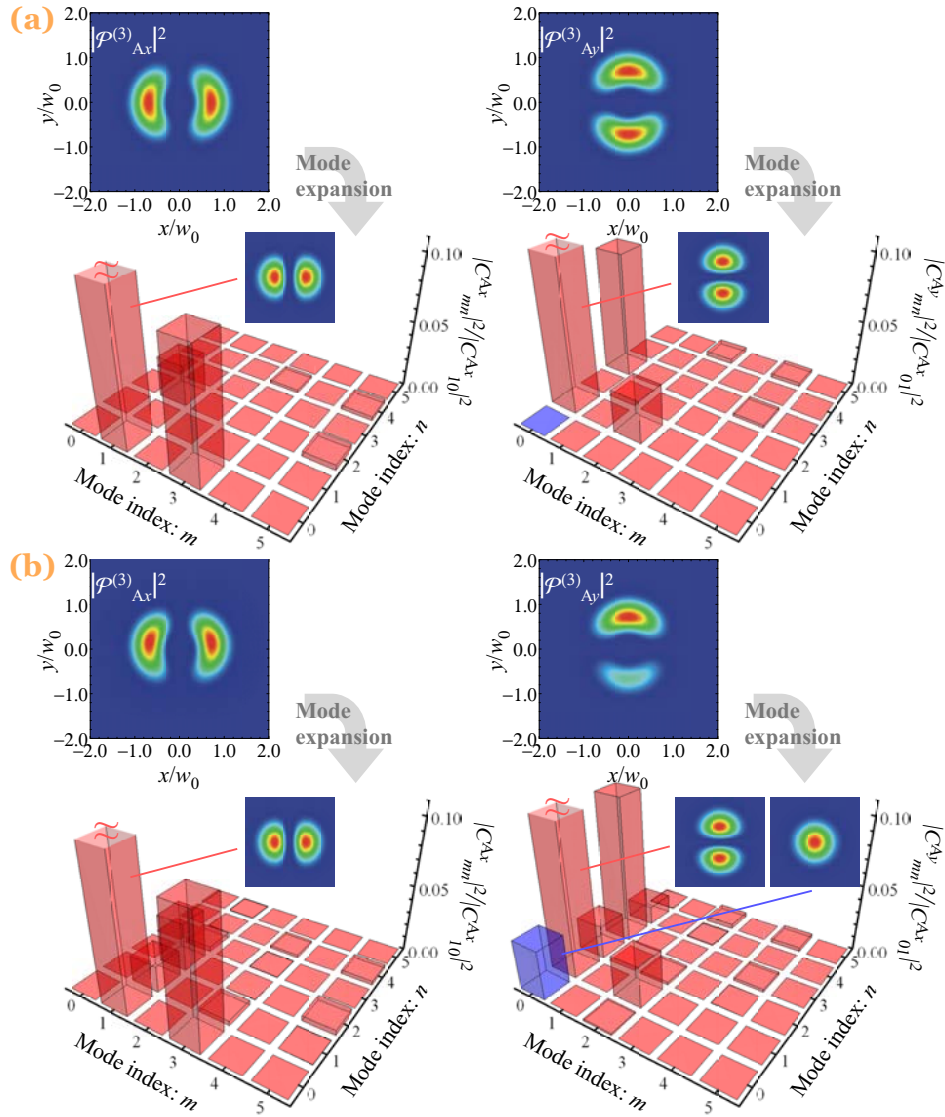


図 4.10 $E = E_A$ のエネルギー成分に対するエルミートガウスモード展開結果. (a) 空間チャープを無視した場合の x 偏光成分 $\hat{P}_{Ax}^{(3)}$ および y 偏光成分 $\hat{P}_{Ay}^{(3)}$ の強度分布およびモード展開結果. 強度 (時間分解 FWM 強度 $I^{\text{TR-FWM}}$ に対応) は最大値によって規格化した. モード展開結果について, x 偏光成分については $|C_{10}^{Ax}|^2$, y 偏光成分については $|C_{01}^{Ay}|^2$ で規格化した. また, 主要なモードについては内挿図として強度分布を示した. (b) 励起径偏光パルスに空間チャープが存在する場合のモード展開結果.

図 4.10(b) に空間チャープを考慮した際のモード展開結果を示す. 空間チャープが存在しない場合 [図 4.10(a)] との大きな違いは, y 偏光成分に最低次ガウスモードに対応する u_{00}^{HG} 成分が比較的大きなモード強度を持って存在することである [支配的なモード u_{01}^{HG} のモード強度 $|C_{01}^{Ay}|^2$ に対して 4 % 程度]. なお, 空間チャープによって u_{00}^{HG} モードが生じることは y 偏光成分 $|\hat{P}_{Ay}^{(3)}|^2$ の空間分布から直観的に理解できる. 図 4.10(b) に示した $|\hat{P}_{Ay}^{(3)}|^2$ は $+y$ 領域で大きく, $-y$ 領域で小さい. このような非対称性は, 空間チャープにより X_A 共鳴と励起光パルスのスペクトルオー

オーバーラップが $+y$ 領域で大きくなるために生じる。横モードの観点から述べると、このような y に関して非対称な強度を持つ光波は、 $+y$ 領域と $-y$ 領域で位相が π 異なる 1 次のエルミートガウスモード u_{01}^{HG} と x - y 平面で一様な位相を持つ最低次ガウスモード u_{00}^{HG} の重ね合わせ状態として理解できる。 u_{01}^{HG} モードと u_{00}^{HG} モードの干渉が、 $+y$ 領域で同位相で干渉する場合、 $-y$ 領域で逆位相で干渉するため、図のように y に関して非対称な分布を生じる。以上から、励起径偏光パルスの空間チャープが y 偏光の最低次ガウスモード u_{00}^{HG} を生じることが分かった。

観測点における偏光特異点分裂の再現

本節では、モード展開の結果をもとに観測された偏光特異点分裂の再現を試みる。前節で偏光特異点分裂に寄与する最低次ガウスモード u_{00}^{HG} の摂動光が生じることが分かったものの、この摂動光の存在下においても $z = 0$ では特異点分裂は生じない。これは、最低次ガウスモード u_{00}^{HG} と一次のエルミートガウスモード $u_{01(10)}^{\text{HG}}$ モードのモード間位相差が 0 であることに起因している。

モード間位相差が 0 のとき、偏光特異点分裂が生じないことについては簡単に示すことができる。径偏光モード u^{rad} は x 偏光の u_{10}^{HG} と y 偏光の u_{01}^{HG} のコヒーレントな重ね合わせ状態であるが、円偏光基底 $\mathbf{e}_+$, $\mathbf{e}_-$ に変換することで円筒座標系 (r, φ, z) によって次のように与えられる。

$$\begin{aligned} u^{\text{rad}}(x, y, 0) &= u_{10}^{\text{HG}}(x, y, 0)\mathbf{e}_x + u_{01}^{\text{HG}}(x, y, 0)\mathbf{e}_y \\ \leftrightarrow u^{\text{rad}}(r, \varphi, 0) &\propto \frac{\sqrt{2}}{w_0} (re^{-i\varphi}\mathbf{e}_+ + re^{+i\varphi}\mathbf{e}_-) \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\right). \end{aligned} \quad (4.8)$$

ここで、式 (4.8) の u^{rad} に偏光角度 θ_0 の直線偏光の最低次ガウスモード u_{00}^{HG} を摂動光として加えると、

$$\begin{aligned} u^{\text{rad}}(r, \varphi, 0) + \frac{Ae^{i\alpha}}{\sqrt{2}} (e^{-i\theta_0}\mathbf{e}_+ + e^{+i\theta_0}\mathbf{e}_-) u_{00}^{\text{HG}}(x, y, 0) \\ \propto \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} e^{-i\varphi} + \frac{A}{\sqrt{2}} e^{i\alpha+i\theta_0} \right) \mathbf{e}_+ + \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} e^{i\varphi} + \frac{A}{\sqrt{2}} e^{i\alpha-i\theta_0} \right) \mathbf{e}_-, \end{aligned} \quad (4.9)$$

が得られる。ここで A は摂動となる最低次ガウスモードのモード振幅、 α は径偏光モード u^{rad} と最低次ガウスモード u_{00}^{HG} の間のモード間位相差である。式 (4.9) の右辺第一項は $r_+ = w_0 A/2$ かつ $\varphi_+ = -\alpha - \theta_0 + \pi$ で 0 になり、したがってこの点において $\mathbf{e}_-$ の円偏光成分だけが存在する。円偏光状態は偏光角度 θ を定義できない偏光特異点であり、これがトポロジカルチャージ $s = 1/2$ の偏光特異点に対応する。一方、右辺第二項は $r_- = w_0 A/2$ かつ $\varphi_- = \alpha - \theta_0 - \pi$ の点で 0 になる。ここで、モード間位相差 $\alpha = 0$ のとき、 $r_+ = r_-$ および $\varphi_+ = \varphi_-$ が得られる。これは、モード間位相差 $\alpha = 0$ の場合、二つの偏光特異点は縮退していることに対応する。

モード間位相差 α はグイ位相シフトによって自由空間伝播に伴って変化する。エルミートガウスモードにおいて、グイ位相シフトはレイリー長 $z_R = kw_0^2/2$ を用いて $-i(m+n+1)\tan^{-1}z/z_R$ で与えられる。これは、モード次数 m, n の値に応じて自由空間伝播において付与される位相が異なることを意味している。本研究における観測点 z_m は $z_m \sim 5z_R$ と見積もられており、偏光特異点分裂を再現するためには信号光の自由空間伝播を考慮する必要がある。

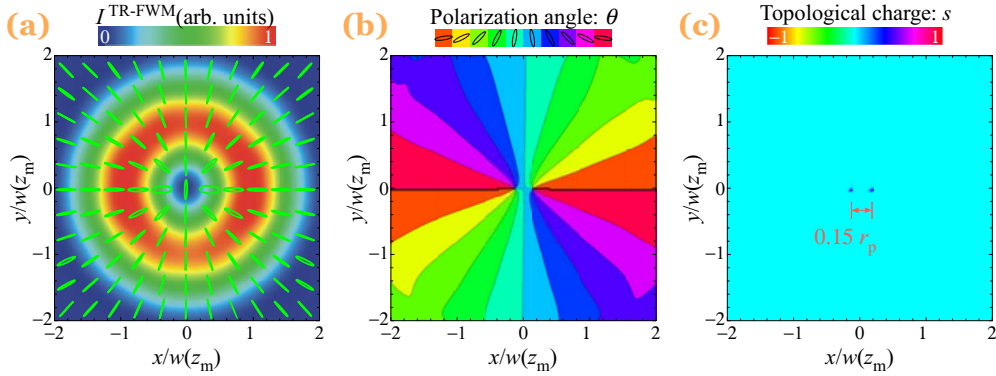


図 4.11 $z = z_m(5z_R)$ における FWM 信号光の計算結果. (a) 信号光断面強度および偏光分布. 強度 (時間分解 FWM 強度 $I^{\text{TR-FWM}}$ に対応) は最大値によって規格化した. また, 各点の偏光状態は偏光楕円体によって表現した. (b) 偏光角度 θ の等高線図. (c) トポロジカルチャージ s の空間分布. (a-c) についてプロット範囲はリング強度分布におけるピーク半径 $r_p = w(z_m)$ の 4 倍とした. ここで, $w(z_m) = w_0 \sqrt{1 + z_m^2/z_R^2}$ は観測点 $z = z_m$ におけるビーム径に対応する.

図 4.11(a) に $z = z_m(5z_R)$ における信号光強度分布と偏光分布の計算結果を示す. 偏光分布は, ストークスパラメータの空間分布を計算することによって取得した (付録 B 参照). 強度分布から, 信号光強度が高い回転対称性を持って分布していることが分かる. また, 偏光楕円体の長軸は動径方向とほぼ平行であり, したがって信号光は実験結果 [図 4.7(d)] と同様に径偏光状態とみなすことができる. 図 4.11(b) に偏光楕円体における偏光角度 θ の等高線図, 図 4.11(c) に θ の空間分布からトポロジカルチャージ s の空間分布を計算した結果をそれぞれ示す. 2 つの図から, トポロジカルチャージ s が非零の点が 2 点存在することが確認できる. これら 2 点における s の値は $\sim 1/2$ であることを確認しており, したがって計算結果は偏光特異点分裂を反映していると言える. なお, 偏光特異点の分裂方向は x 方向であり, したがって計算結果は実験結果 [図 4.7(e)] と一致する. また, 偏光特異点の分裂幅は $0.15r_p$ と見積もられた. ここで, r_p はリング強度分布におけるピーク直径である. この値は, 実験から得られた値 $0.19r_p$ に良く一致する. これらの一致から, 本章で観測した FWM 信号光における偏光特異点分裂は, 空間チャープがもたらす励起子分極の回転対称性破れに起因すると結論付けられる.

本節で得られた偏光特異点分裂メカニズムに関する知見はコヒーレント OAM 変換に対して重要な意義を持つ. 励起光渦パルス電場 $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}$ に非対称性が存在する場合, OAM と同時にその非対称性が物質電子系に反映され, その結果として光学応答に最低次ガウスモードの摂動光が生じる. 特に非線形手法に基づくコヒーレント OAM 変換の場合, 光学応答は $\mathcal{E}_{\mathbf{k}_{1(2)}}$ のべき乗に比例するため, 非対称性の影響は増強される. 実際に, 本研究で用いた励起光パルスにおける非対称性は特異点分裂が検出困難なほど小さいものの, 発生する信号光には明らかな特異点分裂が検出されていた. 光学応答における特異点分裂は物質電子系がもたらすコヒーレント OAM 変換の不完全性と関連付けて議論されてきたが [158, 160] が, これについて本質的な議論を行うためには, 微小であっても励起光パルスの非対称性の考慮が不可欠であると言える.

また, 計算結果 (図 4.11) から明らかなように, 試料 ($z = 0$) に誘起された励起子分極の回転対称性破れを仮定した場合にも, 観測点 ($z > 0$) に回折した信号光は高い回転対称性を有する. これは, 信号光強度分布から励起子分極の回転対称性破れを検出することは困難であることを意味している. したがって, 回転対称性破れ検出には偏光特異点分裂の観測が有効であると言える.

4.4.2 偏光特異点分裂と時空間偏光ダイナミクス：一軸歪 GaN の場合

4.4.1 節では, 空間チャープがもたらす励起子分極の非対称性が最低次ガウスモードの摂動光を生じ, その結果として FWM 信号光に偏光特異点分裂が観測されることを明らかにした. このとき発生する摂動光の偏光, 振幅および位相は, それぞれ試料に誘起された励起子分極の非対称性を反映する. 式 (4.9) に基づくと, 摂動光の偏光は偏光特異点の分裂方向, 振幅は分裂幅, 位相は分裂した 2 つの特異点の重心位置を決定する. したがって, FWM 信号光について偏光特異点の分裂方向, 分裂幅および重心位置に注目することによって, 試料に誘起された励起子分極の非対称性を議論可能となることが期待できる. 本節では, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜を用いてデモンストレーションを行う. a 面サファイア基板上 GaN 薄膜における偏光異方性は, 励起光パルスの空間チャープと相まって信号光に非常に複雑な時空間偏光ダイナミクスを生じる. しかし, このとき偏光特異点の分裂幅や分裂方向に注目することで, 励起子分極の回転対称性破れ (非対称性) を簡潔に理解することができる.

偏光特異点ダイナミクス：観測結果

図 4.12(a) に測定した SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$ を示す. 試料は膜厚 $2.3 \mu\text{m}$ の a 面サファイア基板上 GaN 薄膜 GaN である. なお, 励起光パルスには径偏光モードではなく均一直線偏光の最低次ガウスモードを用いた. このとき, 励起径偏光パルスの中心エネルギーを X_A および X_B 共鳴の中間付近に調整することによって, X_A および X_B の同時励起を行った. 図 4.12(b) に $I^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性を示す. 図から, X_A および X_B 同時励起による量子ビートが観測されており, ビート周期 $T_{\text{QB}} = 0.4 \text{ ps}$ は励起子共鳴エネルギー差 9.2 meV から見積もられる周期 $T_{\text{QB}} = 0.4 \text{ ps}$ と一致する. なお, a 面サファイア基板上 GaN 薄膜の c 面に印加されている異方的な歪 (一軸歪) により, 励起子振動子強度には試料の c 面に平行な $[11-20]$ 方向と $[1-100]$ 方向に平行な直線偏光に対して顕著な異方性を示す (2.3.3 参照). 図 4.12(c) に, 今回行った実験における試料配置を示した. 図のように, 試料の $[11-20]$ 軸は x 軸に対して $\sim 57^\circ$ 傾いていることを確認している. 試料の X_A は $[1-100]$ 軸に比べて $[11-20]$ 軸に平行な直線偏光に対して大きな振動子強度を持ち, 反対に X_B は $[11-20]$ 軸に比べて $[1-100]$ 軸に平行な直線偏光に対して大きな振動子強度を示す. これは径偏光パルス励起 FWM における信号光のスペクトルを方位角 φ に対して掃引すると, φ に応じてスペクトルにおける X_A と X_B のピーク強度比が変化することを意味している. さらに, 励起径偏光パルスに含まれる空間チャープによって信号光のスペクトルは y について変調される. これにより, FWM 信号光は非常に複雑な空間分布を示すことが予想される.

図 4.13(a) は FWM 信号光の断面強度および偏光分布の遅延時間 τ 依存性である. τ については, 量子ピークの第 1, 第 2 ピークとおおよそその間に対応する $0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 \text{ ps}$ につい

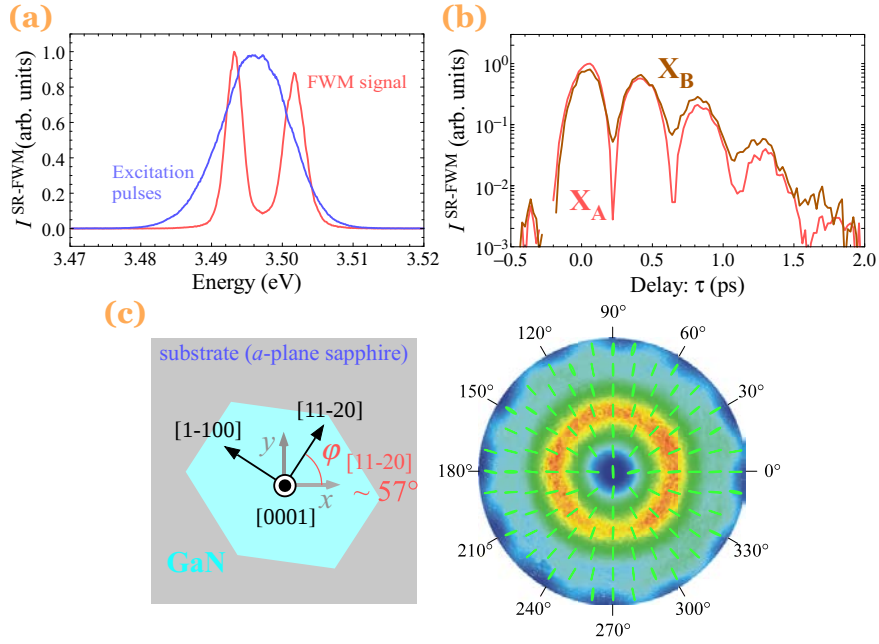


図 4.12 (a) *a* 面サファイア基板上 GaN 薄膜において観測された SR-FWM 強度 $I^{\text{SR-FWM}}$. 縦軸は最大強度によって規格化した。また、参考のために励起光パルスのスペクトルもあわせて示した。なお、励起光パルスには均一直線偏光の最低次ガウスモードを用いており、その偏光方向は試料の [11-20] 方向と [1-100] 方向の中間に設定した。(b) $I^{\text{SR-FWM}}$ の遅延時間 τ 依存性。 $I^{\text{SR-FWM}}$ は $X_A \cdot X_B$ 共鳴に対応する $E_A = 3.493$ および $E_B = 3.502$ eV について取得した。なお、縦軸は最大強度によって規格化した。(c) 今回用いた試料の配置。試料の [11-20] 軸は x 軸から 57° 傾いている。参考のため、実験に用いた径偏光パルスの偏光分布もあわせて示した。

それぞれ示した。強度分布から、FWM 信号光はリング型の強度分布を持つものの、フリースタンディング GaN の場合と比べるとその回転対称性が低下していることが分かる。加えて、 τ の増加に伴って強度分布が変化していることが確認でき、特に $\tau = 0.2$ ps においてその変化は顕著である。このような強度分布変化に伴い、偏光分布にも時間発展に応じた変化が認められる。図 4.13(b) に偏光角度 θ の等高線図を示す。図から、それぞれの τ について等高線が収束している点が 2 点確認できる。この結果は、フリースタンディング GaN の場合と同様に、FWM 信号光に特異点分裂が生じていることを意味している。また、2 つの偏光特異点に注目すると、 τ に応じてその分裂幅や分裂方向が変化していることが分かる。 θ の空間分布からトポロジカルチャージ s の空間分布を算出した結果を図 4.13(c) に示す。ここで、分裂幅および方向の変化を明確に示すために、 s の分布は図 4.13(b) の破線で囲んだ領域について拡大して示した。図から、量子ビートの第 1 および第 2 ピークに対応する $\tau = 0.0$ ps および $\tau = 0.4$ ps では、分裂方向は概ね x 方向であることが確認できる。一方、 $\tau = 0.2$ ps や $\tau = 0.3$ ps では、分裂方向が x 軸から傾いており、この方向は試料の [1-100] 方向におおよそ一致する。また、 $\tau = 0.2$ ps では分裂幅が非常に大きくなっていることも確認できる。加えて $\tau = 0.1, 0.2, 0.3$ ps における 2 つの特異点の重心に注目すると、その位置が [1-100] 方向に沿って変化していることが読み取れる。

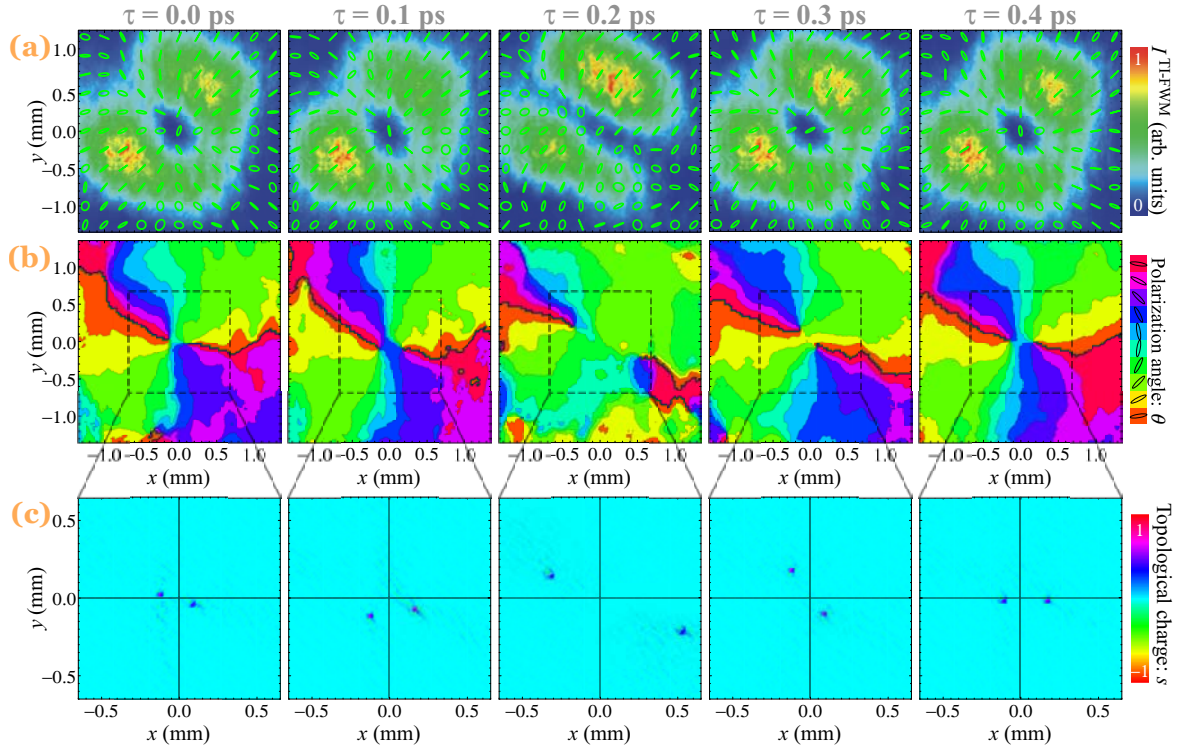


図 4.13 (a) FWM 信号光の断面強度および偏光分布の遅延時間 τ 依存性. 強度 (TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ に対応) は最大値によって規格化した. また, 各点の偏光状態は偏光楕円体によって示した. (b) 偏光角度 θ 分布の τ 依存性. θ の空間分布は等高線図として示した. (c) トポロジカルチャージ (s) 空間分布の τ 依存性. なお, s の空間分布を算出するにあたり, s の値は (b) の破線で囲った領域内で評価した.

式 (4.9) を考慮すると, 観測された偏光特異点ダイナミクスから試料に誘起された励起子分極の対称性について多くの情報を得ることができる. 例えば特異点の分裂方向が時間発展に伴って $[1-100]$ 方向に変化することは, $[1-100]$ に直交する $[1-120]$ に平行な偏光を持つ最低次ガウスモードが FWM 信号光に混在することを意味している. また, $[1-100]$ 方向に沿う特異点分裂幅の増大は, この最低次ガウスモードのモード振幅が増大していることを意味している. このような最低次ガウスモードのモード振幅の増大は, 試料に誘起された励起子分極について $[1-120]$ 方向の非対称性が大きくなっていることを示唆している. また, $[1-100]$ 方向に沿う 2 つの特異点の重心位置の変化は, $[1-100]$ 偏光の最低次ガウスモードにおけるモード位相の変化を反映している. このようなモード位相の変化は, 励起子分極の空間位相について $[1-100]$ 方向に非対称性が生じていることを示唆している. 以上のように, 分裂した偏光特異点の分裂方向, 分裂幅および重心位置に注目することで, 対称性破れに関する重要な情報を抽出して取得することが可能である. したがって, 偏光特異点解析は励起子分極の対称性の議論に極めて有効であると結論付ける.

図 4.13(c) の偏光特異点ダイナミクスは, 試料の異方的振動子強度および励起光パルスの空間チャープによってもたらされる, FWM 信号光スペクトルにおける X_A と X_B のピーク強度比の空間依存性によって生じる. ピーク強度比は量子ビートにおけるコントラストに対応しており

[107], これに空間依存性が存在すると試料に誘起された励起子分極の時間発展 (τ 依存性) は空間的に一様ではなくなり, その結果として観測点における摂動ガウスモードのモード振幅や位相が τ に応じて変化する. また, 量子ビートコントラストの空間変調であることから, 偏光特異点は量子ビートに同期したダイナミクスを示す. 次節ではモデルを用いた数値計算によって, 図 4.13(c) の偏光特異点ダイナミクスの妥当性を示す.

偏光特異点ダイナミクス: 計算結果

本節では, 図 4.13(c) の偏光特異点ダイナミクスの妥当性を示すためにモデルを用いた数値計算を行い, 実験結果との比較を行う. 励起子分極 $\mathcal{P}^{(3)}$ のモデルについては付録 B を参照されたい. なお, バンドパラメータについては 2.3.2 節の表 2.1 に示した現実的な値を用いる. ただし, 実効結晶場パラメータ Δ'_1 には, 試料に印加されている二軸歪を考慮するために, X_A および X_B の共鳴エネルギー差 9.2 meV から見積もられた $\Delta'_1 = 28$ meV を用いた. また, 交換相互作用定数 γ および一軸歪エネルギー δ_3 には, 4.3.1 節で得られた 0.6 meV および -1.8 meV を用いた. 励起光パルスの中心エネルギー E_0 については, 空間チャープを考慮して $E_0(x, y) = 3.494 - 0.0026y$ eV を用いており, 我々が実験に用いた励起光パルスの空間チャープと対応させた. 加えて, 計算には試料の [11-20] 軸が y 軸から 33° (x 軸から 57°) 傾いていることを考慮した. また, 計算を容易にするために位相緩和レート $\Gamma \rightarrow \infty$ とした.

図 4.14(a) に遅延時間 $\tau = 0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$ ps における FWM 信号光の強度分布および偏光分布の計算結果を示す. 図から, 実験結果と同様の強度分布の二回対称性が確認できる. また, 量子ビートの節に対応する $\tau = 0.2$ ps では強度分布がリング型ではなくなっており, このとき偏光分布も径偏光状態から大きく逸脱していることが分かる. 図 4.14(b) に偏光角度 θ の空間分布の τ 依存性を示す. 図から, 偏光特異点が二つに分裂していることが確認できる. 偏光特異点ダイナミクスを解析するために, トポロジカルチャージ s 分布を計算した結果を図 4.14(c) に示す. 図から, 量子ビートの第 1 および第 2 ピークに対応する $\tau = 0.0, 0.4$ ps では偏光特異点が x 方向に分裂しているものの, $\tau = 0.1, 0.2, 0.3$ ps では特異点の分裂方向が [1-100] 方向に対応する向きに傾いていることが確認できる. また, $\tau = 0.2$ ps で分裂幅が最も大きくなっていることが分かる. さらに, $\tau = 0.1, 0.2, 0.3$ ps において, 2 つの特異点の重心が原点 ($x = 0, y = 0$) から微小に変化していることも確認できる. 以上の結果は, 図 4.12 に示した実験結果にほぼ一致している. したがって, 我々が観測した偏光特異点ダイナミクスが励起子分極の対称性破れを正しく反映していることが確かめられた.

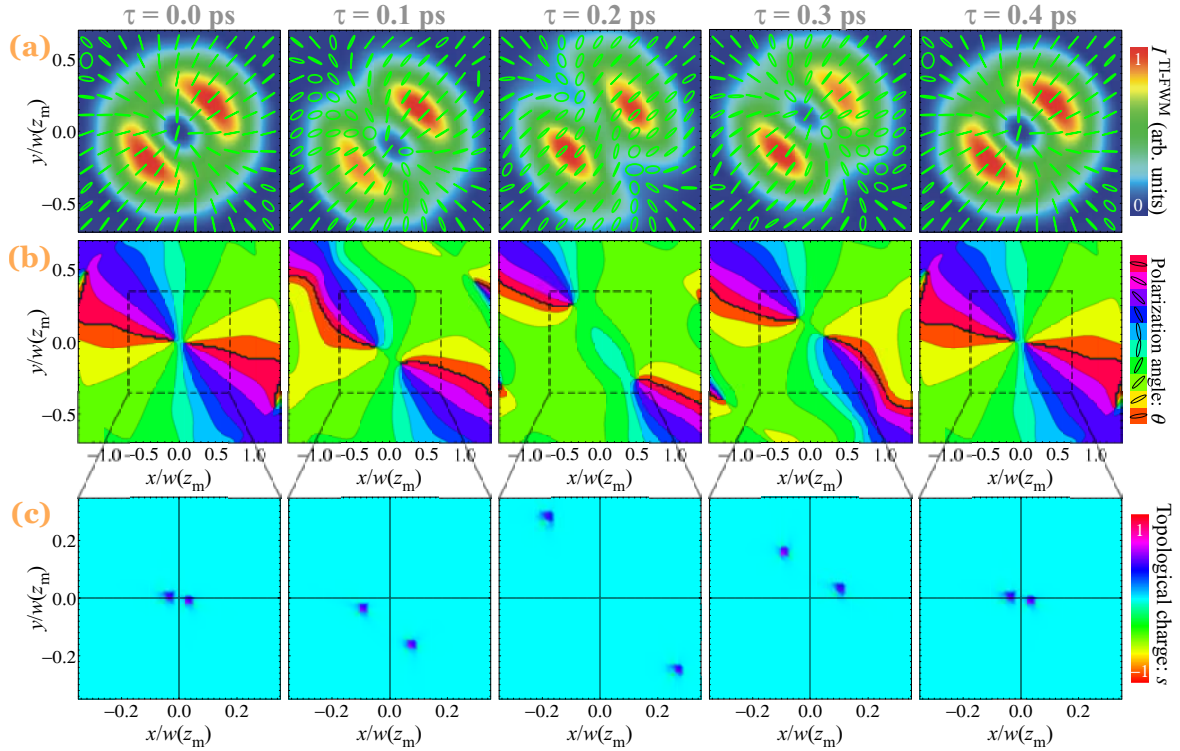


図 4.14 (a) FWM 信号光の断面強度および偏光分布の遅延時間 τ 依存性の計算結果. 強度 (TI-FWM 強度 $I^{\text{TI-FWM}}$ に対応) は最大値によって規格化した. また, 各点の偏光状態は偏光楕円体によって示した. (b) 偏光角度 θ 分布の τ 依存性の計算結果. θ の空間分布は等高線図として示した. (c) トポロジカルチャージ (s) 分布の τ 依存性の計算結果. なお, s 分布を算出するにあたり, s の値は (b) の破線で囲った領域内で評価した.

4.5 まとめ

本章ではの目的は, 径偏光パルスを用いた FWM 分光を行うことで (a) 励起子異方性のスナップショット測定法および (b) 偏光特異点観測に基づく励起子分極の回転対称性検出法を確立することであった.

(a) は, 径偏光パルスの偏光が偏光特異点周りで連続的に変化する性質を積極的に活用した物性評価法である. (a) について得られた知見を次に示す.

- (a1). FWM 信号光空間像から正確な異方的振動子強度比が得られること
- (a2). 一軸歪エネルギー δ_3 を ± 0.05 meV の測定精度で測定できること
- (a3). $\delta_3 = 0.1$ meV 程度の微小な一軸歪を検出可能であること

(a1). については, 測定した振動子強度比から算出した交換相互作用定数 $\gamma = 0.6$ meV が過去の報告と一致することから確認した. 本章で確立した径偏光パルスを用いたスナップショット偏光測定では, 全方位直線偏光に対する光学応答を一度に取得することから測定時間を大幅に短縮で

きることに加え、原理的に偏光回転素子の機械的制御を必要としないため高確度な偏光分解測定が実現できる。また、(a2). 測定精度 ± 0.05 meV および (a3) 測定感度 $\delta_3 = 0.1$ meV は、均一直線偏光の光パルス対を用いた偏光分解 FWM 分光と同等 [159] である。したがって、スナップショット測定によって、精度や感度が損うことなく高確度な偏光測定が実現可能であると結論付けられる。なお、今回は径偏光パルスを FWM 分光に適用することで高感度測定を実現したが、同様の測定は線形分光でも可能と考えられる。加えて、対象を半導体励起子系に限定する原理的な制限はなく、あらゆる物質電子系に適用できる。偏光分解測定は最も良く用いられる物性探索手法の一つであり、トポロジカル光波の適用によってこれを発展できたことは極めて意義深いと考える。

(b) は、偏光特異点が回転対称性破れによって直ちに分裂することに注目した物性評価法であり、以下の知見が得られた。

- (b1). 励起光パルスの非対称性によって FWM 信号光に偏光特異点分裂が生じること
- (b2). 偏光特異点の分裂幅や分裂方向から試料に誘起された励起子分極の非対称性を議論できること

(b1). について、光渦のトポロジカル位相 (軌道角運動量, OAM) のコヒーレント変換に際して特異点分裂が生じることとは半導体励起子系に限らず冷却原子系でも観測されてきた [158, 160]. 特異点分裂が生じるメカニズムは位相特異点と偏光特異点の両者に関連しており、今回その要因の一つとして励起光波の非対称と対応付けられたことは OAM 情報処理 [156] に代表される応用面でも非常に意義深いと考える。(b2). については、非常に複雑な FWM 信号光の空間偏光分布そのものではなく、偏光特異点の分裂幅や分裂方向から励起子分極の回転対称性を議論できることが分かった。これによって、物性計測における偏光特異点測定の意義を示せたと考える。また、本章で確立したトポロジカルチャージ分布として偏光特異点位置を同定する手法は物性測定に対して有意義であり、例えば ^{87}Rb 原子や励起子ポラリトンのボーズアインシュタイン凝縮体におけるスピン渦 [169, 170] の検出に有効であると考えられる。

第 5 章

総括

本学位論文では、トポロジカル光波を用いたコヒーレント分光を行い、トポロジカル光波の空間特(異)性がもたらす様々な性質に立脚した物性計測手法を確立するとともに新規物性探索を実現することを目的とした。

この目的を達成するために、本論文第二章では、トポロジカル光波の適用により可能となるコヒーレント(四光波混合, FWM)分光の新たな機能について考究し、最適なトポロジカル光波の生成および評価法の検討を行った。続く第三章では、光渦パルスを用いた FWM 分光を行い、光渦パルスから GaN 励起子重心運動へのコヒーレント軌道角運動量(OAM)変換を評価した。まず、我々が独自に開発した OAM 分解 FWM 分光法に基づき、上記コヒーレント OAM 変換を初めて定量的に評価し、ほぼ理想的な OAM 変換が実現されることを明らかにした。さらに、OAM 分解 FWM 分光が励起子コヒーレンスを時空間両面から評価できることを利用して、物性分野に OAM コヒーレンス(大域的空間コヒーレンス)という新たな評価軸を導入するとともに、フリースタンディング GaN 試料の励起子 OAM が分極コヒーレンスよりはるかに長時間保持されることを示した。また OAM 依存性や試料依存性から、OAM コヒーレンスが大域的な回転対称性を破る散乱によって失われることを明らかにした。第四章では、偏光渦パルスを用いた FWM 分光を行った。偏光が光軸の偏光特異点周りで連続的に変化することを利用し、励起子異方性の定量評価をスナップショット的に実現する手法を確立した。短時間で測定を完了可能であることに加え、原理的に偏光回転素子の制御を必要しない本手法によって、励起子異方性を高確度に決定可能であることを示した。さらに、FWM 信号光における偏光特異点分裂が励起子系の非対称性(回転対称性破れ)を反映することを初めて見出し、この性質を利用して偏光特異点ダイナミクスから回転対称性破れを特徴付けることに成功した。上記の成果により、本論文によってコヒーレント分光におけるトポロジカル光波適用の有用性を実証できたと結論付ける。

今後の課題として、トポロジカル光波を用いた励起子多体相互作用の測定が挙げられる。多体相互作用測定はコヒーレント分光の重要なテーマである [76] もの、本論文では励起条件を平行直線偏光(co-linear)に限定したことから、多体相互作用を反映した応答は一部しか観測できていない。しかしながら、例えば、方位角 φ に応じて偏光方向が変化する偏光渦と均一直線偏光の最低次ガウスモードの足し合わせにより、相対偏光角度が φ に応じて変化する励起光パルス対を準備することができる。これは相対偏光角度依存性を一度に取得できることを意味しており、このと

き系に多体相互作用が存在すると, FWM 信号光に相対偏光角度に応じた偏光の時間的非一様性が生じる [142] ため, 偏光度の空間 (φ) 分布として多体相互作用を高確度に検出できる. このように, 多体相互作用測定に対してもトポロジカル光波の適用は有効であると言える. さらに, 偏光渦のタイトフォーカスによってもたらされる縦電場 [43] もエピタキシャル薄膜の物性計測に有用であると考えられる. 従来, 半導体薄膜の c 軸に平行な入射光電場 (z 電場) に対する応答を観測するためには, 膜厚数 μm のエピタキシャル薄膜側面に対して入射光を照射する必要があった [94]. これに対して, 偏光渦がもたらす縦電場を用いることで, 垂直入射条件において試料の z 電場応答を取得可能である. これにより, 簡便かつ安定な z 電場応答測定を実現でき, この手法を確立することも今後の展望として挙げられる.

最後に, 本研究で確立した数々の手法は他の物質電子系および測定法にも拡張可能であることにも言及したい. 例えば, 偏光渦を用いたスナップショット偏光計測は線形分光にも適用可能であり, 測定対象を半導体に限定する原理的な制限は無い. したがって, 本測定手法は, 最も基本的な物性計測手法の一つである偏光分解測定における重要なステップとして位置付けられる. 加えて, 本研究で確立した OAM 分解分光や光学応答における特異点検出手法は, 近年精力的に研究されているボーズアインシュタイン凝縮体における渦ダイナミクス測定 [169, 170] に有効であると考えられる. 上記のように, 本研究がもたらした知見が適用できる範囲は幅広く, したがって本研究が物性探索および計測の発展に果たした役割は非常に大きいと結論付ける.

付録 A

点光渦伝播に基づくトポロジカル光波生成の解析

本研究ではトポロジカル光波生成に SLM に描画したホログラム回折格子および q -plate を用いた。これらは、入射光である最低次ガウスモード u_{00}^{LG} の位相および偏光を方位角 φ に関してのみ変調するデバイスまたは光学素子であり、このとき得られる回折光および透過光は、点光渦と呼ばれる状態である。点光渦の電場は $u_{00}^{\text{LG}} \exp(i\ell\varphi)$ に比例し、トポロジカル位相 $\exp(i\ell\varphi)$ を持つものの、リング型ではなくガウシアン型の強度分布 $|u_{00}^{\text{LG}}|^2$ を持つ。ただし、点光渦の光軸が位相特異点であることを反映して、極座標原点 $r = 0$ における強度は 0 であり、 $r = 0$ においてデルタ関数的に強度が低下する。このような強度分布を持つ点光渦は、動径次数 p が異なるラゲールガウスモードの重ね合わせ状態として理解できる（このとき、 ℓ は一定）。したがって、自由空間伝播に伴い、グイ位相シフトによって強度分布が変化する。

$z = 0$ において複素振幅 $u_\ell^{\text{PV}}(r_0, \varphi_0) = u_{00}^{\text{LG}}(r_0, \varphi_0) \exp(i\ell\varphi_0)$ を持つ点光渦が距離 z だけ伝播したときの複素振幅 $u_\ell^{\text{PV}}(r, \varphi, z)$ は円筒座標系におけるフレネル回折に基づいて次の式で記述できる。

$$\begin{aligned} u_\ell^{\text{PV}}(r, \varphi, z) &= \frac{k}{2i\pi z} \exp\left(\frac{ikr^2}{2z}\right) \int_0^\infty dr_0 \int_0^{2\pi} r_0 \exp\left(\frac{ikr_0^2}{2z}\right) u_\ell^{\text{PV}}(r_0, \varphi_0) \\ &\quad \times \exp\left[\frac{-ikrr_0}{z} \cos(\varphi - \varphi_0)\right] d\varphi_0 \\ &= -\frac{k}{iz} \exp\left[i\ell\left(\varphi + \frac{\pi}{2}\right)\right] \exp\left(\frac{ikr^2}{2z}\right) \\ &\quad \times \int_0^\infty r_0 \exp\left(\frac{ikr_0^2}{2z}\right) \exp\left(-\frac{r_0^2}{w_0^2}\right) J_\ell\left(\frac{krr_0}{z}\right) dr_0. \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

ここで、ベッセル関数の積分表示、

$$J_\ell(a) = -\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \exp\left[i\ell\left(\varphi_0 - \frac{\pi}{2}\right)\right] \exp(-ia \cos \varphi_0) d\varphi_0, \quad (\text{A.2})$$

を用いた. 式 (A.1) の積分はハンケル変換に対応しており, 次のように計算できる.

$$\int_0^\infty r_0 \exp[-p(z)r_0^2] J_\ell\left(\frac{kr r_0}{z}\right) dr_0 = \frac{\sqrt{\pi}kr}{8z p(z)^{\frac{3}{2}}} \exp\left[-\frac{k^2 r^2}{8z^2 p(z)}\right] \times \left[I_{\frac{(\ell-1)}{2}}\left(\frac{k^2 r^2}{8z^2 p(z)}\right) - I_{\frac{(\ell+1)}{2}}\left(\frac{k^2 r^2}{8z^2 p(z)}\right) \right]. \quad (\text{A.3})$$

ここで, $I_{(\ell \pm 1)/2}$ は第一種変形ベッセル関数であり, $p(z) = (1 - iz_R/z)/w_0^2$ とした. 以上から伝播後の複素振幅 u_ℓ^{PV} として

$$\begin{aligned} u_\ell^{\text{PV}}(r, \varphi, z) &= A_\ell(r, z) \exp(i\ell\varphi) \exp[i\Psi_\ell(r, z)], \\ A_\ell(r, z) &= \frac{\sqrt{\pi}r}{2w_0} \left(\frac{z_R}{z}\right)^{\frac{5}{4}} \left(\frac{z_R}{R(z)}\right)^{\frac{3}{4}} \exp\left[-\frac{r^2}{2w(z)^2}\right] \\ &\quad \times \left[I_{\frac{(\ell-1)}{2}}\left(\frac{k^2 r^2}{8z^2 p(z)}\right) - I_{\frac{(\ell+1)}{2}}\left(\frac{k^2 r^2}{8z^2 p(z)}\right) \right], \\ \Psi_\ell(r, z) &= \frac{\ell\pi}{2} + \frac{\pi}{4} + \frac{z_R}{z} \left(\frac{r^2}{w_0^2}\right) \left[1 - \frac{w_0^2}{2w(z)^2}\right] - \frac{3}{2} \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right), \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

が得られる [171].

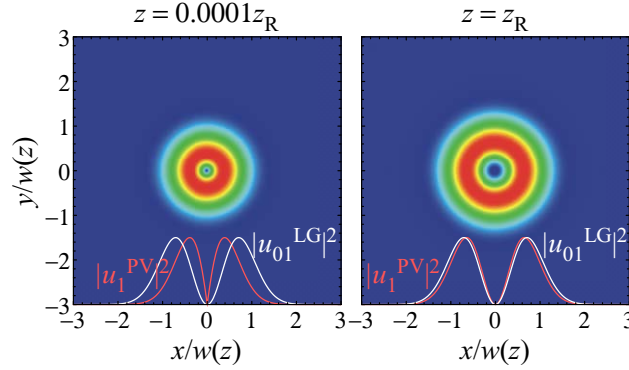


図 A.1 点光渦強度分布の伝播距離 z 依存性. ここで, $w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2}$ はビーム径を表す. なお, $y = 0$ における強度プロファイルを重ねて示した. また, 参考のためにラゲールガウスモード u_{01}^{LG} の強度プロファイルを示した.

図 A.1 に式 (A.4) から計算した点光渦強度分布の伝播距離 z 依存性の計算結果を示す. なお, トポロジカルチャージは $\ell = 1$ に設定した. 図から, $z \ll z_R$ の場合, $r = 0$ 近傍で点光渦の強度 $|u_\ell^{\text{PV}}|^2$ が急峻に低下しており, $y = 0$ における強度プロファイルから, $|u_\ell^{\text{PV}}|^2$ はラゲールガウスモード $u_{0\ell}^{\text{LG}}$ の強度プロファイルと大きく異なることが分かる. 一方, $z = z_R$ の場合には, u_ℓ^{PV} の強度プロファイルはラゲールガウスモード $u_{0\ell}^{\text{LG}}$ の強度プロファイルと良く一致することが確認できる. このような自由空間伝播に伴う強度分布変化はグイ位相シフトに対応する. SLM に描画したホログラム回折格子に最低次ガウスモード u_{00}^{LG} を入射した場合, 生成されるのは点光渦 $u_{00}^{\text{LG}} \exp(i\ell\varphi)$ であり, 単一モード次数のラゲールガウスモードではない. しかしながら, 今回の計算結果から明らかのように, レイリー長 z_R 程度伝播した点光渦は, 近似的に単一モード次数のラゲールガウスモード $u_{0\ell}^{\text{LG}}$ とみなすことができる.

同様に, SQP によって生成された光渦や偏光渦の伝播距離 z 依存性を解析できる. ただし, ホログラム回折格子が入射光である最低次ガウスモードの方位角 φ 方向の位相を滑らかに変調することに対して, SQP による位相および偏光変換は φ に対して不連続であることに注意が必要である. このような φ 方向の不連続な位相および偏光変換は, トポロジカルチャージ ℓ が異なる複数の点光渦を生じる.

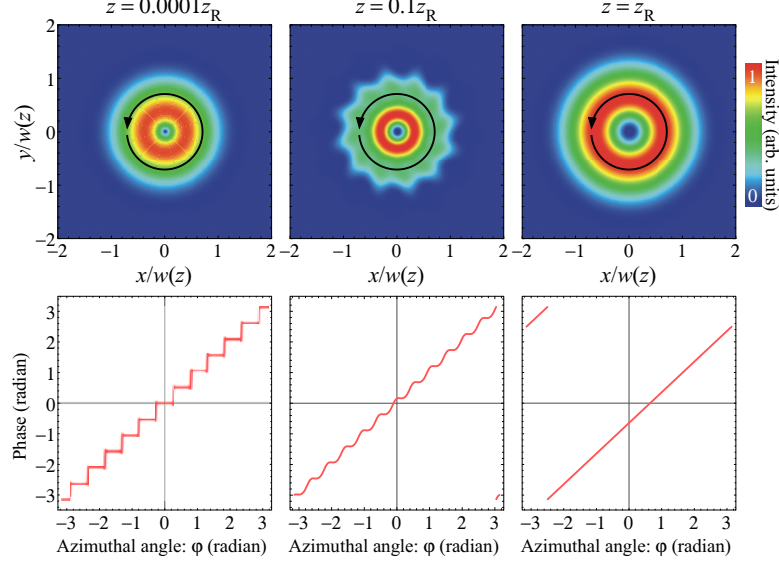


図 A.2 SQP($N = 12$) によって生成した光渦における強度および位相分布の伝播距離 z 依存性. ここで, 位相に関しては強度分布に示した半径 $w(z)/\sqrt{2}$ の円上における変化を示した.

まず SQP による光渦生成について解析する. 入射光として右回り円偏光の最低次ガウスモードを仮定すると, 式 (2.58) から SQP の透過光として左回り円偏光状態の光電場ベクトル $\mathcal{E}^{\text{SQP-out}} = \hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$ が得られると考えられる. N 分割の SQP を用いたとき, $\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}$ は,

$$\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}(r, \varphi, 0) \propto u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \sum_{m=0}^{N-1} \Theta \left[\frac{\pi}{N} - \left| \varphi - \frac{2\pi m}{N} \right| \right] \exp \left(i \frac{2\pi m}{N} \right), \quad (\text{A.5})$$

で与えられる. ここで Θ はヘヴィサイドのステップ関数であり, φ に対する不連続な位相変化を表している. なお, 今回は $q = 1/2$ を仮定した. 式 (A.5) で与えられる $\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}$ を,

$$\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}(r, \varphi, 0) \propto \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} C_{\ell} u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \exp(i\ell\varphi), \quad (\text{A.6})$$

のように点光渦 $u_{00}^{\text{LG}} \exp(i\ell\varphi)$ で展開することを考えたとき, 複素展開係数 C_{ℓ} は次のように計算される.

$$C_{\ell} \propto \text{sinc} \left(\frac{\ell\pi}{N} \right) \delta_{(\ell-1) \bmod N, 0}. \quad (\text{A.7})$$

したがって, $\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}$ は $(\ell - 1) \bmod N = 0$ を満たすトポロジカルチャージ ℓ を持つ点光渦の重ね合わせ状態である.

図 A.2 に、式 (A.6-A.8) から計算した $\hat{\mathcal{E}}^{\text{SQP-out}}$ の強度および位相分布の伝播距離 z 依存性を示す。なお、位相に関しては強度分布に示した半径 $w(z)/\sqrt{2}$ の円上における変化を示した。また、SQP の分割数について $N = 12$ を仮定した。図から、 z の増大に伴って強度分布が変化することが分かる。ここで、位相に注目すると、 $z \ll z_R$ において位相は方位角 φ に対して階段状に変化していることが分かる。これは SQP による不連続な位相変調を反映している。この階段状の位相分布は、自由空間伝播に伴って変化し、 $z = z_R$ において位相は φ に対して線形に変化することが確認できる。したがって、SQP によって得られる光渦の位相分布は、レイリー長程度伝播後において十分に滑らかであると結論付けられる。

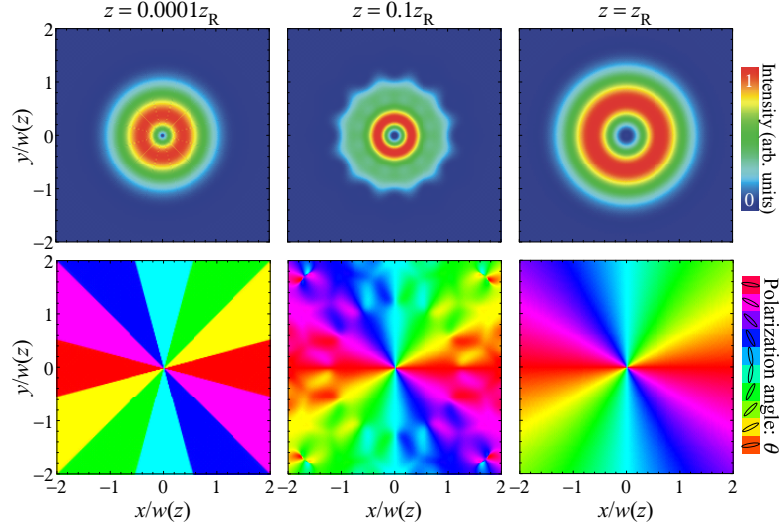


図 A.3 SQP($N = 12$) によって生成した光渦における強度および位相分布の伝播距離 z 依存性。なお、偏光分布として偏光角度 θ の空間分布を示した。

最後に、SQP による偏光渦生成について解析する。SQP($N = 12$) 直線偏光の最低次ガウスモードを入射した場合の、SQP 通過直後 ($z = 0$) における透過光の電場ベクトル $\mathcal{E}^{\text{SQP-out}}$ は次式で与えられる。

$$\mathcal{E}^{\text{SQP-out}}(r, \varphi, 0) \propto u_{00}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \sum_{m=0}^{N-1} \Theta \left[\frac{\pi}{12} - \left| \varphi - \frac{\pi m}{6} \right| \right] \begin{pmatrix} \cos(m\pi/6) \\ \sin(m\pi/6) \end{pmatrix} \quad (\text{A.8})$$

ここで、光渦生成の場合と同様に点光渦による展開

$$\mathcal{E}_i^{\text{SQP-out}}(r, \varphi, 0) \propto \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} C_{\ell}^j u_{0,0}^{\text{LG}}(r, \varphi, 0) \exp(i\ell\varphi) \quad j = x, y. \quad (\text{A.9})$$

を考えたとき、展開係数 $C_{\ell}^{x(y)}$ は次のように与えられる。

$$\begin{aligned} C_{\ell}^x &\propto \text{sinc} \left(\frac{\ell\pi}{12} \right) [\delta_{(\ell+1) \bmod 12} + \delta_{(\ell-1) \bmod 12}], \\ C_{\ell}^y &\propto i \text{sinc} \left(\frac{\ell\pi}{12} \right) [\delta_{(\ell+1) \bmod 12} - \delta_{(\ell-1) \bmod 12}]. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

図 A.3 に, 式 (A.9-A.10) から計算した $\mathcal{E}^{\text{SQP-out}}$ の強度および偏光分布の伝播距離 z 依存性を示す. なお, 偏光分布として偏光角度 θ (偏光楕円体の長軸がなす角度) の空間分布を示した. 図から, $z \ll z_R$ における不連続な偏光分布が, $z = z_R$ において滑らかな分布を示していることが分かる. また, $z = 0.1z_R$ において, 強度分布に SQP の分割数 $N = 12$ を反映した 12 回回転対称のパターンが現れていることも確認できる.

付録 B

FWM 信号光における偏光特異点分裂モデル

FWM 信号光における偏光特異点分裂の再現のために用いたモデルについて補足する. $z = 0$ に配置された試料における 3 次非線形分極 $\mathcal{P}^{(3)}(x, y, z = 0, t, \tau)$ は式 2.22 を空間に拡張して次のように与えられる.

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) \propto & \Theta(t - \tau)\Theta(\tau) \sum_{n, m, n', m'} \mu_{nm}^* \{ \mu_{nm'} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_2}(x, y, 0, E_{nm'}) \} \\ & \times \{ \mu_{n'm} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_2}(x, y, 0, E_{n'm}) \} \{ \mu_{n'm'} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_1}(x, y, 0, E_{m'n'}) \}^* \\ & \times \exp[-i(E_{nm}/\hbar - i\Gamma)(t - \tau)] \exp[i(E_{n'm'}/\hbar + i\Gamma)\tau]. \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

ここで, n および m は価電子帯および伝導帯の磁気量子数に対応し, 本研究では X_A と X_B の同時励起を行うため, 価電子帯について A バンドおよび B バンドに対応する $m(m') = \pm 3/2$ および $m(m') = \pm 1/2$ を考慮する. また, 伝導帯の磁気量子数について $n(n') = \pm 1/2$ である. 式 (B.1) における $\boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_{1(2)}}(x, y, 0, E)$ は $z = 0$ における励起パルス電場の空間分布であり, 空間チャープを考慮して,

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_{1(2)}}(x, y, 0, E) &= \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}_{1(2)}}(x, y, \omega) \mathbf{e}_r \\ &= \boldsymbol{\mathcal{E}}_{0\mathbf{k}_{1(2)}} \frac{\sqrt{x^2 + y^2}}{w_0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right) \exp\left[-\frac{(E - E_0(x, y))^2}{\Delta\omega^2}\right], \begin{pmatrix} \cos \varphi \\ \sin \varphi \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

を仮定する. ここで, $\Delta\omega$ は励起パルスのスペクトル幅を表し, $\sqrt{x^2 + y^2}/w_0 \exp[-(x^2 + y^2)/w_0^2]$ は径偏光パルスにおけるリング型強度分布を与える. E_0 はスペクトル中心であり, E_0 については励起径偏光パルスの空間チャープに対応する空間依存性を考慮する.

式 (B.1) のエルミートガウスモード展開はエネルギーおよび偏光の異なる成分に対して独立に行う. 表記を簡単にするため, $E_{\pm 1/2 \pm 3/2} = E_A$, $E_{\pm 1/2 \pm 1/2} = E_B$ とすると, 式 (A.1) をエネルギー

ギーと偏光の違いに基づいて次のように分解する.

$$\begin{aligned}\mathcal{P}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) &= \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Bx}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) \\ \mathcal{P}_{By}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) \end{pmatrix}, \\ \mathcal{P}_{A(B)x(y)}^{(3)}(x, y, 0, t, \tau) &= \hat{\mathcal{P}}_{A(B)x(y)}^{(3)}(x, y, 0, \tau) \exp[-i(E_{A(B)}/\hbar - i\Gamma)t].\end{aligned}\quad (\text{B.3})$$

式 (B.3) で定義したエネルギーおよび偏光に関して分解した信号成分 $\hat{\mathcal{P}}_{A(B)x(y)}^{(3)}$ に対するエルミートモードガウスモード展開は,

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{P}}_{A(B)x(y)}^{(3)}(x, y, 0, \tau) &\propto \sum_{n,m} C_{nm}^{A(B)x(y)}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, 0), \\ C_{nm}^{A(B)x(y)}(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy u_{mn}^{\text{HG}*}(x, y, 0) \hat{\mathcal{P}}_{A(B)x(y)}^{(3)}(x, y, 0, \tau),\end{aligned}\quad (\text{B.4})$$

によって計算する.

$z = z_m$ における信号光 $\mathcal{P}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau)$ は, 式 (B.4) で定義したモード振幅 $C_{nm}^{A(B)x(y)}(\tau)$ を用いて,

$$\begin{aligned}\mathcal{P}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau) &= \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau) \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Bx}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau) \\ \mathcal{P}_{By}^{(3)}(x, y, z_m, t, \tau) \end{pmatrix} \\ &\propto \sum_{m,n} \begin{pmatrix} C_{mn}^{Ax}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z_m) \\ C_{mn}^{Ay}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z_m) \end{pmatrix} \exp[-i(E_A/\hbar - i\Gamma)t] \\ &\quad + \sum_{m,n} \begin{pmatrix} C_{mn}^{Bx}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z_m) \\ C_{mn}^{By}(\tau) u_{mn}^{\text{HG}}(x, y, z_m) \end{pmatrix} \exp[-i(E_B/\hbar - i\Gamma)t],\end{aligned}\quad (\text{B.5})$$

で定義する. 式 (B.5) で定義した FWM 信号光に対するストークスパラメータは,

$$\begin{aligned}S_0(x, y, z_m, \tau) &= \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle + \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle, \\ S_1(x, y, z_m, \tau) &= \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle - \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle, \\ S_2(x, y, z_m, \tau) &= \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle + \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \right\rangle, \\ S_3(x, y, z_m, \tau) &= i \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \right\rangle - i \left\langle \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix}^* \begin{pmatrix} \mathcal{P}_{Ax}^{(3)} + \mathcal{P}_{Bx}^{(3)} \\ \mathcal{P}_{Ay}^{(3)} + \mathcal{P}_{By}^{(3)} \end{pmatrix} \right\rangle,\end{aligned}\quad (\text{B.6})$$

で与えられる. ここで, $\langle \dots \rangle$ は時間平均を表す.

研究業績

● 学術論文

1. K. Shigematsu, M. Suzuki, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, “Snap-shot optical polarization spectroscopy using radially polarized pulses”, *Applied Physics Express* **9**, 122401 (2016).
2. K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, “Coherent dynamics of exciton orbital angular momentum transferred by optical vortex pulses”, *Physical Review B* **93**, 045205 (2016).
3. Y. Toda, K. Shigematsu, K. Yamane, and R. Morita, “Efficient Laguerre–Gaussian mode conversion for orbital angular momentum resolved spectroscopy”, *Optics Communications* **308**, 147 (2013).
4. K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, and R. Morita, “Orbital angular momentum spectral dynamics of GaN excitons excited by optical vortices”, *Japanese Journal of Applied Physics* **52**, 08JL08 (2013).
5. Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, and S. Adachi, “Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN”, *Japanese Journal Applied Physics* **52**, 08JL03 (2013).

● 学会講演

1. 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/International Quantum Electronics Conference, San Jose, USA (2016).
2. 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, Yokohama, Japan (2016).
3. 重松恭平, 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, 東京都目黒区, 2016 年.
4. (Invited) Y. Toda and K. Shigematsu, “Coherent dynamics of excitons excited by

- singular optical pulses” , Japan, Vietnam, Bulgaria and Taiwan Joint Workshop, Hsinchu, Taiwan (2015).
5. (優秀論文賞受賞記念講演) 重松恭平, 戸田泰則, 山根啓作, 森田隆二, “Orbital Angular Momentum Spectral Dynamics of GaN Excitons Excited by Optical Vortices” , 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋, 2015 年.
 6. K. Shigematsu, S. Morimoto, M. Suzuki, K. Yamane, R. Morita, 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, Munich, Germany (2015).
 7. (Invited) Y. Toda and K. Shigematsu, “Spatiotemporal coherent spectroscopy using singular optical pulses” , The 19th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, Hiroshima, Japan (2015).
 8. 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, 東京都新宿区, 2015 年.
 9. 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, Yokohama, Japan (2014).
 10. K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, and Y. Toda, “Spatiotemporal coherence of GaN excitons excited by an optical vortex with multiple orbital angular momentum” , Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference, San Jose, USA (2014).
 11. 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, 徳島, 2013 年
 12. K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, R. Morita, “Coherent orbital angular momentum transfer to GaN excitons using optical vortex pulses” , Topological light-wave synthesis and its applications 2012, Chiba, Japan (2012).
 13. Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, and S. Adachi, “Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN” , International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan (2012).
 14. (Invited) K. Shigematsu, Y. Toda, K. Yamane, and R. Morita “Orbital-angular-momentum spectral dynamics of GaN excitons excited by optical vortices” , International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan (2012).
 15. 重松恭平, 戸田泰則, 森田隆二, “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” , 第 67 回日本物理学会年次大会, 西宮, 2012 年.
 16. 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，松山，2012 年。
17. 重松恭平，戸田泰則，天野竜郎，森田隆二，“GaN 励起子の軌道角運動量分解四光波混合分光”，第 72 回応用物理学会学術講演会，山形，2011 年。
 18. 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，東京都目黒区，2016 年。
 19. 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ラゲールガウスモード制御”，第 51 回応用物理学会北海道支部／第 12 回日本光学会北海道地区合同学術講演会，札幌，2016 年。
 20. K. Shigematsu, T. Nishizaka, H. Yuri, K. Yamane, R. Morita, Y. Awaji, 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, Yokohama, Japan (2015).
 21. 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，札幌，2014 年。
 22. 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，札幌，2014 年。
 23. 本田亜沙美，山根啓作，横瀬尚也，重松恭平，戸田泰則，森田隆二，“チャープパルス増幅を用いたトポロジカルチャージ可変な高強度超短光渦パルスの発生”，日本光学会年次学術講演会，奈良，2013 年。
 24. K. Yamane, Z. Yang, K. Shigematsu, Y. Toda, and 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 and the European Quantum Electronics Conference, Munich, Germany (2013).
 25. K. Yamane, A. Honda, K. Shigematsu, Y. Toda, and R. Morita, "Programmable ultrashort optical-vortex pulse generation using optical parametric amplification and 4-f configuration", Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, Kyoto, Japan (2013).

参考文献

- [1] N. D. Mermin. The topological theory of defects in ordered media. *Reviews of Modern Physics*, Vol. 51, p. 591, 1979.
- [2] H. R. Trebin. The topology of non-uniform media in condensed matter physics. *Advances in Physics*, Vol. 31, No. 3, p. 195, 1982.
- [3] E. J. Yarmchuk, M. J. V. Gordon, and R. E. Packard. Observation of stationary vortex arrays in rotating superfluid helium. *Physical Review Letters*, Vol. 43, p. 214, 1979.
- [4] D. J. Bishop, P. L. Gammel, D. A. Huse, and C. A. Murry. Magnetic flux-line lattices and vortices in the copper oxide superconductors. *Science*, Vol. 255, No. 5041, p. 165, 1992.
- [5] M. V. Kurik and O. D. Lavrentovich. Defects in liquid crystals: homotopy theory and experimental studies. *Soviet Physics Uspekhi*, Vol. 31, No. 3, p. 196, 1988.
- [6] G. P. Alexander, B. G. Chen, E. A. Matsumoto, and R. D. Kamien. Colloquium: Disclination loops, point defects, and all that in nematic liquid crystals. *Reviews of Modern Physics*, Vol. 84, p. 497, 2012.
- [7] G. I. Taylor. The mechanism of plastic deformation of crystals. part I. theoretical. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol. 145, No. 855, p. 362, 1934.
- [8] R. Durrer, M. Kunz, and A. Melchiorri. Cosmic structure formation with topological defects. *Physics Reports*, Vol. 364, No. 1, p. 1, 2002.
- [9] W. Whewell. Essay towards a first approximation to a map of cotidal lines. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, Vol. 123, p. 147, 1833.
- [10] W. Whewell. Researches on the tides. Sixth series. On the results of an extensive system of tide observations made on the coasts of Europe and America in June 1835. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, Vol. 126, p. 289, 1836.
- [11] P.A. Dirac. Quantised singularities in the electromagnetic field. In *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol. 133, p. 60, 1931.
- [12] D. R. Tilley and J. Tilley. *Superfluidity and superconductivity*. Institute of Physics, London, 1994.

-
- [13] J. F. Nye and M. V. Berry. Dislocations in wave trains. In *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol. 336, p. 165. The Royal Society, 1974.
 - [14] J. F. Nye, R. G. Kyte, and D. C. Threlfall. Proposal for measuring the movement of a large ice sheet by observing radio echoes. *Journal of Glaciology*, Vol. 11, No. 63, p. 319, 1972.
 - [15] J. F. Nye, M. V. Berry, and M. E. R. Walford. Measuring the change in thickness of the Antarctic ice sheet. *Nature*, Vol. 240, No. 97, p. 7, 1972.
 - [16] Interference properties of a light beam having a helical wave surface. *Optics Communications*, Vol. 30, No. 3, p. 263, 1979.
 - [17] C. Tamm. Frequency locking of two transverse optical modes of a laser. *Physical Review A*, Vol. 38, p. 5960, 1988.
 - [18] J. R. Tredicce, E. J. Quel, A. M. Ghazzawi, C. Green, M. A. Pernigo, L. M. Narducci, and L. A. Lugiato. Spatial and temporal instabilities in a CO_2 laser. *Physical Review Letters*, Vol. 62, p. 1274, 1989.
 - [19] P. Coullet, L. Gil, and F. Rocca. Optical vortices. *Optics Communications*, Vol. 73, No. 5, p. 403, 1989.
 - [20] A. A. Ishaaya, N. Davidson, G. Machavariani, E. Hasman, and A. A. Friesem. Efficient selection of high-order Laguerre-Gaussian modes in a Q-switched Nd:YAG laser. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 39, No. 1, p. 74, 2003.
 - [21] M. Okida, T. Omatsu, M. Itoh, and T. Yatagai. Direct generation of high power Laguerre-Gaussian output from a diode-pumped Nd:YVO₄ 1.3- μm bounce laser. *Optics Express*, Vol. 15, No. 12, p. 7616, 2007.
 - [22] K. L. Coulson. *Polarization and Intensity of Light in the Atmosphere*. Deepak, Hampton, 1988.
 - [23] M. V. Berry, M. R. Dennis, and R. L. Lee Jr. Polarization singularities in the clear sky. *New Journal of Physics*, Vol. 6, No. 1, p. 162, 2004.
 - [24] D. Pohl. Operation of a ruby laser in the purely transverse electric mode TE_{01} . *Applied Physics Letters*, Vol. 20, No. 7, p. 266, 1972.
 - [25] Y. Mushiaki, K. Matsumura, and N. Nakajima. Generation of radially polarized optical beam mode by laser oscillation. *Proceedings of the IEEE*, Vol. 60, No. 9, p. 1107, 1972.
 - [26] I. Moshe, S. Jackel, and A. Meir. Production of radially or azimuthally polarized beams in solid-state lasers and the elimination of thermally induced birefringence effects. *Optics Letters*, Vol. 28, No. 10, p. 807, 2003.
 - [27] J. Li, K. Ueda, M. Musha, L. Zhong, and A. Shirakawa. Radially polarized and pulsed output from passively Q-switched Nd:YAG ceramic microchip laser. *Optics Letters*, Vol. 33, No. 22, p. 2686, 2008.

- [28] H. Rubinsztein-Dunlop, A. Forbes, M. V. Berry, M. R. Dennis, D. L. Andrews, M. Mansuripur, C. Denz, C. Alpmann, P. Banzer, T. Bauer, E. Karimi, L. Marrucci, M. Padgett, M. Ritsch-Marte, N. M. Litchinitser, N. P. Bigelow, C. Rosales-Guzman, A. Belmonte, J. P. Torres, T. W. Neely, M. Baker, R. Gordon, A. B. Stilgoe, J. Romero, A. G. White, R. Fickler, A. E. Willner, G. Xie, B. McMorran, and A. M. Weiner. Roadmap on structured light. *Journal of Optics*, Vol. 19, No. 1, p. 013001, 2017.
- [29] S. W. Hell and J. Wichmann. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. *Optics Letters*, Vol. 19, No. 11, p. 780, 1994.
- [30] K. I. Willig, S. O. Rizzoli, V. Westphal, R. Jahn, and S. W. Hell. STED microscopy reveals that synaptotagmin remains clustered after synaptic vesicle exocytosis. *Nature*, Vol. 440, No. 7086, p. 935, 2006.
- [31] J. H. Poynting. The wave motion of a revolving shaft, and a suggestion as to the angular momentum in a beam of circularly polarised light. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, Vol. 82, No. 557, p. 560, 1909.
- [32] R. A. Beth. Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light. *Physical Review*, Vol. 50, p. 115, 1936.
- [33] L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes. *Physical Review A*, Vol. 45, p. 8185, 1992.
- [34] H. He, M. E. J. Friese, N. R. Heckenberg, and H. Rubinsztein-Dunlop. Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity. *Physical Review Letters*, Vol. 75, p. 826, 1995.
- [35] D. T. Chiu and R. M. Lorenz. Chemistry and biology in femtoliter and picoliter volume droplets. *Accounts of Chemical Research*, Vol. 42, No. 5, p. 649, 2009.
- [36] M. E. J. Friese, H. Rubinsztein-Dunlop, J. Gold, P. Hagberg, and D. Hanstorp. Optically driven micromachine elements. *Applied Physics Letters*, Vol. 78, No. 4, p. 547, 2001.
- [37] K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita, and T. Omatsu. Using optical vortex to control the chirality of twisted metal nanostructures. *Nano Letters*, Vol. 12, No. 7, p. 3645, 2012.
- [38] A. Mair, A. Vaziri, G. Weihs, and A. Zeilinger. Entanglement of the orbital angular momentum states of photons. *Nature*, Vol. 412, No. 6844, p. 313, 2001.
- [39] J. Leach, E. Bolduc, D. J. Gauthier, and R. W. Boyd. Secure information capacity of photons entangled in many dimensions. *Physical Review A*, Vol. 85, p. 060304, 2012.
- [40] A. E. Willner, H. Huang, Y. Yan, Y. Ren, N. Ahmed, G. Xie, C. Bao, L. Li, Y. Cao, Z. Zhao, J. Wang, M. P. J. Lavery, M. Tur, S. Ramachandran, A. F. Molisch, N. Ashrafi,

-
- and S. Ashrafi. Optical communications using orbital angular momentum beams. *Advances in Optics and Photonics*, Vol. 7, No. 1, p. 66, 2015.
- [41] C. Hnatovsky, V. Shvedov, W. Krolikowski, and A. Rode. Revealing local field structure of focused ultrashort pulses. *Physical Review Letters*, Vol. 106, p. 123901, 2011.
- [42] O. J. Allegre, Y. Jin, W. Perrie, J. Ouyang, E. Fearon, S. P. Edwardson, and G. Dearn. Complete wavefront and polarization control for ultrashort-pulse laser microprocessing. *Optics Express*, Vol. 21, No. 18, p. 21198, 2013.
- [43] S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl, and G. Leuchs. The focus of light – theoretical calculation and experimental tomographic reconstruction. *Applied Physics B*, Vol. 72, No. 1, p. 109, 2001.
- [44] A. V. Nesterov and V. G. Niziev. Laser beams with axially symmetric polarization. *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 33, No. 15, p. 1817, 2000.
- [45] L. Novotny, M. R. Beversluis, K. S. Youngworth, and T. G. Brown. Longitudinal field modes probed by single molecules. *Physical Review Letters*, Vol. 86, p. 5251, 2001.
- [46] Q. Zhan. Trapping metallic Rayleigh particles with radial polarization. *Optics Express*, Vol. 12, No. 15, p. 3377, 2004.
- [47] V. Y. Bazhenov, M. V. Vasnetsov, and M. S. Soskin. Laser beams with screw dislocations in their wavefronts. *Letters to Journal of Experimental and Theoretical Physics*, Vol. 52, No. 8, p. 429, 1990.
- [48] M.W. Beijersbergen, R.P.C. Coerwinkel, M. Kristensen, and J.P. Woerdman. Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate. *Optics Communications*, Vol. 112, No. 5?6, p. 321, 1994.
- [49] S. Quabis, R. Dorn, and G. Leuchs. Generation of a radially polarized doughnut mode of high quality. *Applied Physics B*, Vol. 81, No. 5, 2005.
- [50] A. G. Peele, P. J. McMahon, D. Paterson, C. Q. Tran, A. P. Mancuso, K. A. Nugent, J. P. Hayes, E. Harvey, B. Lai, and I. McNulty. Observation of an X-ray vortex. *Optics Letters*, Vol. 27, No. 20, p. 1752, 2002.
- [51] K. Miyamoto, K. Suizu, T. Akiba, and T. Omatsu. Direct observation of the topological charge of a terahertz vortex beam generated by a Tsurupica spiral phase plate. *Applied Physics Letters*, Vol. 104, No. 26, p. 261104, 2014.
- [52] K. Yamane, Y. Toda, and R. Morita. Ultrashort optical-vortex pulse generation in few-cycle regime. *Optics Express*, Vol. 20, No. 17, p. 18986, 2012.
- [53] P. K. Mondal, B. Deb, and S. Majumder. Angular momentum transfer in interaction of Laguerre-Gaussian beams with atoms and molecules. *Physical Review A*, Vol. 89, p. 063418, 2014.
- [54] G. F. Quinteiro, D. E. Reiter, and T. Kuhn. Formulation of the twisted-light: matter interaction at the phase singularity: The twisted-light gauge. *Physical Review A*,

- Vol. 91, p. 033808, 2015.
- [55] F. Giammanco, A. Perona, P. Marsili, F. Conti, F. Fidecaro, S. Gozzini, and A. Lucchesini. Influence of the photon orbital angular momentum on electric dipole transitions: negative experimental evidence. *Optics Letters*, Vol. 42, No. 2, p. 219, 2017.
 - [56] C. T. Schmiegelow, J. Schulz, H. Kaufmann, T. Ruster, U. G. Poschinger, and F. Schmidt-Kaler. Transfer of optical orbital angular momentum to a bound electron. *Nature communications*, Vol. 7, p. 12998, 2016.
 - [57] M. F. Andersen, C. Ryu, P. Cladé, V. Natarajan, A. Vaziri, K. Helmerson, and W. D. Phillips. Quantized rotation of atoms from photons with orbital angular momentum. *Physical Review Letters*, Vol. 97, p. 170406, 2006.
 - [58] S. Moulder, S. Beattie, R. P. Smith, N. Tammuz, and Z. Hadzibabic. Quantized supercurrent decay in an annular Bose-Einstein condensate. *Physical Review A*, Vol. 86, p. 013629, 2012.
 - [59] R. Pugatch, M. Shuker, O. Firstenberg, A. Ron, and N. Davidson. Topological stability of stored optical vortices. *Physical Review Letters*, Vol. 98, p. 203601, 2007.
 - [60] J. T. Schultz, A. Hansen, and N. P. Bigelow. A Raman waveplate for spinor Bose-Einstein condensates. *Optics Letters*, Vol. 39, No. 14, p. 4271, 2014.
 - [61] A. Hansen, J. T. Schultz, and N. P. Bigelow. Singular atom optics with spinor Bose-Einstein condensates. *Optica*, Vol. 3, No. 4, p. 355, 2016.
 - [62] C. Rosales-Guzmán, K. Volke-Sepulveda, and J. P. Torres. Light with enhanced optical chirality. *Optics Letters*, Vol. 37, No. 17, p. 3486, 2012.
 - [63] D. S. Bradshaw, J. M. Leeder, M. M. Coles, and D. L. Andrews. Signatures of material and optical chirality: Origins and measures. *Chemical Physics Letters*, Vol. 626, p. 106, 2015.
 - [64] N. B. Clayburn, J. L. McCarter, J. M. Dreiling, M. Poelker, D. M. Ryan, and T. J. Gay. Search for spin-polarized photoemission from GaAs using light with orbital angular momentum. *Physical Review B*, Vol. 87, p. 035204, 2013.
 - [65] M. A. Noyan and J. M. Kikkawa. Time-resolved orbital angular momentum spectroscopy. *Applied Physics Letters*, Vol. 107, No. 3, p. 032406, 2015.
 - [66] G. F. Quinteiro and P. I. Tamborenea. Electronic transitions in disk-shaped quantum dots induced by twisted light. *Physical Review B*, Vol. 79, p. 155450, 2009.
 - [67] G. F. Quinteiro and T. Kuhn. Light-hole transitions in quantum dots: Realizing full control by highly focused optical-vortex beams. *Physical Review B*, Vol. 90, p. 115401, 2014.
 - [68] G. F. Quinteiro and J. Berakdar. Electric currents induced by twisted light in quantum rings. *Opt. Express*, Vol. 17, No. 22, p. 20465, 2009.
 - [69] T. Kuhn, D. E. Reiter, and G. F. Quinteiro. Optical control of exciton and spin states

- in a quantum dot by excitation with twisted light. *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 647, No. 1, p. 012012, 2015.
- [70] S. Strite and H. Morkoç. GaN, AlN, and InN: A review. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, Vol. 10, No. 4, p. 1237, 1992.
- [71] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan. Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics*, Vol. 89, No. 11, p. 5815, 2001.
- [72] R. J. Elliott. Intensity of optical absorption by excitons. *Physical Review*, Vol. 108, p. 1384, 1957.
- [73] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer-Verlag, Berlin, 2005.
- [74] J. Shah. *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures*. Springer Science, Berlin, 1999.
- [75] S. T. Cundiff. Coherent spectroscopy of semiconductors. *Optics Express*, Vol. 16, No. 7, p. 4639, 2008.
- [76] D. S. Chemla and J. Shah. Many-body and correlation effects in semiconductors. *Nature*, Vol. 411, No. 6837, p. 549, 2001.
- [77] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, and K. Köhler. Ultrafast coherent control and destruction of excitons in quantum wells. *Physical Review Letters*, Vol. 75, No. 13, p. 2598, 1995.
- [78] T. Yajima and Y. Taira. Spatial optical parametric coupling of picosecond light pulses and transverse relaxation effect in resonant media. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 47, No. 5, p. 1620, 1979.
- [79] S. Schmitt-Rink, D. Binnhardt, V. Heuckeroth, P. Thomas, P. Haring, G. Maidorn, H. Bakker, K. Leo, D. S. Kim, J. Shah, and K. Köhler. Polarization dependence of heavy- and light-hole quantum beats. *Physical Review B*, Vol. 46, No. 16, 1992.
- [80] K. Hazu, A. Shikanai, T. Sota, K. Suzuki, S. Adachi, S. F. Chichibu, and T. Mukai. Optical nonlinearities and phase relaxation of excitons in GaN. *Physical Review B*, Vol. 65, p. 195202, 2002.
- [81] L. Schultheis, J. Kuhl, A. Honold, and C. W. Tu. Ultrafast phase relaxation of excitons via exciton-exciton and exciton-electron collisions. *Physical Review Letters*, Vol. 57, p. 1635, 1986.
- [82] H. Wang, K. B. Ferrio, D. G. Steel, P. R. Berman, Y. Z. Hu, R. Binder, and S. W. Koch. Transient four-wave-mixing line shapes: Effects of excitation-induced dephasing. *Physical Review A*, Vol. 49, p. R1551, 1994.
- [83] K. Leo, M. Wegener, J. Shah, D. S. Chemla, E. O. Göbel, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink, and W. Schäfer. Effects of coherent polarization interactions on time-resolved

- degenerate four-wave mixing. *Physical Review Letters*, Vol. 65, p. 1340, 1990.
- [84] M. Wegener, D. S. Chemla, S. Schmitt-Rink, and W. Schäfer. Line shape of time-resolved four-wave mixing. *Physical Review A*, Vol. 42, p. 5675, 1990.
- [85] B. F. Feuerbacher, J. Kuhl, and K. Ploog. Biexcitonic contribution to the degenerate four-wave-mixing signal from a GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum well. *Physical Review B*, Vol. 43, p. 24391, 1991.
- [86] E. J. Mayer, G. O. Smith, V. Heuckeroth, J. Kuhl, K. Bott, A. Schulze, T. Meier, D. Bennhardt, S. W. Koch, P. Thomas, R. Hey, and K. Ploog. Evidence of biexcitonic contributions to four-wave mixing in GaAs quantum wells. *Physical Review B*, Vol. 50, p. 14730, 1994.
- [87] A. L. Smirl, M. J. Stevens, X. Chen, and O. Buccafusca. Heavy-hole and light-hole oscillations in the coherent emission from quantum wells: Evidence for exciton-exciton correlations. *Physical Review B*, Vol. 60, p. 8267, 1999.
- [88] T. Aoki, G. Mohs, M. Kuwata-Gonokami, and A. A. Yamaguchi. Influence of exciton-exciton interaction on quantum beats. *Physical Review Letters*, Vol. 82, p. 3108, 1999.
- [89] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, T. Yamada, and T. Mukai. Superbright green InGaN single-quantum-well-structure light-emitting diodes. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 34, No. 10B, p. L1332, 1995.
- [90] T. Mukai, H. Narimatsu, and S. Nakamura. Amber InGaN-based light-emitting diodes operable at high ambient temperatures. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 37, No. 5A, p. L479, 1998.
- [91] A. Kuramata, S. Kubota, R. Soejima, K. Domen, K. Horino, P. Hacke, and T. Tanahashi. Continuous wave operation at room temperature of InGaN laser diodes fabricated on 4H-SiC substrates. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 38, No. 5A, p. L481, 1999.
- [92] T. Asano, K. Yanashima, T. Asatsuma, T. Hino, T. Yamaguchi, S. Tomiya, K. Funato, T. Kobayashi, and M. Ikeda. Cw operation of AlGaInN-GaN laser diodes. *physica status solidi (a)*, Vol. 176, No. 1, p. 23, 1999.
- [93] T. Ishiguro, Y. Toda, and S. Adachi. Coherent dynamics of exciton fine structure in uniaxially-strained GaN. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 78, No. 10, p. 104718, 2009.
- [94] T. Ishiguro, Y. Toda, S. Adachi, K. Tadatomo, and K. Hoshino. Four-wave-mixing study of exciton fine structure in GaN. *physica status solidi (c)*, Vol. 6, No. 1, p. 42, 2009.
- [95] Y. N. Xu and W. Y. Ching. Electronic, optical, and structural properties of some wurtzite crystals. *Physical Review B*, Vol. 48, p. 4335, 1993.
- [96] B. Gil, O. Briot, and R. L. Aulombard. Valence-band physics and the optical properties

-
- of GaN epilayers grown onto sapphire with wurtzite symmetry. *Physical Review B*, Vol. 52, p. R17028, 1995.
- [97] S. L. Chuang and C. S. Chang. $k \cdot p$ method for strained wurtzite semiconductors. *Physical Review B*, Vol. 54, p. 2491, 1996.
- [98] A. Shikanai, T. Azuhata, T. Sota, S. Chichibu, A. Kuramata, K. Horino, and S. Nakamura. Biaxial strain dependence of exciton resonance energies in wurtzite GaN. *Journal of Applied Physics*, Vol. 81, No. 1, p. 417, 1997.
- [99] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto. InGaN multi-quantum-well-structure laser diodes with cleaved mirror cavity facets. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 35, No. 2B, p. L217, 1996.
- [100] M. Julier, J. Campo, B. Gil, J. P. Lascarayand, and S. Nakamura. Determination of the spin-exchange interaction constant in wurtzite GaN. *Physical Review B*, Vol. 57, No. 12, p. R6791, 1998.
- [101] P. P. Paskov, T. Paskova, P. O. Holtz, and B. Monemar. Spin-exchange splitting of excitons in GaN. *Physical Review B*, Vol. 64, p. 115201, 2001.
- [102] G. L. Bir and G. E. Pikus. *Symmetry and strain-induced effects in semiconductors*, Vol. 624. Wiley New York, 1974.
- [103] A. E. H. Love. *A Treatise on the Mathematical Theory of Elasticity*. Dover New York, 1944.
- [104] D. W. Langer, R. N. Euwema, K. Era, and T. Koda. Spin exchange in excitons, the quasicubic model and deformation potentials in II-VI compounds. *Physical Review B*, Vol. 2, p. 4005, 1970.
- [105] M. Koch, J. Feldmann, G. von Plessen, E. O. Göbel, P. Thomas, and K. Köhler. Quantum beats versus polarization interference: An experimental distinction. *Physical Review Letters*, Vol. 69, p. 3631, 1992.
- [106] V. G. Lyssenko, J. Erland, I. Balslev, K. H. Pantke, B. S. Razbirin, and J. M. Hvam. Nature of nonlinear four-wave-mixing beats in semiconductors. *Physical Review B*, Vol. 48, p. 5720, 1993.
- [107] J. Erland and I. Balslev. Theory of quantum beat and polarization interference in four-wave mixing. *Physical Review A*, Vol. 48, p. R1765, 1993.
- [108] Y. Toda, K. Yamaguchi, T. Ishiguro, K. Hoshino, K. Tadatomo, and S. Adachi. Spatial properties of excitonexciton interactions in GaN observed by four-wave-mixing spectroscopy. *physica status solidi (c)*, Vol. 6, No. S2, p. S684, 2009.
- [109] Y. Toda, S. Adachi, Y. Abe, K. Hoshino, and Y. Arakawa. Optical diffraction spectroscopy of excitons in uniaxially strained GaN films. *Physical Review B*, Vol. 71, No. 19, p. 195315, 2005.

- [110] J. Durnin, J. J. Miceli, and J. H. Eberly. Diffraction-free beams. *Physical Review Letters*, Vol. 58, p. 1499, 1987.
- [111] J. C. Gutiérrez-Vega, M. D. Iturbe-Castillo, and S. Chávez-Cerda. Alternative formulation for invariant optical fields: Mathieu beams. *Optics Letters*, Vol. 25, No. 20, p. 1493, 2000.
- [112] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, California, 1986.
- [113] J. Hamazaki, Y. Mineta, K. Oka, and R. Morita. Direct observation of Gouy phase shift in a propagating optical vortex. *Optics Express*, Vol. 14, No. 18, p. 8382, 2006.
- [114] S. M. Baumann, D. M. Kalb, L. H. MacMillan, and E. J. Galvez. Propagation dynamics of optical vortices due to Gouy phase. *Optics Express*, Vol. 17, No. 12, p. 9818, 2009.
- [115] A. M. Yao and M. J. Padgett. Orbital angular momentum: origins, behavior and applications. *Advances in Optics and Photonics*, Vol. 3, No. 2, p. 161, 2011.
- [116] M. Padgett. Light's twist. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol. 470, No. 2172, 2014.
- [117] E. Karimi, R. W. Boyd, P. de la Hoz, de H. Guise, J. Řeháček, Z. Hradil, A. Aiello, G. Leuchs, and L. L. Sánchez-Soto. Radial quantum number of Laguerre-Gauss modes. *Physical Review A*, Vol. 89, p. 063813, 2014.
- [118] W. Plick and M. Krenn. Physical meaning of the radial index of Laguerre-Gauss beams. *Physical Review A*, Vol. 92, No. 6, 2015.
- [119] S. M. Barnett, L. Allen, R. P. Cameron, C. R. Gilson, M. J. Padgett, F. C. Speirits, and A. M. Yao. On the natures of the spin and orbital parts of optical angular momentum. *Journal of Optics*, Vol. 18, No. 6, p. 064004, 2016.
- [120] Molina-Terriza G, J. P. Torres, and L. Torner. Management of the angular momentum of light: preparation of photons in multidimensional vector states of angular momentum. *Physical Review Letters*, Vol. 88, No. 1, p. 013601, 2001.
- [121] F. Tamburini, B. Thidé, G. Molina-Terriza, and G. Anzolin. Twisting of light around rotating black holes. *Nature Physics*, Vol. 7, No. 3, p. 195, 2011.
- [122] D. Persuy, M. Ziegler, O. Crégut, K. Kheng, and M. Gallart. Four-wave mixing in quantum wells using femtosecond pulses with Laguerre-Gauss modes. *Physical Review B*, Vol. 92, No. 11, 2015.
- [123] S. Slussarenko, A. Murauski, T. Du, and V. Chigrinov. Tunable liquid crystal q-plates with arbitrary topological charge. *Optics Express*, Vol. 19, No. 5, p. 4085, 2011.
- [124] Y. Liu, X. Ling, X. Yi, X. Zhou, H. Luo, and S. Wen. Realization of polarization evolution on higher-order Poincaré sphere with metasurface. *Applied Physics Letters*, Vol. 104, No. 19, p. 191110, 2014.
- [125] L. Marrucci, C. Manzo, and D. Paparo. Optical Spin-to-Orbital angular momentum conversion in inhomogeneous anisotropic media. *Physical Review Letters*, Vol. 96,

- No. 16, p. 163905, 2006.
- [126] J. A. Davis, N. Hashimoto, M. Kurihara, E. Hurtado, M. Pierce, M. M. Sánchez-López, K. Badham, and I. Moreno. Analysis of a segmented q-plate tunable retarder for the generation of first-order vector beams. *Applied Optics*, Vol. 54, No. 32, p. 9583, 2015.
 - [127] I.V. Basistiy, V.Yu. Bazhenov, M.S. Soskin, and M.V. Vasnetsov. Optics of light beams with screw dislocations. *Optics Communications*, Vol. 103, No. 5, p. 422, 1993.
 - [128] M. Harris, C. A. Hill, P. R. Tapster, and J. M. Vaughan. Laser modes with helical wave fronts. *Physical Review A*, Vol. 49, p. 3119, 1994.
 - [129] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi. Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry. *Journal of Optical Society of America*, Vol. 72, No. 1, p. 156, 1982.
 - [130] D. Gabor. A new microscopic principle. *Nature*, Vol. 161, No. 4098, p. 777, 1948.
 - [131] S. Franke-Arnold, S. M. Barnett, E. Yao, J. Leach, J. Courtial, and M. Padgett. Uncertainty principle for angular position and angular momentum. *New Journal of Physics*, Vol. 6, No. 1, p. 103, 2004.
 - [132] B. Jack, M. J. Padgett, and S. Franke-Arnold. Angular diffraction. *New Journal of Physics*, Vol. 10, No. 10, p. 103013, 2008.
 - [133] M. Padgett, J. Arlt, N. Simpson, and L. Allen. An experiment to observe the intensity and phase structure of Laguerre-Gaussian laser modes. *American Journal of Physics*, Vol. 64, No. 1, pp. 77–82, 1996.
 - [134] V. Denisenko, V. Shvedov, A. S. Desyatnikov, D. N. Neshev, W. Krolikowski, A. Volyar, M. Soskin, and Y. S. Kivshar. Determination of topological charges of polychromatic optical vortices. *Optics Express*, Vol. 17, No. 26, p. 23374, 2009.
 - [135] J. M. Hickmann, E. J. S. Fonseca, W. C. Soares, and S. Chávez-Cerda. Unveiling a truncated optical lattice associated with a triangular aperture using light's orbital angular momentum. *Physical Review Letters*, Vol. 105, p. 053904, 2010.
 - [136] K. Yamane, Z. Yang, Y. Toda, and R. Morita. Frequency-resolved measurement of the orbital angular momentum spectrum of femtosecond ultra-broadband optical-vortex pulses based on field reconstruction. *New Journal of Physics*, Vol. 16, No. 5, p. 053020, 2014.
 - [137] R. H. Jordan and D. G. Hall. Free-space azimuthal paraxial wave equation: the azimuthal Bessel–Gauss beam solution. *Optics Letters*, Vol. 19, No. 7, p. 427, 1994.
 - [138] D. G. Hall. Vector-beam solutions of Maxwell's wave equation. *Optics Letters*, Vol. 21, No. 1, p. 9, 1996.
 - [139] Q. Zhan. Cylindrical vector beams: from mathematical concepts to applications. *Advances in Optics and Photonics*, Vol. 1, No. 1, p. 1, 2009.
 - [140] G. G. Stokes. *Mathematical and physical papers*, Vol. 3. Cambridge University Press,

- London, 1901.
- [141] D. Goldstein. *Polarized light*. Marcel Dekker, New York, 2003.
 - [142] S. Patkar, A. E. Paul, W. Sha, J. A. Bolger, and A. L. Smirl. Degree and state of polarization of the time-integrated coherent four-wave mixing signal from semiconductor multiple quantum wells. *Physical Review B*, Vol. 51, p. 10789, 1995.
 - [143] T. Zhang, I. Kuznetsova, T. Meier, X. Li, R. P. Mirin, P. Thomas, and S. T. Cundiff. Polarization-dependent optical 2D Fourier transform spectroscopy of semiconductors. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, Vol. 104, No. 36, p. 14227, 2007.
 - [144] H. Tahara, Y. Ogawa, F. Minami, K. Akahane, and M. Sasaki. Anisotropic optical properties of excitons in strain-controlled InAs quantum dots. *Physical Review B*, Vol. 87, p. 035304, 2013.
 - [145] H. Wang, K. Ferrio, D. G. Steel, Y. Z. Hu, R. Binder, and S. W. Koch. Transient nonlinear optical response from excitation induced dephasing in GaAs. *Physical Review Letters*, Vol. 71, p. 1261, 1993.
 - [146] R. Oron, S. Blit, N. Davidson, A. A. Friesem, Z. Bomzon, and E. Hasman. The formation of laser beams with pure azimuthal or radial polarization. *Applied Physics Letters*, Vol. 77, No. 21, p. 3322, 2000.
 - [147] T. Moser, H. Glur, V. Romano, F. Pigeon, O. Parriaux, M. A. Ahmed, and T. Graf. Polarization-selective grating mirrors used in the generation of radial polarization. *Applied Physics B*, Vol. 80, No. 6, p. 707, 2005.
 - [148] M. Stalder and M. Schadt. Linearly polarized light with axial symmetry generated by liquid-crystal polarization converters. *Optics Letters*, Vol. 21, No. 23, p. 1948, 1996.
 - [149] J. A. Davis, D. E. McNamara, D. M. Cottrell, and T. Sonehara. Two-dimensional polarization encoding with a phase-only liquid-crystal spatial light modulator. *Applied Optics*, Vol. 39, No. 10, p. 1549, 2000.
 - [150] T. Grosjean, D. Courjon, and M. Spajer. An all-fiber device for generating radially and other polarized light beams. *Optics Communications*, Vol. 203, No. 1-2, p. 1, 2002.
 - [151] G. Volpe and D. Petrov. Generation of cylindrical vector beams with few-mode fibers excited by Laguerre–Gaussian beams. *Optics Communications*, Vol. 237, No. 1-3, p. 89, 2004.
 - [152] S. C. Tidwell, D. H. Ford, and W. D. Kimura. Generating radially polarized beams interferometrically. *Applied Optics*, Vol. 29, No. 15, p. 2234, 1990.
 - [153] C. Maurer, A. Jesacher, S. Fürhapter, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte. Tailoring of arbitrary optical vector beams. *New Journal of Physics*, Vol. 9, No. 3, p. 78, 2007.
 - [154] T. Wakayama, K. Komaki, Y. Otani, and T. Yoshizawa. Achromatic axially symmetric wave plate. *Optics Express*, Vol. 20, No. 28, p. 29260, 2012.
 - [155] M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, and R. Morita. Full quantitative analysis of

- arbitrary cylindrically polarized pulses by using extended stokes parameters. *Scientific Reports*, Vol. 5, p. 17797, 2015.
- [156] D. Moretti, D. Felinto, and J. W. R. Tabosa. Collapses and revivals of stored orbital angular momentum of light in a cold-atom ensemble. *Physical Review A*, Vol. 79, p. 023825, 2009.
 - [157] T. Mukai, S. Nagahama, T. Yanamoto, and M. Sano. Expanding emission wavelength on nitride light-emitting devices. *physica status solidi (a)*, Vol. 192, No. 2, p. 261, 2002.
 - [158] Y. Ueno, Y. Toda, S. Adachi, R. Morita, and T. Tawara. Coherent transfer of orbital angular momentum to excitons by optical four-wave mixing. *Optics Express*, Vol. 17, No. 22, p. 20567, 2009.
 - [159] Y. Toda, T. Ishiguro, S. Adachi, K. Hoshino, and K. Tadatomo. Highly sensitive optical probe for uniaxial strain in GaN epitaxial films. *physica status solidi (b)*, Vol. 245, No. 5, p. 878, 2008.
 - [160] D. Akamatsu and M. Kozuma. Coherent transfer of orbital angular momentum from an atomic system to a light field. *Physical Review A*, Vol. 67, p. 023803, 2003.
 - [161] P. P. Paskov, T. Paskova, P. O. Holtz, and B. Monemar. Spin-exchange splitting of excitons in GaN. *Physical Review B*, Vol. 64, No. 11, p. 115201, 2001.
 - [162] N. V. Bessolov, T. T. Dedegkaev, A. N. Efimov, N. F. Kartenko, and Yu. P. Yakovlev. Lattice constants of GaP, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ and AlP crystals. *Soviet Physics Solid State*, Vol. 22, No. 9, p. 1652, 1980.
 - [163] M. Araki, N. Mochimizo, K. Hoshino, and K. Tadatomo. Effect of misorientation angle of r -plane sapphire substrate on a -plane GaN grown by metalorganic vapor phase epitaxy. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 47, No. 1R, p. 119, 2008.
 - [164] S. Adachi, S. Muto, K. Hazu, T. Sota, K. Suzuki, S. F. Chichibu, and T. Mukai. Exciton-exciton interaction and heterobiexcitons in GaN. *Physical Review B*, Vol. 67, p. 205212, 2003.
 - [165] M. A. Bray, S. F. Lin, R. R. Aliev, B. J. Roth, and J. P. Wikswo. Experimental and theoretical analysis of phase singularity dynamics in cardiac tissue. *Journal of Cardiovascular Electrophysiology*, Vol. 12, No. 6, p. 716, 2001.
 - [166] M. A. Bray and J. P. Wikswo. Use of topological charge to determine filament location and dynamics in a numerical model of scroll wave activity. *IEEE Transactions on Biomedical Engineering*, Vol. 49, No. 10, p. 1086, 2002.
 - [167] E. Zhuchkova and R. Clayton. *Methods for Identifying and Tracking Phase Singularities in Computational Models of Re-entrant Fibrillation*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2005.
 - [168] I. Freund. Polarization singularity indices in Gaussian laser beams. *Optics Communications*, Vol. 201, No. 4?6, p. 251, 2002.

- [169] L. E. Sadler, J. M. Higbie, S. R. Leslie, M. Vengalattore, and D. M. Stamper-Kurn. Spontaneous symmetry breaking in a quenched ferromagnetic spinor Bose–Einstein condensate. *Nature*, Vol. 443, No. 7109, p. 312, 2006.
- [170] F. Manni, Y. Léger, Y. G. Rubo, R. André, and B. Deveaud. Hyperbolic spin vortices and textures in exciton-polariton condensates. *Nature Communications*, Vol. 4, , 2013.
- [171] Z. S. Sacks, D. Rozas, and G. A. Swartzlander. Holographic formation of optical-vortex filaments. *Journal of Optical Society of America B*, Vol. 15, No. 8, p. 2226, 1998.