

光の準粒子による物質操作

2025年2月

千葉大学大学院 融合理工学府
先進理化学専攻 物質科学コース

田村 理人

(千葉大学審査学位論文)

光の準粒子による物質操作

2025年2月

千葉大学大学院 融合理工学府
先進理化学専攻 物質科学コース

田村 理人

謝辞

本論文は、2022年10月に千葉大学融合理工学府先進理化学専攻物質科学コース博士後期課程に進学してからの2年半、尾松・宮本研究室において行われた研究をまとめたものです。この期間において、研究活動を通じて学術研究の最前線に挑戦できたのは、多くの方々のご支援とご協力、そして温かい励ましのおかげです。この場をお借りして、私を支えてくださったすべての皆様に、心より御礼申し上げます。

まず、副査を努めてくださった音賢一教授、森田健教授、青木伸之教授、そして中村一希教授には、貴重なご指導とご助言を賜り、誠にありがとうございました。皆様の鋭いご指摘と温かいご支援により、論文をより良いものに仕上げることができました。

次に、尾松孝茂教授には、日々の研究活動を通じて多くのご指導と助言を頂きました。先生の深い物理的な洞察に基づく鋭いご指摘は、私にとって大きな指針となり、研究テーマへの理解を深める大きな助けとなりました。また、研究者としての情熱を持ち続け、世界を見据えながら未来に向かって挑戦する姿勢からは、研究の本質的な面白さと研究者としての姿勢を学ぶことができました。国内外の学会やシンポジウム、外部の研究者との交流機会を数多く頂き、貴重な経験を通じて技術的にも精神的にも大きく成長することができました。心から感謝申し上げます。

また、宮本克彦教授には、研究に関する指導に加え、多岐にわたるサポートとディスカッションを通じて、多大なるご助力をいただきました。さらに、個人的な悩みにも親身になってご相談に乗っていただき、その助言はいつも私の励みとなりました。精神的に辛い時期にも支えていただいたおかげで、困難を乗り越え、ここまで歩んでこられたことに深い感謝の意を表します。この貴重なご指導とご支援のもとで博士論文を完成させることができたことを、心からの感謝と共に記します。

さらに、A Srinivasa Rao 特任准教授、Praveen Kumar 准教授には多くの助言と温かいご支援をいただきました。特に言語の壁を越えた親切で根気強いご対応により、研究室での生活は楽しく、充実したものとなりました。心よりお礼申し上げます。

最後に、辛い時期に寄り添い、支えてくれた友人、そして何よりも家族に対して、心からの感謝を申し上げます。皆様の支えがあって、今日、この博士論文を完成させることができました。

2025年2月 田村 理人

要旨

近年、スキルミオンやホプフィオンなどのスピンの準粒子は、物性物理学や高密度磁気メモリなど、科学から工学の幅広い分野で関心が高まっている。例えば、磁気スキルミオンは、電子のアップスピンおよびダウンスピンの線形結合によって表現されるブロッホ球上のすべての電子スピン状態を2次元に投影したスピンの渦構造を持つ。

一方、光学領域でも、光の強度、偏光、波面を空間的に制御する技術の発展に伴い、磁気スキルミオンのスピンの代わりにストークスペクトルで表現することで、3次元ポアンカレ球上のすべての偏光状態をビーム断面に投影した偏光の渦構造を光スキルミオンと呼ぶ。また、ストークスペクトルに時間位相を加えた4次元の光パラメータを3次元空間上に落とし込むことで表現される偏光の3次元渦構造を光ホプフィオンと呼ぶ。

現在、光スキルミオン・光ホプフィオンに代表される光の準粒子は、物質中に渦構造を生成・消滅・輸送する可能性が見込まれているが、実際に、光の準粒子で物質を操作した研究の報告例はほぼ存在しない。

本論文では、光の準粒子が有する偏光の渦構造を物質にダイレクトに転写し、光の準粒子を利用した新たな物質操作の可能性を探求した。

まず、単一の空間位相変調器によるデュアルパス偏光干渉計によって、光スキルミオン・光ホプフィオンの生成を行った。この光源は、従来報告されている複雑なバルクオプティクスを使った干渉計構成の光源と比べ、簡便な光学系の構築によって高品質かつ堅牢で多様な光スキルミオン・光ホプフィオンを生成することが可能であることを示した。

次に、光感受性材料であるアゾポリマーに光スキルミオンを照射し、表面レリーフとして光スキルミオンの渦構造を物質に投影することに成功した。得られたレリーフは、偏光のドメインに相当する波長以下のスケールのリップル構造を持つこと、光スキルミオン特有のメビウスの輪のような波面構造が表面レリーフとして記録できること、を実証した。

最後に、光ホプフィオンをアゾポリマーに照射することで、表面レリーフとして、その 3 次元の偏光渦構造（ホップファイバーの結び目構造）を可視化した。これにより、光ホプフィオンにおける軌道角運動量を含む横方向の散乱力（エネルギーの流れ）を示した。

目次

謝辞.....	3
要旨.....	5
目次.....	7
図の目録.....	9
投稿論文.....	14
学会発表.....	14
受賞.....	16
1. 序論.....	17
1.1. 構造化された光 -STRUCTURED LIGHT-	17
1.2. 論文の目的	25
1.3. 本論文の構成	25
1.4. 参考文献	26
2. 光の準粒子	28
2.1. 偏光	28
2.1.1. 偏光の表記法	28
2.1.2. ジョーンズベクトル	30
2.1.3. ストークスパラメータ	31
2.2. LAGUERRE-GAUSSIAN モード	33
2.2.1. LAGUERRE-GAUSSIAN モードの導出	33
2.2.2. LAGUERRE-GAUSSIAN モードの角運動量	38
2.2.3. LAGUERRE-GAUSSIAN モードの生成	40
螺旋位相板を用いた位相変調.....	40
q -プレートを用いた位相変換.....	41
空間光位相変調器を用いた位相変換.....	42
2.3. ベクトルビーム	45
2.3.1. ベクトルビームの導出	46
2.3.2. 高次ポアンカレ球	47
2.3.3. ベクトルビームの生成	48
2.4. 光の準粒子	52
2.4.1. スキルミオンの定義や分類	52
2.4.2. 光スキルミオン	54
2.4.3. 光ホプフィオン	59
2.5. 参考文献.....	63
3. アゾポリマー	68

3.1.	アゾポリマーの光によって誘起される物質移動.....	68
3.2.	表面レリーフパターン形成.....	70
3.3.	構造化された光による表面レリーフパターン形成.....	73
3.4.	参考文献.....	82
4.	デュアルパス偏光干渉計による光の準粒子生成.....	84
4.1.	研究背景.....	84
4.2.	実験方法.....	84
4.3.	実験結果と考察.....	86
4.4.	結論.....	94
4.5.	参考文献.....	95
5.	光スキルミオンによる表面レリーフ形成.....	96
5.1.	研究背景.....	96
5.2.	実験方法.....	96
5.3.	実験結果.....	98
5.4.	考察.....	102
5.5.	結論.....	107
5.6.	参考文献.....	107
6.	光ホプフィオンによる表面レリーフ形成.....	109
6.1.	研究背景.....	109
6.2.	実験方法.....	109
6.3.	実験結果と考察.....	110
6.4.	結論.....	116
6.5.	参考文献.....	116
7.	結論.....	117
7.1.	論文のまとめ.....	117
7.2.	今後の展望: 強集光した光の準粒子の表面レリーフ形成.....	118
7.3.	今後の展望: 表面レリーフ形成のダイナミクス観察.....	119
7.4.	今後の展望: 3次元構造の転写.....	121
7.5.	参考文献.....	122

図の目録

- 図 1-1 光渦の概念図。(a)右周りおよび左回りの光渦の螺旋波面（等位相面）、(b)位相分布、および(c)強度分布。
- 図 1-2 光渦の軌道角運動量（OAM）による自遊空間データ通信の概念。(a)自由空間における偏光多重化（x 偏光および y 偏光）および OAM ビームの多重化を示す。(b, c)通信時の光渦の生成および復元。[9]
- 図 1-3 $\ell = 12$ の光渦によってトラッピングされたシリカマイクロ粒子の時間追跡。円環状の強度分布において粒子に軌道角運動量が作用することで、反時計回りの公転運動を観測。[11]
- 図 1-4 誘導放出抑制顕微鏡法（STED）の概念図。(a) STED 顕微鏡における解像度向上の原理。(b) 誘導放出における飽和効果により、自然放出の領域が減少する。(c) 共焦点顕微鏡および(d)STED 顕微鏡で観察したヒト神経芽細胞腫のニューロフィラメント。[12]
- 図 1-5 (a)左巻きおよび (b) 右巻きの光渦の照射によって形成されたタンタルナノニードル。(c)左巻きおよび (d) 右巻きは拡大図。[18]
- 図 1-6 光スキルミオンの概念図。1 次の Néel 型の光スキルミオンの(a)偏光分布、(b)ストークスベクトル、(c) 光スキルミオンのストークスベクトルを単位球へマッピングすることで準粒子構造が構築される。
- 図 1-7 光スキルミオンの量子通信の概念図。量子技術においては、光スキルミオンは、2つの光子の間の量子もつれにおいて形成され、偏光の極性と渦構造で複数のトポロジカル構造を保持するため、より多くの自由度を持つ二粒子エンタングル状態を取る。(a)光子 A は、OAM ブロッチホ球上の空間自由度)、(b)光子 B は、偏光ブロッチホ球上の偏光自由度を持つ。(c) 光子間の量子のもつれは、空間内にスキルミオン構造のストークスベクトルを保持し、単位球表現へのマッピングが可能。(d) 量子波動関数の制御により、トポロジカル構造による二粒子エンタングル状態。[24]
- 図 1-8 光スキルミオンを用いたバイオイメージングの概念図。ビーム内で偏光が空間的に変化する光スキルミオンを試料に照射し、その時の偏光分布の変化から組織の分子配列や異方性から情報を取得し、生体物質の微細構造を可視化する。[30]
- 図 2-1 楕円偏光の概念図。電場ベクトル \mathbf{E} が 1 周するとその軌跡が楕円となる。方位角 α だけ傾いた楕円偏光を示している。
- 図 2-2 ポアンカレ球と偏波状態とストークスベクトル（上半球は右回り、下半球は左回り）
- 図 2-3 ギイ位相の概念図。(a)Gaussian ビーム（赤）と平面波（青）の等位相面の比較、(b)各モード(LG0, 0, LG1, 0, LG2, 0)のビーム伝搬に対する Gouy 位相のプロット。[6]
- 図 2-4 LG p , ℓ モードの位相分布および強度分布。方位角次数 ℓ と持つ LG モードは、ビームの周回方向の位相の連続的な変化を持ち、螺旋波面を示し、動径次数 p を持つ LG モードは、同心円の輪帯の強度分布を示す。
- 図 2-5 螺旋位相板の模式図。上面は高さ h_0 から $h_0 + h$ まで螺旋状に上昇している。[7]
- 図 2-6 q -プレートの概念図。(a) $\ell = \pm 1$, (b) $\ell = \pm 2$ の LG ビームを生成する q -プレートの液晶の配向を示す（線の接線は液晶の光軸の方向を示す）[11]。(c) OAM $\ell = 0$ かつ左（右）円偏光の入射光は、 $\ell = 1$ (-1) かつ右（左）円偏光の LG ビームに変換される[12]。
- 図 2-7 空間光変調（SLM）の概念図。(a)LCOS-SLM デバイスの構造、断面図[17], (b) ホログラムを表示した SLM 液晶面に光を透過させる。中心に生じる 0 次回折光は

- Gaussian ビームであり、一方で高次回折光では、次数に対応する軌道角運動量を持つ LG モードを生成される[16]。
- 図 2-8 (a)SLM に表示する位相パターン(LG3,3とLG5,1)と実験セットアップの概略図、(b)生成されたマルチリング LG ビームの強度分布の観測モードパターン。[15]
- 図 2-9 均一な偏光分布を持つスカラービームと不均一な偏光分布を持つベクトルビーム。(a)直線偏光および(b)円偏光の均一な偏光分布を持つスカラービーム。(c)ラジアル偏光および(d)アジマス偏光の不均一な偏光分布を持つベクトルビーム。赤線は偏光方向を示す。
- 図 2-10 基底状態にLG0,±1|RとLG0,∓1|Lを配置した高次ポアンカレ球とベクトルビーム。(a)北極に北極にLG0,1|R、南極にLG0,-1|L、(b)北極にLG0,-1|R、南極にLG0,1|Lを配置した高次ポアンカレ球。赤道上において位相差 ϕ によってベクトルビームの偏光分布が変化する。白矢印は偏光方向を示す。
- 図 2-11 ベクトルビーム生成のセットアップ。(a)ビームスプリッター (BS1) によりビームを2つの経路に分け、各経路に1/4波長板とスパイラル位相遅延板 (spiral phase delay plate) を配置して、円偏光の LG ビームに変調し、重ね合わせることでベクトルビームが生成される[18]。(b)SLM と 1/2 波長板で、p 成分 (x 偏光) と s 成分 (y 偏光) に対して異なる波面変調を加え、1/4 波長板を使用することで直交する円偏光として、合波するとベクトルビームが生成される[37]。
- 図 2-12 強く集光した場合のベクトルビームの集光特性。(a)直線偏光および(b)ラジアル偏光の焦点近傍の電場の向き[40]。(c)高 NA (1.32) で集光したラジアル偏光ビームの(c)横方向と(d)縦方向 (z) 成分の強度分布、およびアジマス偏光ビームの(e)横方向の強度分布[41]。
- 図 2-13 (a)直線偏光および(b)ラジアル偏光LG3,1の集光サイズ (スケールバー: 500 nm)。(c)x軸および(d)y軸に沿った測定された点広がり関数の強度プロファイルを示す。(e)直線偏光および(f)ラジアル偏光LG3,1ビームによって観測された蛍光ビーズ (直径 170 nm) のクラスターの画像 (スケールバー: 1 μ m)。(g) (e)と(f)の白線の強度が示す。(c)(d)と(g)における黒点線および赤実線は、それぞれ直線偏光およびラジアル偏光LG3,1ビームに対応する。[43]
- 図 2-14 スキルミオン (スキルミオン数 $Nsk = \pm 1$) の分類。(上)極性 $p = 1$ 、渦度 $m = 1$ の(a) Néel 型および(b) Bloch 型のスキルミオン。極性 $p = -1$ 、渦度 $m = 1$ の(c) anti 型のスキルミオン。(下)2次元のスキルミオンのベクトル場の単位球へのマッピングによる準粒子構造。[60]
- 図 2-15 光スキルミオンの時間位相と波面。(a) Néel 型の光スキルミオンにおける時間位相 ($\omega t = 0, \pi/2, \pi, 3\pi/2$)、および(b)ビーム断面の波面。メビウスの輪と形状が類似した波面構造。
- 図 2-16 光スキルミオンの偏光分布とスキルミオン構造。1次の光スキルミオンにおける(a)偏光分布、(b)2次元および(c)3次元のストークスベクトル。左から、Néel 型 ($\phi = 0$ または π)、Bloch 型 ($\phi = \pm\pi/2$)、および Anti 型の光スキルミオンを示す。
- 図 2-17 (a)基底状態にLG0,0RとLG0,-1Lを配置した光スキルミオンの高次ポアンカレ球における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。相対位相 ϕ が変化すると、Néel 型から Bloch 型に変化する。(b)基底状態にLG0,0RとLG0,1Lを配置した光スキルミオンの高次ポアンカレ球における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。相対位相 ϕ が変化しても、Anti 型から変化しない。偏光分布はジェットカラーマップで、赤と青はそれぞれ右円偏光と左円偏光を表す。ストークスベクトルは、ポアンカレ球上の偏光を示し、矢印の色はポアンカレ球の緯度 θ をジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。

- 図 2-18 ビーム伝搬時の 1 次の光スキルミオン（焦点で Néel 型）の偏光分布とストークスベクトル。Néel 型から Bloch 型へ変換する。偏光分布はジェットカラーマップで表され、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。ストークスベクトルは、ポアンカレ球上の偏光を示し、矢印の色はS3をジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。
- 図 2-19 光ホプフィオンの概念図。(a)Z 方向に伝搬する光ホプフィオンの横方向の偏光と位相を示す。矢印の形は偏光状態、矢印の位置で時間位相の状態を示す。色相は偏光状態、彩度は楕円率で変化する。黒は左円偏光、白は右円偏光を表す。3つの代表的な偏光において、同じ偏光領域を結び、ホップファイバーの結び目構造を形成する。(b)光ホプフィオンの偏光の入れ子構造を反映して、それぞれの偏光状態のホップファイバーの結び目によって偏光のトーラス構造が形作られる。[77]。
- 図 2-20 (a)ビーム伝搬における Néel 型の光ホプフィオンの x-z の強度プロファイル、(b1,c1, d1) $z=-1.5zR$, (b2, c2, d2) $z=0$, (b1, c1, d1) $z=1.5zR$ における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。
- 図 3-1 (a)アゾベンゼンの異性化の反応式、(b)アゾポリマーの光誘起表面レリーフ形成過程の概念図。
- 図 3-2 (a)干渉光によるアゾポリマーの表面回折格子の形成の模式図。(b)生成された表面回折格子の AFM 像とその断面[4]。
- 図 3-3 (a)直線偏光および(b)円偏光の Gaussian ビームの照射によって作られるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像。集光された単一レーザーの偏光を反映した物質移動が誘起される[15]。
- 図 3-4 (a)強集光されたラジアル偏光ビームの縦電場発生メカニズム。(b)膜厚 60nm のアゾポリマーフィルムにラジアル偏光ビームを照射して得られる表面レリーフ。
- 図 3-5 2 fps で取得した(a) x 方向および(b) y 方向の直線偏光ガウスビーム照射時のアゾポリマーフィルムの AFM 画像。緑矢印は過剰光の偏光方向を表現している。
- 図 3-6 $\ell = 10$ および -10 の強集光した直線偏光の光渦によって形成されたアゾポリマーフィルム上の螺旋状構造のレリーフの AFM 画像[25]。
- 図 3-7 (a)直線偏光（白矢印の方向）における $\ell=1$ の光渦の照射によって作られたアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像。(b)それに対応するシミュレーション結果。(c)と(d)は $\ell=2$ 、(e)と(f)は $\ell=5$ 、(g)と(h)は、 $\ell=10$ の光渦の照射によって作製された表面レリーフの AFM 画像およびシミュレーション結果。
- 図 3-8 (a) $(\ell, s) = (-1, -1)$ および $(\ell, s) = (1, 1)$ の同じ方向に回転する円偏光の光渦の照射で作られた、反時計回りおよび時計回りにねじれたキラルな表面レリーフ。
- 図 3-9 光渦の照射によるアゾポリマーの表面レリーフ形成。OAM と SAM の符号が反転している場合や OAM だけではキラルな構造はできない、OAM が SAM の助けを借りて、アゾポリマーをねじることがわかる。(a) $(\ell, s) = (-1, 1)$ 、(b) $(\ell, s) = (-1, 0)$ 、(c) $(\ell, s) = (-3, 1)$ 、および(d) $(\ell, s) = (-2, 0)$ 。
- 図 3-10 TAM $J=0$ $(\ell, s) = (-1, 1)$ の(a)光輻射力と(b)形成された表面レリーフ。TAM $J=-2$ $(\ell, s) = (-1, -1)$ の(c)光輻射力と(d)表面レリーフ。[28]
- 図 3-11 (a)右円偏光と(b)左円偏光の Gaussian ビームの照射することで、作られた螺旋状の表面構造の AFM 画像。(c)時計回りおよび(d)反時計回りに構造がねじれる経時変化。(e)右円偏光および(f)左円偏光のガウスビームによって発生する光散乱力の空間分布。
- 図 3-12 ペタルビーム照射時によるアゾポリマーの多重螺旋構造。SAM $s = 1$ （左円偏光）および $s = -1$ （右円偏光）のペタルビームの照射によって作られた表面レリーフの AFM 画像。(a)2つの明点を持つペタルビームの空間プロファイル。(b)、(c)反時計回り、(d)、(e)時計回りに回転するペタルビームを使用して作られた表面レ

リーフ構造の AFM 画像。(b)、(d) $s = 1$ および(c)、(e) $s = -1$ のビームで作られた表面レリーフ。(f) 4つの明点を持つペタルビームの空間プロファイル、(g) 反時計回り渦状表面レリーフ構造、(h) 時計回り表面レリーフ構造。赤線はペタルビームの回転方向、黒線は長さ $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを示す。

- 図 4-1 (a)光スキルミオンおよび(b)光ホプフィオンの生成する実験セットアップの概略図。挿入図は、各位置での x 偏光と y 偏光の各モードの強度分布を示している。M1 および M2: 全反射ミラー、HWP: 半波長板、PM1 および PM2: 位相マスク、SLM: 空間位相変調器、QWP: 1/4 波長板。
- 図 4-2 (a)1 次の光スキルミオン (Néel 型) の各偏光 (直線偏光および円偏光) 成分の強度分布のシミュレーション値(上)と測定値(下)。黒矢印は偏光状態を表す。(b)、(c) 生成された 1 次および 2 次の光スキルミオンのシミュレーション値(上)と実験値(下)の偏光分布とストークスベクトル($S1, S2, S3$)の空間プロファイル。偏光状態はジェットカラーマップで示されており、赤は右円偏光、青は左円偏光を表現している。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを表す。
- 図 4-3 $z = -zR, 0, zR$ における共焦点範囲内の Néel 型の光スキルミオンのシミュレーション値(左)および実測値(右)のストークスベクトル。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを表す。
- 図 4-4 (a) Néel 型の光ホプフィオンの直線偏光および円偏光成分の強度分布のシミュレーション値(上)と実験値(下)。黒矢印は偏光状態を表す。(b) 生成された光ホプフィオンのシミュレーション値(上)と実験値(下)の偏光分布とストークスベクトル ($S1, S2, S3$)の空間プロファイル。偏光状態はジェットカラーマップで示されており、赤は右円偏光、青が左円偏光を指し示す。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを表す。
- 図 4-5 ベクトルビームの各偏光 (直線偏光と円偏光) 成分の強度分布のシミュレーション値(上)と実測値(下)。上からラジアル偏光、アジマス偏光、およびアンチボルテックス偏光の結果を示す。
- 図 5-1 (a) 実験で使用したアゾポリマー (Poly-Orange Tom-1) の構造式と立体構造図。(b) 可視領域におけるアゾポリマーの吸収スペクトル。黒い線は 532 nm で高い吸収特性を示す。
- 図 5-2 アゾポリマーの表面レリーフを作製する実験セットアップの概略図。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。
- 図 5-3 光スキルミオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造の AFM 画像。列 (左から右へ) には、偏光分布、2 次元および 3 次元 AFM 画像と、表面レリーフ構造の赤線に沿ったラインプロファイルが示されている。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーである。
- 図 5-4 ラジアル偏光、アジマス偏光、およびアンチボルテックス偏光のベクトルビームの集光照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造の AFM 画像。列 (左から右へ) には、偏光分布、2 次元および 3 次元 AFM 画像と、表面レリーフ構造の赤線に沿ったラインプロファイルが示されている。白線は $1 \mu\text{m}$ スケールを表す。
- 図 5-5 共焦点領域内 ($z = -zR, 0, zR$) における、光スキルミオン (Néel 型) の照射によって作り出されたアゾポリマーの表面レリーフの表面構造。列 (左から右へ) には、偏光分布、2 次元および 3 次元 AFM 画像を図示している。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーである。
- 図 5-6 Néel 型の光スキルミオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造のラインプロファイル。列 (左から右へ) には、偏光分布、2 次元の AFM 画

- 像、表面レリーフ構造の青線に沿ったラインプロファイルを表す。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーである。
- 図 5-7 Néel 型の光スキルミオンの(a)偏光分布、(b)各位置の楕円偏光の長軸と x 軸との角度成分の垂直成分、(c)表面レリーフ構造の高周波数成分。(b)の黒線は、楕円偏光の方位角成分の垂直成分を示し、(c)はグレースケールで表現している。
- 図 5-8 1 次の (a) Néel 型および(b)Anti 型、2 次の(c)Néel 型および(d)Anti 型の光スキルミオンによって生成される時間平均した光散乱力の理論計算結果のプロット。右上の挿入図は、それぞれの光スキルミオンによって形成されるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像を示している。
- 図 6-1 光ホプフィオンのアゾポリマーの表面レリーフ形成の実験の概念図。3 次元偏光分布を持つ光ホプフィオンがアゾポリマーを伝搬し、物質とのインタラクション通じて表面レリーフを構築する。
- 図 6-2 (a)Néel 型および(b)Anti 型の偏光分布のシミュレーション値および光ホプフィオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造 (2D および 3D 図)。(c-d)軸上前方位置 $z=0, 0.5zR, zR, 1.5zR$ における(c)Néel 型および (d)Anti 型の光ホプフィオンの照射によって形成された表面レリーフ構造。挿入図は、各軸上位置での偏光分布のシミュレーション値とビームの空間強度分布を示す。光ホプフィオンの偏光状態はジェットカラーマップで表され、赤色は右円偏光、青色は左円偏光を表す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールを表している。
- 図 6-3 低 NA (~ 0.2) の集光条件で光ホプフィオンを照射したときに形成されるアゾポリマー上の表面レリーフ構造 (2D および 3D 図)。 $z=0$ (焦点) と $z=zR$ における(a)Néel 型および(b)Anti 型の光ホプフィオンの偏光分布のシミュレーションと表面レリーフ。光ホプフィオンの偏光状態は、ジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーである。
- 図 6-4 (左) $z=0$ (焦点位置) と (右) $z=zR$ における (上) Néel 型および (下) Anti 型の光ホプフィオンの時間平均された光散乱力の理論計算結果のプロット。赤矢印は光散乱力の方向を示している。挿入時は、対応する偏光分布のシミュレーションと実験で表面レリーフの表面構造。
- 図 6-5 (a)Néel 型および(b)Anti 型の光ホプフィオンの偏光分布と時間平均された光散乱力のシミュレーション値、および実験で得られた表面レリーフの z 軸方向への伝搬の沿った 3 次元投影。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。赤矢印は光輻射力の方向を示し、白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーを示す。
- 図 7-1 アゾポリマー薄膜に直線偏光ガウシアンビームを集光照射 ($\text{NA}=0.85$) した際に形成された表面レリーフ。上から順に、集光前のビームの強度分布 (白矢印は直線偏光の方向を示す)、集光時の全体の強度、x、y、z 方向の電場、アゾポリマーフィルム上に構築される表面レリーフの AFM 画像。[5]
- 図 7-2 (a) HS-AFM によってアゾポリマーの光誘起物質移動のリアルタイムでの形成ダイナミクスを観察するための実験セットアップの概略図。(b) x 方向および(c) y 方向の直線偏光ガウシアンビームを照射時に形成されるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 像。緑矢印は入射光の偏光方向を示す。(d) 照射時間 14 秒のアゾポリマーフィルムの AFM 像と白矢印に沿った高さプロファイルの経時変化。[6]
- 図 7-3 (a)直線偏光ガウシアンビームや円筒対称の偏光を有するベクトルビームによる液晶材料の配向制御の概念図。(b)液晶材料への偏光分布の記録時の実験セットアップ図。(c)液晶材料に記録するポンプ光 (記録する光) の偏光分布とプローブ光 (読み出し光) によって再生された強度分布。 ℓ は偏光の回転回数と回転方向を表す。 ψ と φ は、それぞれビーム内の偏光の方位角を表す。[7]

投稿論文

- [1] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Kazuki Tsuda, Fanny Getzlaff, Katsuhiko Miyamoto, Natalia M. Litchinitser, Takashige Omatsu, "Direct imprint of optical skyrmions in azopolymers as photoinduced relief structures," *APL Photonics* 9(4), 046104 (2024)
- [2] **Rihito Tamura**, Srinivasa Rao Allam, Natalia M. Litchinitser, Takashige Omatsu, " Three-Dimensional Projection of Optical Hopfion Textures in a Material," *ACS Photonics* 11, 4958–4965 (2024)
- [3] **Rihito Tamura**, Katsuma Miyamoto, Satoru Tsukada, Katsuyoshi Hoshino, "Edge-on lamellar crystallization of oligo(3-methoxythiophene) in polyester matrix films and a gold tone development thereof," *Adv. Mater.*, 3(8), 3428-3437(2022)
- [4] Satoya Sugiura, Terumasa Mitogawa, Kota Saito, **Rihito Tamura**, Satoru Tsukada, Takahiko Horiuchi, Katsuyoshi Hoshino " Slippage- and load-induced changes in the crystalline orientation of oligo(3-methoxythiophene) powder to develop a gold-tone luste," *RSC Adv.*, 12, 19965– 19973 (2022)

学会発表

【国際発表】

- [1] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Generation of optical skyrmion by using a spatial light modulator with a self-interferometer configuration," The 10th Optical Manipulation and Structured Materials Conference 2023, (Yokohama, Japan), 20 April, 2023
- [2] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Generation of optical skyrmion by using a spatial light modulator with a self-interferometer configuration," SPIE Organic Photonics + Electronics, (San Diego, USA), 5 October, 2023
- [3] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Versatile optical skyrmion generator based on a single-path polarization interferometer," The 12th Asia-Pacific Laser Symposium," (Hakodate, Japan), 6 September, 2023
- [4] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Kazuki Tsuda, Fanny Getzlaff, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Optical-skyrmions induced exotic surface structures of azo-polymers," JSAP-Optica Joint Symposia, (Kumamoto, Japan), 23 September, 2023
- [5] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Kazuki Tsuda, Fanny Getzlaff, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Creation of exotic structures in azopolymers with optical skyrmions," SPIE Photonics West, (San Francisco, USA), 13 March, 2024
- [6] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu. "Direct imprint of optical skyrmions with topologically protected polarization textures in a material," The 11th Optical Manipulation and Structured Materials Conference 2024 (Yokohama, Japan), 23 April, 2024
- [7] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, " Direct imprint of topologically protected polarization textures of optical skyrmions onto a material," CLEO 2024, (Charlotte, USA), 6 May, 2024 **invited**

[8] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A.Srinivasa Rao, Natalia M. Litchinitser, Takashige Omatsu, "Direct transfer of topologically protected polarized structures of optical skyrmions into material," Seventh International Conference on Optical Angular Momentum, (Skukuza, South Africa), 26 June, 2024

[9] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A.Srinivasa Rao, Natalia M. Litchinitser, Takashige Omatsu, "Optical Skyrmionic Hopfion Induced Surface Structures in Azopolymers via Photo-induced Mass Transport," CLEO-PR 2024, (Songdo, Korea), 8 August, 2024

[10] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, "Generation of optical skyrmion by using a spatial light modulator with a self-interferometer configuration," Structured Light for Life, (Adelaide, Australia), 21 February, 2023, Poster.

[11] **Rihito Tamura**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, "Creation of skyrmionic relief Structures in azo polymers through polarization-engineered optical skyrmions," Structured Laser and Matter 2023, (Taipei, Taiwan), 17 June, 2023, Poster.

[12] Kota Kojimoto, **Rihito Tamura**, Feng-Yueh Chan, Keishi Yang, Takayuki Uchihashi, Prabhat Verma, Takashige Omatsu, Takayuki Umakoshi, "High-speed atomic force microscopy combined with optical vortex for in-situ real-time observation of twisting azo-polymer," JSAP-Optica Joint Symposia 2024, (Niigata, Japan), 19 September 2024, Oral.

【国内発表】

[1] **田村 理人**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, 宮本 克彦, 尾松 孝茂.

“単一行路型自己参照干渉法による光スキルミオン生成,”

第 70 回 応用物理学会 春季学術講演会, (東京, 日本), 18 March, 2023

[2] **Rihito Tamura**, A. Srinivasa Rao, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu.

“Structured beam optics and light-matter interaction,”

公開シンポジウム「光がもたらす未来社会～ICO の新たな発展に向けて～」,

(東京, 日本), 10 July, 2023

[3] **田村 理人**, Praveen Kumar, A. Srinivasa Rao, 津田 和樹, Natalia M. Litchinitser,

宮本 克彦, 尾松 孝茂. “光誘起物質移動を介したアゾポリマーへの光ホプフィオン・スキルミオンのダイレクトインプリント,”

第 71 回応用物理学会春季学術講演会, (東京, 日本), 23 March, 2024

[4] 津田 和樹, **田村 理人**, 華岡 光正, 宮本 克彦, 尾松 孝茂. “シアノバクテリアの光渦による公転運動操作,”

第 71 回応用物理学会春季学術講演会, (東京, 日本), 23 March, 2024

[5] 伊東 莉那, **田村 理人**, 魏 榕, 塚田 学, 星野 勝義, 宮本 克彦, 尾松 孝茂. “光渦レーザーが誘導する導電性高分子の結晶化現象,” 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, (東京, 日本), 23 March, 2024

[6] 田村 理人, 尾松 孝茂.

“Creation of exotic structures in azopolymers with optical skyrmionic hopfion,”

第 85 回 応用物理学会 秋季学術講演会, (新潟, 日本), 17 September, 2024 招待講演

受賞

[1] Joint Workshop on Structured Laser and Matter 最優秀賞 受賞, June, 2023

[2] MOLECULAR CHIRALITY RESEARCH CENTER 発表会最優秀賞 受賞, December, 2023

[3] 第 56 回 2024 年春季 応用物理学会講演奨励賞 受賞, March, 2024

[4] CLEO-PR 2024 Best Student Papers 1st Prize, August 2024

[5] コニカミノルタ光みらい学生奨励金, November 2024

1. 序論

1.1. 構造化された光 -Structured light-

ここ数年の光学素子や空間光変調器 (SLM) などのレーザーの制御技術の進歩に伴い、光の強度、偏光、位相の空間的な制御が行えるようになってきている。このように制御された光波は「構造化された光 (Structured Light)」と称され、多くの研究対象になっている[1-3]。その代表例の1つが光渦である[4-6]。

光渦は、不連続の等位相面を有する一般的な光波と異なり、ビームの周回方向で位相が滑らかに変化するため、等位相面が螺旋状にねじれた構造を形成する (図 1-1)。その結果、ビームの中央部分には、位相が定義できない特異点 (位相特異点) が存在し、円環状の強度分布となる。また、光渦は、螺旋波面に起因する軌道角運動量 ℓ (Orbital Angular Momentum: OAM) を持ち、右回りあるいは左回りの回転方向に加え、螺旋波面のねじれに応じた自由度 (topological charge) を持つ。

光渦は、軌道角運動量の次数を活用した多重化光通信 (図 1-2) [7-9]、螺旋波面を利用した微粒子を捕捉・操作する光ピンセット (図 1-3) [10,11]、および誘導放出抑制 (STED) 顕微鏡法による超解像観察 (図 1-4) [12]などの多岐にわたる分野で活用されている。

特に、光渦が持つ角運動量によって物質のキラリティーを制御する物質操作技術が実験的に証明されつつある。例えば、金属に対して、円偏光の光渦パルスレーザーを照射することで、照射部の金属が溶解し、光の角運動量の方向にねじれたキラルなニードル構造を作り出される[13]。さらには、角運動量の向きによって、そのキラルなニードル構造のねじれる向きは選択的に制御される。さらに、金属だけでなく、シリコン[14]やポリマー膜[15]などでも適用可能である。また光硬化性樹脂に光渦を照射することで、ねじれたマイクロファイバーの形成も実現している[16]。また、水溶液中ではアキラルな分子である NaClO_3 の水溶液に、円偏光光渦を照射することでキラル結晶化を促し、結晶のキラリティー (右手系・左手系) を制御されている[17]。

これらの光の角運動量によって作られるキラル構造の作製技術は、ナノ・マイクロスケールの物質のキラリティーを作り分けることができ、今後のナノテクノロジーや材料科学の進展に貢献する可能性もある。

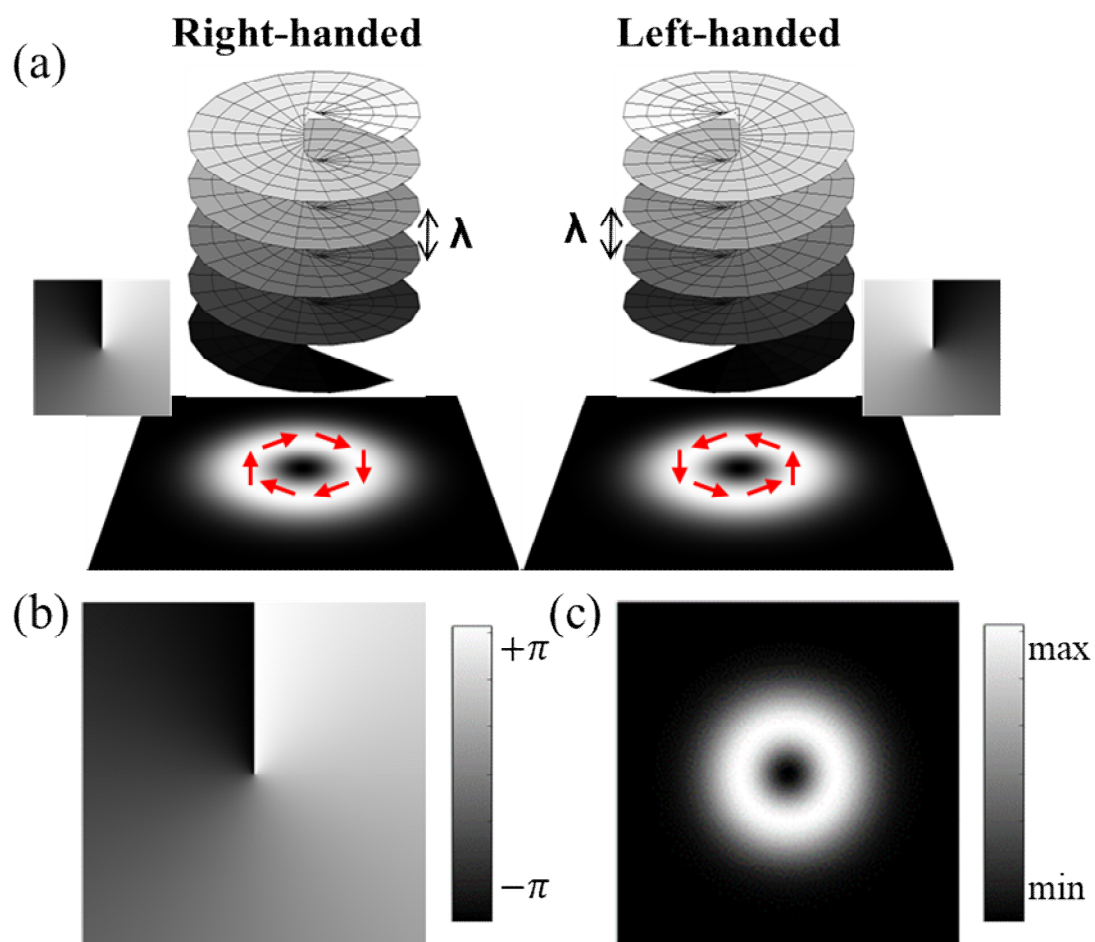


図 1-1 光渦の概念図。(a)右周りおよび左回りの光渦の螺旋波面（等位相面）、(b)位相分布、および(c)強度分布。

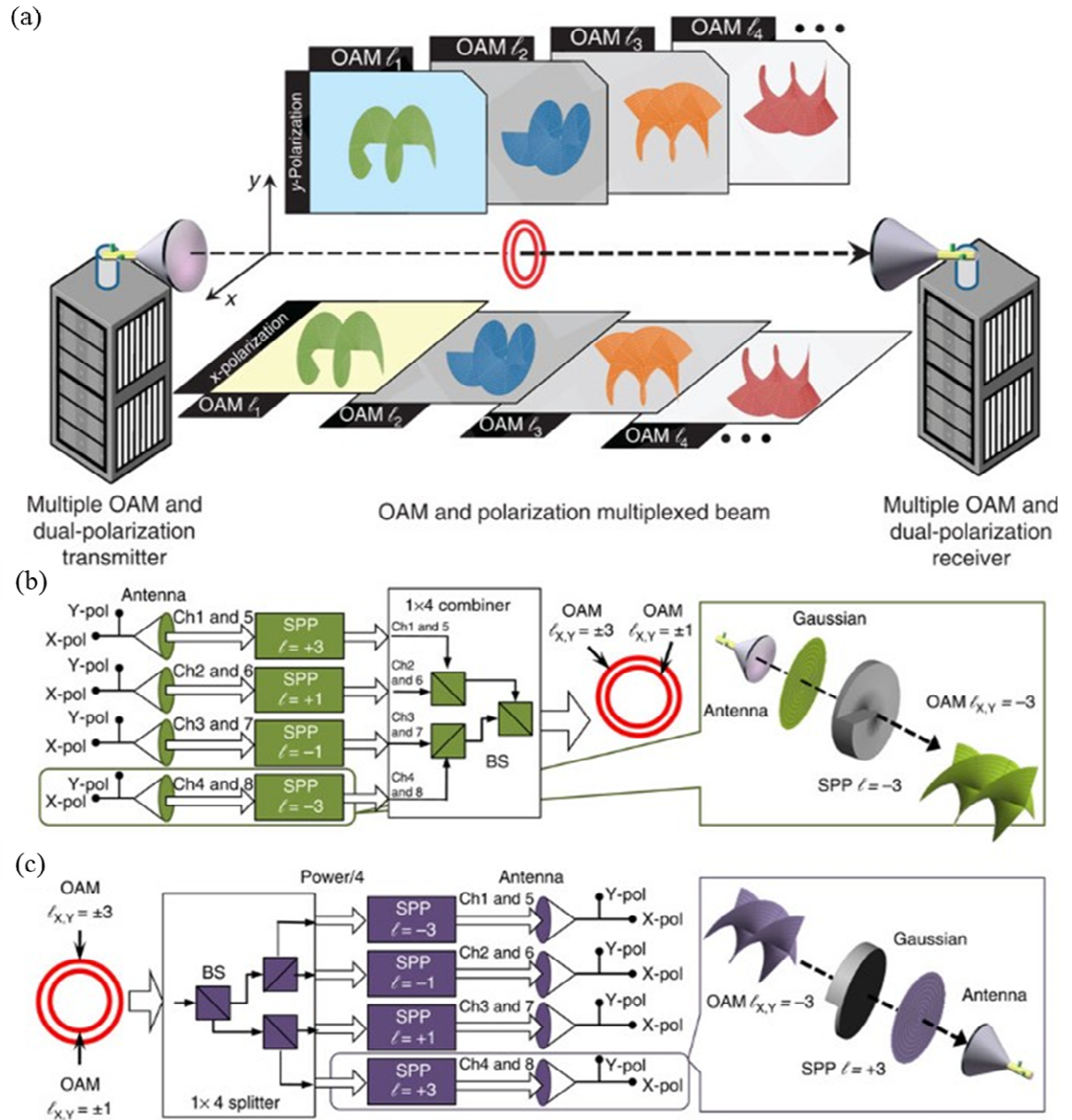


図 1-2 光渦の軌道角運動量 (OAM) による自由空間データ通信の概念。(a) 自由空間における偏光多重化 (x 偏光および y 偏光) および OAM ビームの多重化を示す。(b, c)通信時の光渦の生成および復元。[9]

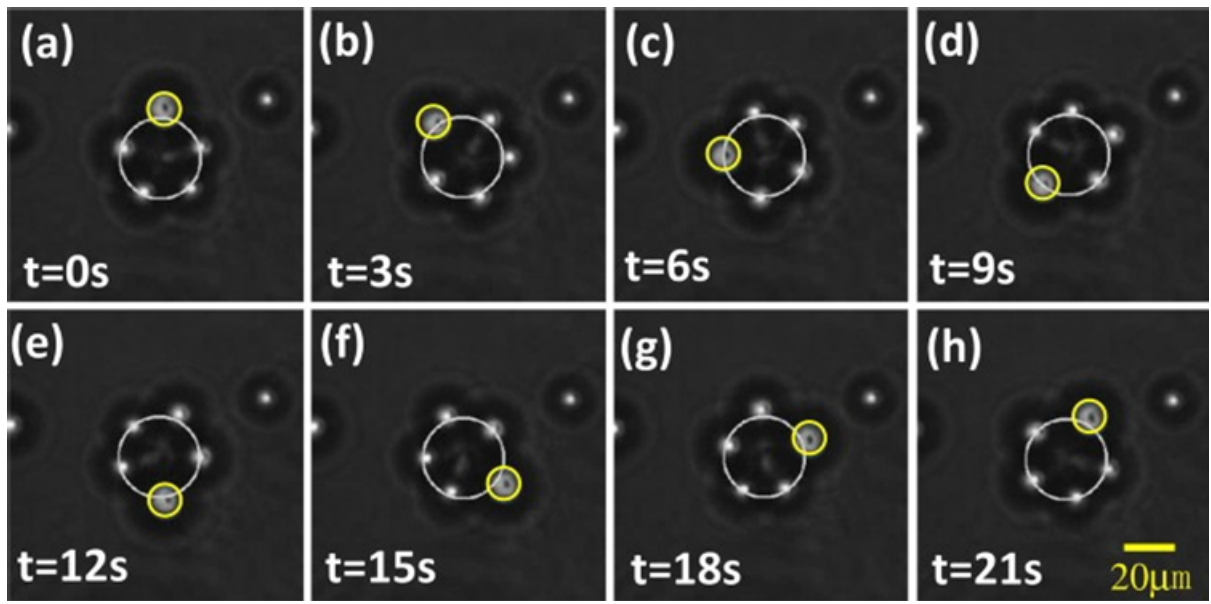


図 1-3 $\ell = 12$ の光渦によってトラッピングされたシリカマイクロ粒子の時間追跡。円環状の強度分布において粒子に軌道角運動量が作用することで、反時計回りの公転運動を観測。[11]

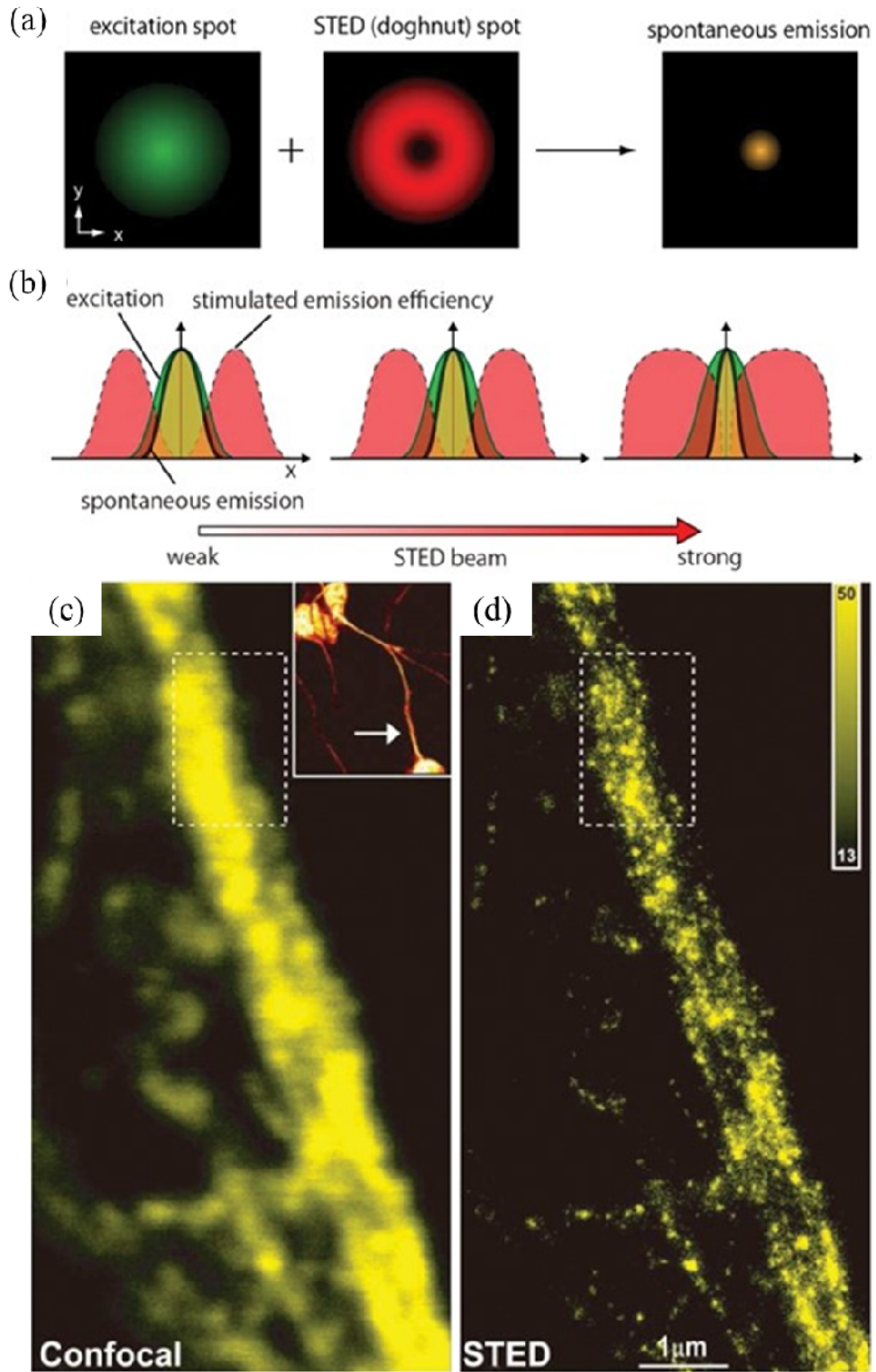


図 1-4 誘導放出抑制顕微鏡法 (STED) の概念図。(a) STED 顕微鏡における解像度向上の原理。(b) 誘導放出における飽和効果により、自然放出の領域が減少する。(c)共焦点顕微鏡および(d)STED 顕微鏡で観察したヒト神経芽細胞腫のニューロフィラメント。[12]

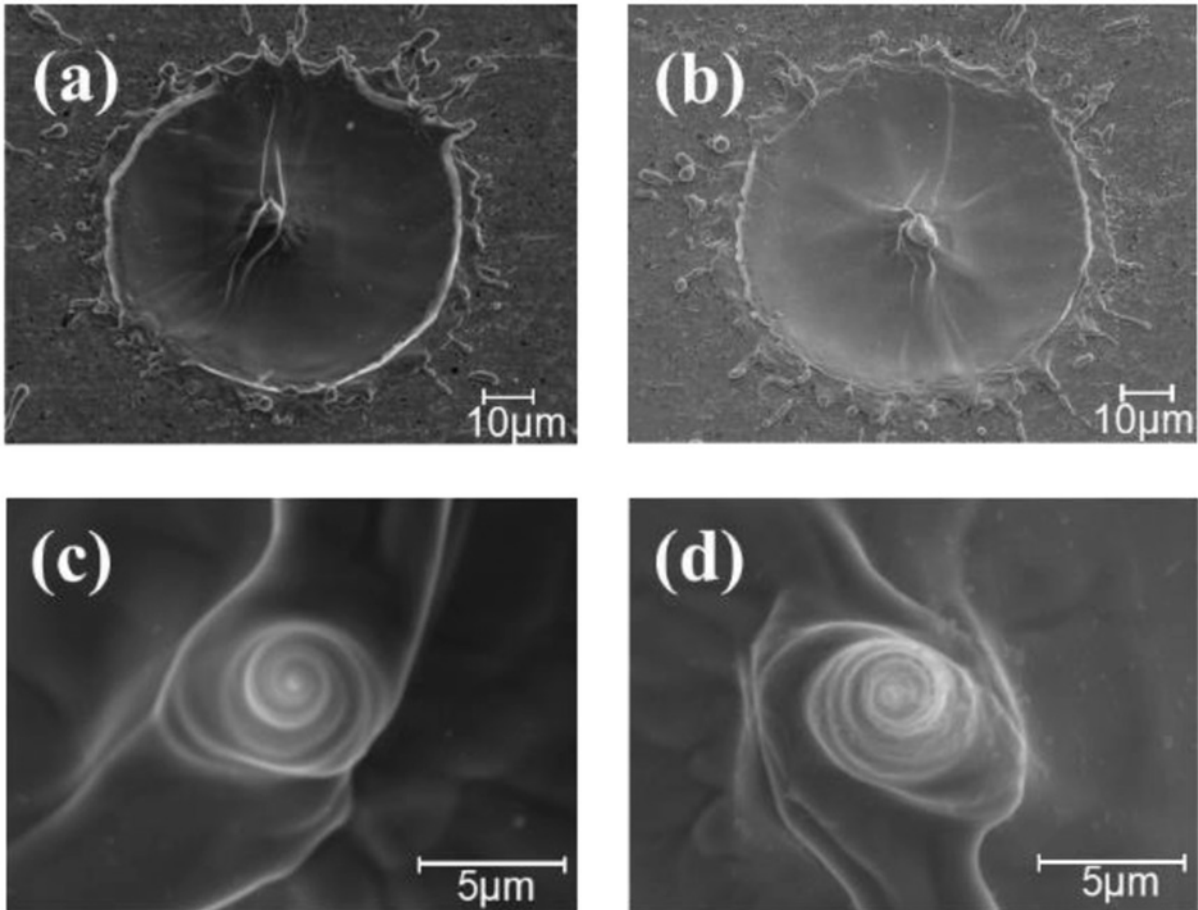


図 1-5 (a)左巻きおよび (b) 右巻きの光渦の照射によって形成されたタンタルナノニードル。(c)左巻きおよび (d) 右巻きは拡大図。[18]

さらに近年、光渦以上に関心を集めているのが、「光スキルミオン」や「光ホプフィオン」といった光の準粒子である。

光スキルミオンは、3次元ポアンカレ球を2次元（ビーム断面）にマッピングした2次元の偏光の渦構造を持ち、古くは「フルポアンカレビーム」として知られていた（図 1-6）[19-22]。一方、光ホプフィオンは、時間位相と3つのストークスパラメータによって形成される4次元の光パラメータを3次元物理空間上に投影することで形成される3次元の偏光渦構造を持つ。これらの光の準粒子は、空間伝搬において擾乱を受けにくく、偏光の空間構造が安定で堅牢性を有する。さらに、これらの光の準粒子は偏光構造から空間自由度を定義することが可能であり、自由空間多重通信や量子通信（図 1-7）[23-26]、光コンピューティン

グ[27]、サブ波長スケールの偏光ドメインを用いた超解像度顕微鏡[28,29]、およびバイオイメージング (図 1-8) [3,30]、など多岐にわたる応用が見込まれている。

その中でも、光の準粒子の偏光ドメインと物質の相互作用を理解することは、これらの応用の実現において不可欠である。また、光の準粒子を用いて、物質中に自然界では存在しないトポロジカルな渦構造を生成・消滅・輸送する技術も見込まれている。しかしながら、これらの光の準粒子も関する研究は依然として初期段階であり、光渦とは対照的に、光の準粒子を用いた物質操作に関する詳細な報告はほとんどされていない状況である。

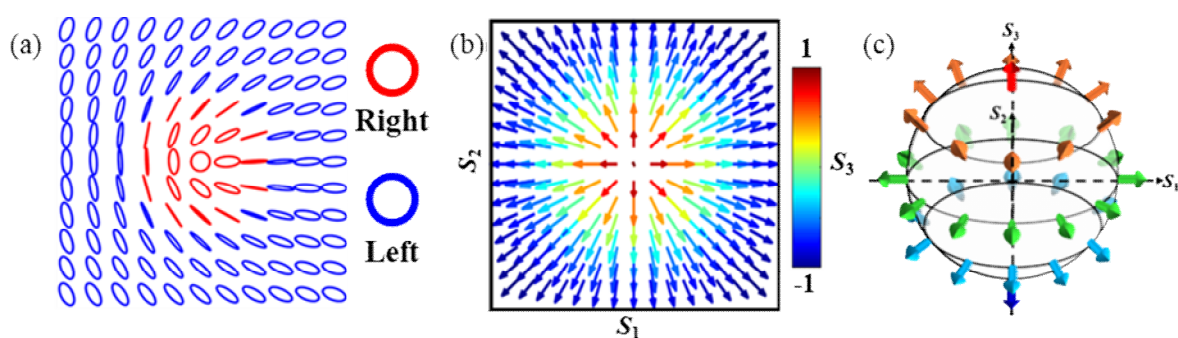


図 1-6 光スキルミオンの概念図。1 次の Néel 型の光スキルミオンの(a)偏光分布、(b)ストークスペクトル、(c) 光スキルミオンのストークスペクトルを単位球へマッピングすることで準粒子構造が構築される。

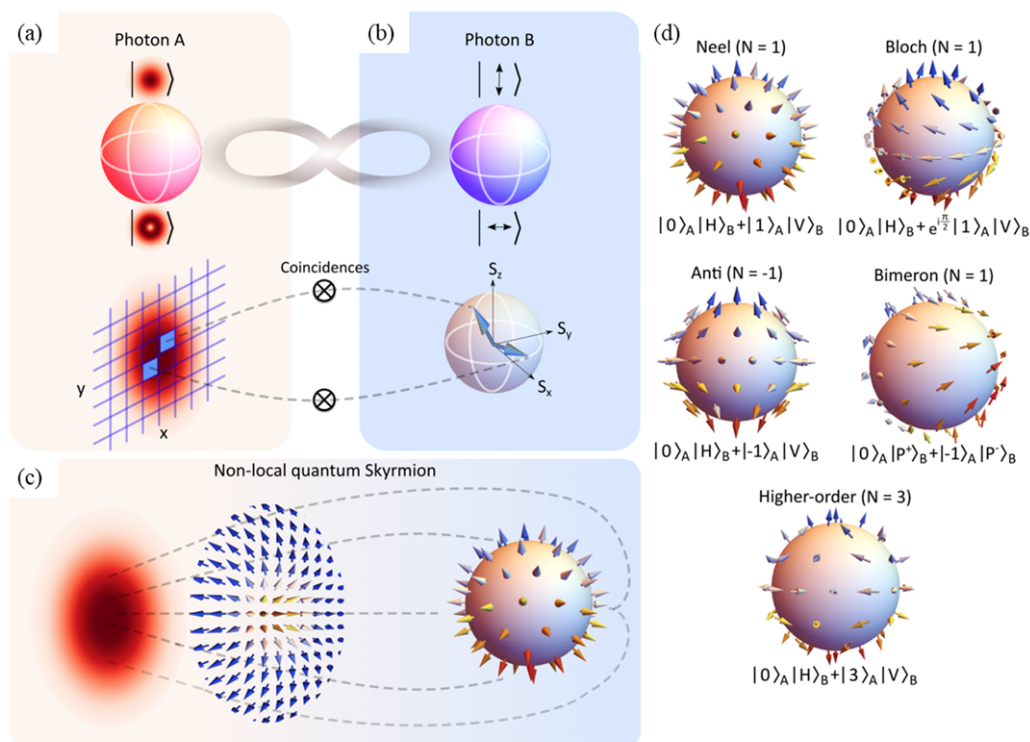


図 1-7 光スキルミオンの量子通信の概念図。量子技術においては、光スキルミオンは、2 つの光子の間の量子もつれにおいて形成され、偏光の極性と渦構造で複数のトポロジカル構造を保持するため、より多くの自由度を持つ二粒子エンタングル状態を取る。(a)光子 A は、OAM ブロッチホ球上の空間自由度)、(b)光子 B は、偏光ブロッチホ球上の偏光自由度を持つ。(c) 光子間の量子のもつれは、空間内にスキルミオン構造のストークスペクトルを保持し、単位球表現へのマッピングが可能。(d)量子波動関数の制御により、トポロジカル構造による二粒子エンタングル状態。[24]

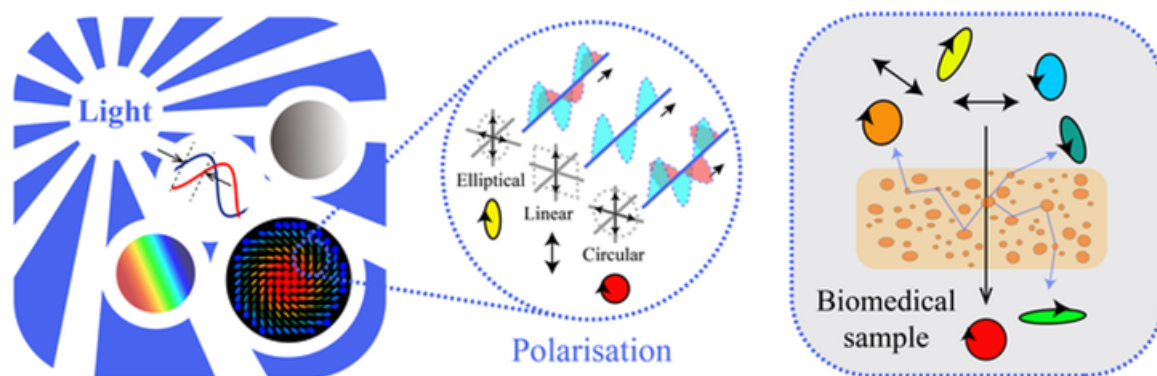


図 1-8 光スキルミオンを用いたバイオイメーキングの概念図。ビーム内で偏光が空間的に変化する光スキルミオンを試料に照射し、その時の偏光分布の変化から組織の分子配列や異方性から情報を取得し、生体物質の微細構造を可視化する。[30]

1.2. 論文の目的

この研究は、「光の準粒子と物質の相互作用」を明らかにし、光の準粒子を用いた物質中にトポロジカルな渦構造を生成・操作する物質操作技術の確立を目指す。

そのため、光感受性材料であるアゾポリマーをモデル物質として選び、光の準粒子をアゾポリマーに集光照射することで、トポロジカルな渦構造を物質に記録するデモンストレーションを行い、光の準粒子と物質の相互作用に関する物理的メカニズムを解明し、光の準粒子を活用した材料加工および物質操作技術の基盤を築くことを目的とした。

1.3. 本論文の構成

本論文では、光感受性を持つアゾポリマーに光の準粒子を照射し、誘起される表面レリーフを通してその偏光の渦構造を可視化するデモンストレーションについて詳述する。さらに、光の準粒子の偏光ドメインが物質に与える物理的作用（光散乱力）の理論計算も行い、その構造を作り出される原理について検証した。

2章では、光の準粒子の原理、物理的特性、および生成方法について述べる。光の偏光の基本的な概念から始め、生成に用いるラゲールガウス（LG）モードを波動方程式から導出し、さらにLGモードを基に構築されるベクトルビーム、光スキルミオン、光ホプフィオンといった光の準粒子などの構造化された光の特性や生成方法について説明する。

3章では、光感受性材料であるアゾポリマーについて取り上げる。特に、光の強度、偏光、波面に依存した構造が作り出されるアゾポリマーの表面レリーフの特性を解説する。

4章では、光スキルミオンや光ホプフィオンといった構造化された光の生成方法について述べる。単一の空間光変調器（SLM）を用いたデュアルパス偏光干渉計に基づく生成手法を説明する。

5章では、生成した光スキルミオンをアゾポリマーに照射し、その偏光構造を表面レリーフとして転写した実験について記述する。また、アゾポリマー薄膜に転写されたスキルミオ

ン構造と、光スキルミオンが持つ光散乱力の解析結果を基に、その構造形成のメカニズムを明らかにする。

6章では、光ホプフィオンの照射によって構築されるアゾポリマーの表面レリーフを通して、光ホプフィオンの3次元の偏光構造によるホップファイバーの結び目構造を可視化した実験について詳述する。

7章では、全体の内容をまとめた結論を述べ、現状考えられる今後の研究展開についても説明する。

1.4. 参考文献

1. 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-Martel, N. M. Litchinitser, N. P. Bigelow, C. Rosales-Guzmán, 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* **19**(1), 013001 (2017).
2. A. Forbes, M. de Oliveira, and M. R. Dennis, "Structured light," *Nat Photonics* **15**(4), 253–262 (2021).
3. C. He, Y. Shen, and A. Forbes, "Towards higher-dimensional structured light," *Light Sci Appl* **11**(1), 205 (2022).
4. 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," *Phys Rev A (Coll Park)* **45**(11), 8185 (1992).
5. M. J. Padgett, "Orbital angular momentum 25 years on [Invited]," *Opt Express* **25**(10), 11265 (2017).
6. Y. Shen, X. Wang, Z. Xie, C. Min, X. Fu, Q. Liu, M. Gong, and X. Yuan, "Optical vortices 30 years on: OAM manipulation from topological charge to multiple singularities," *Light Sci Appl* **8**(1), 90 (2019).
7. A. Trichili, C. Rosales-Guzmán, A. Dudley, B. Ndagano, A. Ben Salem, M. Zghal, and A. Forbes, "Optical communication beyond orbital angular momentum," *Sci Rep* **6**(1), 27674 (2016).
8. D. Cozzolino, D. Bacco, B. Da Lio, K. Ingerslev, Y. Ding, K. Dalgaard, P. Kristensen, M. Galili, K. Rottwitt, S. Ramachandran, and L. K. Oxenløwe, "Orbital Angular Momentum States Enabling Fiber-based High-dimensional Quantum Communication," *Phys Rev Appl* **11**(6), 064058 (2019).
9. Y. Yan, G. Xie, M. P. J. Lavery, H. Huang, N. Ahmed, C. Bao, Y. Ren, Y. Cao, L. Li, Z. Zhao, A. F. Molisch, M. Tur, M. J. Padgett, and A. E. Willner, "High-capacity millimetre-wave communications with orbital angular momentum multiplexing," *Nat Commun* **5**(1), 4876 (2014).
10. G. D. Bruce, P. Rodríguez-Sevilla, and K. Dholakia, "Initiating revolutions for optical manipulation: the origins and applications of rotational dynamics of trapped particles," *Adv Phys X* **6**(1), (2021).
11. M. Chen, S. Huang, X. Liu, Y. Chen, and W. Shao, "Optical trapping and rotating of micro-particles using the circular Airy vortex beams," *Applied Physics B* **125**(10), 184 (2019).

12. M. Yamanaka, N. I. Smith, and K. Fujita, "Introduction to super-resolution microscopy," *Microscopy* **63**(3), 177–192 (2014).
13. K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita, and T. Omatsu, "Using Optical Vortex To Control the Chirality of Twisted Metal Nanostructures," *Nano Lett* **12**(7), 3645–3649 (2012).
14. F. Takahashi, S. Takizawa, H. Hidai, K. Miyamoto, R. Morita, and T. Omatsu, "Optical vortex pulse illumination to create chiral monocrystalline silicon nanostructures," *physica status solidi (a)* **213**(4), 1063–1068 (2016).
15. M. Watabe, G. Juman, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Light induced conch-shaped relief in an azo-polymer film," *Sci Rep* **4**(1), 04281 (2014).
16. J. Lee, Y. Arita, S. Toyoshima, K. Miyamoto, P. Panagiotopoulos, E. M. Wright, K. Dholakia, and T. Omatsu, "Photopolymerization with Light Fields Possessing Orbital Angular Momentum: Generation of Helical Microfibers," *ACS Photonics* **5**(10), 4156–4163 (2018).
17. K. Toyoda, H.-T. Su, K. Miyamoto, T. Sugiyama, and T. Omatsu, "Chiral crystallization manipulated by orbital angular momentum of light," *Optica* **10**(3), 332 (2023).
18. T. Omatsu, K. Miyamoto, K. Toyoda, R. Morita, Y. Arita, and K. Dholakia, "A New Twist for Materials Science: The Formation of Chiral Structures Using the Angular Momentum of Light," *Adv Opt Mater* **7**(14), 1801672 (2019).
19. Y. Shen, E. C. Martínez, and C. Rosales-Guzmán, "Generation of Optical Skyrmions with Tunable Topological Textures," *ACS Photonics* **9**(1), 296–303 (2022).
20. A. McWilliam, C. M. Cisowski, Z. Ye, F. C. Speirits, J. B. Götte, S. M. Barnett, and S. Franke-Arnold, "Topological Approach of Characterizing Optical Skyrmions and Multi-Skyrmions," *Laser Photon Rev* **17**(9), (2023).
21. Y. Shen, Q. Zhang, P. Shi, L. Du, X. Yuan, and A. V. Zayats, "Optical skyrmions and other topological quasiparticles of light," *Nat Photonics* **18**(1), 15–25 (2024).
22. A. M. Beckley, T. G. Brown, and M. A. Alonso, "Full Poincaré beams," *Opt Express* **18**(10), 10777–10785 (2010).
23. K. Singh, P. Ornelas, A. Dudley, and A. Forbes, "Synthetic spin dynamics with Bessel-Gaussian optical skyrmions," *Opt Express* **31**(10), 15289 (2023).
24. P. Ornelas, I. Nape, R. de M. Koch, and A. Forbes, "Non-local Skyrmions as topologically resilient quantum entangled states of light," (2022).
25. A. A. Wang, Z. Zhao, Y. Ma, Y. Cai, R. Zhang, X. Shang, Y. Zhang, J. Qin, Z. K. Pong, T. Marozsak, B. Chen, H. He, L. Luo, M. J. Booth, S. J. Elston, S. M. Morris, and C. He, "Topological Protection of Optical Skyrmions through Complex Media," (2024).
26. C. He, B. Chen, Z. Song, Z. Zhao, Y. Ma, H. He, L. Luo, T. Marozsak, A. Wang, R. Xu, P. Huang, X. Qiu, B. Sun, J. Cui, Y. Cai, Y. Zhang, P. Salter, J. A. Fells, B. Dai, S. Liu, L. Guo, H. Ma, S. J. Elston, Q. Zhan, C. Qiu, S. M. Morris, M. J. Booth, and A. Forbes, *A Universal Optical Modulator for Synthetic Topologically Tuneable Structured Matter* (2023).
27. A. A. Wang, Y. Ma, Y. Zhang, Z. Zhao, Y. Cai, X. Qiu, B. Dong, and C. He, "Unlocking new dimensions in photonic computing using optical Skyrmions," (2024).
28. T. J. Davis, D. Janoschka, P. Dreher, B. Frank, F. J. Meyer zu Heringdorf, and H. Giessen, "Ultrafast vector imaging of plasmonic skyrmion dynamics with deep subwavelength resolution," *Science* (1979) **368**(6489), eaba6415 (2020).
29. B. Tian, J. Jiang, Z. Zheng, X. Wang, S. Liu, W. Huang, T. Jiang, H. Chen, and S. Deng, "Néel-type optical target skyrmions inherited from evanescent electromagnetic fields with rotational symmetry," *Nanoscale* **15**(32), 13224–13232 (2023).
30. C. He, H. He, J. Chang, B. Chen, H. Ma, and M. J. Booth, "Polarisation optics for biomedical and clinical applications: a review," *Light Sci Appl* **10**(1), 194 (2021).

2. 光の準粒子

本章では本研究の主題となる光スキルミオンと光ホプフィオンといった光の準粒子について解説する。光の準粒子は、一般に直交する円偏光を持つ Gaussian モードと Laguerre-Gaussian (LG) モードのコヒーレントな重ね合わせによって生成される。このため、光の準粒子の理解に必要な基礎として、偏光およびポアンカレ球の概念について詳しく述べるとともに、螺旋状の波面を持つ LG モードの特性とその波動関数からの導出について解説する次に、LG モードを基底として作り出されるベクトルビームの生成方法を紹介し、その応用についても述べる。これらの基礎的な知識をもとに、光スキルミオンと光ホプフィオンといった光の準粒子の概念、物理的特性、および生成方法について詳述し、光の準粒子の独自の特性やその生成過程を順序立てて説明する。

2.1. 偏光

光の準粒子は、ビーム断面がポアンカレ球の全偏光状態を包含する偏光分布を持つ。その偏光特性を理解するために、まず偏光の概念およびその数学的表記法について解説する。

2.1.1. 偏光の表記法

光波は横波の電場で、光の伝搬方向に対して垂直な方向に振動する。この振動方向の偏りを偏光と呼ぶ。光がデカルト座標系の z 方向に伝搬し、 x 軸および y 軸方向に電場成分が振動する場合を考える。この時の電場成分は次式で表現される。

$$E_x = E_{0x} \cos(kz - \omega t) \quad 2-1$$

$$E_y = E_{0y} \cos(kz - \omega t + \varepsilon) \quad 2-2$$

ここで、 E_{0x} および E_{0y} は x 軸および y 軸方向の電場振幅、 k は波数、 ω は角周波数、 ε は初期位相を表す。この2つの式より、位置および時間の項を消去し、電場ベクトルの軌跡を求めると、次の楕円の式が得られる。

$$\left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 + \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 - 2\left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)\left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)\cos\varepsilon = \sin^2\varepsilon \quad 2-3$$

式2-3は、 (E_x, E_y) 平面上で電場ベクトルの軌跡が傾斜した楕円を描くことを示している。

この楕円の傾き（方位角） α は以下の式で記述される（図 2-1） [1]。

$$\tan 2\alpha = \frac{2E_{0x}E_{0y}\cos\varepsilon}{E_{0x}^2 - E_{0y}^2} \quad 2-4$$

特定の場合における軌跡の形状をさらに詳しく考察する。まず、位相差が $\varepsilon = m\pi$ （ m は整数）の場合、式2-3は表記される。

$$E_y = (-1)^m \frac{E_{0y}}{E_{0x}} E_x \quad 2-5$$

この場合、電場ベクトルの軌跡は一次関数となり、直線偏光を示す。

次に、 $\varepsilon = (2n+1)\frac{\pi}{2}$ （ n : 整数）かつ $E_{0x} = E_{0y} = E_0$ の場合、式2-3は次のようになる。

$$E_x^2 + E_y^2 = E_0^2 \quad 2-6$$

この場合、電場ベクトルの軌跡は円形を描くことから、円偏光を示す。

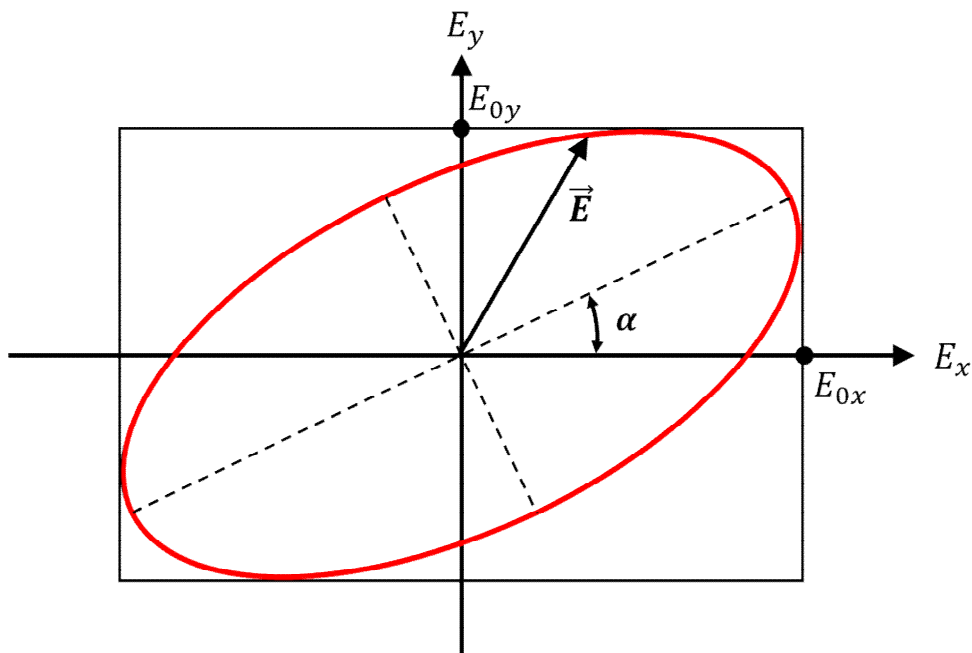


図 2-1 楕円偏光の概念図。電場ベクトル \vec{E} が1周するとその軌跡が楕円となる。方位角 α だけ傾いた楕円偏光を示している。

2.1.2. ジョーンズベクトル

光波の偏光状態を簡便かつ自然に記述する方法として、ジョーンズベクトルが用いられる [1]。一般に、偏光状態は、x 軸方向と y 軸方向に振動する直線偏光成分 E_x および E_y の線形結合により表される。z 軸方向に伝搬する単色の平面波の場合、電場の xy 成分は次のように記述される。

$$\mathbf{u} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} e^{i(kz - \omega t)} \\ E_{0y} e^{i(kz - \omega t + \delta)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} e^{\delta} \end{bmatrix} e^{i(kz - \omega t)} \quad 2-7$$

ここで、 k は波数、 ω は角周波数、 δ は x 偏光と y 偏光間の初期位相差、 E_{0x} および E_{0y} はそれぞれの偏光方向の振幅である。この 2 次元ベクトルをジョーンズベクトルと呼ばれる。偏光状態をより簡便に表現するために、このベクトルを規格化することが有効である。規格化されたジョーンズベクトルは、単位ジョーンズベクトルと呼ばれ、偏光状態のみを明確に記述することが可能である。単位ジョーンズベクトルは、以下のように表記される。

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{|E_{0x}|^2 + |E_{0y}|^2}} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} e^{\delta} \end{bmatrix} \quad 2-8$$

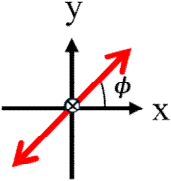
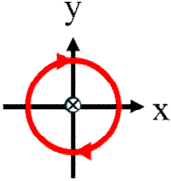
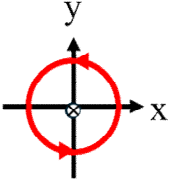
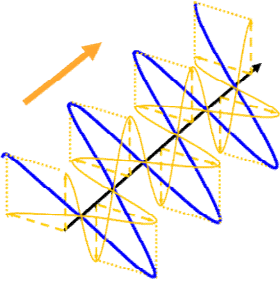
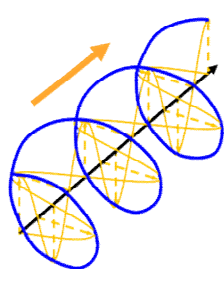
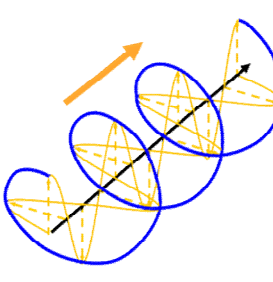
この式から、偏光が E_x と E_y の振幅比および位相差によって定義できることがわかる。ジョーンズベクトルを利用することで、偏光状態を簡便に記述できるだけでなく、ジョーンズベクトルの計算により、異なる偏光の光波を空間的に重ね合わせたときの偏光状態を容易に求めることができる。表 2-1 に偏光状態の代表例である直線偏光、右円偏光および左円偏光のジョーンズベクトルを示す。

本研究においては、円偏光を次のように定める。光波の伝搬方向に対して（観察者がその方向を向いて見た場合、電場ベクトルの軌跡が時計回りであれば右円偏光、反時計回りであれば左円偏光とする。

注目すべき点として、振幅（強度）が等しい左右円偏光を空間的に重ね合わせると、直線偏光となることである。例えば、表 2-1 の左右円偏光を同じ振幅かつ初期位相が同じ状態で空間的に重ね合わせると、 0° の直線偏光が得られる。また、振幅が異なる左および右円偏

光を空間的に重ね合わせた場合、振幅の大きい円偏光成分が支配的となり、直線偏光と円偏光の中間の楕円偏光が生じる。この関係は、偏光状態の制御において重要な基礎となる。

表 2-1 それぞれの偏光状態に対する、ジョーンズベクトルおよびストークスベクトル[2]。

	ϕ linearly polarized light (LP)	Right-handed circularly polarized light (RCP)	Left-handed circularly polarized light (LCP)
Polarization (2D)			
Polarization (3D)			
Jones vector	$\begin{bmatrix} \cos\phi \\ \sin\phi \end{bmatrix}$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}$
Stokes vector	$\begin{bmatrix} 1 \\ \cos\frac{\phi}{2} \\ \sin\frac{\phi}{2} \\ 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ -1 \end{bmatrix}$

2.1.3. ストークスパラメータ

自然光、完全偏光、部分偏光のどの状態においても、光の偏光状態は4つのストークスパラメータによって表現することができる[1,2]。特に、コヒーレントな（位相が揃った）光波において、ストークスパラメータは偏光の振幅から次の式で定義される。

$$S_0 = E_{0x}^2 + E_{0y}^2 = I_{total} = I_H + I_V = I_{45^\circ} + I_{-45^\circ} = I_{LCP} + I_{RCP} \quad 2-9$$

$$S_1 = E_{0x}^2 - E_{0y}^2 = I_H - I_V \quad 2-10$$

$$S_2 = 2E_{0x}E_{0y}\cos\delta = I_{45^\circ} - I_{-45^\circ} \quad 2-11$$

$$S_3 = 2E_{0x}E_{0y}\cos\delta = I_{LCP} - I_{RCP} \quad 2-12$$

ここで、 δ は x 偏光と y 偏光間の初期位相差、 E_{0x} および E_{0y} はそれぞれの偏光振幅、 $I_{total}, I_H, I_V, I_{45^\circ}, I_{-45^\circ}, I_{LCP}, I_{RCP}$ は、それぞれ光の全体、水平成分、垂直成分、 45° 成分、 -45° 成分、左円偏光成分、右円偏光成分の強度を表す。

ここで、 $S_0 = 1$ とした場合、 $S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 = 1$ が成り立つため、3次元空間上の点 (S_1, S_2, S_3) は単位球面上に位置する。この単位球をポアンカレ球 (Poincaré sphere) と呼ぶ (図 2-2)。

本研究において、ポアンカレ球面の表現は以下のように定義する。北極には右円偏光、南極には左円偏光を配置する。赤道上 (図 2-2 の青線) の方位角 ϕ のある位置 ($\cos \frac{\phi}{2}, \sin \frac{\phi}{2}, 0$) は、x 軸に対して ϕ の角度を持った直線偏光を表す。例えば、赤道上の $\phi = 0^\circ$ の位置では x 軸と水平な直線偏光、 $\phi = 180^\circ$ の位置では y 軸に平行な直線偏光を示す。

また、北極から南極に至る子午線 (図 2-2 の緑線) 上では、偏光状態が右円偏光→右楕円偏光→直線偏光→左楕円偏光→左円偏光に対応する。つまり、ある値の ϕ と θ を持つ位置においては、x 軸から ϕ だけ傾いた楕円軸を持ち、楕円率が θ である楕円偏光を表す。

ポアンカレ球の数式的表現は以下のように与えられる。

$$u_{po} = \cos \frac{\theta}{2} e^{-\frac{i\phi}{2}} |R\rangle + \sin \frac{\theta}{2} e^{\frac{i\phi}{2}} |L\rangle \quad 2-13$$

ここで、 $|R\rangle$ は右円偏光、 $|L\rangle$ は左円偏光、 ϕ は経度 (左右偏光の位相差)、 θ は緯度 (左右円偏光の振幅比) を表す。

さらに、ストークスパラメータ $\mathbf{S} = (S_1, S_2, S_3)$ の列ベクトルとして表したものをストークスベクトルと呼び、ポアンカレ球の中心から単位球面に向かうベクトルであり、直感的に偏光を表現できる (図 2-2 のオレンジ矢印、表 2-1)。

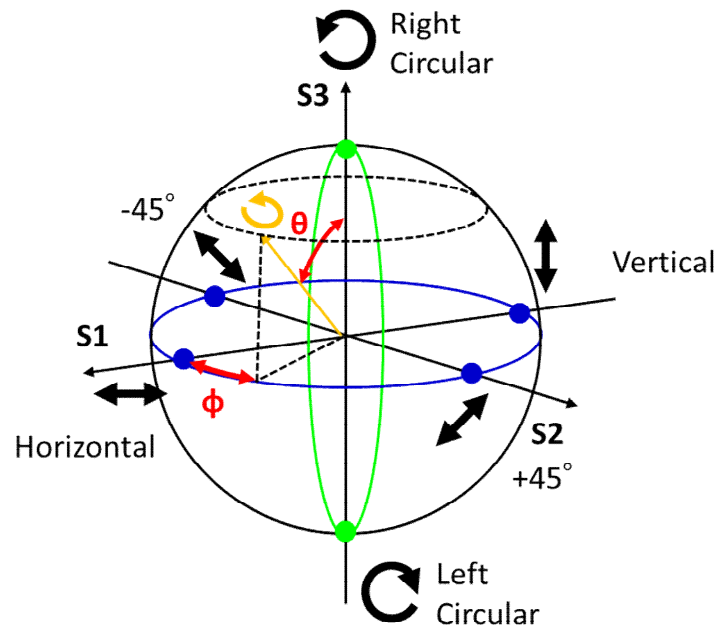


図 2-2 ポアンカレ球と偏波状態とストークスペクトル（上半球は右回り，下半球は左回り）

2.2. Laguerre-Gaussian モード

本章では、Laguerre-Gaussian モード（以下、LG モード）について解説する。LG モードのモードは、Helmholtz 方程式の近軸近似に基づいた円筒座標系での固有解であり、ビーム断面において位相が螺旋状に変化する光渦の固有モードである[3,4]。

以降では、LG モードの理論的な導出方法、LG モードの角運動量、さらにその生成手法について詳しく説明する。

2.2.1. Laguerre-Gaussian モードの導出

LG モードは、Helmholtz 方程式の近軸固有解として導かれる。このモードは、ビームの周回方向に位相が回転し、螺旋状の波面を形成する特徴を持つ。以下では、Maxwell 方程式から LG モードを導出する過程を説明する。

まずは Maxwell 方程式と物質方程式から Helmholtz 方程式を導く。真空中の Maxwell 方程式は下記の 4 つの式で表される。

Faraday・Maxwell の式 $\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$ 2-14

Ampère・Maxwell の式 $\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$ 2-15

Gauss・Maxwell の式 $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$ 2-16

磁束保存の式 $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ 2-17

ここで、 E [V/m] は電場、 H [A/m] は磁場、 D [C/m²] は電束密度、 B [Wb/m²=Vs/m²] は磁束密度を表す。

また、これらに加え、磁化 \mathbf{M} と分極 \mathbf{P} を用いると物質中では以下の物質方程式が成り立つ。

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{M} \quad 2-18$$

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad 2-19$$

ここで、 μ_0 は真空中の透磁率、 ε_0 は真空中の誘電率である。

Maxwell 方程式の式 2-14、式 2-15、物質方程式を用い、ベクトル解析の式 ($\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$) に利用すると、次の波動方程式が得られる。

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu\varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad 2-20$$

本研究では、電場に比べて磁場の効果は非常に小さいため、磁場については考えないものとする。電場 \mathbf{E} を位置および時間に変数分離すると、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r})\exp(i\omega t)$ と表される。これを波動方程式に代入し、時間依存成分を取り除くと、以下の Helmholtz 方程式が導かれる。

$$(\nabla^2 + k^2)\mathbf{A}(x, y, z) = 0 \quad 2-21$$

ここで、 $k = \omega\sqrt{\mu\varepsilon}$ である。

電磁波の伝搬方向を z 方向と仮定し、電場の空間成分 $\mathbf{A}(x, y, z)$ は、 x, y, z の分離によって次のように記述できる。

$$\mathbf{A}(x, y, z) = u(x, y, z) \cdot \exp(ikz) \quad 2-22$$

ここで、 $u(x, y, z)$ は電磁波の振幅を表す。式2-22を式2-21に代入することで、次の式が導かれる。

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} - 2ik \frac{\partial}{\partial z}\right)u(x, y, z) = 0 \quad 2-23$$

ここで、次の近似を利用する。

$$\left|\frac{\partial^2}{\partial z^2}\bar{\mathbf{E}}\right| \ll \left|\frac{\partial^2}{\partial x^2}\bar{\mathbf{E}}\right|, \left|\frac{\partial^2}{\partial y^2}\bar{\mathbf{E}}\right| \quad 2-24$$

$$\left|\frac{\partial^2}{\partial z^2}\bar{\mathbf{E}}\right| \ll \left|\frac{\partial}{\partial z}\bar{\mathbf{E}}\right| \quad 2-25$$

光波が強く集光されないと仮定した場合、 z 方向に対する電場振幅（縦電場）は、 xy 方向の電場と比較して緩やかな変化となる（式2-24の近軸近似）。この近似のもとでは、 z 方向における包絡関数 $\bar{\mathbf{E}}$ の2次微分を無視できるため、 z 方向の一次微分項が支配的となる（式2-25 緩包絡波近似 slowly varying envelope approximation）。この結果、近軸 Helmholtz 方程式が導出される。

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial}{\partial z}\right)u(x, y, z) = 0 \quad 2-26$$

さらにこの方程式を、 z 軸を中心に回転する円筒座標系 (r, ϕ, z) に変換すると、次の式となる。

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} - 2ik \frac{\partial}{\partial z}\right)u(r, \phi, z) = 0 \quad 2-27$$

この円筒座標系で表される近軸 Helmholtz 方程式の固有解が、 $u_{p,\ell}$ が、LGモードである。LGモードの振幅分布は、次の式で表される[4]。

$$u_{p,\ell} = C_{p,\ell} \frac{\omega_0}{\omega(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{\omega(z)}\right)^{|\ell|} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right) \exp(i\ell\phi) \cdot \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)} - ik \frac{r^2}{2R(z)} + i(|\ell| + 2p + 1)\xi(z)\right) \quad 2-28$$

$$\text{規格化定数} \quad C_{p,\ell} = \sqrt{\frac{2p!}{\pi(p + |\ell|)}} \quad 2-29$$

$$\text{レイリー長} \quad z_R = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad 2-30$$

$$\text{ビーム径} \quad \omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad 2-31$$

$$\text{波面曲率半径} \quad R(z) = z + z_R^2 \quad 2-32$$

$$\text{Gouy 位相} \quad \xi(z) = \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad 2-33$$

ここで、 ω_0 はビームウエスト半径、 λ は波長、 $L_p^{|\ell|}(x)$ はラゲール倍多項式、 ℓ および p は方位角および動径方向の次数を表す。

このとき、方位角次数 ℓ は、トポロジカルチャージ (topological charge) と称され、螺旋波面の波長当たりの巻き数に対応する。ビーム径 $\omega(z)$ はビームのスポットサイズ、波面曲率半径 $R(z)$ は伝搬に伴う波面の曲率変化を表す。量子数 p 、 ℓ を持つ LG ビームは、 $LG_{p,\ell}$ と表記する。Gouy 位相 $\xi(z)$ は伝搬に伴う平面波からの位相のずれを意味する[5,6] (図 2-3)。LG モードを集光した場合、ビーム半径が最小となるビームウエスト付近では平面波とみなすことができるが、それ以外の焦点近傍 (レイリー長内) では球面波とみなせる。特に量子数 ℓ と p が大きい持つ場合、ビーム伝搬に従って Gouy 位相による位相差が顕著に現れる。

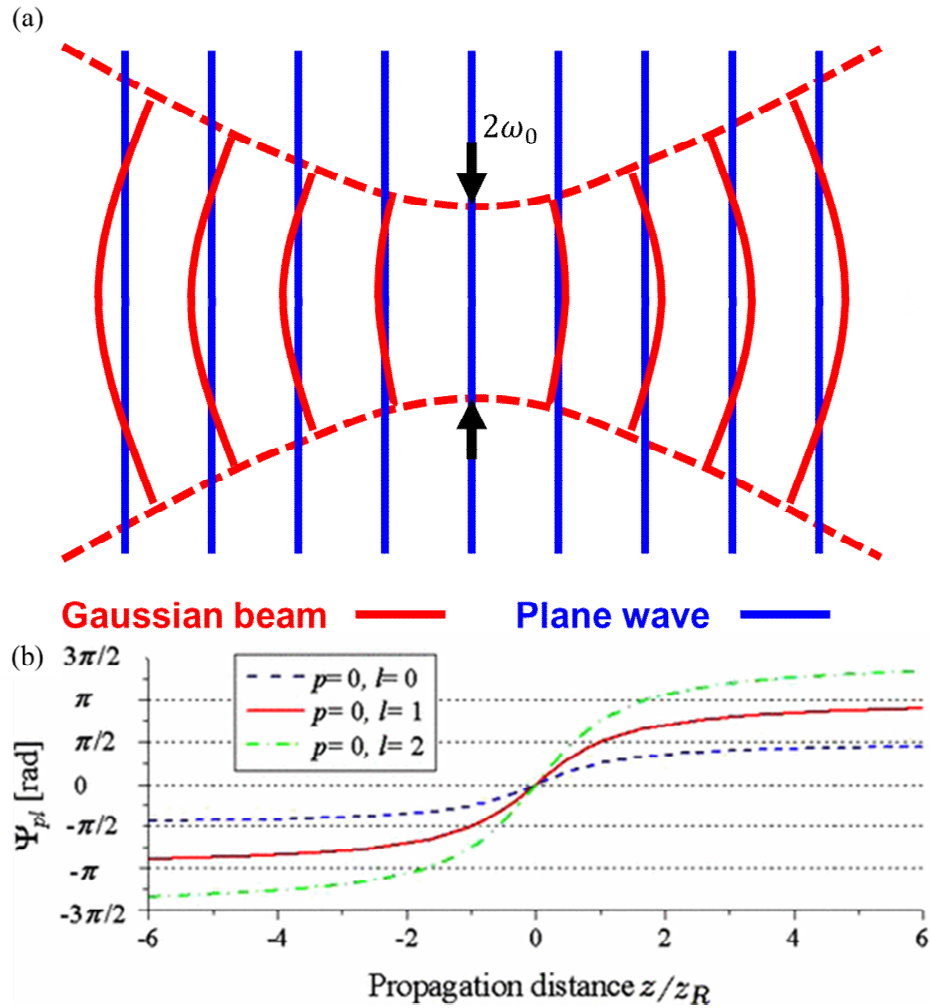


図 2-3 グイ位相の概念図。(a)Gaussian ビーム（赤）と平面波（青）の等位相面の比較、(b)各モード (LG_{0,0}, LG_{1,0}, LG_{2,0})のビーム伝搬に対する Gouy 位相のプロット。[6]

式2-28における方位角位相 $\exp(i\ell\phi)$ は、螺旋波面を形成する物理的特性に対応している。この位相構造は、円環状の強度分布とともに、光の軌道角運動量の特徴づける。本論文においては、この螺旋破面を持つ光波を光渦と呼ぶ。具体的には、量子数 $\ell > 0$ のとき、左巻きの螺旋を形成され、 $\ell < 0$ の場合には右巻き螺旋を形成される。また、 $p = \ell = 0$ においては、軌道角運動量を持たない Gaussian モードと同一の状態となる。さらに、動径次数 $p = 0, 1, 2$ におけるラゲール陪多項式と、それに対応する LG モードの位相および強度分布を示す（図 2-4）。

$$p = 0 \quad L_0^\ell(x) = 1 \quad 2-34$$

$$p = 1 \quad L_1^\ell(x) = -x + (\ell + 1) \quad 2-35$$

$$p = 2 \quad L_2^\ell(x) = \frac{1}{2}\{x^2 - 2(\ell + 2)x + (\ell + 1)(\ell + 2)\} \quad 2-36$$

⋮

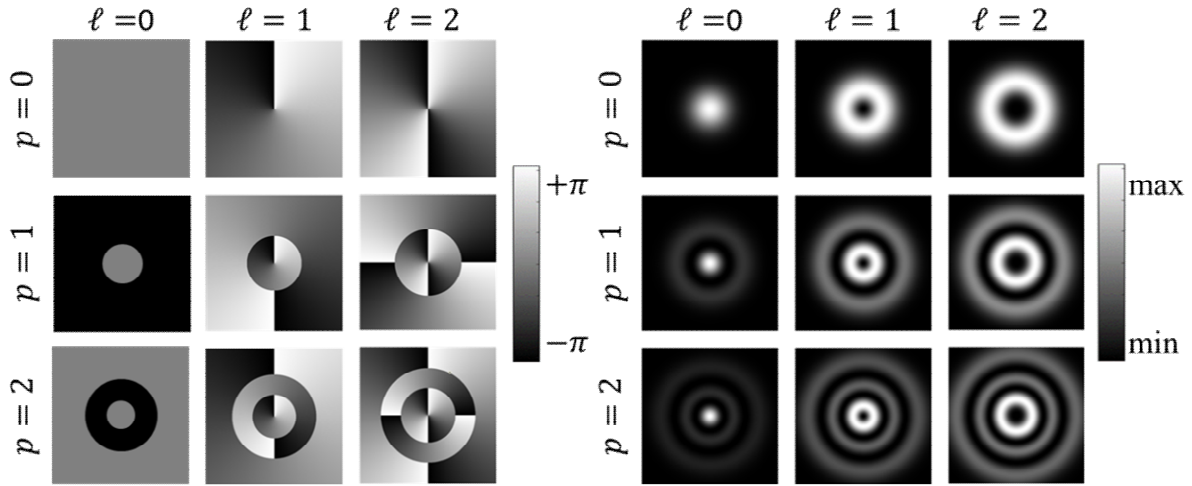


図2-4 $LG_{p,\ell}$ モードの位相分布および強度分布。方位角次数 ℓ を持つLGモードは、ビームの周回方向の位相の連続的な変化を持ち、螺旋波面を示し、動径次数 p を持つLGモードは、同心円の輪帯の強度分布を示す。

2.2.2. Laguerre-Gaussianモードの角運動量

電場と磁場は、スカラーポテンシャル ϕ とベクトルポテンシャル \mathbf{A} を用いると、下記の式で表すことができる。

$$\mathbf{E} = -\nabla\phi - \frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t} \quad 2-37$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad 2-38$$

これらの式を真空中のMaxwell方程式に代入することで、スカラーポテンシャルとベクトルポテンシャルの関係を示すローレンツゲージが次式で導かれる。

$$\nabla \cdot \mathbf{A} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial\phi}{\partial t} = 0 \quad 2-39$$

z 軸方向に伝搬するLGビームの場合、ベクトルポテンシャル \mathbf{A} は次のようになる。

$$\mathbf{A} = (\alpha\mathbf{e}_x + \beta\mathbf{e}_y)u(x, y, z) \exp(i(kz - \omega t)) \quad 2-40$$

ここで、 α および β は複素係数であり、偏光状態を記述する。式2-40より、電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{B} は、次のようになる ($\frac{\partial u}{\partial z} \approx 0$ とする)。

$$\mathbf{E} = i\omega \left(\mathbf{A} + \frac{1}{k^2} \nabla(\nabla \cdot \mathbf{A}) \right) = \left(i\omega\alpha u \mathbf{e}_x + i\omega\beta u \mathbf{e}_y + c \left(\alpha \frac{\partial u}{\partial x} + \beta \frac{\partial u}{\partial y} \right) \mathbf{e}_z \right) \exp(i(kz - \omega t)) \quad 2-41$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} = \left(-\beta i k u \mathbf{e}_x + \alpha i k u \mathbf{e}_y + c \left(\beta \frac{\partial u}{\partial x} - \alpha \frac{\partial u}{\partial y} \right) \mathbf{e}_z \right) \exp(i(kz - \omega t)) \quad 2-42$$

この電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{B} から時間平均されたポインティングベクトル \mathbf{S} は次のように導出される。

$$\begin{aligned} \mathbf{S} &= \langle \mathbf{E} \times \mathbf{H} \rangle = \frac{1}{2\mu_0} (\mathbf{E}^* \times \mathbf{B} + \mathbf{E} \times \mathbf{B}^*) \\ &= \frac{i\omega}{2\mu_0} (u \nabla u^* - u^* \nabla u) + \frac{i\omega}{4\mu_0} (\mathbf{J}^* \times \mathbf{J} - \mathbf{J} \times \mathbf{J}^*) \times \nabla |u|^2 + \frac{\omega k}{\mu_0} |u|^2 \mathbf{e}_z \end{aligned} \quad 2-43$$

ここで、正規化されたジョーンズベクトル $\mathbf{J} = \alpha \mathbf{e}_x + \beta \mathbf{e}_y$ 、 $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ を満たす。またポインティングベクトルから運動量密度 \mathbf{p} は次の式で表される。 $(u \propto u(r) \exp(-i\ell\phi)$ とする。)

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \frac{\mathbf{S}}{c^2} = \frac{i\omega\epsilon_0}{2} (u \nabla u^* - u^* \nabla u) - \frac{\omega s \epsilon_0}{2} \frac{\partial |u|^2}{\partial r} \mathbf{e}_\phi + \omega k \epsilon_0 |u|^2 \mathbf{e}_z \\ &= \epsilon_0 \frac{\omega k r z}{z^2 + z_R^2} |u|^2 \mathbf{e}_r + \left(\frac{\omega \epsilon_0 \ell |u|^2}{r} - \frac{\epsilon_0 \omega s}{2} \frac{\partial |u|^2}{\partial r} \right) \mathbf{e}_\phi + \omega k \epsilon_0 |u(r)|^2 \mathbf{e}_z \end{aligned} \quad 2-44$$

ここで、 $s = i\omega(\alpha\beta^* - \alpha^*\beta)$ はスピン角運動量 (SAM) を表し、偏光状態を決定する量である。例えば、 $s = 0$ においては直線偏光、 $s = \pm 1$ においてはそれぞれ左右円偏光に対応する。

式2-44の下式の p_ϕ の第1項は、ビーム断面における位相勾配に起因するエネルギーの流れを示し、これが軌道角運動量 (OAM) に対応する。一方、第2項は、光の偏光状態に起因するエネルギーの流れであり、スピン角運動量 (SAM) に対応する。

ここで電磁場の角運動量密度 \mathbf{m} は、次の式で定義される。

$$\mathbf{m} = \mathbf{r} \times \mathbf{P} \quad 2-45$$

ここで、z軸方向成分の角運動量密度 m_z はこのようになる。

$$m_z = r p_\phi = \epsilon_0 \omega \ell |u|^2 - \frac{\epsilon_0 \omega s r}{2} \frac{\partial |u|^2}{\partial r} \quad 2-46$$

さらに、ビーム横断面の単位時間あたりのエネルギー W と全角運動量 M_z 、次のように記述される。

$$W = \int w_z r dr d\phi = \int \epsilon_0 \omega^2 |u|^2 r dr d\phi \quad 2-47$$

$$M_z = \int m_z r dr d\phi = \varepsilon_0 \omega \ell \int |u^2| r dr d\phi - \frac{\varepsilon_0 \omega s}{2} \int r \frac{\partial |u^2|}{\partial r} r dr d\phi = \frac{\ell}{\omega} W + \frac{s}{\omega} W \quad 2-48$$

したがって、ビーム断面を単位時間当たりには通過する空間平均の角運動量は次の通りである。

$$\frac{M_z}{W} = \frac{\ell}{\omega} + \frac{s}{\omega} = \frac{\ell \hbar}{\hbar \omega} + \frac{\hbar s}{\hbar \omega} \equiv \frac{J \hbar}{\hbar \omega} \quad 2-49$$

ここで、 \hbar はディラック定数を表す。つまり、LG ビームにおいて1光子あたり $\ell \hbar$ の軌道角運動量と $s \hbar$ のスピンの角運動量を持つ。また、2つの角運動量の合計を全角運動量（TAM, Total Angular Momentum） J と呼ぶ。

2.2.3. Laguerre-Gaussian モードの生成

LGモードを生成するための基本的な手法について解説する。特に、光学デバイスや空間位相変調器（SLM）を用いた Gaussian モードから LG ビームを生成する方法に焦点を当て、それぞれの特徴と利点を詳しく説明する。

螺旋位相板を用いた位相変調

螺旋位相板（Spiral phase plate : SPP）、方位角方向に螺旋階段状の段差を有する透明な光学素子であり、Gaussian ビームを直接螺旋状の波面に変換する[7]（図 2-5）。SPP は、LG モードの生成において最も単純かつ実用的な手法として広く用いられている。

SPP は、石英ガラスなどから作られた光学素子であり、素子の厚みが方位角方向で段階的に変化する形状になっている。Gaussian ビームを SPP の中心に入射すると、光路差に応じて方位角方向に位相差が生じ、 $LG_{0,\ell}$ モードを生成する。この変調後の光波 u' は以下の通りである。

$$u' = u \exp(-i\ell\phi) \quad 2-50$$

$$\ell = \frac{(n-1)h}{\lambda} \quad 2-51$$

ここで、 $u(r, \phi, z)$ は入射ビームの振幅、 ℓ は軌道角運動量、 λ は入射光の波長、 n は SPP の屈折率、 h は素子の段差の厚みをそれぞれ表す。SPP を通過した光は、周回方向に $2\pi\ell$ の位相の変化が与えられる。

ただし、SPP では LG モードへの振幅変調が行われなため、変換後のビームには動径方向 p の高次成分が含まれる[8,9]。例えば、Gaussian ビームを SPP によって $LG_{0,1}$ モードに変換した場合、実際には約 79%が $LG_{0,1}$ モードに変換され、残りの 20%は動径方向の高次モード $LG_{p,1}$ ($p \geq 1$)に分散される。

SPP は、素子ごとに利用可能な波長や変調できるトポロジカルチャージが決まっていること、モード純度が低いなどの課題がある一方で、後述する他の方法と比べ、手軽に光渦を発生でき、高い破壊閾値を持ち、高出力の実験時に用いられる。

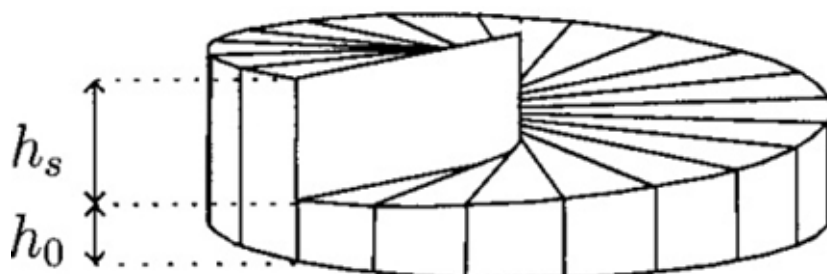


図 2-5 螺旋位相板の模式図。上面は高さ h_0 から $h_0 + h$ まで螺旋状に上昇している。[7]

q-プレートを用いた位相変換

q-プレートは、光の軌道角運動量とスピン角運動量を相互に変換する液晶素子であり、この相互作用はスピン-軌道相互作用として知られている。この素子は、異方性を持つ液晶の配向を利用し、入射光の偏光状態に対応した位相および偏光の変調することで LG ビームを生成する。

q-プレートは、素子内に液晶分子が空間的に非一様な複屈折を持つように液晶の配向が設計されている。この複屈折構造により、液晶分子の配向方向と光の偏光方向に応じて光の進行速度が異なるため、位相差が生じる（図 2-6(a), (b)）。その結果、入射光の偏光状態に対応して生成される光の波面と偏光状態が変調される。

例えば、左円偏光の Gaussian ビームが q プレートを通過する場合、出力される光は右円偏光に変調されると同時に、左回りの螺旋波面を持つ LG ビームが生成される（図 2-6(c)）[10–12]。

q-プレートは、SPP と同様に、柔軟な LG ビームの生成は困難であるものの、素子が安価かつ小型であり、液晶による制御であるため SPP よりもモード純度が高く、簡便に LG ビームモードを生成することが可能である。ただし、q-プレートを用いる場合、入射光の偏光状態に注意する必要がある。

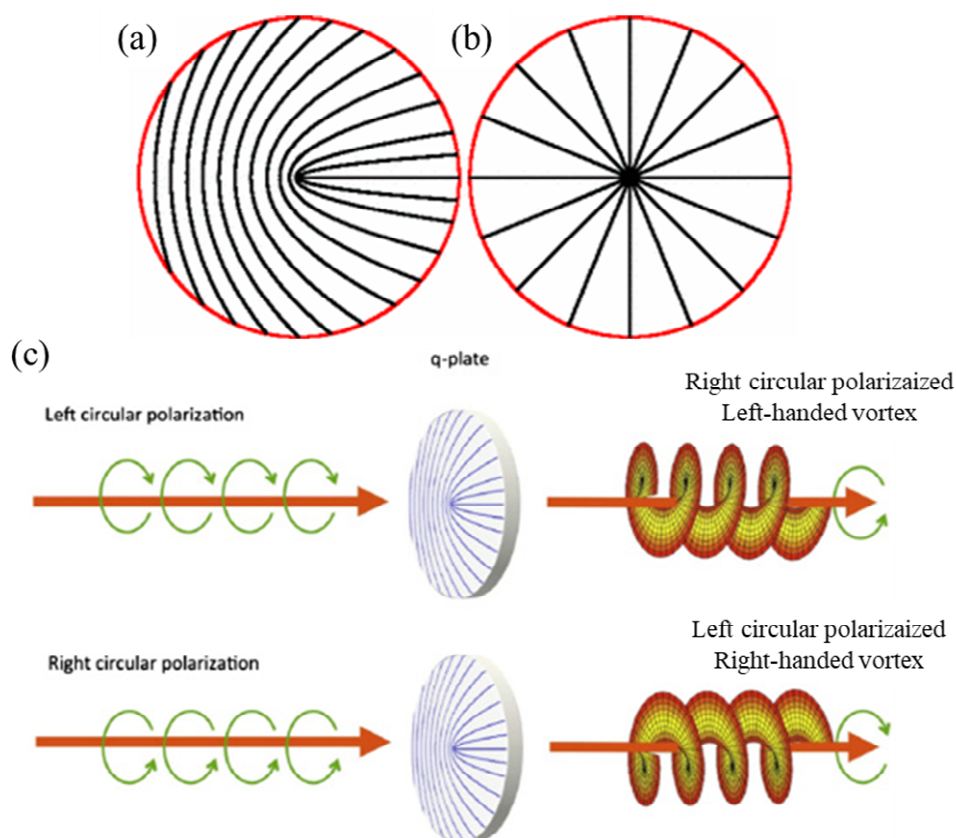


図 2-6 q-プレートの概念図。(a) $l = \pm 1$, (b) $l = \pm 2$ の LG ビームを生成する q-プレートの液晶の配向を示す（線の接線は液晶の光軸の方向を示す） [11]。(c) OAM $l = 0$ かつ左（右）円偏光の入射光は、 $l = 1$ (-1) かつ右（左）円偏光の LG ビームに変換される [12]。

空間光位相変調器を用いた位相変換

空間位相変調器（Spatial Light Modulator : SLM）のホログラム回折格子技術は、高品質かつ多様な次数の LG モードを作り出す手法である [13–15]。SLM は、複屈折を有する液晶が 2 次元に配列した構造を持ち、電氣的に液晶分子の配向を制御し、SLM に入射する光の強度および位相分布を動的に変調する（図 2-7 (a)）。このため、SLM の遅軸と平行な偏光成分に対してのみ位相変調を行う特性を持つ。

ホログラム回折格子は、以下の手法で設計される。まず、LGモードの特徴である方位角位相 $\exp(i\ell\phi)$ を生成する螺旋位相分布を、ブレード格子と重ね合わせることでフォーク状の回折格子を作成する（図 2-7 (b)） [16]。これにより、SLMの液晶層に適切な位相マスクを表示すると、そのマスクの位相を反映したLGビームを生成することが可能となる。SLMの液晶ディスプレイは、高解像度であるため、SPPなどと比較して理想的なLGモードを生成することができる。また、位相マスクを動的に制御することで、光学系の素子を変えることなく、多様な方位角次数 ℓ や動径次数 p を有するLGモードを生成が行える（図 2-7 (b), (c)、図 2-8）。

しかし、SLMにはいくつかの制約がある。まず、液晶分子は熱で容易に破壊されてしまうため、高出力の連続波（CW）レーザーや超短パルスレーザーの実験には用いることができない。さらに、回折光を利用するので、光の利用効率がSPPなどと比較して低いという課題がある。

本研究においては、モード純度が高く、自由にモード変換できることから、LCOS-SLM (liquid crystal on silicon based spatial light modulator)を用いることとした[15,17]。

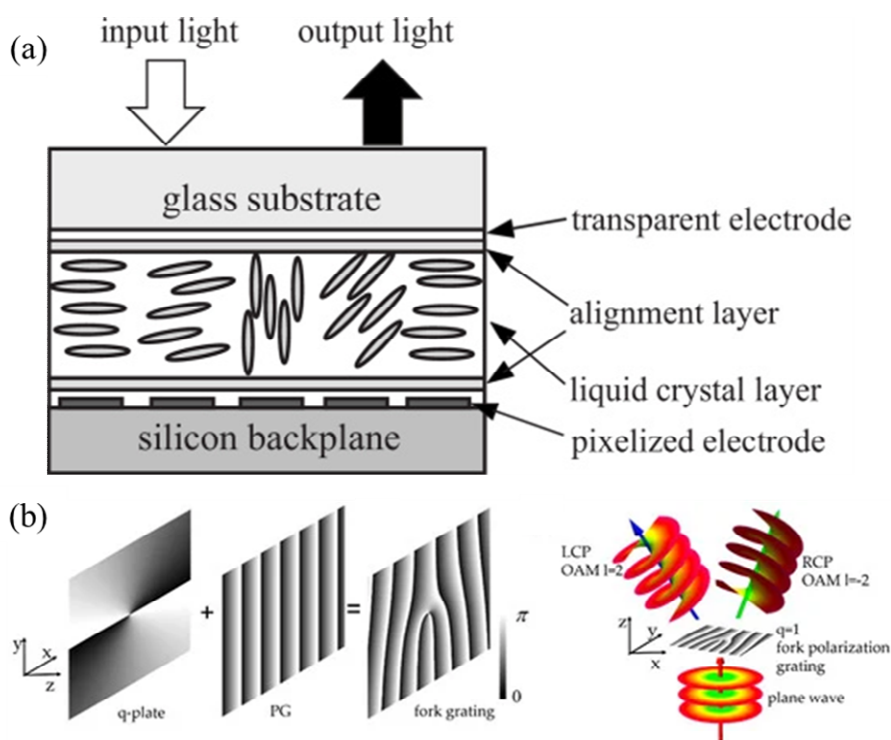


図 2-7 空間光変調 (SLM) の概念図。(a)LCOS-SLM デバイスの構造、断面図[17], (b) ホログラムを表示した SLM 液晶面に光を透過させる。中心に生じる 0 次回折光は Gaussian ビームであり、一方で高次回折光では、次数に対応する軌道角運動量を持つ LG モードを生成される[16]。

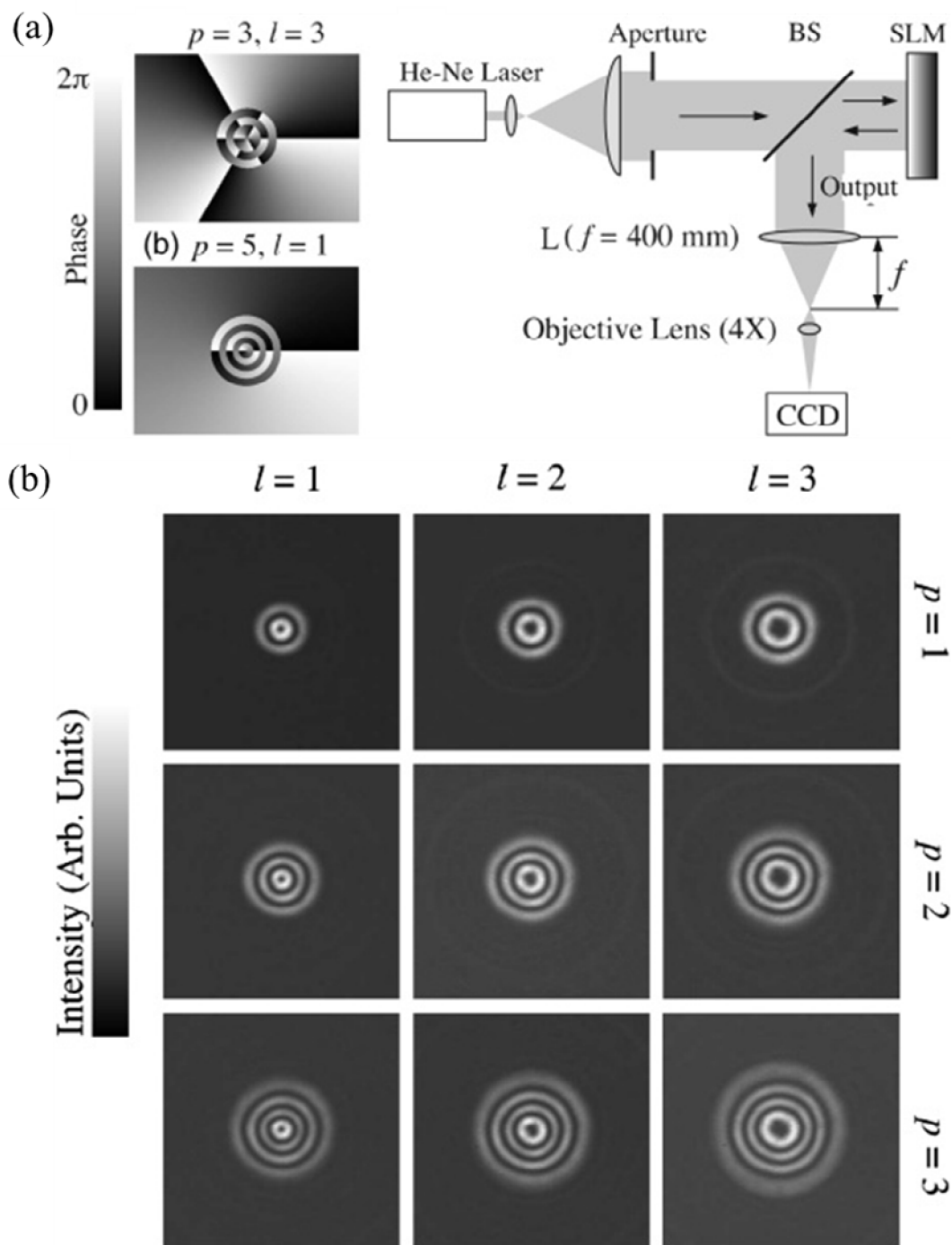


図 2-8 (a)SLM に表示する位相パターン(LG_{3,3} と LG_{5,1})と実験セットアップの概略図、(b) 生成されたマルチリング LG ビームの強度分布の観測モードパターン。[15]

2.3. ベクトルビーム

今まで説明してきた光波は、スカラービームと呼ばれ、ビーム断面内のすべての位置で偏光状態が同一であり、その空間全体で均一に保たれている（図 2-9(a), (b)）。これに対して、ベクトルビームは、ビーム断面内において空間的に均一ではない偏光分布を持つ[18–21]。

ベクトルビームは、直交する円偏光を持つ $\pm\ell$ の LG モードのコヒーレントな重ね合わせによって記述される。このような偏光状態の不均一性により、ベクトルビームは通常のスカラービームにはない特異な性質を持つ。特に円筒対称な偏光分布を持つベクトルビームが広く研究されており、その代表例としてラジアル偏光とアジマス偏光（図 2-9 (c), (d)）が挙げられる

ラジアル偏光（radial polarization）ビームは、ビーム内の各位置で直線偏光を持ち、放射状に分布する偏光を持つ（図 2-9 (c)）。一方、アジマス偏光（azimuthal polarization）ビームは、直線偏光がビーム断面内の方位角方向の偏光分布を有する（図 2-9 (d)）。これらのビームは、光軸上で偏光の特異点（偏光特異点）が存在し、円環状の強度分布を持つ。その結果、ベクトルビームの強度分布は円環状となり、「偏光渦」とも呼ばれる。

一方、LG ビームも円環状の強度分布を持つ点ではベクトルビームと類似している。しかし、LG ビームは光軸上において偏光ではなく位相の特異点を持つため、位相が定まらない特性がある。したがって、ベクトルビームと LG ビームは物理的に区別される。

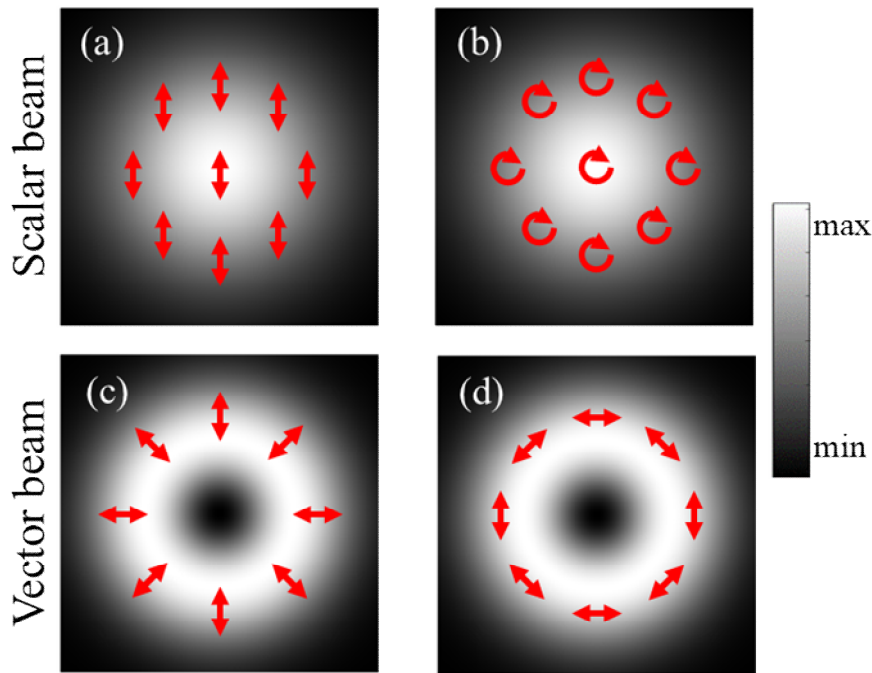


図 2-9 均一な偏光分布を持つスカラービームと不均一な偏光分布を持つベクトルビーム。(a)直線偏光および(b)円偏光の均一な偏光分布を持つスカラービーム。(c)ラジアル偏光および(d)アジマス偏光の不均一な偏光分布を持つベクトルビーム。赤線は偏光方向を示す。

2.3.1. ベクトルビームの導出

ベクトルビームも、LG ビームと同様に波動方程式から導出される。まず、 z 軸方向に伝搬し、ビーム強度が伝搬方向にそって変化しない平面波を仮定する。ここでは、電場がアジマス偏光を持つ場合を考える[22]。

$$\mathbf{E}(r, z) = f(r, z) \exp(ikz) \boldsymbol{\varphi} \quad 2-52$$

ここで、 $\boldsymbol{\varphi}$ は方位角方向の単位ベクトルであり、ビームの振幅 $f(r, z)$ は半径方向の座標 r と伝搬方向の座標 z に依存する。

LG モードの導出と同様に、この電場分布を波動方程式 (式2-20) に代入し、近軸近似 (式2-24) と緩包絡波近似 (式2-25) を適用することで、以下の式が得られる。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial f}{\partial r} \right) - \frac{f}{r^2} + 2ik_z \frac{\partial f}{\partial z} = 0 \quad 2-53$$

この式は、電場がラジアル偏光においても同じ式となる。ここで、ラゲール多項式によるベッセル・ガウスビームを表す関数[23–25]を利用することで、LG ビームと同じ強度分布を持つ解が得られる。

最低次のアジマス偏光 \mathbf{E}_{AP} およびラジアル偏光 \mathbf{E}_{RP} のベクトルビームは、次のように記載される[26,27]。

$$\mathbf{E}_{AP}(r, \phi, z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{r}{\omega(z)^2} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)} - ik \frac{r^2}{2R(z)} - ikz + i2\xi(z)\right) \boldsymbol{\phi} \quad 2-54$$

$$\mathbf{E}_{RP}(r, \phi, z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{r}{\omega(z)^2} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)} - ik \frac{r^2}{2R(z)} - ikz + i2\xi(z)\right) \mathbf{r} \quad 2-55$$

ここで、 $\boldsymbol{\phi}$ は ϕ 方向の単位ベクトル、 \mathbf{r} は r 方向の単位ベクトル、 $\omega(z)$ はビーム径、 $R(z)$ は波面曲率半径、 $\xi(z)$ はGouy位相を示す。

2.3.2. 高次ポアンカレ球

代表的なベクトルビームであるアジマス偏光やラジアル偏光などのビームは、ビーム断面の周回方向に沿って偏光角度が連続的に回転する特徴的な偏光構造を有している。このような偏光分布は、直交する円偏光の $\pm\ell$ 次のLGモードをコヒーレントに重ね合わせことで生成される。さらに、周回方向で重なり合う左円偏光および右円偏光の相対位相を調整することで、偏光構造を制御することが可能である。

このような異なるLGモードをコヒーレントに重ね合わせる場合、高次ポアンカレ球によって記述される[28]。通常のポアンカレ球は、右円偏光および左円偏光のGaussianモードを基底状態として表現されるが、高次ポアンカレ球では基底状態に軌道角運動量(OAM)とスピン角運動量(SAM)を組み込んで拡張されている。

ベクトルビームの偏光状態 \mathbf{u}_{VB} は、高次ポアンカレ球を用いることで表される[29–32] (図2-10)。ここでは、動径次数 $p = 0$ と仮定する。

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{VB}(r, \phi) &= LG_{0,\mp\ell}|L\rangle \exp(i\phi/2) + LG_{0,\pm\ell}|R\rangle \exp(-i\phi/2) \\ &= \cos\frac{\theta}{2} e^{-\frac{i\phi}{2}} e^{\mp i\ell\phi} |L\rangle + \sin\frac{\theta}{2} e^{\frac{i\phi}{2}} e^{\pm i\ell\phi} |R\rangle \end{aligned} \quad 2-56$$

ここで、 $LG_{0,\ell}$ は、方位角方向の量子数 ℓ を持つLGビームを表し、 $|L\rangle = (\mathbf{x} + i\mathbf{y})/\sqrt{2}$ および $|R\rangle = (\mathbf{x} - i\mathbf{y})/\sqrt{2}$ は、それぞれジョーンズベクトルの左および右円偏光を示す。この式は、基底状態間の相対位相 ϕ によって異なるベクトルビームを表現される。

例えば、北極に $LG_{0,1}|R\rangle$ 、南極に $LG_{0,-1}|L\rangle$ をそれぞれ配置した場合、赤道上 ($\theta = 90^\circ$) では $LG_{0,1}|R\rangle$ と $LG_{0,-1}|L\rangle$ の振幅が等しくなり、相対位相差 ϕ が変化すると偏光分布も変化する。このとき、赤道上的相対位相差を ϕ を $0 \rightarrow \pi$ へと変化すると、ラジアル偏光→アジマス偏光に偏光分布が変換される (図 2-10(a))。

さらに、北極と南極の LG モードの軌道角運動量 (OAM) を反転させた場合 (北極に $LG_{0,-1}|R\rangle$ 、南極に $LG_{0,1}|L\rangle$ を配置)、アンチボルテックス偏光の分布が相対位相に応じて変化する (図 2-10(b))。このように、高次ポアンカレ球を利用することで、SAM と OAM の結合による多様な偏光分布が記述される。

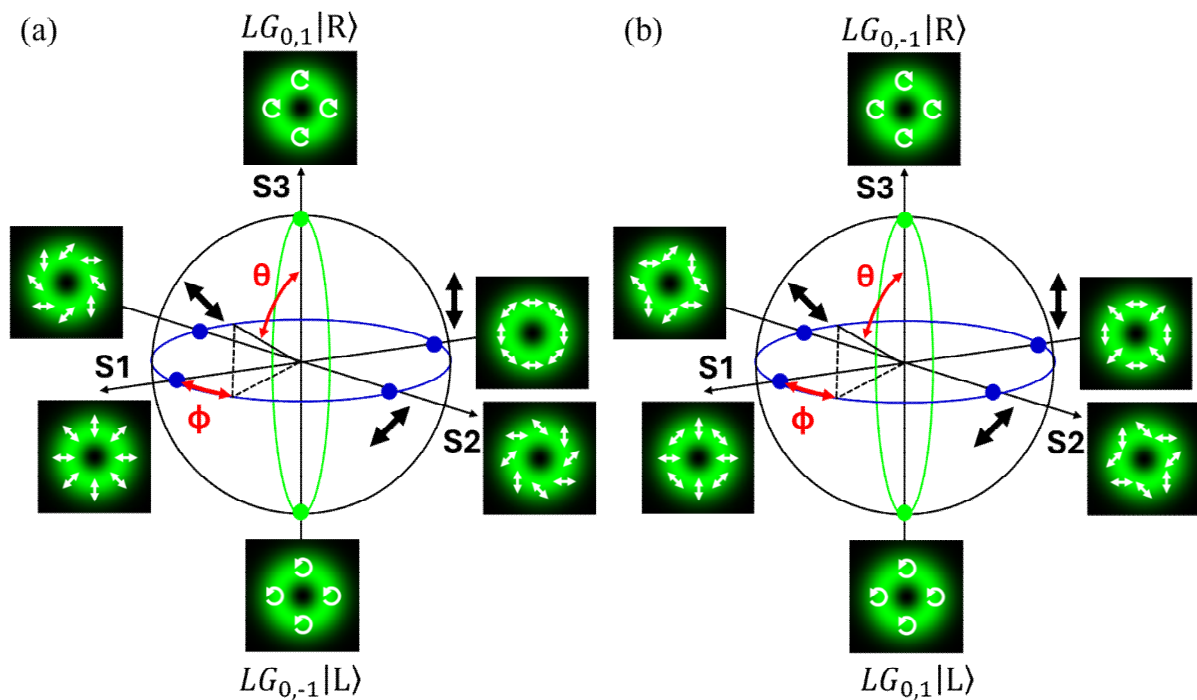


図 2-10 基底状態に $LG_{0,\pm 1}|R\rangle$ と $LG_{0,\mp 1}|L\rangle$ を配置した高次ポアンカレ球とベクトルビーム。(a)北極に北極に $LG_{0,1}|R\rangle$ 、南極に $LG_{0,-1}|L\rangle$ 、(b)北極に $LG_{0,-1}|R\rangle$ 、南極に $LG_{0,1}|L\rangle$ を配置した高次ポアンカレ球。赤道上的において位相差 ϕ によってベクトルビームの偏光分布が変化する。白矢印は偏光方向を示す。

2.3.3. ベクトルビームの生成

ベクトルビームは、直交する円偏光の $\pm \ell$ の LG モードの空間的な重ね合わせによって生成される。この生成方法には、SPP とマッハ・ツェンダー型の干渉計を組み合わせた古典的

手法[18]に加え、q-プレート [33–36]や SLM [37–39]を活用して、偏光と波面の制御をすることで、ベクトルビームを生成する方法が開発されている(図 2-11)。

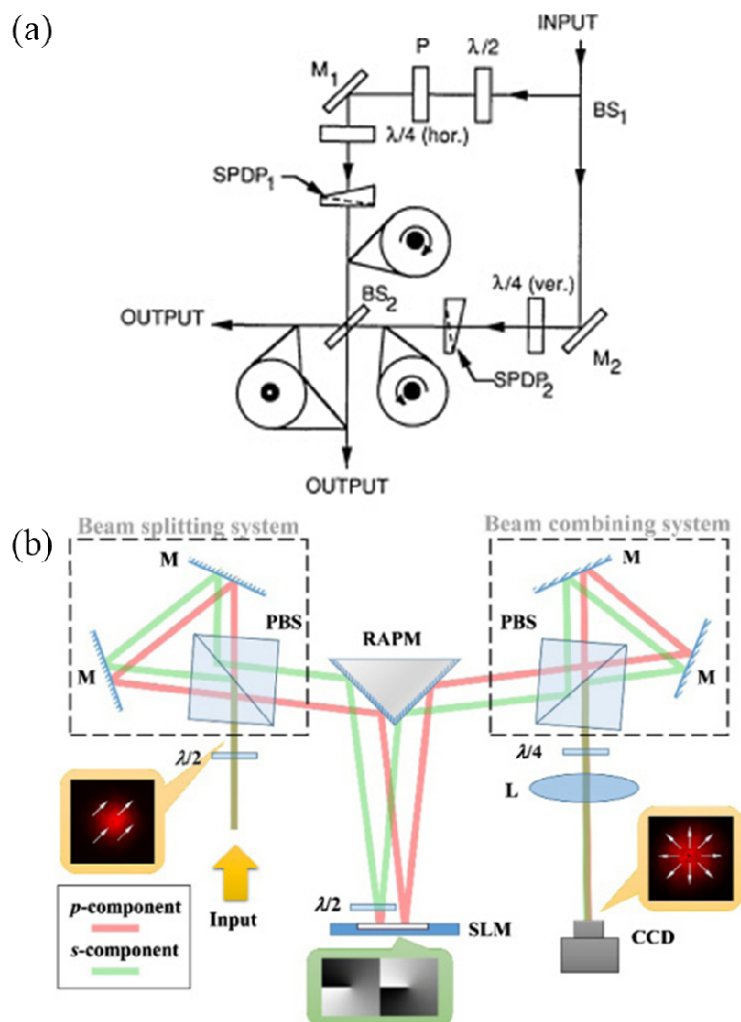


図 2-11 ベクトルビーム生成のセットアップ。(a)ビームスプリッター (BS1) によりビームを2つの経路に分け、各経路に1/4波長板とスパイラル位相遅延板 (spiral phase delay plate) を配置して、円偏光のLGビームに変調し、重ね合わせることでベクトルビームが生成される[18]。(b)SLMと1/2波長板で、p成分(x偏光)とs成分(y偏光)に対して異なる波面変調を加え、1/4波長板を使用することで直交する円偏光として、合波するとベクトルビームが生成される[37]。

ベクトルビームは、偏光の軸対称性を持ち、その特徴的な性質を示す。例えば、ラジアル偏光ビームが物質に垂直入射する場合、物質表面ではどの位置においてもp偏光になる。一方、アジマス偏光では、物質表面のどの位置でもs偏光となる。光の反射率が偏光方向に依

存するので、ベクトルビームにおいては、偏光依存性を低減した反射時の物質との作用を観測される。

さらに、ラジアル偏光ビームは、高 NA のレンズを用いて集光した場合、光の進行方向へ電場が生じる[40,41]。図 2-12(b)に示す通り、直線偏光ビームを集光すると、焦点における電場は光軸に垂直な横電場が支配的となる。一方、ラジアル偏光ビームは動径方向の電場のみを持ち、焦点近傍において光の進行方向への縦電場が発生する。これに対して、アジマス偏光ビームは、縦電場は生じず、横方向の電場しか発生しない。

このようなベクトルビームの特性は、光トラッピング[41,42]、超解像イメージング[43,44] (図 2-13)、レーザー加工[45,46]などの分野において価値を見出されている。

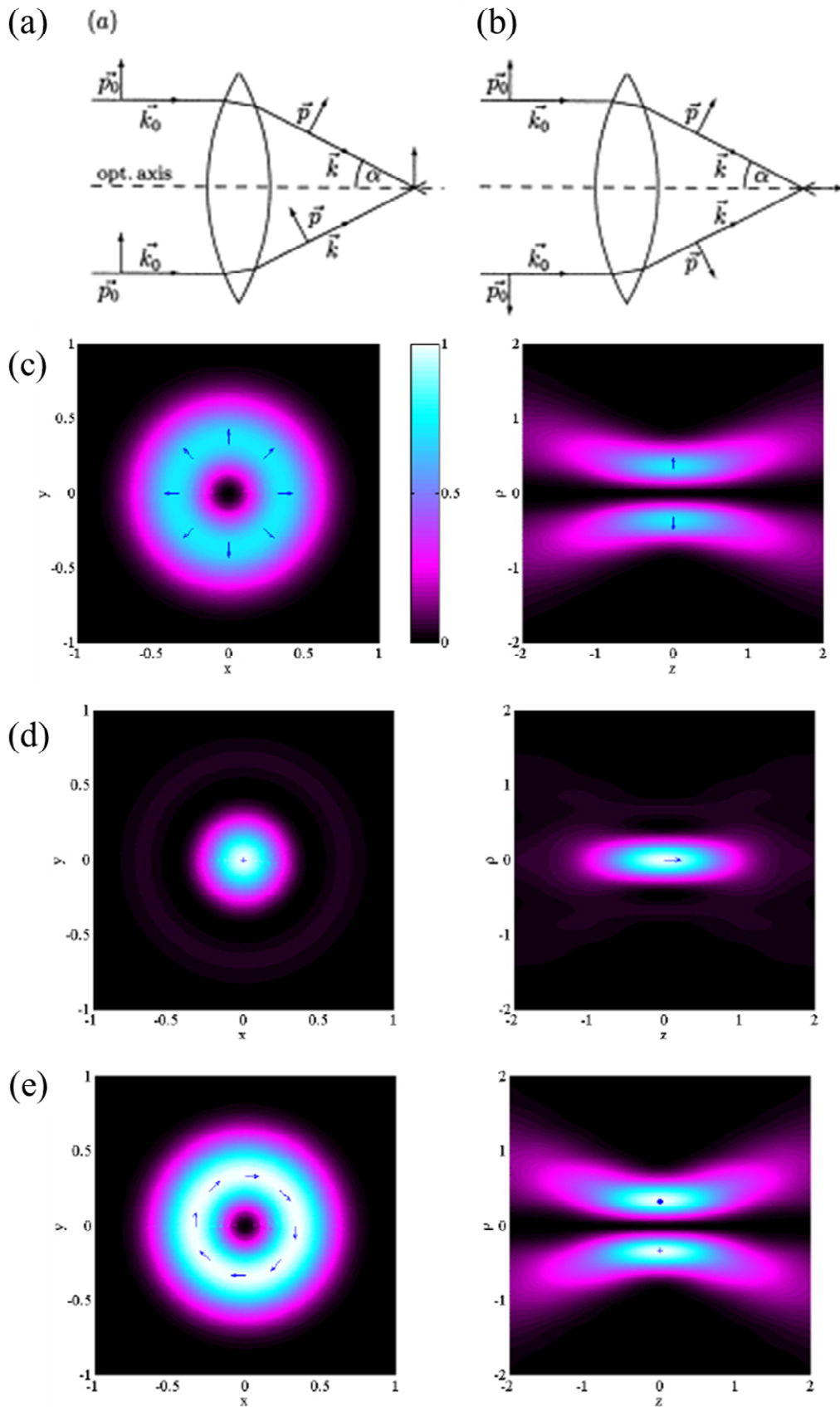


図 2-12 強く集光した場合のベクトルビームの集光特性。(a)直線偏光および(b)ラジアル偏光の焦点近傍の電場の向き[40]。(c)高 NA (1.32) で集光したラジアル偏光ビームの(c)横方向と(d)縦方向 (z) 成分の強度分布、およびアジマス偏光ビームの(e)横方向の強度分布[41]。

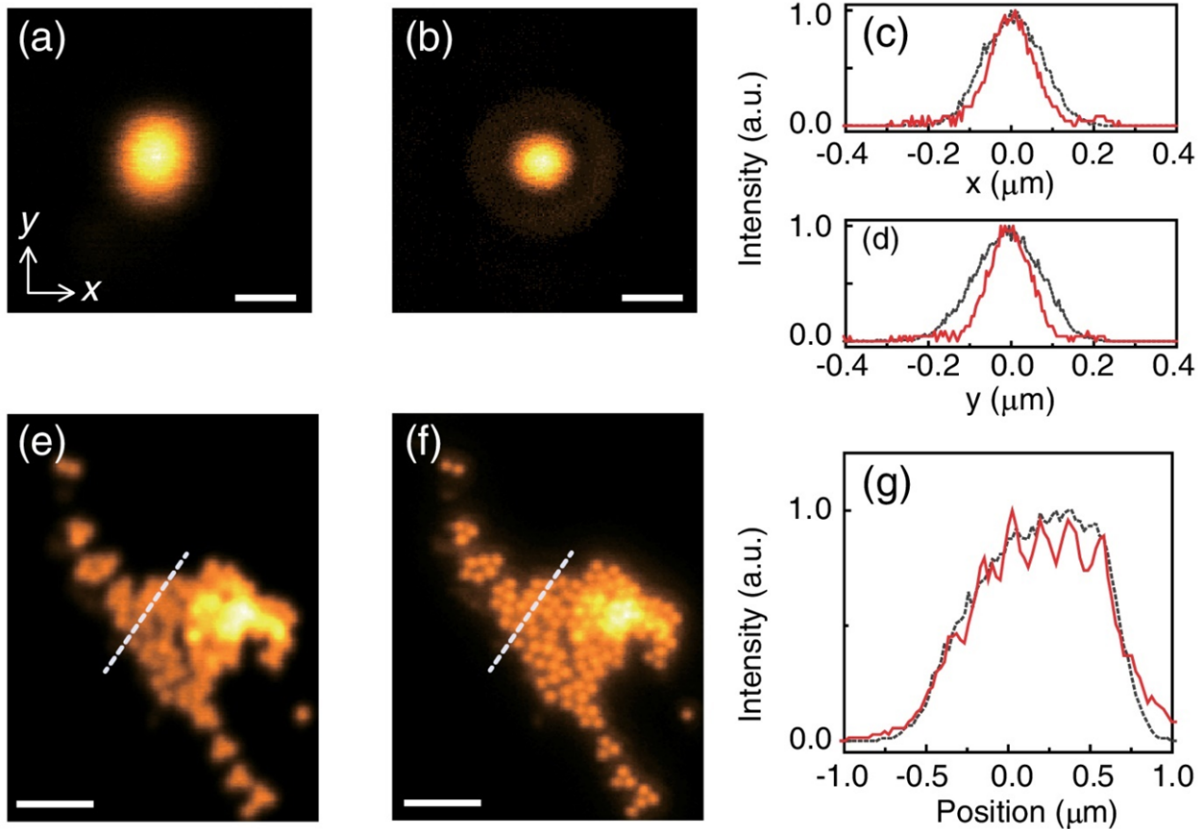


図 2-13 (a) 直線偏光および(b)ラジアル偏光 $LG_{3,1}$ の集光サイズ (スケールバー: 500 nm)。 (c) x 軸および (d) y 軸に沿った測定された点広がり関数の強度プロファイルを示す。 (e)直線偏光および(f)ラジアル偏光 $LG_{3,1}$ ビームによって観測された蛍光ビーズ (直径 170 nm) のクラスターの画像 (スケールバー: 1 μm)。 (g) (e)と(f)の白線の強度が示す。 (c)(d)と(g)における黒点線および赤実線は、それぞれ直線偏光およびラジアル偏光 $LG_{3,1}$ ビームに対応する。 [43]

2.4. 光の準粒子

光渦やベクトルビームからさらに発展し、近年特に注目を集めているのが、異なる次数の LG モードを重ね合わせて作り出される光スキルミオンや光ホプフィオンといった光の準粒子である。本節では、連続場に生じる位相幾何学的な渦構造を特徴とする準粒子の代表例であるスキルミオンの概要や分類について説明する。最後に、この光学分野における光の準粒子について述べる。

2.4.1. スキルミオンの定義や分類

スキルミオン (Skyrmion) は、Tony Skyrme によって 1960 年代に核物理学の領域で理論的に考案された、位相幾何学的構造を持つ数学的な粒子モデルある [47]。スキルミオンは、特

定の空間内における位相的に特徴づけられる構造を持ち、トポロジカルに準安定な準粒子として多方面で研究の対象になっている。

準粒子とは、特定の系内において単一の粒子のように振る舞う集団のことであり、個々の粒子では説明できない物理的性質を持つ。スキルミオンは、この準粒子の一種であり、位相幾何学的なトポロジーに基づく準安定性を持つ。特に、スキルミオン数 N_{sk} はトポロジカルな保存量として機能し、外的な摂動に対してスキルミオンの構造が容易に崩壊しないという特性を持つ。この準安定性によってスキルミオンが準粒子と呼ばれる[48]。

スキルミオンは、ボース=アインシュタイン凝縮体[49,50]、液晶[51-53]、磁性材料[54-56]などの物質系で理論的に提唱され、実験的にも立証されてきた。特に、磁気スキルミオンは、電子スピンによって形成され、ナノスケールで存在するトポロジカル準粒子である。この磁気スキルミオンは、位相的な準安定性と低電力で制御できるスキルミオン構造を持つため、次世代の大容量・低消費電力磁気メモリのキャリアとして注目の対象になっている[57-59]。

スキルミオンは、位相の3次元ベクトル場をスピンによって形作られる準粒子であり、この3次元ベクトル場を2次元空間に投影した構造を2次元スキルミオン、または単にスキルミオンと呼ぶ(図 2-14) [60]。このため、多様な位相分布を定義でき、スキルミオン数 N_{sk} と極性 p 、渦度 m 、および初期位相 γ によって特徴づけられる[61]。スキルミオン数は以下の式で算出される。

$$\begin{aligned}
 N_{sk} &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\sigma} \mathbf{n} \cdot \left(\frac{d\mathbf{n}}{dx} \times \frac{d\mathbf{n}}{dy} \right) dx dy & 2-57 \\
 &= \frac{1}{4\pi} \int_0^{\infty} dr \int_0^{2\pi} d\phi \frac{d\Phi(\phi)}{d\phi} \frac{d\theta(r)}{dr} \sin\theta(r) \\
 &= \frac{1}{2} \cos\theta(r)|_{r=0}^{\infty} \cdot \frac{1}{2\pi} \Phi(\phi)|_{\phi=0}^{2\pi} = p \cdot m
 \end{aligned}$$

ここで、 $\mathbf{n}(x,y) = \mathbf{n}(r\cos\phi, r\sin\phi)$ は、準粒子を構成するベクトル場を示し、 σ はそのベクトル場が存在する領域を示す。スキルミオン数は、スキルミオン構造の位相幾何学的構造から算出され、この値が整数に近い値となり、スキルミオンのトポロジーを意味する。極性 p は、

中心 ($r = 0$) でベクトルが上向き (下向き)、境界 $r = r_0$ で下向き (上向き) になる場合に $p = 1$ ($p = -1$) となる。渦度 m は横方向のベクトルの回転する回数を表し、初期位相 γ によって、 $\Phi(\phi) = m\phi + \gamma$ と記述され、それぞれ異なるトポロジカル特性を持つ渦構造として分類される。

例えば、 $N_{sk} = 1$ のスキルミオンを考えると、 $m=1$ の場合、 $\gamma=0$ または $\gamma=\pi$ の場合、スキルミオンは Néel 型 (図 2-14(a)) に分類され、準粒子の周りにヘッジホッグ (ハリネズミ) 構造を示す。 $\gamma=\pm\frac{\pi}{2}$ の場合、スキルミオンは Bloch 型 (図 2-14 (b)) に分類され、渦構造を示す。一方、 $m=-1$ の場合、anti-skyrmion 型 (図 2-14 (c) 以後、Anti 型とする) に分類され、サドル (反渦巻き) 構造を持つ。

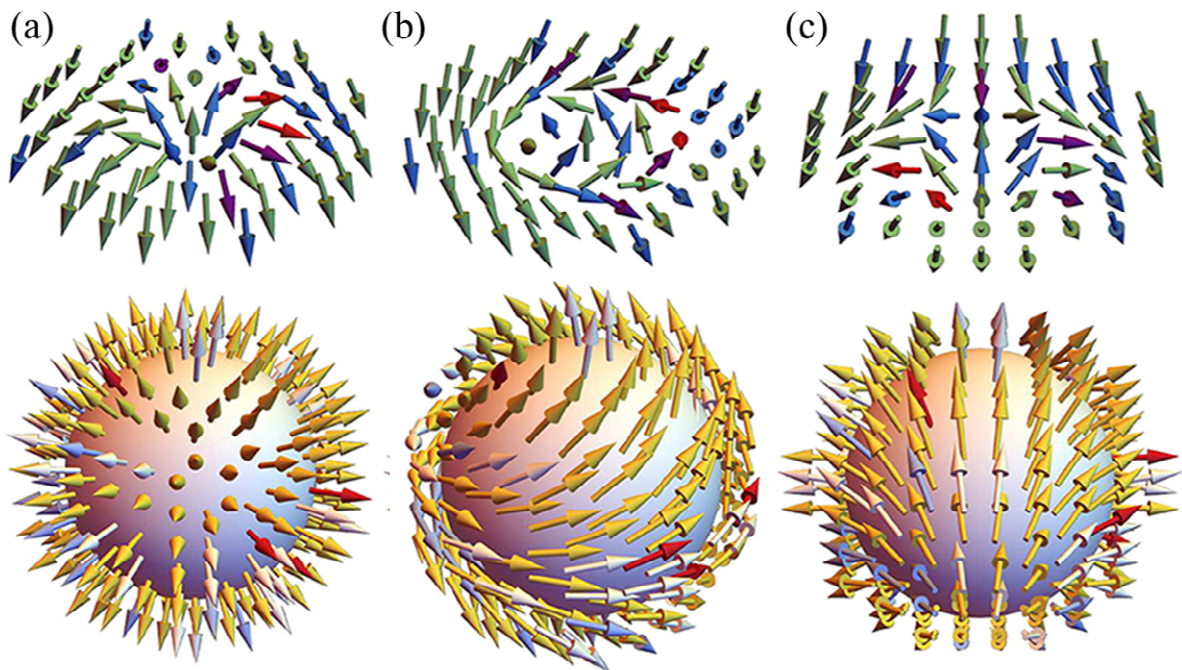


図 2-14 スキルミオン (スキルミオン数 $N_{sk} = \pm 1$) の分類。(上) 極性 $p = 1$ 、渦度 $m = 1$ の (a) Néel 型および (b) Bloch 型のスキルミオン。極性 $p = -1$ 、渦度 $m = 1$ の (c) anti 型のスキルミオン。(下) 2次元のスキルミオンのベクトル場の単位球へのマッピングによる準粒子構造。[60]

2.4.2. 光スキルミオン

磁気スキルミオンが過去数十年にわたり多くの研究対象となってきた一方で、近年では光学分野においてもスキルミオン構造が実験的に作り出された。光スキルミオンは、ベクトル

場がストークスペクトルによって構成され、2010年に応力を加えた光学素子（stress-engineered optical (SEO) element）によって初めて生成された[62]。その後、金属表面におけるエバネッセント波[63,64]、干渉計[65]、q-プレート[66]、ウェッジ光学系[67]、SLM[68]、およびメタファイバー[69]などによって空間伝搬する光スキルミオンの生成が実証された。本設では、空間伝搬する光スキルミオンにフォーカスして説明する。

一般に、光スキルミオン u_{os} は、直交する円偏光を持つ Gaussian モードと LG モード（動径モード $p=0$ ）のコヒーレントな重ね合わせによって生成される。その数式表現は以下の通りである。

$$u_{os}(r, \phi) = LG_{00}|R\rangle + \exp(i\phi) LG_{0,\ell}|L\rangle$$

$$= e^{-r^2} e^{\frac{i\phi}{2}} \sqrt{1+r^2} \left(\cos \frac{\theta}{2} e^{-\frac{i\phi}{2}} |L\rangle + \sin \frac{\theta}{2} e^{\frac{i\phi}{2}} |R\rangle \right) \quad 2-58$$

$$\cos \frac{\theta}{2} = \frac{1}{\sqrt{1+r^2}} \quad 2-59$$

ここで、 θ は r の関数の極角、 ϕ は Gaussian モードと LG モードの相対位相を表す。この式の中には、ポアンカレ球の式が含まれており、光スキルミオンはビーム断面においてポアンカレ球上のすべての偏光を保持することがわかる。

光スキルミオンの偏光は、時間位相の分布において特徴的な非対称性を持つ。具体的には、ビーム断面において周回方向の時間位相が π しか回転しないため、非対称な位相分布を示す。この結果、周回方向で位相が不連続となり、波面はメビウスの輪と形状が類似した特異な構造を持つ。

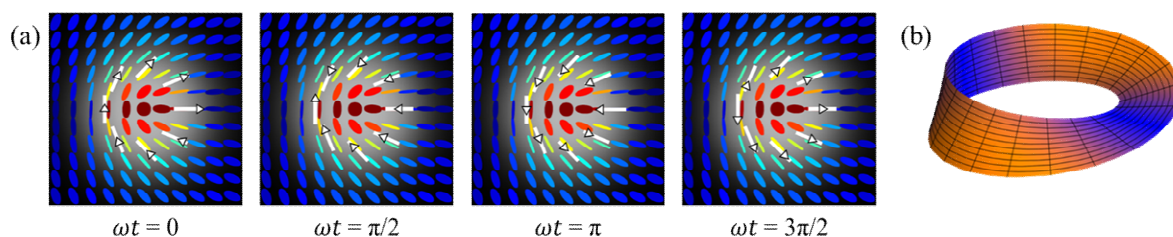


図 2-15 光スキルミオンの時間位相と波面。(a) Néel 型の光スキルミオンにおける時間位相 ($\omega t = 0, \pi/2, \pi, 3\pi/2$)。白線の向きが偏光の方向、矢印の位置が時間位相を示す。(b) ビーム断面の波面。メビウスの輪と形状が類似した波面構造。

光スキルミオンは、磁気スキルミオンのスピンをストークスベクトルに置き換えることで、磁気スキルミオンと同じように、Néel型、Bloch型、Anti型の位相幾何学的構造を持つ（図2-16）。例えば、右回り円偏光の Gaussian モード ($LG_{00}|R\rangle$) と左回り円偏光の1次 LGモード ($LG_{01}|L\rangle$) を重ね合わせた場合、Néel型 ($\phi = 0$ または π) および Bloch型 ($\phi = \pm\frac{\pi}{2}$) のスキルミオンは、レモン型の偏光分布を持ち、スキルミオン数 $N_{sk}=1$ となる（図2-17(a)）。一方、LGモードの軌道角運動量を反転させることで、Anti型の光スキルミオンを作り出せる。Anti型の光スキルミオンの偏光構造は、スター型であり、スキルミオン数 $N_{sk}=-1$ となる（図2-17(b)） [70]。ここで、式2-57のベクトル場 $\mathbf{n}(x,y)$ は、ストークスベクトル $\mathbf{S}(x,y,z) = (S_1, S_2, S_3)$ に対することに注意が必要である。

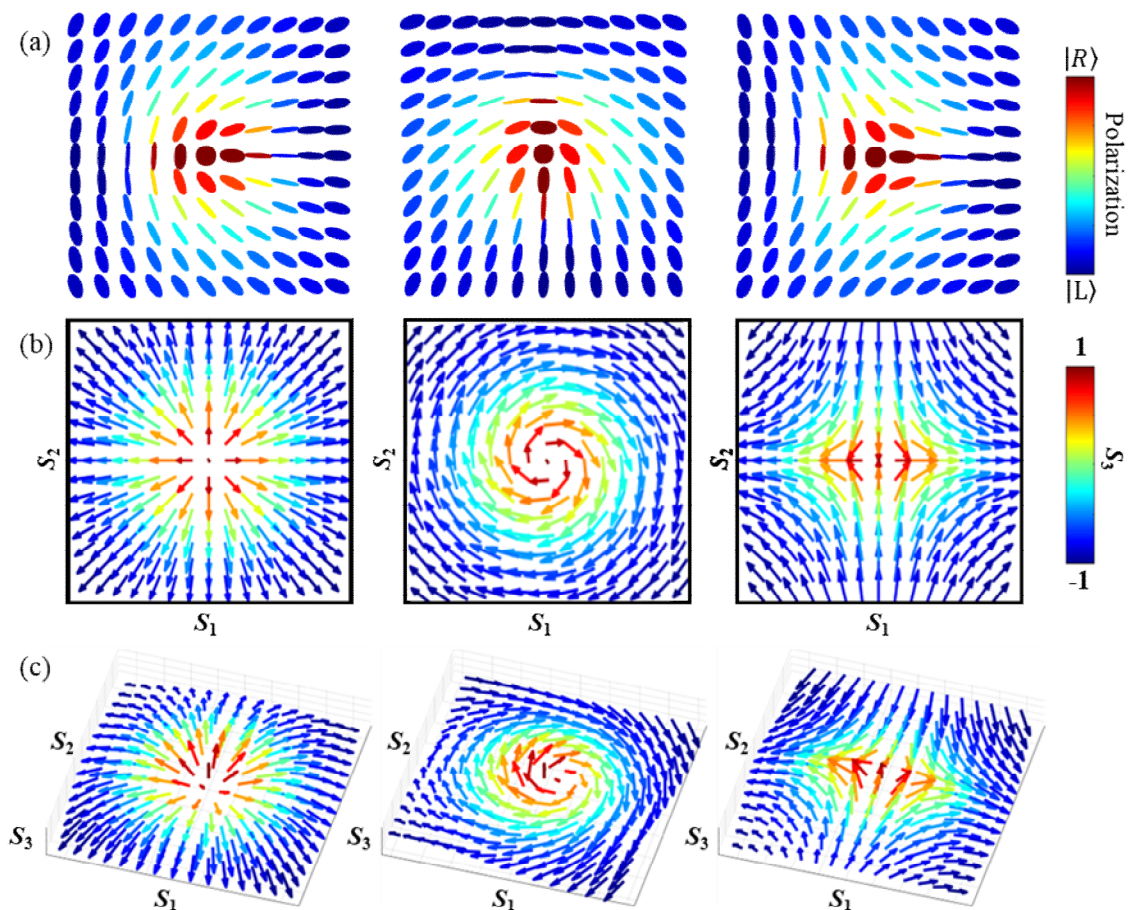


図2-16 光スキルミオンの偏光分布とスキルミオン構造。1次の光スキルミオンにおける(a)偏光分布、(b)2次元および(c)3次元のストークスベクトル。左から、Néel型 ($\phi = 0$ または π)、Bloch型 ($\phi = \pm\pi/2$)、および Anti型の光スキルミオンを示す。

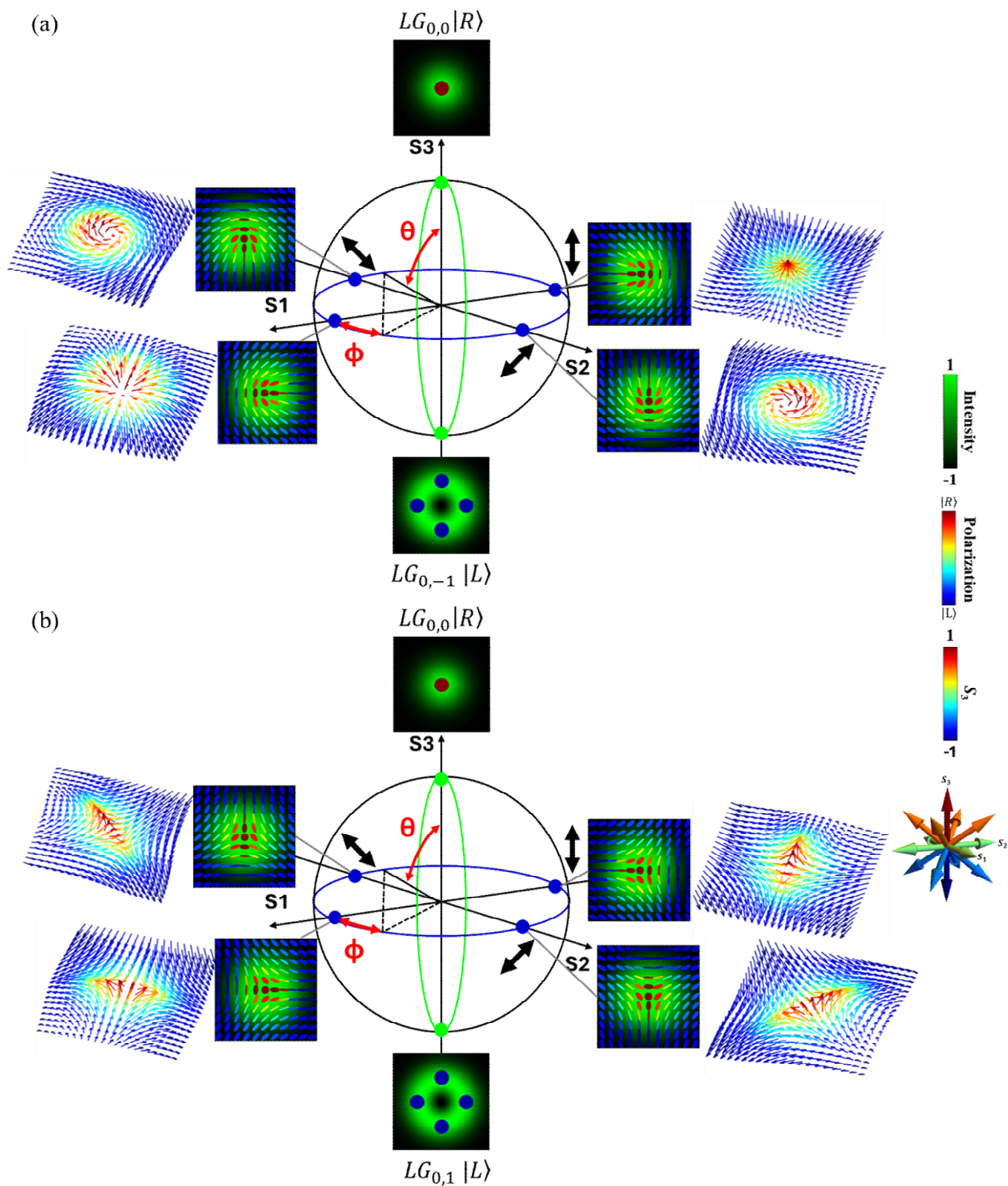


図 2-17 (a) 基底状態に $LG_{0,0}|R\rangle$ と $LG_{0,-1}|L\rangle$ を配置した光スキルミオンの高次ポアンカレ球における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。相対位相 ϕ が変化すると、Néel 型から Bloch 型に変化する。(b) 基底状態に $LG_{0,0}|R\rangle$ と $LG_{0,1}|L\rangle$ を配置した光スキルミオンの高次ポアンカレ球における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。相対位相 ϕ が変化しても、Anti 型から変化しない。偏光分布はジェットカラーマップで、赤と青はそれぞれ右円偏光と左円偏光を表す。ストークスベクトルは、ポアンカレ球上の偏光を示し、矢印の色はポアンカレ球の緯度 θ をジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。

また光スキルミオンの偏光分布は、ビームが伝搬するにつれて回転するが、トポロジカル構造は保護される。この性質は、LGモードの Gouy 位相の分散 $((|l| + 2p + 1)\xi(z))$ に起因する。Gouy 位相はビームの伝搬中の位相変化を引き起こすが、スキルミオン数は不変である。

例えば、1 次の光スキルミオン（焦点において Néel 型）の場合、偏光分布はビーム伝搬中に回転し、最終的に Bloch 型へと変化する（図 2-18）。この現象は、Gouy 位相の差 $\varphi_\xi(z)$ によって説明される。Gouy 位相の差は次のようになる。

$$\varphi_\xi(z) = \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad 2-60$$

ここで、 z_R はレイリー長であり、ビームの集束特性を特徴づけるパラメータである。焦点面 ($z = 0$) において Néel 型の光スキルミオンは、ビームが伝搬中に偏光構造を回転させ、 $z \rightarrow \infty$ （無限遠方）では $\varphi_\xi(\infty) = 90^\circ$ となり、Bloch 型へと変化する。この動的な偏光変化においても、スキルミオン数は不変であり、光のトポロジーは保存される。

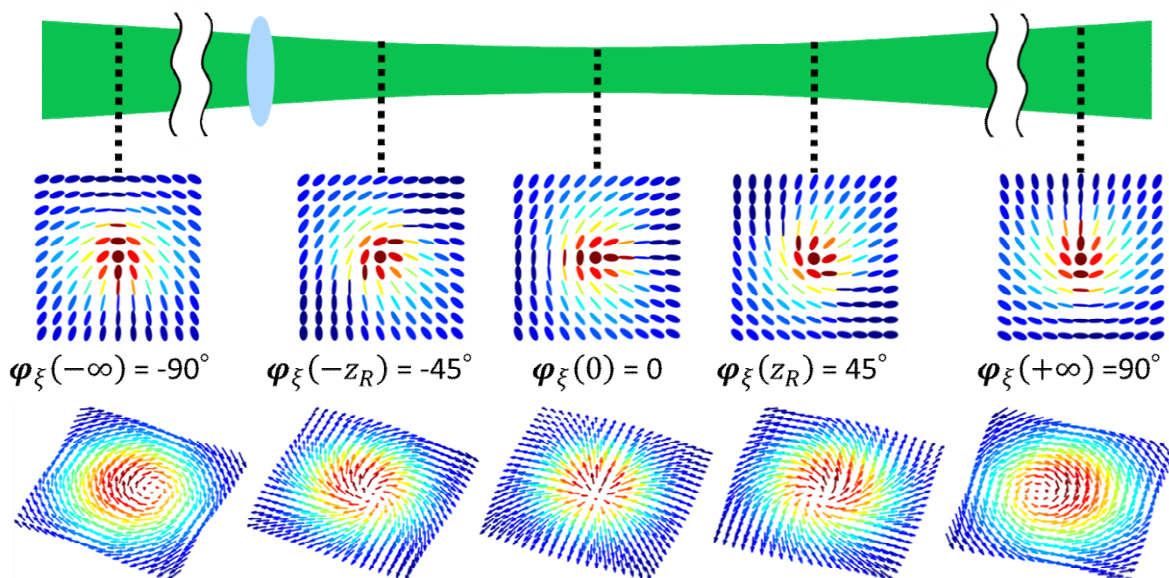


図 2-18 ビーム伝搬時の 1 次の光スキルミオン（焦点で Néel 型）の偏光分布とストークスペクトル。Néel 型から Bloch 型へ変換する。偏光分布はジェットカラーマップで表され、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。ストークスペクトルは、ポアンカレ球上の偏光を示し、矢印の色は S_3 をジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。

2.4.3. 光ホプフィオン

スキルミオンが2次元のベクトル場に基づくトポロジカルな準粒子であるのに対し、ホプフィオン (Hopfion) は3次元実空間における位相的に安定なトポロジカル準粒子である。ホプフィオンは、4次元の単位球を3次元空間上にマッピングすることで形成される位相的に安定な3次元準粒子ソリトンであり、L. D. Faddeevによって1970年代に数学モデルが考案された[71,72]。このホプフィオンは、液晶[53]や磁性材料[73–75]、さらに光学分野（これを光ホプフィオンと呼ぶ）においても、理論的な予測に基づき、実験的にも立証されてきた[76,77]。

光ホプフィオンは、位相と3つのストークスパラメータによって構成される4次元単位球を3次元物理空間上に投影することにより組織される時間位相の入れ子構造を持つ。この4次元球の構造は、右円偏光と左円偏光の正規化された複素スカラー関数 $E_r(r)$ および $E_l(r)$ を用いることで次のように定義される[77]。

$$(\operatorname{Re}(E_r))^2 + (\operatorname{Im}(E_r))^2 + (\operatorname{Re}(E_l))^2 + (\operatorname{Im}(E_l))^2 = 1 \quad 2-61$$

正規化された複素スカラー関数 E_r および E_l は次のように表される。

$$E_r = \cos \frac{\beta}{2} e^{\frac{i(\gamma-\alpha)}{2}} \quad 2-62$$

$$E_l = \sin \frac{\beta}{2} e^{\frac{i(\gamma+\alpha)}{2}} \quad 2-63$$

ここで、 α は直交する円偏光間の相対位相、 β は偏光の楕円率の角度、 γ は直交する円偏光の位相の合計を示す。この4次元球体では、特定の α と β に対応する偏光状態が円軌道を描き、 γ が 4π サイクルを通過する間にホップファイブレーションが形成される（図2-19）。

一般に、光ホプフィオンの電場 u_{oh} は、直交する円偏光のLGモードのコヒーレントな重ね合わせとして表される。

$$u_{oh}(r, \phi, z) = \left(LG_{0,0}(r, \phi, z) + LG_{1,0}(r, \phi, z) \right) |R\rangle e^{-\frac{i\alpha}{2}} + LG_{0,\ell}(r, \phi, z) |L\rangle e^{\frac{i\alpha}{2}} \quad 2-64$$

ここで、 $|R\rangle$ および $|L\rangle$ は右円偏光および左円偏光、 ϕ は直交する円偏光間の相対位相、 $LG_{0,0}$ は Gaussian モードを表す。この構造により、光ホプフィオンも光スキルミオンと同様に、

Néel 型（ハリネズミ構造）、Bloch 型（渦構造）、Anti 型（サドル構造）のトポロジカル特性を持つ[77,78]。

光ホプフィオンは、スキルミオンの入れ子構造によって作られる複雑な偏光構造を持つ。ビームの伝搬に伴い、 $0 \sim 2\pi$ で変化する時間位相の連続的な変化を、特定の偏光領域で結ぶことで、3次元空間内において位相の結び目構造を形成する（図 2-19 (a)）。この結び目構造は、知恵の輪のような入れ子状の偏光構造を作り出す（図 2-19 (b)）。

具体的には、光ホプフィオンにおける偏光分布の連続的な変化は、4次元球体上のホップファイブレーションとして表現され、3次元空間に投影される。この偏光分布は不均一なスキルミオン密度 Σ を持ち、次の式で表現される[76]。

$$\Sigma = \frac{1}{16\pi^2} \nabla\gamma \cdot (\nabla\cos\beta \times \nabla\alpha) \quad 2-65$$

超球体全体でスキルミオン密度を体積積分するとスキルミオン数が得られる。理想的な1次ホプフィオンの場合、この値は1となる。

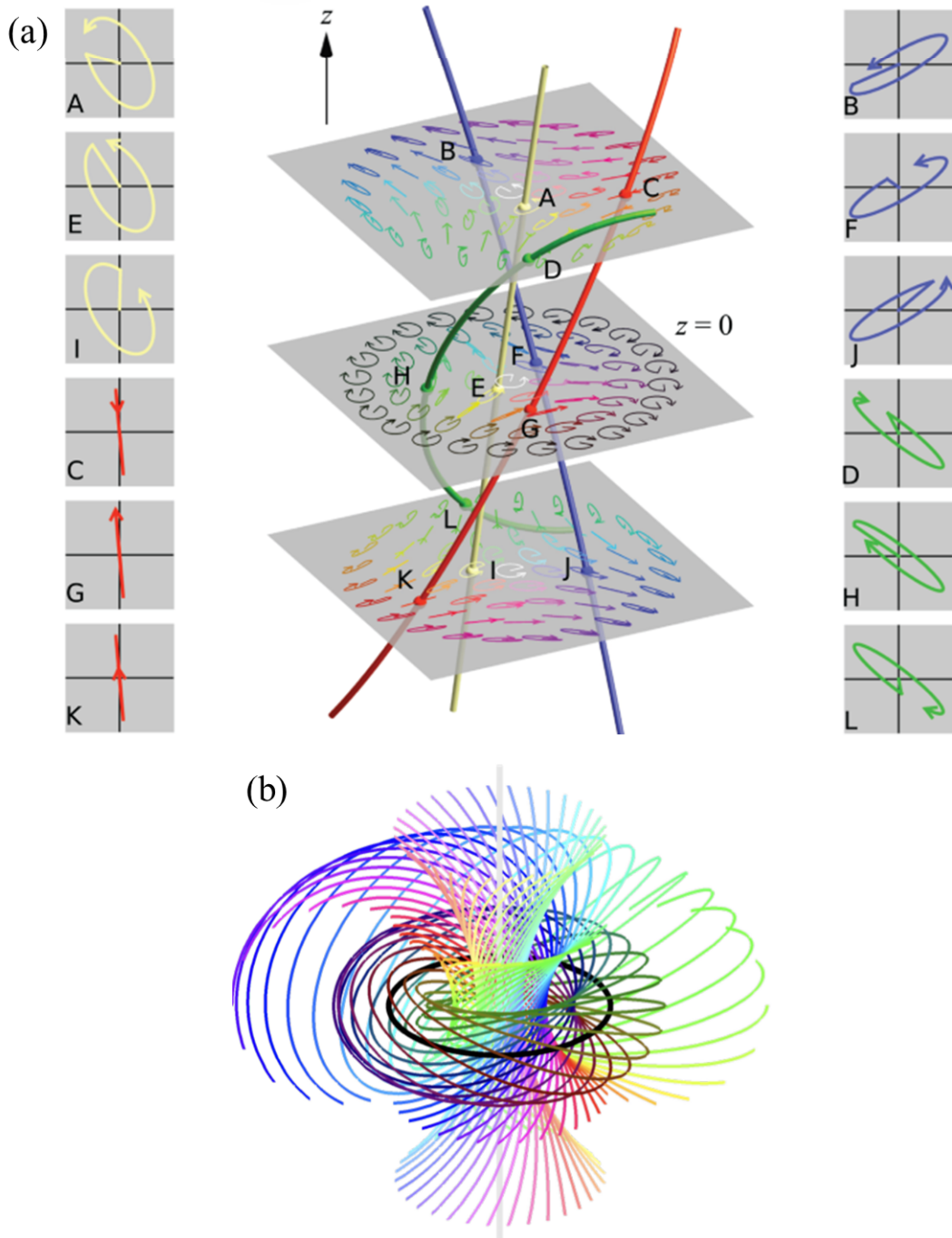


図2-19 光ホプフィオンの概念図。(a)Z方向に伝搬する光ホプフィオンの横方向の偏光と位相を示す。矢印の形は偏光状態、矢印の位置で時間位相の状態を示す。色相は偏光状態、彩度は楕円率で変化する。黒は左円偏光、白は右円偏光を表す。3つの代表的な偏光において、同じ偏光領域を結び、ホップファイバーの結び目構造を形成する。(b)光ホプフィオンの偏光の入れ子構造を反映して、それぞれの偏光状態のホップファイバーの結び目によって偏光のトーラス構造が形作られる。[77]。

光ホプフィオンの重要な点は、その生成過程において動径モード $p = 1$ の $LG_{1,0}$ モードが加わることである。この $LG_{1,0}$ モードは、光スキルミオンで用いられる $LG_{0,0}$ に加わることで、

各 LG モードでグイ位相 $(|\ell| + 2p + 1)\xi(z)$ にずれが生じ、ビームの伝搬中に特有の干渉効果を引き起こす。つまり、ビームが伝搬することで、中心強度を打ち消し合い、円環状の強度分布へと変化し ($LG_{0,0}$ と $LG_{1,0}$ の干渉)、偏光分布も回転する (図 2-20)。その結果、ビーム伝搬中の連続的に変化する時間位相を、同じ偏光領域で $0 \sim 2\pi$ の範囲で結ぶことで、位相の結び目 (ホップファイバー (Hopf fibration)) を形成し、偏光の知恵の輪のような入れ子構造を持つ。さらにそれぞれの偏光領域のホップファイバーから位相的に結びついた偏光のトーラス (Tours) 構造が形作られる。このトーラス構造は、光ホプフィオンのトポロジカルな位相および偏光構造を示し、偏光分布と位相構造の複雑な相互作用を反映している。

このように光ホプフィオンは、時間位相によって作られる偏光の入れ子構造によって、高い安定性から外的な摂動に対しても堅牢性を有している。このようなトポロジカル特性により、光ホプフィオンは光学分野における新たな構造制御技術や、高度な偏光制御が求められる研究への発展が見込まれる。

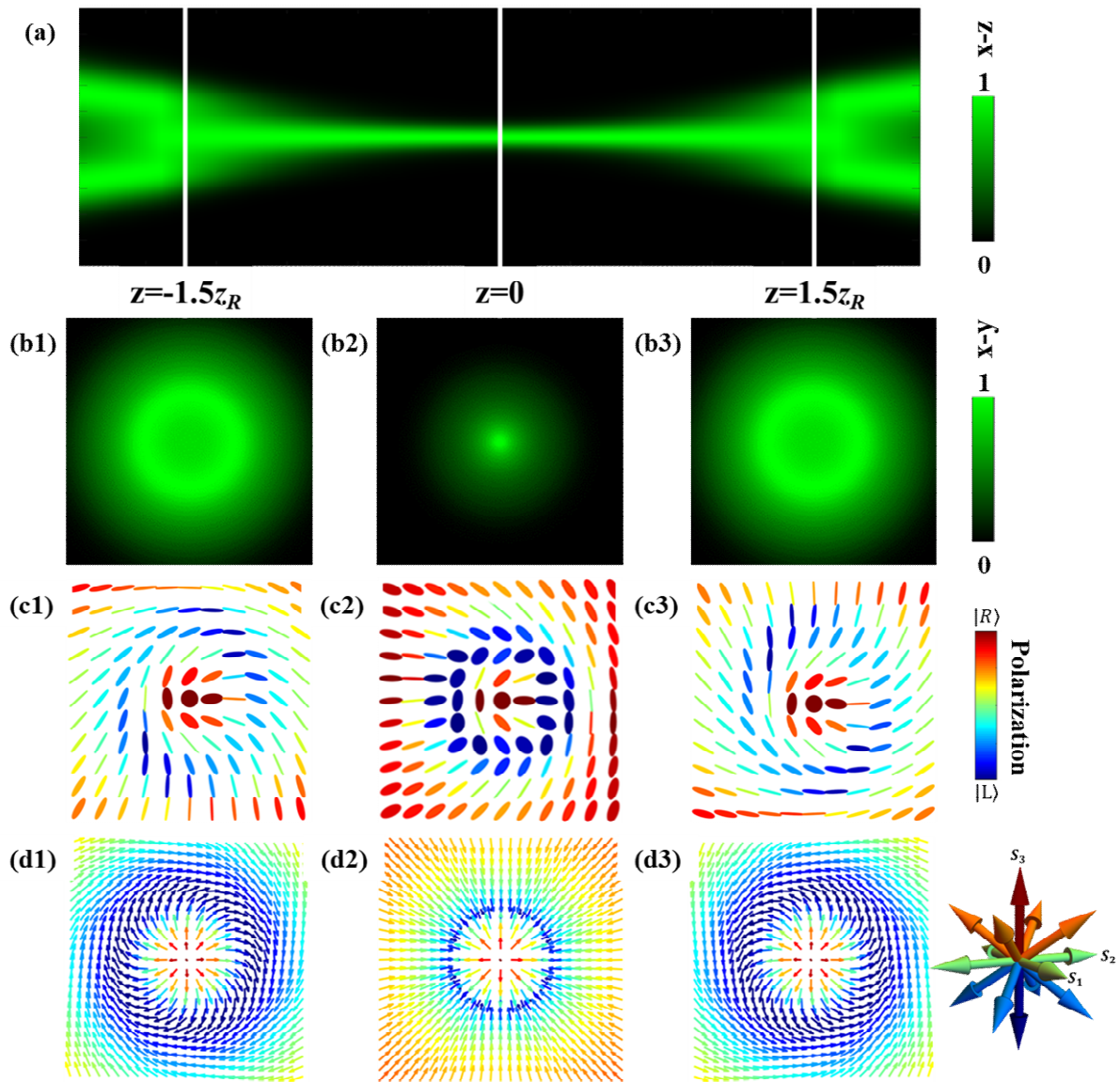


図 2-20 (a)ビーム伝搬における Néel 型の光ホプフィオンの x - z の強度プロファイル、(b1,c1, d1) $z=-1.5z_R$, (b2, c2, d2) $z=0$, (b3, c3, d3) $z=1.5z_R$ における強度分布、偏光分布、およびストークスベクトル。

2.5. 参考文献

1. Hecht Eugene, *ヘクト光学* (2018).
2. Grant R.Fowles, *INTRODUCTION TO MODERN OPTICS* (1989).
3. M. J. Padgett and L. Allen, "The Poynting vector in Laguerre-Gaussian laser modes," *Opt Commun* 121(1-3), 36-40 (1995).
4. 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," *Phys Rev A (Coll Park)* 45(11), 8185 (1992).
5. M. A. Bandres and J. C. Gutiérrez-Vega, *Ince-Gaussian Beams* (2004), 29(2).
6. D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki, and S. Takeuchi, "Observing quantum correlation of photons in laguerre-gauss modes using the gouy phase," *Phys Rev Lett* 101(5), (2008).

7. S. S. R. Oemrawsingh, J. A. W. Van Houwelingen, E. R. Eliel, J. P. Woerdman, E. J. K. Versteegen, J. G. Kloosterboer, and G. W. 't Hooft, *Production and Characterization of Spiral Phase Plates for Optical Wavelengths* (2004).
8. 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," *Appl Phys Lett* 104(26), (2014).
9. K. Miyamoto, B. J. Kang, W. T. Kim, Y. Sasaki, H. Niinomi, K. Suizu, F. Rotermund, and T. Omatsu, "Highly intense monocycle terahertz vortex generation by utilizing a Tsurupica spiral phase plate," *Sci Rep* 6, (2016).
10. A. Rubano, F. Cardano, B. Piccirillo, and L. Marrucci, "Q-plate technology: a progress review [Invited]," *Journal of the Optical Society of America B* 36(5), D70 (2019).
11. L. Marrucci, C. Manzo, and D. Paparo, "Optical Spin-to-Orbital Angular Momentum Conversion in Inhomogeneous Anisotropic Media," *Phys Rev Lett* 96(16), 163905 (2006).
12. L. Marrucci, "The q-plate and its future," *J Nanophotonics* 7(1), 078598 (2013).
13. A. Forbes, "Structured Light from Lasers," *Laser Photon Rev* 13(11), (2019).
14. J. Wang, "Advances in communications using optical vortices," *Photonics Res* 4(5), B14 (2016).
15. Y. Ohtake, T. Ando, N. Fukuchi, N. Matsumoto, H. Ito, T. Hara, and H. Photonics, *Universal Generation of Higher-Order Multiringed Laguerre-Gaussian Beams by Using a Spatial Light Modulator* (2007).
16. T. Lin, J. Xie, Y. Zhou, Y. Zhou, Y. Yuan, F. Fan, and S. Wen, "Recent Advances in Photoalignment Liquid Crystal Polarization Gratings and Their Applications," *Crystals* (Basel) 11(8), 900 (2021).
17. N. Matsumoto, T. Ando, T. Inoue, Y. Ohtake, N. Fukuchi, and T. Hara, "Generation of high-quality higher-order Laguerre-Gaussian beams using liquid-crystal-on-silicon spatial light modulators," *Journal of the Optical Society of America A* 25(7), 1642 (2008).
18. S. C. Tidwell, D. H. Ford, and W. D. Kimura, "Generating radially polarized beams interferometrically," *Appl Opt* 29(15), 2234 (1990).
19. 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," *Appl Phys Lett* 77(21), 3322–3324 (2000).
20. C. Maurer, A. Jesacher, S. FÜRhapter, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte, "Tailoring of arbitrary optical vector beams," *New J Phys* 9(3), 78–78 (2007).
21. S. Vyas, Y. Kozawa, and S. Sato, "Polarization singularities in superposition of vector beams," *Opt Express* 21(7), 8972 (2013).
22. R. H. Jordan and D. G. Hall, "Free-space azimuthal paraxial wave equation: the azimuthal Bessel–Gauss beam solution," *Opt Lett* 19(7), 427 (1994).
23. D. G. Hall, "Vector-beam solutions of Maxwell's wave equation," *Opt Lett* 21(1), 9 (1996).
24. A. A. Tovar, "Production and propagation of cylindrically polarized Laguerre–Gaussian laser beams," *Journal of the Optical Society of America A* 15(10), 2705 (1998).
25. A. V Nesterov and V. G. Niziev, "Laser beams with axially symmetric polarization," *J Phys D Appl Phys* 33(15), 1817–1822 (2000).
26. S. Vyas, Y. Kozawa, and S. Sato, "Polarization singularities in superposition of vector beams," *Opt Express* 21(7), 8972 (2013).
27. A. Ito, Y. Kozawa, and S. Sato, "Generation of hollow scalar and vector beams using a spot-defect mirror," *Journal of the Optical Society of America A* 27(9), 2072 (2010).
28. D. Naidoo, F. S. Roux, A. Dudley, I. Litvin, B. Piccirillo, L. Marrucci, and A. Forbes, "Controlled generation of higher-order Poincaré sphere beams from a laser," *Nat Photonics* 10(5), 327–332 (2016).
29. G. Milione, H. I. Sztul, D. A. Nolan, and R. R. Alfano, "Higher-Order Poincaré Sphere, Stokes Parameters, and the Angular Momentum of Light," *Phys Rev Lett* 107(5), 053601 (2011).

30. M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, and R. Morita, "Nonlinear coupling between axisymmetrically-polarized ultrashort optical pulses in a uniaxial crystal," *Opt Express* 22(14), 16903 (2014).
31. M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, and R. Morita, "Extended Stokes parameters for cylindrically polarized beams," *Opt Rev* 22(1), 179–183 (2015).
32. S. Chen, X. Zhou, Y. Liu, X. Ling, H. Luo, and S. Wen, "Generation of arbitrary cylindrical vector beams on the higher order Poincaré sphere," *Opt Lett* 39(18), 5274 (2014).
33. F. Cardano, E. Karimi, S. Slussarenko, L. Marrucci, C. de Lisio, and E. Santamato, "Polarization pattern of vector vortex beams generated by q-plates with different topological charges," *Appl Opt* 51(10), C1 (2012).
34. 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," *Appl Opt* 54(32), 9583 (2015).
35. W. Shu, X. Ling, X. Fu, Y. Liu, Y. Ke, and H. Luo, "Polarization evolution of vector beams generated by q-plates," *Photonics Res* 5(2), 64 (2017).
36. S. Delaney, M. M. Sánchez-López, I. Moreno, and J. A. Davis, "Arithmetic with q-plates," *Appl Opt* 56(3), 596 (2017).
37. S. Liu, S. Qi, Y. Zhang, P. Li, D. Wu, L. Han, and J. Zhao, "Highly efficient generation of arbitrary vector beams with tunable polarization, phase, and amplitude," *Photonics Res* 6(4), 228 (2018).
38. R. Li, Y. Ren, R. Sun, J. Zhao, C. Wang, Z. Liu, and T. Liu, "Generation of fractional and ultra-high polarization-order vector vortex beams on hybrid-order Poincaré spheres," *Opt Laser Technol* 164, 109457 (2023).
39. P. Kumar, A. S. Rao, and T. Omatsu, "Generation of V-point polarization singularity using single phase encoding with a spatial light modulator," *Sci Rep* 13(1), 315 (2023).
40. S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl, and G. Leuchs, "Focusing light to a tighter spot," *Opt Commun* 179(1–6), 1–7 (2000).
41. K. S. Youngworth and T. G. Brown, "Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams," *Opt Express* 7(2), 77 (2000).
42. M. Michihata, T. Hayashi, and Y. Takaya, "Measurement of axial and transverse trapping stiffness of optical tweezers in air using a radially polarized beam," *Appl Opt* 48(32), 6143 (2009).
43. Y. Kozawa, D. Matsunaga, and S. Sato, "Superresolution imaging via superoscillation focusing of a radially polarized beam," *Optica* 5(2), 86 (2018).
44. Y. Kozawa, R. Sakashita, Y. Uesugi, and S. Sato, "Imaging with a longitudinal electric field in confocal laser scanning microscopy to enhance spatial resolution," *Opt Express* 28(12), 18418 (2020).
45. Y. Kozawa, M. Sato, Y. Uesugi, and S. Sato, "Laser microprocessing of metal surfaces using a tightly focused radially polarized beam," *Opt Lett* 45(22), 6234 (2020).
46. Y. Tsuru, Y. Kozawa, Y. Uesugi, and S. Sato, "Laser nanoproccessing via an enhanced longitudinal electric field of a radially polarized beam," *Opt Lett* 49(6), 1405 (2024).
47. T. H. R. Skyrme, "A unified field theory of mesons and baryons," *Nuclear Physics* 31, 556–569 (1962).
48. Y. Shen, Q. Zhang, P. Shi, L. Du, X. Yuan, and A. V. Zayats, "Optical skyrmions and other topological quasiparticles of light," *Nat Photonics* 18(1), 15–25 (2024).
49. U. Al Khawaja and H. Stoof, "Skyrmions in a ferromagnetic Bose–Einstein condensate," *Nature* 411(6840), 918–920 (2001).
50. L. S. Leslie, A. Hansen, K. C. Wright, B. M. Deutsch, and N. P. Bigelow, "Creation and Detection of Skyrmions in a Bose-Einstein Condensate," *Phys Rev Lett* 103(25), 250401 (2009).
51. D. Foster, C. Kind, P. J. Ackerman, J.-S. B. Tai, M. R. Dennis, and I. I. Smalyukh, "Two-dimensional skyrmion bags in liquid crystals and ferromagnets," *Nat Phys* 15(7), 655–659 (2019).

52. A. Duzgun and C. Nisoli, "Skyrmion Spin Ice in Liquid Crystals," *Phys Rev Lett* 126(4), 047801 (2021).
53. J.-S. Wu and I. I. Smalyukh, "Hopfions, heliknotons, skyrmions, torons and both abelian and nonabelian vortices in chiral liquid crystals," *Liq Cryst Rev* 10(1–2), 34–68 (2022).
54. S. Heinze, K. von Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, and S. Blügel, "Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions," *Nat Phys* 7(9), 713–718 (2011).
55. G. Finocchio, F. Büttner, R. Tomasello, M. Carpentieri, and M. Kläui, "Magnetic skyrmions: from fundamental to applications," *J Phys D Appl Phys* 49(42), 423001 (2016).
56. Y. Tokura and N. Kanazawa, "Magnetic Skyrmion Materials," *Chem Rev* 121(5), 2857–2897 (2021).
57. A. Fert, N. Reyren, and V. Cros, "Magnetic skyrmions: advances in physics and potential applications," *Nat Rev Mater* 2(7), 17031 (2017).
58. X. Zhang, Y. Zhou, K. Mee Song, T.-E. Park, J. Xia, M. Ezawa, X. Liu, W. Zhao, G. Zhao, and S. Woo, "Skyrmion-electronics: writing, deleting, reading and processing magnetic skyrmions toward spintronic applications," *Journal of Physics: Condensed Matter* 32(14), 143001 (2020).
59. S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni, "Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet," *Science* (1979) 323(5916), 915–919 (2009).
60. A. A. Kovalev and S. Sandhoefner, "Skyrmions and Antiskyrmions in Quasi-Two-Dimensional Magnets," *Front Phys* 6, (2018).
61. B. Göbel, I. Mertig, and O. A. Tretiakov, "Beyond skyrmions: Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles," *Phys Rep* 895, 1–28 (2021).
62. A. M. Beckley, T. G. Brown, and M. A. Alonso, "Full Poincaré beams," *Opt Express* 18(10), 10777–10785 (2010).
63. S. Tsesses, E. Ostrovsky, K. Cohen, B. Gjonaj, N. H. Lindner, and G. Bartal, "Optical skyrmion lattice in evanescent electromagnetic fields," *Science* (1979) 361(6406), 993–996 (2018).
64. L. Du, A. Yang, A. V. Zayats, and X. Yuan, "Deep-subwavelength features of photonic skyrmions in a confined electromagnetic field with orbital angular momentum," *Nat Phys* 15(7), 650–654 (2019).
65. E. J. Galvez, S. Khadka, W. H. Schubert, and S. Nomoto, "Poincaré-beam patterns produced by nonseparable superpositions of Laguerre–Gauss and polarization modes of light," *Appl Opt* 51(15), 2925 (2012).
66. F. Cardano, E. Karimi, L. Marrucci, C. de Lisio, and E. Santamato, "Generation and dynamics of optical beams with polarization singularities," *Opt Express* 21(7), 8815 (2013).
67. W. R. Kerridge-Johns, A. S. Rao, and T. Omatsu, "Optical skyrmion laser using a wedged output coupler," *Optica* 11(6), 769 (2024).
68. Y. Shen, E. C. Martínez, and C. Rosales-Guzmán, "Generation of Optical Skyrmions with Tunable Topological Textures," *ACS Photonics* 9(1), 296–303 (2022).
69. T. He, Y. Meng, L. Wang, H. Zhong, N. Mata-Cervera, D. Li, P. Yan, Q. Liu, Y. Shen, and Q. Xiao, *Optical Skyrmions from Metafibers* (n.d.).
70. Y. Shen, "Topological bimeronic beams," *Opt Lett* 46(15), 3737–3740 (2021).
71. L. D. Faddeev, "Some comments on the many-dimensional solitons," *Lett Math Phys* 1(4), 289–293 (1976).
72. H. K. Urbantke, "The Hopf fibration—seven times in physics," *Journal of Geometry and Physics* 46(2), 125–150 (2003).
73. F. Zheng, N. S. Kiselev, F. N. Rybakov, L. Yang, W. Shi, S. Blügel, and R. E. Dunin-Borkowski, "Hopfion rings in a cubic chiral magnet," *Nature* 623(7988), 718–723 (2023).

74. R. Knapman, T. Tausendpfund, S. A. Díaz, and K. Everschor-Sitte, "Spacetime magnetic hopfions from internal excitations and braiding of skyrmions," *Commun Phys* 7(1), 151 (2024).
75. B. Göbel, C. A. Akosa, G. Tatara, and I. Mertig, "Topological Hall signatures of magnetic hopfions," *Phys Rev Res* 2(1), 013315 (2020).
76. D. Ehrmantraut, R. Droop, D. Sugic, E. Otte, M. R. Dennis, and C. Denz, "Optical second-order skyrmionic hopfion," *Optica* 10(6), 725 (2023).
77. D. Sugic, R. Droop, E. Otte, D. Ehrmantraut, F. Nori, J. Ruostekoski, C. Denz, and M. R. Dennis, "Particle-like topologies in light," *Nat Commun* 12(1), 6785 (2021).
78. Y. Shen, B. Yu, H. Wu, C. Li, Z. Zhu, and A. V. Zayats, "Topological transformation and free-space transport of photonic hopfions," *Advanced Photonics* 5(01), (2023).

3. アゾポリマー

本章では、可視光領域の不均一な光や集光レーザー光の照射により誘起される光異性化反応を介したアゾポリマーの物質移動メカニズムと、それに伴う表面レリーフ構造について解説する。アゾポリマーの表面レリーフは、照射される光の強度、偏光、および波面構造を投影した構造を持つ。

3.1 章では、アゾポリマーの物質移動のメカニズムについて解説する。この物質移動は、光異性化による分子の動的挙動と光の輻射力を基盤としており、光学的な刺激に対して表面構造が変形するプロセスを解説する。3.2 章では、レーザー光照射によって形成される表面レリーフのパターンや形状について紹介する。具体例として、干渉光パターンや偏光依存性の構造形成について議論する。3.3 章では、2 章で解説した Structured light (光渦やベクトルビームなど) を用いた複雑なアゾポリマーの物質操作に関する最新の研究を取り上げる。特に、偏光や波面がもたらす影響に基づく高度な表面制御技術について述べる。

3.1. アゾポリマーの光によって誘起される物質移動

アゾベンゼンは、有機化合物の一種であり、2 つのベンゼンフェニル環が-N=N-の二重結合で結びついた構造を持つ。このアゾベンゼン誘導体を含有するポリマーをアゾポリマーと呼び、可視光照射により特徴的な光誘起物質移動を示す。この物質移動によって作られた表面レリーフは、書き換え可能な光データストレージ[1,2]、ナノ加工[3,4]、ホログラム[5-7]など、多方面での活用が見込まれている。この表面レリーフは、光異性化を介した化学的反応と光の輻射力による物理的反応を組み合わせることで、照射光の空間強度や偏光状態を投影した表面の形状が構築される[8,9]。

アゾポリマー分子は、室温では安定なトランス体で主に存在しているが、光を照射すると光異性化反応を起こし、トランス体からシス体に変換される (図 3-1(a))。シス体のアゾポリマー分子は、自発的にシス-トランス光異性化反応を起こし、再びトランス体に戻る。こ

のトランス-シスおよびシス-トランス異性化反応はピコ秒オーダーで発生し、アゾポリマー分子がこの異性体化反応を繰り返すことで、バネのような運動を誘起される[10]。

特定の偏光を持つ光を入射すると、アゾポリマー分子は分子の軸が照射光の偏光方向と水平な場合、効率的な光を吸収が発生し、光異性化反応を繰り返す。ただし、シス体からトランス体へ戻る方向はランダムであるため、最終的にはアゾポリマー分子は偏光方向に対して垂直に配向する[11,12]。

さらにシス体のアゾポリマー分子は、トランス体の分子と比べ、立体障害が大きい。そのため光の照射を続けることで、シス体のアゾポリマー分子の数が増加すると、分子の密度が低下し、アゾポリマー自体が軟化する。例えば、干渉縞の明暗を持つ光をアゾポリマー薄膜に照射した場合は、光の明部は軟化する。そこに光の輻射力が働き、物質が光の強度が高い（明るい）領域から強度が低い（暗い）領域に向かって移動する。この物質移動により、アゾポリマーの表面に光の空間強度を映し出した表面レリーフ構造が形作られる（図 3-1(b)）。

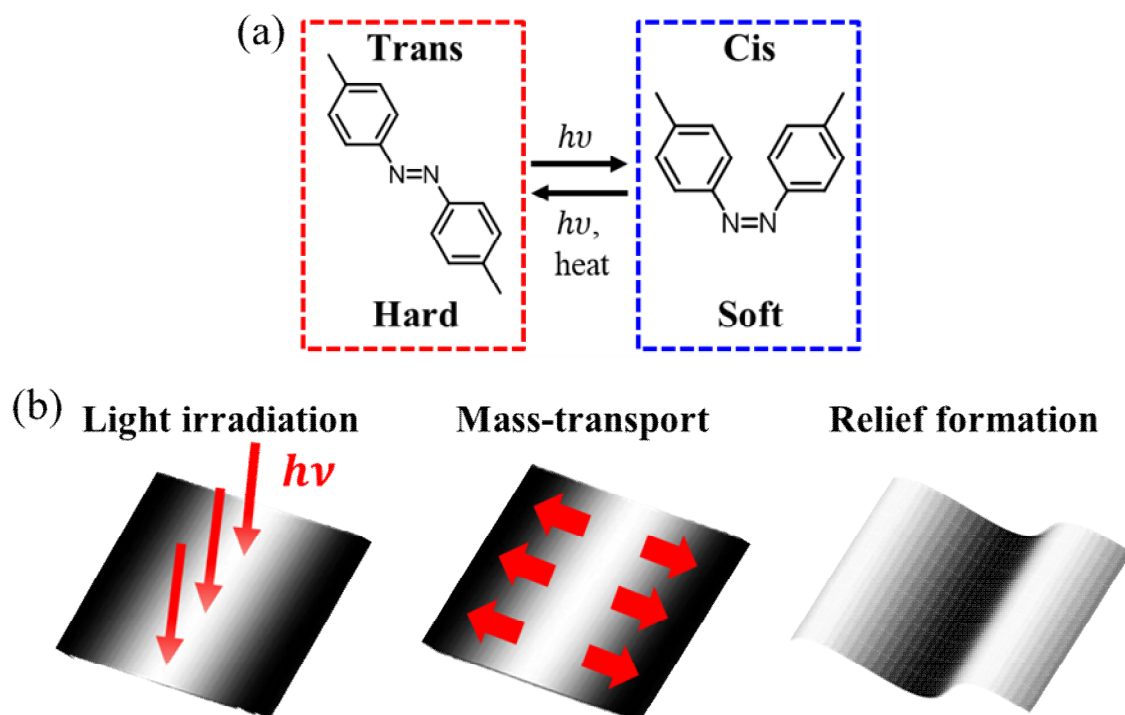


図 3-1 (a)アゾベンゼンの異性化の反応式、(b)アゾポリマーの光誘起表面レリーフ形成過程の概念図。

3.2. 表面レリーフパターン形成

1995年、Rochonらは、波長514nmのアルゴンレーザーを利用した干渉縞をアゾポリマーフィルムに照射すると、周期360nmから1000nm、深さ最大170nmの周期を持つ凹凸構造（グレーティング）が誘起されること発見した（図3-2）[13]。これは、光の空間強度を映し出した回折格子状の構造を作り出せるようになった。

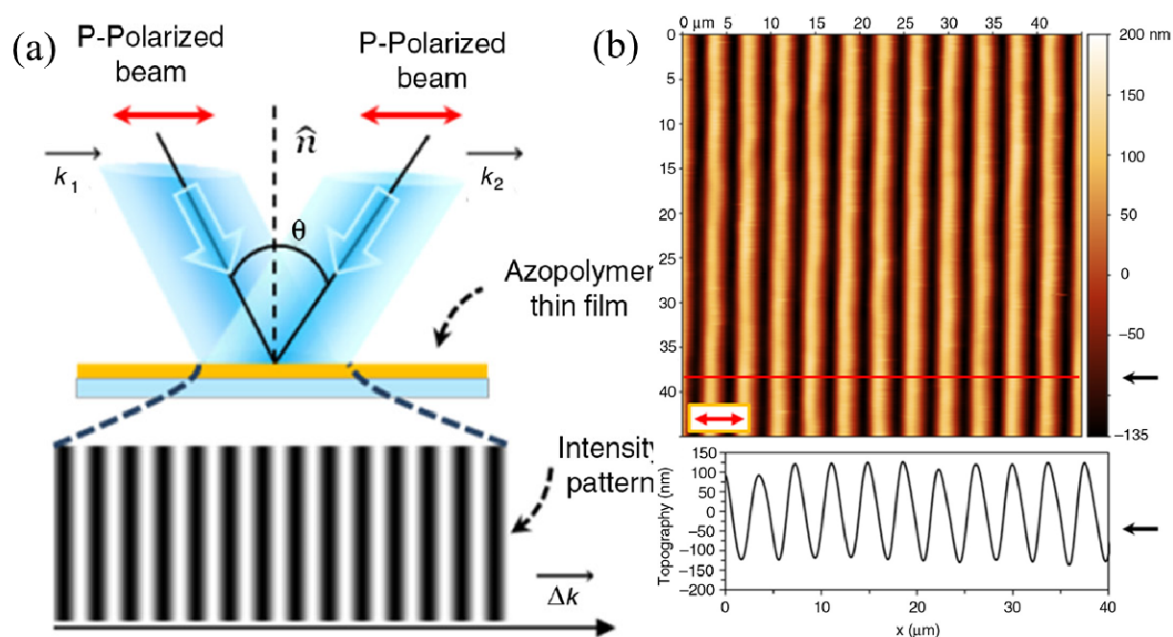


図 3-2 (a)干渉光によるアゾポリマーの表面回折格子の形成の模式図。(b)生成された表面回折格子のAFM像とその断面[4]。

さらに1996年に、Barrettらは、アゾポリマーの表面回折格子がアゾベンゼン基のトランス-シス光異性化反応により、レーザー照射部で生じる内部圧力勾配に伴う物質移動によって表面が変形することを実証した[14]。この報告では、光異性化がアゾポリマーの分子の移動にダイレクトな影響を与え、照射する光のパラメータによって形成される表面レリーフの構造をコントロールされることが明らかになった。また、直線偏光を照射時よりも、円偏光照射に作られる表面レリーフは深さが増大した。これは、アゾベンゼン基の効率的な光異性化反応が促進され、光の偏光を投影した構造が形成されることが証明された。

1998年、Bianらは、単一集光レーザーの照射によって、照射したレーザーの偏光と強度に対応した物質移動を示すことを実証した[8,15]。彼らの研究では、波長 544 nm に吸収特性を持つエポキシ系アゾポリマーPDO3 を使用した。He-Ne レーザー（波長 544nm）を対物レンズでフォーカス（スポット強度は 328 mW/cm^2 ）して、 $2.1 \mu\text{m}$ のスポット径、露光時間 50 分でフィルムを照射した。

このとき作り出された表面レリーフの形状は、照射光の偏光状態によって構造が変化した。直線偏光の場合、偏光方向に沿った物質移動が発生し、偏光の異方性に対応した非対称な表面レリーフとなった（図 3-3 (a)）。一方、異方性を持たない円偏光の場合、同心円状の対称的な表面レリーフとなった（図 3-3 (b)）。これらの結果により、照射光の偏光状態によってアゾポリマー分子の物質移動が変化することが判明した。

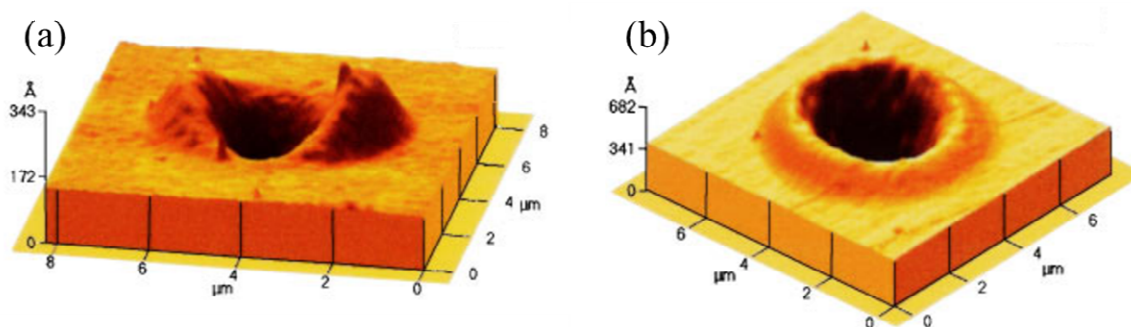


図 3-3 (a)直線偏光および(b)円偏光の Gaussian ビームの照射によって作られるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像。集光された単一レーザーの偏光を反映した物質移動が誘起される[15]。

2006年、Gilbertらは、強集光された直線偏光 Gaussian モードのビームをアゾポリマーフィルムに照射した際、光波の縦電場（ビームの進行方向の電場成分）の強度分布が反映され、異方性を有する表面レリーフが作製された[16]。この実験では、レーザー（波長 532nm）を対物レンズ（NA 1.4）でフォーカスし、スポット強度は 40 kW/cm^2 、照射時間 1 秒の条件下で行われた。

さらに 2014 年、石飛らは、直線偏光およびラジアル偏光ビームをアゾポリマーフィルムに照射した際、光の縦電場がアゾポリマーの物質移動に対する異方性光流動力および光勾配力に作用することを明らかにした（図 3-4） [17]。この実験では、レーザー（波長 532 nm）

を対物レンズ (NA 1.4) で集光し、スポット強度 2.0 W/cm^2 、照射時間 5~300 秒の条件で行われた。

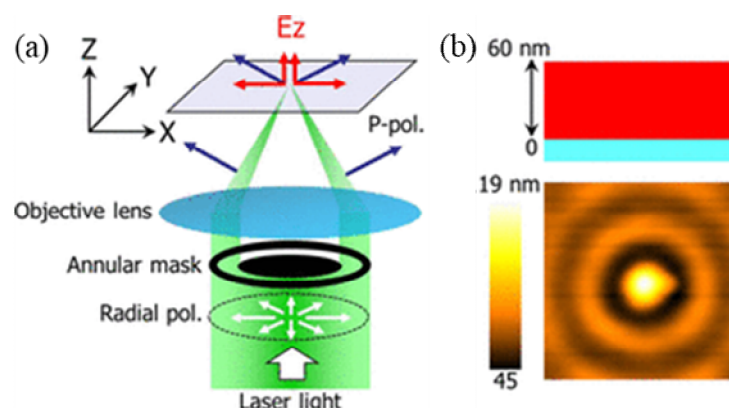


図 3-4 (a)強集光されたラジアル偏光ビームの縦電場発生メカニズム。(b) 膜厚 60nm のアゾポリマーフィルムにラジアル偏光ビームを照射して得られる表面レリーフ。

また 2024 年、楊らは、アゾポリマーの表面レリーフ形成を、高速原子間力顕微鏡 (HS-AFM) によってリアルタイムの観測を行った (図 3-5) [18]。彼らの研究では、レーザー (波長 532 nm) を対物レンズ (NA 1.4) で集光し、スポット強度 10.5 W/cm^2 、照射時間 14 秒の条件下で実験を行い、AFM のイメージング速度 2 fps の条件で、表面レリーフの高さ変化を高分解能で可視化した。この結果、表面の高さ変化速度が $0.91 \sim 1.60 \text{ nm/s}$ であり、照射光の偏光に依存したパターンが段階的に形成される過程が観察された。

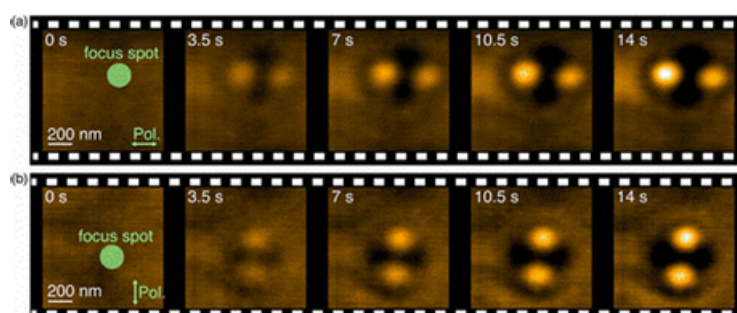


図 3-5 2 fps で取得した(a) x 方向および(b) y 方向の直線偏光ガウスビーム照射時のアゾポリマーフィルムの AFM 画像。緑矢印は過渡光の偏光方向を表現している。

これまでに、アゾポリマーの表面レリーフ形成に関するいくつかの理論やモデルが考案された。例えば、Kumar らは、電場の勾配と相互作用する双極子がアゾポリマーの物質移動を

引き起こすことを示唆した[19]。一方、Barettらは、アゾベンゼン基の光異性化反応によって誘発される圧力勾配を駆動力とする粘性流体のモデルを構築し、物質移動のメカニズムを説明した[20]。さらに、光駆動のランダムウォークモデル[21]、平均場理論モデル[22]、流体力学モデル[23]、確率論モデル[24]など、様々な案が検討されてきた。しかし、全ての実験結果を明確に証明する理論やモデルは存在せず、アゾポリマーの物質移動メカニズムの解明にはさらなる調査が不可欠である。

これまでのさまざまな実験においては、光の強度分布や偏光状態に依存したアゾポリマーの物質移動が実験的に立証されており、アゾポリマーの表面レリーフは光学的条件の影響を受けることが明らかになっている。

3.3. 構造化された光による表面レリーフパターン形成

2012年、Ambrosioらは、光渦をアゾポリマーフィルムに強く集光して照射することで、波面を反映した物質移動を誘発させ、2本の腕のを有する螺旋状の表面レリーフを作り出した(図 3-6) [25]。この実験では、膜厚 700 nm のアゾポリマーフィルムを使用した。このフィルムは、UV から可視波長領域にわたる広い吸収を示し、特に 532nm で約 5%の吸収率を持つ。Ambrosioらは、SLMによる軌道角運動量 $l = 10$ の光渦を生成した。この光渦は、波長が 532 nm、偏光は直線偏光であり、光強度 13 μ W のレーザーを対物レンズ (NA : 1.3) でアゾポリマーフィルムに集光照射した。ビームの直径は約 3.2 μ m、露光時間は 90 秒と設定した。この照射により、直径 2.7 μ m、高さ 50nm の 2 本腕の螺旋状の表面レリーフが形成された。さらに、軌道角運動量の符号を反転させると、生成された螺旋構造も反転し、光渦の螺旋波面構造がアゾポリマーフィルムの物質移動に直接的な影響を与えることを判明した。

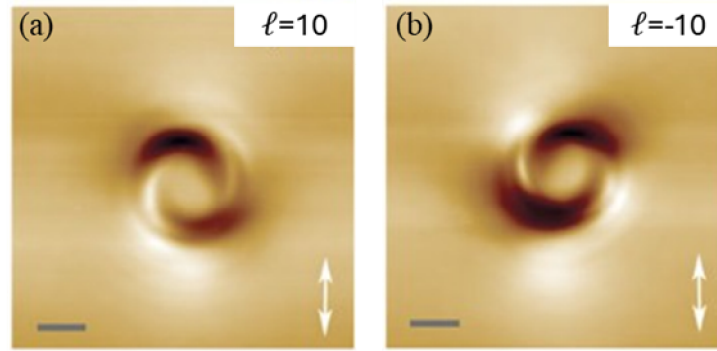


図 3-6 $l = 10$ および -10 の強集光した直線偏光の光渦によって形成されたアゾポリマーフィルム上の螺旋状構造のレリーフの AFM 画像[25]。

彼らは、従来の光の強度勾配力だけでは説明できないため、異方性を伴う光誘導分子拡散に基づく新たな物質移動のモデルを考案した[26]。このモデルは、横方向および縦方向の電場の干渉を考慮し、波面の向きに対応した方位角方向の物質移動が誘発する予想された。

表面レリーフは、質量電流密度ベクトル J によって構築されると考え、その高さ変化 Δh は次のように表される。

$$J_k = C_1 \partial_k (E_l^* E_l) + C_2 \partial_l (E_l^* E_k + E_k^* E_l) + C_3 \partial_k |E_z|^2 + \frac{C_s}{L} (E_z^* E_k + E_z E_k^*), \quad k, l = x, y. \quad 3-1$$

$$\Delta h = -\frac{L \Delta t}{\rho} \partial_x J_x \quad 3-2$$

$$= c_1 \partial_k \partial_k (E_l^* E_l) + c_2 \partial_k \partial_l (E_l^* E_k) + c_3 \partial_k \partial_k |E_z|^2 + 2c_s \partial_k \text{Re}(E_z^* E_k), \quad k, l = x, y.$$

ここで、 $\mathbf{E} = (E_x, E_y, E_z)$ はポリマーフィルム内の光電場（複素表記）を表し、 C_1 、 C_2 、 C_3 は、それぞれ横方向の光勾配力、偏光、縦方向の光勾配力に対応する物質移動係数を示す。 C_s は横方向と縦方向の電場の結合から生じ、波面を反映した物質移動を表しており、これが螺旋構造の形成に寄与する。特に、アゾポリマー分子の移動度はポリマーと空気の界面において C_s 項（有効フィルム厚に反比例）に支配され、波面構造の物質移動を促すと予想された。

この理論的分析は、光渦によって誘導される波面を反映した物質移動の実験結果をよく支持しており、実験と理論が良好に一致している（図 3-7）。

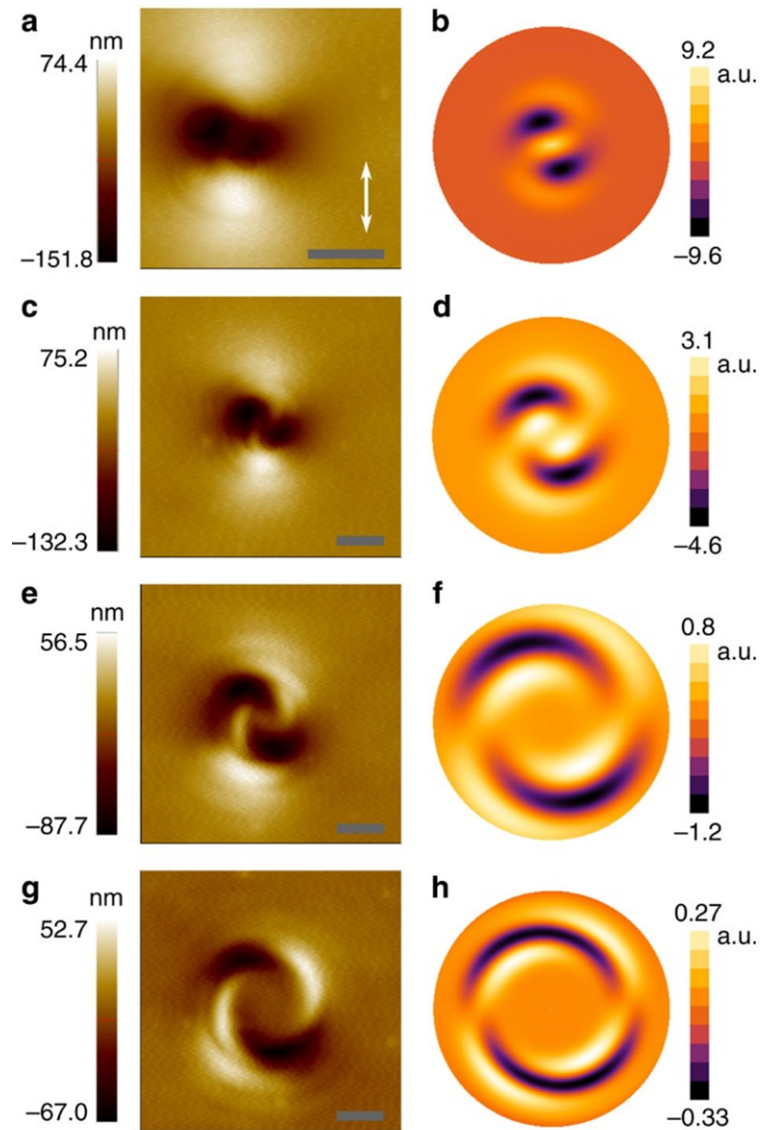


図 3-7 (a)直線偏光 (白矢印の方向) における $\ell=1$ の光渦の照射によって作られたアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像。(b)それに対応するシミュレーション結果。(c)と (d)は $\ell=2$ 、(e)と (f)は $\ell=5$ 、(g)と (h)は、 $\ell=10$ の光渦の照射によって作製された表面レリーフの AFM 画像およびシミュレーション結果。

Watabe らは、スピン角運動量 (SAM s) と低次の軌道角運動量 (OAM ℓ) を持つ光渦をアゾポリマーに照射することで、シングルアームの巻貝状レリーフ、すなわちキラルな表面レリーフを形成することを実験的に証明した[27]。彼らは紫外から可視領域で強い吸収を持つアゾポリマー (Poly-Orange-Tom1) をスピコート法でガラス基板上に成膜し、厚さ $1\ \mu\text{m}$ のアゾポリマーフィルムを作製した。実験では、対物レンズ (NA ~ 0.6) を利用し、横方向および縦方向の電場間の干渉を排除する (近軸近似が成り立つ) 条件で、円偏光光渦をアゾ

ポリマーフィルムに集光照射した。レーザーパワーと照射時間は、それぞれ $600 \mu\text{W}$ および 5 秒とした。

右回りの光渦と右円偏光 $(\ell, s) = (-1, -1)$ を照射した場合、アゾポリマー表面で時計回りの物質移動が生じ、シングルアームのキラルな表面レリーフを形成された。さらに、軌道角運動量およびスピン角運動量の符号を反転させた場合 $(\ell, s) = (1, 1)$ 、反時計回りの形状が得られた (図 3-8)。

一方、2つの角運動量の向きをお互いに逆方向にした場合 $(\ell, s) = (-1, 1)$ では、キラルな構造はできなかった (図 3-9 (a))。また、全角運動量 (TAM J) が同じであっても、2つの角運動量の向きが逆方向に回転する場合 $(\ell, s) = (-3, 1)$ や、軌道角運動量のみを持ちスピン角運動量を持たない場合 $(\ell, s) = (-1, 0)$ 、 $(\ell, s) = (-2, 0)$ では、形状の異なる表面レリーフとなった。

これらの結果は、軌道角運動量がスピン角運動量の助けを借りることでキラルな構造は作られ、2つの角運動量の関係が形成する表面レリーフの構造を決めることが判明した。

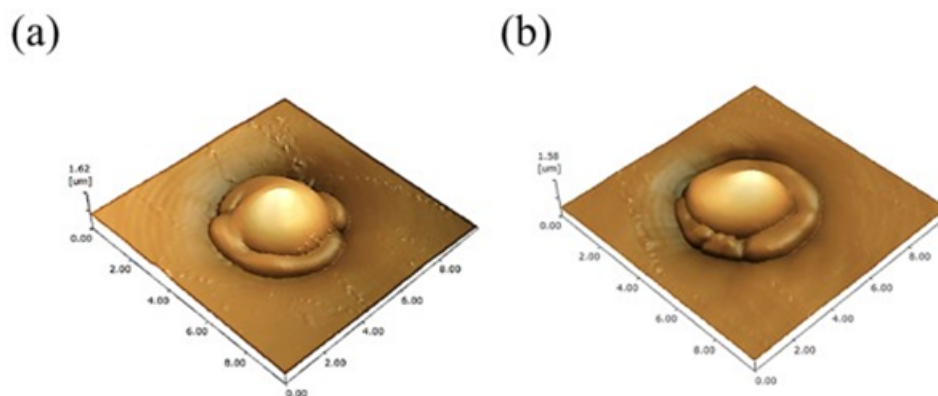


図 3-8 (a) $(\ell, s) = (-1, -1)$ および $(\ell, s) = (1, 1)$ の同じ方向に回転する円偏光の光渦の照射で作られた、反時計回りおよび時計回りにねじれたキラルな表面レリーフ。

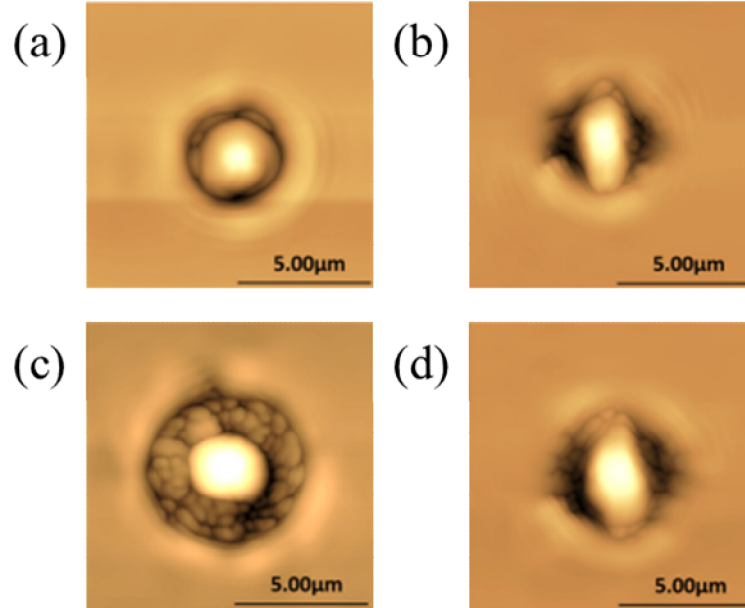


図 3-9 光渦の照射によるアゾポリマーの表面レリーフ形成。OAM と SAM の符号が反転している場合や OAM だけではキラルな構造はできない、OAM が SAM の助けを借りて、アゾポリマーをねじることがわかる。(a) $(\ell, s) = (-1, 1)$ 、(b) $(\ell, s) = (-1, 0)$ 、(c) $(\ell, s) = (-3, 1)$ 、および (d) $(\ell, s) = (-2, 0)$ 。

Barada らは、近軸近似条件下において、等方かつ均質な材料における光輻射力を数値シミュレーションする理論モデルを考案した[28]。このモデルは、任意の軌道角運動量および偏光状態の光渦が均質な材料内で誘導する有効な横方向のエネルギーの流れを解析した。

彼らのモデルでは、誘電体材料における時間平均されたローレンツ力が次の式で表される。

$$\mathbf{F} = \langle \rho_p \mathbf{E} + \mathbf{j}_p \times \mathbf{B} \rangle \quad 3-3$$

ここで、 ρ_p と \mathbf{j}_p は分極電荷密度と分極電流密度を表す。材料は等方かつ均質であると仮定した場合、 $\rho_p = 0$ となり、式 3-3 の最初の項を無視できる（光の勾配力の成分を無視する）。

材料の複素電気感受率 $\chi = \chi_r + i\chi_i$ を用いると、光輻射力 \mathbf{F} は次のようになる。

$$\mathbf{F} = \langle \mathbf{j}_p \times \mathbf{B} \rangle = \langle -i\omega\epsilon_0\chi \mathbf{E} \times \mathbf{B} \rangle = \frac{\omega\epsilon_0}{2} [\chi_r \text{Im}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*) + \chi_i \text{Re}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*)] \quad 3-4$$

次に、入射光が光軸 z に沿って伝播する任意の偏光を持つ光渦とすると、電場の式は次のようになる。

$$\mathbf{E}(r, \phi, z, t) = \mathbf{J} A_\ell(r) \exp(ikz) \exp(i\ell\phi) \exp(-i\omega t) \quad 3-5$$

$$A_\ell(r) = \frac{A_0}{\sqrt{\ell!}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{\omega_0} \right)^{|\ell|} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_0^2}\right) \quad 3-6$$

ここで、 \mathbf{J} は単位ジョーンズベクトル、 $A_\ell(r)$ は光渦の振幅、 ω_0 はビームウエストを示す。

磁束密度 \mathbf{B} はマクスウェル方程式から導かれ、スピン角運動量 (SAM) は $s = 2\text{Im}(J_x J_y^*)$ として定義される。そこから、光輻射力 \mathbf{F} を求めると、以下のように表される。

$$\begin{aligned} \mathbf{F}(r, \phi, z) \propto & \chi_r \left(\frac{\sqrt{1-s^2}}{2} \frac{\partial A_\ell^2}{\partial r} (-\cos(\phi) \cdot \mathbf{e}_x + \sin(\phi) \cdot \mathbf{e}_y) + \left(\frac{1}{2} \frac{\partial A_\ell^2}{\partial r} - \ell s \frac{A_\ell^2}{r} \right) \cdot \mathbf{e}_r \right) \\ & + \chi_i \left(\ell \frac{\sqrt{1-s^2}}{2} \frac{A_\ell^2}{r} (\sin(\phi) \cdot \mathbf{e}_x + \cos(\phi) \cdot \mathbf{e}_y) + \left(\ell \frac{A_\ell^2}{r} - \frac{s}{2} \frac{\partial A_\ell^2}{\partial r} \right) \cdot \mathbf{e}_\phi + 2kA_\ell^2 \cdot \mathbf{e}_z \right) \end{aligned} \quad 3-7$$

ここで、 \mathbf{e}_x 、 \mathbf{e}_y 、 \mathbf{e}_r 、 \mathbf{e}_ϕ 、 \mathbf{e}_z はそれぞれデカルト座標および円筒座標系における単位ベクトルを表し、 \mathbf{k} は波数、 $\chi = \chi_r + i\chi_i$ は材料の複素電気感受率である。

この光輻射力モデルによれば、次のことがわかる。第1項および第2項は、偏光の方向と同じ方向の電場の強度勾配による物質移動を表し、3番目と4番目の項は、光渦のダークコアの内側に向かう引力または外側に向かう斥力を示す。これらの動径方向の光輻射力は、 χ の実数部に比例する。5番目と6番目の項は、 χ の虚数部に比例し、材料にトルクを与えまる光吸収力を表し、7番目と8番目の項は、軌道角運動量 (OAM) によって駆動する時計回りおよび反時計回りの方位角方向の力を意味している。

特に OAM と SAM の符号が同じ場合、動径方向の光輻射力はアゾポリマーを光渦のダークコアに向かって誘導し、物質を方位角方向に回転させる結果、シングルアームのキラル表面レリーフが形成される。一方で、OAM と SAM の符号が逆の場合、動径方向の力も反転し、物質をダークコアに集まるのを妨げる。このような挙動は、光渦の TAM の縮退が破れる原因が、SAM と OAM のカップリング (式 3-7 の ℓs) に起因している。

式3-7に基づく理論解析は、彼らの実証と一致し、キラルな表面レリーフ形成する1つのモデルとなっている (図 3-10)。

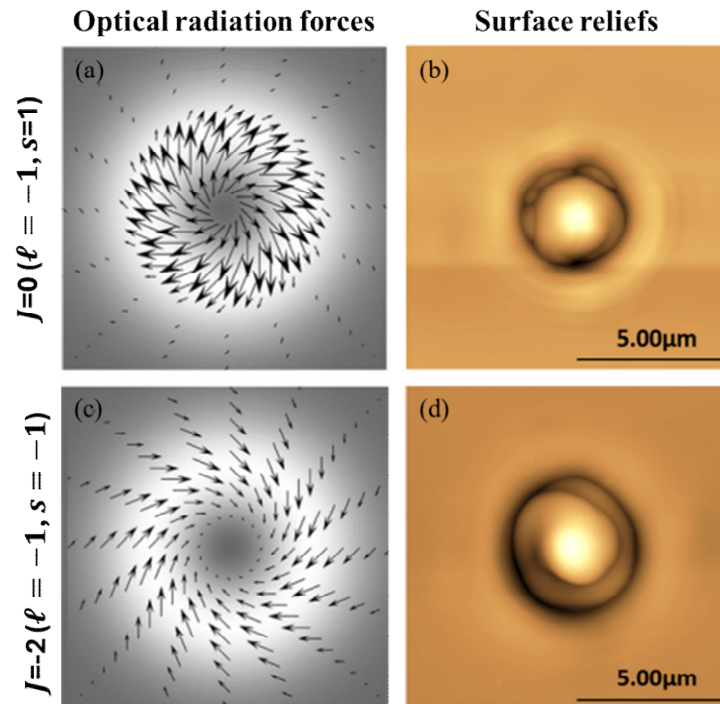


図 3-10 TAM $J=0$ (ℓ, s) = (-1, 1) の(a)光輻射力と(b)形成された表面レリーフ。TAM $J=-2$ (ℓ, s) = (-1, -1) の(c)光輻射力と(d)表面レリーフ。[28]

Masuda らは、SAM-OAM カップリングによるキラル表面レリーフの実験を進展させ、SAM を持つが OAM は持たない円偏光 Gaussian ビームをアゾポリマーフィルムに照射することで、ねじれた凹凸形状の表面レリーフを作り出した[29]。この実験では、Poly-Orange-Tom1 のアゾポリマー薄膜（膜厚 $1\mu\text{m}$ ）を成膜し、対物レンズ（実行 NA ~ 0.29 ）によってフォーカスして照射した。照射光のスポット径は $2.5\mu\text{m}$ で、レーザーパワーは $3\text{kW}/\text{cm}^2$ と設定した。

右円偏光を照射した場合、露光時間 1 秒未満で対称的なやまなり状のレリーフが構築され、2 秒以内にアゾポリマーフィルムが時計回りにねじれ、右回りの螺旋状の表面レリーフとなった（図 3-11(c)）。また、左円偏光を照射した場合、露光時間 2 秒以内に左回りの螺旋状の表面レリーフが作り出された（図 3-11(d)）。

この結果は、光勾配力ではなく光散乱力が主に作用することで説明される（図 3-11(e), (f)）。この研究は、スピン角運動量が軌道角運動量に変換され、光の角運動量が直接的に物質を操作する作用をもたらす事例である。

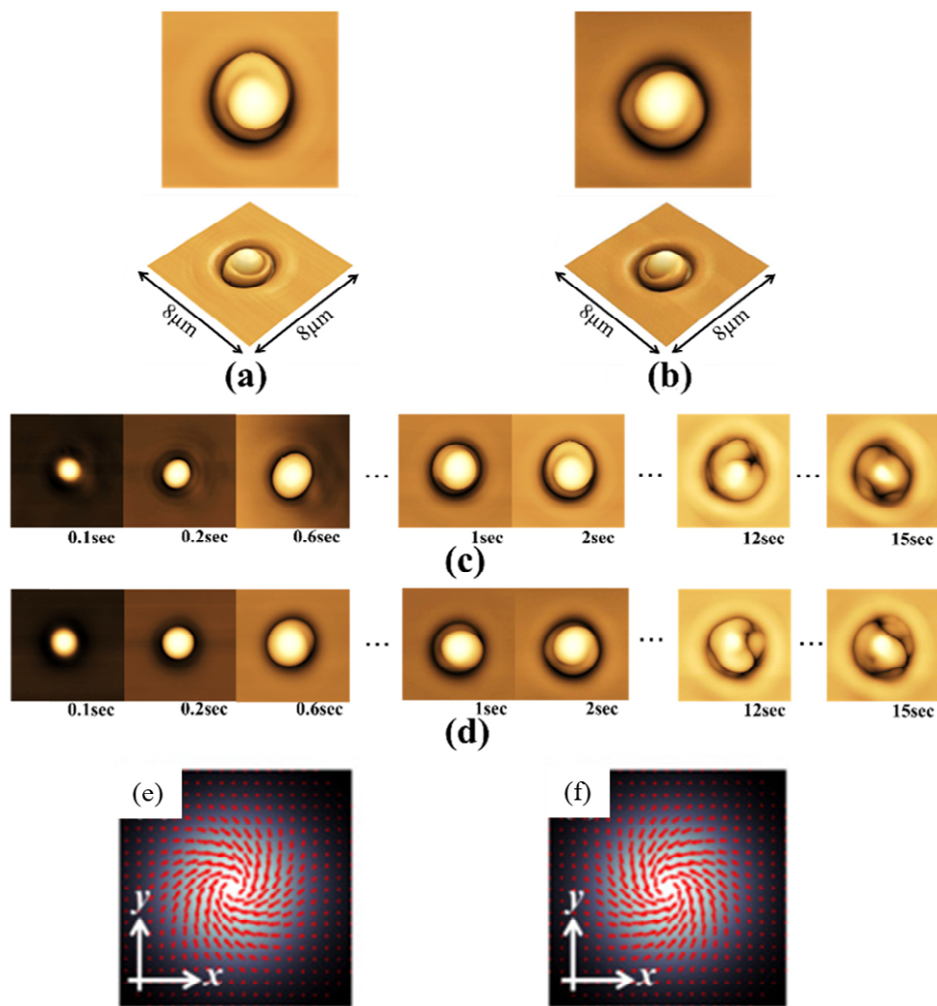


図 3-11 (a) 右円偏光と(b) 左円偏光の Gaussian ビームの照射することで、作られた螺旋状の表面構造の AFM 画像。(c) 時計回りおよび(d) 反時計回りに構造がねじれる経時変化。(e) 右円偏光および(f) 左円偏光の Gauss ビームによって発生する光散乱力の空間分布。

Tomita らは、LG モードの混成モードであるペタルモードを用いることで、複数のアームを持つキラル構造を作り出した [30]。ペタルモードは、ハイブリット Gaussian モードとも呼ばれ、 $\pm l$ 次の LG モードを干渉させることで生成され、方位角方向に $2|l|$ 個の明点が存在する強度プロファイルを持つ。特徴的な点としては、このモード自体は軌道角運動量を持たない。

しかし、円偏光のペタルモードを、ビーム全体を自転させながらアゾポリマーフィルムに集光照射することで、回転方向にねじれた多重螺旋状のキラルな表面レリーフが形成された。

これは、入射するペタルビームの回転方向、軌道角運動量、および初期位相をコントロールすることによって、キラルな表面レリーフの多重螺旋の自由度を操作できるということである。

さらにポインティングベクトルの解析により、このレリーフ構造は、ペタルビームが持つ横方向の光散乱力が主に作用することで作り出されることが判明した。また、この過程では、ビームの強度分布の回転による外因的 OAM と円偏光 2 由来するスピン角運動量との相互干渉が重要な役割を果たし、光の持つ異なる角運動量成分の干渉が物質の動的挙動を制御する新しい手法となりうることを考察された。

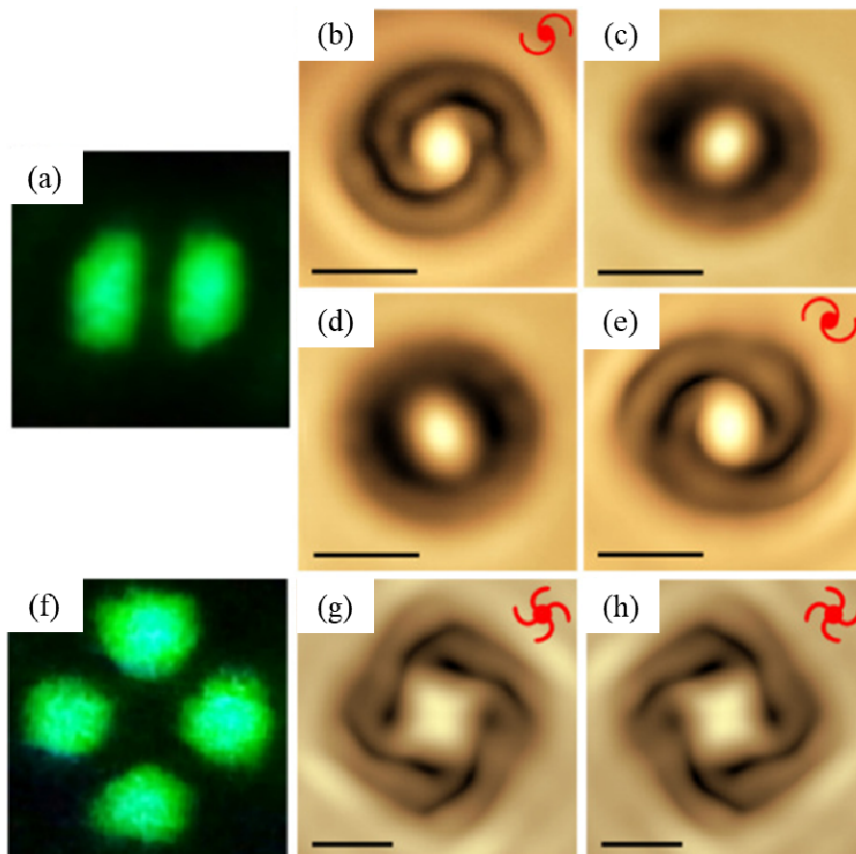


図 3-12 ペタルビーム照射時によるアゾポリマーの多重螺旋構造。SAM $s = 1$ （左円偏光）および $s = -1$ （右円偏光）のペタルビームの照射によって作られた表面レリーフの AFM 画像。(a) 2つの明点を持つペタルビームの空間プロファイル。(b)、(c) 反時計回り、(d)、(e) 時計回りに回転するペタルビームを使用して作られた表面レリーフ構造の AFM 画像。(b)、(d) $s = 1$ および (c)、(e) $s = -1$ のビームで作られた表面レリーフ。(f) 4つの明点を持つペタルビームの空間プロファイル、(g) 反時計回り渦状表面レリーフ構造、(h) 時計回り表面レリーフ構造。赤線はペタルビームの回転方向、黒線は長さ $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを示す。

3.4. 参考文献

1. A. Natansohn, P. Rochon, J. Gosselin, and S. Xie, "Azo polymers for reversible optical storage. 1. Poly[4'-[[2-(acryloyloxy)ethyl]ethylamino]-4-nitroazobenzene]," *Macromolecules* 25(8), 2268–2273 (1992).
2. R. Hagen and T. Bieringer, "Photoaddressable Polymers for Optical Data Storage," *Advanced Materials* 13(23), 1805–1810 (2001).
3. A. Priimagi and A. Shevchenko, "Azopolymer-based micro- and nanopatterning for photonic applications," *J Polym Sci B Polym Phys* 52(3), 163–182 (2014).
4. S. L. Oscurato, M. Salvatore, P. Maddalena, and A. Ambrosio, "From nanoscopic to macroscopic photo-driven motion in azobenzene-containing materials," *Nanophotonics* 7(8), 1387–1422 (2018).
5. A. G.-S. Chen and D. J. Brady, "Surface-stabilized holography in an azo-dye-doped liquid crystal," *Opt Lett* 17(17), 1231 (1992).
6. A. Shishido, "Rewritable holograms based on azobenzene-containing liquid-crystalline polymers," *Polym J* 42(7), 525–533 (2010).
7. L. Nedelchev, G. Mateev, L. Nikolova, D. Nazarova, B. Ivanov, V. Strijkova, E. Stoykova, K. Choi, and J. Park, "In-line and off-axis polarization-selective holographic lenses recorded in azopolymer thin films via polarization holography and polarization multiplexing," *Appl Opt* 62(10), D1 (2023).
8. N. K. Viswanathan, D. Y. Kim, S. Bian, J. Williams, W. Liu, L. Li, L. Samuelson, J. Kumar, and S. K. Tripathy, "Surface relief structures on azo polymer films," *J Mater Chem* 9(9), 1941–1955 (1999).
9. A. Priimagi, K. Lindfors, M. Kaivola, and P. Rochon, "Efficient Surface-Relief Gratings in Hydrogen-Bonded Polymer–Azobenzene Complexes," *ACS Appl Mater Interfaces* 1(6), 1183–1189 (2009).
10. Z. Sekkat, "Optical tweezing by photomigration," *Appl Opt* 55(2), 259 (2016).
11. Z. Sekkat, J. Wood, and W. Knoll, "Reorientation Mechanism of Azobenzenes within the Trans \rightarrow Cis Photoisomerization," *J Phys Chem* 99(47), 17226–17234 (1995).
12. Z. Sekkat and S. Kawata, "Laser nanofabrication in photoresists and azopolymers," *Laser Photon Rev* 8(1), 1–26 (2014).
13. P. Rochon, E. Batalla, and A. Natansohn, "Optically induced surface gratings on azoaromatic polymer films," *Appl Phys Lett* 66(2), 136–138 (1995).
14. C. J. Barrett, A. L. Natansohn, and P. L. Rochon, "Mechanism of Optically Inscribed High-Efficiency Diffraction Gratings in Azo Polymer Films," *J Phys Chem* 100(21), 8836–8842 (1996).
15. S. Bian, L. Li, J. Kumar, D. Y. Kim, J. Williams, and S. K. Tripathy, "Single laser beam-induced surface deformation on azobenzene polymer films," *Appl Phys Lett* 73(13), 1817–1819 (1998).
16. Y. Gilbert, R. Bachelot, P. Royer, A. Bouhelier, G. P. Wiederrecht, and L. Novotny, "Longitudinal anisotropy of the photoinduced molecular migration in azobenzene polymer films," *Opt Lett* 31(5), 613 (2006).
17. H. Ishitobi, I. Nakamura, T. Kobayashi, N. Hayazawa, Z. Sekkat, S. Kawata, and Y. Inouye, "Nanomovement of Azo Polymers Induced by Longitudinal Fields," *ACS Photonics* 1(3), 190–197 (2014).
18. K. Yang, F.-Y. Chan, H. Watanabe, S. Yoshioka, Y. Inouye, T. Uchihashi, H. Ishitobi, P. Verma, and T. Umakoshi, "*In Situ* Real-Time Observation of Photoinduced Nanoscale Azo-Polymer Motions Using High-Speed Atomic Force Microscopy Combined with an Inverted Optical Microscope," *Nano Lett* 24(9), 2805–2811 (2024).
19. J. Kumar, L. Li, X. L. Jiang, D.-Y. Kim, T. S. Lee, and S. Tripathy, "Gradient force: The mechanism for surface relief grating formation in azobenzene functionalized polymers," *Appl Phys Lett* 72(17), 2096–2098 (1998).

20. C. J. Barrett, P. L. Rochon, and A. L. Natansohn, "Model of laser-driven mass transport in thin films of dye-functionalized polymers," *J Chem Phys* 109(4), 1505–1516 (1998).
21. P. Lefin, C. Fiorini, and J.-M. Nunzi, "Anisotropy of the photoinduced translation diffusion of azo-dyes," *Opt Mater (Amst)* 9(1–4), 323–328 (1998).
22. T. G. Pedersen, P. M. Johansen, N. C. R. Holme, P. S. Ramanujam, and S. Hvilsted, "Mean-Field Theory of Photoinduced Formation of Surface Reliefs in Side-Chain Azobenzene Polymers," *Phys Rev Lett* 80(1), 89–92 (1998).
23. K. Sumaru, T. Yamanaka, T. Fukuda, and H. Matsuda, "Photoinduced surface relief gratings on azopolymer films: Analysis by a fluid mechanics model," *Appl Phys Lett* 75(13), 1878–1880 (1999).
24. M. L. Juan, J. Plain, R. Bachelot, P. Royer, S. K. Gray, and G. P. Wiederrecht, "Stochastic model for photoinduced surface relief grating formation through molecular transport in polymer films," *Appl Phys Lett* 93(15), (2008).
25. A. Ambrosio, L. Marrucci, F. Borbone, A. Roviello, and P. Maddalena, "Light-induced spiral mass transport in azo-polymer films under vortex-beam illumination," *Nat Commun* 3(1), 989 (2012).
26. A. Ambrosio, P. Maddalena, and L. Marrucci, "Molecular Model for Light-Driven Spiral Mass Transport in Azopolymer Films," *Phys Rev Lett* 110(14), 146102 (2013).
27. M. Watabe, G. Juman, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Light induced conch-shaped relief in an azo-polymer film," *Sci Rep* 4(1), 04281 (2014).
28. D. Barada, G. Juman, I. Yoshida, K. Miyamoto, S. Kawata, S. Ohno, and T. Omatsu, "Constructive spin-orbital angular momentum coupling can twist materials to create spiral structures in optical vortex illumination," *Appl Phys Lett* 108(5), (2016).
29. K. Masuda, S. Nakano, D. Barada, M. Kumakura, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Azo-polymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam," *Opt Express* 25(11), 12499–12507 (2017).
30. A. Tomita, A. Vallés, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Creation of galaxy-shaped vortex relief structures in azo-polymers with petal-like beams," *Opt Express* 31(17), 27868 (2023).

4. デュアルパス偏光干渉計による光の準粒子生成

4.1. 研究背景

2章で説明したように、光スキルミオンや光ホプフィオンといった光の準粒子は、直交する円偏光を持つ異なる次数の LG モードのコヒーレントな重ね合わせによって生成される。これまで、自由空間を伝搬する光の準粒子は、複雑なバルクオプティクスや複数の SLM を組み合わせた干渉計構成（例えば、マッハゼンダー干渉計やサニャック干渉計）を構築することで生成されてきた。

しかし、従来の方法にはいくつかの課題がある。まず、光学系の構築が複雑で、実験装置の設計と調整に技術が必要となる。また、環境擾乱に対する脆弱性や、生成する光の準粒子の品質に影響を受けやすい。さらに、バルクオプティクスを用いた構成では、生成する光の準粒子が固定されてしまう。

それらの課題を克服するために、本研究においては単一の SLM によるデュアルパス偏光干渉構成を提案する。この新しいセットアップにより、高品質かつ堅牢で、さらに多様な光スキルミオンや光ホプフィオンの生成が実現できる。本章は、このシステムの設計とその特徴、実験結果について詳しく説明する。

4.2. 実験方法

光の準粒子を生成するデュアルパス偏光干渉構成を用いた実験光学系は図 4-1 に示す。この光学系では、波長 532 nm の連続波 (CW) グリーンレーザーを使用し、反射型空間光変調器 (SLM) に単一光路で 2 度入射させることで、x 偏光および y 偏光に対して異なる波面変調を与える。その後、1/4 波長板 (QWP) によって直交する円偏光に変換し、光スキルミオンおよび光ホプフィオンを生成する[1,2]。

レーザー光の横方向 (x-y 平面) における複素電場の振幅は、 $E_{in}(x, y)$ と表される。この入力ビームは、ガウシアンビームと仮定する。この入力ビームは偏光子を通過し、x 軸に対

して 45 度傾いた直線偏光が得られる。その結果、得られるビーム E_p はジョーンズベクトルで以下のように表される。

$$E_p = \frac{E_{in}}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \quad 4-1$$

ビームの波面は、反射型 SLM (X10468-04, Hamamatsu Japan) を利用することで、波面変調される。SLM の遅軸を x 軸と平行に設置した場合、ビームの x 偏光成分の位相のみが変調され、y 偏光成分は変調されない。

SLM への 1 度目の入射時、ビームの x 偏光成分に位相分布 $\alpha(x, y)$ をエンコードされる。結果として得られるジョーンズベクトル E_1 は次のように表される。

$$E_1 = \begin{bmatrix} e^{-i\alpha(x,y)} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} E_p = \frac{E_{in}}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} e^{-i\alpha(x,y)} \\ 1 \end{bmatrix} \quad 4-2$$

$\alpha(x, y)$ は 0 から 2π の範囲で方位角方向に変化する位相分布を表し、次式になる。

$$\alpha(x, y) = \ell \tan^{-1} \left(\frac{y}{x} \right) \text{sign} \left[L_p^{|\ell|} \left(\frac{2(x^2 + y^2)}{\omega_0^2} \right) \right] \quad 4-3$$

ここで sign は符号関数、 $L_p^{|\ell|}$ はラゲール多項式であり、方位角次数 ℓ と動径次数 p を表す。この位相変量により、波面は螺旋状に変調され、LG モード ($LG_{0,\ell}$) に変調される。

変調されたビームは反射ミラー (M1 および M2) と 1/2 波長板 (HWP) を用いることにより、偏光を 90° 回転させて (変調された x 偏光と未変調の y 偏光を入れ替えて)、再び同じ SLM に入射される。HWP の軸は x 軸に対して 45° 傾けている。HWP によって変調された光のジョーンズベクトル E_h は次のように表される。

$$E_h = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} E_1 = \frac{E_{in}}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ e^{i\alpha} \end{bmatrix} \quad 4-4$$

ここは、LG モードの波面の螺旋方向は反射により反転し、軌道角運動量 ℓ の符号も反転する。数学的には、 $E_h^*(x, y)$ は、軌道角運動量が反転した $E_h(x, y)$ の複素共役を表す。2 度目の SLM への入射時、位相分布 $\beta(x, y)$ が、未変調の x 偏光にエンコードされる。結果として得られるビームのジョーンズベクトル E_2 は次のように表される。

$$E_2 = \begin{bmatrix} e^{-i\beta(x,y)} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} E_h^* = \frac{E_{in}}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} e^{-i\beta} \\ e^{i\alpha} \end{bmatrix} \quad 4-5$$

ここで、 $\beta(x,y)$ は光スキルミオン生成の場合は Gaussian モード ($LG_{0,0}$) に、光ホプフィオン生成の場合は Gaussian モードと動径次数を持つ LG モード ($LG_{0,0} + LG_{1,0}$) に変調する。

最後に、出力ビームは、1/4 波長板 (QWP) を通過し、変調済みの x 偏光と y 偏光が直交する円偏光に変換される。その結果、QWP によって変調された光のジョーンズベクトル E_{out} は、次のように表される。

$$E_{out} = \begin{bmatrix} 1-i & 1+i \\ 1+i & 1-i \end{bmatrix} E_2 \quad 4-6$$

これにより、直交する円偏光の LG モードがコヒーレントに重ね合わされ、光スキルミオンおよび光ホプフィオンが生成される。

本セットアップは、シングルパスのデュアルパス偏光干渉計により、振動や乱気流の影響を軽減される。また、SLM に表示する位相パターンを調整だけで、光スキルミオンや光ホプフィオンに加え、ベクトルビームなどの多様な構造化された光を柔軟に作り出すことが本セットアップの特徴である。

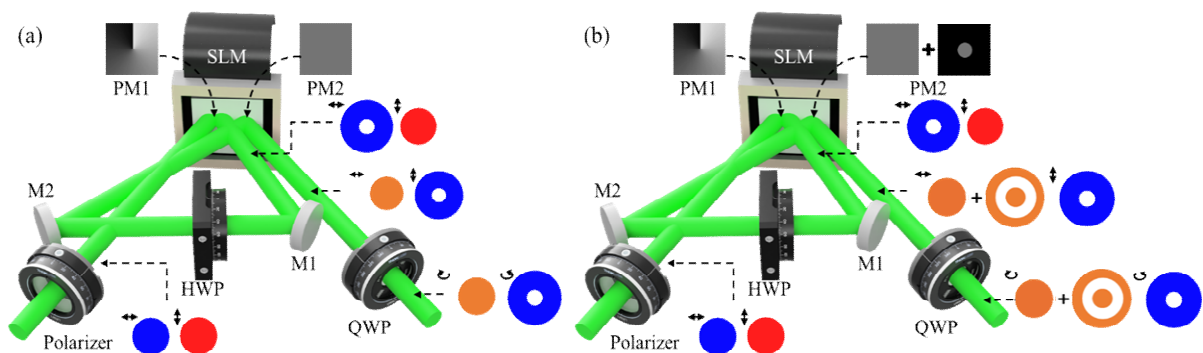


図 4-1 (a)光スキルミオンおよび(b)光ホプフィオンの生成する実験セットアップの概略図。挿入図は、各位置での x 偏光と y 偏光の各モードの強度分布を示している。M1 および M2: 全反射ミラー、HWP: 半波長板、PM1 および PM2: 位相マスク、SLM: 空間位相変調器、QWP: 1/4 波長板。

4.3. 実験結果と考察

実験では、生成した光の準粒子の各偏光成分を測定するため、シリコン CMOS カメラ (ピクセル: 1928 × 1448、空間分解能: 3.69 μm 、ダイナミックレンジ: 72 dB) を使用した。

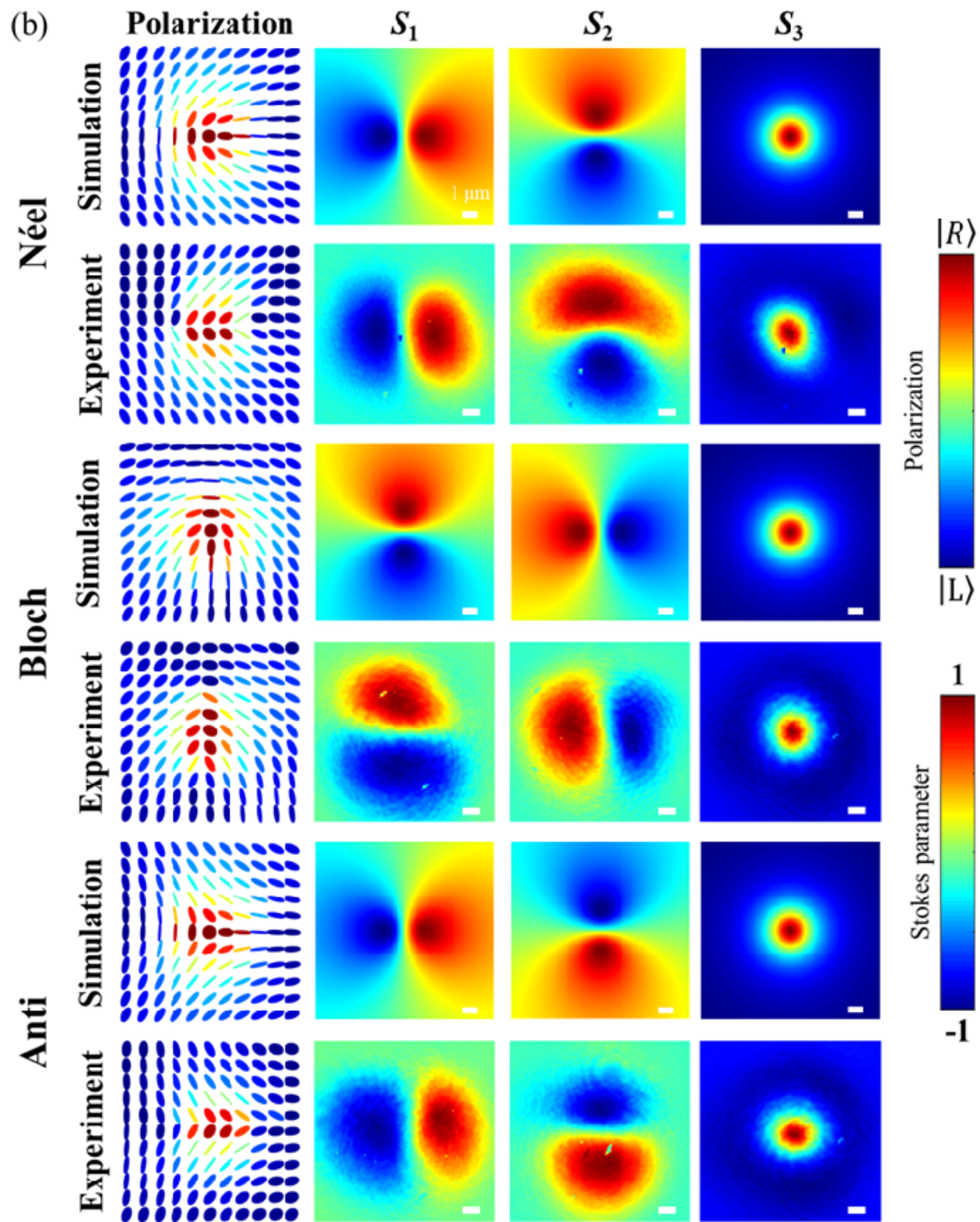
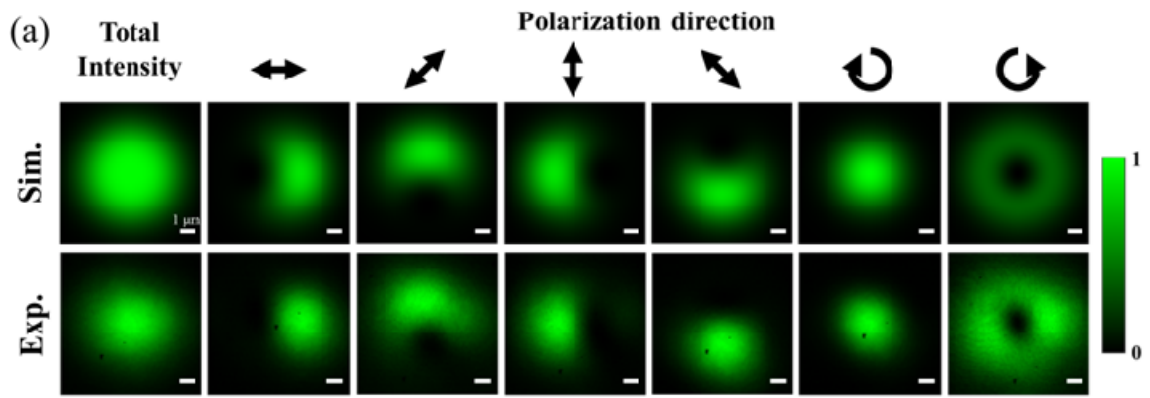
直線偏光子（消光比: 2000:1）およびゼロ次 1/4 波長板を組み合わせ、ストークスペクトルを観測した。また、ビームのモードフィールド径は、国際標準化機構（ISO）の標準である 4 シグマ法を使用して測定した。

Gaussian モードと 1 次の LG モード ($LG_{0,\pm 1}$) のコヒーレントな重ね合わせによって生成された、Néel 型、Bloch 型、および Anti 型の 1 次の光スキルミオンの強度分布とストークスパラメータの測定結果を図 4-2 に示す。図 4-2 (a) では、回転する直線偏光子を使用して解析した結果、半月形状の強度分布を持つビームが反時計回りに回転する様子が観察された。

測定したストークスペクトル（図 4-2 (b)）から求められたスキルミオン数は、それぞれ 0.98（Néel 型）、0.99（Bloch 型）、-0.99（Anti 型）であり、理想値の ± 1 に非常に近い値を示した。これにより、本セットアップによって高純度の光スキルミオンが生成されたことが確認された。

さらに、SLM に映し出している位相パターンを Gaussian モードと 2 次の LG モード ($LG_{0,\pm 2}$) に変調されるように設定することで、2 次の光スキルミオンも生成することも可能である（図 4-2(c)）。測定結果では、それぞれの 2 次の光スキルミオンにおいても 1.98（Néel 型）、1.99（Bloch 型）、-1.98（Anti 型）のスキルミオン数を持ち、理論値の ± 2 に近い値を示した。これにより、高品質な 2 次の光スキルミオンの生成が確認された。

測定されたモードフィールド半径の誤差は通常約 2-3% であり、推定されたスキルミオン数も 4-5% の誤差が含まれることが予想される。しかし、SLM と位相マスク間の位相補正を行い、Gaussian モードと LG モードの混合比を調整することで、生成する光の準粒子のクオリティを向上させることも見込まれる。



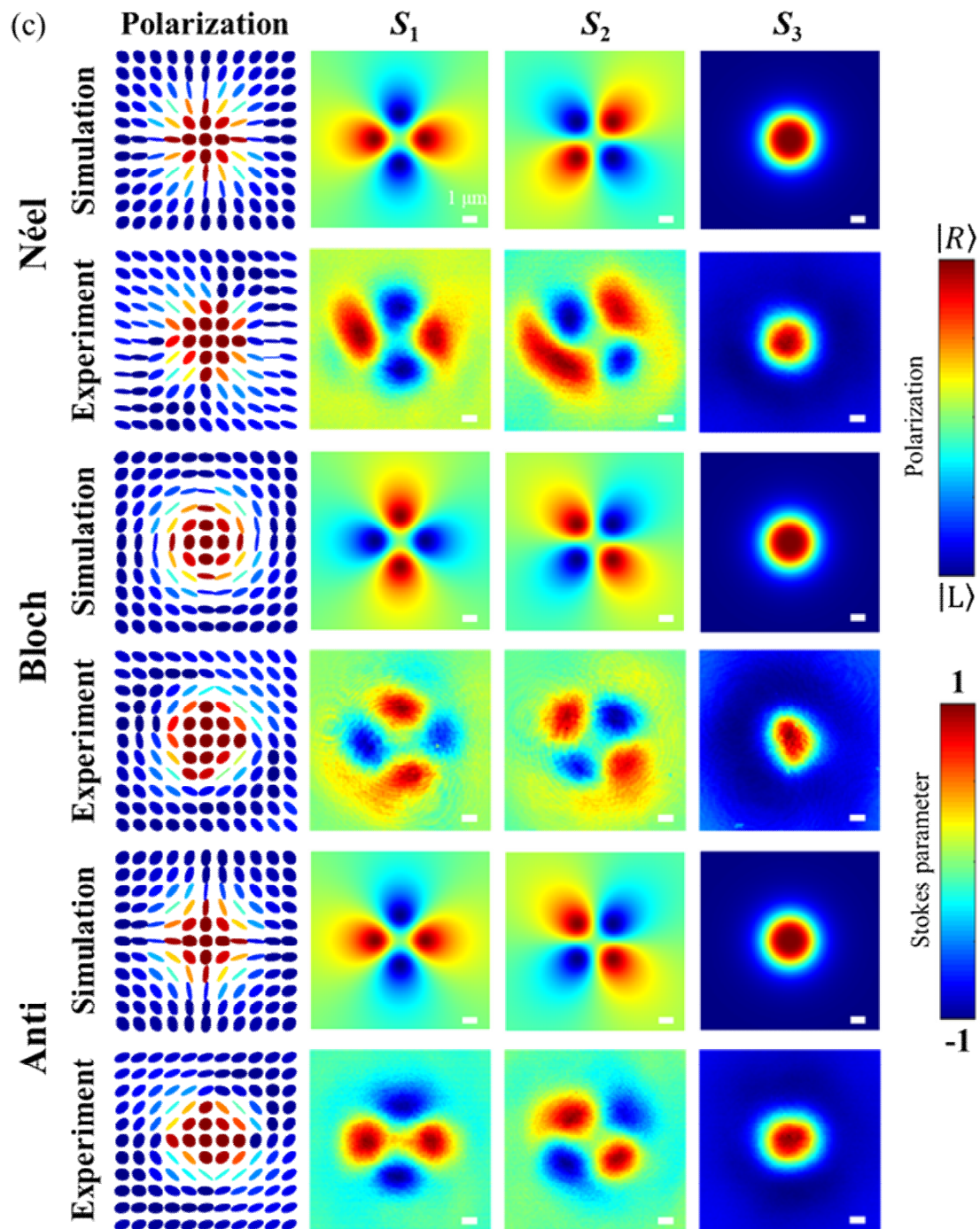


図 4-2 (a)1 次の光スキルミオン (Néel 型) の各偏光 (直線偏光および円偏光) 成分の強度分布のシミュレーション値(上)と測定値(下)。黒矢印は偏光状態を表す。(b), (c) 生成された 1 次および 2 次の光スキルミオンのシミュレーション値(上)と実験値(下)の偏光分布とストークスペクトル(S_1, S_2, S_3)の空間プロファイル。偏光状態はジェットカラーマップで示されており、赤は右円偏光、青は左円偏光を表現している。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを表す。

さらに、実験の結果、ビームの伝搬においても、光スキルミオンのトポロジカルな偏光構造が保存され、偏光分布が維持されることが確認された。一方で、ストークスペクトル S_1 お

よび S_2 は、グイ位相のモード分散 $\xi(z) \left(= \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) \right)$ によって、ビーム伝搬中に方位角方向に回転する[3]。

図 4-3 には、共焦点範囲内の Néel 型の光スキルミオンのストークパラメータのシミュレーション結果（左）および観測された実験結果（右）を表している。実験では、ストークスベクトルの回転挙動が類似していることが明らかになった。

さらに、長時間観測（1時間以上）においても光スキルミオンの偏光分布は、安定しており、光学系や環境擾乱の影響に対する堅牢性を持っていた。この安定性は、デュアルパス偏光干渉計の構成による振動や外乱の抑制によるものである。

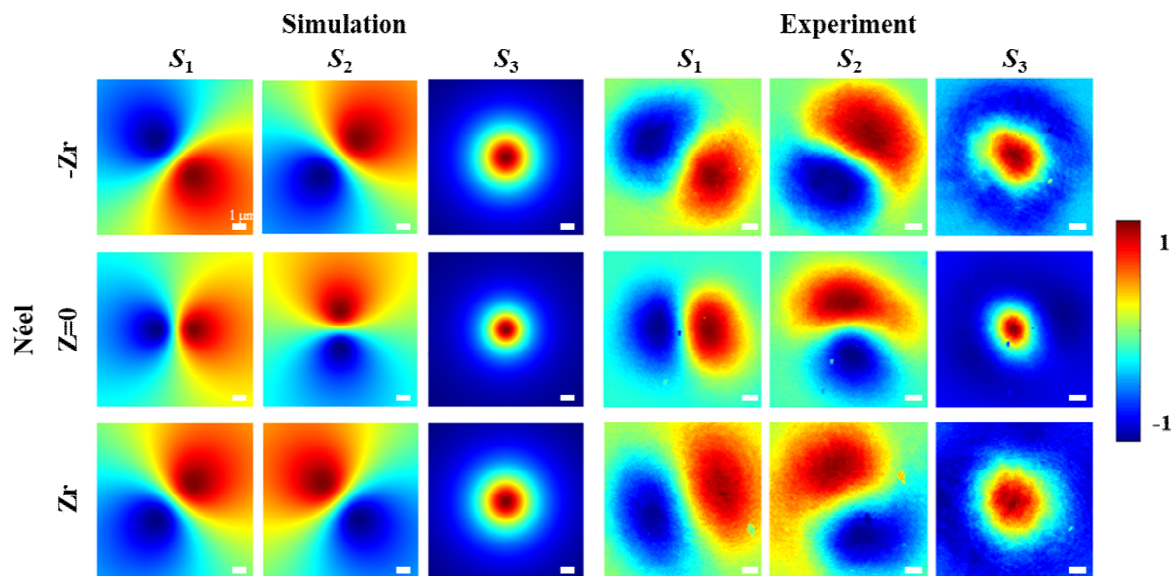


図 4-3 $z = -z_R, 0, z_R$ における共焦点範囲内の Néel 型の光スキルミオンのシミュレーション値(左)および実測値(右)のストークスベクトル。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールバーを表す。

本セットアップは、PM2の位相マスクを Gaussian モードと動径 LG モード ($LG_{1,0}$) 変更することで、光ホプフィオンの生成が可能である (図 4-1 (b))。この場合、右円偏光の Gaussian モードおよび動径 LG モード ($LG_{0,0} + LG_{1,0}$) と左円偏光の方位角 LG モード ($LG_{0,\pm 1}$) のコヒーレントな重ね合わせが用いられる。生成された光ホプフィオンの強度分布とストークスパラメータの測定結果を図 4-4 に示す。

Néel型の光ホプフィオンは、回転直線偏光子を用いて各偏光成分の強度プロファイルを解析した結果、ビームの内側と外側で強度分布の入れ子構造を形成していることが確認された。さらに、偏光子の回転に合わせて、リング状の強度分布が反時計回りに回転するようすが確認され、シミュレーション結果と整合性があることが明らかになった。

発生した光ホプフィオンの偏光分布は、ビームの外側と内側にそれぞれ2つの「レモン型」の偏光分布の入れ子構造を保持し、実験値とシミュレーション値において優れた相関を持ち、高精度な光ホプフィオンの生成に成功していることを示している。

LGモードの軌道角運動量の符号を反転させると、Anti型の光ホプフィオンが形成される。Anti型の光ホプフィオンは、「星型」の偏光分布を持つ偏光分布をビームの外側と内側にそれぞれ持つ入れ子構造を形作られており、生成に成功していることがわかる。

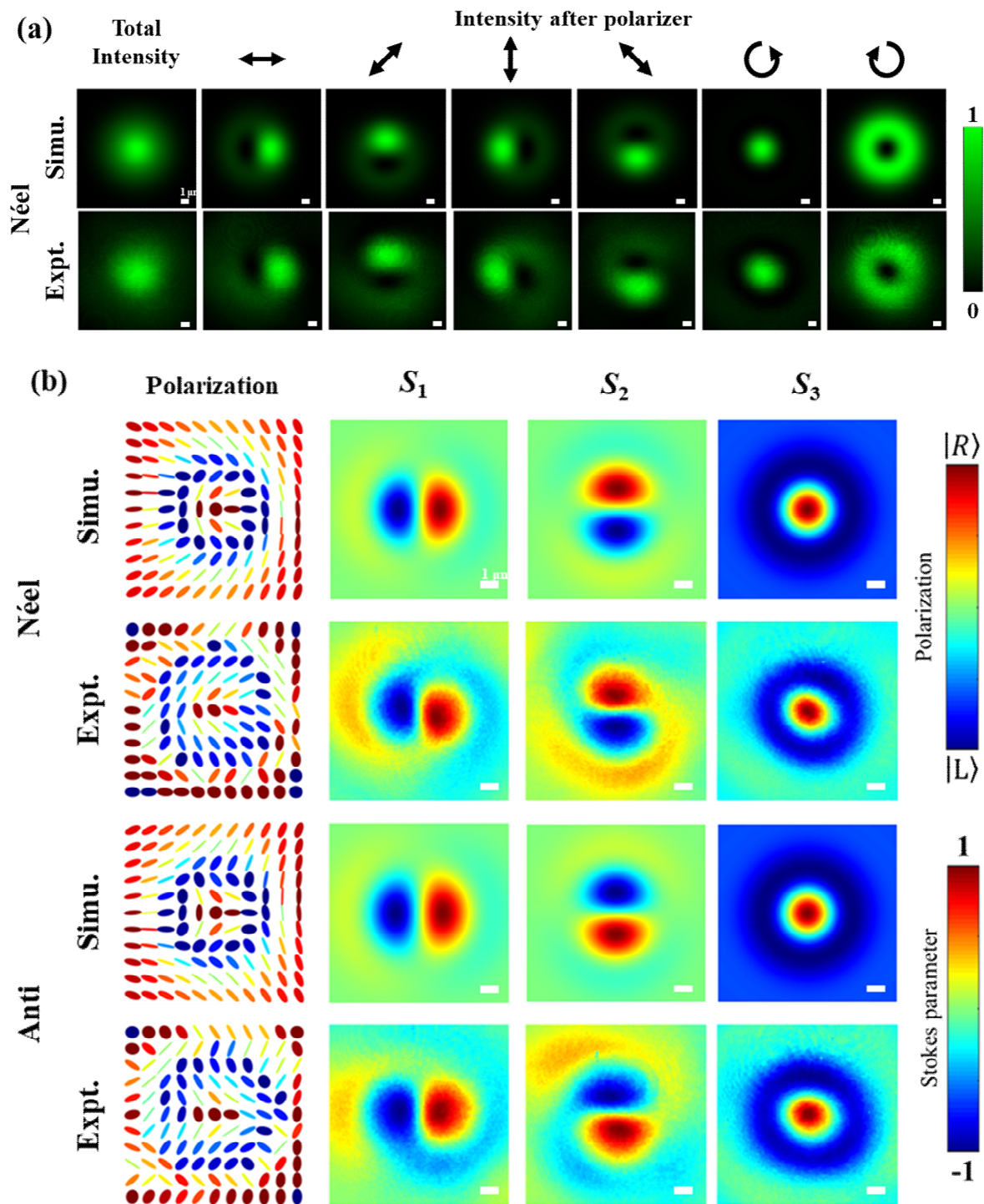


図 4-4 (a) Néel 型の光ホプフィオンの直線偏光および円偏光成分の強度分布のシミュレーション値(上)と実験値(下)。黒矢印は偏光状態を表す。(b) 生成された光ホプフィオンのシミュレーション値(上)と実験値(下)の偏光分布とストークスペクトル(S_1, S_2, S_3)の空間プロファイル。偏光状態はジェットカラーマップで示されており、赤は右円偏光、青が左円偏光を指し示す。白線は 1 μm のスケールバーを表す。

本セットアップにおいて、直交した円偏光を持つ $LG_{0,\pm 1}$ と $LG_{0,\mp 1}$ をコヒーレントに重ね合わせることで、ラジアル偏光、アジマス偏光、アンチボルテックス偏光のベクトルビームの測定結果を図 4-5 に示す[4]。偏光分布と各偏光に対する強度分布の測定結果は、シミュレーション値と実験値で非常に高い一致を示した。このことから、本セットアップによってベクトルビームの生成を行えることが証明された。

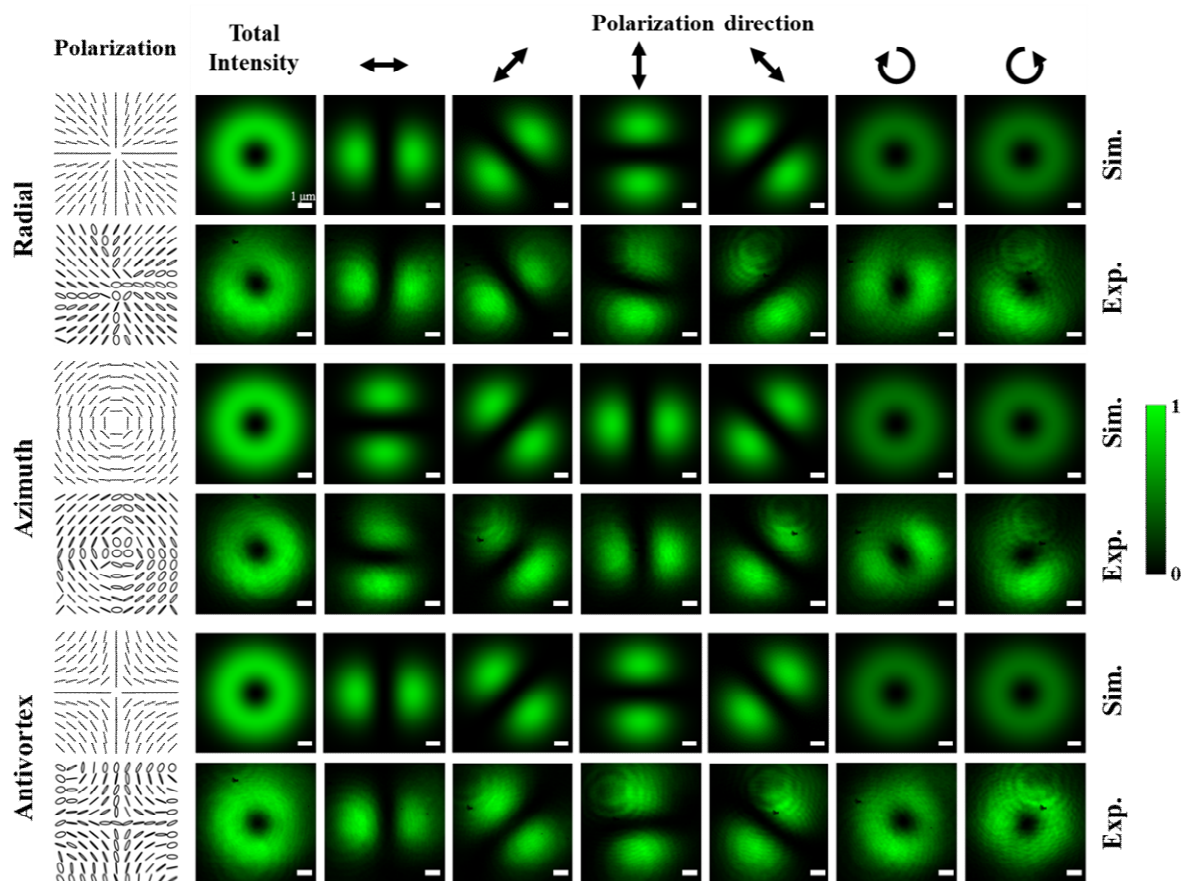


図 4-5 ベクトルビームの各偏光（直線偏光と円偏光）成分の強度分布のシミュレーション値(上)と実験値(下)。上からラジアル偏光、アジマス偏光、およびアンチボルテックス偏光の結果を示す。

これらの結果は、高純度の光スキルミオンおよび光ホプフィオンを生成することが確認された。また、SLM 上によって高次の LG モードモードを作り出すことで、より高次の光の準粒子やベクトルビームの生成が可能である。

一方、今回の結果では、ビームの強度分布と形状のわずかな非対称性が観測された。この原因として、光学セットアップのアライメントのずれ、SLMの位相応答エラーやバックプレーンの変形、SLMへの光の入射角度の影響が考えられる。

今回の実験では、SLMのバックプレーンの変形と空間的に変化する位相応答誤差に対する補正マスクは適用していない。また、SLMの位相変調のみを行い、振幅変調を適用しておらず、LGモードの生成時のモード純度が低下する要因になったと予想される。このような要因を改良すれば、ビーム品質をさらに向上させる余地があると考えられる。

4.4. 結論

本章では、単一のSLMを用いた単一光路のデュアルパス偏光干渉計を構築し、堅牢で多様な光の準粒子を生成することに成功した。本手法は、従来のバルクオプティクスや複雑な干渉構成を必要とせず、高品質な光の準粒子を簡便に生成することが可能である。

ストークスパラメータや偏光分布の解析、およびスキルミオン数の算出により、1次および2次のNéel型、Bloch型、およびAnti型の光スキルミオン、さらに光ホプフィオンを柔軟に作り出すことを実証した。また、直交する円偏光の±1次のLGモードを重ね合わせることで、ラジアル偏光、アジマス偏光、アンチボルテックス偏光といった多様なベクトルビームの生成にも成功し、シミュレーションと実験結果がよく一致することが明らかになった。

さらにこのセットアップは、SLMに映し出す位相パターンを調整するだけで、様々なStructured lightの生成が可能であり、異なる次数を持つLGモードを空間的かつ時間的に簡単にコヒーレントに重ね合わせることができる。この柔軟性により、本セットアップは連続光だけでなく、パルス光源にも対応可能であり、幅広い光学実験に用いることができる。

これらの結果は、光の準粒子やベクトルビームを活用したデバイスの開発や新しい物質操作技術の発展に貢献できると推測される。

4.5. 参考文献

1. P. Kumar, A. S. Rao, and T. Omatsu, "Generation of V-point polarization singularity using single phase encoding with a spatial light modulator," *Sci Rep* 13(1), 315 (2023).
2. R. Tamura, P. Kumar, A. S. Rao, K. Tsuda, F. Getzlaff, K. Miyamoto, N. M. Litchinitser, and T. Omatsu, "Direct imprint of optical skyrmions in azopolymers as photoinduced relief structures," *APL Photonics* 9(4), (2024).
3. A. M. Beckley, T. G. Brown, and M. A. Alonso, "Full Poincaré beams," *Opt Express* 18(10), 10777–10785 (2010).
4. P. Kumar, N. K. Nishchal, T. Omatsu, and A. S. Rao, "Self-referenced interferometry for single-shot detection of vector-vortex beams," *Sci Rep* 12(1), 17253 (2022).

5. 光スキルミオンによる表面レリーフ形成

5.1. 研究背景

光スキルミオンの研究は近年急速に発展しており、多くの研究がその偏光解析や生成技術に焦点を当てている。一方で、光スキルミオンは物質中に渦構造を生成・消去・操作できる可能性を秘めているが、光スキルミオンと物質の相互作用に関する報告例はほとんどなく、光の準粒子が物質にもたらす作用は解明されていない。

本章では、その物質操作の可能性を探求するために、偏光感受性を有するアゾポリマーをモデル物質とした実験結果を報告する。この研究では、光スキルミオンを照射することによってアゾポリマーの表面レリーフを作り出し、その偏光の渦構造を物質に転写するデモンストレーションに取り組んだ。また、光スキルミオンの近軸近似における光散乱力を数値シミュレーションによりその表面レリーフの形成メカニズムを証明した結果についても合わせて記述する。

5.2. 実験方法

本実験では、アゾポリマー poly-orange tom-1（モノマー重量：484 g/mol、分子量：約 190,000 g/mol、重合度：約 400）を使用した。このアゾポリマーは、300～550 nm の波長領域で強い吸収を示し、その化学構造と吸収特性を示す（図 5-1）。アゾポリマーの 11 wt% のシクロヘキサノン溶液（富士フイルム和光純薬社）をガラス基板（松浪スライドガラス S 7 2 1 3）に滴下し、スピコート法を用いて薄膜を形成した。スピコート条件は、初期回転速度 2500 rpm を 10 秒間で回転後に、4000 rpm を 60 秒間回転させた。その後、形成した薄膜を空气中で 100°C にて 2 時間アニール処理し、厚さ約 1 μm の均一なアゾポリマー薄膜を成膜した。

照射時の条件は、実効 NA が 0.2 の対物レンズを使用し、直径 7～10 μm のビーム径でアゾポリマーフィルム表面に集光照射した。図 5-2 に示すようにアゾポリマーフィルムは 3 軸ス

ステージに固定し、位置調整を行えるように設置した。レーザーはCWレーザー（波長 532 nm）を使用し、レーザーパワーは 50 μW 、露光時間は 15~60 秒として表面レリーフを形成した。

作製された表面レリーフは、原子間力顕微鏡（AFM：SHIMADZU SPM-9700）を用いて観察した。AFMの空間分解能は、XY方向で 0.2 nm、Z方向で 0.01 nm である。

なの、この対物レンズの実行 NA は 0.5 以下としているため、スピン軌道相互作用や縦電場（3次元ベクトル場）の影響は非常に小さいと考えられる。

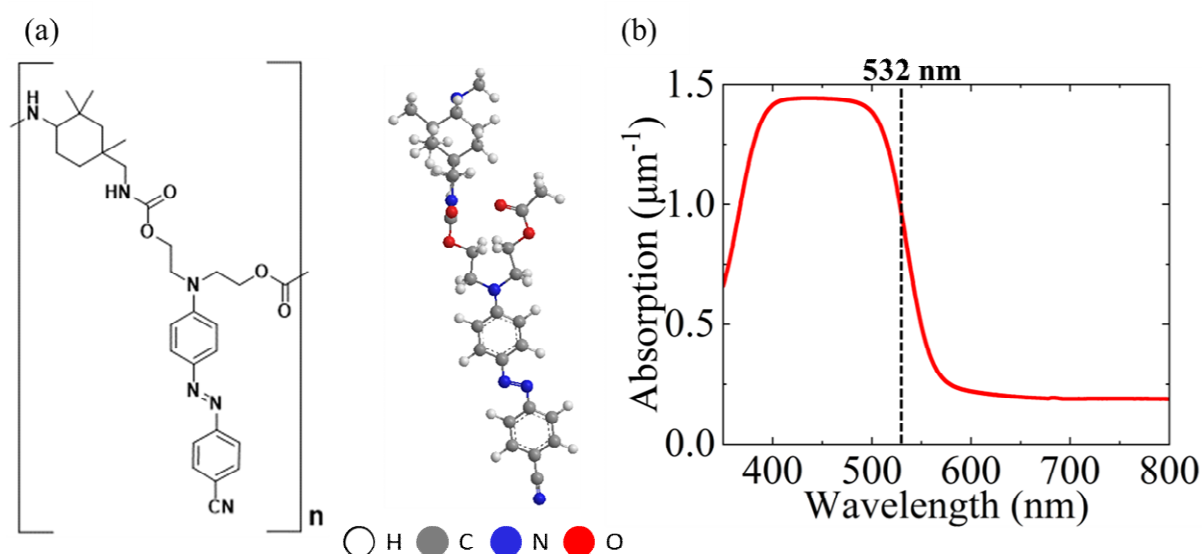


図 5-1 (a) 実験で使用したアゾポリマー（Poly-Orange Tom-1）の構造式と立体構造図。(b) 可視領域におけるアゾポリマーの吸収スペクトル。黒い線は 532 nm で高い吸収特性を示す。

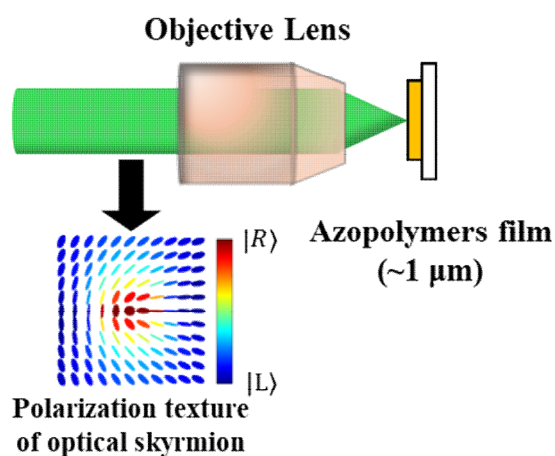


図 5-2 アゾポリマーの表面レリーフを作製する実験セットアップの概略図。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。

5.3. 実験結果

アゾポリマー表面に形成された表面レリーフの AFM 画像を図 5-3 に示す。表面レリーフの直径と高さは、それぞれ 7~10 μm 、300~650 nm であり、波長程度または波長よりも大きな深さを有していた。これらの表面レリーフは、照射された光スキルミオンの偏光構造に依存した物質移動を示していることがわかる。

例えば、レモン型の偏光分布を持つ Néel 型および Bloch 型の光スキルミオンでは、強度分布は Gaussian モードと同様に対象的な分布を持つにもかかわらず、C 点特異点の周りに非対称な三日月形状のレリーフが形成された (図 5-3(b)、(c)、(e)、および(f))。これらのレリーフは、Néel 型と Bloch 型の偏光分布が 90° 回転していることを反映して、 90° 回転させることで重ね合わさる形状が作り出された。さらに周回方向の高さ変化において、光スキルミオン特有のメビウスの輪のような波面構造がレリーフの高さとして記録されている。一方、星型の偏光分布を持つ Anti 型の光スキルミオンでは、C 点特異点にそって 3 本のアームを持つ車輪形のレリーフ構造が作製された (図 5-3 (h)および 4(i))。

これらのレリーフ構造には、波長以下のスケールの周期構造 (周期: 約 460nm、深さ: 約 70nm) が確認された。このリップル構造は、光スキルミオンの偏光方向に対して垂直に配列し、光スキルミオンの偏光ドメインに対応している。これは、アゾポリマーの偏光に依存した物質移動と分子間相互作用に基づくアゾポリマーの自己配列特性によって形成されたと考えている。この現象は、光誘起表面格子の空間周波数に影響を与えることが以前の研究でも報告されている[1,2]。これらの結果から、光スキルミオンのメビウスの輪のような波面構造を表面レリーフとして可視化することに成功し、光スキルミオンの堅牢性と光スキルミオンによる物質中に渦構造を生成する物質操作の可能性が見出された。

2 次の光スキルミオンの照射によって作り出された表面レリーフにおいても、1 次の結果と同様に偏光分布を投影した構造 (図 5-3(j)、(m)、および(p)) と、偏光ドメインに対応し

たサブ波長スケールのリップル構造を構築されていることが観察された（図 5-3(k)、(l)、(n)、(o)、(q)、および(r)）。

さらに作製された表面レリーフ構造は、わずかにねじれた構造を有している点である（図 5-3(b)、(e)、(h)、(k)、(n)、および(q)）。このねじれは、軌道角運動量（OAM）の影響より、時計回りまたは反時計回りの方向に形成していると考えられる[3-5]。これを検証するために、OAMを持たないラジアル偏光、アジマス偏光、およびアンチボルテックス偏光のベクトルビームをアゾポリマー薄膜に集光照射し、表面レリーフを作製した（図 5-4）。ラジアル偏光、アジマス偏光、アンチボルテックス偏光のベクトルビームは、それぞれ V 点特異点の周囲にバンプ状、リング状、十字形の表面レリーフ構造を形成し、ねじれ構造は現れなかった（図 5-4(b)、(e)、および(h)）。

さらに、アゾポリマーフィルムを焦点からレイリー長の範囲で軸上方向に移動させ、共焦点領域内で光スキルミオンをデフォーカスして照射することで、ビーム伝搬に伴う偏光分布の回転を物質に転写することにも成功した（図 5-5）。この結果は、光スキルミオンを生成している Gaussian モードと方位角 LG モード間で生じる Gouy 位相分散による偏光分布の回転を反映している。デフォーカス照射した場合でも、表面レリーフの構造は回転しながらも光スキルミオンの波面のねじれを反映した三日月状の構造を保持しており、ビーム伝搬においても光スキルミオンの偏光分布とねじれた波面構造は保存されていることが明らかになった。

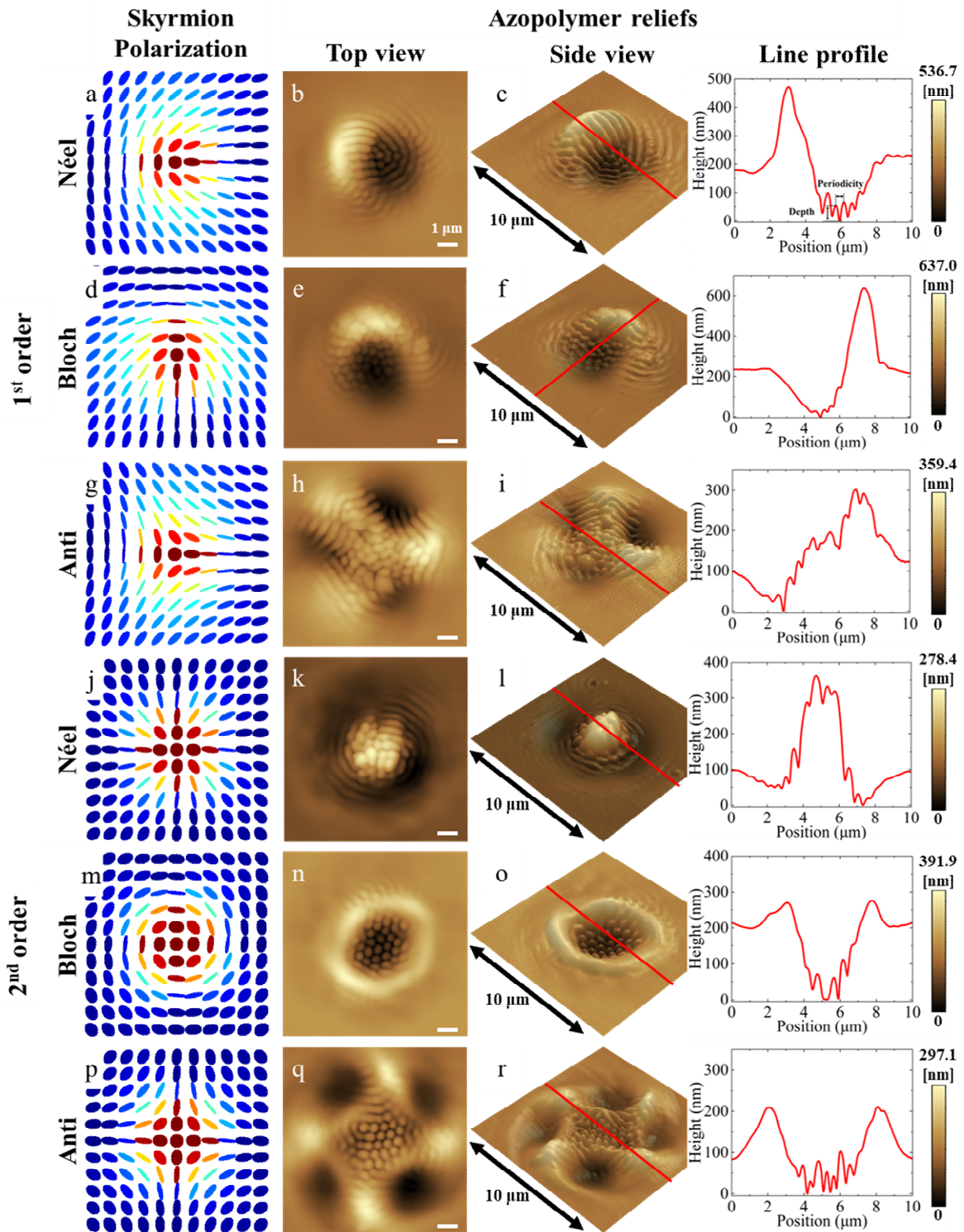


図 5-3 光スキルミオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造の AFM 画像。列（左から右へ）には、偏光分布、2次元および3次元 AFM 画像と、表面レリーフ構造の赤線に沿ったラインプロファイルが示されている。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーである。

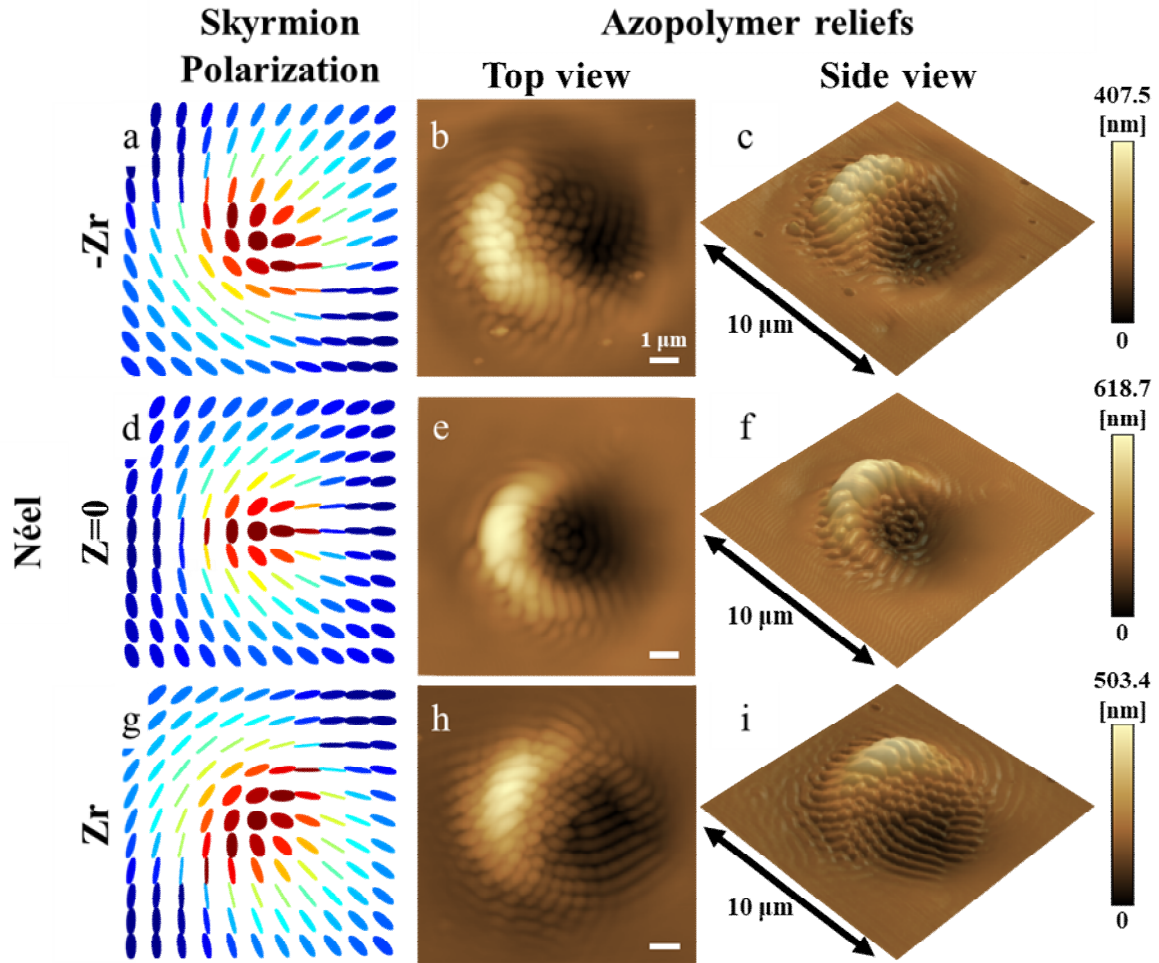


図 5-5 共焦点領域内 ($z = -z_R, 0, z_R$) における、光スキルミオン (Néel 型) の照射によって作り出されたアゾポリマーの表面レリーフの表面構造。列 (左から右へ) には、偏光分布、2 次元および 3 次元 AFM 画像を図示している。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーである。

5.4. 考察

まずサブ波長スケールの周期的なリップル構造について考察する。リップル構造は、図 5-6 の青線のラインプロファイルから周期およそ 470 nm 、深さ 50 nm 程度の凹凸構造である。このような周期構造ができる要因としては、反射光や散乱光の干渉や表面プラズモンの励起によって形成される LIPSS (Laser-Induced Periodic Surface Structure) [6,7]、が予想される。

ただ今回の実験条件を考えると、光の干渉や LIPSS の形成に関しては以下の理由から影響が限定的であると想定される。第一に、今回の実験では垂直入射でアゾポリマーフィルムに入射しており、周期構造のサイズが波長以下であり、構造の周期もある程度一定であるために、光干渉のスケール感と一致しない。第二に、アゾポリマーは有機材料であり、金属のような自由電子を持たないため、表面プラズモンの励起が起こる可能性は低い。さらに、パルス波を使った 2 光子吸収によるアゾポリマーの表面レリーフ形成時にも、周期構造は見られない[8]。また、使用したレーザーは連続波の μW オーダーの低出力であり、非線形光学応答や熱による影響はわずかである。実験的にも、レリーフ形成後に白色光を照射するとレリーフが消失することから、分子の破壊などは起きていないと予想される。

さらに、光を強集光する時に形成される表面レリーフには、周期構造が見られず（次章で詳述）、照射強度や照射時間を変化させても構造の向きや周期が同じ構造ができる。そのため、この周期構造は、光の干渉や LIPSS によるものでなく、別の要因（例えばアゾポリマー分子の自己配向によって形成された可能性）で形成したと予想している。ただし、一部の有機材料では LIPSS 様の構造を作ることも知られている[9,10]。そのため、さらなる調査が必要である。より詳細な解明には、レーザーの波長依存性、アゾポリマーの分子量、置換基の影響などを調査する必要がある。これらの検討を進めることで、本現象の形成メカニズムがさらに明らかになることが期待される。

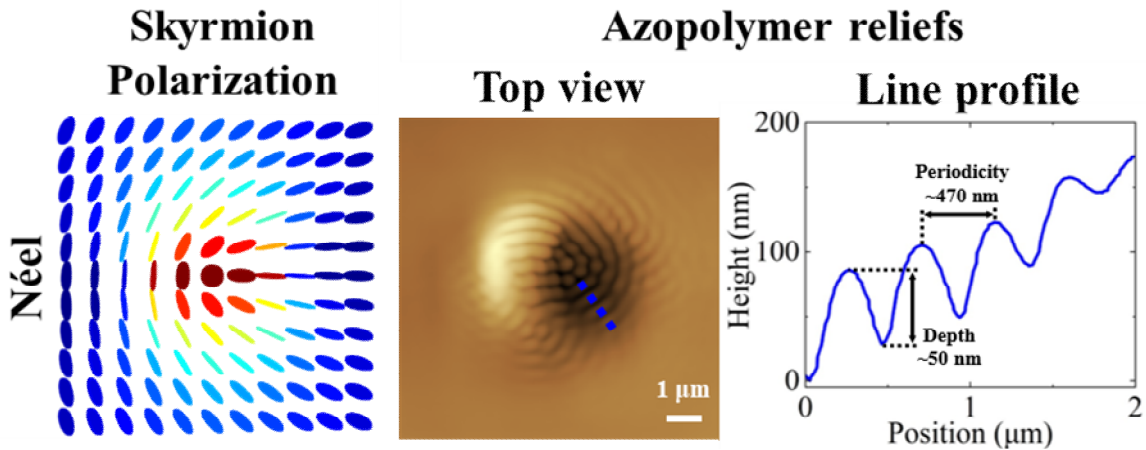


図 5-6 Néel 型の光スキルミオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造のラインプロファイル。列（左から右へ）には、偏光分布、2 次元の AFM 画像、表面レリーフ構造の青線に沿ったラインプロファイルを表す。偏光状態はジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーである。

さらに、リップル構造の向きについても検討した。Néel 型の光スキルミオンの偏光分布に基づき、各位置での楕円偏光の長軸と x 軸の間の角度成分（方位角成分）を算出し、その垂直成分を抽出した。加えて、表面レリーフ構造の高さ情報をフーリエ変換し、高周波成分（リップル構造）を抽出し、これらのデータを比較した（図 5-7）。図 5-7(b)と(c)のパターンが非常に類似していることから、表面レリーフのサブ波長スケールのリップル構造は、光スキルミオンの偏光分布に対して垂直方向に刻まれていることが示された。

図 5-7(c)のリップル構造の上下の部分において、リップルの凹凸構造が不連続な部分を持ち、動径方向にズレていることが確認できる。このズレは、光スキルミオン特有のメビウスの輪のような左右で位相が π だけ異なる非対称的な位相構造がリップル構造として再現されていると予想している。ただし、この現象のメカニズムをより詳細に理解するためには、さらなる検討が必要である。

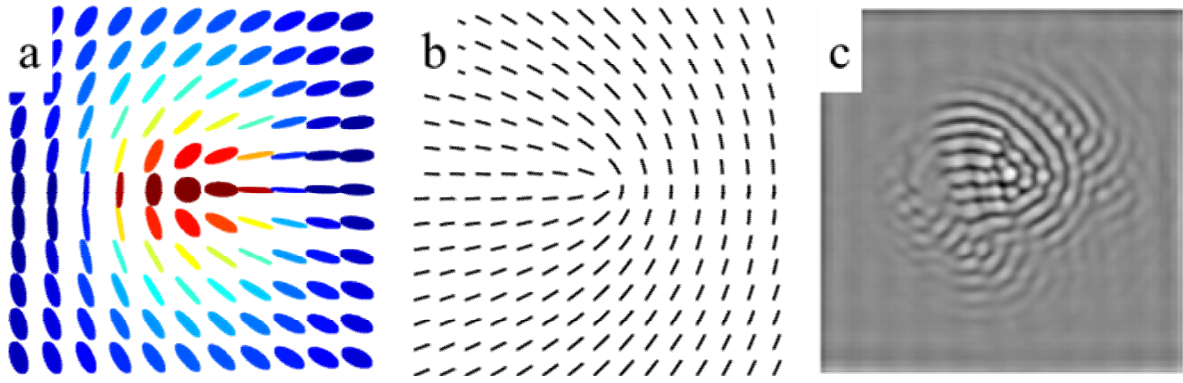


図 5-7 Néel 型の光スキルミオンの(a)偏光分布、(b)各位置の楕円偏光の長軸と x 軸の間の角度成分の垂直成分、(c)表面レリーフ構造の高周波数成分。(b)の黒線は、楕円偏光の方位角成分の垂直成分を示し、(c)はグレースケールで表現している。

光スキルミオンによって物質にどのような作用を与えるかを理解する検討する目的で、光スキルミオンの光散乱力 $\mathbf{F}(x, y)$ をポインティングベクトルの数値シミュレーションを試みた。今回、材料は等方かつ均質な物質として考え、光勾配力は無視できるものとしている。

$$\mathbf{F} = \frac{\omega\epsilon_0}{2} [\chi_r \text{Im}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*) + \chi_i \text{Re}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*)] \quad 5-1$$

$$= \left(\chi_r E_y \frac{d}{dx} E_y^* + s \cdot \chi_i E_y \frac{d}{dy} E_x^* \right) \mathbf{e}_x + \left(\chi_r E_x \frac{d}{dy} E_x^* - s \cdot \chi_i E_x \frac{d}{dx} E_y^* \right) \mathbf{e}_y$$

ここで、 $\mathbf{E}(x, y) (= (E_x, E_y, E_z))$ は光スキルミオンの電場、 $\chi = \chi_r + i\chi_i$ はアゾポリマーの複素電気感受率、 $s (= -1, 0, 1)$ はスピン角運動量 (SAM)、 \mathbf{e}_x と \mathbf{e}_y は x 軸と y 軸の単位ベクトルを表す。今回のシミュレーションでは、 $\chi_r = \chi_i$ と仮定し、光スキルミオンが物質表面に垂直な z 軸に沿って伝播すると仮定した。また、近軸近似に基づき、電場の進行方向の z 軸方向の縦電場成分 E_z は無視して計算した。

図 5-8(a), (b) は、1 次の Néel 型および Anti 型の光スキルミオンによって生成される時間平均した光散乱力を示している。Néel 型の光スキルミオンでは、C 点特異点の周囲に方位角方向の力を発生し、アゾポリマーは電場の左側 (青点方向) に移動する (図 5-8(a))。この力によって、非対称性を有する三日月形のレリーフが形成される。一方、Anti 型の光スキルミオンでは、電場の左上、左下、右側から特異点の中心に向かい放射状の力が発生し (図

5-8(b))、これによりアゾポリマーがコアに閉じ込められ、3本の腕を持つ車輪型のレリーフ構造が形成される。

同様に2次の光スキルミオン(図5-8(c)、(d))では、偏光分布に沿って電場の中心に向かう放射状の力に加え、軌道角運動量(OAM)の影響による方位角方向の力が発生する。このため、ねじれた半球または4本腕の車輪状の表面レリーフが形成される。これらのシミュレーション結果は、実験結果とよく相関している。

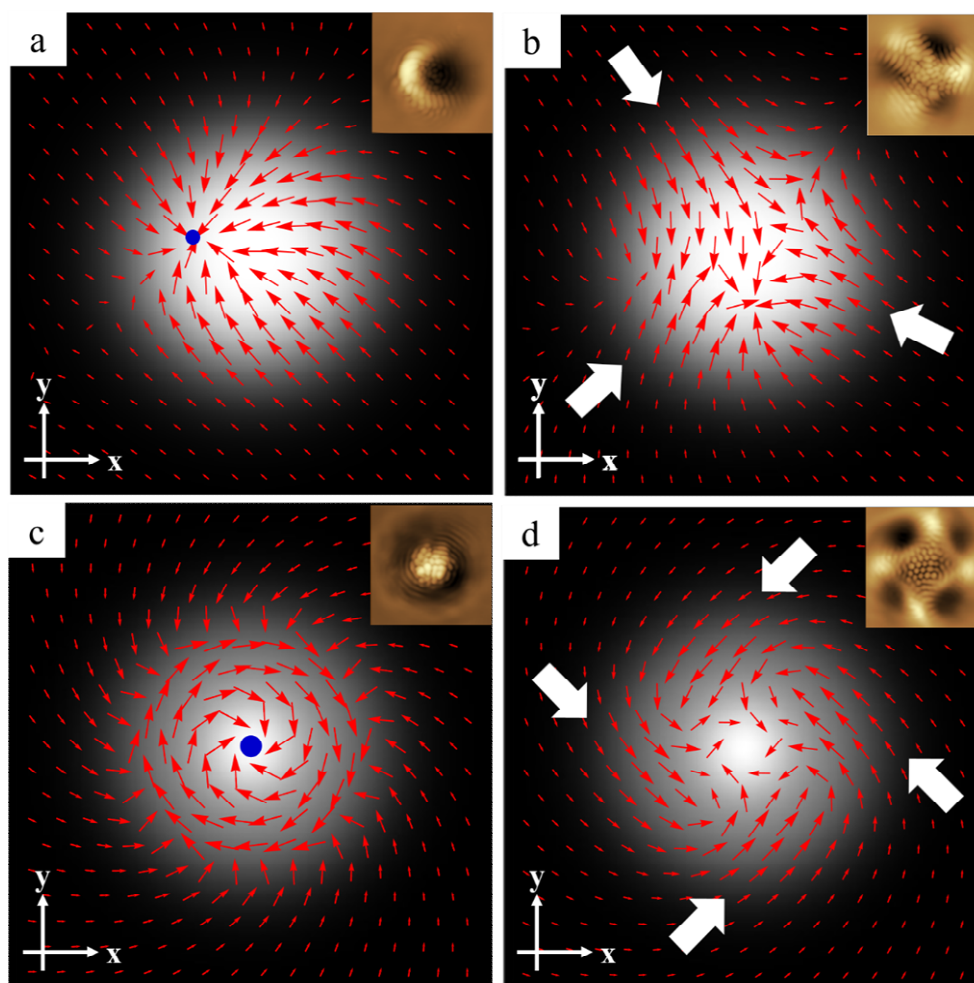


図 5-8 1 次の (a) Néel 型および(b)Anti 型、2 次の(c)Néel 型および(d)Anti 型の光スキルミオンによって生成される時間平均した光散乱力の理論計算結果のプロット。右上の挿入図は、それぞれの光スキルミオンによって形成されるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像を示している。

5.5. 結論

本章では、アゾポリマーをモデル物質として取り上げ、光スキルミオンを照射することによって形成される表面レリーフとして光スキルミオンのメビウスの輪のような特異な波面構造から作り出されるトポロジカルな渦構造をアゾポリマーに記録することに成功した。アゾポリマーの表面レリーフは、光スキルミオンの偏光分布と波面を投影した凹凸構造（波長オーダーの深さ）の上に偏光ドメインを反映したサブ波長スケールの周期的なリップル構造が確認された。

さらに、光散乱力の数値シミュレーションの結果から、光散乱力の方向と強さがアゾポリマーの物質移動に寄与し、偏光分布に応じた表面レリーフが構築されることが示された。

これらの結果は、光スキルミオンを利用した、超高密度の書き換え可能な光データ記憶技術に新たな自由度をもたらす可能性が期待される。それに加え、光スキルミオンによる物質中に渦構造を生成する新たな物質操作の可能性を示し、現代物理学に新たな洞察を与えるものである。

5.6. 参考文献

1. K. Harada, M. Itoh, T. Yatagai, and S. Kamemaru, "Application of Surface Relief Hologram Using Azobenzene Containing Polymer Film," *Opt Rev* 12(2), 130–134 (2005).
2. V. Toshchevikov, M. Saphiannikova, and G. Heinrich, "Microscopic Theory of Light-Induced Deformation in Amorphous Side-Chain Azobenzene Polymers," *J Phys Chem B* 113(15), 5032–5045 (2009).
3. M. Watabe, G. Juman, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Light induced conch-shaped relief in an azo-polymer film," *Sci Rep* 4(1), 04281 (2014).
4. A. Ambrosio, L. Marrucci, F. Borbone, A. Roviello, and P. Maddalena, "Light-induced spiral mass transport in azo-polymer films under vortex-beam illumination," *Nat Commun* 3(1), 989 (2012).
5. K. Masuda, S. Nakano, D. Barada, M. Kumakura, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Azo-polymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam," *Opt Express* 25(11), 12499–12507 (2017).
6. J. Bonse, J. Krüger, S. Höhm, and A. Rosenfeld, "Femtosecond laser-induced periodic surface structures," *J Laser Appl* 24(4), (2012).
7. J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. van Driel, "Laser-induced periodic surface structure. I. Theory," *Phys Rev B* 27(2), 1141–1154 (1983).

8. K. Ishihara and T. Omatsu, "Femtosecond optical vortex-induced flower-shaped surface relief structures in an azo-polymer film," *APL Photonics* 9(10), (2024).
9. E. Rebollar, J. R. Vázquez de Aldana, I. Martín-Fabiani, M. Hernández, D. R. Rueda, T. A. Ezquerra, C. Domingo, P. Moreno, and M. Castillejo, "Assessment of femtosecond laser induced periodic surface structures on polymer films," *Physical Chemistry Chemical Physics* 15(27), 11287 (2013).
10. J. Heitz, B. Reisinger, M. Fahrner, C. Romanin, J. Siegel, and V. Svorcik, "Laser-induced periodic surface structures (LIPSS) on polymer surfaces," in *2012 14th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)* (IEEE, 2012), pp. 1–4.

6. 光ホプフィオンによる表面レリーフ形成

6.1. 研究背景

第 5 章までの実験では、2次元の偏光ベクトル場である光スキルミオンを表面レリーフとして物質（アゾポリマー）に転写できることを実証した。さらに、近年では光スキルミオンを超えて、ストークスベクトルと時間位相からなる 3次元偏光ベクトル場から構成されるトーラス構造を有する光ホプフィオンまで研究が発展している。2章で解説したように、光ホプフィオンはビーム伝搬に伴い、偏光分布の回転に加え、中央に浅いディップを持つリング状の強度プロファイルへと変化する。この特性を活かし、光の偏光分布だけでなく、強度分布も投影した表面レリーフを形成するアゾポリマーによって、光ホプフィオンの 3次元のトーラス構造を投影できるのではないかと着想した。

本章では、アゾポリマーフィルムを光軸方向に前方へ移動させ、光ホプフィオンをデフォーカスして照射し、光ホプフィオンのホップファイバーの結び目構造を表面レリーフとして可視化するデモンストレーションの結果について解説する。

6.2. 実験方法

この実験で用いたアゾポリマーは、第 5 章と同様に Poly-Orange TOM-1 (POT) (モノマー重量：484g/mol、分子量：190,000g/mol、重合度：約 400) である。このアゾポリマーのシクロヘキサノン溶液に溶解し、スピコート法を用いてガラス基板上に厚さ約 1 μ m のフィルムを形成した。このフィルムは波長 532 nm の光に対して強い吸収を示し、光学密度 (OD) は約 0.34 であった。

光ホップフィオンは、実行 NA が約 0.4 の対物レンズを用いてアゾポリマーフィルムに集光照射した。焦点でのスポット径は約 4 μ m、レイリー長 z_R は約 6 μ m であった。レーザーパワーは 2.5 μ W、照射時間は 30 秒に固定した。実験では、アゾポリマーフィルムを 3 軸移動ステージに設置し、光軸上前方に移動させながら、 $z=0$ (焦点位置)、 $0.5z_R$ 、 z_R 、 $1.5z_R$ の

各位置で光ホプフィオンを照射した。これにより、フォーカスまたはデフォーカス状態で光ホプフィオンをアゾポリマーフィルムに照射し、表面レリーフを形成した（図 6-1）。

表面レリーフの構造は、原子間力顕微鏡（AFM, SHIMADZU, SPM-9700）を使用して観察した。AFM の空間分解能は、XY 平面で 0.2 nm、Z 軸で 0.01 nm であった。

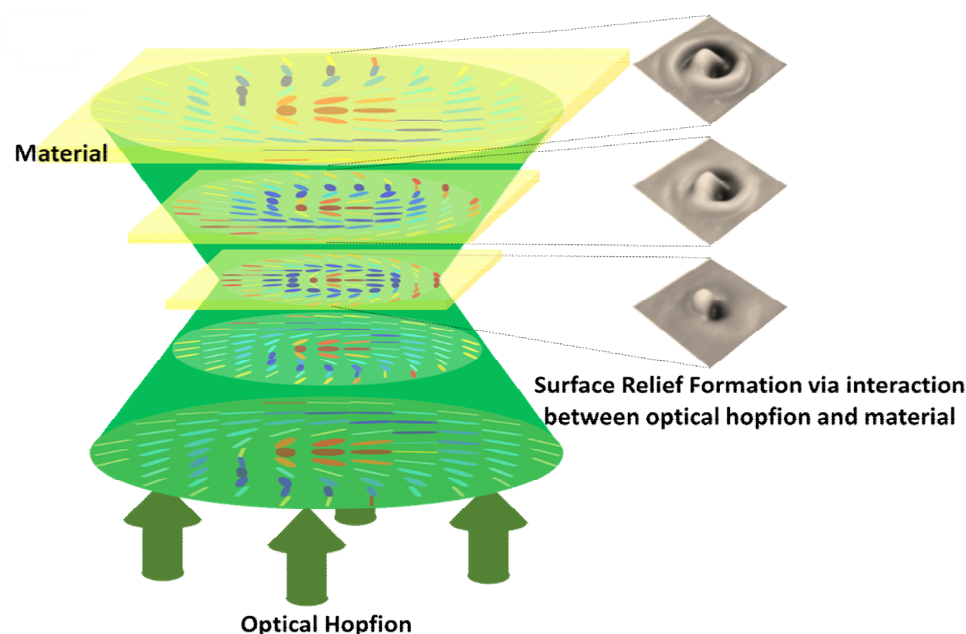


図 6-1 光ホプフィオンのアゾポリマーの表面レリーフ形成の実験の概念図。3次元偏光分布を持つ光ホプフィオンがアゾポリマーを伝搬し、物質とのインタラクションを通じて表面レリーフを構築する。

6.3. 実験結果と考察

光ホプフィオンを焦点で照射して構築されたアゾポリマーの表面レリーフの AFM 画像を図 6-2 に示す。表面レリーフの直径は約 5 μm 、高さは 290~440nm であった。

Néel 型の光ホプフィオンでは、C 点特異点の左側に三日月形のレリーフ構造が三観察され、この構造は Néel 型の光ホプフィオンの偏光分布を反映している（図 6-2(a)）。一方、Anti 型の光ホプフィオンを照射した場合、C 点特異点の半径方向に沿って拳を持つ 3 本の腕の形状を構築した（図 6-2(b)）。光ホプフィオンは、Gaussian モードと同じ左右対称の強度分布を持つが、ビームの内外に存在するねじれた位相構造がレリーフの高さ情報として記録されていることが確認された。

次に、アゾポリマーフィルムを焦点からレイリー長の1.5倍 ($1.5z_R$) の距離まで軸上前方に移動させ、デフォーカス状態で光ホップフィオンを照射して表面レリーフを作製した (図 6-2(c), (d))。光ホップフィオンはビーム伝搬中に、Gouy 位相分散 ($LG_{0,0}$ 、 $LG_{1,0}$ 、 $LG_{0,1}$ モード間の位相差) により、中央に浅いディップを持つ強度分布と、時計回りおよび反時計回りに回転した偏光分布を有するリング状の空間形状を形成する。

デフォーカス領域 ($z=0.5\sim 1.5 z_R$) での Néel 型の光ホップフィオンでは、外側の三日月構造が内側の構造と繋がり、反時計回りにねじれた単一のアームを持つ表面レリーフへと変化した (図 6-2(c))。一方、デフォーカスされた Anti 型の光ホップフィオンは、3本の螺旋状の腕を持つ時計回りのピンホイール型のレリーフ構造を形成した (図 6-2(d))。

これらの表面レリーフ構造は、光ホップフィオンの3次元の強度分布および偏光分布に応じて形作られている。特に、光ホップフィオンの内側と外側で異なる回転速度を持つ偏光のねじれと、ホップファイバーの結び目を、アゾポリマーの表面レリーフとして可視化することに成功した。ここでは、集光レンズの実行 NA は ~ 0.4 であるため、縦電場の効果は無視できる。

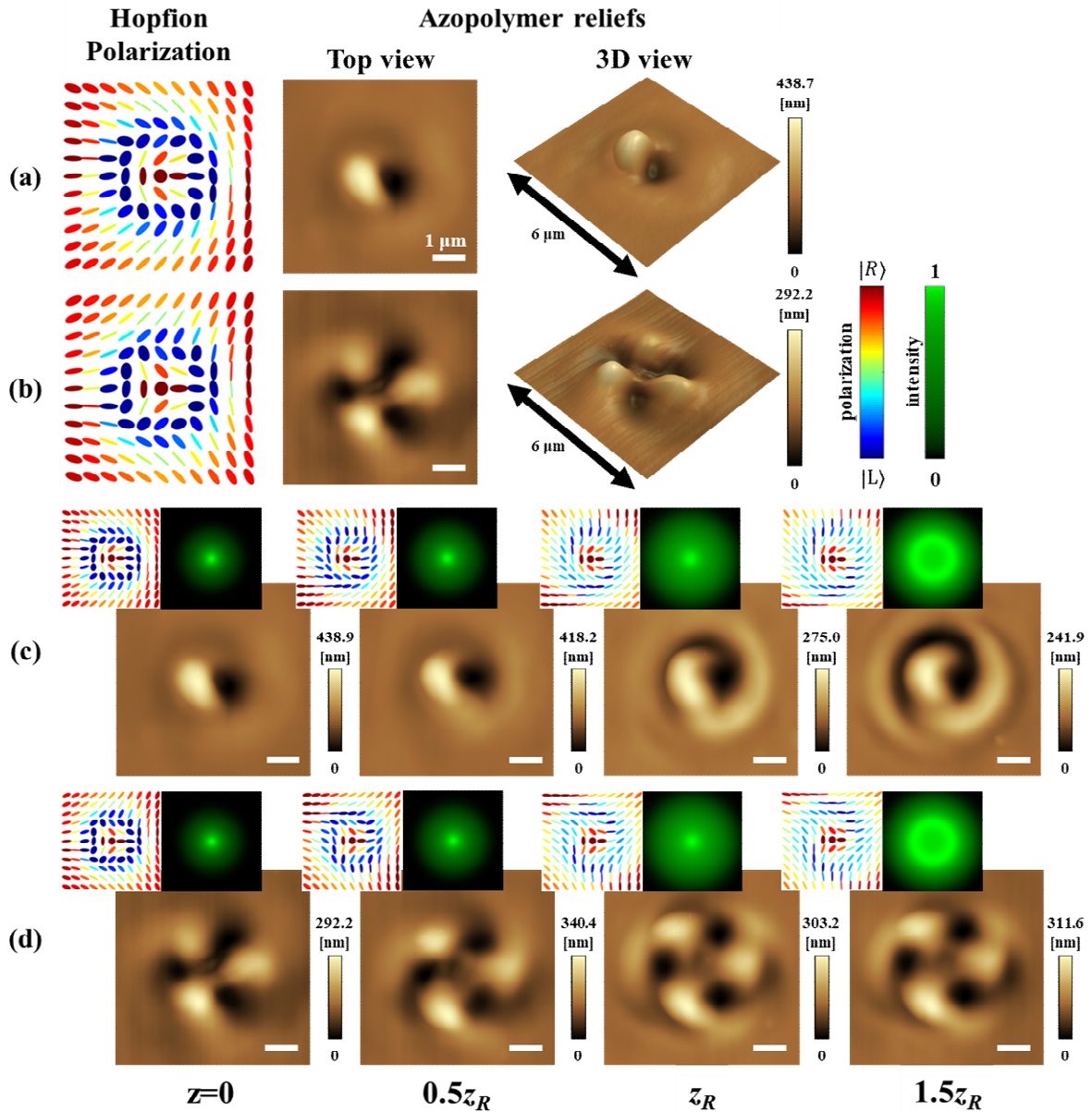


図 6-2 (a)Néel 型および(b)Anti 型の偏光分布のシミュレーション値および光ホプフィオンの照射によって形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造 (2D および 3D 図)。(c-d)軸上前方位置 $z=0, 0.5z_R, z_R, 1.5z_R$ における(c)Néel 型および (d)Anti 型の光ホプフィオンの照射によって形成された表面レリーフ構造。挿入図は、各軸上位置での偏光分布のシミュレーション値とビームの空間強度分布を示す。光ホプフィオンの偏光状態はジェットカラーマップで表され、赤色は右円偏光、青色は左円偏光を表す。白線は $1 \mu\text{m}$ のスケールを表している。

さらに、低 NA (約 0.2) の対物レンズを使用して実験を行った。このセットアップでは、光ホプフィオンをアゾポリマーフィルム上に直径約 $8 \mu\text{m}$ のスポットで集光させた。レーザーパワーは $50 \mu\text{W}$ 、照射時間は 60 秒に設定した。

この条件下での実験では、Néel型の光ホプフィオンは、集光面において直径約 $10\ \mu\text{m}$ 、高さ $700\sim 800\ \text{nm}$ の、左側が隆起した非対称の三日月形状が形成された。さらに、デフォーカス領域では、外側の三日月構造の高さが増加し、外側の三日月構造が内側の三日月構造にわずかに接近していく様子が見られた (図 6-3(a))。一方、Anti型の光ホプフィオンを照射した場合、焦点面では非ねじれ構造を持つ3本腕が確認され、デフォーカス領域ではねじれた3本腕のピンホール型の表面レリーフ構造を形成された (図 6-3(b))。

これらの表面レリーフ構造は、照射された光の偏光方向に対して垂直方向に、サブ波長スケールの周期的なリップル構造 (周期約 $450\ \text{nm}$ 、深さ約 $50\ \text{nm}$) であった。このリップル構造がアゾポリマー分子間の自己配向によるものであり、光ホプフィオンの偏光分布の変化がアゾポリマーの自己配列に影響を与えた結果と考えられる[1,2]。

5章でも述べたが、光スキルミオンによって作られた表面レリーフにおいても、同様のサブ波長スケールの周期的なリップル構造が観測されている。このリップル構造は、光スキルミオンの偏光構造を反映しており、アゾポリマー内の強い分子間結合 (凝集) の結果として得られる構造であると考えられる。強い集光条件下ではリップル構造は消失する傾向がある。

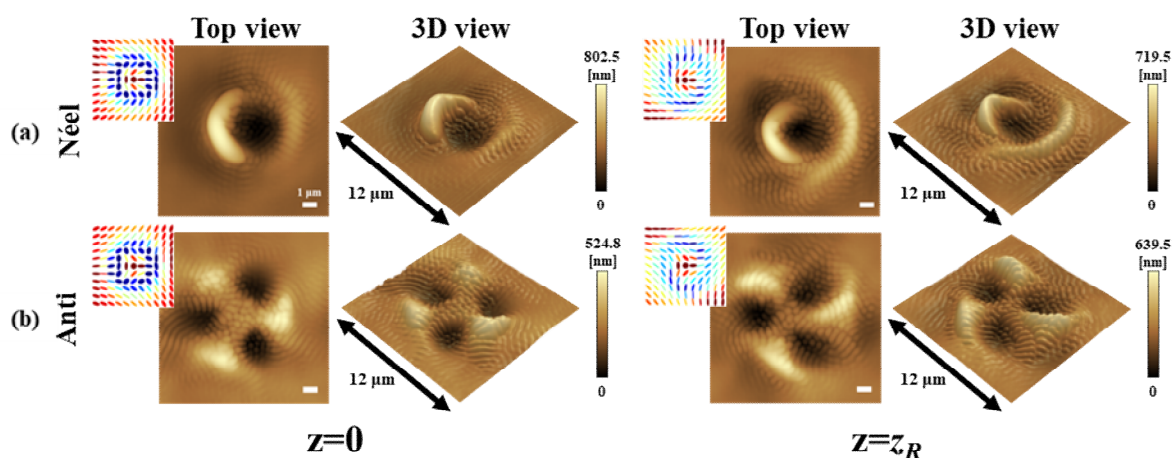


図 6-3 低 NA (~ 0.2) の集光条件で光ホプフィオンを照射したときに形成されるアゾポリマー上の表面レリーフ構造 (2D および 3D 図)。 $z=0$ (焦点) と $z=z_R$ における (a) Néel 型および (b) Anti 型の光ホプフィオンの偏光分布のシミュレーションと表面レリーフ。光ホプフィオンの偏光状態は、ジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。白線は $1\ \mu\text{m}$ のスケールバーである。

光ホプフィオンによって形成されるアゾポリマー表面レリーフの形成原理を理解するため、光ホプフィオンの時間平均された光散乱力 \mathbf{F} の数値シミュレーション解析に試みた [3,4]。

$$\mathbf{F} \propto \chi_r \text{Im}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*) + \chi_i \text{Re}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}^*) \quad 6-1$$

ここで、 \mathbf{E} と \mathbf{B} は光ホプフィオンの電場と磁場、 $\chi = \chi_r + i\chi_i$ はアゾポリマーの複素帯電率を表す。計算を簡単にするために、 $\chi_r = \chi_i$ と仮定し、光ホプフィオンが物質表面に垂直な z 軸に沿って伝播するものとした。また、実行 NA が 0.4 以下であるため、近軸近似の下で z 軸方向の縦電界 E_z は無視して計算を行った。

図 6-4 は、Néel 型および Anti 型の光ホプフィオンによって生じる時間平均された光散乱力の解析結果を示す。焦点面において、Néel 型の光ホプフィオンが、C 点特異点にそって電場の中央左側（青点）に向かって光散乱力を発生する。この結果、左側が隆起した非対称性のある三日月形のレリーフ構造が形成される。また、デフォーカス領域では、C 点特異点にそって電場の中央左側（青点）に向かって周回方向の光散乱力に加えて、電場の中心から右下の方向に物質を押し出す光散乱力も発生するために、左巻きの 1 本のアームを持つ表面レリーフができる（図 6-5(a)）。

一方、集光された Anti 型の光ホプフィオンは、C 点特異点に沿った電場の左上、左下、右（3 つの青点）に向かって方位角方向の光散乱力と、電場の中心に向かう半径方向の力が発生する。その結果、3 本のアームと中央のコアを持つ車輪型のレリーフ構造が形成される。さらにデフォーカス領域では、OAM の影響により、強い時計回りの方位角散乱力（青矢印）が発生し、その結果、3 本の渦巻き状のアームを持つ時計回りのピンホイール型のレリーフ構造が形成される（図 6-5(b)）。これらの理論的解析結果は、実験で観測された結果とよく一致する。

最後に、 z 軸方向に伝搬する光ホプフィオンの偏光分布、時間平均された光散乱力のシミュレーション値、および実験で形成されたアゾポリマーの表面レリーフ構造の 3 次元投影を図 6-5 にまとめた。これにより、作製された表面レリーフが光ホプフィオンの 3 次元の強度

分布と偏光分布を強く反映し、光ホプフィオンのホップファイバーの結び目を表面レリーフとして可視化できていることがわかる。

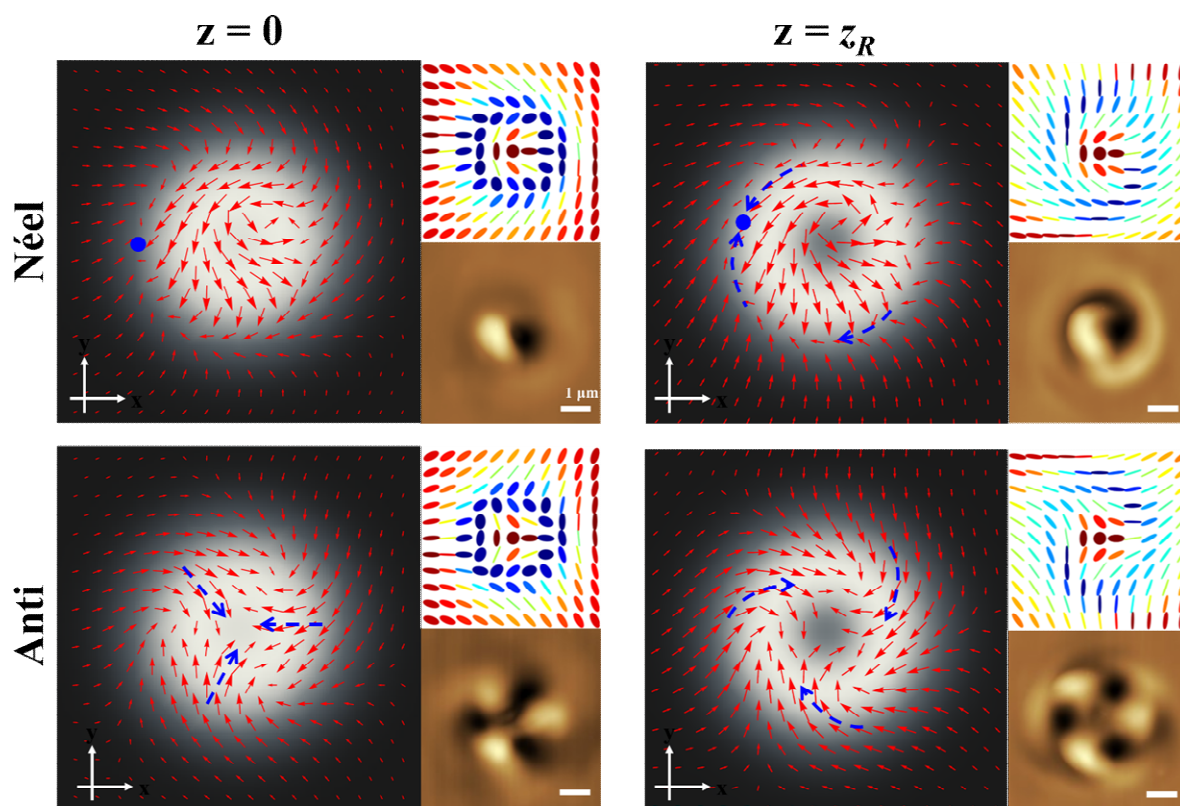


図 6-4 (左) $z=0$ (焦点位置) と (右) $z=z_R$ における (上) Néel 型および (下) Anti 型の光ホプフィオンの時間平均された光散乱力の理論計算結果のプロット。赤矢印は光散乱力の方向を示している。挿入時は、対応する偏光分布のシミュレーションと実験で表面レリーフの表面構造。

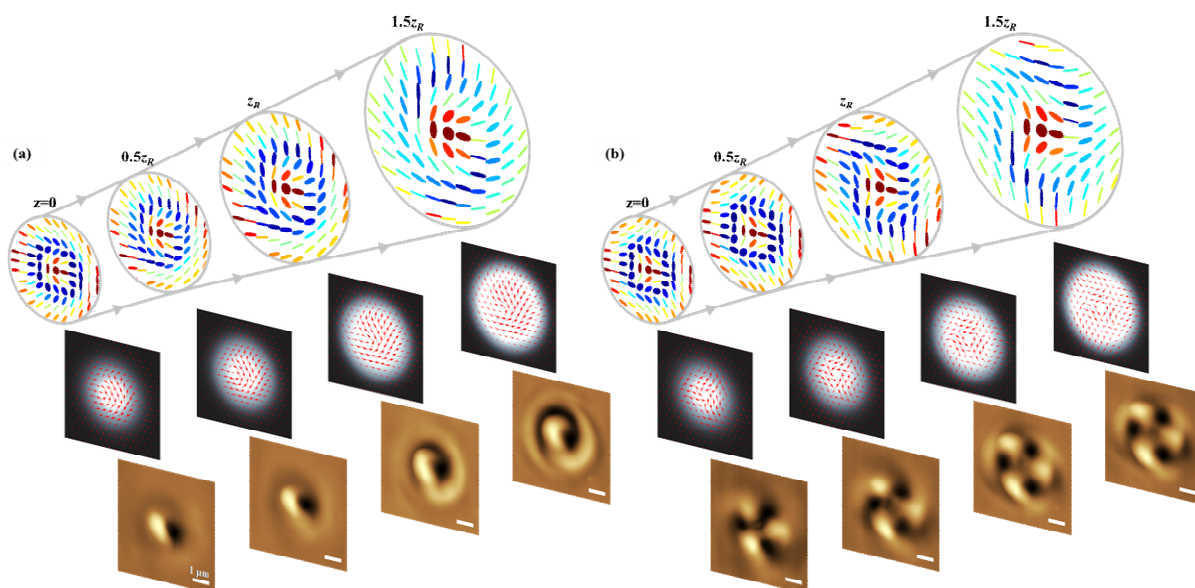


図 6-5 (a)Néel 型および(b)Anti 型の光ホプフィオンの偏光分布と時間平均された光散乱力のシミュレーション値、および実験で得られた表面レリーフの z 軸方向への伝搬の沿った 3 次元投影。偏光状態は

ジェットカラーマップ、赤は右円偏光、青は左円偏光を示す。赤矢印は光輻射力の方向を示し、白線は $1\mu\text{m}$ のスケールバーを示す。

6.4. 結論

本章では、光ホプフィオンの3次元偏光分布をアゾポリマーに直接投影した表面レリーフ構造を形成することを初めて実証し、光ホプフィオンのホップファイバーの結び目 (Knot) をアゾポリマーの表面レリーフとして可視化することに成功した。さらに、光ホプフィオンの時間平均された光散乱力の理論的解析を通じて、形成された表面レリーフ構造が光ホプフィオンにおける軌道角運動量を含む横方向の光散乱力 (エネルギーの流れ) に対応している。

加えて、弱く集光した光ホプフィオンによって作られた表面レリーフは、サブ波長スケールの周期的なリップル構造を持ち、光ホプフィオンの偏光ドメインを表面レリーフとして可視化することに成功した。

これらの成果は、光によって様々な物質中に3次元の準粒子構造を生成・操作する新たなアプローチを提供し、現代の基礎物理学と材料科学への新しい洞察を提供する。

6.5. 参考文献

1. V. Toshchevnikov, M. Saphiannikova, and G. Heinrich, "Microscopic Theory of Light-Induced Deformation in Amorphous Side-Chain Azobenzene Polymers," *J Phys Chem B* 113(15), 5032–5045 (2009).
2. J. Vapaavuori, C. G. Bazuin, and A. Priimagi, "Supramolecular design principles for efficient photoresponsive polymer–azobenzene complexes," *J Mater Chem C Mater* 6(9), 2168–2188 (2018).
3. K. Masuda, S. Nakano, D. Barada, M. Kumakura, K. Miyamoto, and T. Omatsu, "Azopolymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam," *Opt Express* 25(11), 12499–12507 (2017).
4. D. Barada, G. Juman, I. Yoshida, K. Miyamoto, S. Kawata, S. Ohno, and T. Omatsu, "Constructive spin-orbital angular momentum coupling can twist materials to create spiral structures in optical vortex illumination," *Appl Phys Lett* 108(5), (2016).

7. 結論

7.1. 論文のまとめ

本論文では、光感受性材料であるアゾポリマーをモデル物質として用い、光の準粒子をアゾポリマーに集光照射することで、アゾポリマーの表面レリーフとして光の準粒子の偏光の渦構造を転写および可視化することに成功した。本研究は、光の準粒子を用いた物質中にスキルミオンやホプフィオンなどのトポロジカルな渦構造を生成・操作する可能性を示唆し、光の準粒子による新たな物質操作のアプローチを開拓した。

まず、単一の SLM によるデュアルパス偏光干渉計を構築し、直交する円偏光を有する異なる次数の LG モードモードをコヒーレントに重ね合わせることで、高品質で堅牢かつ多様な光スキルミオンや光ホプフィオンを生成可能なセットアップを構築した。本セットアップでは、SLM の位相パターンを変更させるだけで、ベクトルビームなどの Structured light の生成にも対応可能である。このシンプルかつ柔軟なアプローチは、従来のバルクオプティクスや複雑な光学系を必要としない実用性を有する。

次に、光スキルミオンの偏光によるトポロジカルな渦構造をアゾポリマーの表面レリーフとして直接転写することに成功した。作製された表面レリーフは、光スキルミオン偏光のドメインに相当するサブ波長スケールのリップル構造を持つこと、光スキルミオン特有のメビウスの輪のような波面構造が表面レリーフの高さ情報として記録できることを明らかにした。この成果は、超高密度かつ書き換え可能な光データストレージ技術への応用可能性を示し、光情報処理分野に新たな自由度を提供する可能性がある。

さらに、光ホプフィオンの 3 次元偏光分布をアゾポリマーに転写し、偏光によって形作られる知恵の輪のようなホップファイバーの結び目を可視化することにも成功した。アゾポリマーの表面レリーフを通して、光ホプフィオンの 3 次元的な強度分布と偏光分布を表面レリーフに投影しており、光の準粒子と物質の新たな相互作用の可能性を創出した。

これにより、光の準粒子による物質中に渦構造を生成・操作する新しいアプローチが提供され、現代の基礎物理学および材料科学に新たな洞察を与えるものである。

7.2. 今後の展望：強集光した光の準粒子の表面レリーフ形成

6章でも述べたが、光の準粒子と物質の相互作用を考える場合、光の集光度（開口数 NA）によって物質にもたらされる作用が変化することが知られている。この現象は、光の集光度により光の電場分布が変化するためである。特に、ラジアル偏光ビームを強く集光した場合（NA が 0.6 以上）、電場の進行方向に縦電場が発生し[1,2]、また角運動量を持つ光がスピン軌道相互作用を介して物質に角運動量を与え、物質をねじる現象が報告されている[3,4]。さらに、アゾポリマーを用いた実験では、光の縦電場に応じた非対称性を持つ構造が作られることが報告されている（図 7-1） [5]。

光スキルミオンや光ホブフィオンといった光の準粒子は、複雑な偏光分布を持ち、さらに LG モードに由来する角運動量も保持している。これらの特性を持つ光の準粒子を強く集光することで、光の縦電場やスピン軌道相互作用が発生し、光の準粒子による高度な物質操作の可能性が期待される。

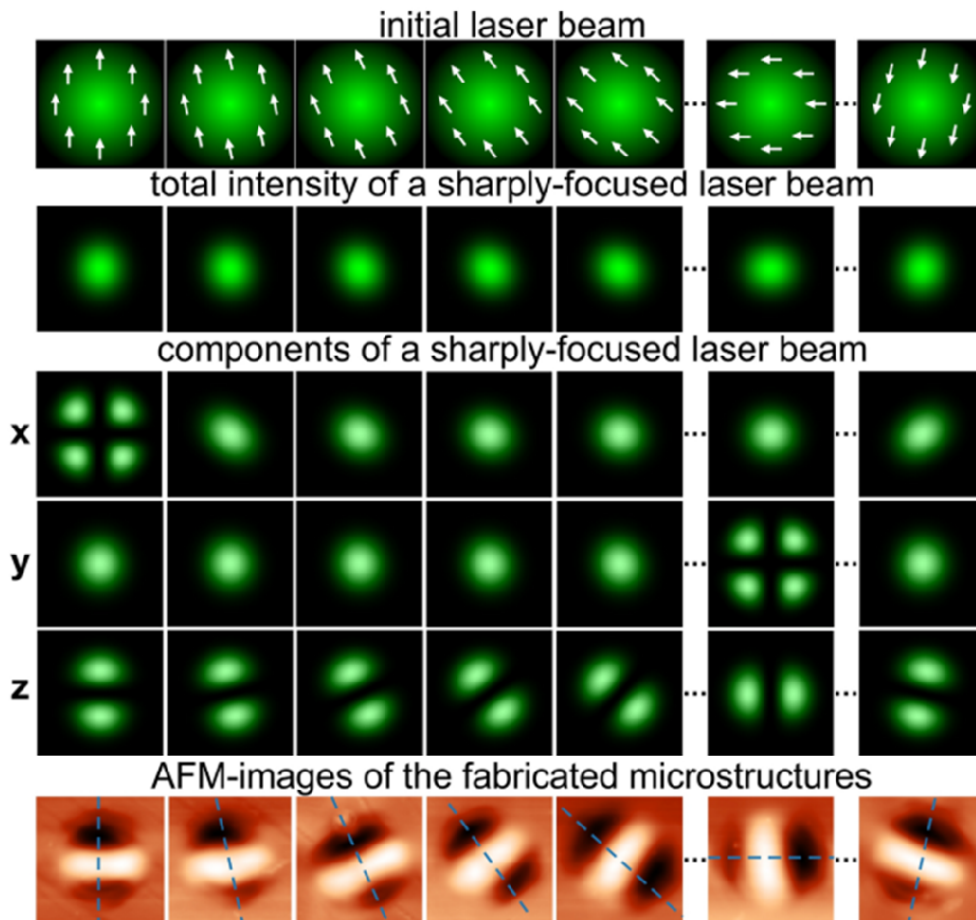


図 7-1 アゾポリマー薄膜に直線偏光ガウシアンビームを集光照射 ($NA=0.85$) した際に形成された表面レリーフ。上から順に、集光前のビームの強度分布 (白矢印は直線偏光の方向を示す)、集光時の全体の強度、x、y、z方向の電場、アゾポリマーフィルム上に構築される表面レリーフの AFM 画像。[5]

7.3. 今後の展望 : 表面レリーフ形成のダイナミクス観察

アゾポリマーは、様々な光のパラメータ (強度、偏光および波面) を投影した構造を形成する光感受性材料であるが、その形成原理は依然として未解明な部分が多くある。特に、光の準粒子によって作られる表面レリーフ上には、偏光分布に対応した波長程度の周期構造が刻まれているが、その詳細な形成プロセスについては判明していない。

このレリーフ形成過程の理解を深めるため、高速原子間力顕微鏡 (HS-AFM) や走査電子顕微鏡を活用したリアルタイムでのダイナミクス観察が有効であると考えられる。これらの手法により、アゾポリマーにおける物質移動の素過程を可視化し、レリーフ形成のメカニズムの詳細に迫ることが期待される。現時点では、観察範囲や時間分解能といった技術的な課

題が残されているが、既存の研究では HS-AFM を用いた直線偏光 Gaussian モードやラジアル偏光ベクトルビームを照射した際のアゾポリマーの光誘起物質移動のリアルタイム観察に成功しており (図 7-2) [6]、これらの手法は有用で有用であることが示されている。

今後、このような高時間分解能および高空間分解能の観察手法を活用することで、表面レリーフ形成の詳細なメカニズムを解明し、光の準粒子と物質の相互作用に関する理解をさらに深めることが可能となる。

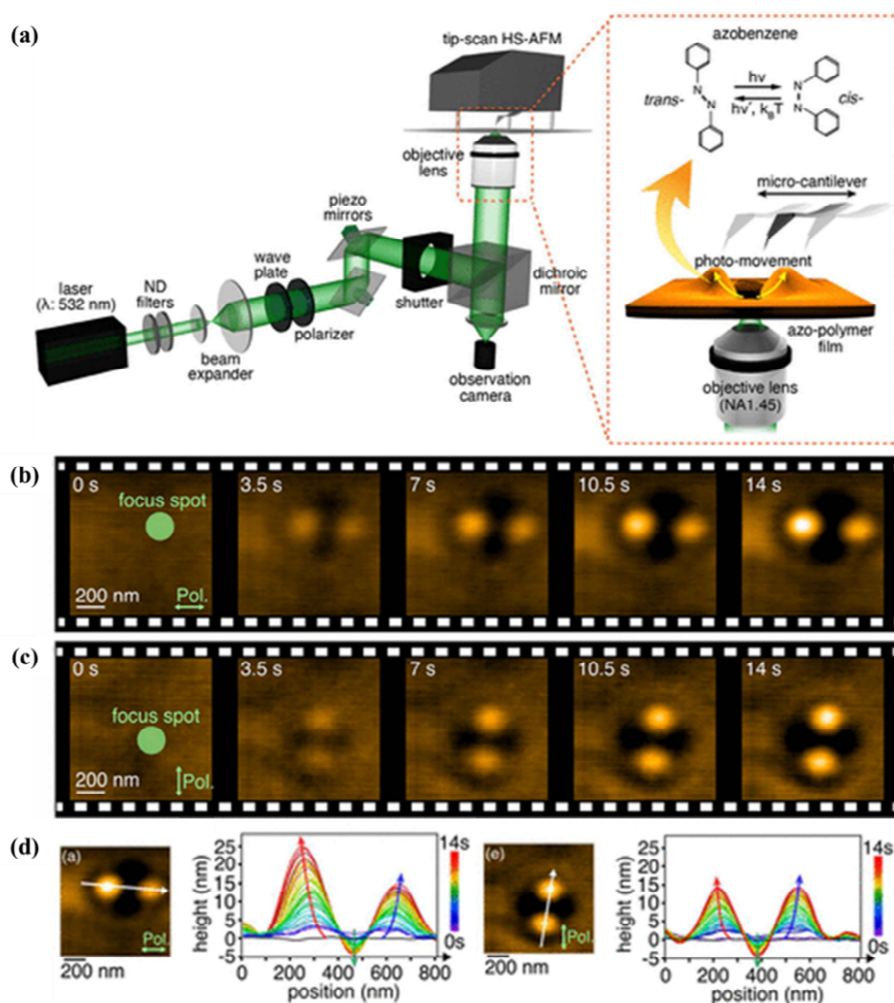


図 7-2 (a) HS-AFM によってアゾポリマーの光誘起物質移動のリアルタイムでの形成ダイナミクスを観察するための実験セットアップの概略図。(b) x 方向および(c) y 方向の直線偏光 Gaussian ビームを照射時に形成されるアゾポリマーの表面レリーフの AFM 像。緑矢印は入射光の偏光方向を示す。(d) 照射時間 14 秒のアゾポリマーフィルムの AFM 像と白矢印に沿った高さプロファイルの経時変化。[6]

7.4. 今後の展望 : 3次元構造の転写

本研究では、光の準粒子による物質操作の可能性を探求し、光によって物質中に渦構造を生成・操作する可能性を示した。その手法として、アゾポリマーの表面レリーフとして、光の準粒子の偏光構造を可視化した。しかし、アゾポリマーの表面レリーフへの転写は、各 2次元面内のビーム断面の偏光や波面構造を反映するに留まり、光の準粒子が持つ本来の 3次元構造を物質に完全に転写するには限界がある。

そこで、3次元立体構造を持ち、分子間相互作用によって特定の方向に配向する性質を持つ液晶材料を用いることで、光の準粒子の 3次元構造を物質に転写できないかと検討している。

実際にガウシアンビームやベクトルビームを液晶材料に照射することで、液晶の分子配向を制御し、その液晶に対してプローブ光を照射すると、出力光を変調した事例も存在する(図 7-3) [7]。

今後、液晶材料で光の準粒子の 3次元構造を再現する試みによって、液晶材料に新たな機能を付与することも期待できる。

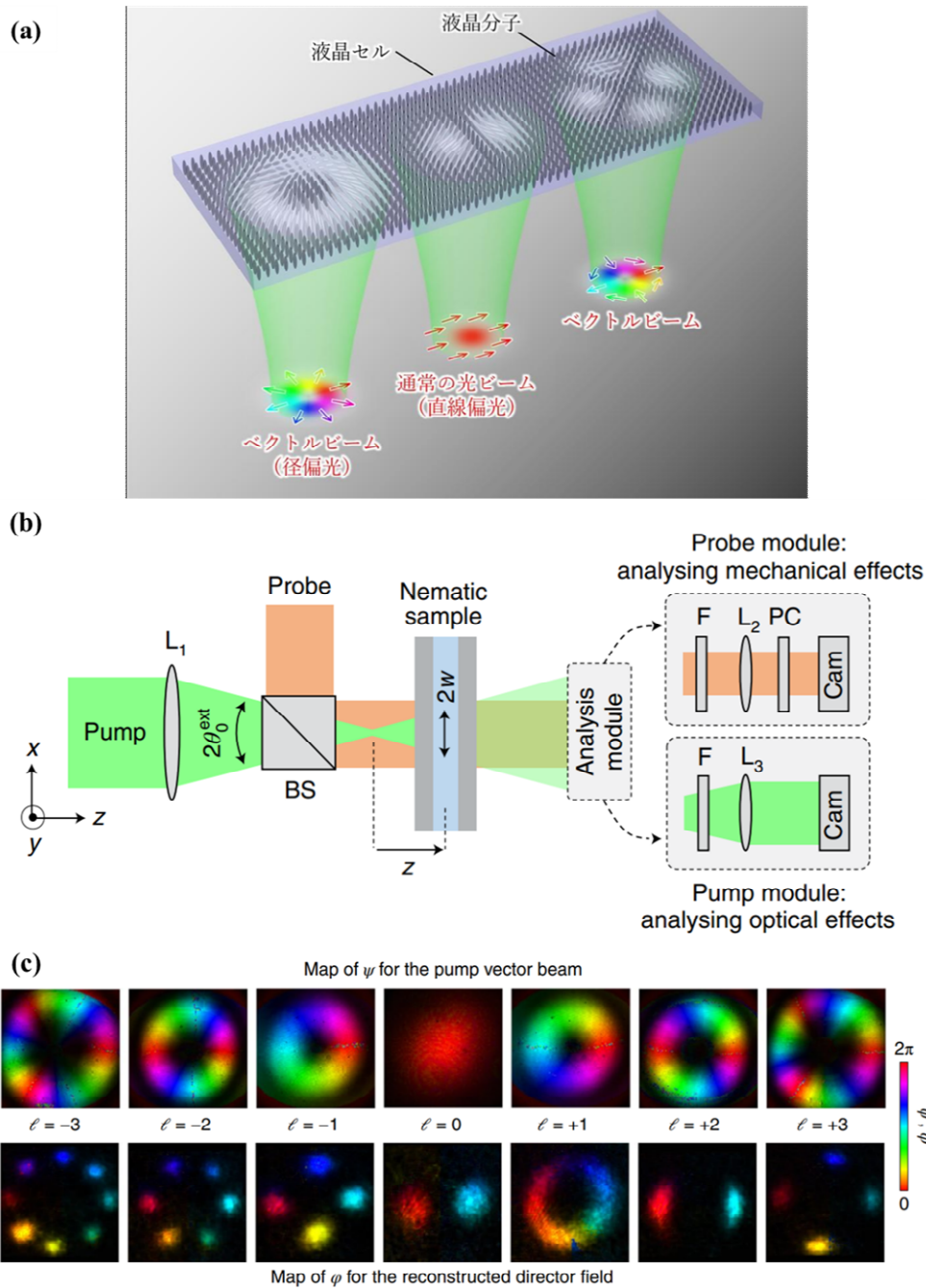


図 7-3 (a)直線偏光 gaussian ビームや円筒対称の偏光を有するベクトルビームによる液晶材料の配向制御の概念図。(b)液晶材料への偏光分布の記録時の実験セットアップ図。(c)液晶材料に記録するポンプ光（記録する光）の偏光分布とプローブ光（読み出し光）によって再生された強度分布。 ℓ は偏光の回転回数と回転方向を表す。 ψ と ϕ は、それぞれビーム内の偏光の方位角を表す。[7]

7.5. 参考文献

1. S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl, and G. Leuchs, "Focusing light to a tighter spot," *Opt Commun* 179(1-6), 1-7 (2000).

2. K. S. Youngworth and T. G. Brown, "Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams," *Opt Express* 7(2), 77 (2000).
3. T. Omatsu, K. Miyamoto, K. Toyoda, R. Morita, Y. Arita, and K. Dholakia, "A New Twist for Materials Science: The Formation of Chiral Structures Using the Angular Momentum of Light," *Adv Opt Mater* 7(14), 1801672 (2019).
4. D. Barada, G. Juman, I. Yoshida, K. Miyamoto, S. Kawata, S. Ohno, and T. Omatsu, "Constructive spin-orbital angular momentum coupling can twist materials to create spiral structures in optical vortex illumination," *Appl Phys Lett* 108(5), (2016).
5. A. Porfirev, S. Khonina, N. Ivliev, A. Meshalkin, E. Achimova, and A. Forbes, "Writing and reading with the longitudinal component of light using carbazole-containing azopolymer thin films," *Scientific Reports* 2022 12:1 12(1), 1–12 (2022).
6. K. Yang, F.-Y. Chan, H. Watanabe, S. Yoshioka, Y. Inouye, T. Uchihashi, H. Ishitobi, P. Verma, and T. Umakoshi, "*In Situ* Real-Time Observation of Photoinduced Nanoscale Azo-Polymer Motions Using High-Speed Atomic Force Microscopy Combined with an Inverted Optical Microscope," *Nano Lett* 24(9), 2805–2811 (2024).
7. M. El Ketara, H. Kobayashi, and E. Brasselet, "Sensitive vectorial optomechanical footprint of light in soft condensed matter," *Nat Photonics* 15(2), 121–124 (2021).