

光渦誘導放出による反跳力の理論解析

梅川佳己^A, 蓬萊貴大^A, 田村守^{A,B,C}, 芦田昌明^A, 石原一^{A,C,D}

大阪大学大学院基礎工学研究科^A

関西学院大学理学部^B

立命館大学総合科学技術研究機構^C

大阪大学産業科学研究所^D

Theoretical analysis of recoil force induced by optical vortex stimulated emission

Y. Umekawa^A, T. Horai^A, M. Tamura^{A,B,C}, M. Ashida^A and H. Ishihara^{A,C,D}

Department of Materials Engineering Science, The University of Osaka^A

School of Science, Kwansei Gakuin University^B

Research Organization of Science and Technology, Ritsumeikan University^C

SANKEN, The University of Osaka^D

We theoretically analyzed the stimulated emission process induced by optical vortices carrying orbital angular momentum (OAM) and clarified the characteristics of the associated recoil force. By verifying the consistency between the Lorentz force and the Maxwell stress tensor, we confirmed that the conservation of angular momentum is strictly satisfied during stimulated emission and quantitatively identified the OAM modes of the emitted photons. Moreover, dynamical simulations of nitrogen-vacancy nanodiamonds (NV-NDs) demonstrated that the recoil force caused by stimulated emission can be experimentally observable. These findings provide a fundamental understanding of optical manipulation based on the combination of optical vortices and stimulated emission.

1. はじめに

Ashkinによる先駆的な研究以来[1]、光が物質に及ぼす力である光圧は、微小物質を非破壊・非接触に操作する画期的な手法として注目され、光ピンセットに代表される多様なマニピュレーション技術へと発展してきた。光圧による操作技術はまずマイクロスケールの物質に対して確立され、その後、原子スケールにおいてもレーザー冷却などの枠組みが確立された[2,3]。一方で、中間領域に位置するナノスケール物質の操作に関しては、サイズに依存して弱くなる光圧が分散媒中の熱揺らぎに打ち勝つ必要があり、従来は容易でない操作であった。しかし近年、この領域における操作原理の確立に向けて、さまざまな手法が提案・発展している。代表的な手法としては、まず局在表面プラズモン共鳴を利用するもの[4,5]が挙げられる。これに対し、電子線共鳴を利用する手法[6,7]も精力的に研究されており、本研究ではこの後者に焦点を当てる。従来、電子線共鳴を利用した光圧操作は吸収に基づいて議論されてきた。共鳴光による分極の増大を通して光圧が強化されることが理論的に提案され[6]、近年ではこの性質を利用して窒素欠陥を含むナノダ

イヤモンド (NV-ND) のみを選択的に光輸送する実験研究も報告されている[7]。しかし、吸収を利用する手法には、吸収飽和に起因する光強度に対する光圧の上限が存在する。この制約を超えるための原理として、我々のグループは2012年に誘導放出を用いた新規の光圧操作の理論を提案した[8]。物質に誘導放出が起こるとき、物質には放出光の進行方向と逆向きの力学的反跳力が生じる。我々はこの力を誘導反跳力 (Stimulated Recoil Force: SRF) と呼んでおり、近年、実験的にも初めて確認され[9,10]、光圧操作の新しい物理的基盤として注目されている。しかし、これまでの研究はいずれも光源としてガウシアンビーム (Gaussian beam) を用い、SRFによる運動変化は光の進行方向に沿った一次元的なものに限られていた。そこで本研究では、軌道角運動量 (OAM) をもつ光、すなわち光渦を光源として採用し、SRFが物質の回転運動に与える影響を理論的に検討する。また、従来、光渦によるトルクや角運動量の転写に関する多くの研究がなされてきたが[11,12]、非線形な誘導放出過程において角運動量保存を厳密に検証し、放出モードを特定しながら発現する光圧を整合的に記述した理論は確立されていな

い。本研究では、光のOAMと誘導放出の双方を全応答場に含めて解析を行う理論モデルを構築した。これにより、光渦による誘導放出とそれに伴う回転方向への反跳力の性質を理論的に明らかにする。最後に、定量的な動力学シミュレーションにより、SRFによる回転制御が実験的にも観測可能であることを示し、光渦による誘導放出と反跳力の基礎的理解を与えることを目的とする。

2. 計算モデルと理論

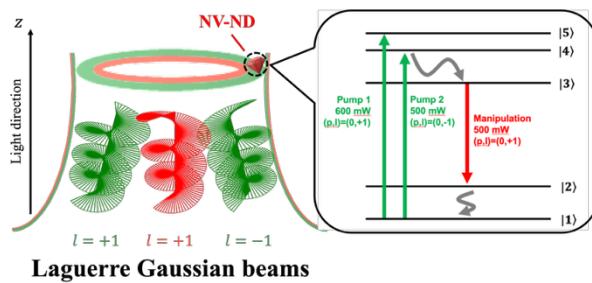


図1 想定する系。室温水中の直径 50 nm の球状 NV-ND に対して片側から 3 つの光渦を照射する。

図1に、本研究で想定する系を示す。励起光として、反対符号のOAMをもつ2つの光渦を用いることで、励起光によって生じる回転方向の光圧を相殺した。この際、励起光同士の干渉を避けるため、それぞれ異なる波長であることを想定し、また波長に依存して散乱力の大きさが変化するため、2つの光渦に対し異なる出力、600 mWと500 mWを設定した。これにより、物質の回転方向に作用する力は、わずかに $l = 1$ による回転方向の力が優勢となる。また、誘導光の出力は500 mWに設定した。操作対象の物質として、光褪色しない堅牢な構造を持つNV-NDを想定し、5準位系としてモデル化する。形状は直径 50 nm の球状とし、室温の水中に分散した条件を仮定する。

光圧の評価に際し、時間平均したLorentz力は以下の式で与えられる[13]。

$$\langle \mathbf{F}_L(\omega) \rangle = \frac{1}{2} \operatorname{Re} \left[\int d\mathbf{r} \nabla \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega)^* \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) \right], \quad (1)$$

ここで、 \mathbf{E}_0 は入射電場、 \mathbf{P} は分極である。電場はヘルムホルツ方程式の近軸近似解の1つであるLaguerre-Gaussianビームを仮定し、振幅分布は以下で与えられる。

$$u_l^{\text{LG}}(r, \phi, z) = \frac{w_0}{w(z)} \left[\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right]^{|l|} \exp \left[-\frac{r^2}{w^2(z)} \right] \times \exp \left[i \left(k_m z + \frac{k_m r^2}{2R(z)} + l\phi - (|l|+1)\eta(z) \right) \right], \quad (2)$$

ここで l は方位角方向モードの指数である。なお、ここで放射方向の指数は $p = 0$ としている。分極は共鳴分極と非共鳴分極に分解できる。共鳴分極は密度行列の運動方程式を非摂動的に解くことで求める。

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)] - \hat{\Gamma} \hat{\rho}(t), \quad (3)$$

$$\langle \mathbf{P}_{\text{res}} \rangle = \operatorname{Tr}[\hat{\rho} \hat{\mathbf{P}}], \quad (4)$$

一方、非共鳴分極は Clausius-Mosotti の関係式に放射反作用補正を加えた形式を用いて評価する。

$$\langle \mathbf{P}_{\text{nonres}} \rangle = \alpha_{\text{CMRR}} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega), \quad (5)$$

$$\alpha_{\text{CMRR}} = \alpha_{\text{CM}} \left(1 - ik^3 \frac{\alpha_{\text{CM}}}{6\pi\epsilon_m} \right)^{-1}, \quad (6)$$

ここで、 k は入射光の波数、 ϵ_m は周囲媒質の誘電率、 α_{CM} は Clausius-Mosotti の関係から得られる分極率である。

誘導放出による運動量保存則を議論するための全応答場は以下の式で与える。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega)$$

$$+ \mu_m \omega^2 \int d\mathbf{r}' \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{P}_{\text{res}}(\mathbf{r}', \omega), \quad (7)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{B}_0(\mathbf{r}, \omega)$$

$$- \frac{i\mu_m \omega}{k_m^2} \int d\mathbf{r}' (\nabla \times \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)) \cdot \mathbf{P}_{\text{res}}(\mathbf{r}', \omega), \quad (8)$$

ここで、 \mathbf{B}_0 は入射磁場であり、 μ_m は周囲媒質の透磁率、 \mathbf{G} は電磁場のGreen関数である。これらの電場と磁場を用いて、時間平均したマクスウェル応力テンソルは次式で表される。

$$\langle \mathbf{T} \rangle = \frac{1}{2} \operatorname{Re} \left[\epsilon_m \mathbf{E} \otimes \mathbf{E}^* + \frac{1}{\mu_m} \mathbf{B} \otimes \mathbf{B}^* - \frac{1}{2} \left(\epsilon_m |\mathbf{E}|^2 + \frac{1}{\mu_m} |\mathbf{B}|^2 \right) \mathbf{I} \right], \quad (9)$$

この $\langle \mathbf{T} \rangle$ を閉曲面で積分して得られる光圧、

$$\langle \mathbf{F}_{\text{MST}} \rangle = \oint_{\partial V} \langle \mathbf{T} \rangle \cdot \hat{\mathbf{n}} dS, \quad (10)$$

は、電磁場が失った運動量に対応し、一方でローレンツ力で与えられる光圧(\mathbf{F}_L)は、物質に転写された運動量に対応する。この両者が一致することを確認することで、運動量収支の整合性を検証する。

最後に、溶媒中におけるNV-NDの運動は次のLangevin方程式に従う。

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt} = \langle \mathbf{F}_L \rangle - 6\pi\eta a\mathbf{v} + \mathbf{F}_{\text{ran}}, \quad (11)$$

ここで m, \mathbf{v}, a はそれぞれNV-NDの質量、速度、半径、 η は媒質の粘性係数、 \mathbf{F}_{ran} は熱揺らぎに由来するランダム力を表す。

3. 計算結果と考察

図2に、式(1)で評価したNV-NDに働く光圧と、その光圧によって与えられるポテンシャル、

$$U(\mathbf{r}) = - \int_{\mathbf{r}_0}^{\mathbf{r}} d\mathbf{r}' \cdot \mathbf{F}_L(\mathbf{r}'), \quad (12)$$

を示す（光圧には非保存力が含まれるが、以下では便宜的にポテンシャルと呼ぶ）。ここで、ビームの集光半径を450 nmとした。図2(A)は、入射光すべての光強度の和を示しており、2つの励起光は定在波を形成せず、円環の強度分布を生じる。図2(B),(C)はNV-NDを変位させて得られた光圧を積分することで評価したポテンシャル分布を示している。図2(B)では、各z位置において横方向の力が釣り合う位置($F_x(x, 0, z) = 0$)を経路として選び、その経路に沿って光圧のz方向成分を積分することでポテンシャルを求めた。一方、図2(C)は(B)で得られたポテンシャルが最も深くなるz位置におけるx方向のポテンシャルを示している。焦点近傍において $10k_B T$ 以上の深さがあることから、安定した光捕捉が可能である。図2(D)は、(C)と同じ断面においてNV-NDに作用する光圧のy成分、すなわち回転方向に作用する力を示す。注目すべき点は、非共鳴光圧がOAMと同方向に作用するのに対し、共鳴分極から得られる誘導反跳力が逆方向に作用することである。これら2つの力の競合の結果、NV-NDは共鳴条件下においてOAMの反対方向へと回転させられることを期待できる。

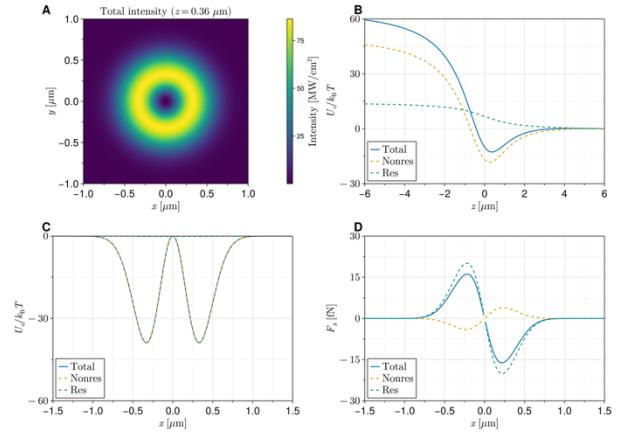


図2.(A) 3本の光渦によって $z = 0.36 \mu\text{m}$ 平面に作る強度分布。(B) z 方向に沿った光ポテンシャル。(C) x 方向ポテンシャル分布。(D) x 方向掃引に対する回転方向力 F_y の分布。青実線は総合力、オレンジ点線は非共鳴力、緑点線は共鳴力を表す。

次に、上記の結果が角運動量保存則を厳密に満たすことを確認し、光渦による誘導放出により入射光と同一モードのOAMをもつ光が増強されることを示す。集光半径を50 μmとし、NV-NDを $x = 35 \mu\text{m}$ に配置したときに $\langle \mathbf{F}_L \rangle$ と、 $\langle \mathbf{F}_{\text{MST}} \rangle$ の値は相対誤差 $10^{-5} \sim 10^{-7}$ 程度で一致した。このことから、誘導放出に伴う反跳力がOAMと逆向きに作用する現象が、角運動量保存則を厳密に満たしていることを確認できた。なお誤差の原因是、使用した光渦場が近軸近似であり、厳密にはマクスウェル方程式を完全には満たさないことに由来する。講演では、この誤差がマクスウェル方程式の残差に由来することを、集光半径依存性を用いて定量的に示す。さらに、誘導放出によって増強される光のモードを評価するために、電磁場が得た角運動量 $\partial J_z / \partial t$ を、マクスウェル応力テンソルから算出し、一方で、同じ閉曲面上での全応答場の単位時間あたりのエネルギー変化 $\partial E_{\text{out}} / \partial t$ から、単位時間あたりの光子数変化 $\partial N_{\text{out}} / \partial t$ を算出し、 $\partial J_z / \partial t$ からと $\partial N_{\text{out}} / \partial t$ を割ることで、誘導放出によって新たに生成された光子がもつ軌道角運動量の l_{stim} の値を評価した。以下に式と結果を示す。

$$\frac{\partial J_z}{\partial t} = - \oint_{\partial V} [\mathbf{r} \times (\langle \mathbf{T} \rangle \cdot \hat{\mathbf{n}})]_z dS, \quad (13)$$

$$\frac{\partial E_{\text{out}}}{\partial t} = \oint_{\partial V} \frac{1}{2} \operatorname{Re}[\mathbf{E} \times \mathbf{H}^*] \cdot \hat{\mathbf{n}} dS, \quad (14)$$

$$\frac{\partial N_{\text{out}}}{\partial t} = \frac{\partial E_{\text{out}}/\partial t}{\hbar\omega}, \quad (15)$$

$$l_{\text{stim}} = \frac{\partial J_z/\partial t}{\hbar(\partial N_{\text{out}}/\partial t)}, \quad (16)$$

表1. 誘導放出された光子のOAMのモードの評価。

l	$\partial J_z/\partial t$ ($\times 10^{-24}$) [J]	$\partial N_{\text{out}}/\partial t$ ($\times 10^{10}$) [s^{-1}]	l_{stim}
1	5.895369	5.590299	1.0000
5	215.2008	40.81293	5.0000

ここで表1に示すように、 $l = 1$ と $l = 5$ について、誘導放出された光子のOAMの指数を評価した。結果として、 $\partial J_z/\partial t > 0$ は誘導放出による電磁場の角運動量の増加を、また、 $\partial N_{\text{out}}/\partial t > 0$ は誘導放出による光子数の増加を示す。これらの結果から、増加した光子1個あたりが持つOAMの l_{stim} を求めるとき、入射光の値と一致した。これは誘導放出によって、入射光と同一モードのOAMをもつ光が放出されたことを意味する。

最後に、動力学シミュレーションにより、これらの効果が実験的にも観測可能であることを示す。シミュレーション時間は0.1秒とし、NV-NDの運動を追跡して初期位置からの累積回転角を評価した。初期位置は図2(B),(C)で得られたポテンシャルが最も深い位置に設定した。比較のため、カラーセンターを含まないナノダイヤモンド(undoped-ND)の結果も示している。ビームの集光半径を450 nmとした。図3(A)はナノダイヤモンドの0.02秒までの運動の軌跡を、図3(B)は累積回転角のヒストグラムを表す。試行回数は2400回とする。結果として、図3(B)に示すように、undoped-NDはz軸を中心に反時計周りに回転するのに対し、NV-NDは時計回りに回転することが分かる。図3(A)はそのうちの一例であり、対応する運動を確認できる。この結果は、室温水中でもSRFによる軌道運動を実験的に観測できる可能性を示す。

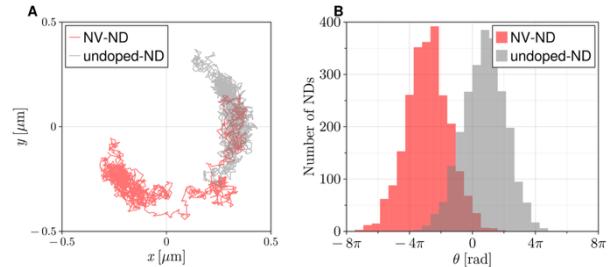


図3.(A)光渦照射下におけるNV-ND(赤)とundoped-ND(黒)の0.02秒までの運動の軌跡。(B)0.1秒後における累積回転角θの出現頻度を示すヒストグラム。

4. まとめ

本研究では、OAMをもつ光渦を用いた誘導放出過程を理論的に解析し、その際に生じる反跳力の性質を明らかにした。マクスウェル応力テンソルとローレンツ力の整合性を確認し、誘導放出過程における角運動量保存則の成立を示した。また、生成される光子が入射光と同一モードのOAMを持つことを明らかにし、SRFによる回転運動が室温水中でも観測可能であることを示唆した。これらの結果は、光渦と誘導放出を組み合わせた次世代の光マニピュレーションの新原理を拓くものである。

参考文献

- [1] A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 156 (1970).
- [2] A. Ashkin and J. M. Dziedzic, *Nature* **330**, 769 (1987).
- [3] T. W. Hänsch and A. L. Schawlow, *Opt. Commun.* **13**, 68 (1975).
- [4] A. N. Grigorenko et al., *Nat. Photonics* **2**, 365 (2008).
- [5] M. Sharifi et al., *J. Controlled Release* **311**, 170 (2019).
- [6] T. Iida and H. Ishihara, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 057403 (2003).
- [7] H. Fujiwara et al., *Sci. Adv.* **7**, eabd9551 (2021).
- [8] T. Kudo and H. Ishihara, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 087402 (2012).
- [9] T. Kudo et al., *Chem. Sci.* **14**, 10087 (2023).
- [10] S. Ito et al., *J. Phys. Chem. C* **128**, 5206 (2024).
- [11] R. A. Beth, *Phys. Rev.* **50**, 115 (1936).
- [12] L. Allen and M. W. Beijersbergen, *Phys. Rev. A* **45**, 8185 (1992).
- [13] T. Iida and H. Ishihara, *Phys. Rev. B* **77**, 245319 (2008).