レーザー光波面制御技術と二光子吸収材料への応用

本稿では液晶空間変調器によるレーザー光波の動的制御技術とその動向について概説する。また、ガウスビームを波面制御して発生できるベッセルモードやラゲールガウスを用いた二光子吸収材料の超解像記録など具体的なデータも紹介する。

尾松 孝茂

1. はじめに

光波の伝播を特徴づけるのは、位相や電場ベクトルの時間・空間分布である。1990年頃から欧米では、“Pulse Shaping”と呼ばれる時間領域の光波制御に対して波面制御を“Beam Shaping”と呼び、おもにレーザー加工などの分野で活発に研究がなされてきた¹⁾。一方、国内では、アト秒パルス光やモノサイクル波発生^{2), 3)}など、“Pulse Shaping”の研究が華やかなのに比べ“Beam Shaping”の研究は大きく立ち遅れている感否めない。とりわけ、“Pulse Shaping”が量子制御などの理学的な香りが強いのに比べ、“Beam Shaping”は産業応用の色彩が強く大学などの研究機関で敬遠されてきたのかもしれない。

このような状況のなか、1992年にAllenらによって提唱された光波の空間分布に依存して現れる軌道角運動量が脚光を浴びるようになってきた^{4)~6)}。古くは光の波面がもつ位相特異点として“光の渦”などと呼ばれてきたものであるが、液晶空間変調器やデフォーミブルミラーなどコンピュータで動的に制御の可能な光学素子が安価で入手できるようになったこと、量子光学や光マニピュレーションなどの理学応用の色彩が強いこと、を背景に“Beam Shaping”の新しい研究テーマとしてリバイバルした。

本稿では、これらの技術背景に立ち液晶空間変調器を用いたレーザー波面制御技術を中心に解説し、その応用例として二光子吸収による点像記録を取り上げる。

2. 液晶空間変調器による動的波面制御

レーザー波面の動的制御は振幅変調と位相変調に分けられる。このうち振幅変調は大きな光損失を伴うため、位相変調を用いるのがより一般的である。しかしながら、液晶の複屈折は実用レーザーの波長である近赤外で小さいために 2π 以上の位相変調を達成することは難しく発生できる波面は大きな制約を受ける⁷⁾。この問題を回避する方法として、ここでは、計算機プログラムによる波面変調を紹介する。所望の波面と平面波の干渉として現れるキャリア周波数成分を加えて計算機プログラムを設計する。たとえば、代表的な“光の渦”であるラゲールガウスビームを生成するためには、

$$U(x, y) = 1 + \cos(k_x x + l \cdot \tan^{-1}(y/x)) \quad (1)$$

で与えられるパターンを液晶空間変調器に表示すればよい。ここで、 l は整数、 k_x はキャリア周波数である。図1(a)に $l=1$ の場合のホログラムを示す。ホログラムの中央部に見られる干渉縞の分岐が回折光の波面に位相特異点をもたらす。このような波面の位相特異点を“光の渦”(Optical Vortex)と呼んでいる。ラゲールガウスビームは波面中央部に“渦”をもつため、その波面はらせん階段状に伝播する(図1(b))。また、光軸に対して互いに対称な2点で位相が逆相となるため、強度分布は図1(c)のようにドーナツ型になる。

一般に回折光として+一次回折光と-一次回折光が現れるが、計算機ホログラムにキャリア周波数成分の奇数次高調波成分をあらかじめ加えることで、-一次回折光を抑制することができる⁸⁾。筆者らは反射型液晶空間変調器を用いて30%近い高い回折効率の+一次回折光を取り出している。

ラゲールガウスモードの応用としてもっとも一般的なものに光マニピュレーションがあげられる^{9), 10)}。液中に浮遊する微粒子の屈折率が周りの溶液に比べ高い場合は、微粒子は光勾配力により光強度の強いほうへ捕捉される。ラ

Takashige OMATSU 千葉大学工学部情報画像工学科 (263-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33)・教授, 博士(工学), 1992年東京大学大学院工学系研究科博士課程修了, 専門は非線形光学, 量子エレクトロニクス。

図1 (a) ラゲル Gauss ビーム発生用の計算機プログラム、中央部分に干渉縞の分岐があり、この部分が位相特異点(光の渦)を発生する。(b) ラゲル Gauss ビームの伝播と(c) その強度分布。

図2 ラゲル Gauss ビームにより捕捉された液中の微粒子
捕捉された9個の微粒子は図中矢印の向きに公転運動する。

ゲル Gauss ビームのように位相特異点を有する波面では、波面が進行方向に対してらせん階段状に伝播するため、捕捉された微粒子にトルクが働き、微粒子はドーナツ状のビームパターンに沿って公転運動する。筆者らの研究室で捕捉し公転運動させた $1\mu\text{m}$ のポリスチレン球を図2に示す。集光されているラゲル Gauss ビームのビームサ

(a)

(b)

図3 (a) 輪帯位相板とその(b) 計算機プログラム内側の円内の領域で位相が π だけずれていることがわかる。

イズは直径約 $5\mu\text{m}$ である。9個の微粒子がドーナツ状に捕捉されていることがわかる。この9個の微粒子が同じ速さで図の矢印方向に円運動するが、その回転速度の大きさはラゲル Gauss ビームの光強度や次数に比例することが知られている。

3. 輪帯位相変調と超解像記録

光の点像は波長で決まる回折限界(エアリーディスク)で制限される。回折限界以下の微小な点像をつくる方法として古くから輪帯開口(リング状の開口)による回折を用いる方法が提案されてきた。輪帯開口による遠視野像(強度分布がベッセル関数となるため、ここでは、以下、ベッセルモードと呼ぶ。)はリング外径で決まる円形開口とリングの内径で決まる円形開口のそれぞれから現れる遠視野像の振幅差で決まるため、中央部の点像は見かけ小さくなる。逆に側波帯(サイドローブ)は大きくなってしまっているので、線形な系では所望の光学性能を得にくい。これに対して非線形な光学系ではサイドローブの効果は大幅に軽減できる。たとえば、二光子吸収材料では、光吸収が光強度の

(a) 遠視野像

(b) 二光子吸収を介して記録される点像

図4 ベッセルモードの遠視野像の計算結果

2乗に比例して起こるために、ピークパワーの弱いサイドローブは実効的に吸収に寄与しない。結果として、回折限界以下の点像を効率よく記録できる。ベッセルモードは以下の式で与えられる¹¹⁾。

$$U(r) = \frac{J_1(kar/f)}{kar/f} - 2 \frac{J_1(kbr/f)}{kbr/f} \quad (2)$$

$J_1(x)$ は一次のベッセル関数、 a, b はリングの外径、リングの内径、 k は波数、 f はレンズの焦点距離である。

実際には波面中央部にある半径 b の円の領域に位相差 π を与えるよう空間変調器に計算機プログラムを表示させれば、輪帯開口を作製することができる(図3)。この場合、 a はレーザービーム半径に対応する。また、リングの内径 b を調整すればベッセルモードの点像半径を任意に変えることができる。この場合、振幅の減算は位相差で行うことになるため、光エネルギーの損失もほとんどない。リング内径 b がリングの外径の $1/\sqrt{2}$ となる場合はとくに遠視野像に光の届かない空孔ができる。図4では、 $b=0.3a$ の場合にベッセルモードと強度の2乗分布を示す。

図5 実験配置図

(a) (b) (c)

図6 (a) ガウスビーム, (b) ベッセルモード, (c) ラゲールガウスビームの遠視野像

4. 波面制御した光波による二光子吸収への応用

筆者らの研究室で波面制御した光波を用いて二光子吸収材料に点像を記録した。使用した二光子吸収材料(エポキシ系紫外線硬化樹脂 SCR701)の吸収波長のカットオフが400 nm 近辺にあるため、光源には再生増幅器付きのチタンサファイアフェムト秒レーザーを用いた。実験光学系は図5に示す。光源波長は780 nm, 繰返し周波数1 kHz, パルス幅150 fsである。レーザーのスペクトル線幅は~6 nmであり、計算機プログラムによる波長分散は無視できる。チタンサファイアレーザーの波面制御には透過型液晶空間変調器(Holoeye LC2002)を用いた。実際に波面制御したレーザーは半波長板と偏光ビームスプリッターを用いてパルスエネルギーが1 μ J, ピークパワーに換算して~0.7 MW になるように減光されたのち、対物レンズ(ミットヨ NA 0.4)でスキャンングステージに固定されている2光子吸収材料に集光されている。また、孤立した点像を記録できるようにステージは一次元走査している。発生させたベッセルモードとラゲールガウスモードを図6に示す。

顕微鏡(対物×100倍)で観測した写真画像(図7)を示す。ベッセルモードを用いた場合の点像は、ガウスビームを用いた場合の点像に比べ、小さいことが確認できる。また、サイドローブは目視では確認できない。数値シミュレーションでも面積比にして回折限界の~0.6倍の点像が記録可能になることがわかる。

また、ラゲールガウスモードを用いた場合、点像そのも

図7 Experimental point spreads pumped by (a) Gaussian mode, (b) Bessel-mode, and (c) LG mode, respectively.

のはガウスビームを用いた場合に比べ明らかに大きい、ラゲルガウスモードが示す波面中央部の光強度のない位相特異点部分に凹ができていことがわかる。露光量の微調整と z 方向の走査と組み合わせれば xy 方向の走査不要でナノチューブ状の光造形も可能となるだろう。

5. ま と め

時間領域の光波制御“Pulse shaping”による化学反応制御は電子の波動関数を直接制御するために、化学反応収率をはじめとする各種パラメータを用いた最適システム設計が必要である。これに対して波面制御“Beam shaping”は加工する材料の空間発展を制御するものであり、簡便で効果的に加工実績を向上させることができる。

現在、市販されている液晶空間変調器やデフォーミブルミラーのほとんどがパーソナルコンピュータ画像面でホログラムパターンを作製するだけで、容易に所望の位相変調を光に与えることができる。したがって、アイデア勝負

で加工性能を飛躍的に改善することもできる。

国内でも、ラゲルガウスモードレーザー¹²⁾や軸対称偏光モードレーザー¹³⁾などの研究が立ち上がりつつある。これは今のところレーザー加速¹⁴⁾などの高強度レーザー物理がおもな目的ではあるが、加工をはじめとする周辺分野への波及効果も十分期待できる。

謝 辞 最後に2光子吸収材料に関して貴重な助言をいただいた東京農工大学の渡邊敏行教授、実験協力いただいた千葉大学大学院自然科学研究科の萩原 淳氏にこの場を借りて感謝したい。

文 献

- 1) F. M. Dickey: *Optics & Photonics News*, **14**(4), 30 (2003)
- 2) M. Yamashita, K. Yamane, R. Morita: *EEE J. Select. Top. in Quantum Electron.*, **12**, 213 (2006)
- 3) A. Kosuge, T. Sekikawa, X. Zhou, T. Kanai, S. Adachi, S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.*, **97** 263901 (2006)
- 4) L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, J. P. Woerdman: *Phys. Rev. A*, **45**, 8185 (1992)
- 5) M. J. Padgett, L. Allen: *Opt. Commun.*, **121** (1-3), 36 (1995)
- 6) A. T. O'Neil, I. MacVicar, L. Allen, M. J. Padgett: *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 053601-1-4 (2002)
- 7) たとえば, Holoeye Photonics AG ホームページ: <http://www.holoeye.com/>
- 8) たとえば, J. W. Goodman: "Introduction to Fourier Optics," 2nd ed., McGraw Hill, New York, 1996
- 9) M. P. MacDonald, K. Volke-Sepulveda, L. Paterson, J. Arlt, W. Sibbett, K. Dholakia: *Opt. Commun.*, **201**(1-3), 21 (2002)
- 10) L. Paterson, M. P. MacDonald, J. Arlt, W. Sibbett, P. E. Bryant, K. Dholakia: *Science*, **292**, 912 (2001)
- 11) 河田 聡編: "超解像の光学", 日本分光学会測定法シリーズ 38, 学会出版センター, 1998
- 12) M. Okida, A. Tonouchi, T. Omatsu: *Opt. Express*, to be submitted
- 13) 小澤祐市, 佐藤俊一: "軸対称偏光ビームの発生と集光特性", 光学, **35**(12), 625 (2006)
- 14) 宮地悟代, 大林 研, 末田敬一, 椿本孝治, 宮永憲明: レーザー研究, **32**, 259 (2004)

Laser Beam Shaping and Its Applications to Two-Photon Absorption Materials

Takashige OMATSU

Dept. of Information and Image Sciences, Chiba University, PRESTO JST

E-mail: omatsu@faculty.chiba-u.jp

Abstract: This report presents laser beam shaping technique by utilizing a liquid crystal spatial light modulator (LC-SLM). The beam shaping can easily produce the Laguerre-Gaussian and Bessel-Gaussian outputs from various conventional lasers such as a Ti:sapphire femto-second laser and a diode-pumped solid-state laser. And we also mention a unique material processing with the beam-shaped Ti-sapphire laser output through two-photon absorption phenomenon. The beam shaping has a potential to apply to the wide range of material processing fields, and it will open up new research fields.

Keywords: Nonlinear Optics, Lasers