2版

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９、Ｚ－１９　（共通）

科研費 KAKENHI

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２８ 年　５ 月 ３１ 日現在

機関番号：１１３０１
研究種目：若手研究(B)
研究期間：2013～2015
課題番号：２５７９００６２

研究課題名（和文）究極的集光スポットを実現する超解像レーザービームの発生

研究課題名（英文）Generation of a super-resolution laser beam producing an extremely small focal spot

研究代表者
小澤　祐市（Kozawa, Yuichi）

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：９０５０９１２６

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,300,000円

研究成果の概要（和文）：　微小集光スポット特性を持つリング状径偏光ビームを，レーザー共振器から直接発生させることに成功した．c-cut Nd:YVO4結晶をレーザー媒質とした平面凹面ミラーからなるレーザー共振器において，共振器長の制御と共振器の光学素子の精密な調整だけで，リング状径偏光ビームが発生した．
　また，レーザー結晶の表面に微細な金のリングパターンを形成することで，非常に簡便にレーザー光の強度分布や偏光状態を制御できることも実証した．
　さらに，レーザー顕微鏡系において径偏光ビームを照明光とした場合の微小散乱体に対する像形成について検証し，径偏光ビームを用いた高空間分解能イメージングの新たな可能性を示した．

研究成果の概要（英文）：A laser beam with an annular-shape and radial polarization, which can produce a small focal spot, was generated directly from a laser cavity. The generation of an annular-shaped beam with radial polarization was demonstrated simply by the precise control of the cavity length and optics in a plane-concave cavity with a c-cut Nd:YVO4 crystal.
We also demonstrated a further simplified method that enables the manipulation of the intensity and polarization distribution of a laser beam by the fine structure of gold ring patterns fabricated on the surface of a laser crystal.
In addition, we investigated the image formation for a small scatterer illuminated by a radially polarized beam in laser microscopy, which revealed a new approach for the enhancement of the spatial resolution in laser microscopy using a radially polarized beam.

研究分野：光工学

キーワード：レーザー共振器　偏光　レーザー顕微鏡

１．研究開始当初の背景

光ビーム断面で半径方向に偏光した径偏光（ラジアル偏光ともいう）は，通常の直線・円偏光ガウスビームとは異なってドーナツ状強度分布となり，その偏光の軸対称性から焦点では光軸に平行に振動する軸方向電場（縦電場成分）のみが強く発生する．この軸方向電場による集光スポットの大きさは，集光する径偏光ビームの強度分布が幅の狭いリング状であると，究極的には 0.36λ/NA (ただしλ：波長，NA：レンズ開口数)に達すると予測されている．これは，例えば一般的に入手可能な高開口数レンズを用いた可視光の単一ビーム集光のみによって 100 nm に迫る集光スポットサイズが得られることを意味し，光の回折限界の指標であるレーリーの基準(0.61λ/NA)を大きく凌駕するものである．このような軸方向電場が有する微小集光特性が近年大きく注目されており，軸方向電場を用いた超解像イメージングに関する理論的・実験的な研究が近年精力的に行われている．

リング状径偏光ビームを実際に発生するためには，径偏光ビームに対して幅の狭い円環状透過マスクを用いる手法が最も簡便である．そのため，円環状透過マスクによる手法は先行研究においてよく用いられてきたものの，原理的に透過率が著しく低くなることから，入射エネルギーの大部分を失い十分な光パワーが得られない，という重大な欠点がある．また，空間光変調器やアキシコンなどの光学素子による強度変換手法では，変換によるビーム品質の劣化や顕微鏡光学系の煩雑化などが実用上大きな障害となっている．

一方で，このようなリング状の強度分布を持つ径偏光ビームをレーザー共振器から直接発生させることができれば，このビームをレーザー顕微鏡における走査ビームとして用いることで，前述した微小集光スポット特性により，高い空間分解能が容易に実現できると期待される．しかしながら，通常のレーザー共振器において空間横モードがリング状で，かつ偏光分布が径偏光となるようなレーザー共振器はほとんど報告されていないのが現状であった．

２．研究の目的

本研究では，上記の究極的な微小集光スポットを形成可能なリング状の強度分布を有する径偏光ビームを，レーザー共振器の発振モードとして直接発生させることを目的とする．具体的には，$Nd:YVO_4$ 等のレーザー結晶を媒質とする固体レーザーにおいて，媒質中での励起光強度分布を制御することによる発振横モード制御と，フォトニック結晶ミラーによる偏光分布制御を組み合わせ，リング状の強度分布を持つ径偏光ビームの発生を試みる．また，上述した径偏光の特異な集光特性について，レーザー顕微鏡光学系を用いて実験的に検証する．

３．研究の方法

(1) リング状径偏光ビームのレーザー共振器からの直接発生

c 軸カット $Nd:YVO_4$ レーザー共振器において，アキシコン素子を用いて励起光をレーザー結晶面に集光することで，リング状の利得分布を形成する．さらに，径偏光のみを選択的に反射するフォトニック結晶ミラーを出力ミラーとすることで，リング状の強度分布を持つ径偏光ビームの直接発振を試みる．発生したビームの品質評価と伝播特性の実験的な検証を進め，レーザー共振器内におけるモード選択機構の解明を行う．

(2) 径偏光ビームの集光特性に対する実験的な検証

径偏光ビームを開口数の大きなレンズで強く集光した場合に生ずる微小集光スポット特性についてレーザー顕微鏡光学系を構築し，実際に検証する．孤立した金属ナノ粒子や蛍光粒子等の微小散乱体を焦点近傍においてピエゾステージにより 3 次元的に精密に走査しながら，その散乱光や蛍光を検出することで，径偏光ビーム焦点での強度分布を計測する．これにより，径偏光ビームの微小集光スポット特性を実験的に検証する．また，これらを通じて，径偏光ビームの偏光特性を用いた新しい超解像イメージングの可能性を探る．

４．研究成果

(1)リング状径偏光ビームのレーザー共振器からの直接発生

研究当初の予定では，アキシコン素子を用いてレーザー結晶面における励起光の強度分布をリング状とすることで，発振横モードをリング状とし，また出力ミラーにフォトニック結晶を用いることで径偏光を選択する構成を計画していたが，研究開始後に *c*-cut $Nd:YVO_4$ 結晶を媒質とするレーザー共振器において，より簡便な構成においてリング状の強度分布を持つ径偏光ビームの発生が可能であることが分かった．

図 1 に示すように，1 軸性の複屈折を示す *c*-cut $Nd:YVO_4$ 結晶を媒質とした平面・凹面ミラーからなるレーザー共振器において，結晶端面を平面ミラーとして使用し，また共振器長を凹面ミラーの曲率半径程度とした．励起光をレンズにより結晶に集光・励起し，レーザー発振を試みたところ，出力ミラーである凹面ミラーの傾きや共振器長を精密に調整することで，図 2 に示すような幅の狭いリン

グ状の強度分布を持つレーザー光の発振を確認した．発生したビームの偏光状態を直線偏光板透過後の強度分布から求めると，径偏光であることが分かった．

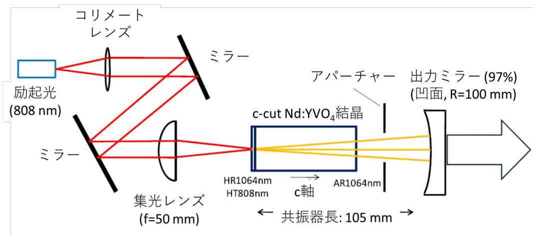

図 1. 共振器光学系

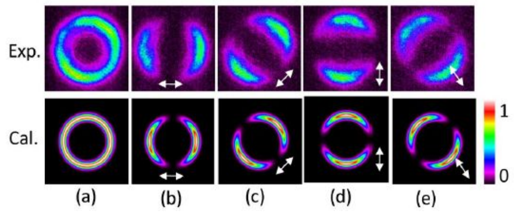

図 2. 発振したレーザー光の横断面強度分布(a)および直線偏光板透過後の強度分布(b)-(e)

発生したビームの強度・偏光分布および伝搬特性を詳細に検討した結果，本共振器から出力したビームは，ベクトルベッセルガウス(Bessel-Gauss) ビームの最低次モードであることが分かった．実際に，発生したビームは理論的なベッセルガウスビームの強度分布・偏光分布ともよく一致することが分かる（図 2)．このビームはビームウェストから十分遠方ではリング状の強度分布となる一方で，ビームウェストでは多重リング状の強度分布を形成する性質を示すが，本共振器から発生したビームについても，同様の特性が実験的に確かめられた．さらに，共振器長や共振器内に挿入したアパーチャーをより精密に調整することで，最低次モードである径偏光に加えて，より複雑な偏光分布を持つ高次（最大で 5 次まで）の高次ベクトルベッセルガウスビームの直接発生にも成功した．

このようなベクトルベッセルガウスビームは，従来には特殊な光学素子を挿入したレーザー共振器からのみ発生が報告されており，本研究のような非常に単純な共振器での発生は皆無である．本手法は，リング状の径偏光ビームを発生させるための簡便な手法として極めて有効であると考えられる．

以上のように，当初計画していたよりもより単純な構成によって，目的としていたリング状の強度分布を有する径偏光ビームの発生を実現すること成功した．

(2) 金リングパターンを形成したレーザー結晶チップからの径偏光ビームの直接発生

前項の手法により，本研究の目的であるリング状径偏光ビームの発生が可能となったが，所望の横モードでのレーザー発振には，依然として共振器長の調整や共振器ミラーのアライメント等を要するという実用上の課題が残されている．そこで，ミラーコーティングが施された厚み 1 mm の薄板 Nd:YVO$_4$ 結晶を直接レーザー共振器とした構成において，これまでよりもさらに簡便にレーザー光の横モードおよび偏光状態を制御する手法を考案した．

本手法では，レーザー結晶の高反射面に幅 500 nm および 100 nm の金による 2 種類のリング状パターンを形成する．このとき，波長 1 ミクロンでのレーザー発振に対して，それぞれの幅のリングパターンがレーザー発振の横モードおよび偏光を選択する可能性に着目するものである．実際に，金リングパターンをレーザー結晶表面に形成し，レーザー発振を試みたところ，励起光の集光位置を調整するだけで，多重リング状径偏光ビームの発振に成功した．本発振において，幅の太い 500 nm のリングは発振レーザー光に対する損失となって，その位置において節となるような高次横モードを選択したと考えられる．一方で，幅 100 nm のリングは波長に対して十分幅が小さく，光の散乱・反射特性に対する偏光の効果が生じたと考えられる．すなわち，ワイヤーグリッド偏光子の原理と同様に，リングに直交する偏光成分（径偏光）に比べて，平行な偏光成分（方位偏光）が結晶面（ミラー面）で相対的に強く散乱され，結果として方位偏光成分に対する共振器損失が大きくなったために，径偏光ビームが発振したと推察される．このことから，発振波長に対して二種類の幅のリングを用いることで，レーザー発振におけるレーザー光の強度分布と偏光分布を制御可能であることが示唆される．

本結果を踏まえ，今後の金リングパターンのさらなる最適化によって，リング状径偏光ビームを極めて簡便に発生させるレーザー共振器が実現するものと期待される．

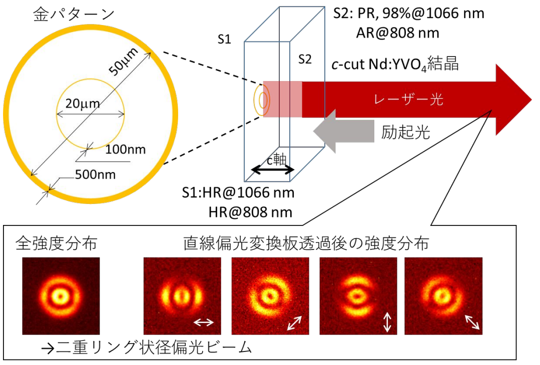

図 3. 金リングパターンを持つレーザー結晶からの高次径偏光ビームの直接発振

(3) 径偏光ビームの集光特性に関する実験的な検証

径偏光ビームの集光特性の特異性は，焦点に生ずる強い軸方向電場にある．まずは，レーザー光の焦点に微小散乱体が存在する場合の光散乱における偏光依存性に着目し，そ

の集光特性に関する理論的な検討を進めた．

径偏光ビームの焦点に微小散乱体が存在する場合の光散乱特性について，ベクトル回折理論に基づくモデルを構築し数値計算を行った．本検討により，共焦点光学系を用いた検出系において，散乱光に対して検出レンズの瞳面において径偏光から直線偏光へと偏光変換を行うことで，軸方向電場に起因した散乱光の検出効率を横方向電場の場合と比較して相対的に増大できることがわかった．すなわち，径偏光ビーム集光により発生した軸方向電場を選択的に検出できる可能性が示された．

実際に，直径 100 nm の金ナノ粒子からの散乱光を検出シグナルとした共焦点レーザー顕微鏡系を構築し，径偏光ビームを照明光として金粒子像を取得すると，前述した数値計算から予測される粒子像の強度分布と一致する結果が得られた．

さらに，径偏光ビームを照明光として前述した偏光変換手法を適用すると，金粒子像のサイズが直線偏光を用いるよりも小さくなることがわかった．このことはレーザー顕微鏡における空間分解能の向上効果を有することを示唆している．また，集光する径偏光ビームの強度や位相分布を高度に制御すると，金粒子像のサイズをさらに小さくできるだけでなく，径偏光ビームを用いた場合に発生するサイドローブの影響も低減できることがわかった．本研究で得られた知見は，径偏光ビームを用いた新たな高空間分解能イメージング法の開発に繋がることが期待される．

５．主な発表論文等
（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 7 件）

① S. Vyas, <u>Y. Kozawa</u>, and Y. Miyamoto, “Creation of polarization gradients from superposition of counter propagating vector LG beams,” Opt. Express 23, 33970-33979 (2015) 査読有, DOI:10.1364/OE.23.033970

② T. Sato, <u>Y. Kozawa</u>, S. Sato, “Transverse-mode selective laser operation by unicursal fast-scanning pumping,” Opt. Lett. 40, 3245-3248 (2015) 査読有, DOI:10.1364/OL.40.003245

③ <u>Y. Kozawa</u> and S. Sato, “Numerical analysis of resolution enhancement in laser scanning microscopy using a radially polarized beam,” Opt. Express 23, 2076-2084 (2015) 査読有, DOI: 10.1364/OE.23.002076

④ S. Segawa, <u>Y. Kozawa</u>, and S. Sato, “Demonstration of subtraction imaging in confocal microscopy with vector beams,” Opt. Lett. 39, 4529-4532 (2014) 査読有 DOI: 10.1364/OL.39.004529

⑤ S. Segawa, <u>Y. Kozawa</u>, and S. Sato, “Resolution enhancement of confocal microscopy by subtraction method with vector beams,” Opt. Lett. 39, 3118-3121 (2014) 査読有, DOI: 10.1364/OL.39.003118

⑥ S. Kanazawa, <u>Y. Kozawa</u>, and S. Sato, “High-power and highly efficient amplification of a radially polarized beam using an Yb-doped double-clad fiber,” Opt. Lett. 39, 2857-2859 (2014) 査読有, DOI: 10.1364/OL.39.002857

⑦ S. Vyas, <u>Y. Kozawa</u>, and S. Sato, “Generation of radially polarized Bessel-Gaussian beams from *c*-cut Nd:YVO_4 laser,” Opt. Lett. 39, 1101-1104 (2014) 査読有, DOI:10.1364/OL.39.001101

〔学会発表〕（計 19 件）

① <u>小澤　祐市</u>, “ベクトルビームの発生とレーザー顕微鏡への応用”第 2 回機能性粉体プロセス研究会, 2015 年 11 月 16 日, 東北大学(宮城県仙台市)

② <u>Yuichi Kozawa</u>, Shunichi Sato, “Enhancement of Longitudinal Field of a Radially Polarized Beam in Confocal Laser Microscopy” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2015), 2015 年 5 月 14 日, San Jose (USA)

③ Takeshi Sumi, <u>Yuichi Kozawa</u>, Shunichi Sato, “Direct generation of radially polarized beams from a Nd:YVO_4 laser chip with a gold ring pattern” Photonics West 2015, 2015 年 2 月 12 日, San Francisco (USA)

④ <u>小澤祐市</u>, 佐藤俊一, “強く集光したビームの軸方向電場に起因した散乱光の観測” 応用物理学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 19 日, 北海道大学 (北海道札幌市)

⑤ <u>小澤祐市</u>, “レーザー光におけるベクトルビームの発生と応用” 放射光学会第 6 回若手研究会, 2014 年 8 月 22 日, SPring-8 キャンパス(兵庫県佐用郡佐用町)

⑥ Susumu Segawa, <u>Yuichi Kozawa</u>, Shunichi Sato, “Enhanced Spatial Resolution in Confocal Laser Microscopy by Subtractive Imaging Using Vector Beams” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2014), 2014 年 6 月 12 日, San Jose (USA)

⑦ Sunil Vyas, <u>Yuichi Kozawa</u>, Shunichi Sato, “Generation of a radially polarized Bessel-Gauss beam from *c*-cut Nd:YVO_4 laser” 応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 16 日, 同志社大学(京都府京田辺市)

〔その他〕
ホームページ等
http://satolab.tagen.tohoku.ac.jp

６．研究組織
(1)研究代表者
　小澤　祐市（KOZAWA, Yuichi）
　東北大学・多元物質科学研究所・助教
　研究者番号：90509126