

干渉パターンを用いた周期配列光渦の形成

大阪大学 レーザー科学研究所
 准教授 中田 芳樹
 (2018年度 一般研究開発助成 AF-2018212-B2)

キーワード：レーザー、干渉パターン、光渦、カイラル構造

1. 研究の目的と背景

「光渦」は電磁波の一形態である。光強度が0となる特異点を中心に円環状の光強度分布と螺旋状の波面を持ち(図1)、これに由来する軌道角運動量 l を持つ。光渦の特異点を利用した超解像STED(Stimulated Emission depletion)顕微鏡がノーベル化学賞を2014年に受賞し[1]、光渦の特殊な構造と性質が注目された。さらに、光渦の起動角運動量を利用した光通信における帯域幅増大[2]、光渦加工によるカイラル構造形成[3-8]、計測技術[9]など、活発な研究領域を形成している。単独の光渦形成法は位相板や空間光変調器(Spatial Light Modulator: SLM)などで完成されているが、複数の光渦を形成する場合はSLMの領域制御などが必要になり、物理的な困難が伴う。ここでは、中田がこれまでに行ってきた干渉パターンの形成と制御法、2015年に中田が発見した周期配列した光渦の形成方法、及びその実証実験の結果を報告する。

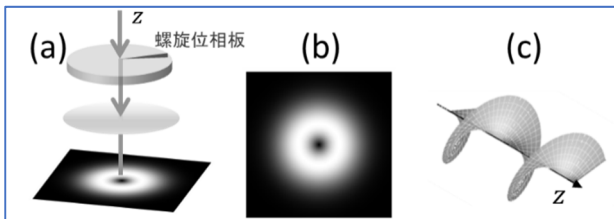


図1 (a)螺旋位相板を用いた単一光渦の形成の模式図、(b)光強度分布、(c)螺旋状波面の模式図

2. 干渉パターン形成と制御法

2.1 干渉パターンのシミュレーション方法

干渉パラメータを用いた物質可能による様々な周期配列3次元ナノ構造やナノ開口の形成が行われてきた。例えば金属ナノドロップ[10, 11]やナノウィスカー[12]の配列構造、スピン角運動量と併用した周期配列カイラル構造[13]、異常透過を持つ周期配列ナノ開口などであり、主にプラズモニクス分野を中心に基礎研究と応用研究が探索されてきた。一方、干渉するビームのパラメータによる干渉パターンの制御に関する研究を平行して進めてきた。ここで、4ビーム干渉と6ビーム干渉の模式図を図2に示す。干渉角 θ_n は一定、方位角は $\Delta\phi_n = \phi_{n+1} - \phi_n = 2\pi/n$ (n :ビームのナンバー)とした。

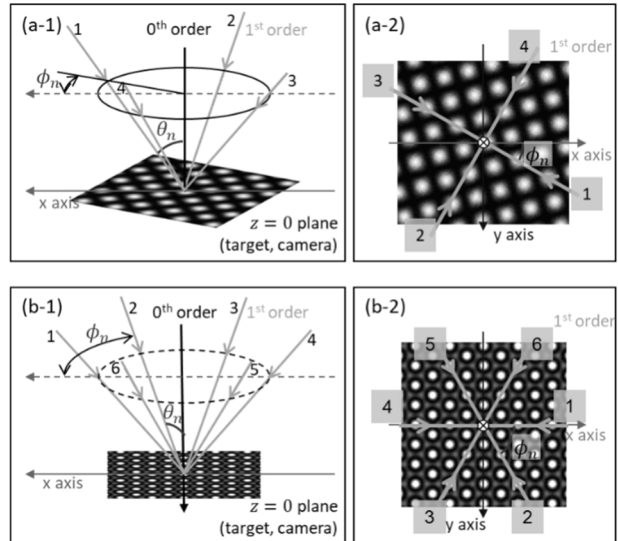


図2 4ビームまたは6ビーム干渉の模式図

次に、 $z=0$ であるターゲット面、あるいはカメラの撮像面における干渉パターンをシミュレートする。この平面上の干渉パターンは次式で表される。

$$I(E_{n0}, x, y, z, k_n, \theta_n, \phi_n, \alpha_n, \omega_n) \propto \int |\sum_{n=1,2,\dots} E_n(E_{n0}, x, y, z, k_n, \theta_n, \phi_n, \alpha_n, \omega_n, t)|^2 dt \dots \dots (1)$$

E_{n0} はビームの電界強度、 k_n は波数、 θ_n は入射角、 α_n はビームに加えられた位相差、 $\omega_n = 2\pi c/\lambda_n$ は角速度である。ここで、平面波は次式で表される。

$$E_n(E_{n0}, x, y, z, k_n, \theta_n, \phi_n, \alpha_n, \omega_n, t) = E_{n0} \cos\{k_n(-x \sin \theta_n \cos \phi_n - y \sin \theta_n \sin \phi_n + z \cos \theta_n) - \omega_n t + \alpha_n\} \dots \dots (2)$$

E_{n0} は電界強度である。これらの2式を用い、 $T = \lambda/c$ の時間を積分する事で干渉パターンが計算出来る。その一部を図3及び4に表す[14-16]。

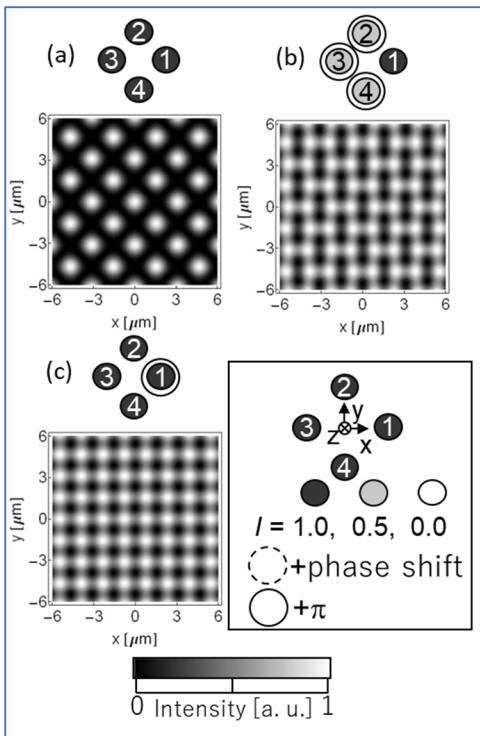


図3 4ビーム干渉パターンのシミュレーション例。右下に各ビーム及び位相の表記、光強度スケールを示す。

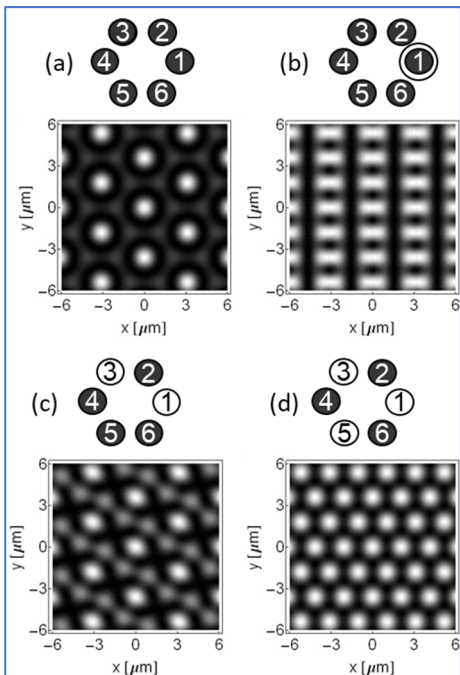


図4 6ビーム干渉パターンのシミュレーション例。位相及び光強度スケールは図3と同様である。

これらの結果から、ビーム間の位相差及び強度比という比較的制御しやすいパラメータを用いる事で干渉パターンの単位構造を様々にデザインする事が可能で有る事が分かった。デザインされた干渉パターンを用いて金属薄膜を加工すれば光強度が弱い部分のみが残り、そのような形

状を持つメタ材料を始めとするプラズモニックデバイスの作製が可能である。

次に、パラメータスキャン部の改修を行う事でより広い範囲のシミュレーションを行った。その結果、光渦と同様の特異点を持つ円環状パターンが三角格子配列する事を2015年に発見した(図5、未発表)。これを超配列光渦(または mega optical vortex) と名付けた。

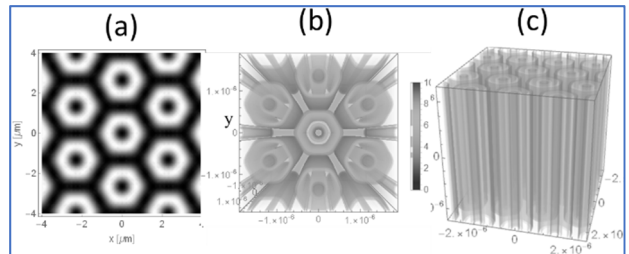


図5 (a)干渉パターンで形成される三角格子配列した光渦、(b)(c)その3D図。

パターン同士の間隔 Λ は通常の6ビーム干渉パターンと同様であり、波長と干渉角で制御出来る。また、図5(c)で分かるように、光強度が0となる特異点が直線状にz軸と平行に伸びる特異な形状を持っている。

2・2 超配列光渦形成の実証実験

mW 級 LD を用いた実証実験の結果について説明する。図6は装置の概略図である。

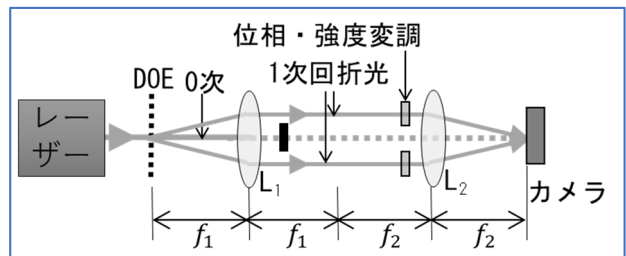


図6 干渉パターン形成装置の概略図

レーザーは波長 mW 級 CW 半導体レーザー(Thorlabs CPS532)を用いた。2枚のレンズからなる $4f$ 光学系の一端に配置した透過型回折格子(DOE: Diffractive Optical Element, Holoor)で6本の1次回折光を発生させ、干渉部にカメラを配置し測定を行う。1次回折光に位相・強度変調部を挿入することで、図3、4で示すような干渉パターンの形成と制御が可能となる。

測定結果を図7に示す(未発表)。図7(a)の位相差がゼロで強度が同じビームを用いた干渉パターンでは、ガウシアンに相似したスポットが三角格子配列する。これに対し、図7(b)では周期 $\Lambda = 48.8\mu\text{m}$ で三角格子配列した円環状のパターンが観測された。図7(c)は θ_n を変えて $\Lambda = 196\mu\text{m}$ に制御した場合である。それぞれの矢印に沿った光強度分布から強度がゼロとなる特異点が周期的に配列しているこ

とが確認され、図4のシミュレーション結果と一致した。これまでに最短周期 $\Lambda = 4.7\mu\text{m}$ を達成した。

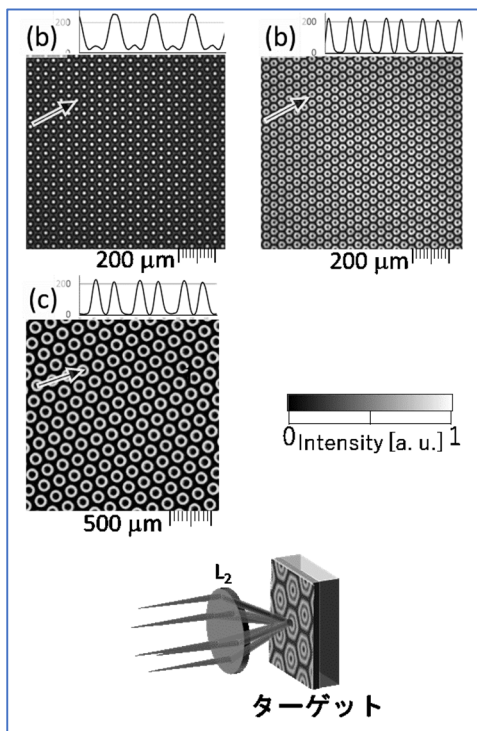


図7 (a)通常の6ビーム干渉パターン、(b)メガ光渦の観察結果($\lambda = 532\text{nm}$, $\theta_n = 0.72^\circ$, $\Lambda = 48.8\mu\text{m}$)。 (c)メガ光渦の観察結果($\Lambda = 196\mu\text{m}$)。各図の矢印に沿った光強度分布をそれぞれの上に示す。右下は光強度のスケール、下は干渉部の模式図。

2・3 超配列光渦を用いた物質加工

単独光渦の光源にハイパワーパルスレーザーを用いて加工を行う事でカイラル構造の作製が可能である[7, 8]。よって、超配列光渦を用いて同様の加工を行う事で、配列したカイラル構造を一括形成出来る可能性がある。ここでは初期的な結果を示す。光源はNd:YAGレーザーの第二高調波であり($\lambda = 532\text{nm}$, $\Delta t \sim 5\text{ns}$)、加工部位におけるショットエネルギーは $E = 10.6\text{mJ}$ である。図8は石英基板に堆積した厚さ約 $3\mu\text{m}$ の金薄膜を加工した結果である。パターン周期 $\Lambda = 9.5\mu\text{m}$ に従った周期構造が形成されており、これは図4(c)(d)で示した超配列光渦と同様である。各単位加工部の中心部近くに、単独光渦を用いた加工でも見られた突起構造が存在する。図8(b)のように、一部には螺旋状に見える構造も見られ、軌道角運動量 $l = 1$ の単独光渦を用いた加工と同様の構造が得られた[3, 4, 7]。一方、周期の乱れ及び突起構造の中心位置からのずれが見られた。前者はビームプロファイルや位相分布の不均一さ、後者は溶融した金属の重力や表面張力による移動などが考えられる。これらを解消するために、ビーム形状と波面がフラットな光源、フルエンス及びターゲット構造の最適化が必要であると思われる。

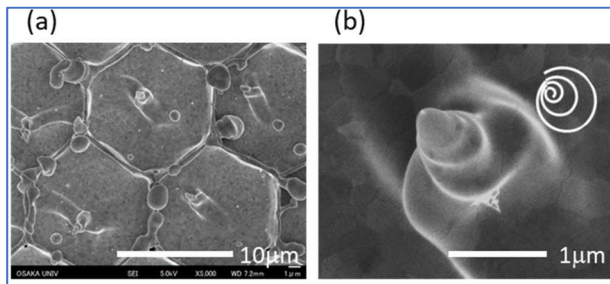


図8 (a)超配列光渦を用いた金薄膜の加工例、(b)拡大図と螺旋のイメージ。

3. まとめと今後

本研究では、光渦を三角格子状に自動配列した「超配列光渦」を形成する事に成功した。光渦の間隔は可変であり、 $\Lambda = 9.5\mu\text{m}$ から $196\mu\text{m}$ まで確認を行った。現状で最大4,600個以上が配列した超配列光渦の形成に成功した。本研究成果については実験を追加した上で論文発表を行う予定である。

本手法の課題として、各光渦の強度が元のビームプロファイルに従って分布することがある。例えば、ビーム中心の光渦強度が強くなり、周辺部に行くほど弱くなる。これを改善するために、空間光変調器(Spatial-Light-Modulator: SLM)と $4f$ 光学系における空間周波数フィルタリングを用いた超精密ビーム整形技術が有効である[17-19]。この手法では、正方形や六角形などダイリングが容易な形状へのビーム整形技術が開発済である。

本手法の発展性について述べる。背景で述べたように、単独の光渦を用いた超解像STED顕微鏡や加工、情報通信帯域の増大、また光トラップや加工などに関する研究が進められている。本技術では、これらの応用で超並列操作やマイクロな現象をマクロに発現させる効果が期待出来る。原理的には紫外からテラヘルツまで同様の光学系を用いた装置構成が可能であり、本技術の波及範囲は非常に広い。今後フォトリソの幅広い分野における応用が期待される。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、公益財団法人天田財団の2018年度一般研究開発助成AF-2018212-B2によって行われたものであり関係各位に厚く感謝の意を表す。

参考文献

- [1] K. I. Willig, S. O. Rizzoli, V. Westphal, R. Jahn, S. W. Hell, STED microscopy reveals that synaptotagmin remains clustered after synaptic vesicle exocytosis., *Nature*. 440 (2006) 935-939. <https://doi.org/10.1038/nature04592>.
- [2] J. Wang, J.-Y. Yang, I. M. Fazal, N. Ahmed, Y. Yan, H. Huang, Y. Ren, Y. Yue, S. Dolinar, M.

- Tur, A.E. Willner, Terabit free-space data transmission employing orbital angular momentum multiplexing, *Nat. Photonics*. 6 (2012) 488-496.
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2012.138>.
- [3] A. Ablez, K. Toyoda, K. Miyamoto, T. Omatsu, Nanotwist of aluminum with irradiation of a single optical vortex pulse, *OSA Contin.* 4 (2021) 403.
<https://doi.org/10.1364/osac.417444>.
- [4] A. Ablez, K. Toyoda, K. Miyamoto, T. Omatsu, Microneedle structuring of Si(111) by irradiation with picosecond optical vortex pulses, *Appl. Phys. Express.* 13 (2020).
<https://doi.org/10.35848/1882-0786/ab8d4b>.
- [5] R. Nakamura, H. Kawaguchi, M. Iwata, A. Kaneko, R. Nagura, S. Kawano, K. Toyoda, K. Miyamoto, T. Omatsu, Optical vortex-induced forward mass transfer: Manifestation of helical trajectory of optical vortex, *Opt. Express.* 27 (2019) 38019-38027.
<https://doi.org/10.1364/oe.382288>.
- [6] K. Masuda, S. Nakano, D. Barada, M. Kumakura, K. Miyamoto, T. Omatsu, Azo-polymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam, *Opt. Express.* 25 (2017) 12499-12507. <https://doi.org/10.1364/OE.25.012499>.
- [7] F. Takahashi, K. Miyamoto, H. Hidai, K. Yamane, R. Morita, Picosecond optical vortex pulse illumination forms a monocrystalline silicon needle, *Nat. Publ. Gr.* (2016) 1-10.
<https://doi.org/10.1038/srep21738>.
- [8] K. Toyoda, F. Takahashi, S. Takizawa, Y. Tokizane, K. Miyamoto, R. Morita, T. Omatsu, Transfer of light helicity to nanostructures, *Phys. Rev. Lett.* 110 (2013) 1-5.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.143603>.
- [9] K. Yamane, Z. Yang, Y. Toda, R. Morita, Frequency-resolved measurement of the orbital angular momentum spectrum of femtosecond ultra-broadband optical-vortex pulses based on field reconstruction, *New J. Phys.* 16 (2014).
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/16/5/053020>.
- [10] Y. Nakata, K. Tsuchida, N. Miyanaga, H. Furusho, Liquidly process in femtosecond laser processing, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2009) 9761-9763.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2009.04.066>.
- [11] Y. Nakata, T. Okada, M. Maeda, Nano-sized hollow bump array generated by single femtosecond laser pulse, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 Lett.* 42 (2003) L1452-L1454.
<https://doi.org/10.1143/JJAP.42.L1452>.
- [12] Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, T. Hiromoto, Solid-liquid-solid process for forming free-standing gold nanowhisker superlattice by interfering femtosecond laser irradiation, *Appl. Surf. Sci.* 274 (2013) 27-32.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2013.02.042>.
- [13] Y. Nakata, M. Yoshida, N. Miyanaga, Parallel fabrication of spiral surface structures by interference pattern of circularly polarized beams, *Sci. Rep.* 8 (2018) 13448.
<https://doi.org/10.1038/s41598-018-31834-3>.
- [14] Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, N. Miyanaga, Design of interference using coherent beams configured as a six-sided pyramid, *Appl. Opt.* 51 (2012) 5004.
- [15] Y. Nakata, T. Hiromoto, N. Miyanaga, Mesoscopic nanomaterials generated by interfering femtosecond laser processing, *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* 101 (2010) 471-474. <https://doi.org/10.1007/s00339-010-5960-1>.
- [16] Y. Nakata, K. Murakawa, K. Sonoda, K. Momoo, N. Miyanaga, T. Hiromoto, Designing of interference pattern in ultra-short pulse laser processing, *Appl. Phys. A* 112 (2012) 191-196. <https://doi.org/10.1007/s00339-012-7239-1>.
- [17] Y. Nakata, K. Osawa, N. Miyanaga, Utilization of the high spatial-frequency component in adaptive beam shaping by using a virtual diagonal phase grating, *Sci. Rep.* 9 (2019) 1-11. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-40829-7>.
- [18] Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Osawa, Numerical simulation of an adaptive beam-shaping technique using a phase grating overlapped via a spatial light modulator for precision square-flat-top beam, *Appl. Phys. A* 126 (2020) 1-6. <https://doi.org/10.1007/s00339-020-03496-4>.
- [19] Y. Nakata, Y. Hirakawa, T. Morizuka, Y. Kosaka, N. Miyanaga, K. Osawa, Improved Efficiency of an Adaptive Beam-Shaping Technique Based on Phase Gratings and Spatial Frequency Filtering, *J. Laser*

Micro/Nanoengineering. 15 (2020) 232-235.
<https://doi.org/10.2961/jlmm.2020.03.2013>.

受賞

- 1) SPIE, Fellow, Y. Nakata, January, 2021.
- 2) International Journal of Extreme Manufacturing (IJEM), IOP publishing Best Paper Award “Nanodot array deposition via single shot laser interference pattern using laser-induced forward transfer”, Y. Nakata, E. Hayashi, T. Koji, A. Narazaki, T. Shoji, Y. Tsuboi
- 3) SPIE, Community champion, Y. Nakata, January, 2020.
- 4) SPIE, Senior member, Y. Nakata, June, 2019.