

修士論文

アキシコンによるビーム整形を用いた
低損失顕微光学系の実証

Demonstration of low-loss microscope optics
with axicon-based beam shaping

令和3年1月27日提出

指導教員 小関泰之准教授

東京大学大学院工学系研究科

電気系工学専攻

学籍番号 37-196457

落合 夏葉

目次

第1章 序章	4
1.1 本研究の背景	4
1.2 本研究の目的と成果.....	4
1.3 本論文の構成	5
第2章 光学顕微鏡における光学原理	6
2.1 レンズの公式とフーリエ変換作用.....	6
2.2 回折限界	7
2.3 空間分解能と実効開口数.....	8
2.4 点像分布関数と光学伝達関数.....	9
第3章 誘導ラマン散乱(SRS)顕微法	10
3.1 非線形光学効果.....	10
3.2 誘導ラマン散乱.....	10
3.3 SRS 顕微法の原理と基本構成.....	13
3.4 空間分解能と光損失、信号強度.....	13
3.5 SRS 顕微鏡の感度	14
3.6 高感度化の有用性.....	14
第4章 量子増強 SRS 顕微鏡	16
4.1 量子光学	16
4.1.1 調和振動子モデル.....	16
4.1.2 光子数状態.....	18
4.1.3 コヒーレント状態.....	20
4.1.4 スクイズド状態.....	21
4.2 量子増強 SRS 顕微鏡の原理	24
4.3 透過率と信号対雑音比向上度の関係.....	25
4.4 量子増強 SRS 顕微鏡の先行研究.....	27
第5章 低損失顕微光学系の構想	29
5.1 低損失ビーム整形法.....	29
5.2 対物レンズ	31
5.3 カバーガラス	31
5.4 対物レンズとカバーガラスの透過率位置依存性.....	31
第6章 ビーム伝搬の数値計算	33
6.1 角スペクトル法.....	33
6.2 アキシコンを用いたビーム整形法におけるビーム伝搬.....	34
6.3 規格化と離散化.....	36
6.4 ビーム整形法のパラメータの最適化.....	38
6.5 ミスアライメントや波面歪みの影響.....	40
6.5.1 ビームパターンへの影響.....	41
6.5.2 信号強度への依存性.....	42
6.6 アキシコンの先端部分の影響.....	44

第 7 章 低損失顕微光学系の構築	45
7.1 光学系	45
7.2 ビームパターン.....	46
7.3 透過率と空間分解能の評価.....	47
第 8 章 結論	49
謝辞	51
参考文献	52
成果リスト	55
付録 A 対物レンズの軸上色収差	56
A.1 色収差測定.....	56
A.2 色収差補正光学系の設計.....	56
付録 B 波面収差	59
B.1 ゼルニケ多項式.....	59
B.2 波面収差計測とアキシコン系における影響の評価	59
付録 C ミスアライメントや波面歪み、アキシコンの先端部分による透過率や空間分解能への影響	61
付録 D アキシコンのアライメント手順	63
付録 E カバーガラスの球面収差によるビームスポットへの影響	65

第1章 序章

1.1 本研究の背景

量子増強計測やイメージングが近年注目を集めている[1-10]。量子増強を用いることでショット雑音限界を超える信号対雑音比(SNR)を得ることができ、高感度化が期待できる。例えば、エンタングルメントはイメージングに使われ、SNRを高める[1,2]。また、スクイージングは粒子追跡に用いられ、感度や空間分解能を高める[3,4]。ほかにも重力波検出に用いられ感度を増強する[5-7]。さらに、高速で染色不要な分子振動イメージングである誘導ラマン散乱(SRS)顕微鏡[11-21]に応用され、高感度化やイメージングの高速化に役立つ[8-10]。

しかし、スクイーズド光は光損失に弱く、光学系に光損失があると量子増強によるSNRの増強度が弱まってしまう。従って、量子増強イメージングでは低損失な光学系が必要不可欠となる[1-3,5-10,22]。しかし、顕微光学系においては以下に示すように、低損失な光学系を構築することが難しい。まず、一般的な対物レンズは透過率が60%から80%と低い。さらに、空間分解能を確保するため、対物レンズに入射するビームが対物レンズの瞳を埋め尽くすように拡大されている必要がある。これにより、レーザから射出されたガウシアンビームの端が対物レンズの瞳で遮られ、光損失が生じてしまう。一方、ビームを細いまま対物レンズに入射すると対物レンズの実効的な開口数(NA)が低くなり、空間分解能が落ちてしまう。このように、空間分解能と光損失がトレードオフの関係にある。これらの理由により、一般的な顕微光学系の透過率は30%から40%程度であり、これでは量子増強の効果はほとんど得られない。

1.2 本研究の目的と成果

本研究ではSRS顕微鏡に量子増強を応用させることを想定し、高空間分解能かつ低損失な顕微光学系を実証する。我々は既に空間分解能と光損失のトレードオフの関係を打破するビーム整形法を提案し実証してきた[23]。このビーム整形法では2枚のアキシコンと呼ばれる円錐型のレンズを用いることで、対物レンズの瞳をまんべんなく埋め、かつ対物レンズの瞳内におさまるようなリングビームを整形する。これにより、空間分解能や信号強度を犠牲にすることなく光損失を抑え、光学系の透過率を高めることができた。そこで、このアキシコンを用いたビーム整形法に加え、高透過率な対物レンズを組み合わせ、80%以上の高透過率な顕微光学系の実現を目指す。対物レンズには反射防止(AR)コーティングをかけた特注のものを用意した。更に、顕微鏡で試料の計測を行う際に用いるカバーガラスにもARコートかけた。これらの高透過率対物レンズ・カバーガラスの透過率位置依存性を計測し、この透過率特性を考慮した上で、ビーム整形が最適になるようにビーム整形法の再設計を行った。ビーム整形の最適化はビーム伝搬の数値計算でパラメータを振り、顕微鏡の性能が最適になるように求めた。さらに、これまでアキシコンを用いた光学系において、アキシコンのアライメントやビームの波面歪みがどれくらい性能に影響を与えるのか、どれだけの

精度のアライメントやビームの波面品質が求められるのか分かっていなかったため、これらを数値計算によって定量的に明らかにした。以上の最適化や数値計算結果をもとにアキシコンを用いた光学系を構築し空間分解能や透過率の評価を行った。空間分解能を落とすことなく光学系全体で 86.6%の透過率を実現した。

1.3 本論文の構成

以下に本論文の構成を示す。第 2 章では顕微光学系における光学原理について説明する。まずレンズのフーリエ変換作用と回折限界について述べた後、顕微鏡の性能を議論する上で重要となる空間分解能と実効 NA や点像分布関数(PSF)、光学伝達関数(OTF)について紹介する。第 3 章では SRS 顕微法について説明する。非線形光学現象や SRS の原理について述べた後、SRS 顕微法の原理と基本構成について説明する。さらに空間分解能と光損失、信号強度の関係や感度について述べ、高感度化の有用性を説明する。第 4 章では量子増強 SRS 顕微鏡について説明する。まず量子光学の基礎として、調和振動子モデルや光子数状態やコヒーレント状態、スクイーズド状態について述べる。その後、量子増強 SRS 顕微鏡の原理を説明する。さらに量子増強 SRS 顕微鏡を実現する上で重要となる透過率と SNR 向上度の関係について議論する。最後に量子増強 SRS 顕微鏡の先行研究を紹介する。第 5 章では量子増強 SRS 顕微鏡に必要な低損失顕微光学系の構想について述べる。低損失ビーム整形法について説明した後、今回用意した対物レンズとカバーガラスを紹介し、それらの透過率の位置依存性の計測結果を示す。第 6 章ではビーム伝搬の数値計算について述べる。まず数値計算に用いる角スペクトル法について紹介し、ビーム整形法におけるビーム伝搬について説明する。次に一般性を上げるための規格化と数値計算を行う上で必要となる離散化について説明し、ビーム整形法的设计を決めるために行ったパラメータの最適化の結果を示す。さらに、アキシコンのミスアライメントや波面歪みがこの光学系に与える影響を示す。また、欠陥があるアキシコンの先端部分の影響を示す。第 7 章では構築した低損失ビーム整形法について説明する。まず光学系について述べ、実験で得られたビームパターンを示す。最後に本手法の透過率と空間分解能の評価を行う。さらに付録として、対物レンズの軸上色収差に関する検討、アキシコン系における波面収差の影響の評価、ミスアライメントや波面歪み等の透過率、空間分解能への影響、アキシコン系のアライメント手順、カバーガラスの球面収差によるビームスポットへの影響を記す。

第2章 光学顕微鏡における光学原理

本章では光学顕微鏡における光学原理について述べる。まず、レンズの公式やビーム伝搬を考える上で基本となるレンズのフーリエ変換作用について説明し、光学顕微鏡の空間分解能を決定づける回折限界について述べる。次に空間分解能と実効開口数（実効 NA）の関係について説明し、最後に空間分解能の指標となる点像分布関数(PSF)と光学伝達関数(OTF)を紹介する。

2.1 レンズの公式とフーリエ変換作用

レンズはビームを集光するデバイスであるが、Fig. 1のように、入射ビームの波面の曲率を変化させるデバイスであるとも考えることもできる。Fig. 1(a)では、波面曲率が $1/f$ の球面波がレンズに入射し、レンズ後では波面曲率が0の平面波に変換されている。一般に、焦点距離 f のレンズは入射前と後で波面曲率を $1/f$ だけ変化させる。Fig. 1(b)のように波面曲率が a で拡散するビームがレンズに入射すると、波面曲率 b で収束するビームが射出される。このとき次式が成り立つ。

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b} = \frac{1}{f} \quad (2.1)$$

波面曲率の正負は、入射ビームに関しては拡散するビームを正、射出ビームに関しては収束するビームを正として考える。

また、Fig. 1(a)の状況は、点光源から出た光の球面波が十分長い距離伝搬することでフランホーファー回折し、平面波となる状況と同じである。ある面における複素電界を $A_1(x, y)$ 、この面がフランホーファー回折したあとの複素電界を $A_2(x, y)$ とおくと、フランホーファー回折の効果は以下のように表せる。

$$A_2(x, y) = \frac{\exp(ikz)}{i\lambda z} \exp\left(\frac{ik(x^2 + y^2)}{2z}\right) \iint A_1(x, y) \exp\left(-\frac{ik(Xx + Yy)}{z}\right) dXdY \quad (2.2)$$

この積分はフーリエ変換となっており、フランホーファー回折の効果はフーリエ変換と等しい。同様に、レンズもフーリエ変換作用を持つと考えることができ、レンズの焦点距離 f 手前の面とレンズの焦点距離 f 後ろの面が互いにフーリエ変換の関係になっている。

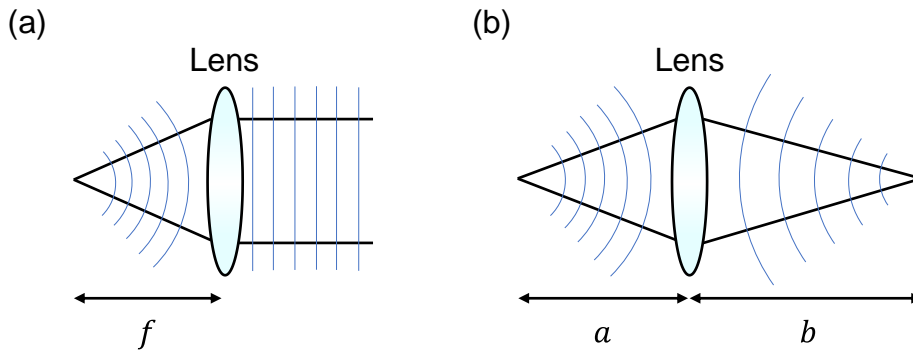


Fig. 1 (a), (b) Schematic of conversion of wavefront curvature by lens. f : focal length of the lens; a : wavefront curvature of the input beam; b : wavefront curvature of the output beam.

2.2 回折限界

光は伝搬とともにその強度分布が変化する。この現象を回折といい、光学顕微鏡の空間分解能はこの回折によって決まる。光の波長を λ 、レンズの開口数をNAとすると、回折限界による空間分解能は次式(2.3)で与えられる[24]。

$$\Delta x = 0.61 \frac{\lambda}{\text{NA}} \quad (2.3)$$

これはレイリーの分解能と呼ばれる。試料を2つの発光点として考え、また対物レンズの瞳における強度分布が一定であると仮定して導かれる式である。2つの発光点がレンズにより結像されると、回折によって像が拡がり、ぼやける。その2つを識別できる最小の距離 Δx が空間分解能となる。また、NAはレンズがどれくらい光を取り込めるかの指標であり、Fig. 2のように、光軸とレンズが取り込める光の一番外側の間の角度を θ_{max} とすると、

$$\text{NA} = n \sin \theta_{max}$$

と表される。ただし、 n は光が伝搬する媒質の屈折率である。(2.3)よりNAを大きくすればするほど Δx は小さくなり、空間分解能が高くなることが分かる。よって光学顕微鏡ではNAを大きくして空間分解能を高める。

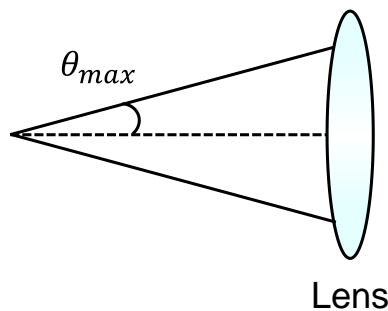


Fig. 2 Numerical aperture of lens.

また、Fig. 3 は2つの発光点がレンズの回折によってどのように拡がるかを示したものである。それぞれの発光点は $(J_1(r)/r)^2$ という関数で拡がり、強度が最大のところからゼロ点までの距離が $0.61\lambda/NA$ になる。 $J_1(r)$ は1次のベッセル関数である。これがレイリーの分解能の理論的背景である。

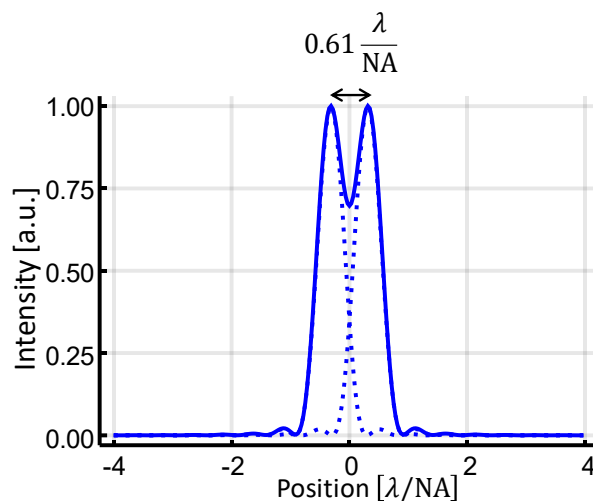


Fig. 3 The Rayleigh criterion.

2.3 空間分解能と実効開口数

前節で述べた通り、空間分解能を高めるには NA の大きなレンズを使うことが重要である。しかし、せっかく NA の大きなレンズを用いても、その集光能力を活かさないと意味がない。Fig. 4(a)ではレンズが光を取り込める角度 θ_{max} いっぱいまで、レンズに入射するビームを拡大しているため、レンズの NA をフルで活かすことができる。一方、Fig. 4(b)はレンズに入射するビームが細く、レンズの NA を最大限活かしてきれていない。このときの実質的な集光能力を実効 NA と呼ぶ。このとき、実効 NA は図中の θ を用いて

$$NA_{effective} = n \sin \theta$$

となる。このように、実際に空間分解能を高めるためにはビームを対物レンズの瞳いっぱいに広げるなどして、実効 NA を高めることが必要である。

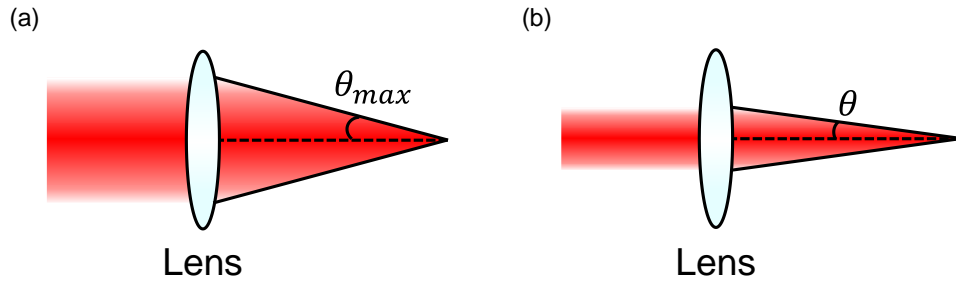


Fig. 4 Relation between spatial resolution and effective NA.
 (a) Focusing with wide beam. (b) Focusing with thin beam.

2.4 点像分布関数と光学伝達関数

空間分解能を評価する指標として点像分布関数(PSF)と光学伝達関数(OTF)がある。PSFは微小な発光点を結像した場合の強度分布であり、発光点が結像によってどれだけ広がるかを見ることができる。PSFは、結像系の強度分布を線形系として表現する場合の系のインパルス応答に相当する。OTFは像に各空間周波数成分がどれだけ含まれているか見ることができ、結像のコントラストを示したものである。これは系の伝達関数に相当し、PSFとOTFは互いにフーリエ変換の関係にある。PSFの幅が狭いほど、発光点の拡がり小さくなるため空間分解能が高い。また、OTFの帯域が広いほど、より細かい干渉縞をつくる高周波成分が含まれることになるので、空間分解能が高くなる。更に、OTFが平坦であればあるほど細かいものはっきりと見え、コントラストの良い像になる。

Fig. 5にインコヒーレント結像系のPSFとOTFを示す。Fig. 5(a)は前節で述べた $(J_1(r)/r)^2$ の分布になっている。Fig. 5(b)は $(J_1(r)/r)^2$ を2次元フーリエ変換した関数になっている。 $2NA/\lambda$ より高周波の領域ではOTFの値が0になっていることから、この結像系では $2NA/\lambda$ より高周波の成分は見ることができないと分かる。

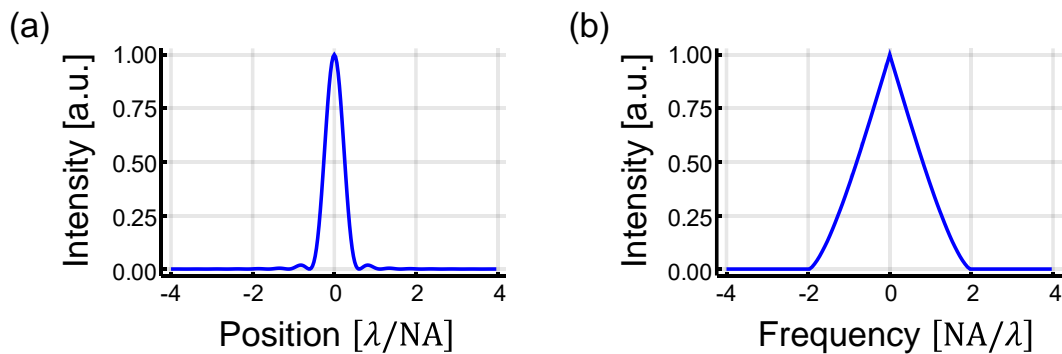


Fig. 5 (a),(b) PSF and OTF in the incoherent imaging system.

第3章 誘導ラマン散乱(SRS)顕微法

本章では、誘導ラマン散乱(SRS)顕微法について説明する。まず非線形光学効果について述べた後、SRSの原理とそれを利用したSRS顕微法の原理、構成について紹介し、SRS顕微鏡の空間分解能と光損失や信号強度の関係について説明する。さらにSRS顕微鏡の感度について述べ、SRS顕微鏡を高感度化する有用性について説明する。

3.1 非線形光学効果

光と物質の相互作用は物質中に誘起される分極で表現することができる。光強度が弱いとき、分極 P は光電場 E に比例し、

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad (3.1)$$

と表すことができる。 ϵ_0 は真空の誘電率、 χ は電気感受率である。このように光に対する物質の応答が線形な現象を線形光学現象という。直進、反射、屈折、回折、干渉などがこれにあたる。

一方、レーザ光のような高強度の光が物質に入射したとき、分極の非線形性を無視できなくなり、物質の応答は光電場に比例しなくなる。このとき起こる現象を非線形光学現象という。非線形光学現象において、分極は以下のように光電場の冪級数で展開できる。

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots] \quad (3.2)$$

ここで、電場の2乗に比例する第2項を2次の非線形分極、係数の $\chi^{(2)}$ を2次の非線形感受率といい、同様に、電場の3乗に比例する第3項を3次の非線形分極、係数の $\chi^{(3)}$ を3次の非線形感受率という。

3.2 誘導ラマン散乱

誘導ラマン散乱(SRS)は3次の非線形光学現象である。SRSについて説明する前にまず自発ラマン散乱について述べる。

光散乱の中には散乱光が入射光と同じ周波数であるレイリー散乱と、周波数がシフトするラマン散乱やブリルアン散乱がある。ラマン散乱は主に媒質の分子振動や光子振動による散乱であり、媒質に特有な周波数だけ入射光の周波数がシフトする。このとき、入射光に対して低周波側にシフトしたものをストークス・ラマン散乱、高周波側にシフトしたものを反ストークス・ラマン散乱という。ここで、分子振動によるラマン散乱について考える。固有振動の位置を $q(t)$ とすると、分子の分極率 α は座標の1次まで展開すると以下のように表される。

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_1 q(t) \quad (3.3)$$

ただし、 α_0 は $q = 0$ のときの分極率、 $\alpha_1 (\equiv \partial \alpha / \partial q)$ は分子振動によって誘起された分極率である。さらに分子の振動周波数を ω_R 、振幅を q_0 とすると

$$q(t) = \frac{1}{2} q_0 \exp(-i\omega_R t) + \text{c. c.} \quad (3.4)$$

であるから、(3.3)に(3.4)を代入して、

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{1}{2} \alpha_1 (q_0 \exp(-i\omega_R t) + \text{c. c.}) \quad (3.5)$$

となる。ここで、角周波数 ω の光が入射したときを考える。光電場 $E(t)$ を

$$E(t) = \frac{1}{2} E \exp(-i\omega t) + \text{c. c.} \quad (3.6)$$

と表すと、この光によって生じる電気双極子モーメント p は以下のようにになる。

$$\begin{aligned} p &= \alpha E \\ &= \left(\alpha_0 + \frac{1}{2} \alpha_1 (q_0 \exp(-i\omega_R t) + \text{c. c.}) \right) \left(\frac{1}{2} E \exp(-i\omega t) + \text{c. c.} \right) \\ &= \frac{1}{2} \alpha_0 E \exp(-i\omega t) + \frac{1}{4} \alpha_1 q_0 E \exp(-i(\omega + \omega_R)) + \frac{1}{4} \alpha_1 q_0 E \exp(-i(\omega - \omega_R)) \end{aligned} \quad (3.7)$$

(3.7)の第1項はレイリー散乱に対応している。また第2項、第3項はそれぞれ角周波数 $\omega + \omega_R$ 、 $\omega - \omega_R$ で振動しており、それぞれが反ストークス・ラマン散乱とストークス・ラマン散乱に対応していることが分かる。

次に誘導ラマン散乱について考える。2つの周波数 ω_p 、 ω_s ($\omega_p > \omega_s$)の光が入射する場合を考え、光電場を以下のように表す。

$$E(x, y) = \frac{1}{2} E_p \exp(-i\omega_p t) + \frac{1}{2} E_s \exp(-i\omega_s t) + \text{c. c.} \quad (3.8)$$

また、この時2つの光の差周波数 $|\omega_p - \omega_s|$ が分子振動の周波数 ω_R とほぼ共鳴している ($|\omega_p - \omega_s| \cong \omega_R$) とする。この差周波数が分子振動周波数と共鳴すると、固有振動を励振する。よって固有振動の位置 $q(t)$ は以下のように表される。

$$q(t) = \frac{1}{2} q_0 \exp(-i(\omega_p - \omega_s)t) + \text{c. c.} \quad (3.9)$$

また、分子振動を調和振動子で近似すると、分子振動の運動方程式は

$$m \left(\frac{d^2 q(t)}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dq(t)}{dt} + \omega_R^2 q(t) \right) = F \quad (3.10)$$

と表せる。ただし、 m は分子振動の換算質量、 Γ は減衰係数、 F は分子に働く力である。また、 F は分子に電気双極子モーメント p が生じたとき、分極をつくるのに必要なエネルギーを W とすると、

$$F = \frac{\partial W}{\partial q} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} \Delta W &= p \cdot \Delta E \\ &= \alpha E \Delta E \end{aligned} \quad (3.12)$$

となる。よって、

$$\begin{aligned}
W &= \int \Delta W \\
&= \int \alpha E dE \\
&= \frac{1}{2} \alpha E^2
\end{aligned} \tag{3.13}$$

と表せる。ここで、 $E^2(t)$ の周波数成分のうち、 $\omega_p - \omega_s$ の周波数成分が分子振動に対する外力として働くので、外力を

$$F(t) = \frac{1}{4} \alpha_1 E_p E_s^* \exp(-i(\omega_p - \omega_s)t) + \text{c. c.} \tag{3.14}$$

とおくと、(3.9)、(3.10)、(3.14)より、(3.10)の定常解は、

$$q_0 = \frac{\alpha_1 E_p E_s^*}{2m(\omega_R^2 - (\omega_p - \omega_s)^2 - 2i(\omega_p - \omega_s)\Gamma)} \tag{3.15}$$

と解ける。ここで、分子の密度を N とすると、(3.8)、(3.9)より

$$\begin{aligned}
P &= Np \\
&= N\alpha E \\
&= N \left(\alpha_0 + \alpha_1 \left(\frac{1}{2} q_0 \exp(-i(\omega_p - \omega_s)t) + \text{c. c.} \right) \right) \left(\frac{1}{2} E_p \exp(-i\omega_p t) + \frac{1}{2} E_s \exp(-i\omega_s t) + \text{c. c.} \right)
\end{aligned} \tag{3.16}$$

となる。ここに(3.15)を代入すると、 P のうち、分子振動によって生じる非線形分極の ω_p 成分の複素振幅 $P(\omega_p)$ と ω_s 成分の複素振幅 $P(\omega_s)$ はそれぞれ以下ようになる。

$$P(\omega_p) = \frac{N\alpha_1^2 E_p |E_s|^2}{8m(\omega_R^2 - (\omega_p - \omega_s)^2 - 2i(\omega_p - \omega_s)\Gamma)} \tag{3.17}$$

$$P(\omega_s) = \frac{N\alpha_1^2 E_s |E_p|^2}{8m(\omega_R^2 - (\omega_p - \omega_s)^2 + 2i(\omega_p - \omega_s)\Gamma)} \tag{3.18}$$

$\omega_p - \omega_s = \omega_R$ のとき、これらの振幅が最大となり、

$$P(\omega_p) = \frac{iN\alpha_1^2 |E_s|^2 E_p}{16m\omega_R\Gamma} \tag{3.19}$$

$$P(\omega_s) = -\frac{iN\alpha_1^2 |E_p|^2 E_s}{16m\omega_R\Gamma} \tag{3.20}$$

ここで、(3.19)から、 ω_p 成分の複素振幅が正の純虚数であるため、 ω_p における感受率の虚部が正であることが分かる。感受率の虚部は吸収を表すので、感受率の虚部が正であることは吸収を受けることを示す。よって ω_p 成分の光は吸収され、同様の議論から ω_s 成分の光は増幅を受けることがわかる。このように、誘導ラマン散乱は2つの周波数の光を入射したとき、分子の振動周波数 ω_R が $\omega_R = \omega_p - \omega_s$ という条件を満たすと、 ω_p 成分の光は減衰し、同様の議論から ω_s 成分の光は増幅する現象である。このとき、 ω_p 成分の光をポンプ光、 ω_s 成分の光をストークス光と呼ぶ。また、(3.16)に含まれる $2\omega_p - \omega_s$ の振動成分はコヒーレント

ラマン散乱と呼ばれ、Coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS)顕微鏡[25-27]に用いられている。

3.3 SRS 顕微法の原理と基本構成

誘導ラマン散乱を顕微鏡に応用したものが SRS 顕微鏡である。SRS 顕微法では 2 色の同期したパルスレーザを試料に照射し、集光点での SRS を測定する。SRS 顕微鏡の基本構成を Fig. 6 に示す[13,14]。

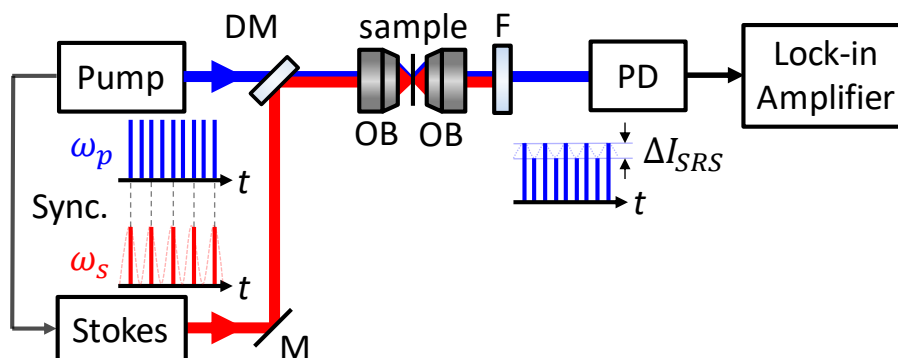


Fig. 6 Schematic of SRS microscopy. M: mirror; DM: dichroic mirror; OB: objective lens; F: short-pass filter; PD: photo diode.

初めに、入射光として周波数 ω_p のポンプ光と ω_s のストークス光を用意する。本研究室では、ポンプ光には中心波長 790 nm、繰り返し周波数 76 MHz のチタンサファイア(TiS)レーザ、ストークス光には中心波長 1030 nm、繰り返し周波数 38 MHz の Yb 添加ファイバレーザを用いている[6,7]。 ω_s の光パルスと ω_p の光パルスを同期させた後、対物レンズにより試料に集光照射する。試料分子の振動周波数 ω_R が $\omega_R = \omega_p - \omega_s$ という関係を満たすとき、SRS が生じ、 ω_p の光が吸収され、 ω_s の光が増幅される。 ω_s の光はフィルタにより取り除かれ、 ω_p の光をフォトダイオード(PD)で検出する。 ω_s のパルスの繰り返し周波数を ω_p の繰り返し周波数の半分にするので、SRS による強度変化のあるパルスと強度変化のないパルスが交互に来るので、PD からの電流を ω_s の繰り返し周波数でロックイン検出し SRS 信号が得られる。スキャナを用いてビームを走査し、試料全体のイメージングを行う。また ω_s の波長を変化させ、複数の分子振動情報を得ることができる。

3.4 空間分解能と光損失、信号強度

SRS 顕微鏡のようなレーザ走査型顕微鏡において空間分解能を上げるためには、対物レンズの実効 NA を大きくし、より細かい干渉縞をつくる高周波の信号を増やせばよい。実効 NA を大きくする方法としてビーム径を広げて対物レンズの瞳面の外側の方に入る光の強

度を大きくする、位相変調を行う、などの方法がある。しかし前者は従来のガウシアンビームを拡大する場合、ビームの外側が対物レンズの瞳で蹴られるため光損失が大きくなる。また後者の場合も一般に低周波の成分が下がることが多く、全体の信号が落ちるといった問題が生じる[28,29]。このように、空間分解能と光損失や信号強度を両立するのは困難である。

3.5 SRS 顕微鏡の感度

SRS 顕微鏡ではロックイン検出した信号を SRS 信号として得る。ここに光計測に伴う熱雑音やショット雑音などが乗り、信号対雑音比(SNR)を低下させる。熱雑音は検出器の抵抗内の電子の熱運動によって生じる雑音である。抵抗値を R とした時、この抵抗の両端に単位周波数あたり実効値電圧

$$v_{th} = \sqrt{4k_bTR} \quad (3.21)$$

を持つ雑音が発生する。ただし、 k_b はボルツマン定数、 T は抵抗の絶対温度である。一方、ショット雑音は光子数のゆらぎに起因する雑音である。光子は検出器に確率的に到来し、光子の個数 k の確率分布はポアソン分布に従い、

$$p(k) = \frac{\lambda^k e^{-\lambda}}{k!} \quad (3.22)$$

で与えられる。ただし、 λ は光子の個数の平均値である。ポアソン分布では分散と平均値が等しいため、分散値も λ となる。よって SNR は

$$\text{SNR} = \frac{\lambda^2}{\lambda} = \lambda \quad (3.23)$$

となる。(3.23)より、平均の光子数が大きいほど、つまり検出する光の強度が大きいほど SNR が高くなることが分かる。しかし、生体イメージングでは、光の強度を大きくしすぎると試料にダメージを与えてしまい、性質を変えてしまう恐れがある。よって光の強度を大きくして感度を高めるには限界がある。古典的な手法ではこのショット雑音限界で感度が制限されるため、ショット雑音限界を破る感度を得るには量子的な手法が必要になる。

3.6 高感度化の有用性

生物学・医学において、脂肪酸、神経伝達物質、核酸、糖、アミノ酸などの細胞内外での代謝、認知、記憶や思考などの生体現象を司る、小さな生体分子のイメージングが重要になっている。一方、SRS 顕微鏡の信号強度は分子の濃度に比例する。従来の SRS 顕微鏡では、感度が足りないため、このような小さな生体分子が生合成により大きな分子に凝集したものをイメージングしている[30]。凝集する前の小さな生体分子を見るには積算回数を上げる必要があり、イメージングに長時間かかってしまう。

また、蛍光イメージングではたんぱく質のイメージング応用は進んでいるものの、小さな生体分子をイメージングしようとするとき、蛍光分子の方が大きいため、生理学的な性質を変えてしまう可能性があり困難である。

このように、これまで小さい生体分子を見ることのできるイメージング技術が確立されていなかった。ここで、SRS顕微鏡に量子増強の技術を用い、高感度化することで小さな生体分子をイメージングすることができると考えられる。

さらに、感度が上がることで、平均化のための積算回数を抑えることができ高速化につながるが、これは超多色イメージング[31,32]など、従来ではイメージングに長時間かかってしまう手法にも有効である。

第4章 量子増強 SRS 顕微鏡

SRS 顕微鏡の感度は前章 5 節で説明したショット雑音で制限されている。光パワーを高めると感度は向上するが、生体へのダメージが起きてしまう。そこで本研究ではスクイーズド真空場という量子光源を用いてショット雑音限界を上回る高感度 SRS 顕微鏡の実現を目指している。本章では、その量子増強 SRS 顕微鏡について説明する。まず、量子力学の基礎として、調和振動子モデルや代表的な光の量子状態である、光子数状態、コヒーレント状態、スクイーズド状態について述べる。その後、スクイーズド光を用いた SRS 顕微鏡、量子増強 SRS 顕微鏡の模式図と原理を示す。また光学系の透過率と感度向上度の関係を求め、既に報告されている量子増強 SRS 顕微鏡を紹介する。

4.1 量子光学

本節では量子光学の基礎について説明する。

4.1.1 調和振動子モデル

量子光学では光を様々なモードに分解し、その 1 つ 1 つのモードを量子光学的な調和振動子とみなして考える。おもりの質量を m 、ばね定数を k とする。おもりの位置を q とすると、ばねのポテンシャルエネルギーは

$$\frac{1}{2}kx^2 = \frac{1}{2}m(\omega q)^2 \quad (4.1)$$

と表せる。ただし、 ω は振動子の角周波数で、 $\omega = \sqrt{k/m}$ である。また、おもりの運動量を p とおくと、おもりの運動エネルギーは

$$\frac{1}{2}m\left(\frac{dx}{dt}\right)^2 = \frac{1}{2m}p^2 \quad (4.2)$$

となる。

ここで、調和振動子のシュレディンガー方程式を考える。量子化のため、おもりの位置 q と運動量 p をそれぞれ演算子 \hat{q}, \hat{p} で表す。調和振動子のエネルギーはポテンシャルエネルギー $\frac{1}{2}m(\omega\hat{q})^2$ と運動エネルギー $\frac{1}{2m}\hat{p}^2$ の和であるのでエネルギー演算子であるハミルトニアン \hat{H} は

$$\hat{H} = \frac{1}{2}m(\omega\hat{q})^2 + \frac{1}{2m}\hat{p}^2 \quad (4.3)$$

と表される。ただし、 \hat{q}, \hat{p} は、 $[\hat{q}, \hat{p}] = i\hbar$ という交換関係を持ち、これは \hat{q} と \hat{p} が不可換であることを表す。 \hat{q}, \hat{p} に代わる新たな演算子として複素振幅の演算子 \hat{a} を用意し、以下のように定義する。

$$\hat{a} \equiv \sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}}\hat{q} + \frac{i}{\sqrt{2m\hbar\omega}}\hat{p} \quad (4.4)$$

このとき、 \hat{a} のエルミート共役は次のようになる。

$$\hat{a}^\dagger = \sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} \hat{q} - \frac{i}{\sqrt{2m\hbar\omega}} \hat{p} \quad (4.5)$$

\hat{a} は消滅演算子、 \hat{a}^\dagger は生成演算子と呼ばれる。 \hat{a} と \hat{a}^\dagger は $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$ の交換関係を示す。(4.3)、(4.4)、(4.5)より \hat{H} は以下のように書き直すことができる。

$$\hat{H} = \frac{\hbar\omega}{2} (\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a}) \quad (4.6)$$

ここで、 \hat{H} のエネルギー固有状態を $|n\rangle$ 、固有値を E_n とすると

$$\hat{H}|n\rangle = \frac{\hbar\omega}{2} (\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})|n\rangle = E_n|n\rangle \quad (4.7)$$

が成り立つ。(4.7)の両辺に左から \hat{a}^\dagger をかけると、以下のようになる。

$$\frac{\hbar\omega}{2} (\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a})|n\rangle = E_n\hat{a}^\dagger|n\rangle \quad (4.8)$$

ここに交換関係を使うと、

$$\begin{aligned} \frac{\hbar\omega}{2} (\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger(\hat{a}\hat{a}^\dagger - 1))|n\rangle &= E_n\hat{a}^\dagger|n\rangle \\ \therefore \frac{\hbar\omega}{2} (2\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger)|n\rangle &= E_n\hat{a}^\dagger|n\rangle \end{aligned} \quad (4.9)$$

となるので、両辺に $\hbar\omega\hat{a}^\dagger|n\rangle$ を加えて整理すると以下のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{\hbar\omega}{2} (2\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger)|n\rangle &= (E_n + \hbar\omega)\hat{a}^\dagger|n\rangle \\ \therefore \frac{\hbar\omega}{2} (2\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1)\hat{a}^\dagger|n\rangle &= (E_n + \hbar\omega)\hat{a}^\dagger|n\rangle \\ \therefore \frac{\hbar\omega}{2} (\hat{a}^\dagger\hat{a} + \hat{a}\hat{a}^\dagger)\hat{a}^\dagger|n\rangle &= (E_n + \hbar\omega)\hat{a}^\dagger|n\rangle \end{aligned} \quad (4.10)$$

(4.10)より、 $\hat{a}^\dagger|n\rangle$ は固有値 $E_n + \hbar\omega$ を持つ調和振動子の固有状態であることが分かる。

ここで、 $\hat{a}^\dagger\hat{a}$ の固有値について考える。固有値を n とすると、

$$\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n|n\rangle \quad (4.11)$$

となるので、 $\hat{a}^\dagger\hat{a}$ を固有ベクトル $|n\rangle$ ではさむと以下が成り立つ。

$$n = \langle n|\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = (\hat{a}|n\rangle)^2 \quad (4.12)$$

よって、 n は非負となる。また、 $\hat{a}^\dagger|n\rangle$ の固有値について考える。

$$\begin{aligned} \hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}^\dagger|n\rangle &= \hat{a}^\dagger(\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1)|n\rangle \\ &= \hat{a}^\dagger(n + 1)|n\rangle (\because (4.11)) \\ &= (n + 1)\hat{a}^\dagger|n\rangle \end{aligned} \quad (4.13)$$

したがって、 $\hat{a}^\dagger|n\rangle$ の固有値は $n + 1$ となり、 $\hat{a}^\dagger|n\rangle \propto n + 1$ であると分かる。このとき比例定数は $\sqrt{n + 1}$ であり、

$$\hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \quad (4.14)$$

となる。また、同様にして以下も成り立つ。

$$\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle \quad (4.15)$$

一方、(4.7)、(4.11)より、

$$\begin{aligned} \hat{H}|n\rangle &= \frac{\hbar\omega}{2}(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})|n\rangle \\ &= \frac{\hbar\omega}{2}(2\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1)|n\rangle \\ &= \hbar\omega\left(n + \frac{1}{2}\right)|n\rangle \end{aligned} \quad (4.16)$$

となる。よって、

$$E_n = \hbar\omega\left(n + \frac{1}{2}\right) \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \quad (4.17)$$

となり、エネルギー固有値は飛び飛びの値を取ることが分かる。量子光学ではこの n の値を光子数に対応させて考える。(4.14)、(4.15)より、 \hat{a}^\dagger と \hat{a} は光子数をそれぞれ1つずつ増やすまたは減らす演算子であるので、これが生成演算子、消滅演算子と呼ばれる理由である。また、調和振動子の解 $|\phi\rangle$ は $|n\rangle$ の線形結合で表される。

上述のように、量子光学では光の1つ1つのモードを同じエネルギーを有する調和振動子に対応させる。この量子的調和振動子には光子数状態、コヒーレント状態、スクイーズド状態という3つの代表的な量子状態がある。これらの量子状態は、対応する状態ベクトル $|\phi\rangle$ を用いて表される。以下の3つの項ではそれぞれ光子数状態、コヒーレント状態、スクイーズド状態に対して物理量の計測を行った時の期待値を計算し考察を行う。ある物理量の期待値を求めたいときは、物理量の演算子を \hat{A} 、状態ベクトルを $|\Psi\rangle$ としたとき、 $\langle\Psi|\hat{A}|\Psi\rangle \equiv \langle\hat{A}\rangle$ で求めることができる。一方、分散は測定における平均値からのずれを表す演算子を $\Delta\hat{A}$ とすると、 $\langle\Delta\hat{A}^2\rangle \equiv \langle\hat{A}^2\rangle - \langle\hat{A}\rangle^2$ で求めることができる。また、以下で用いる物理量は光子数 $\hat{n} \equiv \hat{a}^\dagger\hat{a}$ と複素振幅 \hat{a} の実部 $\hat{a}_1 \equiv \frac{1}{2}(\hat{a} + \hat{a}^\dagger)$ 、虚部 $\hat{a}_2 \equiv \frac{1}{2i}(\hat{a} - \hat{a}^\dagger)$ である。

4.1.2 光子数状態

$|\phi\rangle$ が $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle, |3\rangle, \dots$ のいずれかの状態であるとき、光子数が一意に定まった状態であるため、光子数状態という。実際に光子数状態 $|n\rangle$ の光子数の期待値と分散について計算すると、光子数の期待値は、

$$\langle n|\hat{n}|n\rangle = \langle n|\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n \quad (\because (4.12)) \quad (4.18)$$

となる。光子数の分散は、

$$\begin{aligned} \langle n|\hat{n}^2|n\rangle - \langle n|\hat{n}|n\rangle^2 &= \langle n|(\hat{a}^\dagger\hat{a})^2|n\rangle - n^2 \\ &= n\langle n|\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle - n^2 \\ &= n^2 - n^2 = 0 \end{aligned} \quad (4.19)$$

となり、光子数にゆらぎがないことが分かる。

次に、複素振幅の実部 \hat{a}_1 について考える。期待値は、(4.14)、(4.15)を用いて、

$$\begin{aligned}\langle n|\hat{a}_1|n\rangle &= \langle n|\frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2}|n\rangle = \frac{1}{2}\langle n|\hat{a}|n\rangle + \frac{1}{2}\langle n|\hat{a}^\dagger|n\rangle \\ &= \frac{\sqrt{n}}{2}\langle n|n-1\rangle + \frac{\sqrt{n-1}}{2}\langle n|n+1\rangle = 0\end{aligned}\quad (4.20)$$

となる。期待値は0なので、分散は、

$$\begin{aligned}\langle n|\hat{a}_1^2|n\rangle - \langle n|\hat{a}_1|n\rangle^2 &= \langle n|\left(\frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2}\right)^2|n\rangle \\ &= \frac{1}{4}\langle n|\hat{a}\hat{a} + \hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a} + \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger|n\rangle \\ &= \frac{1}{4}\langle n|\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle \\ &= \frac{1}{4}\langle n|2\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1|n\rangle \\ &= \frac{1}{4}(2n + 1) = \frac{1}{2}\left(n + \frac{1}{2}\right)\end{aligned}\quad (4.21)$$

となる。複素振幅の虚部 \hat{a}_2 についても同様に期待値と分散を計算すると、

$$\langle n|\hat{a}_2|n\rangle = 0\quad (4.22)$$

$$\langle n|\hat{a}_2^2|n\rangle - \langle n|\hat{a}_2|n\rangle^2 = \frac{1}{2}\left(n + \frac{1}{2}\right)\quad (4.23)$$

と求まる。

(4.21)、(4.23)より、複素振幅の実部、虚部は $n = 0$ のときも分散を持つことが分かる。 $n = 0$ のときは光子数がない状態であるが、このときもゆらぎを持つ。このゆらぎを真空場という。Fig. 7に複素平面における真空場の様子を示す。複素振幅の実部、虚部いずれの方向にも1/4の分散をもっている。また、これは状態 $|0\rangle$ が $E_0 = \hbar\omega/2$ のエネルギーを有することに対応している。

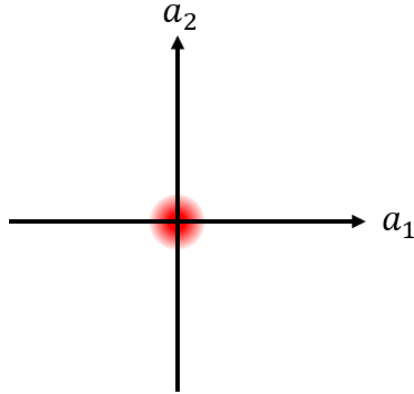


Fig. 7 Schematic of vacuum in complex plane.

4.1.3 コヒーレント状態

次式のように、複数の光子数状態を線形で重ね合わせた状態をコヒーレント状態という。

$$|\alpha\rangle \equiv \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad (4.24)$$

レーザからの光はコヒーレント状態にあたる。

ここで、コヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ は \hat{a} の固有状態であることを以下に示す。

$$\begin{aligned} \hat{a}|\alpha\rangle &= \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \hat{a}|n\rangle \\ &= \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \sqrt{n}|n-1\rangle \\ &= \alpha \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^{n-1}}{\sqrt{(n-1)!}} |n-1\rangle \\ &= \alpha|\alpha\rangle \end{aligned} \quad (4.25)$$

また、固有値は複素振幅 α であると分かる。(4.25)のエルミート共役を取ると、

$$\langle\alpha|\hat{a}^\dagger = \alpha^*\langle\alpha| \quad (4.26)$$

が成り立つ。

次に、複素振幅の期待値と分散について考える。まず実部について計算する。(4.25)、(4.26)、 $\langle\alpha|\alpha\rangle = 1$ に注意すると、期待値は

$$\begin{aligned} \langle\hat{a}_1\rangle &= \langle\alpha|\frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2}|\alpha\rangle = \frac{1}{2}\langle\alpha|\hat{a}|\alpha\rangle + \frac{1}{2}\langle\alpha|\hat{a}^\dagger|\alpha\rangle \\ &= \frac{1}{2}(\alpha + \alpha^*) = \text{Re } \alpha \end{aligned} \quad (4.27)$$

となる。分散は、

$$\begin{aligned}
\langle \hat{a}_1^2 \rangle &= \langle \alpha | \left(\frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2} \right)^2 | \alpha \rangle = \frac{1}{4} \langle \alpha | \hat{a}\hat{a} + \hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a} + \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger | \alpha \rangle \\
&= \frac{1}{4} \langle \alpha | \hat{a}\hat{a} + 2\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1 + \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger | \alpha \rangle \\
&= \frac{1}{4} (\alpha^2 + 2\alpha\alpha^* + 1 + \alpha^{*2}) = \frac{1}{4} (\alpha^2 + 2|\alpha|^2 + 1 + \alpha^{*2})
\end{aligned} \tag{4.28}$$

より、

$$\begin{aligned}
\langle \hat{a}_1^2 \rangle - \langle \hat{a}_1 \rangle^2 &= \frac{1}{4} (\alpha^2 + 2|\alpha|^2 + 1 + \alpha^{*2}) - \frac{1}{4} (\alpha + \alpha^*)^2 \\
&= \frac{1}{4} (\alpha^2 + 2|\alpha|^2 + 1 + \alpha^{*2}) - \frac{1}{4} (\alpha^2 + \alpha\alpha^* + \alpha^*\alpha + \alpha^{*2}) = \frac{1}{4}
\end{aligned} \tag{4.29}$$

と求まる。複素振幅の虚部 \hat{a}_2 に対しても同様に、

$$\langle \hat{a}_2 \rangle = \text{Im } \alpha \tag{4.30}$$

$$\langle \hat{a}_2^2 \rangle - \langle \hat{a}_2 \rangle^2 = \frac{1}{4} \tag{4.31}$$

が成り立つ。このとき、コヒーレント状態のゆらぎの大きさは真空場のゆらぎの大きさと同じである。以上を踏まえて、複素平面におけるコヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ の様子を Fig. 8 に示す。コヒーレント状態は複素平面上において真空場と同じゆらぎを持つ複素振幅が回転していると考えることができる。

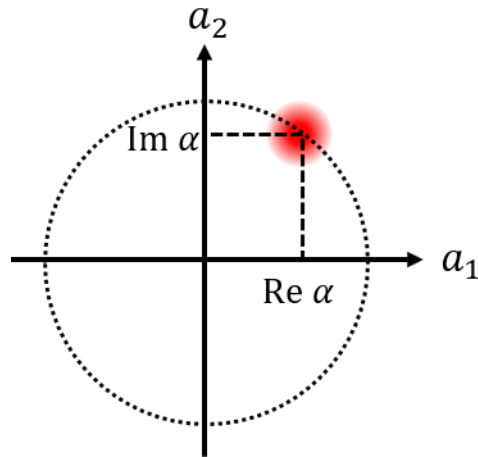


Fig. 8 Schematic of coherent state in complex plane.

4.1.4 スクイーズド状態

コヒーレント状態は複素振幅の実部と虚部いずれの方向にも等しいゆらぎを持っていたのに対し、ある特定方向のゆらぎを小さくした量子状態をスクイーズド状態という。コヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ をスクイーズド状態 $|\beta\rangle$ に変換する演算子を $\hat{S}(r)$ とすると、

$$|\beta\rangle = \hat{S}(r)|\alpha\rangle \quad (4.32)$$

と表すことができ、

$$\hat{S}(r) = \exp\left[\frac{r}{2}(\hat{a}^2 - (\hat{a}^\dagger)^2)\right] \quad (4.33)$$

である。 $\hat{S}(r)$ はハミルトニアンを

$$\hat{H} = \frac{i\hbar}{2}(\hat{a}^2 - (\hat{a}^\dagger)^2) \quad (4.34)$$

と定義すると、 $\hat{S}(r)$ は以下のように書き直せる。

$$\hat{S}(r) = \exp\left(\frac{r}{i\hbar}\hat{H}\right) \quad (4.35)$$

ここで、スクイーミング後の消滅演算子を $\hat{b} = \hat{S}^\dagger(r)\hat{a}(r)\hat{S}(r) \equiv \hat{a}(r)$ とすると、

$$\begin{aligned} \frac{d}{dr}\hat{a}(r) &= \left(\frac{d}{dr}\hat{S}^\dagger(r)\hat{a}(r)\hat{S}(r) + \hat{S}(r)\hat{a}\frac{d}{dr}\hat{S}(r)\right) \\ &= \left(-\frac{\hat{H}}{i\hbar}\hat{S}^\dagger(r)\hat{a}(r)\hat{S}(r) + \frac{\hat{1}}{i\hbar}\hat{S}^\dagger(r)\hat{a}(r)\hat{S}(r)\hat{H}\right) \\ &= \frac{i}{\hbar}(\hat{H}\hat{a} - \hat{a}\hat{H}) \\ &= \frac{1}{2}\left((\hat{a}^2 - (\hat{a}^\dagger)^2)\hat{a} - \hat{a}(\hat{a}^2 - (\hat{a}^\dagger)^2)\right) \\ &= -\hat{a}^\dagger \end{aligned} \quad (4.36)$$

となる。ただし、計算には \hat{H} が時間に依存しないこと、 \hat{H} と \hat{S} が交換可能であることを用いた。同様に、

$$\frac{d}{dr}\hat{a}^\dagger(r) = -\hat{a} \quad (4.37)$$

が成り立つ。よって、 $\hat{a}(r)$ の実部、虚部に関して、

$$\frac{d}{dr}\hat{a}_1(r) = \frac{d}{dr}\left(\frac{\hat{a}(r) + \hat{a}^\dagger(r)}{2}\right) = -\frac{\hat{a}^\dagger + \hat{a}}{2} = -\hat{a}_1 \quad (4.38)$$

$$\frac{d}{dr}\hat{a}_2(r) = \frac{d}{dr}\left(\frac{\hat{a}(r) - \hat{a}^\dagger(r)}{2i}\right) = \frac{-\hat{a}^\dagger + \hat{a}}{2} = \hat{a}_2 \quad (4.39)$$

のようになる。ここで、 \hat{b} の実部、虚部をそれぞれ \hat{b}_1 、 \hat{b}_2 とすると、

$$\hat{b}_1 = \hat{a}_1(r) = \hat{a}_1 \exp(-r) \quad (4.40)$$

$$\hat{b}_2 = \hat{a}_2(r) = \hat{a}_2 \exp(r) \quad (4.41)$$

となる。これらから、スクイーミング後の演算子の実部の確率分布は $\exp(-r)$ 倍に縮小され、虚部の確率分布は $\exp(r)$ 倍に拡大していることがわかる。また、 \hat{b} は以下のように表せる。

$$\hat{b} = \hat{a}_1 \exp(-r) + i\hat{a}_2 \exp(r)$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2} \exp(-r) + \frac{\hat{a} - \hat{a}^\dagger}{2} \exp(r) \\
&= \hat{a} \frac{\exp(-r) + \exp(r)}{2} + \hat{a}^\dagger \frac{\exp(-r) - \exp(r)}{2} \\
&= \hat{a} \cosh r - \hat{a}^\dagger \sinh r \tag{4.42}
\end{aligned}$$

ここで、真空場 $|0\rangle$ にスクイージングの演算子 $\hat{S}(r)$ を作用させる。これによってできた状態をスクイーズド真空場と呼ぶ。スクイーズド真空場 $\hat{S}(r)|0\rangle$ の光子数の期待値は、

$$\begin{aligned}
\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{n} \hat{S}(r) | 0 \rangle &= \langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}^\dagger \hat{S}(r) \hat{S}^\dagger(r) \hat{a} \hat{S}(r) | 0 \rangle \\
&= \langle 0 | \hat{b}^\dagger \hat{b} | 0 \rangle \\
&= \langle 0 | (\hat{a}^\dagger \cosh r - \hat{a} \sinh r) (\hat{a} \cosh r - \hat{a}^\dagger \sinh r) | 0 \rangle \\
&= \cosh^2 r \langle 0 | \hat{a}^\dagger \hat{a} | 0 \rangle + \sinh^2 r \langle 0 | \hat{a} \hat{a}^\dagger | 0 \rangle \\
&\quad - \cosh r \sinh r \langle 0 | \hat{a}^2 + (\hat{a}^\dagger)^2 | 0 \rangle \\
&= \sinh^2 r \langle 0 | \hat{a}^\dagger \hat{a} + 1 | 0 \rangle \\
&= \sinh^2 r \tag{4.43}
\end{aligned}$$

となる。複素振幅の実部の期待値は

$$\begin{aligned}
\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_1 \hat{S}(r) | 0 \rangle &= \left\langle 0 \left| \hat{S}^\dagger(r) \frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2} \hat{S}(r) \right| 0 \right\rangle \\
&= \langle 0 | \hat{b} | 0 \rangle + \langle 0 | \hat{b}^\dagger | 0 \rangle \\
&= \langle 0 | (\hat{a}^\dagger \cosh r - \hat{a} \sinh r) | 0 \rangle \\
&\quad + \langle 0 | (\hat{a} \cosh r - \hat{a}^\dagger \sinh r) | 0 \rangle \\
&= 0 \tag{4.44}
\end{aligned}$$

となり、虚部についても同様に

$$\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_1 \hat{S}(r) | 0 \rangle = 0 \tag{4.45}$$

となる。実部の分散は

$$\begin{aligned}
\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_1^2 \hat{S}(r) | 0 \rangle &= \left\langle 0 \left| \hat{S}^\dagger(r) \left(\frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2} \right)^2 \hat{S}(r) \right| 0 \right\rangle \\
&= \frac{1}{4} \langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) (\hat{a}^2 + (\hat{a}^\dagger)^2 + \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{a}) \hat{S}(r) | 0 \rangle \\
&= \frac{1}{4} \langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) (\hat{a}^2 + (\hat{a}^\dagger)^2 + \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{a}) \hat{S}(r) | 0 \rangle \\
&= \frac{1}{4} (\langle 0 | \hat{b} \hat{b} | 0 \rangle + \langle 0 | \hat{b}^\dagger \hat{b}^\dagger | 0 \rangle + \langle 0 | \hat{b} \hat{b}^\dagger | 0 \rangle + \langle 0 | \hat{b}^\dagger \hat{b} | 0 \rangle) \\
&= \frac{1}{4} (-2 \cosh r \sinh r + \cosh^2 r + \sinh^2 r)
\end{aligned}$$

$$= \frac{1}{4} \exp(-2r) \quad (4.46)$$

より、

$$\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_1^2 \hat{S}(r) | 0 \rangle - (\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_1 \hat{S}(r) | 0 \rangle)^2 = \frac{1}{4} \exp(-2r) \quad (4.47)$$

となる。同様に、虚部についても計算すると、

$$\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_2^2 \hat{S}(r) | 0 \rangle - (\langle 0 | \hat{S}^\dagger(r) \hat{a}_2 \hat{S}(r) | 0 \rangle)^2 = \frac{1}{4} \exp(2r) \quad (4.48)$$

となる。よって、スクイズド真空場のゆらぎは、実部は $\exp(-2r)$ 倍に縮小され、虚部は $\exp(2r)$ 倍に拡大される。Fig. 9 にスクイズド真空場の模式図を示す。スクイーディングにより、真空場の実部方向のショット雑音が低減されていることが分かる。

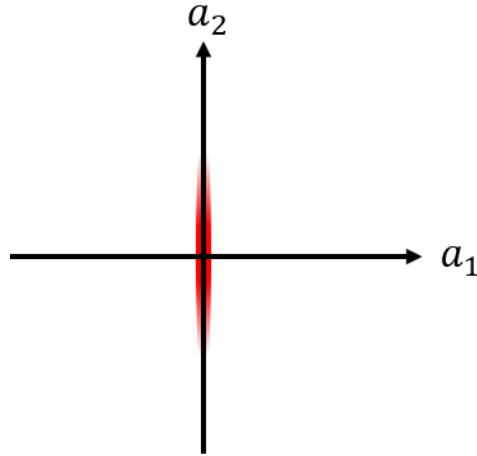


Fig. 9 Schematic of squeezed vacuum in complex plane.

4.2 量子増強 SRS 顕微鏡の原理

量子増強 SRS 顕微鏡の概略図を Fig. 10 に示す。スクイズド真空場のバランスドホモダイン検出系に SRS 顕微鏡を組み合わせたものである。従来のバランスドホモダイン検出では熱雑音やレーザの雑音をキャンセルすることができるが、真空場の混入によりショット雑音は生じてしまう。ここでスクイズド真空場を用い、その位相を制御することでスクイズド真空場を検出することができ、ショット雑音が低減され高感度が期待できる。

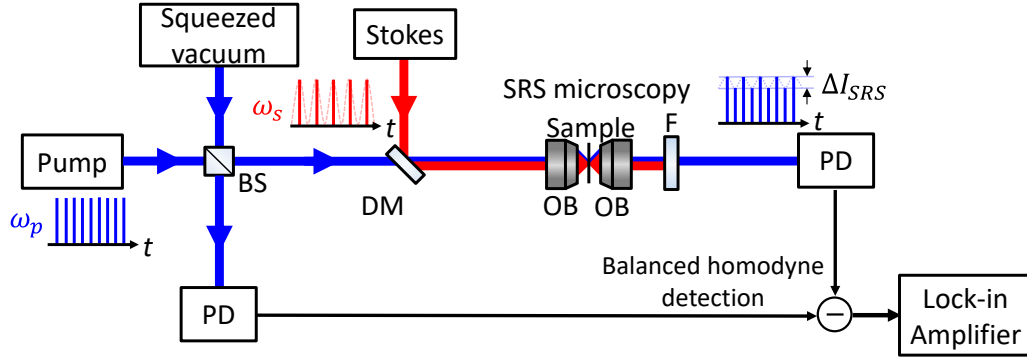


Fig. 10 Schematic of quantum-enhanced SRS microscopy.
 BS: beam splitter; DM: dichroic mirror; OB: objective lens;
 F: filter; PD: photodiode.

4.3 透過率と信号対雑音比向上度の関係

前節で示したような方法で、SRS顕微鏡の感度を高めることが出来ると考えられるが、スクイーズド真空場は光損失に弱いので、この量子増強 SRS 顕微鏡では系全体を超低損失にしなければならない。系の透過率 T と SRS 顕微鏡の SNR の向上度 SNR_{gain} の関係は

$$\text{SNR}_{\text{gain}} = \frac{T}{Tx + 1 - T} \quad (4.49)$$

となる。この式は以下のように、光損失をビームスプリッタのモデルで考えることで導くことができる。Fig. 11 のようにビームスプリッタの入力ポート a 、 b にそれぞれスクイーズド真空場 $|\alpha\rangle$ と真空場 $|\beta\rangle$ を入れる場合を考える。このとき入力ポート a のパワー透過率を T とし、スクイーズド真空場のスクイージングレベルはパワー x 倍とする。ビームスプリッタの入力ポート a 、 b の消滅演算子を \hat{a} 、 \hat{b} 、出力ポート a' の消滅演算子を \hat{a}' とおくと、

$$\hat{a}' = \sqrt{T}\hat{a} + \sqrt{1-T}\hat{b} \quad (4.50)$$

と表せる。ここで式を見易くするため、 $\hat{a}' = \sqrt{T}\hat{a} + \sqrt{1-T}\hat{b} \equiv t\hat{a} + r\hat{b}$ とおく。 \hat{a}' の実部は

$$\text{Re } \hat{a}' = \frac{\hat{a}' + \hat{a}'^\dagger}{2} \quad (4.51)$$

であるので、その期待値は、

$$\begin{aligned} \langle \beta | \langle \alpha | (\text{Re } \hat{a}')^2 | \alpha \rangle | \beta \rangle &= \langle \beta | \left\langle \alpha \left| \left(\frac{\hat{a}' + \hat{a}'^\dagger}{2} \right)^2 \right| \alpha \right\rangle | \beta \rangle \\ &= \frac{1}{4} \langle \beta | \left\langle \alpha \left| (t\hat{a} + r\hat{b} + t\hat{a}^\dagger + r\hat{b}^\dagger)^2 \right| \alpha \right\rangle | \beta \rangle \end{aligned} \quad (4.52)$$

となる。ここで、(4.52)の $(t\hat{a} + r\hat{b} + t\hat{a}^\dagger + r\hat{b}^\dagger)^2$ を整理すると、

$$\begin{aligned}
& (t\hat{a} + r\hat{b} + t\hat{a}^\dagger + r\hat{b}^\dagger)^2 \\
&= t^2 (\hat{a}^2 + \hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a} + \hat{a}^{\dagger 2}) \\
&+ tr(\hat{a}\hat{b} + \hat{a}\hat{b}^\dagger + \hat{b}\hat{a} + \hat{b}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{b} + \hat{a}^\dagger\hat{b}^\dagger + \hat{b}^\dagger\hat{a} + \hat{b}^\dagger\hat{b}^\dagger) \\
&+ r^2 (\hat{b}^2 + \hat{b}\hat{b}^\dagger + \hat{b}^\dagger\hat{b} + \hat{b}^{\dagger 2}) \\
&= t^2 (\hat{a}^2 + 2\hat{a}^\dagger\hat{a} + 1 + \hat{a}^{\dagger 2}) \\
&+ tr(\hat{a}\hat{b} + \hat{a}\hat{b}^\dagger + \hat{b}\hat{a} + \hat{b}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{b} + \hat{a}^\dagger\hat{b}^\dagger + \hat{b}^\dagger\hat{a} + \hat{b}^\dagger\hat{b}^\dagger) \\
&+ r^2 (\hat{b}^2 + 2\hat{b}^\dagger\hat{b} + 1 + \hat{b}^{\dagger 2}) \tag{4.53}
\end{aligned}$$

となるので、(4.52)に代入し、

$$\begin{aligned}
\frac{1}{4} \langle \beta | \langle \alpha | (t\hat{a} + r\hat{b} + t\hat{a}^\dagger + r\hat{b}^\dagger)^2 | \alpha \rangle | \beta \rangle &= \frac{1}{4} (t^2 x + r^2) \\
&= \frac{1}{4} (Tx + 1 - T) \tag{4.54}
\end{aligned}$$

と求まる。以上より、出力ポート \hat{a}' での分散は $\frac{1}{4}(Tx + 1 - T)$ となり、信号は T 倍になるので、スクイズド真空場を入れたことによる SNR の向上度 SNR_{gain} は(4.49)のように表せる。

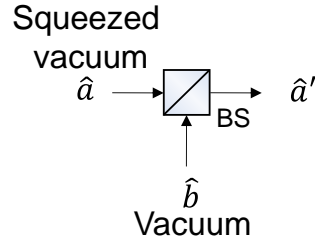


Fig. 11 Model of optical loss.
BS: beam splitter.

これを T の関数としていくつかの x についてプロットしたのが Fig. 12 となる。透過率が低いとスクイズングをかけても SNR の向上度が落ちてしまうことが分かる。一般的な顕微鏡の透過率は 30% 程度であるが、我々は光学系全体の透過率 80% 程度まであげることを目標としており、低損失顕微光学系の開発が量子増強 SRS 顕微鏡の実現の上で重要となる。

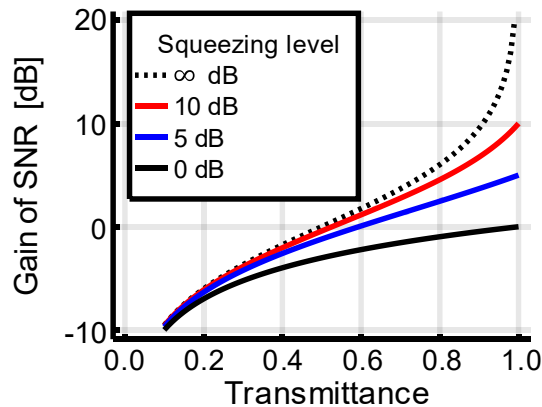


Fig. 12 Relation between transmittance and gain of SNR.

4.4 量子増強 SRS 顕微鏡の先行研究

近年、我々とは独立に、量子増強 SRS 顕微鏡が複数のグループから報告されている。ここでは 2 つの先行研究[9,10]を紹介する。まずデンマーク工科大学のグループから報告された、連続光スクイーミングによる量子増強 SRS 顕微鏡の研究[9]について述べる。この研究報告では連続光をスクイーミングし SRS 顕微鏡に用いている。Fig. 13(a)に光学系の模式図を示す。スクイーズド真空場とコヒーレントビームを 99 対 1 の非対称ビームスプリッタで合波しスクイーズド光を得ている。連続光でスクイーミングを行っているため、量子増強度は高く、SNR は 3.6 dB 増強されているが、連続光による SRS 信号のため絶対的な感度はパルス光を用いた SRS 信号に比べ低くなっている。イメージングも Fig. 13(c)に示すように、サンプル中の数点の計測にとどまっており、顕微鏡のイメージングというには不十分である。また、光学系の透過率は 67%となっている。次に、クイーンズランド大学のグループによるパルススクイーミングを用いた量子増強 SRS 顕微鏡の研究[10]について紹介する。光学系の模式図を Fig. 14(a)に示す。こちらのグループは光パラメトリック増幅を用いて振幅スクイーズド光を生成し Fig. 14(c)に示すように細胞のイメージングに成功している。しかし量子増強度は低く 0.6 dB から 0.9 dB 程度にとどまっており、絶対的な感度も現状の我々の SRS 顕微鏡の方が高い。また透過率は 40%程度となっている。このようにいずれの報告も初期検討段階にとどまっており、特に、光学系の透過率が低く、これが量子増強度の制限要因のひとつとなっている。スクイーミングレベルを高めるためには、顕微光学系の透過率向上が必要不可欠である。

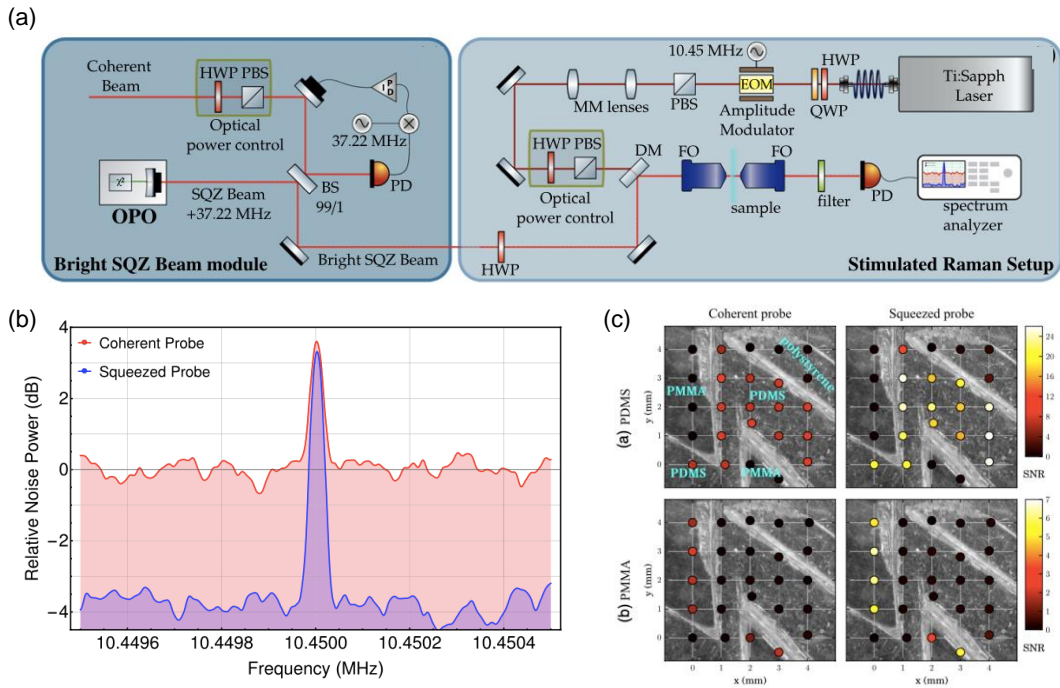


Fig. 13 Quantum enhanced continuous wave SRS[9]. (a) Schematic of optical system. (b) Quantum enhanced SRS spectroscopy. (c) spatially distributed SNR of PDMS and PMMA.

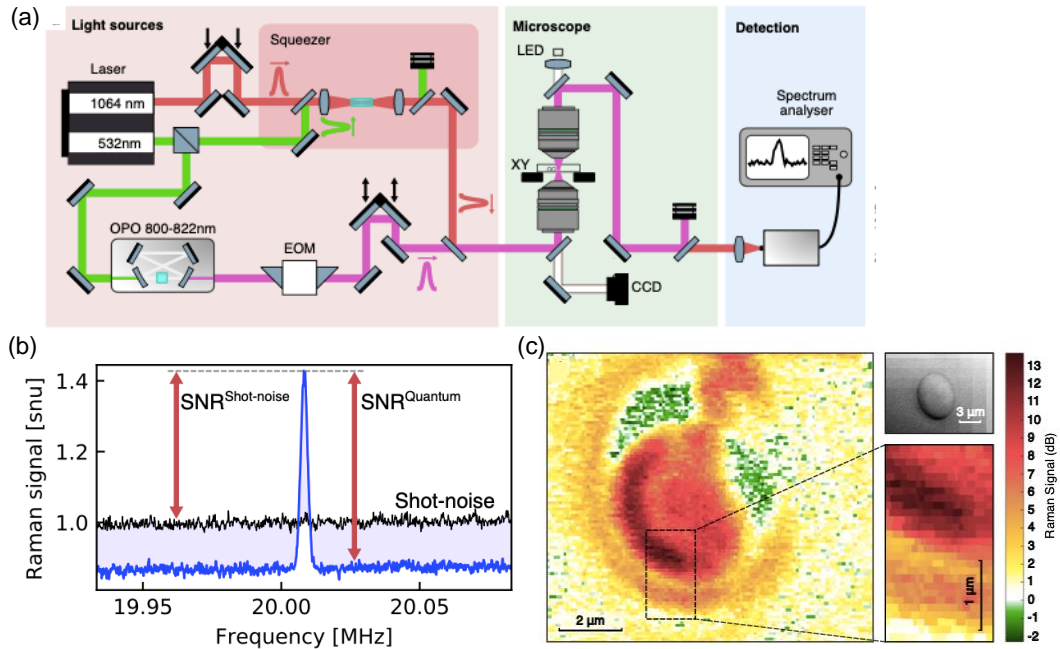


Fig. 14 Quantum enhanced pulse SRS[10]. (a) Schematic of optical system. (b) Quantum enhanced SRS spectroscopy. (c) Imaging of live yeast cell.

第5章 低損失顕微光学系の構想

前章では、量子増強を用いて顕微鏡の高感度化を図る上で低損失な光学系が必要不可欠であることを示した。従来の顕微光学系において、対物レンズ周りで多くの光損失があることに着目し、この透過率を高めることにした。そこで、対物レンズにおいて光損失が小さくなるようなビーム整形と高透過率な対物レンズを組み合わせることで超低損失顕微光学系の実現を目指す。本章では、超低損失顕微光学系を実現させるための低損失ビーム整形法と高透過率対物レンズ・カバーガラスについて説明する。

5.1 低損失ビーム整形法

従来の顕微鏡では、レーザからのガウシアンビームを $4f$ 光学系などにより拡大・縮小し、対物レンズに入射する。この時、Fig. 15(a)のようにガウシアンビームを拡大すると、実効 NA を高められるため空間分解能は高くなるが、ビームが対物レンズの瞳で蹴られることで光損失が大きくなってしまふ。一方、Fig. 15(b)のように細いガウシアンビームを用いると対物レンズの瞳内にビームが収まるため、光損失は少なくなるが、実効 NA が小さくなるため空間分解能が低くなってしまふ。このように、従来のガウシアンビームを用いる場合、光損失と空間分解能がトレードオフの関係にある。

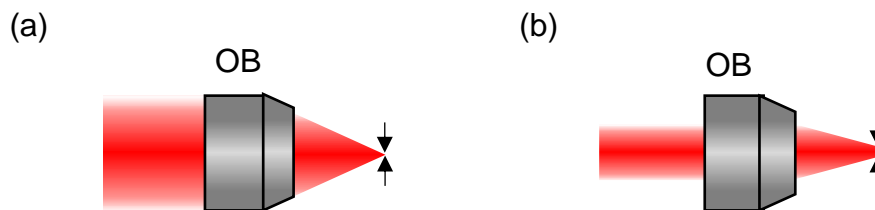


Fig. 15 (a), (b) Optical loss and spatial resolution with wide Gaussian beam and with thin Gaussian beam. OB: objective lens.

そこで、空間分解能を犠牲にせずに対物レンズの瞳でビームが蹴られることによる光損失を抑えるビーム整形法を提案し実証してきた。Fig. 16 にアキシコンという円錐型のレンズを用いたビーム整形法の模式図を示す。アキシコン A1 にガウシアンビームが入射すると、A1 によってビームが光軸から角度 β だけ偏向される。この角度 β はアキシコンの角度 α とアキシコンの屈折率 n_a を用いて、スネルの法則より $n_a \sin \alpha = \sin(\alpha + \beta)$ と表される。アキシコンペア間の距離 L だけ伝搬したあと、2つ目のアキシコン A2 によって再び偏向され、ビームが光軸に対して平行になる。これらにより入射ビームはドーナツ状のビームに整形される。リングの幅 t は入射ビーム半径 B によって決まり、 $t \approx B$ と表される。また整形されたビームの外半径 R は $R \approx L \sin \beta$ となる。これらのパラメータを最適化することで、対物レンズの

瞳をほぼまんべんなく満たしながら光強度が瞳内に収まるようなビームを整形することができる。

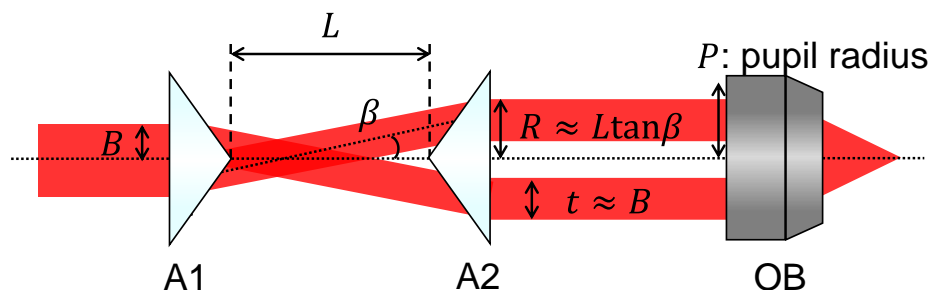


Fig. 16 Axicon-based beam shaper apparatus used to generate a ring beam at the pupil of an objective lens. A1 and A2: axicons; OB: objective lens.

ここで、低損失な光学系を実現するための3つの代替手法と本手法を比較する。1つ目には回折光学素子が挙げられる。回折光学素子を使ってレーザキャビティ内で gaussian ビームをフラットトップビームに変換するビーム整形法が提案されているが[33]、回折光学素子は設計が波長に依存するため狭い帯域でしか使用することができない。一方、アキシコンは波長依存性がないため、本手法は SRS 顕微法のような広帯域での動作が必要な光学系にも応用できる。2つ目に非球面光学素子が挙げられるが、これは所望のビームを得るためには特別な設計が必要となり、市販されているアキシコンと比べて時間や費用がかかる。最後に空間光変調器(SLM)もビーム整形に有効であるが[29]、これもアキシコンに比べて極めて高価である。

一方、アキシコンにもいくつかの問題点がある。1つ目は、アキシコンの先端の製造技術上の欠陥である。最大で直径 1.5 mm の先端部分がアキシコンの性質を満たしていないため[34]、その先端に入る光が遮られ、損失になる可能性がある。この先端部分による影響は次章で議論する。2点目は、アキシコンを用いて整形したビームが瞳において平坦なパターンにならないことである。焦点面における光の電界分布は瞳における電界分布をフーリエ変換したものであるため[35]、焦点での電界は瞳における電界の 0 周波数成分で与えられる。瞳において平坦でない電界分布を整形する場合、平坦な電界分布と比べて高周波成分が必要になる。よって、焦点でのパワーを保つためには瞳でのパワーが大きくなってしまふ。つまり、瞳におけるパワーを保った場合、瞳でのビームパターンが平坦のときに焦点におけるパワーが最も大きくなると分かる。実際に、瞳でのパワーが等しい平坦なビームパターンを用いた場合と比べて、本ビーム整形を用いた場合、焦点におけるパワーが 9.4% 下がることが数値計算で求まる。しかし、今回のように低損失な光学系を目指す上では、焦点でのパワーの低下はさほど問題にはならず、高透過率が実現されればそれにより信号強度も補償できる。

5.2 対物レンズ

対物レンズは量子増強 SRS 顕微鏡で使用する波長 850 nm の光に対する反射防止(AR)コーティングをかけたものを特注した(Thorlabs, LMH-50X-850)。倍率は 50 倍、NA は 0.65 である。この対物レンズの透過率特性を Fig. 17 に示す[36]。波長 850 nm 付近では透過率 95% 以上が確保されていることが分かる。

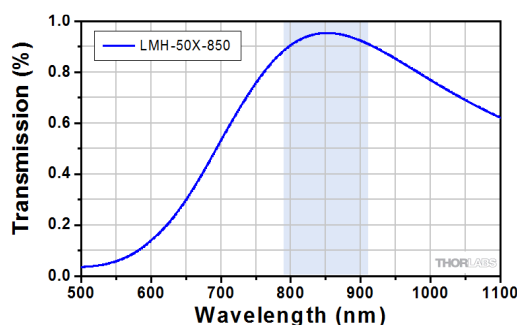


Fig. 17 Transmittance property of custom-made objective lens[36].

5.3 カバーガラス

カバーガラス(松浪硝子、C218181)は、片面に MgF_2 の波長 850 nm の光に対する AR コートをかけた (朝日分光)。顕微鏡観察で用いる際は、カバーガラスで試料を挟むようにカバーガラス 2 枚を水で貼り合わせて使用する。この時、カバーガラスと水の間のパワー反射率 T は、カバーガラスの屈折率を n_{glass} 、水の屈折率を n_{water} とすると、

$$T = 1 - \left(\frac{n_{glass} - n_{water}}{n_{glass} + n_{water}} \right)^2 = 99.5\%$$

となり、カバーガラスと水の間の反射はほぼ無視できると考えられる。

5.4 対物レンズとカバーガラスの透過率位置依存性

特注した対物レンズ、カバーガラスの透過率を評価する。一般に、対物レンズは中心部分の透過率が高いが、瞳の端に行くにつれて透過率が下がってしまう。また、AR コートは光を斜めに入射するとその性能が落ちてしまう。実際の顕微光学系では Fig. 16 のように対物レンズの瞳いっぱいにはビームを広げ、かつ、カバーガラスに対して斜めに入射する成分もある。そこで対物レンズやカバーガラスの透過率の位置依存性を計測する。実験は以下の Fig. 18 のような系で行う。レンズを用いて 1 つ目の対物レンズの瞳でビームを集光する。これにより小さいスポットが瞳において形成される。対物レンズ手前のミラーを左右に動かすことで、スポットの位置を動かすことができる。対物レンズペアの間に、水で貼り合わせた 2 枚のカバーガラスを挟み、透過率を測定した。それぞれ p 偏光に対してと s 偏光に対して透過率を計測した。

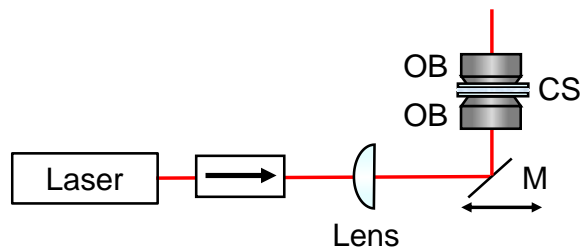


Fig. 18 Measuring system of position dependence of transmittance. OB: objective lens; CS: two cover slips pasted with water; M: mirror.

計測結果を Fig. 19 に示す。p 偏光では直径 4.1 mm の範囲、s 偏光では直径 4.2 mm の範囲で透過率 90%以上が確保されている。この範囲を NA に変換すると約 0.51 となる。以上より、今回用意した高透過率対物レンズ・カバーガラスとビーム整形法を組み合わせることで顕微光学系の低損失化が見込めることが分かった。今回測定した透過率結果をもとに、次章でビーム整形法のパラメータの最適化を行う。

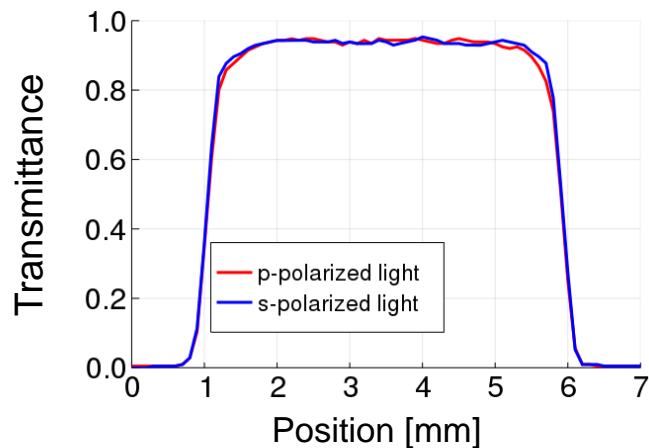


Fig. 19 Position dependence of transmittance of objective lens with cover glass. Red: p-polarized light; Blue: s-polarized light.

第6章 ビーム伝搬の数値計算

前章では、高透過率対物レンズやカバーガラスの透過率評価を行い、ビーム整形法と組み合わせた超低損失顕微光学系の実現が可能であることを示した。本章では、角スペクトル法を用いたビーム伝搬の数値計算を行い、評価した対物レンズ・カバーガラスに対して顕微鏡の性能が最適になるようなビーム整形法のパラメータを探る。更に、アキシコンのミスアライメントや波面歪みがこの光学系に与える影響を数値計算で定量的に明らかにする。また、アキシコンを用いる上での問題点の1つであるアキシコン先端の影響を調べる。

6.1 角スペクトル法

角スペクトル法では、光波を様々な波数を持つ平面波に展開し、それぞれの平面波に対して伝搬計算を行ったものを重ね合わせて表す[35]。ここでは光の複素振幅を x, y の2次元の関数として表し、光が z 方向に伝搬していくとする。波長を λ としたとき、 $f_0 = 1/\lambda$ を定義し、平面波の進行方向の z 軸からの x, y 方向へのずれをそれぞれ θ_x, θ_y とすると、 $f_x \equiv f_0 \sin \theta_x, f_y \equiv f_0 \sin \theta_y$ を用いて以下のような関係が成り立つ。

$$f_x^2 + f_y^2 + f_z^2 = f_0^2 \quad (6.1)$$

ここで、Fig. 20 の θ は $\sin \theta = NA$ をみたす角度であるとする。 f_x, f_y がともに $\sin \theta / \lambda = NA / \lambda$ より小さい範囲の光が対物レンズに入る。

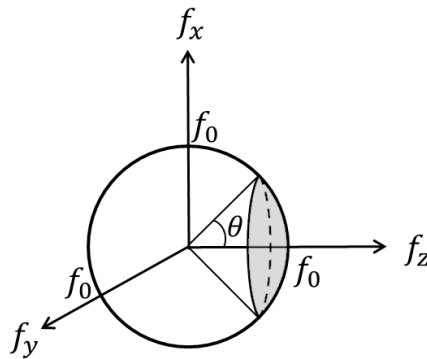


Fig. 20 Frequency distribution.

$f_x, f_y < NA/\lambda$ かつ(6.1)を満たす周波数 (Fig. 20 のグレー部分の周波数) に対して近軸近似を用いると、 f_z は以下ようになる。

$$f_z = \sqrt{f_0^2 - (f_x^2 + f_y^2)} \cong f_0 - \frac{f_x^2 + f_y^2}{2f_0} \quad (6.2)$$

ここで $f_x, f_y < NA/\lambda$ かつ(6.1)を満たす周波数の分布を $F(f_x, f_y, f_z)$ とすると、実空間の分布 $f(x, y, z)$ つまりPSFは、 $F(f_x, f_y, f_z)$ を3次元逆フーリエ変換して、

$$f(x, y, z) = \iiint F(f_x, f_y, f_z) \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y + f_z z)\} df_x df_y df_z \quad (6.3)$$

となる。焦点面($z=0$)においては

$$f(x, y, 0) = \iiint F(f_x, f_y, f_z) \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y + f_z \cdot 0)\} df_x df_y df_z \quad (6.4)$$

となり、 $\int F(f_x, f_y, f_z) df_z \equiv F'(f_x, f_y)$ とすると、(6.4)は以下のような2次元逆フーリエ変換で表される。

$$f(x, y, 0) = \iint F'(f_x, f_y) \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y)\} df_x df_y \quad (6.5)$$

z 方向に伝搬する場合（焦点面以外での場合）を考えると、(6.2)を(6.3)に代入して以下のような2次元逆フーリエ変換になる。

$$\begin{aligned} f(x, y, z) &= \iint F'(f_x, f_y) \exp\left\{2\pi i\left(\sqrt{f_0^2 - (f_x^2 + f_y^2)}\right)z\right\} \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y)\} df_x df_y \\ &\cong \iint F'(f_x, f_y) \exp\left\{2\pi i\left(f_0 - \frac{f_x^2 + f_y^2}{2f_0}\right)z\right\} \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y)\} df_x df_y \\ &= \exp(2\pi i f_0 z) \iint F'(f_x, f_y) \exp\left\{2\pi i\left(-\frac{f_x^2 + f_y^2}{2f_0}\right)z\right\} \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y)\} df_x df_y \\ &= \exp(2\pi i f_0 z) \iint F'(f_x, f_y) \exp\left\{\pi i\left(-\frac{f_x^2 + f_y^2}{f_0}\right)z\right\} \exp\{2\pi i(f_x x + f_y y)\} df_x df_y \quad (6.6) \end{aligned}$$

このように、伝搬の効果はフーリエ空間において2次の位相を入れることで計算できる。

6.2 アキシコンを用いたビーム整形法におけるビーム伝搬

Fig. 16 に示したアキシコンペアと $4f$ 光学系を組み合わせたビーム整形法の模式図を Fig. 21 に示す。数値計算では Fig. 21 におけるビーム伝搬を考える。 $4f$ 光学系は、1枚目のレンズ(L1)から焦点距離 f だけ手前の面 A (A1 直後の面) を2枚目のレンズ(L2)から焦点距離 f だけ後ろの面 B (OB1 の瞳面) に結像する。面 B の空間分布は面 A の空間分布を2枚のリレーレンズによって2回フーリエ変換したものになる。このように $4f$ 光学系を用いると、A の空間分布が B に投影され、A から B まで伝搬することによる回折の影響をなくすることができる。特に、Fig. 21 の光学系では、1つ目のアキシコン直後を $4f$ 光学系で結像することにより、アキシコンペア間の伝搬による回折の影響を補償できると考えられる。

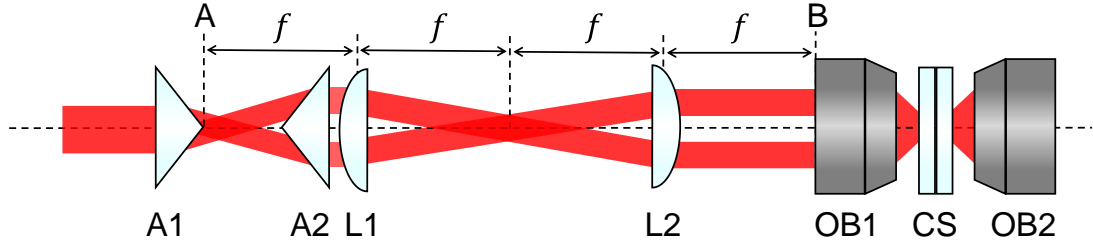


Fig. 21. Combination of the axicon pair and a $4f$ optical system. A1 and A2: axicons; L1 and L2: lenses; OB1 and OB2: objective lenses; CS: cover slips pasted with water; f : focal lengths of L1 and L2.

以上を踏まえ、Fig. 21 におけるビーム伝搬を以下のようにして求める。まず、ガウシアン分布を持つ 2 次元分布 $E_1(x, y)$ を用意し、1 つ目のアキシコンの効果を加える。アキシコンの効果は光軸中心からの距離に比例した位相変化

$$A(x, y) = \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} \sqrt{x^2 + y^2} \tan \beta\right) \quad (6.7)$$

を加える。(6.6)より、この分布を 2 次元フーリエ変換し、フーリエ空間で 2 次の位相変化

$$P(f_x, f_y, L) = \exp\left(-\pi i \frac{f_x^2 + f_y^2}{f_o} L\right) \quad (6.8)$$

を加えることでアキシコンペア間の伝搬の効果を与える。ただし、 L は伝搬距離、つまりアキシコン間の距離である。最後に 2 次元逆フーリエ変換により実空間に戻し、2 つ目のアキシコンの効果と同様に加える。対物レンズの瞳面における空間分布は $4f$ 光学系により、A1 直後の面を結像したものになるので、2 つ目のアキシコンの効果を加えた後、フーリエ空間において距離 L だけ逆向きに伝搬した効果

$$P(f_x, f_y, -L) = \exp\left(\pi i \frac{f_x^2 + f_y^2}{f_o} L\right) \quad (6.9)$$

を加えることと等価と考えることができる。よって、対物レンズの瞳面における電場 $E_2(x, y)$ は、

$$E_2(x, y) = \mathcal{F}^{-1} \left[P(f_x, f_y, -L) \mathcal{F} \left[A(x, y) \mathcal{F}^{-1} \left[P(f_x, f_y, L) \mathcal{F} [A(x, y) E_1(x, y)] \right] \right] \right] \quad (6.10)$$

と表せる。ただし、 \mathcal{F} は 2 次元フーリエ変換を表す。

対物レンズの焦点面における電場を考えるには、対物レンズやカバーガラスの透過率位置依存性を考慮する必要がある。前節で測定した p 偏光の透過率を $T_p(x)$ 、s 偏光の透過率を $T_s(x)$ とする。位置 (x, y) における光は、 $\theta = \arctan(y/x)$ とすると、p 偏光と s 偏光が $\cos^2 \theta : \sin^2 \theta$ の割合で含まれるので、対物レンズペアのパワー透過率 $T(x, y)$ は

$$T(x, y) = T_p(x_0 + r) \cos^2 \theta + T_s(x_0 + r) \sin^2 \theta \quad (6.11)$$

となる。ただし、 x_0 は測定結果における瞳の中心位置、 $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ である。ここで、OB1からOB2までの振幅透過率は $T'(x, y) \equiv \sqrt{T(x, y)}$ となり、OB1からOB1の焦点面までの振幅透過率は $T'(x, y)$ の平方根で得られる。以上より、対物レンズの焦点面における電場 $E_3(X, Y)$ は、

$$\begin{aligned} E_3(X, Y) &= \mathcal{F} \left[\sqrt{T'(x, y)} E_2(x, y) \right] \\ &= \mathcal{F} \left[\sqrt{T'(x, y)} \mathcal{F}^{-1} \left[P(f_x, f_y, -L) \mathcal{F} \left[A(x, y) \mathcal{F}^{-1} \left[P(f_x, f_y, L) \mathcal{F} [A(x, y) E_1(x, y)] \right] \right] \right] \right] \end{aligned} \quad (6.12)$$

となる。ただし、対物レンズの焦点距離を f としたとき、 $X = f_0 x / f$ 、 $Y = f_0 y / f$ である。

6.3 規格化と離散化

この数値計算を行う上で波長や対物レンズの瞳径等の値に依存させず、一般性を高めるために規格化を行う。ビームの波長を λ とし、Fig. 16のように瞳半径を P 、入射ビーム半径（ガウシアンビームの中心強度の $1/e^2$ の半幅）を B 、リングの外半径を R 、アキシコン角度を α とする。瞳半径を波長で規格化した値を $p_0 = P/\lambda$ 、入射ビーム半径を瞳半径で規格化した値 $b_0 = B/P$ 、リングの外半径を瞳半径で規格化した値 $r_0 = R/P$ とおく。さらに、アキシコンによる位相変化量（ $x = B$ における位相変化量）を ϕ とおくと、

$$\begin{aligned} \phi &= \frac{2\pi}{\lambda} \tan \beta B \\ &= \frac{2\pi}{\lambda} \tan \beta b_0 P \\ &= 2\pi \tan \beta b_0 p_0 \\ \therefore \tan \beta &= \frac{\phi}{2\pi b_0 p_0} \end{aligned} \quad (6.13)$$

となる。ただし、 $\tan \beta = (n_a - 1) \tan \alpha$ である。

以上をもとに規格化を行う。座標 x, y を瞳半径で規格化し、 $E(x, y)$ を規格化したものを $E'(x', y')$ （ $x' = x/P$ 、 $y' = y/P$ ）とする。同様に、 (x', y') におけるアキシコンの効果 $A'(x', y')$ とすると、(6.7)より、

$$\begin{aligned} A'(x', y') &= \exp \left(-\frac{2\pi i}{\lambda} \tan \beta \sqrt{x^2 + y^2} \right) \\ &= \exp \left(-\frac{2\pi i}{\lambda} \tan \beta P \sqrt{x'^2 + y'^2} \right) \\ &= \exp \left(-i \frac{\phi}{b_0 p_0} \frac{P}{\lambda} \sqrt{x'^2 + y'^2} \right) \\ &= \exp \left(-\frac{i\phi}{b_0} \sqrt{x'^2 + y'^2} \right) \end{aligned} \quad (6.14)$$

となる。

また、アキシコン間の伝搬による効果 $P(f_x, f_y)$ を考える。(6.8)において $L = R/\tan\beta$ を代入すると、 $P(f_x, f_y)$ を規格化した $P'(f'_x, f'_y)$ ($f'_x = P \cdot f_x, f'_y = P \cdot f_y$) は

$$\begin{aligned}
P'(f'_x, f'_y) &= \exp\left(-i\pi\lambda \frac{R}{\tan\beta} (f_x^2 + f_y^2)\right) \\
&= \exp\left(-i2\pi^2\lambda \frac{Pr_0b_0p_0}{\phi} \left(\frac{f_x'^2 + f_y'^2}{P^2}\right)\right) \\
&= \exp\left(-i2\pi^2 \frac{\lambda}{P} \frac{r_0b_0p_0}{\phi} (f_x'^2 + f_y'^2)\right) \\
&= \exp\left(-\frac{i2\pi^2r_0b_0}{\phi} (f_x'^2 + f_y'^2)\right)
\end{aligned} \tag{6.15}$$

となる。

数値計算においては2次元の配列を用意し、離散化して計算を行う必要がある。複素電場の配列全体のサイズを n 、瞳半径の配列数を r とすると、配列1個あたりのサイズは $s = P/r$ となる。離散化した電場 $E(i, j)$ ($i = x/s, j = y/s$) における、アキシコンの効果 $A(i, j)$ は、(6.7)より、以下のように書き直せる。

$$\begin{aligned}
A(i, j) &= \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} \tan\beta s \sqrt{i^2 + j^2}\right) \\
&= \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} \tan\beta \frac{P}{r} \sqrt{i^2 + j^2}\right) \\
&= \exp\left(-2\pi i \frac{\phi}{b_0p_0} \frac{1}{2\pi} \frac{P}{\lambda} \frac{1}{r} \sqrt{i^2 + j^2}\right) \\
&= \exp\left(-\frac{i\phi}{b_0r} \sqrt{i^2 + j^2}\right)
\end{aligned} \tag{6.16}$$

ただし、 i, j は整数であるが、負の値もとる。

同様に、 $\tilde{E}(f_i, f_j)(= \mathcal{F}[E(i, j)])$ におけるアキシコン間の伝搬の効果 $P(i, j)$ は、以下のように書き直せる。

$$\begin{aligned}
P(i, j) &= \exp\left(-i2\pi^2\lambda \frac{Pr_0b_0p_0}{\phi} \left(\frac{i^2 + j^2}{(s \cdot n)^2}\right)\right) \\
&= \exp\left(-i2\pi^2\lambda \frac{Pr_0b_0p_0}{\phi} \left(\frac{r}{P}\right)^2 \frac{1}{n^2} (i^2 + j^2)\right) \\
&= \exp\left(-i2\pi^2\lambda \frac{r_0b_0p_0}{\phi} \frac{r^2}{P} \frac{1}{n^2} (i^2 + j^2)\right) \\
&= \exp\left(-i2\pi^2 \frac{\lambda}{P} \frac{r_0b_0p_0}{\phi} r^2 \frac{1}{n^2} (i^2 + j^2)\right)
\end{aligned}$$

$$= \exp\left(-\frac{i2\pi^2 r_0 b_0 r^2}{\phi n^2} (i^2 + j^2)\right) \quad (6.17)$$

このように、波長や対物レンズの瞳径で規格化した数値計算を行うことができ、4つの無次元パラメータ p_0, b_0, r_0, ϕ を用いることで、あらゆる状況の数値計算が可能になる。

6.4 ビーム整形法のパラメータの最適化

角スペクトル法に基づき、SRS 顕微鏡の透過率、空間分解能、信号強度を数値計算で求める。計算にあたって、波長 843 nm、対物レンズの瞳径 5.2 mm の光学系を想定した。また、アキシコンの角度は 0.5 deg で計算を行った。透過率は、焦点面における光エネルギーを光損失がない場合の光エネルギーで割って求める。空間分解能は SRS 信号の PSF の半値全幅 (FWHM) を求める。FWHM が小さいほど、高空間分解能となる。信号強度は焦点面における PSF の原点の値と定義した。

それぞれの性能を、規格化ビーム径 $b_0 = B/P$ の関数として求める。また、規格化リング径 $r_0 = R/P$ を 1~0.9 まで変化させた。また、ビーム整形を用いていない、対物レンズにガウシアンビームを入射した従来の SRS 顕微鏡 (normal SRS) の性能も計算した。計算結果を Fig. 22(a)-(c) に示す。まず青の破線で書かれた normal SRS に着目する。normal SRS では、入射ビーム径が細いと透過率は高いものの (Fig. 22(a))、空間分解能や信号強度が低くなっていることが分かる (Fig. 22(b),(c))。また空間分解能や信号強度を高めようとすると透過率が下がってしまい、空間分解能や信号強度と透過率がトレードオフの関係にあることが分かる。具体的には、規格化ビーム径が 0.85 のとき信号強度が最大となっているが、このとき PSF の FWHM は $0.43 \lambda/NA$ となり空間分解能は比較的高いものの、透過率が 0.85 まで落ちてしまっている。一方、緑色の実線で書かれた $r_0 = 0.95$ の axicon SRS の結果に着目すると、規格化ビーム径が 0.56 のとき信号強度が最大となり、この最大値は normal SRS の最大値の 1.1 倍以上である。また PSF の FWHM は $0.41 \lambda/NA$ となり、空間分解能も高い。さらに透過率は 0.91 となる。提案したビーム整形法を用いることで、信号強度や空間分解能を高めつつ、さらに透過率を 90% 以上まで上げることができると分かる。

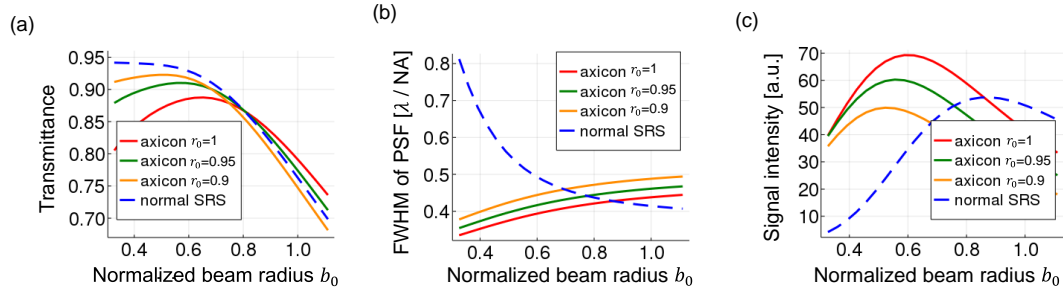


Fig. 22(a)-(c) Numerically calculated transmittance, FWHM of the PSF, and signal intensity of SRS in an arbitrary unit (a.u.) for axicon SRS and normal SRS. The horizontal axes represent the $1/e^2$ radius of the input beam normalized by the pupil radius of the objective lens. Red solid curve: axicon SRS, $r_0 = 1$; Green solid curve: axicon SRS, $r_0 = 0.95$; Yellow solid curve: axicon SRS, $r_0 = 0.9$; Blue broken curve: normal SRS.

この最適化された条件において、アキシコンによる位相変化量 ϕ を変化させ、対物レンズの瞳面でのビームパターンや PSF、OTF に差が生じるか調べる。Fig. 23 に結果を示す。Fig. 23 では 3 種類の ϕ について計算を行った。 $\phi = 42.8, 171.2, 856.1$ はそれぞれ、 $\alpha = 0.5, 2, 10$ deg の時のアキシコンによる位相変化量に対応している。Fig. 23(a), (b), (c) より、瞳面では ϕ によって高周波成分の若干の違いが見られるが、瞳においてビームが埋まっている様子はいずれも同様である。また、Fig. 23(d) より、いずれの ϕ の時も PSF や OTF が完全に一致して重なっており、PSF や OTF は ϕ に依存しないことが分かる。このように、計算時の ϕ によってビームパターンの高周波成分の違いは多少生まれるが、PSF や OTF が一致していることから、信号強度や空間分解能といった顕微鏡の性能は ϕ に依存しないことが分かる。

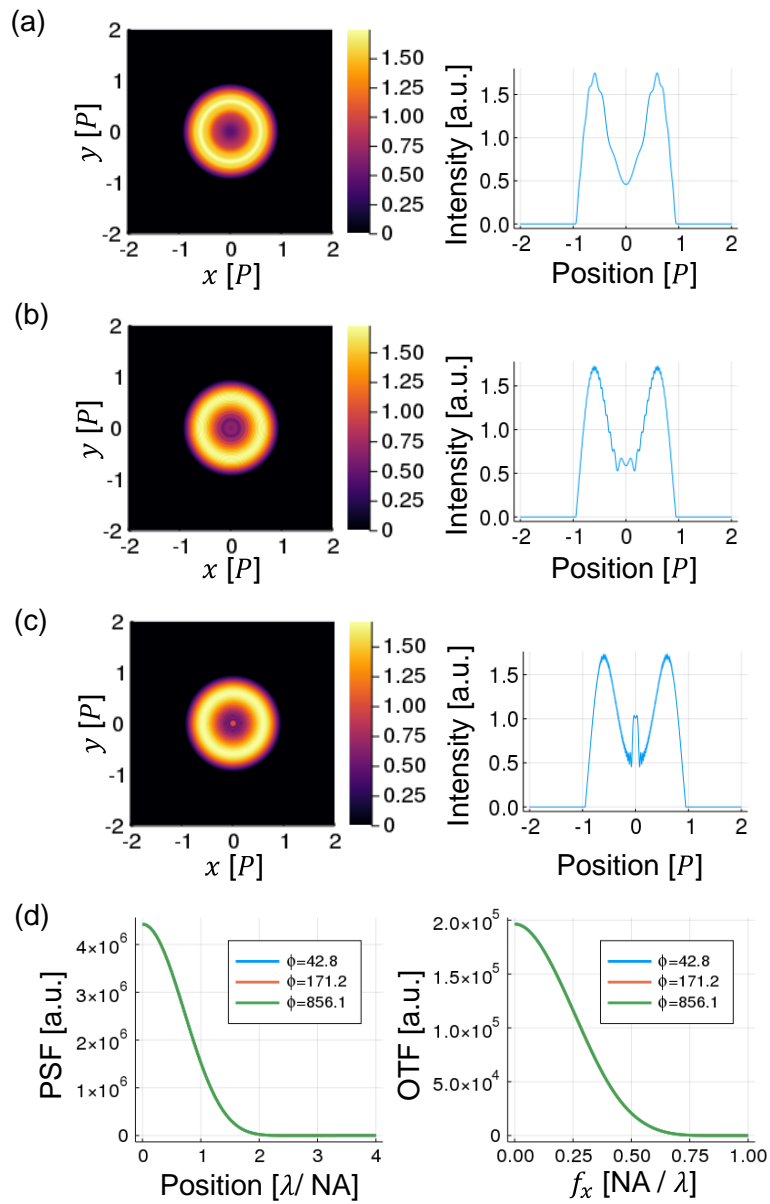


Fig. 23 (a)-(c) Numerically calculated beam patterns at the pupil and their intensity distribution at $y = 0$ with $\phi = 43, 171$, and 856 , respectively. The axes are normalized by the objective lens pupil radius P . (d) Numerically calculated PSF and OTF. Blue curve: $\phi = 43$; Orange curve: $\phi = 171$; Green curve: $\phi = 856$.

6.5 ミスアライメントや波面歪みの影響

アキシコンを用いた低損失顕微光学系において、アキシコンのミスアライメントやビームの波面歪みがどのように影響するのか数値計算で求める。

6.5.1 ビームパターンへの影響

ミスアライメントや波面歪みがビームパターンに与える影響を調べる。ミスアライメントに関しては、アキシコンの軸ずれ、アキシコン角度の製造誤差について計算を行い、波面歪みに関しては、ビームの傾き、非点収差、フォーカスシフト、コマ、球面収差の5つの収差について計算を行った[37]。それぞれ対物レンズの瞳面と焦点面におけるビームパターンを求める。また、計算では波長 843 nm、瞳径 5.2 mm の光学系を想定し、数値計算ではアキシコン角度 α は 0.5 deg に設定した。さらに、ここでは簡単のため、対物レンズの透過率を瞳全体で 1 とした。結果を Fig. 24 に示す。Fig. 24(a),(b)は光学系にミスアライメントや波面歪みがない場合の瞳面と焦点面のビームパターンである。瞳面ではリングビームが形成され、焦点面では単峰性のスポットが形成されていることがわかる。Fig. 24(c),(d)は2つ目のアキシコンが x 方向に 0.1 mm ずれていた場合のビームパターンである。瞳面において x 方向にビームが歪み、焦点面においては主スポットに隣接して弧状のパターンが生じていることがわかる。Fig. 24(e),(f)は、アキシコン角度 α が1つ目と2つ目で異なり、1つ目の α が設計値より 0.05 deg 大きい時のビームパターンである。瞳面では大きな差が見られないものの、焦点面では主スポットの周りに複数のリングが生じ、スポット強度が著しく低下していることがわかる。Fig. 24(g),(h)は入射ビームに x 方向に瞳の端において 1λ の傾きがあった場合のビームパターンである。アキシコンに軸ずれがあった場合のように、瞳面では x 方向にビームが歪み、焦点面において弧状のパターンが複数生じていることが分かる。Fig. 24(i),(j)は入射ビームに瞳の端において 1λ の縦横非点収差があった場合のビームパターンである。瞳面において xy 方向に非対称にビームが歪み、焦点面において主スポットの上下左右に副スポットが生じている。Fig. 24(k),(l)は入射ビームに瞳の端において 1λ のフォーカスシフトがあった場合のビームパターンである。瞳面においてリングの幅が狭くなり、焦点面において複数のリングパターンが生じている。Fig. 24(m),(n)は入射ビームに x 方向に瞳の端において 1λ のコマがあった場合のビームパターンである。アキシコンの軸ずれやビームの傾きがあった場合のように、瞳面では x 方向にビームが歪み、焦点面において弧状のパターンが生じていることが分かる。Fig. 24(o),(p)は入射ビームに瞳の端において 1λ の球面収差があった場合のビームパターンである。瞳面においてリングの幅が狭くなり、焦点面において主スポットの周りにリングパターンが生じている。

このように、アキシコンのミスアライメントやビームの波面歪みはアキシコンを用いた低損失顕微光学系に影響を与え、スポット強度を低下させることがわかる。

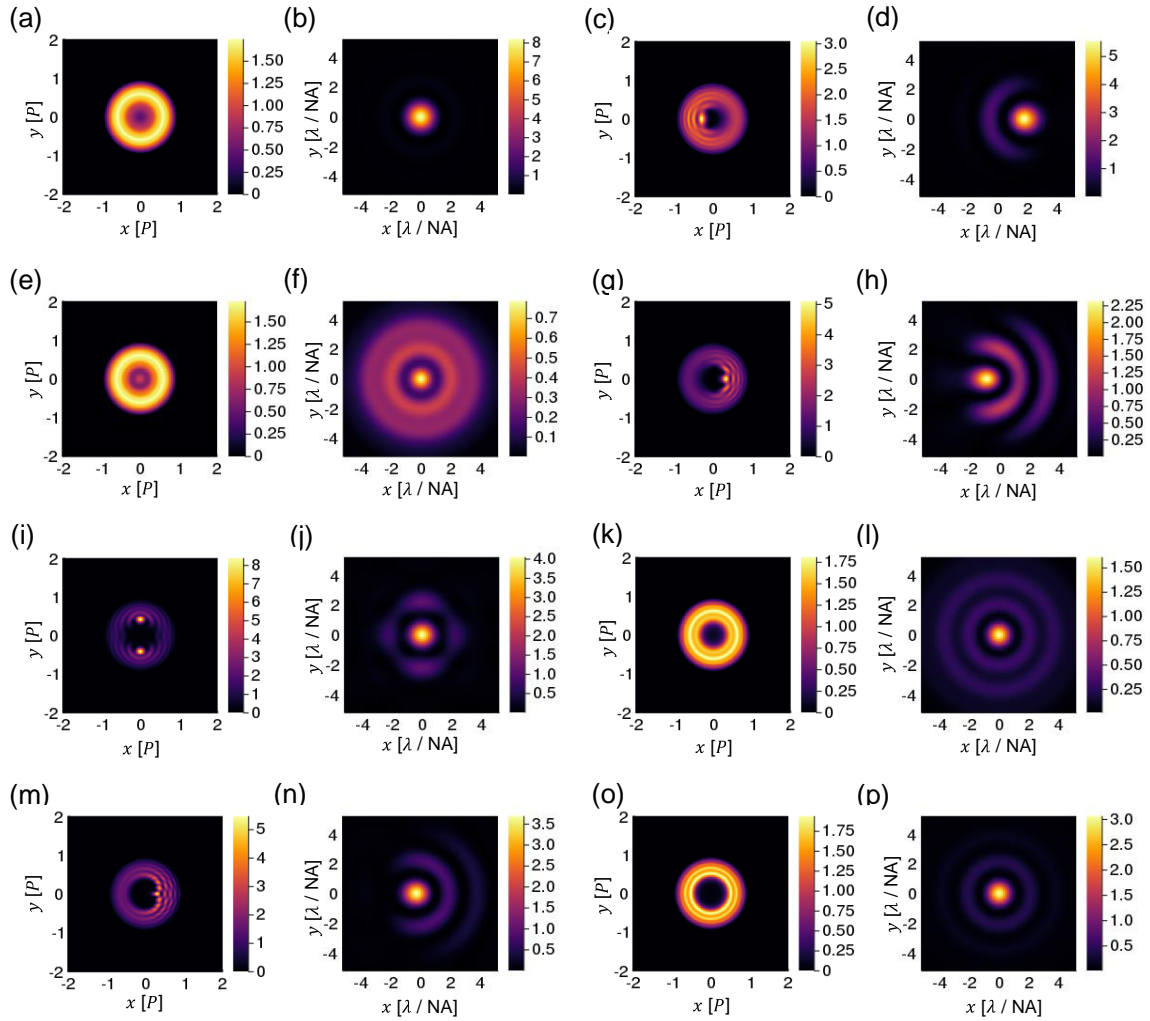


Fig. 24 Calculated beam patterns at the pupil and the focal plane with the effects of misalignments and wavefront distortion. The axes are normalized by the pupil radius P or λ/NA . (a), (b) Patterns without any misalignment or wavefront distortion. (c), (d) Patterns with a displacement of 0.1 mm of the second axicon in the x direction. (e), (f) Patterns with an angle deviation of $+0.05^\circ$ in the first axicon. (g), (h) Patterns with a beam inclination of 1λ in the x direction. (i), (j) Patterns with an astigmatism of 1λ . (k), (l) Patterns with a focus shift of 1λ . (m), (n) Patterns with a coma of 1λ in the x direction. (o), (p) Patterns with a spherical aberration of 1λ .

6.5.2 信号強度への依存性

次に、ミスアライメントや波面歪みのスポット強度への依存性を数値計算で求める。この計算においても、対物レンズの透過率は瞳全体で1とした。Fig. 25に結果を示す。Fig. 25(a)はアキシコンの軸ずれのスポット強度への依存性を表す。横軸は軸ずれ量を入射ビーム径(強度が $1/e^2$ になる全幅)で規格化した値、縦軸はスポット強度である。また、1つ目のアキ

シコンがずれていた場合と2つ目のアキシコンがずれていた場合の2つについて計算を行った。1つ目がずれていた場合と2つ目がずれていた場合で差はほとんどなく、軸ずれ量が大きくなるにつれスポット強度が低下していくことがわかる。ただし、アキシコンのアライメントは0.05 mm (ビーム径で規格化すると0.17)程度は容易に行うことができ、このときのスポット強度の低下度は6.3%程度であるため、アキシコンの軸ずれの影響はアライメントで十分対処可能である。Fig. 25(b)はアキシコン角度の製造誤差のスポット強度への依存性を表す。横軸はアキシコン角度の製造誤差をアキシコン角度 α で規格化した値、縦軸はスポット強度である。1つ目に誤差があった場合と2つ目に誤差があった場合の2つについて計算を行った。アキシコン角度の誤差に関しても、1つ目に問題があった場合と2つ目に問題があった場合で大きな差は見られないことがわかる。また、アキシコンの製造誤差は ± 0.01 deg (アキシコン角度で規格化すると ± 0.02)であるので[34]、この範囲においてスポット強度低下度は3%以内であり、製造誤差の影響は無視できると考えられる。Fig. 25(c)は波面歪みのスポット強度への依存性を表す。横軸が波長で規格化した収差量、縦軸がスポット強度である。ビームの傾き、非点収差、フォーカスシフト、コマ、球面収差の5つの波面歪みに関して計算を行った。収差量が増えるにつれスポット強度が低下していくことがわかるが、ビームの傾きはアライメントで修正可能であり、その他の収差に関しては実験で光学系の収差量を計測し、付録Bで評価を行う。

以上の数値計算から、アキシコンのアライメントやビームの波面歪みが光学系に与える影響を定量的に明らかにした。なお、アキシコンのミスアライメントやビームの波面歪みが透過率や空間分解能に与える影響は付録Cに示す。

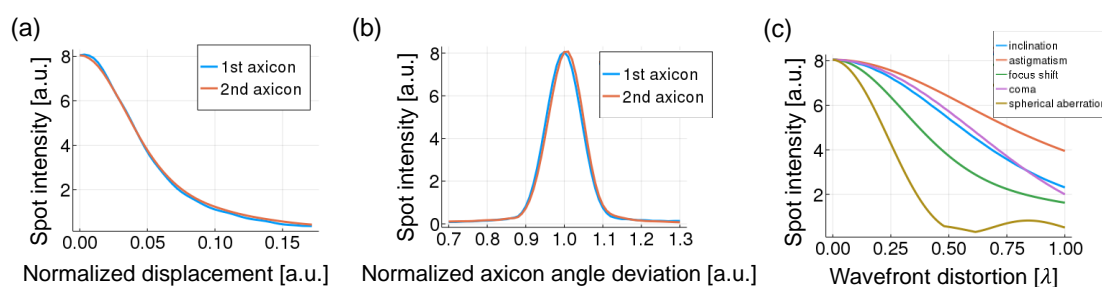


Fig. 25 Dependence on the misalignments and wavefront distortion of the spot intensity. (a) Dependence on axicon displacement. Blue curve: displacement of the first axicon; Orange curve: displacement of the second axicon. (b) Dependence on axicon angle deviation. Blue curve: angle deviation of the first axicon; Orange curve: angle deviation of the second axicon. (c) Wavefront distortion dependence. Blue curve: beam inclination; Orange curve: astigmatism; Green curve: focus shift; Violet curve: coma; Brown curve: spherical aberration.

6.6 アキシコンの先端部分の影響

前章で述べたとおり、実験で用いるアキシコンの先端部分は最大で直径 1.5 mm の部分がアキシコンの性質を満たしていない。その影響を数値計算で再現する。この欠陥部分において光がさえぎられると仮定して計算を行った。本節でも前節と同様、対物レンズの透過率は瞳の位置によらず 1 とした。計算結果を Fig. 26 に示す。Fig. 26(a),(b)より、アキシコンの先端部分には光が入らないため、A2 直後や瞳面でのビームパターンにおいて中心部分が暗くなっていることが分かる。また、Fig. 26(c)にスポット強度に対する先端の大きさの依存性の数値計算結果を示す。先端の大きさを大きくすればするほどスポット強度が下がっていくことが分かる。この先端部分による光損失を抑えるためには、ビームを広げてアキシコンの先端部分に入射する光パワーの割合を少なくすればよい。また、アキシコンの先端の欠陥による透過率や空間分解能への影響は付録 C で述べる。

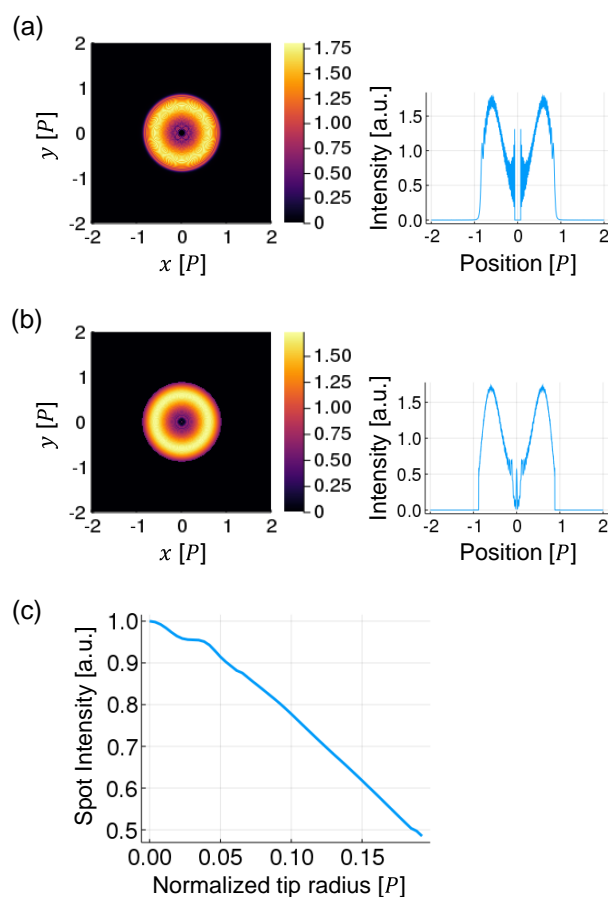


Fig. 26 Effect of the tip of the axicon. (a) Beam pattern right after the second axicon and its intensity distribution at $y = 0$. The axes are normalized by the pupil radius P . (b) Beam pattern at the pupil and its intensity distribution at $y = 0$. The axes are normalized by the pupil radius P . (c) Tip size dependence of the spot intensity. The horizontal axis indicates the tip radius normalized by the pupil radius P .

第7章 低損失顕微光学系の構築

本章では前章で設計したビーム整形法を用いて低損失光学系を構築し、ビームパターンの観測や透過率、空間分解能等の評価を行う。

7.1 光学系

第6章4節におけるビーム整形法の最適化の結果をもとに、波長 843 nm のピコ秒 TiS レーザを用いた低損失顕微光学系を構築する。つまり、規格化リング径 r_0 が 0.95、規格化ビーム径 b_0 が 0.56 になるように設計する。ここで注意しなければならないのが、アキシコンの先端部分によるロスである。実験で用いる対物レンズの瞳径が 5.2 mm であるが、これを基準にビーム径を決めると、ビームが細いためアキシコンの先端によるロスが大きくなってしまう。そこで、ビームを最初に拡大し、アキシコンペアに入射した後、その出力のリングビームを回折の影響を補償するための 4f 光学系を用いて縮小してビーム整形法のパラメータの値が最適になるように調整する。今回はアキシコンペアに入射するビームを FWHM が 3.4 mm になるまで拡大し、リングビームを 1/2 倍に縮小する。Fig. 27(a)に構築した光学系の概略図を示す。実験で用いたアキシコン(Thorlabs, AX2510-B)のアキシコン角度 α は 10 deg である。また、対物レンズペアの間には水で貼り合わせたカバーガラスを置いた。また、低損失化を実現する上で重要なのが A1 の直前に入れたアパーチャである。今回設計した光学系において、Fig. 27(b)に示すように、A1 によって偏向された 2 つのビームが交差した後に A2 に入射する必要がある。一方 Fig. 27(c)に示すように、A1 によって偏向された 2 つのビームが交差しきる前に A2 に入射した場合、光損失が大きくなってしまう。これは、交差しきっていない部分のビームが A2 によって更に偏向され拡散してしまい、その部分が次のレンズ L1 のアパーチャで遮られてしまうからである。TiS からのビームは FWHM が 3.4 mm になるまで拡大しているが、ビームの波面が汚く、所望のビーム幅の周りにノイズが乗ってしまっている。そこで、A1 前にアパーチャを置くことでこのノイズを取り除き、ビームが交差しきらないことによる光損失を抑えることができる。また、この光学系のアライメント方法は付録 C に示す。

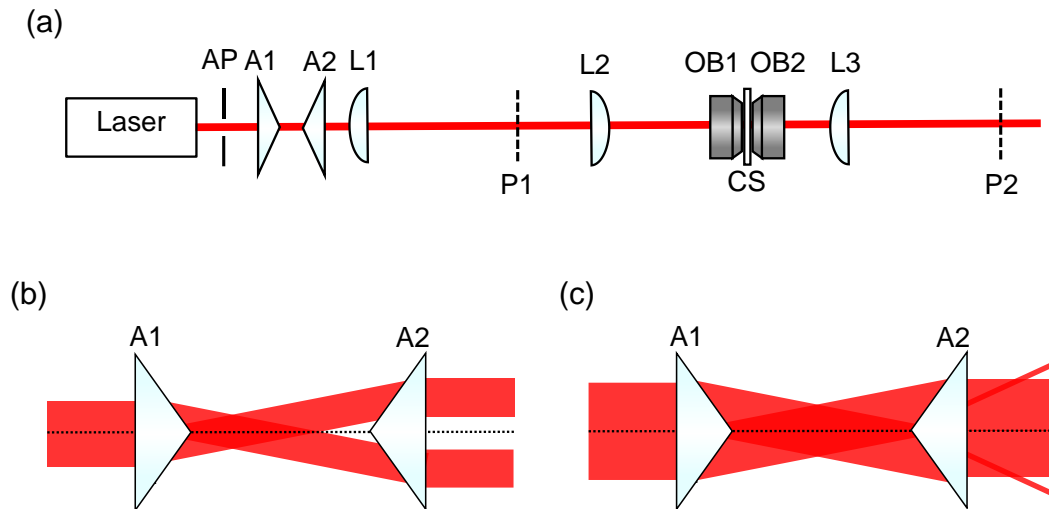


Fig. 27 (a) Schematic of low-loss microscope optics. AP: aperture; A1 and A2: axicons; L1: lens, $f = 100$ m; L2: lens, $f = 200$ mm; L3: lens, $f = 250$ mm; OB1 and OB2: objective lenses; CS: cover slips pasted with water; P1: focal plane after L1; P2: focal plane after L3. (b) Schematic of the beam completely intersecting before A2. (c) Schematic of the beam not completely intersecting before A2.

7.2 ビームパターン

Fig. 27(a)で示した光学系において、A2直後のビームパターンと、P1、P2におけるビームスポットを観測した。結果をFig. 28に示す。Fig. 28(a)はA2直後のビームパターンであり、アキシコンペアによってリングビームが整形されていることが分かる。リングビームの直径を測ると9.95 mmであった。設計理論値は $5.2 \times 0.95 \times 2 = 9.88$ mmであるのでほぼ設計通りのビームが整形できている。さらに、ビームの中心が暗くなっている様子から、アキシコンの先端部分による影響がFig. 26(a)で計算されているように再現できていることが分かる。Fig. 28(b)は面P1におけるビームスポット、つまりFig. 28(a)のリングビームをL1で集光したビームスポットである。きれいな単峰性のスポットが形成されている。Fig. 28(c),(d)に面P2におけるビームスポットと、その黄色い点線におけるクロスセクションの強度分布を示す。Fig. 28(c)は対物レンズペア後のビームをL3で集光したビームスポットであるので、対物レンズペア間の焦点面におけるビームスポットと相似のスポットが観測できる。カバーガラスによる収差の影響が多少見られるがクロスセクションの強度分布を見ると細いスポットが形成されていると分かる。

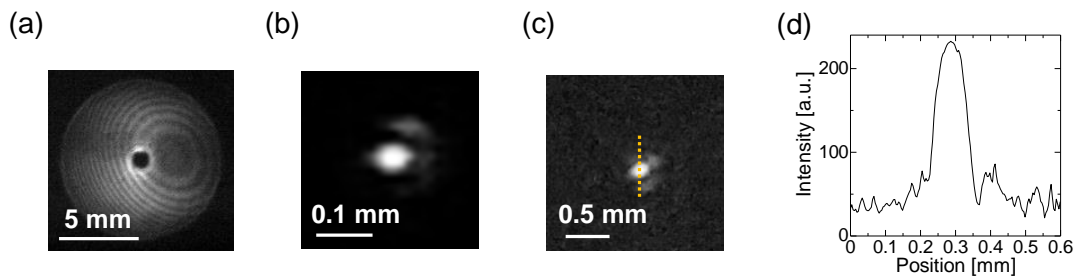


Fig. 28 Beam patterns captured in the experiment. (a) Beam pattern after A2. (b) Focal spot at P1. (c) Focal spot at P2. (d) Intensity distribution along the yellow line shown in (c).

7.3 透過率と空間分解能の評価

Fig. 27(a)の光学系における透過率と空間分解能の評価を行う。さらに、ビーム整形を行わずにガウシアンビームを用いた場合の透過率と空間分解能との比較を行う。

まず Fig. 27(a)における全体の透過率、つまり A1 から OB2 までの透過率は 86.6%、対物レンズ前後の透過率は 89.8% と非常に高い値となった。さらに、A1 から L2 までの光損失が 4% 以下であることから、アキシコンの先端による影響は十分抑制されていることが分かる。空間分解能に関してはビームスポットの大きさで評価する。ビームスポットのサイズを第一暗環の直径で定義すると、その大きさは Fig. 28(d)より 0.14 mm である。数値計算で求めた対物レンズの焦点面におけるビームスポットのサイズは $1.34 \lambda/NA$ であり、この光学系においては 0.11 mm に対応する。理論値より太いビームスポットとなったが、これは、付録 E で示すように、対物レンズがカバーガラスに対して補正されていないからだと考えられる。

ガウシアンビームを用いた際の透過率と空間分解能は、太いビームと細いビームの 2 種類を用いてアキシコンを用いた場合と比較を行う。Fig. 27(a)でアキシコンペアと $4f$ 光学系を取り除いた FWHM 3.4 mm のガウシアンビームと、アキシコンペアのみを取り除いた FWHM 1.7 mm のガウシアンビームをそれぞれ対物レンズに入射した場合の対物レンズ前後の透過率とスポットサイズを以下の Table 1 にまとめる。太いガウシアンビームを用いると、実効 NA が大きくなりスポットサイズが小さくなっているが、ビームが対物レンズの瞳で蹴られるため、透過率が低くなってしまふ。一方、細いガウシアンビームを用いると、対物レンズの瞳内にビームが収まり、透過率は高くなるが、実効 NA が小さくなるためスポットサイズが大きくなってしまふ。このように、ガウシアンビームでは透過率と空間分解能がトレードオフの関係にあることが実験からも分かる。しかし、アキシコンを用いることで、空間分解能を犠牲にすることなく透過率を高めることができ、低損失対物レンズと組み合わせることで 86.6% という超高透過率の光学系を実現することができた。

Table 1. Transmittance and spot size.

	Transmittance [%]	Spot size [mm]
Axicon system	89.8	0.14
Wide (3.4 mm) Gaussian	77.2	0.17
Thin (3.4 mm) Gaussian	89.3	0.21

第8章 結論

以下に各章のまとめを記し、本研究を総括する。

第1章では、本研究の背景として、近年盛んに研究が行われている量子増強計測についての説明と、量子増強計測において低損失な光学系が必要不可欠であること、顕微光学系において光学系の低損失化が困難であることを述べた。この背景を受けて、低損失顕微光学系の実証を本研究の目的とした。さらに、本研究の成果について簡潔に述べた。

第2章では顕微光学系における光学原理について説明した。レンズの波面曲率に関する公式やフーリエ変換作用を示した。さらに回折限界について述べ、顕微鏡の性能を議論する上で重要となる空間分解能と実効 NA や PSF、OTF について紹介した。

第3章では非線形光学現象についてと3次の非線形光学現象である SRS について説明し SRS 顕微法の原理と基本構成を示した。また、SRS 顕微鏡などの非線形光学顕微鏡においては空間分解能と信号強度は一般的にトレードオフの関係があることを述べた。さらに顕微鏡の感度について述べ、現状の SRS 顕微鏡がショット雑音で制限されていること、ショット雑音を超える感度を得るには量子的手法が必要であることを述べた。最後に高感度化の有用性を説明した。

第4章では量子増強 SRS 顕微鏡について説明するため、まず量子光学の基礎として、調和振動子や光子数状態やコヒーレント状態、スクイーズド状態について紹介した。そして、我々が実現を目指している量子増強 SRS 顕微鏡の原理を説明した。さらに量子増強 SRS 顕微鏡を実現する上で重要となる透過率と SNR 向上度の関係について示し、80%以上の透過率の光学系を目標とした。最後に量子増強 SRS 顕微鏡の先行研究を紹介した。

第5章では量子増強 SRS 顕微鏡に必要な低損失顕微光学系の構想について述べた。すでに実証していたアキシコンを用いた低損失ビーム整形法について説明し、さらに今回用意した高透過率な対物レンズとカバーガラスを紹介し、それらの透過率位置依存性計測結果を示し高い透過率が得られていることを示した。

第6章ではアキシコンを用いた低損失光学系におけるビーム伝搬の数値計算を行った。まず数値計算に用いる角スペクトル法について紹介し、ビーム整形法におけるビーム伝搬について式を示した。次にビームの波長や対物レンズの瞳の大きさに依存しない計算をするための規格化と数値計算を行う上で必要となる離散化について説明した。そして対物レンズの透過率も考慮したビーム整形法の設計の最適化を行った。さらに、アキシコンのミスアライメントや波面歪みがこの光学系に与える影響や、アキシコンの先端部分に欠陥があった場合の影響を示し、評価を行った。

第7章では低損失ビーム整形法を構築し性能の評価を行った。まず光学系について説明し、実験で得られたビームパターンを示し、概ね理論値通りのビームが得られていることを示した。最後に本手法の透過率と空間分解能の評価を行い、空間分解能を犠牲にせずに86.6%の高透過率の顕微光学系を実証した。

最後に本論文を総括する。量子増強を用いる際は低損失な顕微光学系が必要不可欠であるが、顕微鏡においては空間分解能を確保しながら低損失化を図ることが難しかった。本研究ではアキシコンを用いたビーム整形法と高透過率な対物レンズ・カバーガラスを用いた低損失顕微光学系を提案し、高空間分解能で低損失な光学系を実証した。今回提案した低損失顕微光学系は量子増強 SRS 顕微鏡に応用可能であり、今後量子増強の効果を高めるのに役立つであろう。

謝辞

本研究は、東京大学工学系研究科電気系工学専攻 小関泰之准教授の指導の下行われました。小関准教授には3年間にわたり終始、懇切丁寧なご指導を賜りました。研究を始めた当時は光学の知識や、プログラミングスキルがほとんどなく、研究の仕方も分かっていなかった私に、知識的なことはもちろん、研究に取り組む上での姿勢や気持ちの持ち方など1から沢山のことを教えていただきました。また、研究を進めていく上で数多くのディスカッションの場を設けてくださり、光学の理解が深まるとともに、研究の方向性に対する意見やアイデアを出しやすい環境を作ってくださいました。この場をお借りして、深く感謝申し上げます。

研究室運営では馬場依利子様や水野由加利様には、経費や旅費の対応やその他事務手続きなど様々な場面で支えていただき、お世話になりました。加藤一弘助教には実験に必要な治具の制作や、研究に関する助言、ネットワーク・PCの管理をしていただき大変お世話になりました。飯野敬矩研究員と小口研一研究員には、実験室の環境整備や実験中の質問に対応してくださいました。研究に関する質問や議論も多くしていただき、研究への理解を深めることができました。皆様のおかげで研究を快適かつ順調に進めることができました。この場をお借りしてお礼申し上げます。

また、研究室では上記の方々に加え、Cheon さん、Spencer さん、Robert さん、鈴木さん、寿さん、戴さん、浅井卓也さん、田中さん、Liu さん、Yu さん、田口さん、浅井翼さん、徐さん、宮脇さん、浅沼さん、三浦さん、東谷さん、佐野さん、弓場さん、黒田さんには光学実験や数値計算など研究に関する知識を教えていただき、沢山の助言をいただきました。そして、研究に関する質問、議論を通して刺激を受け、研究へのモチベーションを高めてくれただけでなく、日常会話によって楽しく研究に励むことができました。心より感謝申し上げます。

さらに、中野・種村研、三田研、池田研の方々には研究に関するお話や日ごろの雑談を通じて良い気分転換の時間を持つことができ、感謝いたします。

そして、授業で電気系の学問の面白さ、奥深さを教えてくださった先生方、輪講などの研究発表の場で研究に関する助言やフィードバックをいただいた先生方にこの場をお借りしてお礼申し上げます。

最後に、学生生活を送る上で様々な面で支えてくれた家族、そしてその他応援してくれた全ての人に感謝いたします。

参考文献

- [1] G. Brida, M. Genovese, and I. R. Ruo Berchera, “Experimental realization of sub-shot-noise quantum imaging,” *Nat. Photon.* **4**, 227 (2010).
- [2] T. Ono, R. Okamoto, and S. Takeuchi, “An entanglement-enhanced microscope,” *Nat. Commun.* **4**, 2426 (2013).
- [3] M. A. Taylor, J. Janousek, V. Daria, J. Knittel, B. Hage, H.-A. Bachor, and W. P. Bowen, “Biological measurement beyond the quantum limit,” *Nat. Photon.* **7**, 229 (2013).
- [4] M. A. Taylor, J. Janousek, V. Daria, J. Knittel, B. Hage, H.-A. Bachor, and W. P. Bowen, “Subdiffraction-limited quantum imaging within a living cell,” *Phys. Rev. X* **4**, 011017 (2014).
- [5] J. Aasi, J. Abadie, B. P. Abbott, R. Abbott, T. D. Abbott, M. R. Abernathy, C. Adams, T. Adams, P. Addesso, R. X. Adhikari et al., “Enhanced sensitivity of the LIGO gravitational wave detector by using squeezed states of light,” *Nat. Photonics* **7**, 613 (2013).
- [6] M. Tse, H. Yu, N. Kijbunchoo, A. Fernandez-Galiana, P. Dupej, L. Barsotti, C. D. Blair, D. D. Brown, S. E. Dwyer, A. Effler et al., “Quantum-enhanced advanced LIGO detectors in the era of gravitational-wave astronomy,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 231107 (2019).
- [7] F. Acernese, M. Agathos, L. Aiello, A. Allocca, A. Amato, S. Ansoldi, S. Antier, M. Arène, N. Arnaud, S. Ascenzi et al., “Increasing the astrophysical reach of the advanced Virgo detector via the application of squeezed vacuum states of light,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 231108 (2019).
- [8] Y. Michael, L. Bello, M. Rosenbluh, and A. Pe’er, “Squeezing-enhanced Raman spectroscopy,” *npj Quantum Inf.* **5**, 81 (2019).
- [9] R. B. Andrade, H. Kerdoncuff, K.B.-Sørensen, T. Gehring, M. Lassen, and U. L. Andersen, “Quantum-enhanced continuous-wave stimulated Raman scattering spectroscopy,” *Optica* **7**, 470 (2020).
- [10] C. A. Casacio, L. S. Madsen, A. Terrasson, M. Waleed, K. Barnscheidt, B. Hage, M. A. Taylor, and W. P. Bowen, “Quantum correlations overcome the photodamage limits of light microscopy,” *arXiv:2004.00178v2* (2020).
- [11] C. W. Freudiger, W. Min, B. G. Saar, S. Lu, G. R. Holtom, C. He, J. C. Tsai, J. X. Kang, and X. S. Xie, “Label-free biomedical imaging with high sensitivity by stimulated Raman scattering microscopy,” *Science* **322**, 1857 (2008).
- [12] J.-X. Cheng, and X. S. Xie, “Vibrational spectroscopic imaging of living system: An emerging platform for biology and medicine,” *Science* **350**, aaa8870 (2015).
- [13] Y. Ozeki, W. Umemura, Y. Otsuka, S. Satoh, H. Hashimoto, K. Sumimura, N. Nishizawa, K. Fukui, and K. Itoh, “High-speed molecular spectral imaging of tissue with stimulated Raman scattering,” *Nat. Photon.* **6**, 845 (2012).

- [14] Y. Ozeki, T. Asai, J. Shou, and H. Yoshimi, "Multicolor stimulated Raman scattering microscopy with fast wavelength-tunable Yb fiber laser," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **25**, 1, 7100211 (2019).
- [15] Y. Wakisaka, Y. Suzuki, O. Iwata, A. Nakashima, T. Ito, M. Hirose, R. Domon, M. Sugawara, N. Tsumura, H. Watarai, T. Shimobaba, K. Suzuki, K. Goda, and Y. Ozeki, "Probing the metabolic heterogeneity of live *Euglena gracilis* with stimulated Raman scattering microscopy," *Nat. Microbiol.* **1**, 16124 (2016).
- [16] J. Shou, and Y. Ozeki, "Dual-polarization hyperspectral stimulated Raman scattering microscopy," *Appl. Phys. Lett.* **113**, 033701 (2018).
- [17] Y. Ozeki, "Molecular vibrational imaging by stimulated Raman scattering microscopy: principles and applications," *Chin. Opt. Lett.* **18**, 12170 (2020).
- [18] C. Zhang, and J.-X. Cheng, "Perspective: Coherent Raman scattering microscopy: the future is bright," *APL Photonics* **3**, 090901 (2018).
- [19] Y. Ozeki, H. Kano, and N. Fukutake, "Molecular vibrational imaging by coherent Raman scattering," in 'Bioimaging: Imaging by light and electromagnetics in medicine and biology,' ed. by S. Ueno (CRC Press, 2020).
- [20] F. Hu, L. Shi, and W. Min, "Biological imaging of chemical bonds by stimulated Raman scattering microscopy," *Nat. Methods* **16**, 830 (2019).
- [21] A. H. Hill, and D. Fu, "Cellular imaging using stimulated Raman scattering microscopy," *Anal. Chem.* **91**, 9333 (2019).
- [22] Y. Ozeki, Y. Miyawaki, and Y. Taguchi, "Quantum-enhanced balanced detection for ultrasensitive transmission measurement," *J. Opt. Soc. Am. B* **37**, 3288 (2020).
- [23] N. Ochiai, J. Shou, and Y. Ozeki, "Axicon-based beam shaping for low-loss nonlinear microscopic optics," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, 1342 (2019).
- [24] 川田善正『はじめての光学』講談社 (2015).
- [25] M. Duncan, J. Reintjes, and T.J. Manuccia, "Scanning coherent anti-Stokes Raman microscope," *Opt. Lett.* **7**, 350-352 (1982).
- [26] C. L. Evans, E. O. Potma, M. Puoris'haag, D. Cote, C. P. Lin, and X. S. Xie, "Chemical imaging of tissue in vivo with video-rate coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **102**, 16807–16812 (2005).
- [27] C. Di Napoli, I. Pope, F. Masia, P. Watson, W. Langbein, and P. Borri, "Hyperspectral and differential CARS microscopy for quantitative chemical imaging in human adipocytes," *Biomed. Opt. Express* **5**, 1378-1390 (2014).
- [28] X. Chen, C. Zhang, P. Lin, K.-C. Huang, J. Liang, J. Tian, and J.-X. Cheng, "Volumetric chemical imaging by stimulated Raman projection microscopy and tomography," *Nat. Commun.* **8**, 15117 (2017).

- [29] J. Lin, W. Zheng, and Z. Huang, “High-resolution stimulated Raman scattering microscopy by focal-field modulation,” *Proc. SPIE* **9712**, 971220 (2016).
- [30] L. Wei, F. Hu, Y. Shen, Z. Chen, Y. Yu, C.-C. Lin, M. C Wang, and W. Min, “Live-cell imaging of alkynetagged small biomolecules by stimulated Raman scattering,” *Nat. Methods* **11**, 410 (2014).
- [31] L. Wei, Z. Chen, L. Shi, R. Long, AV. Anzalone, L. Zhang, F. Hu, R. Yuste, VW. Cornish, and W. Min, “Super-multiplex vibrational imaging,” *Nature* **544**, 465 (2017).
- [32] F. Hu, C. Zeng, R. Long, Y. Miao, L. Wei, Q. Xu, and W. Min, “Supermultiplexed optical imaging and barcoding engineered polyynes” *Nat. Methods* **15**, 194 (2018).
- [33] D. Naidoo, I. A. Litvin, and A. Forbes, “Brightness enhancement in a solid-state laser by mode transformation,” *Optica* **5**, 836 (2018).
- [34] Thorlabs, Inc., “Axicons, UV Fused Silica,”
https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=4277.
- [35] J. W. Goodman, ‘Introduction to Fourier Optics,’ 3rd ed. (Roberts, 2016).
- [36] Thorlabs, Inc., “High-Power MicroSpot® Focusing Objectives for VIS and NIR Lasers,”
https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=4243.
- [37] M. Born, and E. Wolf, ‘Principle of Optics,’ 5th ed. (Pergamon Press, 1975).

成果リスト

学術論文誌

- [1] N. Ochiai, J. Shou, and Y. Ozeki, “Axicon-based beam shaping for low-loss nonlinear microscopic optics,” *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, 1342 (2019).
- [2] N. Ochiai, Y. Ozeki, “Low-loss microscope optics with an axicon-based beam shaper,” *Appl. Opt.* (In revision).

国際学会

- [1] Natsuha Ochiai, Jingwen Shou, and Yasuyuki Ozeki, “Beam shaping with axicons for low loss microscopic optics,” CLEO2019, San Jose, 2019 May.
- [2] Natsuha Ochiai, and Yasuyuki Ozeki, “Realization of ultra-low-loss microscopic optics for quantum-enhanced imaging,” CLEO2020, Online, 2020 May.

国内学会

- [1] 落合夏葉、寿景文、小関泰之「低損失顕微光学系のためのアキシコンを用いたビーム整形法」第 66 回応用物理学会春期学術講演会、東京工業大学大岡山キャンパス、2019 年 3 月。
- [2] 「1 の透過率評価」第 80 回応用物理学会秋期学術講演会、北海道大学札幌キャンパス、2019 年 9 月。
- [3] 落合夏葉、小関泰之「量子増強イメージングのための低損失顕微光学系の実証」第 67 回応用物理学会春期学術講演会、上智大学四ツ谷キャンパス、2020 年 3 月。
- [4] 落合夏葉、小関泰之「アキシコンを用いた低損失顕微光学系におけるミスアライメントや波面歪みの影響」第 81 回応用物理学会秋期学術講演会、オンライン開催、2020 年 9 月。

付録 A 対物レンズの軸上色収差

A.1 色収差測定

今回の実験で使用した対物レンズは高透過率という性能に特化しているため、軸上色収差の補正がなされていない。軸上色収差とは、波長によって焦点の位置が光軸に沿ってずれる現象のことであり、レンズの材質の屈折率が波長によってわずかに異なることが原因で発生する。SRS は 2 色のレーザーが同時に照射された位置でのみ発生し、SRS の信号強度はレーザー照射位置でのレーザー光強度に依存する。よって、SRS 顕微鏡において 2 色のレーザーの焦点の位置を合わせることで重要であり、軸上色収差をできるだけ小さくする必要がある。そこで、軸上色収差の測定を行った。軸上色収差の測定系を Fig. A1 に示す。実験で用いる波長に合わせた TiS レーザと Yb 添加ファイバレーザを合波し、まず CCD の位置が Yb の焦点になるようにレンズとミラーの位置を合わせ、ミラーの位置を記録する。次に、CCD の位置に TiS の焦点が合うようにミラーの位置を調整し、記録する。この時、ミラーがずれた分だけ TiS と Yb で焦点距離が異なることになるので、このずれ量が軸上色収差に値する。この実験で、Yb の方が TiS と比べミラーの位置が $30\ \mu\text{m}$ 遠くなったため、この対物レンズにおいて TiS と Yb の軸上色収差は $30\ \mu\text{m}$ と分かった。

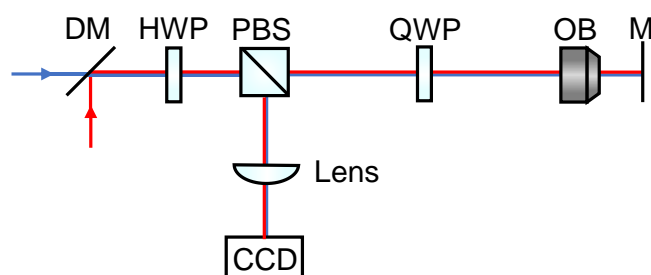


Fig. A1. Schematic of axial chromatic aberration measurement system. DM: dichroic mirror; HWP: half wave plate; PBS: polarization beam spot; QWP: quarter wave plate; OB: objective lens; M: mirror; CCD: charge coupled device image sensor.

A.2 色収差補正光学系の設計

前節で測定した軸上色収差を考慮した、SRS 顕微鏡における TiS と Yb の合波系を設計する。対物レンズの焦点距離の設計値 f は TiS に対して $4\ \text{mm}$ であるので、前節の軸上色収差計測結果から、Yb に対しての焦点距離 f' は $4.03\ \text{mm}$ であると分かる。Fig. A2(a) に Yb の対物レンズによる集光の様子を示す。平面波を対物レンズに入射すると、 $4.03\ \text{mm}$ 先で集光されることになる。集光位置を TiS と合わせるためには Fig. A2(b) のように収束したビームを対物レンズに入射し、対物レンズの $4\ \text{mm}$ 先で集光されるようにすればよい。この時の入射ビームの波面曲率を r とすると、(2.1) より、

$$-\frac{1}{r} + \frac{1}{f} = \frac{1}{f'} \quad (\text{A.1})$$

となればよい。顕微光学系では、ビームを Fig. A2(c)のように拡大してから対物レンズに入射する必要がある。L1 の焦点位置から L2 までの距離を a とすると、L2 におけるビーム径 d_2 は、入射ビーム径 d_1 と L1 の焦点距離 f_1 を用いて、

$$d_2 = \frac{a}{f_1} d_1 \quad (\text{A.2})$$

と表される。OB 直前の波面曲率は(A.2)で求まる r にする必要があるので、L2 から OB までの距離を b とすると、L2 直後の波面曲率は $r + b$ となる。L2 直前において波面曲率は a であるので、L2 の焦点距離を f_2 とすると、

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{r + b} = \frac{1}{f_2} \quad (\text{A.3})$$

が成り立つ。さらに、このとき対物レンズ直前におけるビーム径 d_3 は、

$$\begin{aligned} d_3 &= \frac{r}{r + b} d_2 \\ &= \frac{rad_1}{(r + b)f_1} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

となる。

ここで、(A.1)に、 $f = 4.0 \text{ mm}$, $f' = 4.03 \text{ mm}$ を代入すると、 $r = 537.3 \dots \text{ mm}$ となる。また、 $d \approx d_1 \times f_2/f_1$ となると考えられ、計測した入射ビーム径 d_1 が $1/e^2$ の全幅で 0.8 mm であったことを考慮し、ビーム径が対物レンズの瞳径 5.2 mm と同程度になるように、 $f_1 = 25 \text{ mm}$ 、 $f_2 = 200 \text{ mm}$ とした。さらに、 $b = 200 \text{ mm}$ とすると、(A.3)より、 $a = 274.4 \dots \text{ mm}$ となる。このとき、(A.4)より、 $d = 6.4 \text{ mm}$ となり、実効 NA は十分高いと考えられる。

さらに、前節での収差測定において、 $\pm 5 \mu\text{m}$ の誤差があった場合の対処方法を考える。 $4.025 \text{ mm} \leq f' \leq 4.035 \text{ mm}$ のとき、(A.1)より、 $461.1 \text{ mm} \leq r \leq 644 \text{ mm}$ となる。L1 の位置を調整し誤差に対応するとすると、 $b = 200 \text{ mm}$ で、 a の値が変わることになる。これらを(A.3)に代入すると、 $262 \text{ mm} \leq a \leq 286.8 \text{ mm}$ となり、L1 の位置を $\pm 12 \text{ mm}$ の範囲内で調整可能だと分かる。

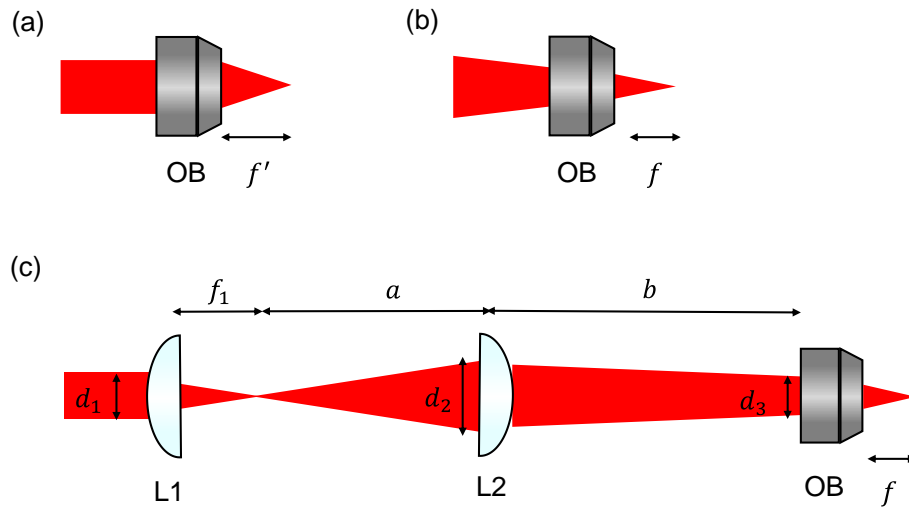


Fig. A2 (a) Schematic of focusing. OB: objective lens. (b) Schematic of focusing considering the axial chromatic aberration. (c) Schematic of expander. L1 and L2: lenses; f_1 : focal length of L1; d_1 : beam diameter of the input beam; d_2 : beam diameter immediately before L2; d_3 : beam diameter immediately before OB.

付録 B 波面収差

B.1 ゼルニケ多項式

第 6 章 5 節において、波面歪みがアキシコン系に与える影響を数値計算で求めた。この時入射ビームに与えた 5 つの波面収差についてゼルニケ多項式[B1]で示す。

ゼルニケ多項式 $V_n^l(X, Y)$ は極座標 $X = \rho \sin \theta$, $Y = \rho \cos \theta$ を用いて以下のように表される。

$$V_n^l(X, Y) = V_n^l(\rho \sin \theta, \rho \cos \theta) = R_n^l(\rho) e^{il\theta} \quad (\text{B.1})$$

$$R_n^{\pm m}(\rho) = \sum_{s=0}^{\frac{n-m}{2}} (-1)^s \frac{(n-s)!}{s! \left(\frac{n+m}{2} - s\right)! \left(\frac{n-m}{2} - s\right)!} \rho^{n-2s} \quad (\text{B.2})$$

ただし、 l は整数、 n は非負の整数、 $m \equiv |l|$ であり、 $n - m$ は偶数かつ正である。(B.2)をもとに計算した R_n^m を Table B1 に示す。

Table B1. $R_n^{\pm m}$ for $m \leq 4$, $m \leq 4$.

$m \setminus n$	0	1	2	3	4
0	1		$2\rho^2 - 1$		$6\rho^4 - 6\rho^2 + 1$
1		ρ		$3\rho^3 - 2\rho$	
2			ρ^2		$4\rho^4 - 3\rho^2$
3				ρ^3	
4					ρ^4

ここで、数値計算に用いた 5 つの収差、ビームの傾き、非点収差、フォーカスシフト、コマ、球面収差について考える。ビームの傾きは $n = m = 1$ のときに対応し、この時、ゼルニケ多項式は $\rho \cos \theta$ (x 方向)、 $\rho \sin \theta$ (y 方向)となる。非点収差は $n = m = 2$ のときに対応し、この時、ゼルニケ多項式は縦横非点収差が $\rho^2 \cos 2\theta$ 、斜め非点収差が $\rho^2 \sin 2\theta$ となる。フォーカスシフトは $n = 2, m = 0$ のときに対応し、この時、ゼルニケ多項式は $2\rho^2 - 1$ となる。コマは $n = 3, m = 1$ のときに対応し、この時、ゼルニケ多項式は $(3\rho^3 - 2\rho) \cos \theta$ (x 方向)、 $(3\rho^3 - 2\rho) \sin \theta$ (y 方向)となる。球面収差は $n = 4, m = 0$ のときに対応し、 $6\rho^4 - 6\rho^2 + 1$ となる。

B.2 波面収差計測とアキシコン系における影響の評価

ビームの波面歪みが光学系にどの程度影響しているのか定量的に明らかにするために、波面センサ (Thorlabs, WFS30-5C)を用いて収差を計測した。ビームが波面センサのセンササイズより大きいと正確に計測が行えないため、実際にアキシコンに入射するビームは FWHM で 3.4 mm であるが、それを 1/2 倍に縮小したビームで波面計測を行った。実験系は Fig. 27(a)においてアキシコンペアを取り除き、L2 後に波面センサを置いたものになる。計測結果を Table B2 に示す。縦横非点収差は 0.12λ と比較的大きいが、その他の収差は最大で

0.01 λ であり、ほとんどが0.001 λ のオーダーである。Fig. 25(c)を参照し、収差量がこの範囲内にあるとき、最大で1.4%しかスポット強度への影響がないため、ほとんど無視できると分かった。

Table B2. Amount of aberration of the wavefront.

Aberration	Coefficient [λ]
Vertical astigmatism	-0.12
Focus shift	-0.001
Oblique astigmatism	-0.01
Vertical coma	-0.002
Horizontal coma	0.008
Spherical aberration	0.002

参考文献

[B1] M. Born, and E. Wolf, 'Principle of Optics,' 5th ed. (Pergamon Press, 1975).

付録 C ミスアライメントや波面歪み、アキシコンの先端部分による透過率や空間分解能への影響

第6章5節、6節ではアキシコンのミスアライメントやビームの波面歪み、アキシコンの先端部分がビームパターンや信号強度に与える影響を明かにした。ここでは、それらが透過率や空間分解能に与える影響を数値計算で求める。透過率や空間分解能は第6章4節と同様の方法で求めた。ただし、簡単のため、対物レンズの透過率は瞳全体で1とし、PSFの幅を求める際には、PSFの強度が最も強い点をPSFの中心とした。数値計算結果をFig. C1にまとめる。Fig. C1(a),(b)に、それぞれ透過率、信号強度に対するアキシコンの軸ずれの依存性を示す。横軸はビーム径(強度が $1/e^2$ になる全幅)で規格化された軸ずれ量を示す。第6章5節で述べたように、0.05 mm程度(ビーム径で規格化すると ~ 0.017)のアライメントは容易に行うことができ、この範囲であれば透過率の低下度は0.08%以内であり、さらに、空間分解能は悪化しないことが分かる。Fig. C1(c),(d)は、アキシコンの角度ずれの透過率、空間分解能に対する依存性の計算結果である。横軸はアキシコン角度の設計値で規格化した角度ずれ量である。アキシコン角度の製造誤差は $\pm 0.01^\circ$ (アキシコン角度で規格化すると ± 0.02)であるので、この範囲において透過率は最大で0.08%減少し、PSFの幅は3%しか増加しない。また、Fig. C1(e),(f)にビームの波面歪みの依存性を示す。横軸は波面収差量を波長で規格化した値である。ビームの傾きについてはアライメントで修正可能であり、その他の波面歪みについても付録Bで計測した収差量であれば、透過率は最大で0.06%の減少にとどまり、空間分解能については低下しない。Fig. C1(e),(f)は透過率と空間分解能に対するアキシコンの先端部分の大きさの依存性である。横軸は先端部分の半径を瞳半径で規格化した値である。先端部分が大きくなるにつれ透過率、空間分解能ともに低下していくことが分かる。しかし、第6章6節で述べたように、アキシコンに入射するビームを拡大することで、先端の影響を小さくすることができる。実際に、第7章4節で示したように、アキシコンによる光損失は4%以下であったので、先端部分による影響は十分抑えられており、実験で用いたアキシコンの先端部分の大きさは1.5 mmより小さいと考えられる。以上の数値計算より、ミスアライメントやビームの波面歪み、アキシコンの欠陥が顕微鏡の性能に与える影響を明らかにし、その影響はほとんど無視できる範囲であることが分かった。

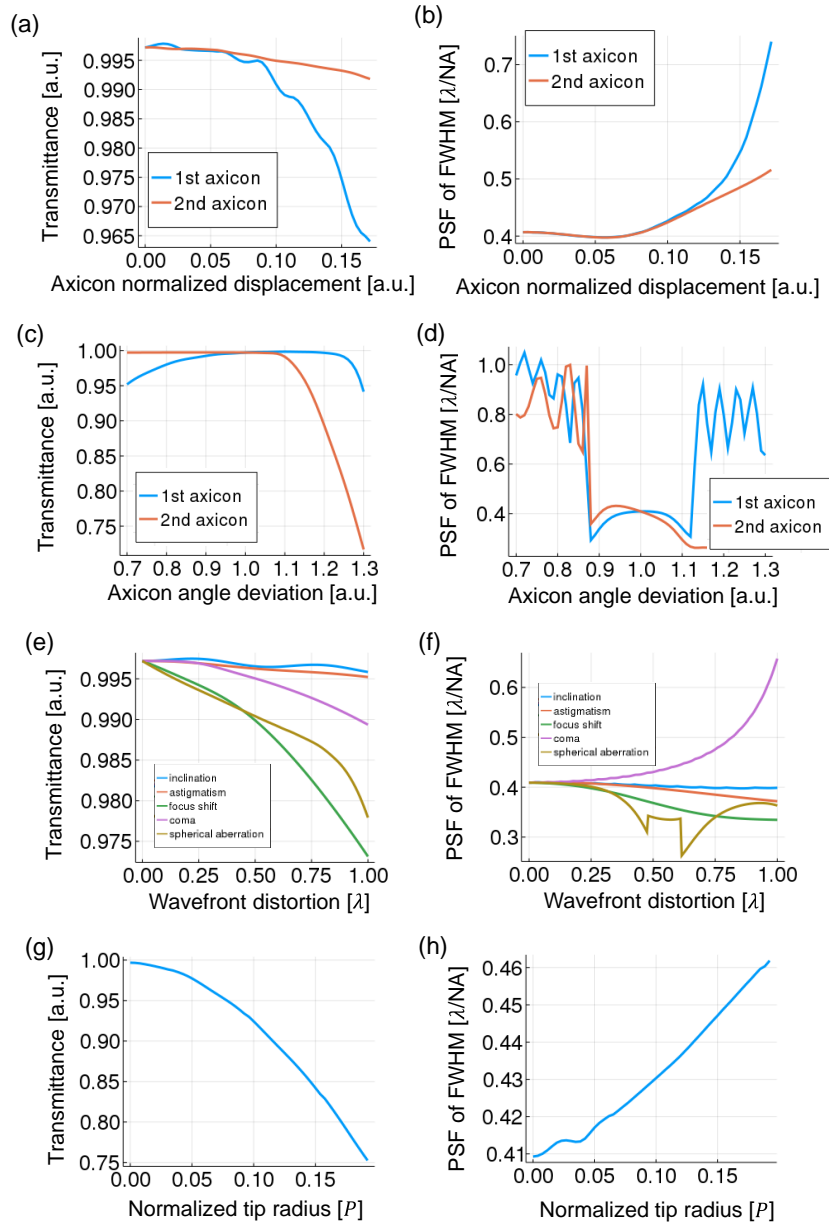


Fig. C1 (a), (b) Dependence on the axicon displacement of the transmittance and the spatial resolution. Blue curve: displacement of the first axicon; Orange curve: displacement of the second axicon. (c), (d) Dependence on the axicon angle deviation of the transmittance and the spatial resolution. Blue curve: angle deviation of the first axicon; Orange curve: angle deviation of the second axicon. (e), (f) Wavefront distortion dependence of the transmittance and the spatial resolution. Blue curve: beam inclination; Orange curve: astigmatism; Green curve: focus shift; Violet curve: coma; Brown curve: spherical aberration. (g), (h) Axicon tip size dependence of the transmittance and the spatial resolution.

付録 D アキシコンのアライメント手順

第 6 章の数値計算から明らかになったように、アキシコンを用いた光学系において、高いアライメント精度が必要である。本項では実験を重ねる上で体得した、精度の高いアキシコンのアライメント手順を記す。

Fig. D1 にアキシコンを用いた顕微光学系のアライメント系を示す。

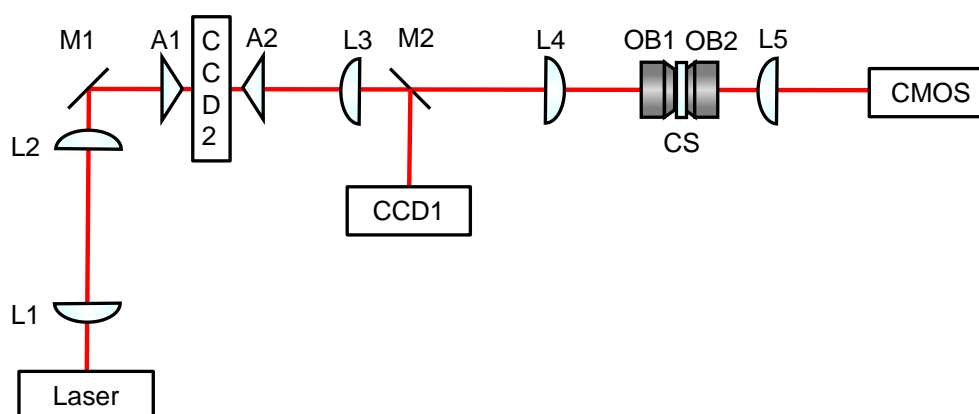


Fig. D1 Schematic of axicon system. L1: lens, $f = 100$ mm; L2: lens, $f = 200$ mm; L3: lens, $f = 250$ mm; M1 and M2: mirrors; A1 and A2: axicons; OB1 and OB2: objective lenses; CS: cover slips pasted with water; CCD1 and CCD2: charged coupled device image sensors; CMOS: complementary metal oxide semiconductor camera.

アライメント手順は以下の通りである。

1. M1→CMOS までターゲットでアライメント、CMOS でビーム位置記録(①)
2. M1→M2→CCD1 までターゲットでアライメント、CCD1 でビーム位置記録(②)
3. M1 を動かしながら L5 と CMOS2 の距離調整、①とスポット位置が合うように L5 の位置調整
4. L3 を入れて、M2 を動かしながら距離調整した後スポット位置が②と変わらないように位置調整
5. L1 を入れて、スポット位置が②と変わらないように位置調整
6. L2 を入れて、スポットが一番小さくなるように距離調整し、スポット位置が②と変わらないように位置調整
7. L4 を入れて、スポットが一番小さくなるように距離調整し、スポット位置が①と変わらないように位置調整、
8. L1~L3 を外す
9. CCD2 でビーム位置記録(③)

10. A1 を入れてビームの中心が③とずれないように位置調整、強度ムラがなくなるよう
にあおり調整
11. A2 を入れてスポットがきれいになるように位置調整、あおり調整。このときの中心
を CCD1 で記録 (④) (②と位置が若干ずれる)
12. L1 を入れる、ビームの中心が④とずれないように位置調整 (調整前から④とあまり
ずれないはず)
13. L2 を入れてビームの中心が④とずれないように位置調整
14. L3 と OB1 を入れてビームの中心がずれずに広がるようにカードで見ながら OB1 の
位置調整
15. OB2、L5 を入れて CMOS 上でスポットが小さくなるように OB1 と OB2 の距離調整
(OB2 を動かす)
16. OB2 後ビームがまっすぐ進むようにターゲットで見ながら OB1、OB2 の位置調整
17. CMOS を見ながらビームスポットがきれいになるように A1A2 の位置、あおり微調
整

付録 E カバーガラスの球面収差によるビームスポットへの影響

第7章4節で述べたように、実験で得られたビームスポットは理論値より1.3倍大きくなっていたが、これは対物レンズがカバーガラスに対して補正されておらず、カバーガラスの球面収差により像がぼやけているためだと考えられる。ここで、カバーガラスの球面収差による影響を数値計算で求める。

第6章で行った数値計算では、(6.2)のように、光の伝搬方向がほとんどz方向であるという近軸近似を用い、伝搬による効果を(6.8)のように表した。しかし、球面収差を考える時は、対物レンズのNAが大きいと、近軸近似を用いずに伝搬を考える必要がある。さらにカバーガラスなどの媒質中では、波数が伝搬する媒質の屈折率倍になる。よって、媒質の屈折率を n とすると、z方向の波数成分 f'_z は、

$$f'_z = \sqrt{(nf_0)^2 - (f_x^2 + f_y^2)} \quad (\text{E.1})$$

となる。よって、近軸近似を用いない媒質中の伝搬の効果は以下のように表される。

$$\begin{aligned} P_s(f_x, f_y, n, z) &= \exp(-2\pi i f'_z z) \\ &= \exp\left(-2\pi i \sqrt{(nf_0)^2 - (f_x^2 + f_y^2)} z\right) \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

カバーガラス中の伝搬の効果を入れたビームスポットを計算するには、(6.12)のように、空气中を光が伝搬した場合の対物レンズの焦点面におけるビームパターン E_3 を求めた後、カバーガラスの厚みを d 、カバーガラスの屈折率を n_g としたとき、まず、距離 d/n_g だけ空气中を逆伝搬させ、カバーガラス中を距離 d 伝搬させればよい。よって、カバーガラスの効果を入れた時の対物レンズの焦点面におけるビームパターン E'_3 は、

$$E'_3(X, Y) = \mathcal{F}^{-1} \left[P_s(f_x, f_y, n_g, d) P_s(f_x, f_y, 1, -d/n_g) \mathcal{F}[E_3(X, Y)] \right] \quad (\text{E.3})$$

と表せる。また、計算においては、周波数成分 f_x 、 f_y が $0.65f_0$ より小さくなるように制限した。これは、対物レンズのNAが0.65であることと対応しており、実験で用いた対物レンズのNAの値に揃えている。Fig. E1にカバーガラスの収差を与えた時のビームスポットの計算結果を示す。ビームパターンは球面収差によって大きく影響を受けていないように見えるが、スポットサイズを調べると $1.72 \lambda/\text{NA}$ となり、カバーガラスの影響を考慮しないときの1.3倍となり、実験値と一致した。以上より、第7章4節で述べた、スポットサイズの理論値と実験値の不一致はカバーガラスの球面収差で説明できる。

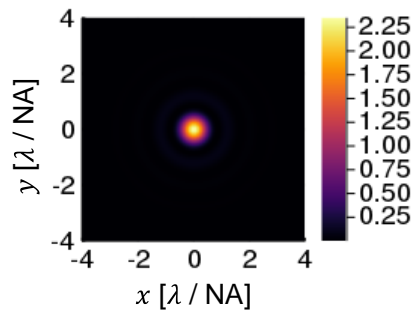


Fig. E1 Beam pattern at the focal plane with the effect of the cover slip.