

第6章 レーザー表面変調法を用いた光記録

6.1 はじめに

これまで、レーザービーム、紫外線、電子ビームによる屈折率変調型及び表面レリーフ型の EOG の作製を行ってきたが、ここではパッシブな応用について考える。応用として、ホログラムなどの光記録応用又はカップラーなどのパッシブな回折光学素子への応用が考えられる。

ホログラム記録材料に必要な特性として、感度、解像度、最大回折効率、SN 比などが上げられる。これまで高感度、高解像度である銀塩が一般的に用いられてきた。また、高強度レーザーが簡単に利用できるようになったことにより、フォトリフラクティブ結晶[1]やフォトポリマー[2]などがホログラム材料として使われるようになった。これらの材料は銀塩に比べて高解像度、現像がわずか実時間再生が可能であるなどの優れた特徴を有している。さらに、フォトリフラクティブ結晶は記録・消去の繰り返し記録が可能であるという特徴を有している。これまでに開発された主なホログラム記録材料の種類と記録特性を表 6.1.1 に示す。

材料	感度域	感光量 (mJ/cm ²)	解像力 (本/mm)	ホログラム の種類	最大回折 効率 (%)	厚さ (μ m)	
銀塩乳剤	コダック	赤	3×10^{-4}	2000	振幅,位相	40	7,9
	ロシア	赤,緑,青	1	10000	振幅,位相	70	10
重クロム酸ゼラチン	赤,緑,青	10~250	>6000	位相	>80	20	
フォトポリマー	赤,緑,青	5~30	>6000	位相	>80	7	
フォトレジスト	<青	100~1000	<2000	位相(凹凸)	20(>80)	1	
サーモプラスチック	赤,緑,青	0.1	<1500	位相(凹凸)	30	1	
フォトリフラクティブ 結晶 (LiNbO ₃ :Fe)	青	1.5×10^4	>5000	位相	60	1×10^4	
磁性薄膜 (MnBi)	赤	10	2000	位相	0.01	0.5	

表 6.1.1 ホログラム記録材料の種類と特性[3]

電場配向ポリマーの基となるアゾベンゼン高分子薄膜も、記録材料として広く応用されている。通常、アゾポリマーは光異方性材料として偏光ホログラフィックグレーティングの作製に使われる[4]。この光異方性効果は、トランス-シス-トランスの光異性化及びレーザーの偏光によるアゾ色素分子の配向効果による。偏光ホログラフィックグレーティングの記録には、相互に直行した線形偏光のレーザービームの干渉が用いられる。この場合強度は変調されず、偏光のみが空間的に変調される。また、記録には屈折率変化を利用しているため、高い回折効率を得るのに 10 μ m 以上の膜厚が必要である。これに対し、SRG は空間的な強度及び偏光分布を作ることによって記録される[5-8]。この SRG を利用することでフォトポリマーのようなレリーフ型のホログラムの作製が可能であり、わずか 1 μ m 程度の膜厚でも高い回折効率を得ることができる。フォトポリマーと SRG の最大の違いは作製メカニズムであり、フォトポリマーがモノマーの光重合を利用しているのに対し[9]、SRG は光照射によるポリマーの移動によっておきている[10,11]。フォトポリマーと比べた利点として、記録-消去-記録の繰り返し記録が可能であること、作製後回折効率を改良できるとともに、非線形性を持たせることができることにある。そこで、側鎖型のアゾベンゼン高分子薄膜である Poly-Orange Tom を使い、レーザー表面変調法による画像記録・ホログラム記録応用を試みる。ここでは、フレネル・フーリエ変換ホログラム記録を行う。さらに、ホログラフィックな回折光学素子の作製応用として光拡散体の作製を試みる。

6.2 カップリングを利用した2次元画像記録

記録したSRGは面で見れば、2次的な画像であると見なすことができる。ここで、サブミクロン周期のSRGを作製した場合を考える。このSRGに一樣な光を照射した場合、高次の回折光は生じずレーザー光は一樣に透過する。ここで、入射角をカップリング角に合わせることで、SRGの部分を通過する光が導波モードに変換されたため、出力が低下する。これにより、記録したSRGの形が暗く抜け落ち、画像として認識することができる。このように、カップリングを利用することで出力画像のスイッチングが可能である。さらに、第4章で述べた導波モード共振を利用することで、透過光を反射光に変換することができ、透過光ではネガ像を反射光ではポジ像を再生することができる。また、画像のコントラストは、反射光を利用することで大きくできる。そこで、サブミクロン周期のSRGを利用して画像を記録し、カップリング角での再生を試みた。

最初、SRGによる2次元画像のカップリングを調べた。SRGは次の条件で作製した。使用材料:Poly-Orange Tom、膜厚:約 $1\mu\text{m}$ 、使用レーザー:円偏光のAr⁺レーザー、書込み: $150\text{mW}/\text{cm}^2$ 、1時間、周期:約 $0.4\mu\text{m}$ である。直径1mmのHe-Neレーザーを照射した際のSRGの角度依存性を図6.2.1(a)に示す。この場合2つのカップリングが生じることが分かった。11度付近のTE、TMによるカップリングにおいて、約62%の透過率の減少と約20%の反射率の向上が観測された。また、半値全幅(FWTM)はTM偏光で約0.2度、TE偏光で約0.5度であった。コントラストは透過、反射において約3:1が実現可能である。ただし、サイドローブの反射率を押さえることができるならば、反射型で使用することで高いコントラストを得ることが可能である。次に、分光光度計を用いて測定したSRG波長依存性を図6.2.1(b)に示す。この場合も、カップリングは570nm、620nm付近の2波長で生じることが観測できた。570nmのカップリングの半値全幅は約8nmであった。しかしこの場合、吸収の影響により半値全幅は大きくなっていると考えられる。

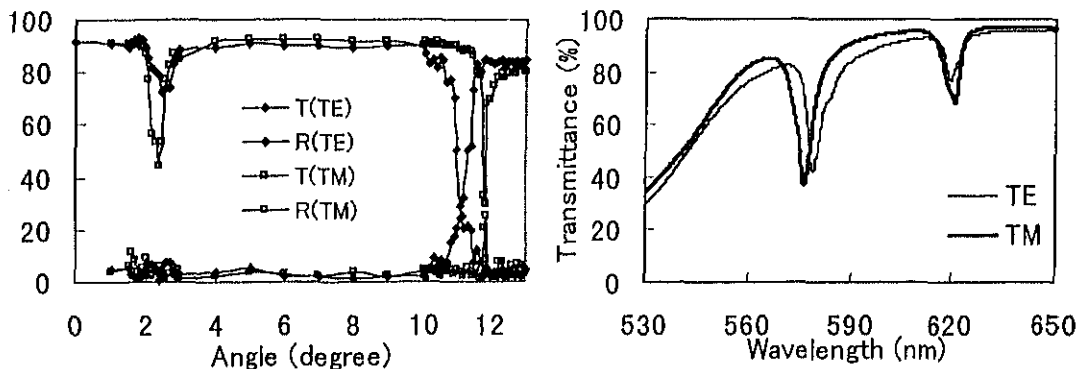


図 6.2.1 (a)SRG の角度依存性 (b)SRG の波長依存性

次に、記録したSRGに平面波を照射して2次元的に画像を観察した。その測定は透過光及び反射光の観察により行った。再生像はTE偏光レーザーを11.1度で入射して観察した。図6.2.2(a),(b)は透過像及び反射像であり、透過像では強度の減少により暗い半円(ネガ像)が、反射光では強度の増加により明るい半円(ポジ像)が表示される。このようにカップリングを利用することで、画像の表示を行うことができる。ここで、反射光における干涉縞は空気、ガラス基板、ポリマーの多重反射によって起こっていると考えられる。また、空間的な暗部の見え方のずれは、書込まれたSRGの空間的なばらつきによると考えられる。

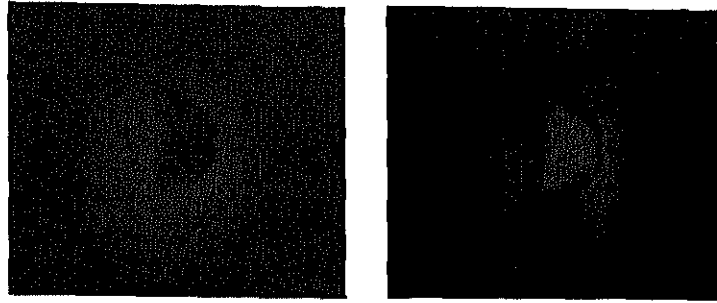


図 6.2.2 2次元画像の再生像 (a)透過像 (b)反射像

次に、図 6.2.3 に示す文字 E(4mm×3mm)をマスクとして、干渉縞を照射して SRG を作製した。作製条件は、上記とほぼ同じである。図 6.2.4(a),(b)はそれぞれ透過像及び反射像を示しており、文字のネガ・ポジ表示が可能であることがわかる。ここで、カップリング角は TE 偏光で 5.5 度、TM 偏光で 4.3 度である。ここで、画像のコントラストは良くない。これはカップリング条件のずれによりカップリング効率が低いためと考えられる。

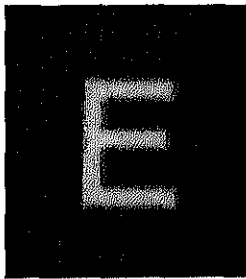


図 6.2.3 記録文字

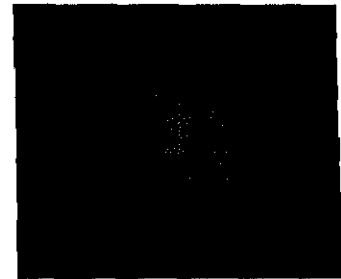


図 6.2.4 画像の再生像 (a)透過像 (b)反射像

6.3 フレネルホログラムの記録

レーザー表面変調法を利用した応用として最も一般的なものとして、フレネルホログラムがある。ここでは、アゾベンゼン高分子薄膜を用いたフレネルホログラム記録について述べる。2次元画像及び3次元物体の記録を行うとともに、ポーリングを利用したホログラムの回折効率の向上及びEO効果によるホログラムの変調を試みる。

6.3.1 フレネルホログラムの原理

ホログラムの最も簡単なものとして、フレネルホログラムがある。このホログラムの記録原理は次の通りである。図 6.3.1 のように、物体光の複素振幅分布を、

$$f(x, y) = A(x, y) \exp[i\phi(x, y)] \quad (6.3.1)$$

とする。ここで、 $A(x, y)$ は $f(x, y)$ の振幅分布、 $\phi(x, y)$ は位相分布を示す。参照波の複素振幅分布を、

$$r(x, y) = R \exp(ikx \sin \theta) \quad (6.3.2)$$

とする。物体光と参照光が干渉した時の強度分布は、

$$\begin{aligned} I(x, y) &= |f(x, y) + r(x, y)|^2 \\ &= |A(x, y) \exp[i\phi(x, y)] + R \exp(ikx \sin \theta)|^2 \\ &= |A(x, y)|^2 + |R|^2 + A(x, y) R \exp\{i[\phi(x, y) - kx \sin \theta]\} + A(x, y) R \exp\{-i[\phi(x, y) - kx \sin \theta]\} \\ &= |A(x, y)|^2 + |R|^2 + A(x, y) R \cos[\phi(x, y) - kx \sin \theta] \end{aligned} \quad (6.3.3)$$

となる。これにより、位相情報を記録できる。

この強度分布を適当な処理によって写真的に記録すると、その強度分布は、

$$I(x, y) = I_0 + \gamma I(x, y) \quad (6.3.4)$$

となる。記録時と同じ参照波でこのホログラムを照明すると、

$$I(x, y)r(x, y) = [I_0 + \gamma |A(x, y)|^2 + \gamma |R|^2] \text{Re xp}(ikx \sin \theta) \\ + \gamma A(x, y) R^2 \exp[i\phi(x, y)] + \gamma A(x, y) R^2 \exp[-i\phi(x, y) - 2kx \sin \theta] \quad (6.3.5)$$

となる。ここで、第1項は0次回折光、第2項が+1次回折光、第3項が-1次回折光を示す。

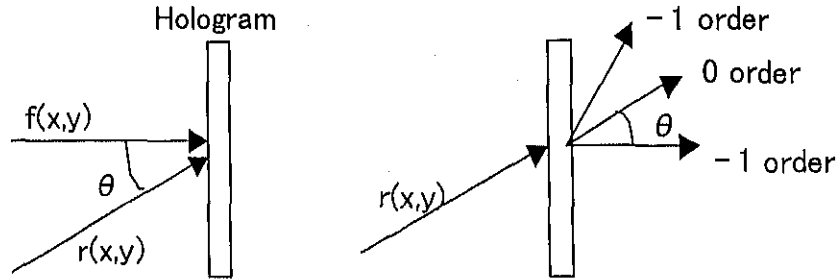


図 6.3.1 (a)ホログラムの書き込み (b)ホログラムの読み出し

6.3.2 フレネルホログラムの記録

最初、レーザー表面変調法を用いて2次元画像のホログラム記録を行った。図6.3.2(a)は記録光学系であり、フレネルホログラムの配置と同じである。光源として、CWのNd:YAGレーザー(532nm)を用いた。レーザーの偏光は円偏光であり、コリメーターにより直径6mmに広げられる。OHPシートに記録した画像を光路上において、膜厚1μmのPoly-Orange Tomに記録した。画像の再生は図6.3.2(b),(c)の2つの方法によって行った。記録画像には、縦4mm×横3mmの文字A、Eを用いた。まず、文字Aの記録を行った。記録強度は物体光 $I_1=261\text{mW/cm}^2$ 、参照光 $I_2=225\text{mW/cm}^2$ で10分間記録した。記録周期は約1.1μmである。図6.3.3(a),(b)は再生法1、2による再生像であり、文字Aが記録されていることが確認できる。この時、He-Neレーザーにより測定された1次回折強度は約8.6%であった。ここで、文字Aの再生像は汚いが、これは写真撮影の仕方に問題があるためである。次に、参照光の角度を変えることでホログラムの多重記録を行った。記録条件は次の通りである。書き込み強度及び時間は $I_1=261\text{mW/cm}^2$ 、 $I_2=225\text{mW/cm}^2$ 、10分間であり、記録した文字A、Eの周期はそれぞれ約1.1μm、0.86μmである。図6.3.4(a)は再生法1による再生像であり、He-Neレーザーにより測定された文字A及びEの1次回折効率はそれぞれ約4.7%、4.9%である。図6.3.4(b)は再生法2により文字Eを再生したものである。これに対し、図6.3.3(b)が再生法2により文字A(下段のA)を再生したものである。図のように文字AとEを別々に観測することができ、ホログラムの角度多重記録が行えることが確認できた。

さらに、記録した文字の回折効率を向上するために、ポーリングによる増強を行った。ここで、ポーリング条件は以下の通りである。ポーリング電圧、時間、温度、電流はそれぞれ3.2kV、20分、141°C、1-2μAである。ポーリング前後の文字Aの1次回折効率は、約8.6%から約38%まで増加した。このことから、ポーリングにより記録後のフレネルホログラムの回折効率向上が可能であることが確認できた。

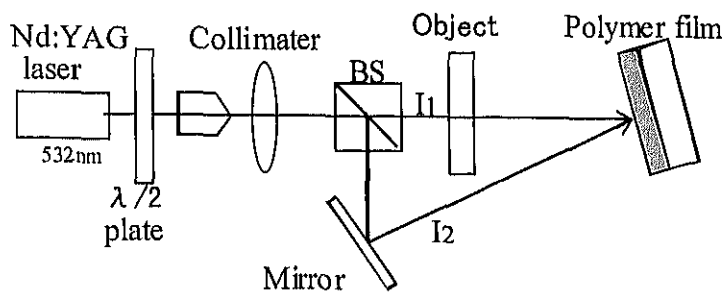
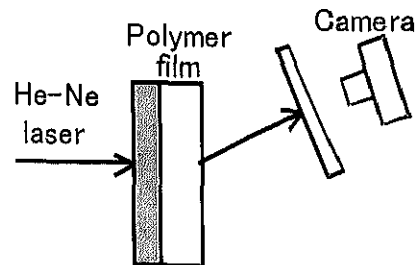


図 6.3.2(a) 記録光学系



(b)再生法 1

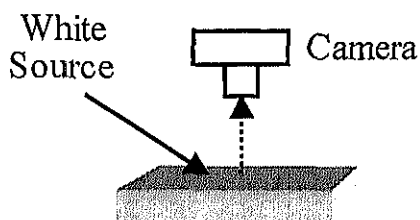


図 6.3.2(c) 再生法 2

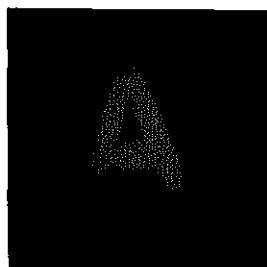
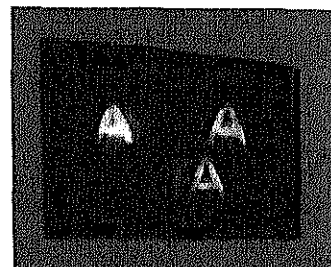


図 6.3.3 (a)再生法 1



(b)再生法 2

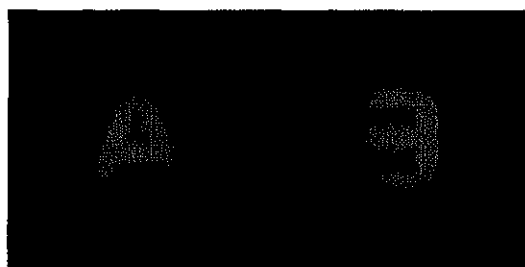
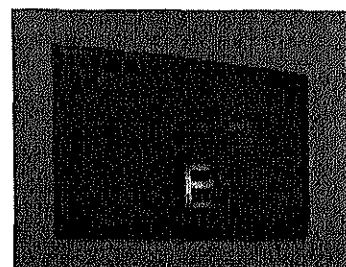


図 6.3.4 多重記録 (a)再生法 1



(b)再生法 2

次に、SRG を用いてホログラムの書き込みを行った。サンプルは膜厚約 $2\mu\text{m}$ のポリレンジトムを用いた。図 6.3.5(a)が書き込み光学系であり、書込まれるホログラムはフレネル型のホログラムである。書き込みには波長 532nm の Nd:YAG レーザーを用いた。また、物体光強度を大きくするために、偏光ビームスプリッターを用いて参照光強度及び物体光強度の調整を行った。また、読み出しは図 6.3.5(b)に示す光学系により行い、写真撮影を行った。読み出し光の強度は約 $1\text{mW}/\text{cm}^2$ であり、ホログラムが消去されないように短時間照射した。今回、物体として図 6.3.6 に示す縦 2.3mm × 横 1.6mm のキャラクターを、SRG が書き込み可能な p 偏光を用いてホログラムの書き込みを行った。図 6.3.7(a),(b)はそれぞれ $9.5\text{mW}/\text{cm}^2$ ($I_1=4.1\text{mW}/\text{cm}^2$, $I_2=5.4\text{mW}/\text{cm}^2$) で 15 分、 $7.9\text{mW}/\text{cm}^2$ ($I_1=3.7\text{mW}/\text{cm}^2$, $I_2=4.2\text{mW}/\text{cm}^2$) で 5 時間書込んだものである。図のように 15 分程度の書き込みでも十分物体が認識できることがわかった。さらに、長時間書込むことでより鮮明な画像が得られることがわかる。これは、長時間のレーザー照射により SRG が形成されていくためである。p 偏光により書込まれた物体が SRG によるものであることが確認するために、s 偏光によりホログラムの書き込みを行った。図 6.3.7(c)は $7\text{mW}/\text{cm}^2$ ($I_1=3\text{mW}/\text{cm}^2$, $I_2=4\text{mW}/\text{cm}^2$) で 1 時間書込んだものであり、s 偏光でほとんど記録されておらず、物体は認識不可能である。よって、p 偏光での変化は SRG のレリーフ深さの増加によるものであることが確認できた。図 6.3.8(a),(b)は $7.9\text{mW}/\text{cm}^2$ で 5 時間書込んだものを微分干渉顕微鏡により観測したものである。(a)が倍率 100 倍で、(b)が倍率 40 倍である。倍率 100 倍の場合を見ると、基本周期が存在するとともに任意のレリーフが記録

されていることがわかる。さらに 40 倍では、干渉縞というよりはスペックルのようなものが記録されていることがわかる。図 6.3.8(c)は記録を行っていないものの表面であるが、平らで何も記録されていないことがわかる。

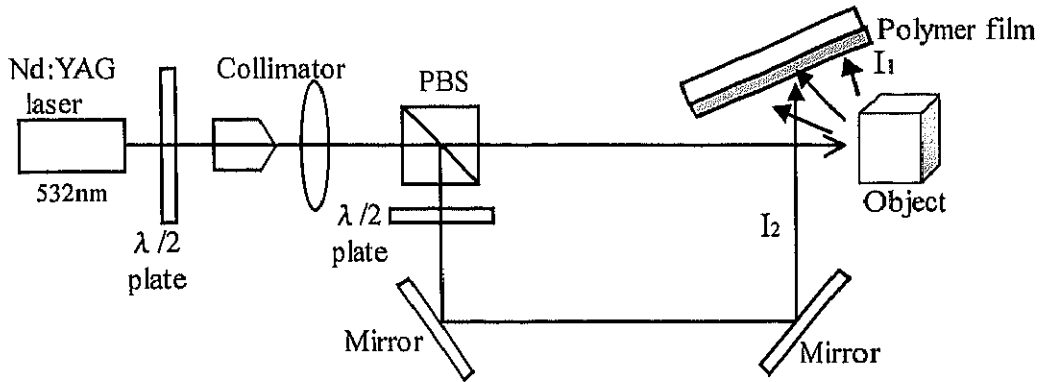


図 6.3.5(a) フレネルホログラム記録光学系

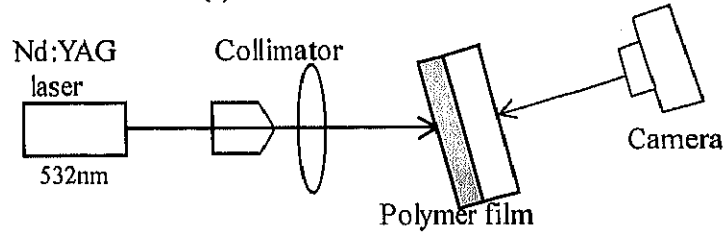


図 6.3.5(b) 読み出し用光学系

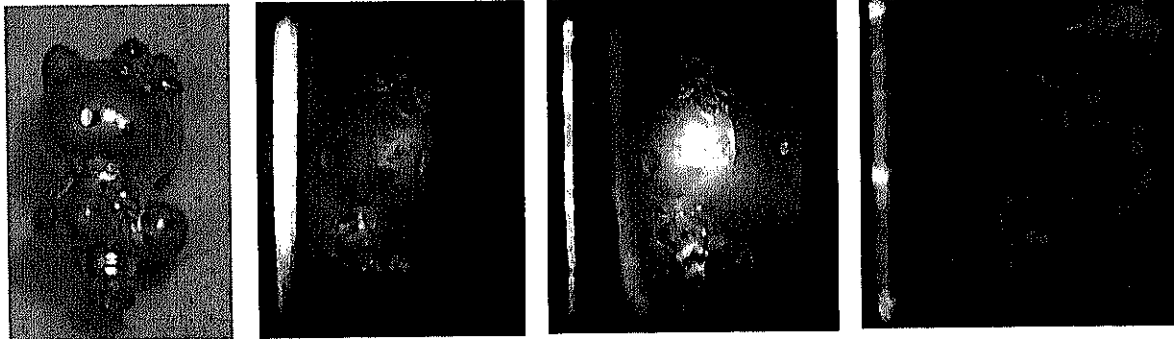


図 6.3.6 記録物体 図 6.3.7(a)p 偏光,9.5mW/cm²,15 分 (b) p 偏光,7.9mW/cm²,5 時間 (c) s 偏光,7mW/cm²,1 時間

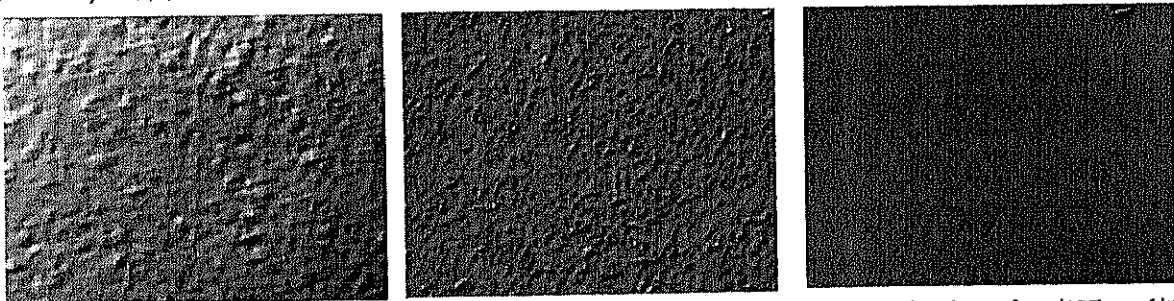


図 6.3.8 微分干渉顕微鏡像(a)100 倍 (b)40 倍 (c)未記録サンプル表面(40 倍)

実際の使用では、同一波長読み出しでは SRG が次第に消去されてしまうため、材料が吸収を持たない波長で使用する必要がある。そこで、Poly-Orange Tom が吸収をほとんど持たない He-Ne レーザーを用いてホログラムの観察を行った。図 6.3.9(a)は約 7mW/cm^2 ($I_1=3.7\text{mW/cm}^2$, $I_2=4.2\text{mW/cm}^2$) で 4 時間書込んだものを 532nm で撮影したものである。図 6.3.9(b),(c)は 633nm で撮影した透過像及び反射像である。このように他の波長でも綺麗に再生できることがわかる。この方法により記録したホログラムは長時間使用が可能になる。

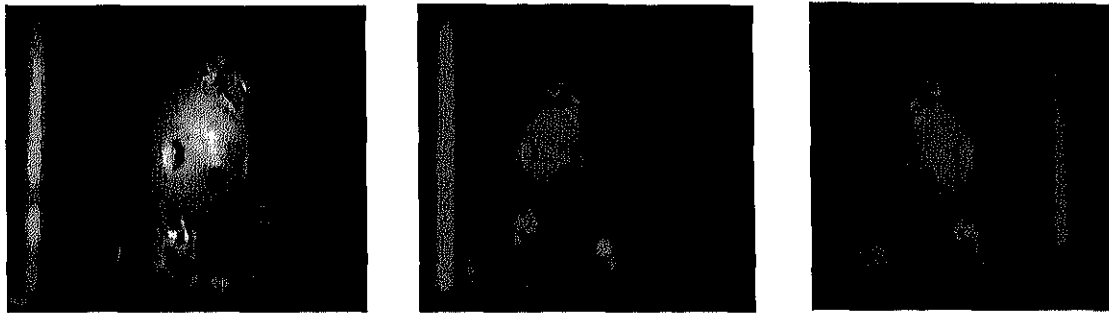


図 6.3.9(a) 532nm (p 偏光, 7mW/cm^2 ,4 時間) (b) 633nm (透過像) (c) 633nm (反射像)

SRG は T_g 以上に暖めるかレーザー光を照射することで消去することができ、かつ再書き込みが可能であるという特徴を有する。そこで、画像の書き込み—消去—再書き込みの実験を行った。図 6.3.10(a),(b),(c)はそれぞれ 10mW/cm^2 ($I_1=4.5\text{mW/cm}^2$, $I_2=5.5\text{mW/cm}^2$) で 3 時間書込んだ直後、 141 度で 20 分間熱を印加した直後、 5.4mW/cm^2 ($I_1=2.4\text{mW/cm}^2$, $I_2=3\text{mW/cm}^2$) で 1 時間再書き込み直後の写真である。撮影は 532nm の Nd:YAG レーザーを用いていった。このように、書き込み—消去—再書き込みの繰り返しが可能であることが確認できた。

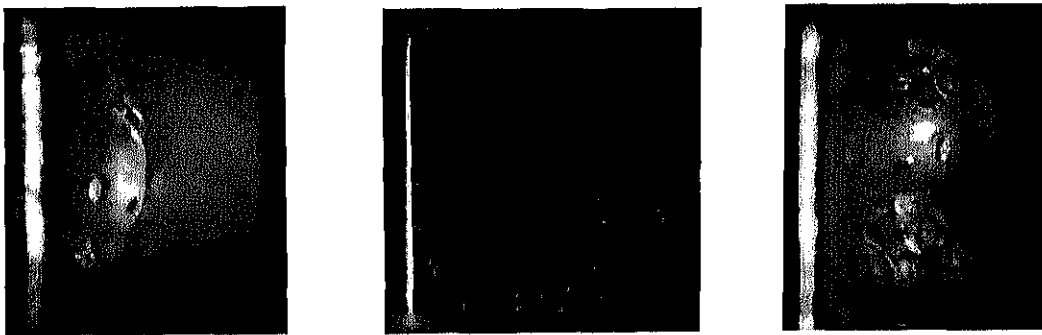


図 6.3.10 書込(p 偏光, 10mW/cm^2 ,3 時間)(b)熱消去(141°C ,20 分) (c)再書込(p 偏光, 5.4mW/cm^2 ,1 時間)

書き込み強度が数 mW/cm^2 ~数百 mW/cm^2 の時、SRG の回折効率は書き込み強度×時間に依存する。つまり、強い強度で書込めば短時間でかけるし、弱い強度なら長時間書込む必要がある。今回、回折効率を評価するために、2 光束干渉法による SRG の書き込みを実施した。書き込み条件は表 6.3.1 の通りである。書き込み偏光として p 偏光を用いているため、深い SRG を得るためにはかなり時間を要する。強度 135mW/cm^2 ($I_1=70\text{mW/cm}^2$, $I_2=65\text{mW/cm}^2$) で書込んだものを基にホログラムの回折効率を見積もると、 9.5mW/cm^2 で 15 分書込んだものでは約 0.1%、 7.9mW/cm^2 で 5 時間書込んだものでは約 1.8%と見積もることができる。この回折効率はかなり小さく、さらに書き込みに長時間を要している。より高い回折効率を得るための方法として次の方法が考えられる。

- (1)強いレーザー強度で書込む
- (2)吸収ピーク波長を持つレーザーを用いる
- (3)コロナ帯電による SRG の増強効果を用いる

(1)に関しては、135mW/cm²程度では90分書込んで約9%であるのに対し、約856mW/cm²程度では5分の書込みで約26%と高い回折効率が得られることから容易に見当がつく。(2)に関しては吸収が大きいため光異性化の割合が大きくなり、SRGの記録感度が大きくなると考えられる。(3)に関しては第4章で述べたように、数10nmのレリーフ深さが存在すればコロナ帯電により容易に増強が可能であり、たとえ書込み強度が弱い場合でも作製時間を短縮することができる。

偏光	p 偏光		
強度(mW/cm ²)	135	856	
時間(分)	90	1	5
1次回折効率(%)	9.1	8.9	26.3

表 6.3.1 SRG の回折効率

第4章で述べたように、SRGをポーリングすることで非線形性を持たせることができる。これは、干渉縞を記録するホログラムでも同様である。そこで、書込んだ文字AをポーリングしてEO効果を持たせ、画像の変調実験を行った。ポーリングは4kV、136度、20分で行った。光学系はTSREOGの変調実験と同じであり、面ではなく点でレーザー光を画像の一部分に入射し、変調を行った。電圧はITO電極を圧着することで、画像の上下に印加した。図6.3.11は1次回折効率の変調結果を示す。この時の回折効率は11.3%であり、1kHz、30Vp-pでの変調効率は約0.51%であった。このように、変調可能な画像を書込むことができることが確認できた。

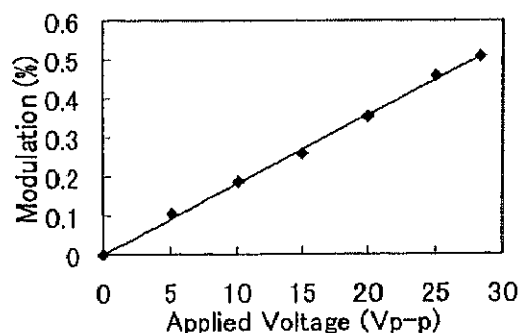


図 6.3.11 文字 A の EO 効果による変調

6.4 フーリエ変換ホログラムの記録

フレネルホログラムの記録では、高い回折効率を得るために長時間要する。これは散乱する物体光と参照光の干渉により SRG を書込むため、書込み強度が弱いためである。これに対し、フーリエ変換パターンを利用するフーリエ変換ホログラムでは、強度分布が中心付近に集中するため強い強度で SRG を記録することができる。このことはレリーフ深さが照射エネルギーに比例する SRG には好都合であり、記録時間の短縮が行うことができる。ここでは、アゾベンゼン高分子薄膜を用いたフーリエ変換ホログラム記録について報告する。さらに、最近我々が発見したホログラム作製後回折効率を増強できることを利用したホログラムの性能の向上についても述べる。

6.4.1 フーリエ変換ホログラムの原理

フーリエホログラムの記録原理は次のようになる。図 6.4.1 のように、物体光の複素振幅分布を

$$f(x,y) = A(x,y) \exp[i\phi(x,y)] \quad (6.4.1)$$

とする。ここで、 $A(x,y)$ は $f(x,y)$ の振幅分布、 $\phi(x,y)$ は位相分布を示す。フーリエ変換レンズにより $f(x,y)$ のフーリエ変換像 $F(\nu_x, \nu_y)$ を記録面に作る。参照波の複素振幅分布を

$$r(x,y) = \text{Re}xp(ikx \sin \theta) \quad (6.4.2)$$

とすると、干渉縞の強度分布は、

$$I(x,y) = |F(\nu_x, \nu_y)|^2 + |R|^2 + RF(\nu_x, \nu_y) \exp(-ik\nu_x \sin \theta) + RF^*(\nu_x, \nu_y) \exp(ik\nu_x \sin \theta) \quad (6.4.3)$$

となる。これに、同じ参照光を入力し再生像をレンズによりフーリエ変換することで元の画像が得られる。

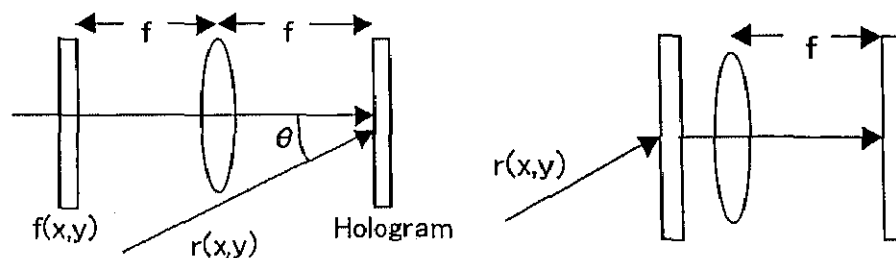


図 6.4.1 (a)ホログラムの書込み (b)ホログラムの読み出し

6.4.2 フーリエ変換ホログラムの記録

最初、SRGの回折効率の記録時間特性を測定した。アゾベンゼン高分子薄膜は Poly-Orange Tom をパイレックスガラス基板上にスピコートして作製した。アゾベンゼン高分子薄膜に干渉縞を照射することで作製される SRG に回折効率は、照射エネルギー及び書込み偏光に強く依存する。そこで干渉縞照射により作製される SRG の書込み時間依存性を測定した。図 6.4.2 が SRG の作製光学系である。光源は波長 488nm の Ar⁺レーザーを用い、λ/4 板により円偏光にする。レーザー光は直径 6mm にコリメートされ、ビームスプリッターにより 2 本に分けられた後サンプル上で干渉させる。今回、SRG の時間依存性を評価するために、波長 633nm の He-Ne レーザーを SRG に入射し、1 次回折光を測定した。図 6.4.3(a),(b) は 1 次回折効率の時間依存性及びエネルギー依存性を示したものである。SRG は Poly-Orange Tom を用い、次の 3 つの条件で記録した。記録強度(物体光=参照光)と膜厚は Sample.1 で 88mW/cm², 2μm、Sample.2 で 193mW/cm², 1μm、Sample.3 で 88mW/cm², 1μm である。SRG の周期が約 1μm になるように物体光と参照光間の角度を設定した。1 次回折効率の照射時間依存性から、同じ膜厚では強い強度で書込むことで短時間で高い回折効率を得ることができ、また同じ書込み強度の場合では膜厚が厚い方が高い回折効率を得ることが分かる。10 分間記録後の回折効率は Sample.1 で 9.9%、Sample.2 で 6.4%、Sample.3 で 2.6%であった。また、1 次回折効率の照射エネルギー依存性から、SRG の回折効率は照射エネルギーと膜厚に強く依存することが分かる。

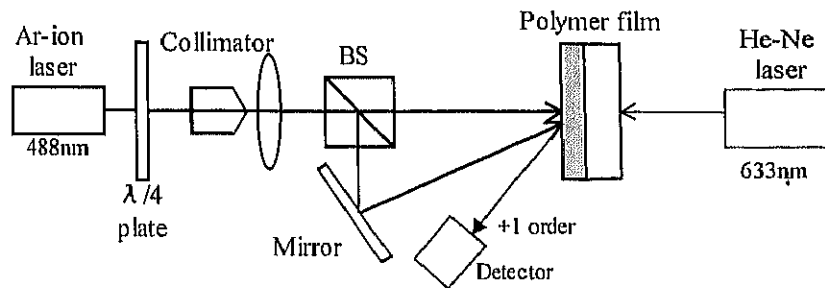


図 6.4.2 SRG 作製及び評価光学系

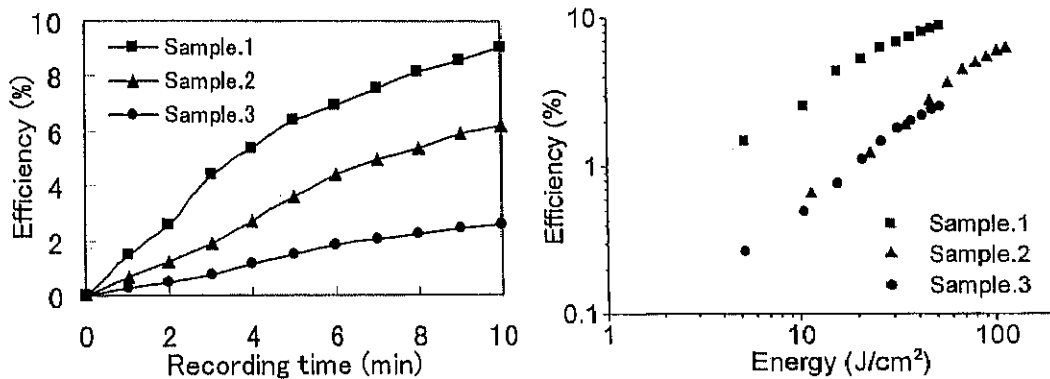


図 6.4.3 1 次回折効率の経時変化 (a)照射時間依存 (b)照射エネルギー依存

次に、図 6.4.4(a)に示す光学系によりフーリエ変換ホログラムの書き込みを行った。レーザー光はビームスプリッターによってほぼ同強度に分けられ、フーリエ変換された物体光と参照光の干渉による強度分布が SRG として記録される。記録物体として、縦 4mm×横 3mm の文字 A 及び E を用いた。記録材料は、膜厚が約 1 μ m 及び 2 μ m の Poly-Orange Tom を用いた。記録画像の読み出しは図 6.4.4(b)に示す光学系を用いていった。フーリエ変換ホログラムの 1 次回折効率の書き込み時間依存を図 6.4.5 に示す。書き込み強度は、物体光=参照光=118mW/cm² 又は 50mW/cm² である。ただし、物体光がレンズによりフーリエ変換されているため、サンプル上での正確なパワー密度はよくわからない。読み出し光のビーム径は約 1mm である。実験結果から書き込み時間は 1 分程度で十分であることがわかる。また、10 分程度の照射で回折効率は上昇しているが、実体顕微鏡による観察では中心に穴があいていた。これは、フーリエ変換の低周波成分、つまり 0 次項が強いため、ブリーチング又はアブレーションにより生じたと考えられる。図 6.4.6 の方法で撮影した Poly-Orange Tom 上のフーリエ変換パターンを図 6.4.7(a),(b)に示す。記録画像は膜厚約 2 μ m の Poly-Orange Tom に文字 A 及び E のフーリエ変換パターンを 1 分間記録したものである。図のように、文字 A、E のフーリエ変換に相当するパターンが書込まれていることがわかる。図 6.4.7(c),(d)は図 6-18(b)の方法により 1 次回折光を観察したものである。それぞれの 1 次回折効率は直径 1mm のレーザー光で約 1.2%及び約 1%であり、直径 6mm のレーザー光では約 0.1%及び 0.17%であった。2 つの文字の記録されたホログラムの回折効率はほぼ同じである。今回、記録された回折効率は小さいが、参照光及び物体光間の強度の最適化を行うことによりさらに高い回折効率を得られると考えられる。また、長時間書き込みにより中心付近がブリーチング又はアブレーションされた試料のフーリエ変換パターンと再生像を図 6.4.8(a),(b)に示す。図 6.4.8(a)のように、中心付近には干渉縞が存在しないため回折光が生じず、低周波成分が記録されていないことがわかる。また、その再生像はエッジが強調されており、ハイパスフィルターのような特性を示すことが確認できた。この現象は、参照光に何らかの細工を加えなくてもおこる自己フィルタリングといえると思うが、色素を破壊してしまうため繰り返し使

用はできず、応用としてはあまり好ましくない現象である。

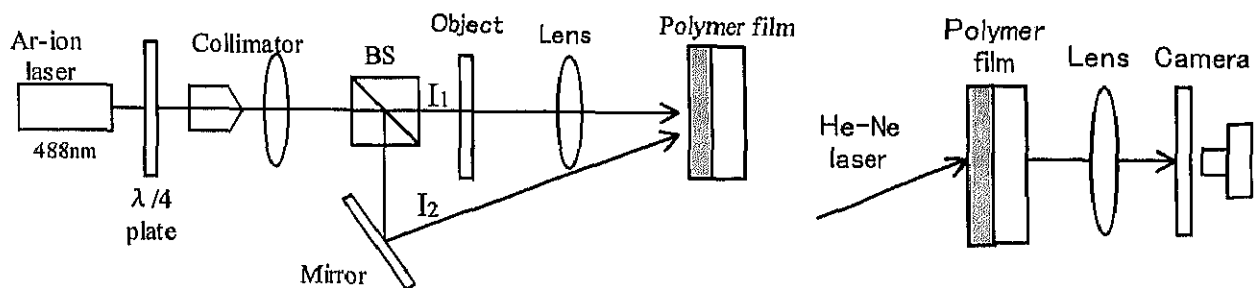


図 6.4.4(a) フーリエ変換ホログラムの記録光学系

(b)ホログラム再生法

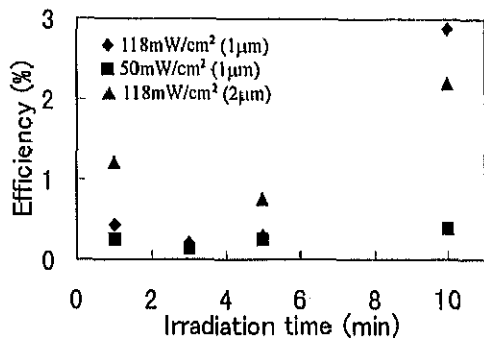


図 6.4.5 回折効率の書き込み時間依存性

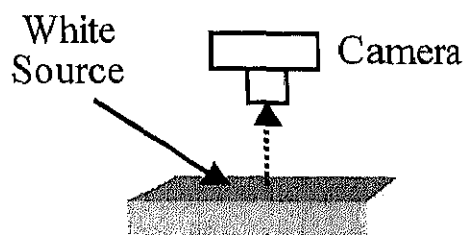


図 6.4.6 ホログラム撮影法



図 6.4.7 フーリエ変換パターン (a)文字 A (b)文字 E

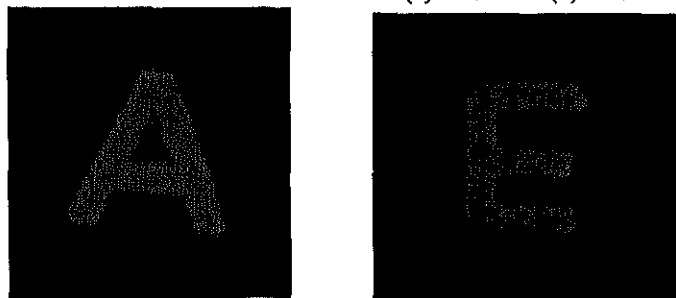


図 6.4.7 再生像 (c)文字 A (d)文字 E



図 6.4.8 文字 A (a)フーリエ変換パターン (b)再生像

材料の解像度を評価するために、解像度チャートの記録を行った。書込み強度は物体光=参照光=118mW/cm²であり、書込み時間は10分である。また、干渉縞の周期が1μmになるように参照光の角度を設定した。サンプル上のフーリエ変換パターン及び再生像を図6.4.9(a),(b)に示す。直径6mmのレーザー光入射による1次回折効率は約1.42%である。再生像はデジタルカメラで撮影しているため、その解像度の影響を受けていると考えられる。また、フーリエ変換パターンを記録しているため、高周波成分が記録されず、高い解像度が得られないことも考えられる。

さらに、SRGによる記録は角度多重が可能であることから、文字AとEの多重記録を行った。書込みは文字Eを書込んだ後参照光の角度を変えて文字Aを書込んだ。書込み強度は物体光=参照光=118mW/cm²で、書込み時間は1分である。文字A及びEの周期はそれぞれ約1.1μm、約0.8μmに設定した。直径1mmのHe-Neレーザーを入射して測定された1次回折効率は、それぞれ0.43%、0.035%であった。このように、フーリエ変換ホログラムの角度多重が可能であることが確認できた。ただし、同じ回折効率を得るためには書込み強度及び時間の最適化が必要である。また、記録グレーティングを回転して多重記録することも可能である。

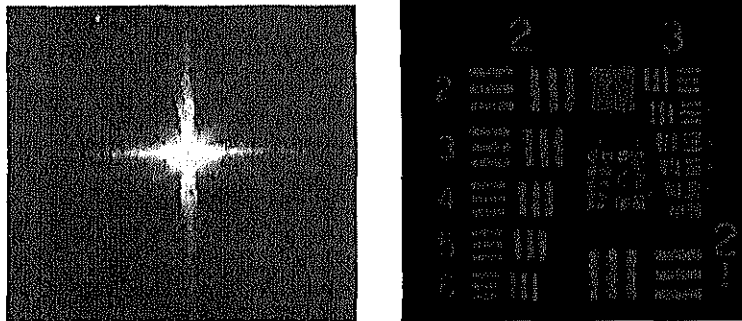


図 6.4.9(a)フーリエ変換パターン (b)解像度チャートの再生像

このSRGはポーリングすることでSRGの回折効率を増加できるという特徴を有している。これを利用すれば、小さな回折効率を向上し、より見やすい画像を再生することができる。そこで、フーリエ変換ホログラムで作製したレリーフ型ホログラムの回折効率の増強を行った。表6.4.1に実験条件及び実験結果を示す。ここでは、ポリマーフィルムの膜厚1μmのポリマーフィルムを用いた。記録したフーリエ変換ホログラムをCase.1及びCase.2の条件によりコロナポーリングした。2つの条件の違いはポーリング温度のみであり、Case.1で136度、Case.2で141度である。直径1mmのHe-Neレーザー光を入射してポーリング前後で測定された文字Aの1次回折効率は、Case.1では0.28%から4.73%、Case.2では0.24%から28.39%まで増加した。また、文字Eでも0.5%から32.6%への増加が観測された。次に、この増加の原因を確かめるために、AFMにより記録したフーリエパターン付近を観察した。図6.4.10(a),(b)にCase.2の条件で作製したポーリング前後における文字Aのフーリエ変換パターン(中心付近)の表面図を示す。ただし測定上の問題から、ポーリング前のサンプルは同一条件で作製したものを測定した。ポーリング前後のレリーフ深さは、約20nmから約350nmまで増加していることが確認できた。このことから、回折効率の劇的な増加の原因がレリーフ深さの増加によるものであることが分かった。

このように、ポーリングによる増強効果を利用することで、文字A、E両方において最大約30%の回折効率が増加することが分かった。ただし、ポーリングの効果が強いと回折効率は上昇するが、表面に絶縁破壊による小さな穴があいてしまい、散乱が大きくなってしまいう傾向がある。そこで、He-Neレーザーによりコロナポーリング後のフーリエ変換ホログラムの再生を行った。文字A及びEの再生像を図

6.4.11(a),(b)に示す。図のように文字がはっきりと確認でき、増幅による散乱などの影響は小さいことが分かった。ここで、文字を薄く取り囲んでいる円は文字画像として OHP を使用しているために生じたものである。このように、レーザーによる表面変調法を利用したホログラムの作製とコロナポーリングによる回折効率の増加法の組合せが有効であることが確認できた。さらに、コロナポーリング条件によって増強後の回折効率が異なることから、コロナポーリング条件の制御により任意の回折効率を持ったホログラムの作製が可能であると考えられる。

		Case.1	Case.2	
Writing pattern		A	A	E
Fabrication conditions	88mW/cm ² , 1min, 1μm			
Poling conditions	7kV, 136°C, 20min		7kV, 141°C, 20min	
Diffraction efficiency (%)	before poling	0.28	0.24	0.49
	after poling	4.73	28.39	32.63

表 6.4.1 コロナポーリング前後のホログラムの1次回折効率

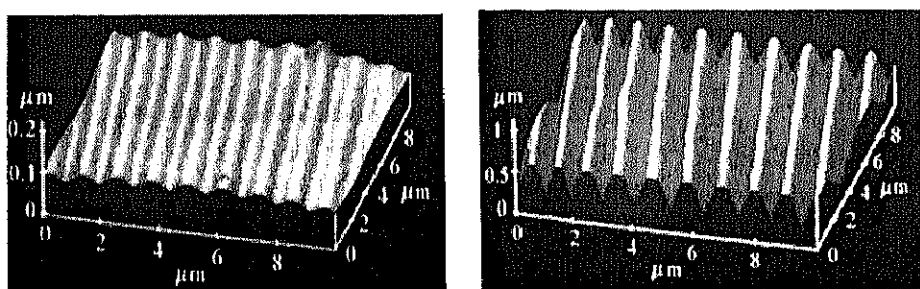


図 6.4.10 AFMにより観察したフーリエパターン表面図 (a)ポーリング前 (b)ポーリング後



図 6.4.11 ポーリング後の再生像 (a)文字 A (b)文字 E

6.5 アシスト光による表面レリーフホログラム記録

通常、SRGを作製できないs偏光レーザーを用いた干渉縞照射時に、アシスト光を照射することでSRGが作製できることを第4章で述べた。この場合、p偏光アシスト光を用いた場合に効率良くSRGを記録することができた。この効果を利用し、アシスト光に情報を持つ光を用いればホログラム記録を行うことができる。この方法をホログラム記録に用いる利点として、次にことが考えられる。1)ホログラムの周期によらず画像を直入射可能又は任意の方向から入射可能である。2)干渉縞光源及びアシスト光光源は任意に選ぶことができ、Ar⁺レーザー又はHe-Neレーザーによる干渉縞書込みとAr⁺レーザー又はXeランプを用いたアシスト光の組み合わせも可能である。3)レリーフ型であるため1μm程度の膜厚でも高い回折効率を得られる可能性がある。そこで、アシスト光に文字を利用してホログラム記録を試みた。

図 6.5.1 はアシスト光を利用したホログラム記録の光学系である。ホログラム記録は次の条件で行った。s偏光、 $I_1=50\text{mW/cm}^2$ のAr⁺レーザーにより干渉縞を作製し、p偏光、 $I_2=50\text{mW/cm}^2$ のアシスト光を照射して10分間記録した。物体光はレンズによりポリマーフィルム上に結像した。図 6.5.2(a),(b)は記録画像及びHe-Neレーザーにより観測した再生像であり、文字Eが記録できることが確認できた。

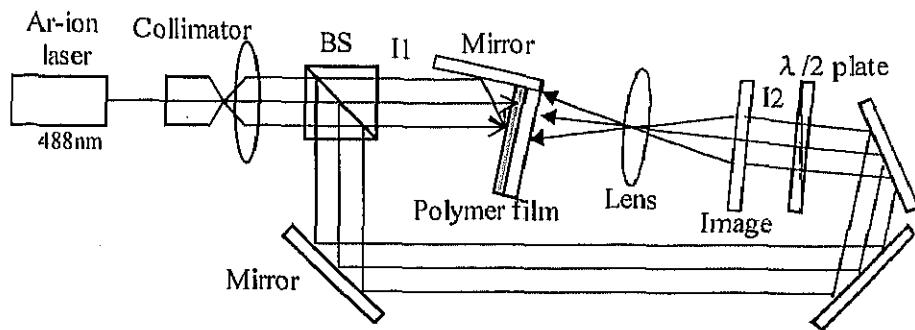


図 6.5.1 画像記録光学系



図 6.5.2 (a)記録画像 (b)再生像($I_1=I_2=50\text{mW/cm}^2$)

6.6 表面レリーフホログラフィック拡散体の記録

光を均一に拡散させる光学素子として光拡散体がある。この素子は液晶ディスプレイ、LEDの均一照明等に利用されている。任意の拡散パターンを作製する方法として、ホログラフィック拡散体がある[12]。この記録材料として、一般に銀塩やフォトポリマーが利用されている[13]。しかし、これらの材料では現像処理が必要であるとともに、繰り返し使用はできない。これに対し、この光拡散体の記録材料としてアゾベンゼン高分子薄膜を用いれば、書換え可能及び光又は電気により拡散パターンを変えられるような素子の作製も可能である。そこで、ポリマー表面の直接変調法を用いて光拡散体の作製を行った。

図 6.6.1 は今回用いた光拡散体の記録法である。レーザー光を任意の形の開口を通してマスター拡散体に照射し、そこから生じるスペックルパターンを記録する。ここで、 d は開口の直径、 l はマスター拡散体と記録材料間の距離を示す。光源として、CWのNd:YAGレーザー(波長 532nm)を用いた。また、記録材料には厚さ約 $3\mu\text{m}$ の Poly-Orange Tom を用い、マスター拡散体には Physical Optics Corporation (POC)社の拡散体を用いた。図 6.6.2 は He-Ne レーザーにより測定された非拡散光の時間変化を示す。マスター拡散体は 20 度拡散体であり、記録は次の条件で行った。 $l=1\text{cm}$ 、 $d=6\text{mm}$ (円形開口)、強度 200mW/cm^2 である。この場合、記録されるスペックルの大きさは約 $1\mu\text{m}$ となる。非拡散光の初期値を 1 とすると、90 分後得られた値は 0.001 となった。図 6.6.3(a),(b)、図 6.6.4(a),(b)に 20 度及び 0.2×40 度拡散体を用いて記録した拡散体の回折光及び光強度の角度依存性を示す。20 度拡散体を用いた記録では、拡散角(ピーク強度の半値全角)は約 27 度、 0.2×40 度拡散体では 4×47 度となった。図 6.6.5(a),(b)に AFM により測定された拡散体の表面を示す。20 度拡散体ではランダムな表面構造が記録されていることが確認できた。そのレリーフ深さは約 $2\mu\text{m}$ 前後であった。また、 0.2×40 度拡散体では 1 次元方向にランダムな周期が存在することが確認できた。これらの拡散体の形及び拡散角は、各パラメーター(波長、開口、距離、記録時間など)を制御することで任意に変えることができる。また、熱による消去及び再書込みも可能であった。このようにレーザー光による表面変調法を用いて光拡散体の作製が可能であることが確認できた。

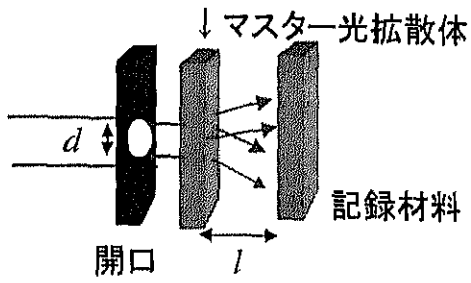


図 6.6.1 光拡散体の記録法

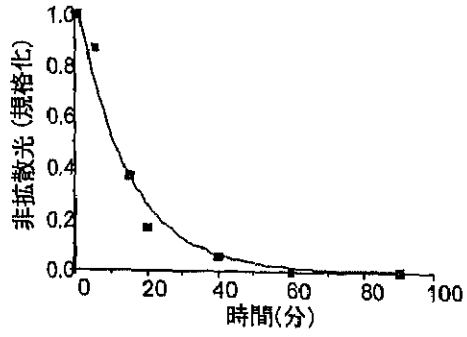


図 6.6.2 非拡散光の時間依存性

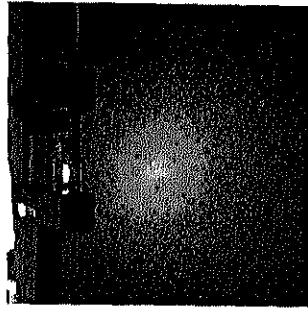
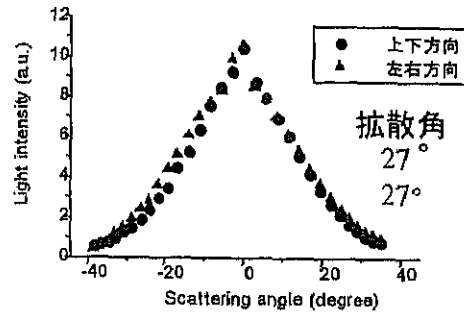


図 6.6.3 20度拡散体 (a)再生光



(b)光強度の角度依存性

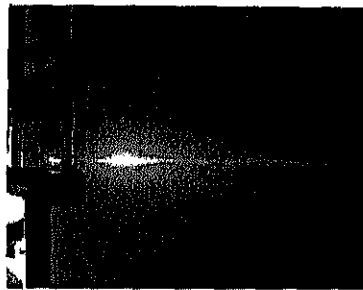
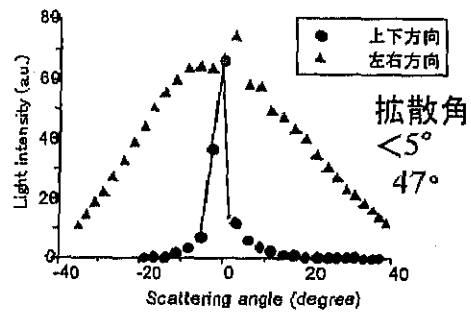


図 6.6.4 0.2×40度拡散体 (a)再生光



(b)光強度の角度依存性

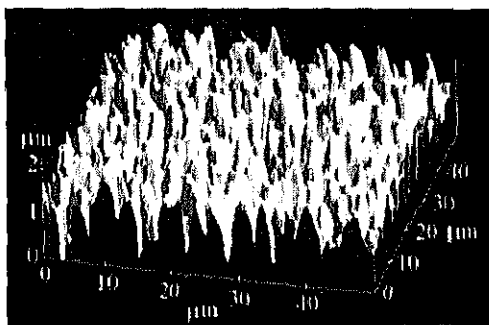
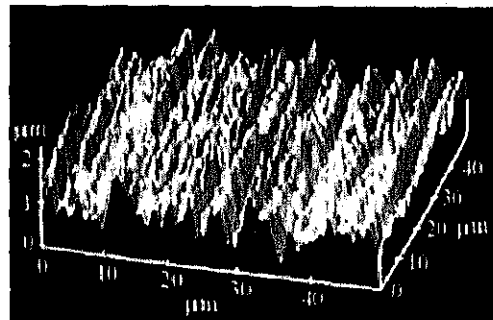


図 6.6.5 AFM 像 (a)20度拡散体



(b)0.2×40度拡散体

6.7 まとめ

第6章では、レーザー表面変調法を用いた光記録及び回折光学素子作製への応用について述べた。

光記録応用では側鎖型のアゾベンゼン高分子薄膜である Poly-Orange Tom にフレネルホログラム、フーリエ変換ホログラムの記録を行った。フレネルホログラムでは2次元画像及び3次元物体の記録を行った。ホログラムの記録時間は照射エネルギー及び記録偏光によって決まる。p 偏光、波長 532nm の Nd:YAG レーザーを使った記録において、2次元画像では強い強度で書込めるため 10 分程度であるが、3次元物体の場合は書込み強度が弱いため数時間の記録時間を要した。記録感度はフォトポリマーのような他の記録材料に比べて低く、これを解決する方法として次の2つが考えられる。1)円偏光及び吸収ピークに近い波長を用いる。2)高強度レーザーを用いる。3)記録後効率の増加を行う。1)、2)については、Poly-Orange Tom の吸収ピーク波長 440nm に近い、Ar⁺レーザー(488nm)又は He-Cd レーザー(442nm)を用いることで実現可能である。3)については、第4章で述べたポーリングによるレリーフ深さの増強効果を利用すれば実現できる。これらを用いれば、より実用的な3次元物体のホログラム記録が可能であると考えられる。

より実用的なホログラム記録法であるフーリエ変換ホログラム記録では、強い強度で書込むことができるため、その書込み時間は1分程度であった。ただし、強度の最適化が行われていなかったため、回折効率は約1%であった。今回、この低い回折効率を増加する方法として、コロナポーリングによる回折効率の増加法を用いた。この方法を用いることで約30%の回折効率を得られ、劇的な増加を確認できた。この結果は大変興味深く、このポーリングによる増強過程は銀塩やフォトポリマーの現像過程と見なすことができる。つまり、アゾベンゼン高分子薄膜へのレーザー表面変調法を利用した撮影、ポーリングによる現像と他の記録媒質と同様の取り扱いができることを意味する。この方法を利用すれば、アゾベンゼン高分子薄膜は新しい記録材料として有望であると考えられる。

さらに、アシスト光を用いた新しいホログラム記録法を提案した。これは、s 偏光レーザーを用いた干渉縞照射では SRG が記録できないが、これに p 偏光アシスト光を同時に照射することで SRG が記録できるというものである。アシスト光の入射方向は必ずしも干渉光の入射方向と一致させる必要がなく、画像などの情報をサンプルに対して直入射することが可能である。この場合、アシスト光を照射した部分のみ SRG が記録させるので、アシスト光に情報を乗せれば記録可能である。実際に、文字 E をアシスト光とすることでホログラム記録を行うことができた。ただし、得られる回折効率は 1.5%程度と小さく、回折効率向上のための詳しい実験が必要である。また、SRG 書込みには必ずしも吸収波長のレーザー光を用いる必要がなく、赤、緑、青レーザーによる多重記録が可能であり、カラーホログラムの記録も可能であると考えられる。

さらに、レーザーによる表面変調法を利用した回折光学素子の作製法として、光拡散体への応用を提案した。この場合、マスター拡散体を用い、そのスペckルパターンをアゾベンゼン高分子薄膜上に記録した。記録した拡散体の再生により、マスター拡散体と同じような特性を持つ拡散体が記録できていることが確認できた。ただし、この場合も作製時間には数時間必要であった。この対策には、上記の記録応用で述べたような対策が必要である。また、アゾ色素を有しているため、青・緑色領域に吸収を有する。これはディスプレイ応用に使う場合は好ましくない。しかし、この問題は拡散体作製後、紫外線照射によりアゾ色素を破壊し、透明化を行うことで解決できると考えられる。

アゾベンゼン高分子薄膜を用いたレーザーによる表面変調法は、直接記録、繰り返し記録、ポーリングによる回折効率の増強等が可能であり、新しい記録材料及び記録法として利用されることが考えられる。

第 6 章 参考文献

- [1] J. F. Heanue, M. C. Bashaw and L. Hesselink, "Volume holographic storage and retrieval of digital data", *Science*, **265**, 749-752 (1994).
- [2] S. Martin, C. A. Feely and V. Toal, "Holographic recording characteristics of an acrylamide-based photopolymer", *Appl. Opt.* **36**, 5757-5768 (1997).
- [3] 久保田敏弘, "ホログラフィー入門", p.100-p.106, 朝倉書店 (1995年).
- [4] K. Kawano, T. Ishii, J. Minabe, T. Niitsu, Y. Nishikata and K. Baba, "Holographic recording and retrieval of polarized light by use of polyester containing cyanoazobenzene units in the side chain", *Opt. Lett.* **24**, 1269-1271 (1999).
- [5] D. Y. Kim, Lian Li, X. L. Jiang, V. Shivshankar, J. Kumar and S. K. Tripathy, "Polarized laser induced holographic surface relief gratings on polymer films", *Macromolecules* **28**, 8835-8839 (1995).
- [6] C. J. Barrett, A. L. Natansohn and P. L. Rochon, "Mechanism of optically inscribed high-efficiency diffraction gratings in azo-polymer films", *J. Phys. Chem.* **100**, 8836-8842 (1996).
- [7] N. C. R. Holme, L. Nikolva, P. S. Ramanujam and S. Hvilsted, "An analysis of the anisotropic and topographic gratings in a side-chain liquid crystalline azobenzene polyester", *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1518-1520 (1997).
- [8] M. Itoh, K. Harada, H. Matsuda, S. Ohnishi, A. Parfenov, N. Tamaoki and T. Yatagai, "Photomodification of polymer films: azobenzene-containing polyurethanes", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31**, 463-471 (1998).
- [9] S. Piazzolla and B. K. Jenkins, "Holographic grating formation in photopolymers", *Opt. Lett.* **21**, 1075-1077 (1996).
- [10] J. Kumar, L. Li, X. L. Jiang, D. Kim, T. S. Lee and S. Tripathy, "Gradient force: The mechanism for surface relief grating formation in azobenzene functionalized polymers", *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2096-2098 (1998).
- [11] C. J. Barrett, P. L. Rochon and A. L. Natansohn, "Model of laser-driven mass transport in thin films of dye-functionalized polymers", *J. Chem. Phys.* **109**, 1505-1515 (1998).
- [12] C. Gu, J. R. Lien, F. Dai and J. Hong, "Diffraction properties of volume holographic diffusers", *J. Opt. Soc. Am.* **A13**, 1704-1711 (1996).
- [13] S. Wadle, D. Wuest, J. Cantalupo and R. S. Lakes, "Holographic diffusers", *Opt. Eng.* **33**, 213-218 (1994).