

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K20993

研究課題名(和文) ナノ・マイクロ構造を付与したガラス微小球レーザーの作製と高効率指向性発振

研究課題名(英文) Glass microsphere laser with nanometer- and micrometer-size structure for highly directional emission

研究代表者

岸 哲生 (Kishi, Tetsuo)

東京工業大学・物質理工学院・助教

研究者番号：90453828

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：ナノメートルサイズからマイクロメートルサイズの付加的構造を有するガラス微小球レーザーを作製した。透明ナノ結晶化ガラスやファラデー回転ガラスからなるガラス微小球をレーザー局所加熱法により作製した。これによりレーザー局所加熱法が様々なガラス組成において真球が作製可能であることがわかった。また、欠陥構造を付与したガラス微小球の光共振特性を電磁界解析によるシミュレーションにより解析し、欠陥構造の導入により球内部の電場分布が変化し、光共振波長の広帯域化と指向性発振が実現されることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Nanometer-size or micrometer-size additional structures were fabricated on glass microspheres. Glass microsphere lasers were made from transparent glass-ceramics containing nano-sized crystals or Faraday rotation glasses by using the Localized-Laser Heating method. Optical resonant properties of microsphere with defects like bubble or grating were analyzed by using electromagnetic simulations such as finite element and finite-differential time-domain methods.

研究分野：ガラス材料, 応用光学

キーワード：ウィスパリングギャラリモード ガラス材料 微小球 レーザー加熱

1. 研究開始当初の背景

ガラス微小球は、球界面で全反射を繰り返すことで内部に光が閉じ込められ、Whispering Gallery Mode (WGM)と呼ばれる光共振を示す。現在広く利用されているFabry-Pérot (FP) 型光共振器に比べて、WGM型光共振器は高い効率で光を閉じ込めることで、レーザー発振や非線形光学効果といった現象を低い閾値で発現できる。これにより、微小レーザー光源、波長フィルタ、光スイッチ、光遅延回路および化学バイオセンサといった多様な素子への応用が期待されている [1]。高い効率で光を閉じ込める微小球型光共振器の実用化への課題は、光を閉じ込める構造に如何にして光を導入し取り出すかにある。現在最も光結合効率が高いのは、直径1 μm のテーパーファイバを微小球界面から数百nmの近傍(エバネッセント光が染み出す距離)まで近づける手法である。しかしながら、高い光閉じ込め効率と高い光結合効率を安定して得るために、球と極細のファイバの間隔を数百nmの距離に常に保たなければならない。より簡便な直接照射による微小球への光の導入・取出し方法として、球に付加的な構造を形成し、散乱 [2]や回折 [3]により微小球との光結合を促す手法が提案されており、ナノ微粒子やナノ回折格子による励起効率の向上や指向性発振が確認されている。

我々はこれまでに、ガラス微小球を基板上で安定して作製する「レーザー局所加熱(Localized Laser Heating: LLH)法」を開発してきた。さらに、微小球にテラスまたは気泡行ったマイクロメートルサイズの構造を付与し、そこに励起光を直接照射することで、低閾値レーザーやラマンレーザー発振が可能であることを実証した。その中で、気泡含有ガラス微小球は、通常のWGM光共振器とは異なった特性を有し、光共振器と伝搬光を直接結合させ、高い効率で励起、閉じ込め、発振を達成可能であることが示唆された。また、その励起スペクトルが波長にも偏光にも依存しないという事実は、この光共振器が自然光やLEDでも励起できることを示しており、太陽光励起レーザーのような新たな用途への発展も期待される。

2. 研究の目的

本研究では、付加構造を有する微小球レーザーを作製し、その発振特性を明らかにすることを目的とした。気泡構造が球内部のモードに及ぼす影響を明らかにするために、電磁界解析シミュレーションを行った。また、フォトリソグラフィを基にした微細加工技術により、球面のガラスに光の波長程度の周期構造を形成し、その光機能を評価した。さらに、高屈折率・高分散・高Verdet定数などの高い光機能を有するTeO₂系透明結晶化ガラスやBi₂O₃系ガラスのガラスに対してLLH法を適用し、レーザー発振可能な微小球の作製を試みた。

3. 研究の方法

(1) レーザー局所加熱法によるガラス微小球の作製と光機能

これまでに用いてきたK₂O-WO₃-TeO₂ガラスに加えて、新たにK₂O-Nb₂O₅-TeO₂ガラスおよびBi₂O₃-ZnO-B₂O₃ガラスを用いた微小球の作製を行った。前者は、ナノメートルサイズの非線形光学結晶が析出し透明ガラスセラミックスが得られ、後者は大きなファラデー回転を示すガラスが得られる。どちらも酸化物ガラスの中で高い屈折率を有している。これらのガラスに光吸収剤および発光中心としてNd³⁺またはYb³⁺を添加したガラスを通常の熔融急冷法で作製した。作製したガラスを粉碎・ふるい分けにより数十 μm の微粉とし、シリカガラス基板上に分散させた。波長806nmまたは980nmのCWレーザーを基板上のガラス微粉に集光照射し、ガラス微粉のみを局所的に加熱することで真球状のガラスを基板上に形成した。得られたガラス微小球の発光特性を、顕微鏡と分光器を組み合わせた微小領域分光計測装置により測定した。

(2) ガラス微小球へのナノ構造付与

テルライトガラスに対する電子線描画とエッチングによる加工条件を最適化するため、まず、テルライトガラス平面基板での回折格子の作製を試みた。ポジ型レジストを基板に塗布し、線幅0.8 μm のラインアンドスペースを電子線描画し、その後現像して電子線を照射した部分を洗い流した。その後、Krガスによるドライエッチングを行い、Krガス流量、ガス圧、RFパワーを変更し、エッチング条件を最適化した。波長806nmのCW-Ti:Sapphireレーザーをガラス微粉に照射し、LLH法により直径65 μm の微小球を作製した。このテルライトガラス微小球が波長1064nmにおいてレーザー発振をすることを確認した後、上記と同様のKrプラズマエッチング実験を行った。

(3) 気泡含有ガラス微小球の光共振モード

ガラス微小球内部の空洞が光共振特性に与える影響を理解するために有限要素法(FEM: Finite Element Method)によるモード解析を行った。モデルには、半径10 μm 、屈折率2.0の球に、直径1.6 μm の中空リングを赤道面に導入した軸対称構造を用いた。

4. 研究成果

(1) レーザー局所加熱法によるガラス微小球の作製

図1は、直径25 μm のK₂O-Nb₂O₅-TeO₂ガラス微小球の熱処理前と410°Cで105分間熱処理した後の発光スペクトルと光学顕微鏡で微小球を上から観察した結果である。X線回折により熱処理後のガラスには非線形光学結晶であるK[Nb_{1/3}Te_{2/3}]₂O_{4.8}が析出していることがわかった。蛍光スペクトル測定により、ガラス微小球からはレーザー発振が確認され、発振閾値は14mWであった。熱処理後は、発振閾

値は増大した。閾値の増加はナノ結晶の析出による光散乱の増大により微小球の Q 値が低下し、発振閾値が増大したためと考えられる。また、熱処理後は共振波長が変化しており、 $K_2O-Nb_2O_5-TeO_2$ 系ガラスの内部にナノ結晶が析出することで屈折率が変化し、微小球の共振モードが変化したものと考えられる。残念ながら、これまでにこの微小球レーザーからの SHG 発現は確認できていないが、高い真球性と透明性を有し、基本波である $1\mu m$ 帯の光がレーザー発振し、内部に SHG 変換性能を有する $K[Nb_{1/3}Te_{2/3}]_2O_{4.8}$ ナノ結晶が析出したガラスセラミックス微小球を作製できることを実証した。今後、微小球内部で SHG を発現するような高い光子密度を実現させることにより、SHG レーザー用微小球として機能することが期待できる。また、 Yb^{3+} 添加 $Bi_2O_3-ZnO-B_2O_3$ ガラスについても同様にレーザー発振することを確認しており、非線形光学効果や磁気光学効果が光共振特性に及ぼす影響について調査を進めている。

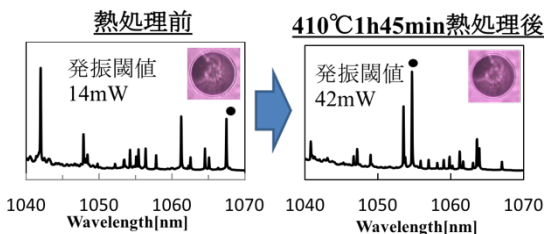


図 1. Yb^{3+} 添加 $K_2O-Nb_2O_5-TeO_2$ ガラス微小球の熱処理前 (左) および $410^\circ C$ で 105 分間熱処理後のレーザー発振スペクトル。挿入図は試料の光学顕微鏡写真。

(2) ガラス微小球へのナノ回折格子の付与

直径 $65\mu m$ の Nd^{3+} 添加 $K_2O-WO_3-TeO_2$ ガラス微小球レーザーに対し、Kr プラズマエッチングを施した試料表面の SEM 像を図 2 に示す。球表面に $1.6\mu m$ ピッチの回折格子が付与されていることが分かる。同様に平面基板上に形成した周期構造が透過型回折格子として機能することを確認しており、球面に対しても回折格子が形成可能であるといえる。この微小球ではレーザー発振が確認できなかったが、加工面積、周期および深さなどの微細構造を調整することで、微小球の高い Q 値を保持したまま光取り出し構造として機能する回折格子が形成できるものと考えている。

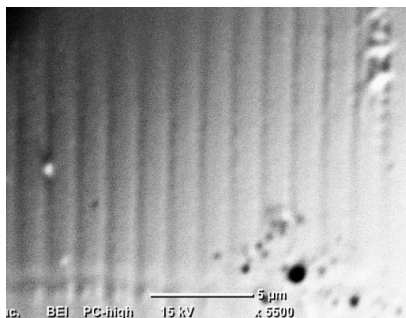


図 2. テルライトガラス微小球表面に形成した周期構造の SEM 像。

また、同様の周期を付与したガラス微小球の発光方向を Finite-differential time-domain (FDTD) 法により解析した結果、回折条件を満たす方向のみに染み出すことを確認しており、回折格子を微小球に付与することで、所望の指向性を得られることが明らかになった。

(3) 欠陥含有ガラス微小球のモード解析

図 3 に FEM による共振モード解析で得られた球の断面の電場分布を示す。中空リングを導入した微小球では WGM に比べて電界分布が歪んでおり、特に球の内側に電界が広がっている $n=2$ のモードは $n=1$ のモードに比べて中空リングの影響を強く受けている。また、同じ n でも赤道面に強い電場強度を持つモード ($l-m+1=1$) の方が中空リングの有無による電界分布の違いが大きい。

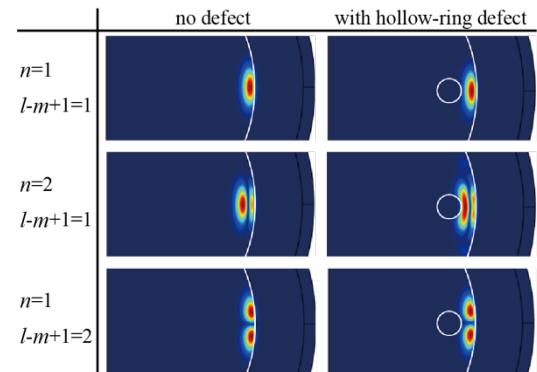


図 3. 通常の微小球 (左列, $l=148$) と中空リング欠陥を含む微小球 (右列, $l=140$) の赤道面近傍における電場分布。

図 4 に、モード解析で得られた共振波長をモード指数 m に対してプロットした図を示す。モード次数は $n=2$ (TE, $l=140$) である。欠陥を導入していない球では m によらず同一の共振波長だが、中空リングを導入した球では、 m が増加するにつれて共振波長が短波長側へシフトし、 m が大きいほど波長シフト量は大きくなった。また、 m が l に近い値をとる場合、赤道面に強い電場強度を持つ $l-m+1$ が奇数のモードの方が $l-m+1$ が偶数のモードに比べてシフト量が大きい。以上より、内部空洞を導入したガラス微小球ではモード指数 m に応じて電場分布と空洞の相互作用が異なり、WGM の縮退が解かれることが明らかになった。このように、真球に対して内部空洞を形成し、励起モードの縮退を解くことで、低閾値・広帯域励起のレーザー発振が実現できると考えられる。

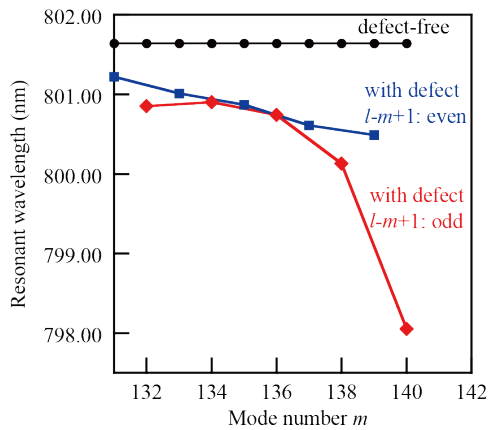


図 4. 通常の微小球及び中空リング含有ガラス微小球の $TE_{l,m,2}$ モードの光共振波長のシミュレーション結果。

<参考文献>

1. A. B. Matsko, V. S. S. Ilchenko, and A. B. Matsko, "Optical resonators with whispering-gallery modes - Part II: Applications," *Ieee J. Sel. Top. Quantum Electron.* **12**, 15–32 (2006).
2. J. Zhu, Ş. K. Özdemir, H. Yilmaz, B. Peng, M. Dong, M. Tomes, T. Carmon, and L. Yang, "Interfacing whispering-gallery microresonators and free space light with cavity enhanced Rayleigh scattering," *Sci. Rep.* **4**, 6396 (2014).
3. D. C. Aveline, L. M. Baumgartel, G. Lin, and N. Yu, "Whispering gallery mode resonators augmented with engraved diffraction gratings.," *Opt. Lett.* **38**, 284–6 (2013).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

1. Tsutaru Kumagai, Giuseppe Palma, Francesco Prudenzano, Tetsuo Kishi, Tetsuji Yano, "New spherical optical cavities with non-degenerated whispering gallery modes," *Proceedings of SPIE*, 査読有, Vol. 10090, pp. 100901F-1-9, 2017.
2. Jakub Drs, Tetsuo Kishi, Yves Bellouard, Laser-assisted morphing of complex three dimensional objects, *Optics Express*, 査読有, Vol. 23, pp. 17355–17366, 2015.
3. Tetsuji Yano, Tetsuo Kishi, Tsutaru Kumagai, Glass Microspheres for Optics, *International Journal of Applied Glass Science*, 査読有, Vol.

6, pp. 375–386, 2015.

4. G. Palma, C. Falconi, V. Nazabal, T. Yano, T. Kishi, T. Kumagai, M. Ferrari, F. Prudenzano, Modeling of Whispering Gallery Modes for Rare Earth Spectroscopic Characterization, *IEEE Photonics Technology Letters*, 査読有, Vol. 27, No. 17, pp. 1861–1863, 2015.
5. Tetsuo Kishi, Tsutaru Kumagai, Shogo Shibuya, Francesco Prudenzano, Tetsuji Yano, Shuichi Shibata, Quasi-single mode laser output from a terrace structure added on a Nd^{3+} -doped tellurite-glass microsphere prepared using localized laser heating, *Optics Express*, 査読有, Vol. 23, No. 16, pp. 20629–20635, Jul 2015.

[学会発表] (計 13 件)

1. 熊谷 傳, 岸 哲生, Giuseppe Palma, Francesco Prudenzano, 松下伸広, 矢野 哲司, 内部空洞を導入したガラス微小球レーザーの作製と縮退の解けた WGM の発現, The 27th Meeting on Glasses for Photonics, Feb 2017, 東京.
2. 鄭 瑞杰, 岸 哲生, 矢野 哲司, Optical bonding method of tellurite glass film on silicate glass, The 27th Meeting on Glasses for Photonics, Feb 2017, 東京.
3. T. Kishi, T. Kumagai, N. Matsushita, T. Yano, On-Chip Fabrication of Micrometer-Size Spherical Glasses for Optical Devices, IUMRS-ICYRAM 2016, ABS-248-ICYRAM, Dec 2016, India.
4. T. Kishi, T. Amagasa, C. Rüssel, T. Yano, Fabrication of transparent glass-ceramic microsphere from $K_2O-Nb_2O_5-B_2O_3-TeO_2$ glass doped with Yb_2O_3 for optical resonator, ICG Congress 2016, 0-160, Apr 2016, Shanghai.
5. 岸哲生, 微小ガラス液滴の形状制御による球状素子の作製と光機能, 日本セラミックス協会 2016 年年会, 3C17A, Mar 2016, 東京.
6. 熊谷 傳, Giuseppe Palma, Francesco Prudenzano, 岸 哲生, 矢野 哲司, 気泡含有ガラス微小球による縮退の解けた WGM の発現, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 19p-H116-12, Mar 2016, 東京.
7. Jakub Drs, Tetsuo Kishi, Yves Bellouard, Laser-assisted morphing of complex three dimensional objects, *Photonics west*. 9735, pp. 97350D-1-8, Feb 2016, USA.
8. 大竹真理子, 岸哲生, 矢野哲司, 松谷

- 晃宏, 西岡國生, 一方向性光結合を示す
テルライトガラス回折格子の作製, The
26th Meeting on Glasses for
Photonics, Jan 2016, 東京.
9. 熊谷 傳, Giuseppe Palma, Francesco
Prudenzano, 岸 哲生, 矢野 哲司, モ
ードおよび伝搬光解析による気泡含有
ガラス微小球の非対称 WGM, The 26th
Meeting on Glasses for Photonics,
Jan 2016, 東京.
 10. 岸 哲生, 熊谷 傳, 天笠 友洋, 矢野
哲司, レーザー局所加熱を用いたガラ
ス液滴の形状制御による微小球状光共
振器の作製, 第25回日本MRS年次大会,
E-3, I8-009, Dec 2015, 横浜.
 11. Tetsuo Kishi, Tsutaru Kumagai,
Tetsuji Yano, On-chip fabrication
of glass sphere laser, International
Symposium on Optomechatronics
Technology (ISOT 2015), Oct
2015, Switzerland.
 12. T. Kishi, T. Amagasa, C. Rüssel, T.
Yano, Microspherical cavity of
tellurite glass containing nano-
crystals with SHG conversion, The
11th International Symposium on
Crystallization in Glasses and
Liquids (Crystallization 2015),
031, Oct 2015, 長岡.
 13. 岸 哲生, 付加構造によるガラス微小球
レーザーの発振特性制御, 第二回若手
研究者のフォトニクス材料研究会 2015,
Aug 2015, 札幌.

[図書] (計 1 件)

岸 哲生, 熔融急冷法で作製したガラスの形
状・形態制御による光機能素子の創製, 第 47
回ガラス部会夏季若手セミナーテキスト, 日
本セラミックス協会, pp.6-18, 2015.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岸 哲生 (Kishi, Tetsuo)

東京工業大学・物質理工学院・助教

研究者番号: 90453828

(2) 研究協力者

矢野 哲司 (YANO, Tetsuji)

東京工業大学・物質理工学院・教授

松下 伸広 (MATSUSHITA, Nobuhiro)

東京工業大学・物質理工学院・准教授

熊谷 傳 (KUMAGAI, Tsutaru)

東京工業大学・大学院理工学研究科・博士
学生

天笠 友洋 (AMAGASA, Tomohiro)

東京工業大学・大学院理工学研究科・修士

学生

大竹 真理子 (OHTAKE, Mariko)

東京工業大学・大学院理工学研究科・修士
学生

青柳 匡和 (AOYAGI, Masakazu)

東京工業大学・物質理工学院・学部学生