

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06388

研究課題名（和文）構造設計可能なランダムレーザーの開発および特性解析

研究課題名（英文）Development of structure-designable random laser and its characterization

研究代表者

岡本 卓（Okamoto, Takashi）

九州工業大学・大学院情報工学研究院・教授

研究者番号：40204036

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,700,000円

研究成果の概要（和文）：発光制御が困難であるランダムレーザーの散乱媒質構造を設計した。散乱体配置の自由度を減らすため、格子状2次元ランダム媒質を用いた。新たに考案した構造設計アルゴリズムを用い、電磁界シミュレーションにより媒質を最適化したところ、特定の波長に光エネルギーを集中できることを明らかにした。さらに、作製誤差による発光特性の変化を解析し、媒質作製に必要な精度を割り出した。また、2次元ランダム構造作製実験を行った。光硬化性樹脂に明暗パターンを照射し、表面にランダムな凹凸パターンを形成できることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、ランダムレーザーであっても指定された波長の光を放射する構造を設計することが可能であり、さらに同じ特性を持つものを複数作製することが可能であることが示された。ランダムレーザーの用途は、既存のレーザーでは避けられない粒子状明暗ノイズが問題となる装置、例えば顕微鏡やディスプレイ、医療用の眼底検査装置(OCT)まで、多岐に渡る。これらに対して、用途に応じた発光特性を持つランダムレーザーを提供することで、それら各種製品の性能を向上させることが可能となる。

研究成果の概要（英文）：We have designed the structure of scattering media for random lasers, the emission of which is difficult to control. A two-dimensional checkerboard structure was used for random laser media to reduce the freedom of scatterer positions. The simulation results found that the emitted light is able to be concentrated within a certain wavelength range by using a new algorithm for the structural design. We also estimated the manufacturing errors allowed for the emission control of random lasing. The experimental results for producing two-dimensional random laser media showed that random surface structures were formed by illuminating photopolymer with a speckle pattern.

研究分野：光物理学

キーワード：ランダムレーザー 光散乱 格子状ランダム媒質 電磁界シミュレーション 最適化手法

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

25 年ほど前、レーザー色素を溶媒とする微粒子懸濁液をパルスレーザーで励起すると、レーザー発振が起こるといった現象が Lawandy らにより発見された。ランダムレーザーと称されるこの新しい現象は、厳密に調整された光共振器がなくてもレーザー発振が起こることによって注目された。このレーザーは、計測や画像投影等に使用する際に問題となる、斑点状のスペクルノイズがほぼ生じない画期的なレーザーである。そのメカニズムは完全に解明されたわけではないが、光が媒質内部で多重散乱することにより、不規則な内部干渉パターンによって擬似的に複数の共振器が形成されているのではないかと考えられている。現在までにさまざまなレーザー媒質を不規則構造として用いた研究が行われているが、(1) 発振効率が低い、(2) ランダム構造からの出射のため、発光特性の制御が難しい、(3) 複製が難しいなど、多くの解決すべき課題が残されている。

研究代表者は、散乱体が不均一に分散しているランダムレーザーの研究を行ってきた。このような、光子が通常よりも極端に長い自由行程を取ることができる状態でレーザー発振が起こった場合、発光強度が増強されることを実験的に確認した。しかし、特定の媒質で良い発光が得られたとしても、同じものを複製できなければ、製品化することは難しい。微粒子を増幅媒質に混ぜて作製する限り、個々の微粒子の位置を制御することは困難である。そこで、微粒子の代わりに光硬化性樹脂に微細パターンを書き込むことで、複製可能なランダム構造を作製できるのではないかと考えた。

2. 研究の目的

本研究では、狭帯域の指定発振波長で、指定したレーザー発散角が得られるランダム構造を設計し、発光特性の制御問題と複製の問題を同時に解決可能なランダムレーザーの開発可能性を探ることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究の主要部分はシミュレーション研究である。光の電磁界解析を行う手法として、時間領域差分法 (Finite difference time domain method: FDTD 法) を用いた。この手法に光の増幅計算に関するレート方程式と分極の式を加えることでランダムレーザーの発光計算を行う。

解析に用いるシミュレーションモデルを図 1 に示す。ランダム媒質は 2 次元媒質であり、 x 、 y 方向の電界成分 E_x 、 E_y と z 方向の磁界成分 H_z のみをもつ TE 偏光について計算を行った。解析対象となる媒質は、大きさ $4.0 \times 4.0 \mu\text{m}$ で屈折率 1.5 の増幅媒質 (橙色領域) に、大きさ $0.2 \times 0.2 \mu\text{m}$ で屈折率 1.0 の正方形の散乱体となる空気領域 (白色領域) を格子状にランダム配置している。また、厚さ $1 \mu\text{m}$ で屈折率 1.5 の外層と、媒質からの出射光が再び媒質内に反射し戻らないようにするための PML 吸収境界を媒質の周辺に設置した。PML の厚さは 16 セルである。また、図 1 に示されるように外層全体に等間隔に 36 個の観測点を置いた。シミュレーション条件を表 1 に示す。

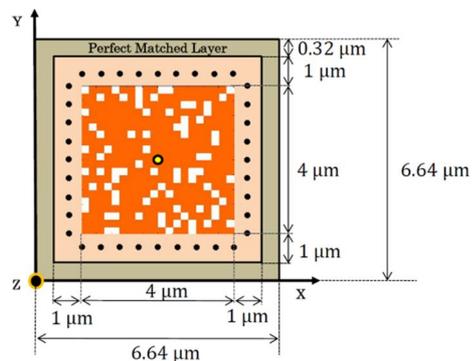


図 1 シミュレーションモデル

表 1 シミュレーション条件

解析領域 (μm)	6.64 × 6.64
セル数	332 × 332
セルサイズ (nm)	20 × 20
時間増分値 (s)	3.336×10^{-17}
ステップ数	1.5×10^5
励起光波長 (nm)	532
励起率 (s^{-1})	1.0×10^{12}

(1) 特定の波長帯で強く発振するランダム媒質の設計

まず、発光スペクトルが波長帯 579 ~ 581 nm にのみピークを持つ媒質構造を求める。評価指標を以下のように定めた。

$$R_b = \frac{\text{波長 579~581 nm の最大ピーク値}}{\text{波長 579~581 nm 以外の最大ピーク値}}$$

散乱体充填率 10% の場合、散乱体配置のパターン数は 2.0×10^{55} となる。これをすべて計算しようとする、1 パターン当たり通常の PC (GPU 計算) で 3 時間かかるため、 6.8×10^{51} 年かかることになり、現実的ではない。そのため、効率的な探索アルゴリズムが必要となる。

本研究では、Direct binary search 法を基本とした以下の探索手順を用いた。

1. 散乱体充填率 5、10、15、20% の媒質を作成する
2. 上下左右 4 方向の発光スペクトルを求め、一番 R_b 値が高いスペクトルを初期値とする。

3. ランダムに散乱体を 1 個選択し、位置を上下左右いずれかに 1 ピクセル移動させる
4. 4 方向の発光スペクトルを求める
5. 移動前と移動後の結果を比較し、移動後の R_b 値が高ければその位置に散乱体を固定し、低ければ散乱体をもとの位置へ戻す
6. 3. ~ 5. の手順を 40 回繰り返して実行する
7. R_b 値がもっとも高い媒質を最終媒質とする

(2) 特定の方向に強く発光するランダム媒質の設計

次に、方位角 $135^\circ \sim 225^\circ$ (媒質の下向き $\pm 45^\circ$) の範囲に強く発光する媒質構造を求める。評価指標を以下のように定めた。

$$R_a = \frac{\text{方位角 } 135^\circ \sim 225^\circ \text{ に出射する光強度の和}}{\text{方位角 } 135^\circ \sim 225^\circ \text{ 以外に出射する光強度の和}}$$

探索手順は以下の通りである。

1. 散乱体充填率 5、10、15、20% の媒質を作成する
2. 下向き $\pm 45^\circ$ およびそれ以外の方向に出射する光の強度をそれぞれ求め、 R_a の初期値とする
3. ランダムに散乱体を 1 個選択し位置を上下左右いずれかに 1 ピクセル移動させる
4. R_a 値を求める
5. 移動前と移動後の結果を比較し、移動後の R_a 値が高ければその位置に散乱体を固定し、低ければ散乱体をもとの位置へ戻す
6. 3. ~ 5. の手順を 40 回繰り返して実行する
7. R_a 値がもっとも高い媒質を最終媒質とする

(3) 散乱体のサイズ誤差や位置誤差の影響

実際に媒質を作製する際には製造誤差は不可避である。そこで、図 2 に示すようなサイズ誤差と位置誤差を各散乱体と与え、 R_b 値や R_a 値の変化を調べた。サイズ誤差は、散乱体のサイズが ± 20 nm で拡大・縮小する 8 つのパターン、および誤差がないパターンを用意し、媒質の一つ一つの散乱体に対して 9 パターンからランダムに 1 パターンが生じるように誤差を与えた。位置誤差は、散乱体が配置される位置が ± 20 nm ずれる 8 つのパターン、および誤差がないパターンを用意し、媒質の一つ一つの散乱体に対して 9 パターンからランダムに 1 パターンが生じるように誤差を与えた。

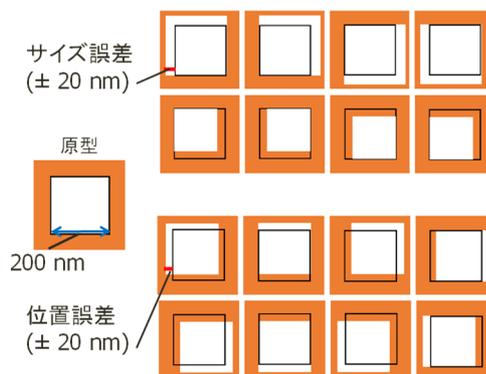


図 2 サイズ誤差と位置誤差

(4) 複製可能性の実験的検討

図 1 の構造を実際に作製する手法の一つとして、光硬化性樹脂に設計した光波パターンを照射して構造体を作る手法がある。本研究ではスペckルパターンを可視光硬化性樹脂に照射し、表面凹凸を形成する手法を用いて、ランダム構造の複製可能性を調査した。

光硬化性樹脂 K82 (アーデル社製) にレーザー色素ローダミン 6G を濃度 6.7×10^{-3} mol/l になるように溶かした溶液を作製する。この溶液に波長 405 nm の青色レーザーをすりガラスに照射して生じたスペckルパターンを 20 ~ 30 分間照射して硬化させる。同じスペckルパターンで作製した 2 つの試料の表面凹凸を比較した。

4. 研究成果

(1) 特定の波長帯で強く発振するランダム媒質の設計

最初に、得られた結果の一例を図 3 に示す。図 3 より、散乱体の配置のわずかな違いで、発光スペckルが大きく変化することが分かる。12 個の初期サンプル (同じ散乱体充填率につき 3 個) で調べたところ、すべてのサンプルで最終的に 3 以上の R_b 値が得られた。

各散乱体充填率で得られた、 R_b 値の初期値と最終値を図 4 に示す。エラーバーは標準誤差を表す (以下同じ)。図 4 より、すべての散乱体充填率で R_b 値が高くなっており、特に 5 ~ 10% で高い値が得られることが分かる。しかし、標準誤差が非常に大きいことから分かるように、初期媒質の構造や個々の散乱体の移動のさせ方によって、結果が大きく異なってくる。これは、媒質

サイズが小さいために媒質全体が一つの共振領域に含まれていることによる。その結果、一つの散乱体の変化が全体の発光スペクトルに大きく影響することになる。

次に、本研究で用いた構造探索アルゴリズムの有効性を確かめるため、ランダムに 40 個の媒質を作成し、その中で最も高い R_b 値のものを選ぶ、ランダムサーチ法との比較を行った。結果を図 5 に示す。図 5 より、今回の探索手法の結果の方がランダムサーチよりも高い R_b 値が得られることが分かる。ただし、有意な差とはなっていないので、より多くのサンプルでの評価が必要である。

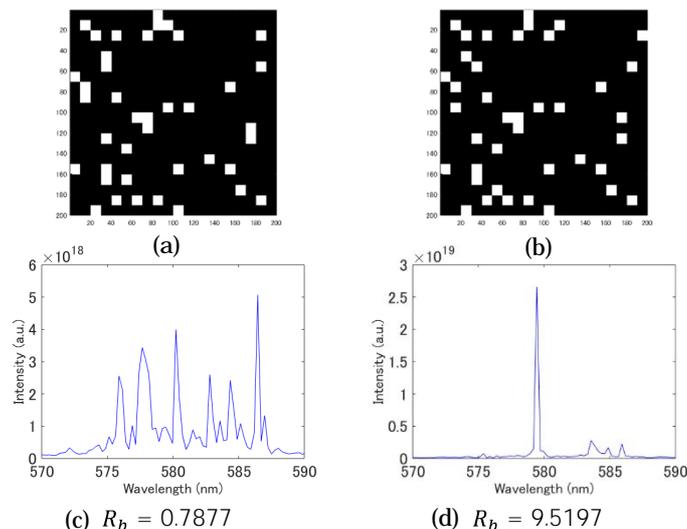


図 3 初期媒質(a)と最終媒質(b)、およびそれらの発光スペクトル(c), (d) (散乱体充填率 10%)

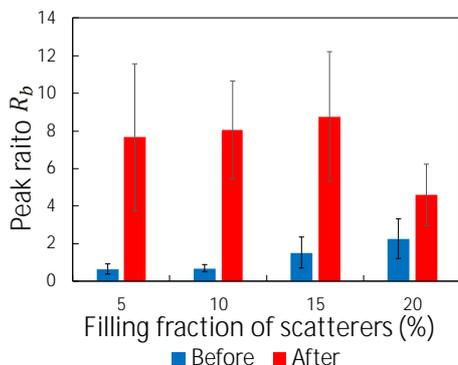


図 4 R_b 値の初期値と最終値の比較

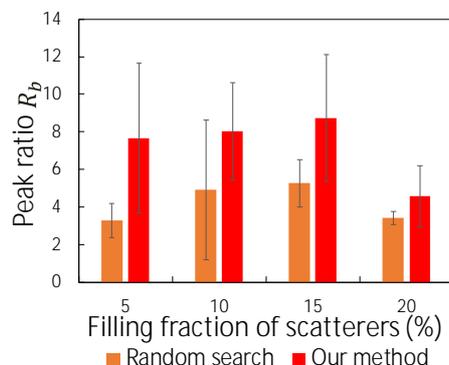


図 5 ランダムサーチ法との比較

(2) 特定の方向に強く発光するランダム媒質の設計

各散乱体充填率で得られた、 R_a 値の初期値と最終値を図 6 に示す。図 6 より、すべての散乱体充填率で R_a 値が高くなっており、特に 15% で高い値が得られた。発光スペクトルの場合と異なり、一つの散乱体移動により R_a 値が大きく変化することはなかった。これは、今回の出射方位角制御が 90 度範囲の出射強度を平均化したものを指標としたためであると考えられる。しかしながら、今回用いた探索アルゴリズムで特定の方向に強く発光する媒質は作成可能であることは確認できた。

ランダムサーチ法との比較を行った結果を図 7 に示す。図 7 より、散乱体充填率 15 ~ 20% で今回の探索手法でランダムサーチよりも高い結果を得た。しかし、低い散乱体充填率ではあまり違いがなかった。このことから、10% 以下の充填率では、 R_a 値は初期媒質の構造に対する依存性が高いと考えられる。

(3) 散乱体のサイズ誤差や位置誤差の影響

設計した媒質にサイズ誤差と位置誤差が生じた場合に得られる R_b 値と R_a 値をそれぞれ図 8、図 9 に示す。図 8 より、すべての充填率においてサイズ誤差と位置誤差の両方で R_b 値が大きく低下している。これは、波長に比べて 1/20 以下の ± 20 nm という小さな誤差であっても、発生した光は媒質内で多重散乱するため、誤差が蓄積することで共振モードが大きく変化したものと考えられる。また、サイズ誤差と位置誤差を比較すると、 R_b 値に有意な差は見られなかった。

図 9 より、 R_a 値についても誤差による低下が見られる。しかし、その低下率は R_b 値より小さい。これは上記(2)でも述べたように、ある程度広い角度範囲の光強度を制御対象としたためと思われる。したがって、目標とする出射方位角範囲を狭めれば、図 8 と同様 R_a 値の低下は大きくなると予想される。

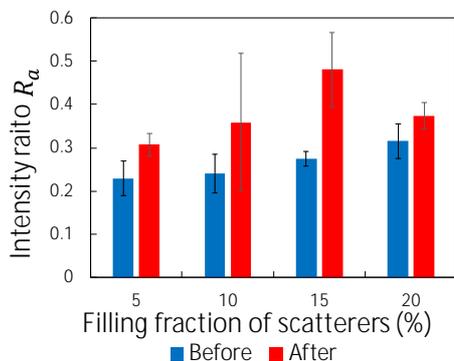


図 6 R_a 値の初期値と最終値の比較

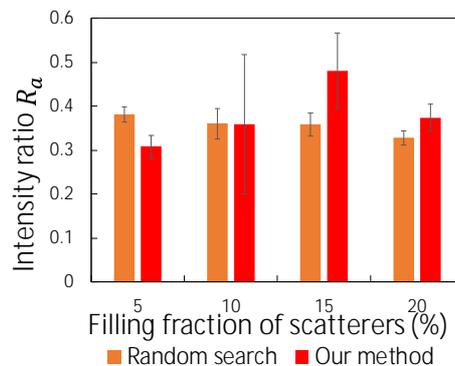


図 7 ランダムサーチ法との比較

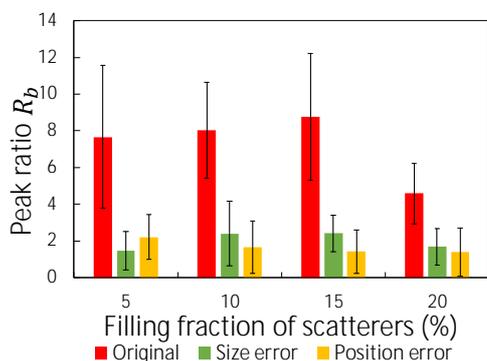


図 8 誤差の R_b 値への影響

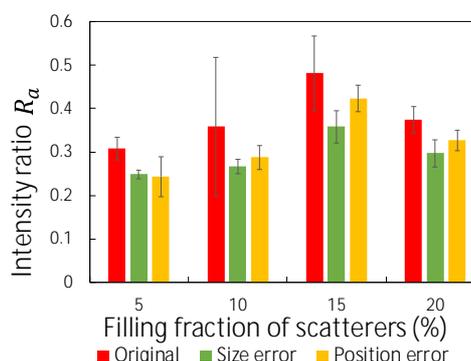


図 9 誤差の R_a 値への影響

(4) 複製可能性の実験的検討

スペckルパターン照射によって得られた媒質の表面形状を、レーザースキャニング顕微鏡で観察した結果の一例を図 10 に示す。表面に凹凸が形成されていることが分かる。作製条件の違いにより、20 ~ 50 μm 程度の rms 粗さをもつ粗面が得られた。粒子サイズ 100 μm のスペckル照射で得られたランダム媒質からの発光スペクトルの一例を図 11 に示す。波長幅 4 nm 程度のランダムレーザー発光を観測した。

次に、複製可能性について調べた。照射したスペckルパターン(スペckルサイズ 247 μm) および形成された試料の表面凹凸を図 12 に示す。相関のある凹凸パターンは得られたが、上で述べたようにこの程度の精度では同じ発光特性を生じさせることは不可能である。ランダムレーザーの複製を実現するためには、二光子吸収による 3D プリンティング、高精度なインプリント技法、あるいは半導体素子製造レベルのフォトリソグラフィなどを用いる必要がある。

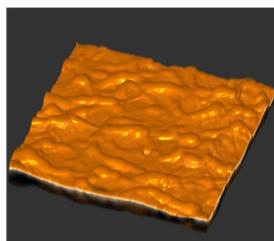


図 10 試料の表面凹凸

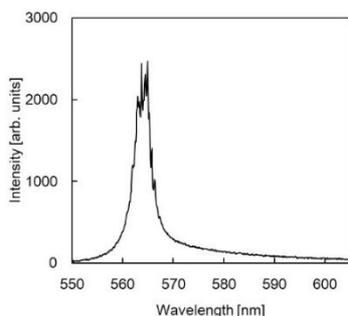


図 11 発光スペクトル

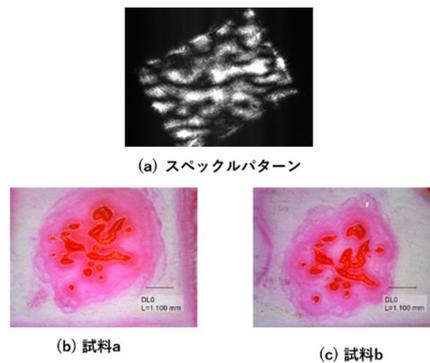


図 12 スペckルパターンおよび試料表面構造

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Takashi Okamoto and Keigo Imamura	4. 巻 13
2. 論文標題 Designing random structures for random laser media	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Technical Digest of OIE '19	6. 最初と最後の頁 87-88
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takashi Okamoto and Masaki Mori	4. 巻 9
2. 論文標題 Random laser action in dye-doped polymer media with inhomogeneously distributed particles and gain	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 3499
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app9173499	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Takashi Okamoto, Masaki Mori and Tatsuma Haruno	4. 巻 12
2. 論文標題 Effects of inhomogeneity in distribution of scatterers on random laser emission	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Proceedings of CLEO Pacific Rim 2017	6. 最初と最後の頁 S2349
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takashi Okamoto and Ryosuke Yoshitome	4. 巻 34
2. 論文標題 Random lasing in dye-doped polymer random media with a bubble structure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the Optcal Society of America B	6. 最初と最後の頁 1497-1502
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/JOSAB.34.001497	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 吉田生, 岡本卓
2. 発表標題 泡構造ランダムレーザー媒質の発光強度および散乱自由行程のシミュレーション解析
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今村佳吾, 岡本卓
2. 発表標題 ランダム格子状2次元増幅媒質の構造設計による発光制御の可能性
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田生, 岡本卓
2. 発表標題 モンテカルロ・シミュレーションによる泡構造ランダムレーザー媒質の発光強度および光路長分布の解析
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今村佳吾, 岡本卓
2. 発表標題 格子状2次元ランダムレーザー媒質の構造設計および誤差の影響評価
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田生, 岡本卓
2. 発表標題 モンテカルロ・シミュレーションによる泡構造ランダムレーザー媒質の発光強度および光路長分布の解析
3. 学会等名 高密度励起ナノ・マイクロ光材料研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今村佳吾, 岡本卓
2. 発表標題 格子状2次元ランダムレーザー媒質の構造設計および誤差の影響評価
3. 学会等名 高密度励起ナノ・マイクロ光材料研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Okamoto and Keigo Imamura
2. 発表標題 Designing random structures for random laser media
3. 学会等名 The Thirteenth Japan-Finland Joint Symposium on Optics in Engineering (OIE '19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 横井直倫, 岡本卓, 相津佳永
2. 発表標題 ランダムレーザー媒質作製のための微粒子制御: 数値シミュレーションによる特性評価
3. 学会等名 第61回光波センシング技術研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 横井直倫, 岡本卓, 相津佳永
2. 発表標題 ランダムレーザー媒質作製に向けた光学的な微粒子制御に関する基礎的検討
3. 学会等名 日本機械学会第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 今村佳吾, 岡本卓
2. 発表標題 時間領域差分法によるランダム格子状2次元増幅媒質の発光特性の解析
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takashi Okamoto, Masaki Mori and Tatsuma Haruno
2. 発表標題 Effects of inhomogeneity in distribution of scatterers on random laser emission
3. 学会等名 CLEO Pacific Rim 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 上原康暉, 春野達磨, 高林正典, 岡本卓
2. 発表標題 光増幅モンテカルロ・シミュレーションによる泡構造ランダムレーザーの特性解析
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 上原康暉, 高林正典, 岡本卓
2. 発表標題 非共鳴型泡構造ランダムレーザーの発光シミュレーション
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鄭志超, 高林正典, 岡本卓
2. 発表標題 レーザーベックル照射による薄膜ランダムレーザー媒質の作製
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 草場一輝, 高林正典, 岡本卓
2. 発表標題 樹脂空隙を用いた泡構造ランダムレーザーの発振特性
3. 学会等名 Optics and Photonics Japan 2017
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	高林 正典 (Takabayashi Masanori) (70636000)	九州工業大学・情報工学研究院・准教授 (17104)	