

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 3 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560048

研究課題名(和文)光子の超拡散を用いたランダムレーザーの研究

研究課題名(英文)Study on Random Lasers Utilizing Super Diffusion of Light

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) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：ランダムレーザー光源の実用化を目指し、光子が媒質内で超拡散する構造を用いたランダムレーザーの特性解析を行った。複数のすきま粒子を導入することで、超拡散構造に近い媒質を実際に作製できることを示した。また、電磁界シミュレーションにより、媒質内部の光強度分布および発光スペクトルを明らかにした。さらに、超拡散構造を用いると特定のスペクトルピーク強度が上昇し、発振効率の向上が期待できることが実験的に示された。

研究成果の概要(英文)：Random lasers have not been in practical use because of their low emission efficiencies. To improve the lasing efficiency, we have introduced a medium structure in which super-diffusive transport of light occurs. It is shown that introduction of spacer particles in appropriate conditions results in quasi-super-diffusive (QSD) random media. An electromagnetic simulation reveals the features of the intensity distribution inside the laser media and the spectrum of emitted light in QSD media. An increase of spectral peak intensity is observed experimentally for QSD media, indicating the possibility of improving the lasing efficiency by changing the light transport properties of random laser media.

研究分野：光物理学

キーワード：ランダムレーザー 光散乱 超拡散 ランダム媒質 モンテカルロ法 時間領域差分法 光硬化性樹脂

1. 研究開始当初の背景

15年ほど前、レーザー色素を溶かした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う現象が発見された。ランダムレーザーとも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ということで注目された。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、複雑な干渉効果による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) 発振効率が悪い、2) 連続光の発振が困難など、従来のレーザーには遠く及ばないのが現状である。

2. 研究の目的

研究代表者は不規則フラクタル構造をもつランダム媒質の研究を行ってきた。研究成果のなかで特徴的な点として、自己相似構造を持つフラクタル構造では、一様ランダム構造に比べて、1) 構造内のいくつかの位置に光がより集中的に存在する、2) 媒質全体の性能指数(Q値)が高い、という結果が得られている。この原因は、フラクタル構造により光子が通常の拡散とは異なる状態で移動していることが考えられる。もしそうであれば、通常の光の拡散とは異なる超拡散状態を光増幅媒質内に作り出すことができれば、従来のランダムレーザーの性能を飛躍的に向上させることができるのでは、と予想した。すなわち、本研究の目標は、低エネルギーのパルス光、あるいは連続光で励起して発振可能なランダムレーザーを実現することである。

3. 研究の方法

(1)モンテカルロ・シミュレーションによる光子超拡散構造の解析

微粒子を媒質中に均一に分散させた粉体ランダム媒質中では、光は通常の拡散をする。しかし、微粒子の分散状態を変化させることで、光子に超拡散を起こさせることができる。このような光の超拡散媒質を粉体ランダム媒質で実現することを目指す。そのため、計算機による光子のモンテカルロ・シミュレーションを行う。考慮すべきパラメータとしてもっとも重要なものは、微粒子間の距離分布である。この距離分布を通常の光拡散媒質と異なるものにするため、粒径の異なる複数の空隙用粒子を配置し、それ以外の領域に、より微小な光散乱用微粒子を一様分布させる。こうして得られた微粒子の不均一分散系における光子の拡散状態を解析する。

このシミュレーションにより、空隙用粒子の体積充填率や粒径分布を変えたときの光子の拡散状態の変化を明らかにする。これにより、媒質構造と光の拡散状態との対応関係

を明らかにする。

(2)時間領域差分(FDTD)法による光子超拡散構造の光増幅・発振シミュレーション

モンテカルロ・シミュレーションでは光子の散乱過程は得られるが、コヒーレント光の干渉による共振現象をシミュレーションすることが難しい。そこで、FDTD法を利用し、散乱光同士の干渉を含めたより一般的な状況のシミュレーションを行う。また、光の増幅を考慮するため、レート方程式を組み合わせる。計算機の能力に合わせ、媒質は2次元媒質を用いる。(1)で述べた、微粒子を不均一分散させた媒質の2次元版を設計し、その内部および外部電磁界分布を計算する。これにより、光の増幅状態や発振状態を解析する。このシミュレーションにより、超拡散構造をもつランダムレーザーとしての基本性能を明らかにする。

(3)光硬化性樹脂を用いた微粒子不均一分散ランダムレーザーの作製および発光実験

光硬化性樹脂にレーザー色素をドープした溶液に、酸化チタン微粒子・空隙用粒子(ガラス微小球および樹脂粉碎微粒子)を混合し、青色可視光で硬化することで、(1)で解析した微粒子の不均一分散媒質を作製する。これをNd:YAGパルスレーザーで励起し、ランダムレーザー発振させる。放出された光を光ファイバー経由でマルチチャネル分光器に送り、発光スペクトルを測定する。媒質を構成する粒子の各種パラメータ値を変化させ、発光スペクトルに及ぼす影響を調べる。また、レーザーの特性として重要な発振しきい値やスロープ効率を求め、通常の拡散とは異なる状態がランダムレーザー発振にどのような影響を与えるのかを議論する。

4. 研究成果

(1)モンテカルロ・シミュレーションによる光子超拡散構造の解析

本シミュレーションでは、最初に計算機内に不規則媒質構造を作成する。一辺50 μm の立方体空間中に空隙粒子を大きい粒径のものからひとつずつランダムな位置に配置していき、その後光散乱用の微粒子をランダムに配置する。これを単位セルとし、同じものを隣接させて無限個数並べることにより、実質的に大きさ無限の媒質をシミュレーションすることを可能とする。空隙粒子による光散乱を防ぐため、屈折率は周囲媒質のそれと同じ1.5とした。散乱微粒子の屈折率は2.7、直径は0.3 μm 、体積充填率は3%に固定した。

単位セルの中心に波長532nmの光源を置き、そこからランダムな方向に光子を放出させる。光子は微粒子によって散乱を受けなが

らランダムウォークする。そして、散乱自由行程、すなわちある微粒子で散乱を受けてから別の微粒子で散乱を受けるまでの飛行距離を逐次記録した。1 媒質につき、光子は 50000 回散乱させた。

微粒子分布断面の一例を図 1 に示す。白丸の部分为空隙粒子であり、散乱微粒子が存在しない領域である。このように微粒子を不均一に分散させた場合、光子は通常拡散とは異なる振る舞いを示す。

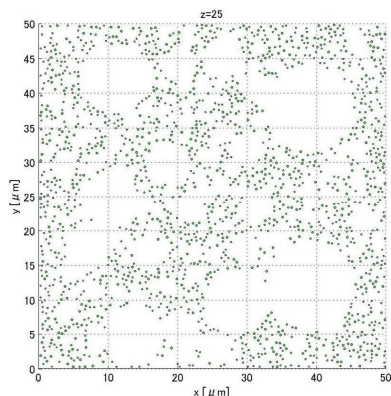


図 1 ランダム媒質の断面図 (空隙粒子: 直径 2 ~ 20 μm 、体積充填率 30%)

均一ランダムに散乱体が分散している場合、散乱自由行程の頻度分布は負指数分布となる。それに対し、超拡散では散乱自由行程はべき乗則に従う分布となる。空隙粒子の粒径・粒径分布・体積充填率をさまざまに変化させ、べき乗分布にできるだけ近い媒質を探索した。今回調査した媒質の中で、一番それに近かった媒質は、空隙粒径 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16, 18, 20 μm を同体積含み、全体で 30%の充填率となる媒質であった。このとき得られた散乱自由行程の頻度分布を図 2 に示す。

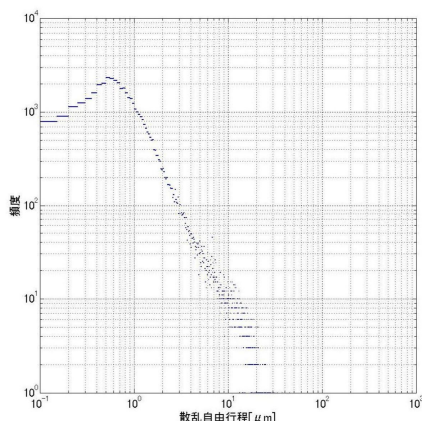


図 2 散乱自由行程ヒストグラム

両対数グラフでプロットしたとき、1 ~ 20 μm の範囲で直線的な分布をしていることが

ら、通常拡散とは異なる拡散状態であることが分かる。直線部分の傾きは -2.1 であるため、超拡散状態の条件 (-3 より大きく -2 以下) を満たしていることから、超拡散に近い媒質を計算機内に実現できた。ただし、べき乗分布の範囲が一桁に留まっているため、超拡散媒質とまでは言えない。これは、計算時間の関係上単位セルの大きさを小さくせざるを得なかったためであり、より大きな空隙粒子を入れることができれば、べき乗分布範囲の拡張は可能である。

理想的な超拡散媒質は、無限小から無限大の連続した大きさを持つ空隙粒子を高い充填率で含有させることで得られると予想される。本研究により、実現可能な有限の粒子数・粒径数で超拡散媒質を近似的に実現できることが示された。

(2) 時間領域差分 (FDTD) 法による光子超拡散構造の光増幅・発振シミュレーション

光増幅を表現するレート方程式を FDTD 法に組み込み、光増幅ランダム媒質のシミュレーションを行う。媒質の構造例を図 3 に示す。大きさ $5.5 \mu\text{m} \times 5.5 \mu\text{m}$ 、屈折率 1.5 の光増幅媒質中に粒径 $0.16 \mu\text{m}$ 、屈折率 2.7 の散乱微粒子を面積充填率 15% でランダムに配置する。微粒子を不均一に分散させるため、単分散の空隙粒子 (粒径 0.2, 0.4, 0.8, 1.6, 3.2 μm) および多分散の空隙粒子 (粒径 0.4, 0.8, 1.6 μm ; 0.6, 1.2, 2.4 μm ; 0.8, 1.6, 3.2 μm) をそれぞれ面積充填率 15% で混合した。空隙粒子の屈折率は 1.5、光増幅特性は周囲媒質と同じである。増幅媒質はローダミン 6G 色素溶液をモデル化しており、利得中心波長は 580 nm である。媒質の中心に波長 532 nm の連続光を放射する点光源を置き、媒質を励起した。計算には、媒質面内に電界成分をもち、面に垂直な磁界成分をもつ TE 波を用いた。

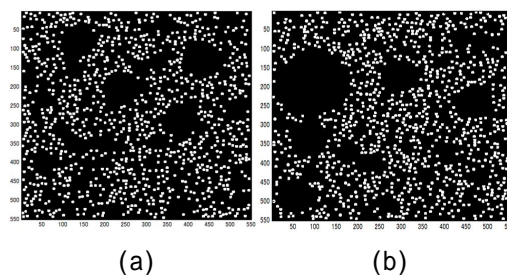


図 3 ランダム媒質の構造図 (a) 空隙粒子径 0.4 ~ 1.6 μm (b) 空隙粒子径 0.8 ~ 3.2 μm

媒質の外部に 16 個の観測点を設け、出射光のスペクトル分布を観測した。16 個のスペクトルを重ね合わせたものの一例を図 4 に示す。発光スペクトルにいくつかのスパイクが見られることから、このランダムレーザーは共鳴型発振をしていることが分かる。

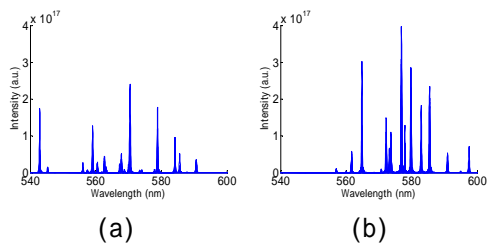


図4 発光スペクトル (a) 空隙粒子径 0.4 ~ 1.6 μm (b) 空隙粒子径 0.8 ~ 3.2 μm

各媒質のスペクトルから平均光強度および最大ピークの光強度平均を求めた。結果を図5に示す。

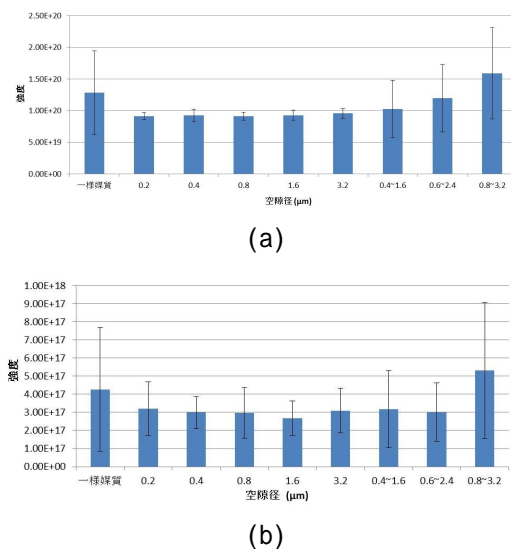


図5 一様および空隙媒質の(a)平均光強度と(b)最大光強度(エラーバー: 標準偏差)

比較のため、空隙粒子を含まない一様媒質の結果も示している。これを見ると、単分散空隙媒質はどの粒径でも一様媒質に比べて低強度を示すが、異なる粒径を含む多分散空隙媒質では、その組み合わせによっては一様媒質よりも強く発光することが分かる。

この原因を探るため、媒質内部の電磁界強度分布、および最大ピークをもつ共振波長の内部電磁界振幅分布を解析した。その結果、内部の電磁界強度の平均値、および共振波長の振幅分布はどの媒質もほぼ同じであることが分かった。にもかかわらず、図5に示すような放出光強度の違いが見られた原因は、媒質外部との結合効率の違いであると思われる。実際、単分散空隙媒質では電磁界強度が中心部に集中し、周辺付近の強度が弱くなっている。これに対し、多分散空隙媒質では媒質全体に光が行き渡っており、外部へ放出しやすい状態になっている。このことから、多分散の空隙粒子は光を外部へ誘導する役割を担っている可能性がある。今回用いた多分散空隙媒質は厳密には超拡散媒質ではないが、超拡散媒質は光を短時間でより広く拡散させる効果があることも関係があると思われる。個々の媒質による違いが非常に大

きくなるという超拡散構造の特徴も備えている(図5の標準偏差を示すバーを参照)。ただし、一様媒質でも標準偏差が大きいのが、この原因は不明である。

(3) 光硬化性樹脂を用いた微粒子不均一分散ランダムレーザーの作製および発光実験

本実験では、利得媒質として光硬化性樹脂(K40、アーデル)にローダミン 6G 色素を $6.7 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ 溶かしたものをを用いる。この溶液に、散乱微粒子として粒径 0.18 μm の球状ルチル型酸化チタン粒子(屈折率 約 2.7) を体積充填率 10% で分散させる。散乱微粒子を不均一分散させるために、空隙粒子としてソーダ石灰・シリケートガラス球粒子(粒径 30, 40, 60, 100 μm) を混合し、一様に分散させる。作製した懸濁液をスライドガラスに滴下し、カバーガラスで抑えることで、厚さ 0.2 mm の膜状に整形する。これに波長 405 nm のレーザー光を 8 分間照射して硬化させる。発光実験には、励起光として Nd:YAG レーザー(波長 532 nm、パルス幅 10 ns、最大パルスエネルギー 14 μJ、パルス間隔 0.5 s) を用い、シリンドリカルレンズを通した線状パターンで試料を照射した。

ガラス粒子の屈折率は 1.52 であり、樹脂の屈折率(1.505)とは異なっているため、弱いながらも光を散乱させる。そこで、ガラス粒子自身がレーザー発振に寄与しないかどうかを確認した。酸化チタン粒子を入れない媒質で発光実験をしたところ、レーザー発振はせず、色素ドープ樹脂の場合と同様に蛍光発光による広がったスペクトル分布を示した。したがって、ガラス粒子のみではレーザー発振は生じない。

発光スペクトルの一例を図6に示す。一様媒質、空隙媒質ともにスパイク状のスペクトルピークが見られることから、共鳴型ランダムレーザー発振が起こっていることが分かる。

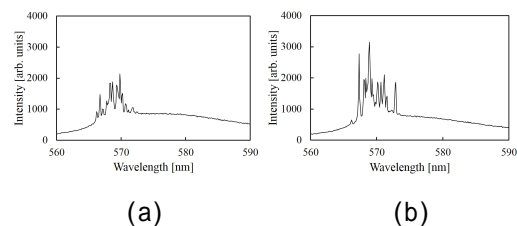
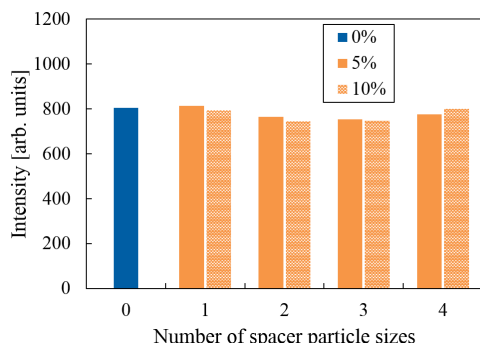


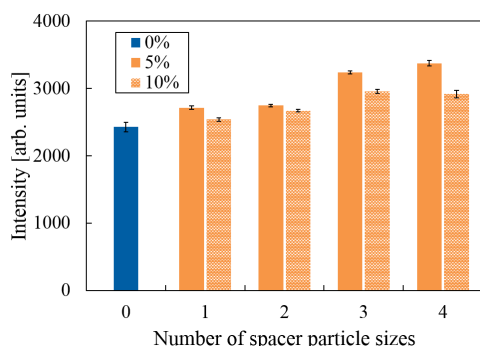
図6 発光スペクトル (a) 一様媒質 (b) 空隙媒質(空隙粒子: 直径 30, 40, 60, 100 μm、体積充填率 5%)

含まれているガラス粒子サイズの数が発光特性にどのような影響を及ぼすかを調べた。ガラス粒子の体積充填率(空隙率)を 0% (一様媒質) 5%、10%とした場合の、波長 560 ~ 590 nm 範囲の平均光強度およびピーク波長の最大光強度の平均値を図7に示す。これを見ると、平均光強度にはほとんど違いが見ら

れないが、最大光強度は空隙サイズの種類が増えるほど大きくなるのが分かる。図5に示した FDTD シミュレーションとは次元やスケールが異なっているが、最大光強度が示す傾向は定性的にはあるが一致した。また、空隙率 5%の場合に最大光強度が最も高くなった。



(a)



(b)

図7 空隙サイズ数による(a)平均光強度と(b)最大光強度の違い(エラーバー：標準誤差)

空隙粒子の多分散性が光強度を高めることを確認するため、空隙として光硬化した樹脂 GLX を粉砕したもの(粒径 53 ~ 300 μm 、形状不規則)を用いて実験した。その結果、ガラスの4粒径を含む媒質よりも8%ほど最大光強度が高くなった。粒径範囲を狭めると強度が低くなったことから、空隙の多分散性が特定波長の光強度を強める効果があることが分かった。

ガラス粒子を加えた場合、ガラス粒子によって酸化チタン粒子が押しつけられるため、色素の存在する光増幅領域中の酸化チタン粒子の体積充填率は増加することになる。このことが最大光強度を増加させる要因になっている可能性がある。そこで、光増幅領域中の酸化チタン粒子の充填率を同じにして比較を行った。結果を図8に示す。

図8より、一様媒質と空隙媒質の差は小さくなっているが、依然として空隙媒質の方が高い値を示すことが分かる。ガラス粒子内で光は増幅しないため、空隙媒質は一様媒質よりも光増幅領域が小さくなっている。それにもかかわらず、スペクトルピークの強度が高

くなるということは、空隙粒子が光の共振状態や外部との結合効率を変化させている可能性がある。

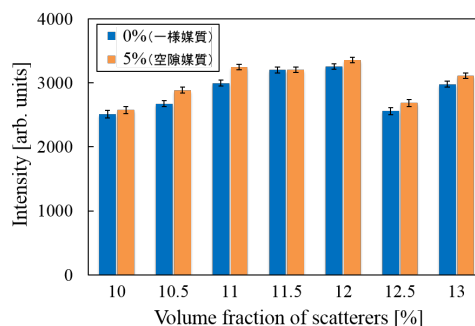


図8 散乱微粒子の充填率による最大光強度の違い(エラーバー：標準誤差)

さらにレーザーとしての特性を調べるため、レーザー発振しきい値とスロープ効率を測定した。結果をそれぞれ図9、10に示す。

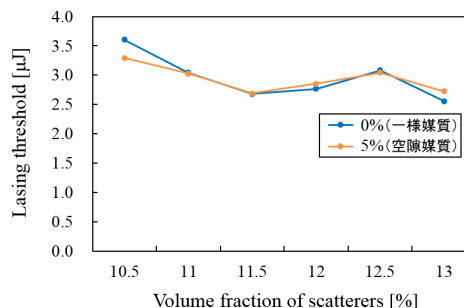


図9 レーザー発振しきい値

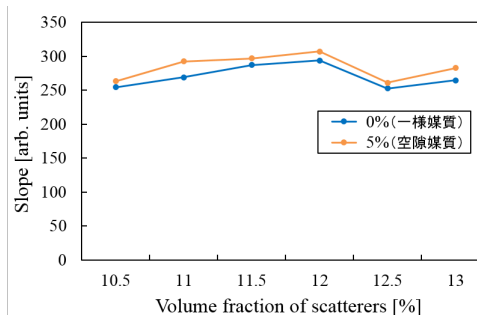


図10 スロープ効率

図9より、発振しきい値は散乱微粒子の増加に伴い充填率 11.5%あたりまでは減少し、その後一定値となる傾向が見られる。一方、図10に示すスロープ効率は充填率12%で最大となり、その前後の値では小さくなる。この両者の傾向から、結果として最大光強度は11.5~12%で最大となる(図8参照)。また、一様媒質と空隙媒質では発振しきい値はほぼ同じであるが、スロープ効率は空隙媒質の方が高いことが分かる。

本研究により、空隙粒子の多分散性が特定の発振波長の光強度を高める効果があることが、実験および FDTD シミュレーションから明らかとなった。また、光子のモンテカルロ・シミュレーションにより、このような多分散性の空隙粒子を含ませると、光子が媒質内で超拡散に近い状態で拡散することが分かった。したがって、ランダムレーザーに超拡散構造を導入することで、多数の発振モードの中から特定のモードのエネルギーを選択的に高めることが可能であると推察される。この原因を解明するためには、発生した光の拡散状態や干渉状態、さらには励起光の拡散状態も明らかにする必要がある。実験およびシミュレーションにより媒質内部の状態を調べることが今後の課題である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計5件)

T. Okamoto, S. Matsushita and M. Takabayashi, "Laser emission from random gain media with bubble structures," Proceedings of the Tenth International Conference on Laser-light and Interactions with Particles (LIP2014), F. Onofri and B. Stout, eds., 査読有, NR-1 (2014).
<http://www.lip2014.eu/>

岡本 卓, 「ランダムレーザーの基礎および最近の進展」光学, 査読有, Vol. 43, No. 5, 211-216 (2014).

http://osj-jsap.jp/publication/kogaku_43_5.html

T. Okamoto, R. Yoshitome and S. Matsushita, "Random laser emission from gain media with inhomogeneously distributed scatterers," Technical Digest of the Tenth Japan-Finland Joint Symposium on Optics in Engineering (OIE '13), D. Barada and Y. Hayasaki, eds., 査読有, 2B-1 (2013).

<http://www.opt.utsunomiya-u.ac.jp/oie13/oie/Home.html>

T. Okamoto and R. Yoshitome, "Emission properties of random laser media with a bubble structure," Conference Digest of CLEO/Europe - IQEC 2013 (IEEE Catalog Number: CFP13ECL-ART, ISBN: 978-1-4799-0594-2), 査読有, JSIII-1.1 (2013).

<http://www.eps.org/event/id/274236/CLEOEurope-IQEC-2013-Conference-on-Lasers-and-Electro-Optics-Int-Quant.htm>

[学会発表](計7件)

松下蕉平, 高林正典, 岡本 卓, 「ランダムレーザーにおける散乱体の不均一分布と発振効率の関係」Optics and Photonics Japan 2014, 2014年11月5

日-7日, 東京, 筑波大学東京キャンパス文京校舎

春野達磨, 高林正典, 岡本 卓, 「泡構造ランダム媒質中の空隙が媒質内光散乱に及ぼす影響: シミュレーション解析」Optics and Photonics Japan 2014, 2014年11月5日-7日, 東京, 筑波大学東京キャンパス文京校舎

松下蕉平, 高林正典, 岡本 卓, 「ポリマー利得媒質の硬化状態と散乱体分布がランダムレーザー発振に与える影響」第75回応用物理学会学術講演会, 2014年9月17日-20日, 札幌市, 北海道大学

松下蕉平, 高林正典, 岡本 卓, 「泡構造ランダムレーザーの発光特性: 空隙サイズの影響」Optics and Photonics Japan 2013, 2013年11月12日-14日, 奈良, 奈良県新公会堂

古川隆章, 高林正典, 岡本 卓, 「光増幅ランダム媒質中の散乱体分布がランダムレーザー発振に与える影響」Optics and Photonics Japan 2013, 2013年11月12日-14日, 奈良, 奈良県新公会堂

吉留亮介, 岡本 卓, 「泡構造ランダムレーザー媒質の発光特性」Optics and Photonics Japan 2012, 2012年10月23日-25日, 東京, タワーホール船堀

吉留亮介, 岡本 卓, 「泡構造増幅ランダム媒質のレーザー発振特性」第73回応用物理学会学術講演会, 2012年9月11日-14日, 松山市, 愛媛大学

[その他]

ホームページ等

<http://www.ces.kyutech.ac.jp/okamoto/>

6. 研究組織

(1) 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

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: