

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月5日現在

機関番号：32675

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17506

研究課題名(和文) ランダム光共振器と半導体励起子の強結合による新奇物理現象の発現

研究課題名(英文) Toward strong coupling of excitons in semiconductor microparticles with random cavities

研究代表者

中村 俊博 (NAKAMURA, Toshihiro)

法政大学・理工学部・准教授

研究者番号：90451715

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、半導体微粒子で構成されるランダム共振器と半導体中の励起子を結合させ、励起子状態を制御することで、従来のランダム構造系では不可能な新奇物理現象の発現の可能性を探った。研究成果として、酸化亜鉛マイクロ粒子の粒子サイズや結晶性、凝集状態などをパラメータとしてレーザー発振特性の評価を行った。その結果、マイクロ粒子の発振ピーク数はこれらのパラメータに大きく依存することを見いだした。しかし、レーザー発振しきい値が高い場合には励起子は存在できず、電子-正孔プラズマ状態で発振するため、励起子との結合状態の実現は難しいことも判明し、さらなるマイクロ構造の最適化が必要となることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ランダムレーザーでは、形成する共振器のQ値は低く、散乱損失が大きいため、レーザー発振しきい値は高い。本研究は酸化亜鉛のマイクロ粒子を用いランダム構造のサイズを制御することで誘起される共振器モード数を制限し、レーザー発振しきい値の低減とともに、共鳴エネルギーを狭帯域化させるという発想で、共振器-励起子を強結合させ、ランダム共振器-励起子ポラリトンレーザーという全く新しいタイプのレーザー光源を目指す点で学術的に意義深い。

研究成果の概要(英文)：This research project explored the possibility in the strong coupling of excitons in semiconductor particles with random cavities. For this purpose, we investigated a high quality random laser system, i.e., the random laser consisting of ZnO microparticles with the exhibition of a small number of lasing peaks with their stable lasing intensities accompanying extremely low spontaneous-emission background. We found that this better lasing characteristics is due to intra-particle confinement of random lasing modes inside a single ZnO microparticle. We also found that such a unique random lasing characteristics strongly depend on the size of the particles. However, to couple the excitons in microparticles with the random cavity modes, the present random laser needs to have lower lasing thresholds. We concluded that the size and crystalline quality of the ZnO particles should be optimized further.

研究分野：半導体光物性、レーザー物性、ナノ・マイクロ構造物性

キーワード：ランダムレーザー 酸化亜鉛

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

酸化亜鉛は優良なレーザー媒質であり、安価・安全であることから紫外レーザーデバイスへの応用が期待されている。さらに、高い屈折率と結晶成長の容易さから、酸化亜鉛の μm オーダーの構造は、レーザー媒質及び共振器を兼ねたマイクロレーザーとして機能し、注目されている。

酸化亜鉛マイクロレーザーの代表的な構造に、ナノワイヤーや、球形粒子などが挙げられる。前者はワイヤー端面での全反射によるファブリー・ペロー共振器によるレーザーであり、後者は、粒子内での全反射によって生じる Whispering Gallery Mode と呼ばれる共振器モードを利用したレーザーである。これらのマイクロレーザーでは、構造のサイズによりレーザー発振モードの制御を行うことができ、形状の精密化によりレーザー発振しきい値の低減も可能である。しかし、これらのナノワイヤーや球形粒子などの酸化亜鉛マイクロレーザーは、レーザー発振特性が構造の均一性に大きく影響されるため、構造の精密制御が必須であり、製造面でのコストが高い。

一方、簡易に作製可能なレーザー源として、不均一形状を持つ酸化亜鉛ナノ粒子の集合体などのランダム構造により構成されるランダムレーザーがある。このランダムレーザーは、精密な構造制御を必要としないため、上記のマイクロレーザーをはじめとした通常のレーザー光源の対極に位置するレーザーである。ランダムレーザーでは、不均一散乱にともなうフィードバック機構により光増幅を得るため、酸化亜鉛の高い屈折率と光利得はランダムレーザーに非常に有利であり、多くの報告例が存在する。しかし、ランダムレーザーでは、簡易な構成のトレードオフとして、不均一な多重光散乱によってランダムに共振器を形成するため、発振モード数の制御は困難であり、散乱損失が大きいことによる高発振しきい値は高いという本質的な問題点を抱えている。

以上のように、優良なレーザー媒質である酸化亜鉛を利用したマイクロレーザーを開発し、実用的なレーザー光源への応用を検討する上で、「()レーザー発振特性の制御性、()簡易に作製可能な不均一構造、2つの相容れない特徴を持つマイクロレーザーは可能であるか？」という問いが浮かび上がる。

2. 研究の目的

本研究では、「1. 研究開始当初の背景」で述べた問いに答えるために、簡易に作製可能なランダムレーザーの特徴を備えつつ、ナノワイヤーや球形微粒子など同様のモード制御性、低しきい値を兼ね備えた、ランダム構造マイクロレーザーの実現を目指す。さらにこのマイクロレーザーからの新奇レーザー発振現象の発現も目的とする。具体的な目標は下記の通りである。

- (1) 不均一形状を有する酸化亜鉛マイクロ粒子からの低しきい値・少数モードランダムレーザーの実現
- (2) 酸化亜鉛ナノ粒子で構成されるマイクロサイズ凝集体ランダム構造からの共鳴制御ランダムレーザーの実現
- (3) 酸化亜鉛ランダム構造からの励起子-共振器モード結合ポラリトンランダムレーザー発振の実現可能性の検討

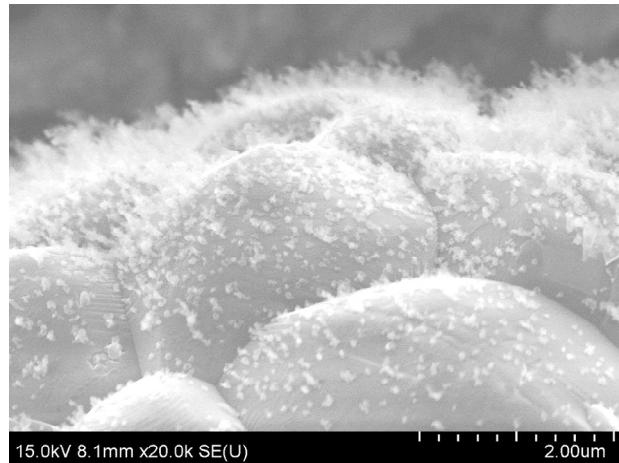
3. 研究の方法

- (1) ランダムレーザーでは、通常、微粒子間のランダムな光散乱によって自然に形成する多数の閉ループによって共振器を構成し、レーザー発振を生じる。そのため、共振器モードの共鳴波長は広い波長範囲に渡り、発光材料の光利得のある波長域内に多数のレーザー発振モード(ピーク)を示し、発振波長位置は制御できない。そこで、本研究では、マイクロ粒子や、マイクロ凝集体の内部でのランダムな光散乱を利用することで、レーザー発振に必要なフィードバック機構を得て、ランダムに形成する共振器(ランダム共振器)のサイズや共鳴波長を制御し、レーザー発振モードの少数化、発振波長の制御を行う。
- (2) ランダムレーザーでは、微粒子間のランダムな光散乱が、通常のレーザーにおける反射鏡として機能するので、形成するランダム共振器のQ値は低く、散乱損失が大きい。そのため、レーザー発振しきい値は高い。さらに、励起範囲に対して共振器として働く領域が少ないため、発光の大部分が散乱光として放出されることから、レーザー発振時の自然放光の背景光雑音が多い。本研究では、ランダムレーザーのサイズを制限し、励起光損失を減少させることで、レーザー発振しきい値の減少、雑音となる背景光の低減をはかる。
- (3) 半導体中の励起子と共振器との強結合にもとづく励起子-共振器ポラリトンレーザーに関する研究では、通常、ファブリー・ペロー型の共振器が用いられる。これに対し、本研究はランダムな多重散乱により自然に形成するランダム共振器を用いるという独自の特徴を持つ。ランダム共振器は多数のモードを有しており、通常の共振器とは異なり、共鳴エネルギー帯はほぼ可視光全域の広い範囲にわたるため、励起子との結合は難しい。そこで、本研究では、ランダム構造のサイズを制御することで誘起される共振器モード数を制限し、共振器-励起子を強結合させ、ランダム共振器-励起子ポラリトンレーザーが可能かの検討を行う。

4. 研究成果

本研究では、酸化亜鉛中に励起される励起子モードとランダムレーザーモードの結合を図るため、適切な構造を選択することで、ランダムレーザーの利点である簡便さを維持したまま、モード特性のある程度の制御が可能となる構造を模索した。本研究では、簡易に作製可能なランダムレーザーの特徴と、モード制御性を兼ね備えた、不均一形状をもつ酸化亜鉛マイクロ粒子ランダムレーザーに着目し、マイクロ粒子のサイズや結晶性などをパラメータとしてレーザー発振特性の評価を行った。その結果、マイクロ粒子のモード制御性は、そのサイズに大きく依存することを見いだした。さらにレーザー発振のしきい値は、サイズだけでなく結晶性にも影響されることがわかった。レーザー発振しきい値が高い場合には、励起子は存在できずに、電子-正孔プラズマ状態で発振するため、本研究の到達目標である励起子との結合状態の実現は難しく、粒子サイズだけでなく酸化亜鉛の結晶性のコントロールも重要であることが明らかになった。さらに、詳細なレーザー特性を評価した結果、レーザー発振の安定性が、凝集体に含まれる不純物等にも影響されることがわかった。そのため、適切な処理を行うことにより、不純物を含まない試料を作製することが重要であることを見いだした。

また、さらに効率的なランダムレーザー構造を模索し、酸化亜鉛中に励起される励起子モードとランダムレーザーモードの結合を図るため、簡易に作製可能なランダムレーザーの特徴と、モード制御性を兼ね備えた、凝集体構造の酸化亜鉛ランダムレーザーに着目し、特にマイクロ粒子で構成される数十から数百マイクロメートルオーダーの凝集体におけるランダムレーザー特性を評価した。そして、ある程度以上の高強度のレーザー照射を行うことで、図1上部に示すような、凝集体を構成するマイクロ粒子の表面にナノメートルオーダーのナノ構造が形成した。そして、このナノ・マイクロ複合構造において、図1下部のようなスペク



トルとしきい値挙動を示すレーザー発振を生じるという結果が得られた。ナノ構造の組成を詳細に解析した結果、大きな組成変化は見られなかった。以上のことから、ランダム構造において自己組織的に最適なレーザー構造が出現し、構造の最適化が成されることを示唆している。本研究の成果から、ランダム構造と励起子との結合に関する構造作製には自律的な構造制御が利用できることを示唆している。

しかし、上記のいずれの構造においても、レーザー発振しきい値が比較的高く、励起子状態の確認ができずに、共振器との結合評価には至らなかった。今後、本研究で得た知見を元にさらなるマイクロ半導体ランダム構造の最適化を行うことが求められる。

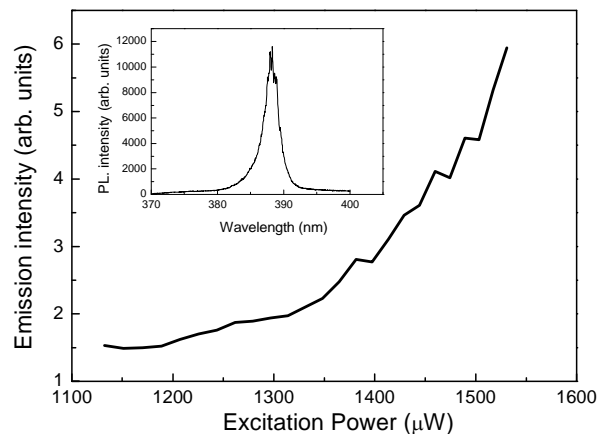


図1：酸化亜鉛ナノ・マイクロ複合構造、励起強度依存性、レーザー発振スペクトル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

R. Niyuki, H. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, K. Sasaki; Double threshold behavior in a resonance-controlled ZnO random laser, *APL Photonics* (査読有) **2**, 036101-1-8 (2017).

DOI:10.1063/1.4974334

〔学会発表〕(計 3件)

中村俊博 酸化物半導体のマイクロ・ナノ構造を用いたランダムレーザーの開発 バルクセラミックスの信頼性に関するワークショップ 2018/11

小松亮介、中村俊博、山本泰生、斎藤紀子 酸化亜鉛凝集体マイクロ粒子からのランダムレーザーの発振 第79回応用物理学会秋期学術講演会 2018/09

中村俊博 半導体マイクロ・ナノ構造ランダムレーザー 次世代マテリアルの設計と先端機能セミナー 2017/8

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。