

整理番号	H27-J-022	報告者氏名	中村 俊博
------	-----------	-------	-------

研究課題名

新奇酸化亜鉛マイクロ構造ランダムレーザーの開発

<代表研究者> 機関名：群馬大学 職名：助教 氏名：中村 俊博

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

酸化亜鉛は優良なレーザー材料であり、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(マイクロ構造)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。しかし、これらのマイクロレーザー構造は、精密なサイズ・形状の制御が必要とし、生産面でのコストは大きい。低コストに作製可能なレーザー源として、不均一形状の酸化亜鉛ナノ粒子の集合体で構成されるランダムレーザーがある。しかし、ランダムレーザーは多重光散乱によって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、散乱損失も大きいため発振しきい値は高い。申請者はこれまで様々な半導体(酸化亜鉛、窒化ガリウム、セレン化亜鉛、ガリウムヒ素)微粒子で構成されるランダムレーザーについての研究を精力的に進めてきた。そして、近年、共鳴制御型酸化亜鉛ランダムレーザーが、励起子レーザー発振を示すなど特異な特性を有することを見出した。この研究を進める中で、単一モード発振などのモード制御が困難と考えられてきたランダムレーザーにおいても、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、モード制御が可能となるのではとの着想を得た。本研究では、簡易に作製可能なランダムレーザーの特徴を備えつつ、ナノワイヤーや球形微粒子などと同様のモード制御性を兼ね備えた、新奇マイクロ構造ランダムレーザーの実現を目指し、その詳細なレーザー発振特性の評価を行った。

酸化亜鉛マイクロ粒子からの低背景光の単一モードレーザー発振の観測に成功した。これは、酸化亜鉛マイクロ粒子内での多重散乱が生じ、粒子内に局在した共振器モードを形成するため、レーザー発振ピーク数の著しい減少が起きたと考えられる。また、背景光の減少は、共振器モードの局在による、モード利得の増大に起因していると考えられる。さらに、詳細な温度依存性を測定した結果、発振ピークのホッピングを観測した。これは、粒子内の共振器モードが、その共鳴周波数の間隔が利得幅よりも広い範囲のエネルギー間隔で分布しており、両者が共鳴している波長領域で発振しているためと考えられる。また、励起強度依存性の詳細な解析の結果、しきい値が最小となる温度で、自然放出光と共振器モードとの結合強度を決定する β 因子が最大となることがわかった。このことから、両者のカップリングが最適となる温度で、しきい値が最小となることが明らかになった。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

【口頭発表】

高橋 龍平、中村 俊博、安達 定雄

"Ga ドープ酸化亜鉛ランダムレーザーの発振特性"

第 63 回応用物理学会春季学術講演会(2016. 3)

【ポスター発表】

R. Niyuki, H. Fujiwara, T. Nakamura, T. Tsuji, and K. Sasaki

"Characteristic analysis of resonance-controlled ZnO random laser"

The 4th International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2015), Sapporo, Japan (1-4 Dec, 2015)

R. Niyuki, H. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, and K. Sasaki

"Double threshold behavior in a resonance-controlled ZnO random laser"

Frontiers in Optics: The 99th OSA Annual Meeting and Exhibit/Laser Science XXXI, San Jose, USA (18-22 Oct, 2015)

【論文】

T. Nakamura, T. Yamamoto, and S. Adachi "Temperature dependence of lasing characteristics of irregular-shaped-microparticle ZnO laser" Optics Express 23, 28905 (2015).

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

1. 研究背景と目的

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（マイクロ構造）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。しかし、これらのマイクロレーザー構造は、精密なサイズ・形状の制御が必要とし、生産面でのコストは大きい。

低コストに作製可能なレーザー源として、不均一形状の酸化亜鉛ナノ粒子の集合体で構成されるランダムレーザーがある。しかし、ランダムレーザーは多重光散乱によって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、散乱損失も大きいため発振しきい値は高い。申請者はこれまで様々な半導体（酸化亜鉛、窒化ガリウム、セレン化亜鉛、ガリウムヒ素）微粒子で構成されるランダムレーザーについての研究を精力的に進めてきた。そして、近年、共鳴制御型酸化亜鉛ランダムレーザーが、励起子レーザー発振を示すなど特異な特性を有することを見出した。この研究を進める中で、単一モード発振などのモード制御が困難と考えられてきたランダムレーザーにおいても、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、モード制御が可能となるのではとの着想を得た。本研究では、簡易に作製可能なランダムレーザーの特徴を備えつつ、ナノワイヤーや球形微粒子などと同様のモード制御性、低しきい値を兼ね備えた、新奇マイクロ構造ランダムレーザーの実現を目指し、その詳細なレーザー発振特性の評価を行う。

2. 研究の方法

本申請課題では、不均一形状の酸化亜鉛マイクロ粒子などのマイクロ構造を研究対象として、そのレーザー発振特性の評価を行う。研究対象のマイクロ構造には、共同研究中のハクスイテック（株）の酸化亜鉛粒子を使用する。これらの酸化亜鉛粒子を用いた研究対象となるマイクロ構造の詳細と評価手法を下記に述べる。

粒径が数 μm 程度の不均一形状の酸化亜鉛マイクロ粒子を基板上に分散させた試料を対象とし、評価を行う。通常のランダムレーザーではナノ粒子間の光散乱によりレーザー発振するが、数 μm 程度の粒子では粒子内での多重散乱が生じ、粒子内に局在した少数の共振器モードを形成することが予想される。そのため、レーザー発振ピーク数の著しい減少と、閉じ込め効果による損失の減少に起因するしきい値の減少が期待される。

具体的な研究手法は、次の通りである。酸化亜鉛マイクロ粒子をメタノール中に分散させ、基板上にスピコート（5000 rpm, 40 s）を行う。基板には、50 μm 程度以上の間隔で分散して、図 1 (a) に示すような単一マイクロ微粒子が堆積される。作製した試料に対して、スポット径 14 μm 程度のパルスレーザー光（355 nm, 300 ps）を照射する。試料からの発光スペクトル及び、レーザー発振スペクトルを測定する。測定には、CCD 分光器付（Princeton Instruments, PIXIS:100B）を用いた。また、測定は、低温用クライオスタット中で行い、温度を 120~300 K の範囲で変化させた。

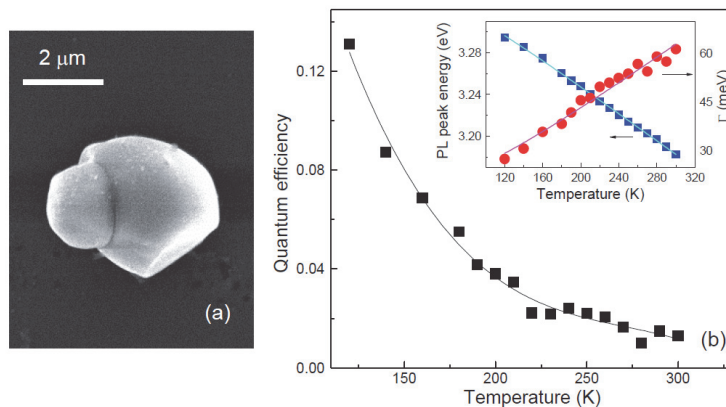


図 1 (a) マイクロ粒子の電子顕微鏡像、(b) 発光量子効率の温度依存性。挿入図は、発光ピークエネルギーと発光バンド幅

3. 実験結果と考察

酸化亜鉛マイクロ粒子のレーザー発振特性を詳細に解析するために、まず粒子の温度依存発光特性を詳細に調べた。図1 (b)にその結果を示す。図より、発光量子効率、温度の増加とともに減少することがわかった。この減少は、温度増加に伴うバンド内及びバンド間遷移の増加による吸収損失の増加によるものと考えられる。また、発光スペクトルのバンド幅は、温度増加に伴い増加し、発光ピークエネルギーは減少することがわかった。これは、温度増加に伴う、温度消光と、バンドギャップエネルギーのシフトを反映していると考えられる。

図2に、各温度での異なる単一酸化亜鉛マイクロ粒子のレーザー発振スペクトルの測定結果を示す。図2 (a)より、レーザー発振ピーク A は、高温領域 (220~270K) でのみ観測され、温度の低下とともに短波長側にシフトした。さらに温度を低下させると、ピーク A が消失し、380 nm 付近に新たなピークが出現している。また、これらピークは特定の温度 (ピーク A の場合、250 K) で最大となっている。図2 (b)での結果も、図2 (a)と同様であり、高温領域 (250~300 K) では、391 nm のピーク、低温領域 (140~220 K) では381 nm (ピーク B) が現れる。

以上のように、各温度でシングルモード化したレーザー発振ピークが観測された。既に述べたように、ランダムレーザーは、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。一方、本研究の単一酸化亜鉛マイクロ粒子では、粒子内での多重散乱が生じ、粒子内に局在した共振器モードを形成するため、レーザー発振ピーク数の著しい減少が起きたと考えられる。

図2に示すような、本研究の酸化亜鉛マイクロ粒子では、自然放出光による背景光がほとんど見られない。通常の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し、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。そして、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出光の背景光雑音が多い。しかし、本研究では、共振器モードが粒子内で局在しているため、モード利得が大きく、低背景光となっていると考えられる。

図2に見られた、レーザー発振ピークの温度変化については、次のように説明できる。温度低下とともに、バンドギャップのブルーシフトし、利得ピークはシフトする。一方、共振器モードの共鳴エネルギーは、屈折率によって決定されるので、温度に対する依存性は非常に小さい。レーザー発振は、共振器モードと利得ピークが共鳴する波長で生じるので、本研究のマイクロ粒子内の共振器モードは、その共鳴周波数の間隔が利得幅よりも広い範囲でのエネルギー間隔で分布していると考えられ、そのために、図2のようなレーザー発振ピークのホッピングが生じたといえる。

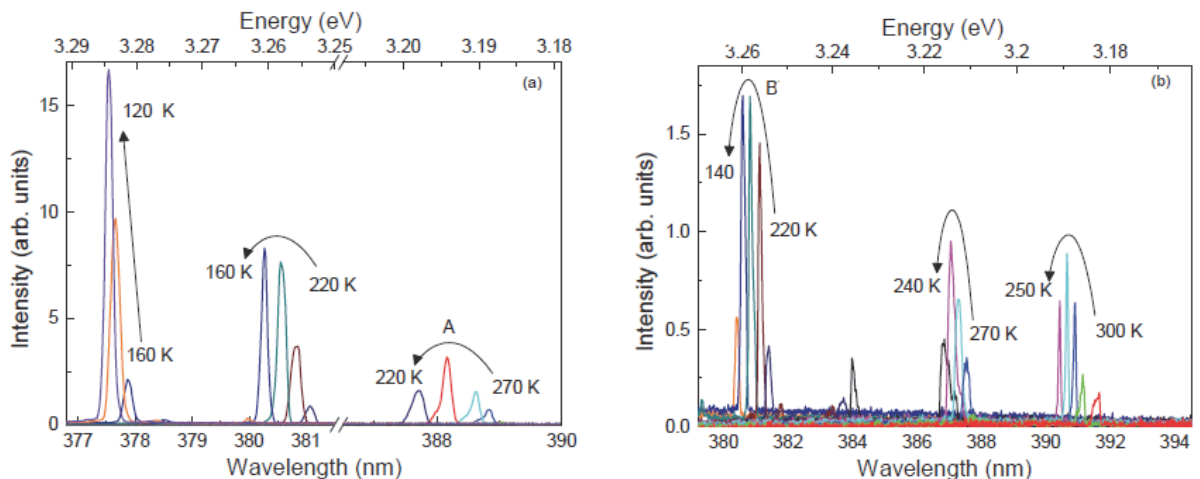


図2 単一酸化亜鉛マイクロ粒子の各温度でのレーザー発振スペクトル。(a)、(b)は異なる粒子での測定結果を示す。励起強度は、 22 MW/cm^2 とした。

続いて、レーザー発振のしきい値特性などを詳細に調べるため、各温度でのレーザー発振ピーク強度の励起強度依存性の詳細な解析を行う。図3にピーク A [図2(a)] の結果を示す。挿入図は、対応するレーザー発振スペクトルである。図から、いずれの温度でもレーザー発振特有のしきい値挙動が観測された。また、そのしきい値励起強度は、温度によって大きく異なっていることがわかる。さらに、特徴的な点として、しきい値挙動の立ち上がりの鋭さも大きく温度に依存しており、例えば、300 K 付近に較べて、240 K 付近では、立ち上がりが鋭いことがわかる。

以上の励起強度依存性から観測されたしきい値挙動の違いについて詳細に解析するために、単一共振器モードでの通常のレーザー理論に基づいたレート方程式解析を行う。レーザー発振のダイナミクスは、次のレート方程式によって表される。

$$\frac{dn_p}{dt} = K[N_u - N_l]n - \gamma_{cav}n_p, \quad (1)$$

$$\frac{dN_u}{dt} = R_p - KN_un_p - \gamma N_u, \quad (2)$$

ここで、 n_p , N_u , N_l はそれぞれ、共振器内の光子数、利得材料の励起準位及び、基底準位のキャリア数を表す。また、 γ_{cav} , γ , R_p は、それぞれ共振器減衰定数、利得媒質の減衰定数、励起率である。パラメータ K は、共振器と利得材料のカップリング定数で、 $K = \beta\gamma_r$ で表され、 β は自然放出光から共振器モードへの結合を表す因子、 β は、自然放出光の減衰定数である。上記レート方程式(1)、(2)を定常状態で解き、図1(b)に表す酸化亜鉛固有のパラメータを用いて、図3の励起強度依存性をフィッティングした。フィッティング結果を、図3(a)の実線で表す。ここで、励起強度のスロープが変わる点をしきい値と定義して、 β 因子とともにフィッティングパラメータとして求めた。図3(b)にフィッティング得られた β 因子、しきい値を温度に対してプロットしたものを表す。図よりしきい値が最小となる温度で、 β 因子が最大となることがわかる。既に述べたように、 β 因子は、共振器モードと利得媒質とのカップリング強度を表すため、図3(b)の結果は、両者のカップリングが最適となる温度で、しきい値が最大となることを示している。

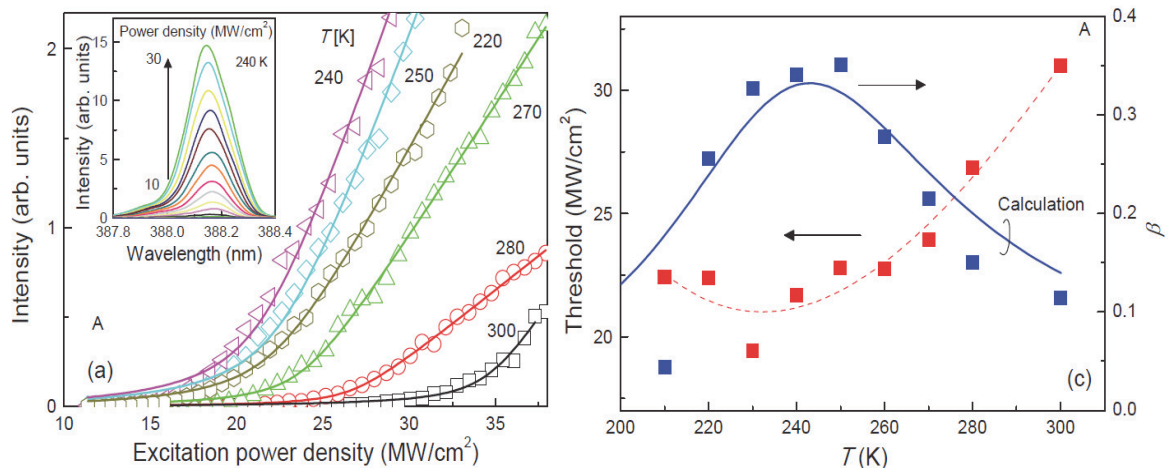


図3 (a) 各温度でのレーザー発振ピーク A の発振強度の励起強度依存性。挿入図は、発振スペクトルの励起強度依存性。(b) 発振しきい値及び、 β 因子の温度依存性。

4. 結論と今後の展開

本研究では、酸化亜鉛マイクロ粒子からの単一モードレーザー発振の観測に成功した。また、詳細な温度依存性を測定した結果、発振ピークのホッピングを観測した。また、励起強度依存性の詳細な解析の結果、しきい値が共振器モードと利得との結合が最適となる温度で、発振しきい値が最小となることがわかった。今後は、さらなるレーザー発振特性の改善のために、マイクロ粒子のサイズや結晶性に対する発振特性の依存性について明らかにしていきたい。