

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2009

課題番号：19560035

研究課題名（和文） フラクタル構造を用いたランダムレーザーの特性解析

研究課題名（英文） Characterization of Random Lasers with Fractal Structures

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

研究成果の概要（和文）：ランダムレーザーという、従来のレーザーと照明用光源の特徴を併せ持つ新しい光源の実用化を目指し、新たに自己相似構造を用いたランダムレーザーの特性解析を行った。スペckルと呼ばれる散乱光によってできるフラクタルランダム媒質の構造を明らかにした。また、その構造がレーザー発振にある程度適していることを電磁界シミュレーションにより見いだした。また、光硬化性樹脂によりランダム構造体を作製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, which have properties of both a conventional laser and an illuminating light source, have not been in practical use because of their low emission efficiencies. We introduced a self-similar (fractal) structure for a random laser medium to improve the efficiency. The statistical properties of three-dimensional intensity distributions formed with fractal speckle patterns have been elucidated. An electromagnetic simulation has shown that the fractal structures are suitable for random lasing. Experiments using a photopolymer indicated that a random laser can be fabricated by illuminating a polymer medium with laser speckles.

交付決定額

（金額単位：円）

|        | 直接経費      | 間接経費    | 合計        |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2007年度 | 1,700,000 | 510,000 | 2,210,000 |
| 2008年度 | 1,000,000 | 300,000 | 1,300,000 |
| 2009年度 | 600,000   | 180,000 | 780,000   |
| 年度     |           |         |           |
| 年度     |           |         |           |
| 総計     | 3,300,000 | 990,000 | 4,290,000 |

研究分野：光物理学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎（応用光学・量子光工学）

キーワード：ランダムレーザー、フラクタル、レーザーSpeckル、光硬化性樹脂、時間領域差分法

## 1. 研究開始当初の背景

10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こと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、ループ状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) スペクトル線幅が広い、2) 発振効率が悪い、3) 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り、その改善が望まれていた。

## 2. 研究の目的

研究代表者は規則的フラクタル構造をもつ多層膜増幅器の研究を行っていた。研究成果のなかで特徴的な点として、フラクタル構造では周期構造に比べて、1) いくつかの波長で光の増幅率が格段に大きくなる、2) そのスペクトル線は非常に狭い、という結果が得られている。もし不規則構造においてもこの結果が適用できるならば、しきい値が低くスペクトル線幅の狭いランダムレーザーが実現できるのでは、と予想した。すなわち、本研究の目的は、1) 長い時間的コヒーレンス長をもち、2) 低パワーの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) 理論およびスペックル生成シミュレーションプログラムによる3次元構造解析

本研究では、すりガラスのような拡散板を透過・散乱したレーザー光が作る不規則な斑点模様（スペックルパターン）を光硬化ポリマー内に形成・記録することにより、3次元不規則構造をもつポリマーランダム媒質の実現を目指す。まずは、その構造を理論的に解析する。2方向(x, y軸)あるいは3方向(x, y, z軸)からスペックルパターンを照射し、交差干渉させる。このような交差スペックルの光強度空間分布を計算し、その3次元構造を解析する。得られた理論式は、ポリマー散乱体の空間構造を設計する基本式となる。

次に、この理論式をフラクタル構造をもつスペックル（フラクタルスペックル）に適用する。そして、さまざまな条件下で生じるフラクタルスペックル強度場の3次元構造を解析する。

また、計算機内で交差スペックル構造を生成するシミュレーションプログラムを作成する。

### (2) FDTD法によるランダム媒質中の光共振シミュレーション

上記スペックル生成シミュレーションで得られた不規則な3次元光強度分布場を二値化し、それぞれの空間領域に異なる屈折率を与えることで、3次元ランダム媒質をコンピュータ内に生成する。この構造物中にコヒーレント光を入射した場合に得られる構造内部の電磁界分布およびその時間変化を時間領域差分(FDTD)法により解析する。まず透明媒質の場合をシミュレーションし、構造物が光の共振器としてどの程度の性能を持つのかをQ値等を指標にして明らかにする。その後、光増幅を加えた解析を行う。

### (3) 光硬化ポリマーによる散乱体・発光体の作製および特性解析

バイオレット・レーザー（波長 405 nm）を用い、この波長に反応するポリマーを使ってランダム媒質作製実験を行う。バイオレット・レーザー光をすりガラスに当て、生じた散乱光で光硬化ポリマーを硬化させる。スペックルサイズ、照射強度、照射時間などを変えて実験を行い、ポリマーが散乱光強度分布を適切に記録できる最適条件を探る。その条件のもとでフラクタルスペックル場を生成し、ポリマーに光強度分布を硬化・記録する。また、硬化前の液体モノマーに色素をドープしたのち硬化した色素含有固体ポリマーを作製する。それを Nd:YAG レーザーパルス光で励起し、マルチチャンネル分光器を用いて射出光のスペクトル分布を測定する。

## 4. 研究成果

### (1) 交差フラクタルスペックル波により形成される異方性強度場の空間相関特性

スペックルに自己相似構造を持たせたフラクタルスペックル波を交差させることにより得られる異方性強度場の統計的特性を理論的に解析した。強度相関関数よりフラクタル次元を求め、一般理論式との比較を行った。

フラクタルスペックル波の交差場の生成法を図1に示す。ベキ関数状の強度分布

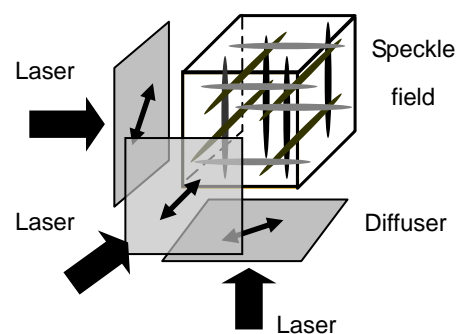


図1 3交差スペックル場の生成

$I = \rho^{-D}$  ( $\rho$ : 中心からの距離) を持つレーザー光を粗面に照射することでフラクタルスペckル場が生じる。このフラクタルスペckル場を三方向から直交させる。照射光は互いにコヒーレントであり、45度の直線偏光である。フラクタル次元は、フラクタルスペckル場の強度分布から、密度相関法を用いて求めることができる。単一スペckル場の場合、光軸垂直断面における強度分布の相関関数は  $C(r) \propto r^{2(D-2)}$  ( $1 < D < 2$ ) となり、ベキビームの指数部  $D$  に依存した指数を持つべき則に従う。これより2次元場のフラクタル次元は  $D_f = 2D - 2$  と求められる。また光軸に対して平行方向の二点間の強度相関関数は  $C(r) \propto r^{D-2}$  となることより、1次元場のフラクタル次元は  $D_l = D - 1$  となる。

一方、3交差フラクタルスペckル場の断面強度分布の2次元相関関数は異方性を示す。図2に軸方向の強度相関関数の理論結果を示す。直交方向からのフラクタルスペckル波の影響を受けるため傾きが途中で変化し、長距離相関は単一スペckル場の光軸方向の相関関数と同じ傾きとなることが分かった。

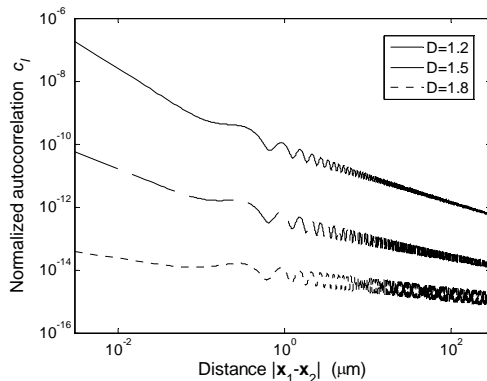


図2 3交差フラクタルスペckル場の自己相関関数

図3 (a) - (c) に  $D=1.2, 1.5, 1.8$  とした場合の3交差フラクタルスペckル場の垂直断面における強度分布画像を示す。また、比較対照として図3(d)にガウシアンビームを照射した場合の3交差スペckル場を示す。粗面から観測断面までの距離は  $0.1 \text{ m}$ 、観測空間の範囲は  $120 \times 120 \mu\text{m}^2$  である。

軸方向と45度方向の強度相関関数を調べた結果、軸方向の場合は交差の影響を受けているため、相関関数の傾きが45度方向と比較して緩やかになっていることが確認できた。一方、45度方向の相関関数は軸方向からのスペckル場の影響があまり見られず、単

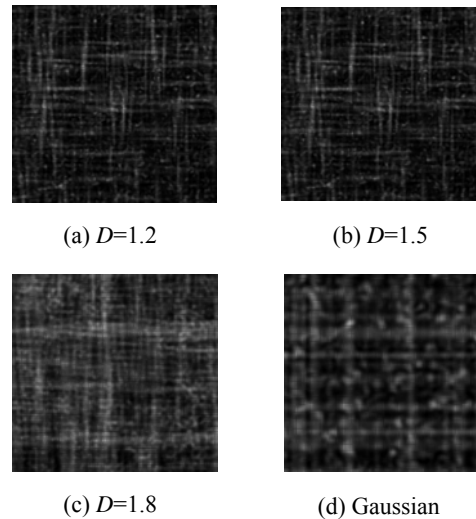


図3 3交差スペckル場の断面強度分布

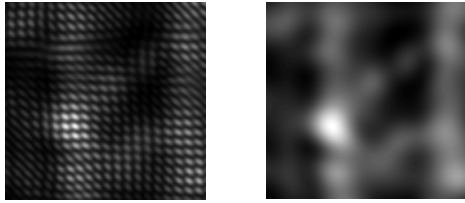
一スペckル場の相関関数とほぼ同じ傾きであることが確認できた。

このように、方向により相関関数の傾きが異なる場合、フラクタル次元を決定することはできない。そこで今回はある方向の次元というものを仮定し、その値を求めた。強度相関関数に近似直線を引き、その傾きからフラクタル次元を算出した結果を表1に示す。フラクタル次元の理論値は  $D=1.2, 1.5, 1.8$  に対し、軸方向の場合はそれぞれ  $1.2, 1.5, 1.8$  となり、45度方向の場合はそれぞれ  $0.4, 1.0, 1.6$  となる。すなわちフラクタルスペckル波の交差により、異なるフラクタル次元を内包する強度断面パターンが形成されることが確認された。

表1 スペckル場のフラクタル次元

| $D$ | Axial  |            | Diagonal |            |
|-----|--------|------------|----------|------------|
|     | Theory | Simulation | Theory   | Simulation |
| 1.2 | 1.2    | 1.21       | 0.4      | 0.40       |
| 1.5 | 1.5    | 1.50       | 1.0      | 0.97       |
| 1.8 | 1.8    | 1.75       | 1.6      | 1.61       |

また、干渉による構造への影響を調べるため、図4(b)のような干渉しない場合の3交差スペckル場の結果との比較を行った。その相関関数は干渉縞による振動がなく、干渉する場合の相関関数の振動頂点に接する、包絡線のような概形となった。その傾きから求めたフラクタル次元値は干渉する場合とほとんど変わらない結果となった。つまり、フラクタルスペckル波を干渉するように3交差させることで、微視的に見ると規則的な格子構



(a) 干渉する場合 (b) 干渉しない場合

図4 3交差スペックル場の断面強度分布  
( $D=1.8, 12 \times 12 \mu\text{m}^2$ )

造となるが、巨視的に見ると干渉しない場合と同次元のフラクタル構造の強度場を生成することができるといえる。

3交差フラクタルスペックル波の自己相関関数の理論解析を行い、シミュレーションによる検証を行った結果、この強度場が異方性を含む自己相似構造を有することが明らかとなった。つまり、照射光のベキ指数  $D$  を変化させることで、フラクタル次元を任意の値にコントロールできることが判明した。また、それぞれのスペックル波の偏光方向を調整することで、干渉による格子構造を組み込むことが可能となる。

## (2) フラクタルスペックル構造をもつランダム媒質の電磁界解析

フラクタルスペックル構造を持つランダム媒質の散乱特性を FDTD(2,4)法を用いて調べ、通常のスぺックル構造を持つ一様ランダム媒質との比較を行った。

フラクタルランダム媒質の作成モデルは図1と同じである。ただし、今回のシミュレーションではフィルタ通過後の光は原点で強度無限大となるような厳密なベキ関数の強度分布ではなく、Fisher-Burford の式  $I = (1 + \alpha^2 \rho^2)^{-D/2}$  に従うとした。ここで、 $\alpha$  は原点付近の関数の振舞いを制御する定数、 $\rho$  はレーザーの中心からの距離、 $D$  は指数を制御する定数を表す。また、比較対象とする一様ランダム媒質はガウスビームを粗面で散乱させることで作成する。モデルとなる光硬化性樹脂は、場の平均強度以上で硬化するとし、光硬化性樹脂および空隙の屈折率はそれぞれ 1.6 と 1.0 とした。

3次元解析モデルとして、一辺  $10.9 \mu\text{m}$  立方の解析領域を用意した。その中心に一辺  $8.3 \mu\text{m}$  立方体の散乱体媒質を置いた。散乱体周囲の媒質は屈折率 1.0 としている。セルサイズを一辺  $64 \text{ nm}$ 、時間ステップを  $0.1 \text{ fs}$  とし、吸収境界条件として PML 吸収境界条件を用いた。散乱体として、以下に示す5種類のスペックル場を用いた媒質を用意した。

1. x 方向に直線偏光した光によって発生する単一スペックル場
2. どちらも y 方向に直線偏光し、互いに干渉しあう光によって発生する2交差スペックル場
3. それぞれ x、y 方向に直線偏光した光によって発生する2交差スペックル場
4. それぞれ  $45^\circ$  直線偏光し、互いに干渉しあう光によって発生する3交差スペックル場
5. それぞれ x、y、z 方向に直線偏光した光によって発生する3交差スペックル場

電磁場の計算は、振幅の  $1/e$  全幅  $7.7 \mu\text{m}$ 、波長  $450 \text{ nm}$  のガウスビームを散乱体に連続照射するという条件のもと行った。このシミュレーションから定常状態での光強度と  $Q$  値を求めた。 $Q$  値が高いことは媒質内部に長く光が留まっていることを表す。

各媒質で得られた定常状態での光エネルギー密度の最大値を図5に、 $Q$  値を図6に示す。

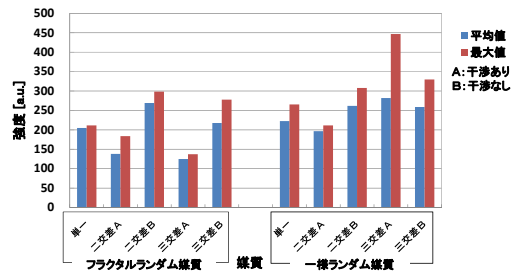


図5 エネルギー密度最大値

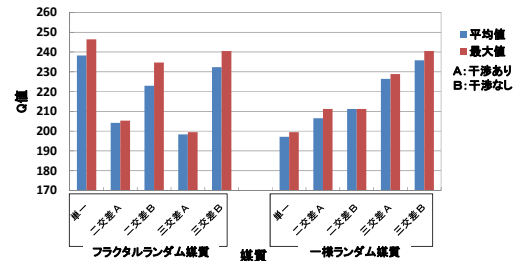


図6 Q 値

干渉を加えたフラクタルランダム媒質の値が極端に低いのは、媒質が正確に作られていないためである。エネルギー密度最大値に関しては、フラクタルランダム媒質は一様ランダム媒質に比べてほぼ同程度もしくは低い値をとった。

単一と2交差の干渉がない場合、フラクタルランダム媒質は一様ランダム媒質に比べ  $Q$  値が高い。しかし、3交差の干渉がない場合はほぼ同程度となった。実現できる  $Q$  値はあまり変わらない結果となったが、フラクタル媒質は交差させなくても高い  $Q$  値が得られるという特徴があることが分かった。

3次元のFDTDでは媒質サイズがせいぜい10  $\mu\text{m}$  立方程度しか取れない。そのため、フラクタル性が十分に現れなかった可能性がある。そこで、媒質が置かれた空間の次元を3次元から2次元に落とし、64  $\mu\text{m}$  四方のより大きな媒質で解析した。その結果、フラクタル媒質は一様媒質に比べてより強い光閉じ込め効果を示すことが分かった。しかし、この違いがフラクタル性によるものか、単にスペックル粒子径の分布状態の違いによるものかについては不明であり、今後の検討課題である。また、光の増幅・発振が計算可能な、レート方程式を組み入れたシミュレーションプログラムを完成させた。

### (3) レーザースペックルを用いた光増幅ランダム媒質の作製および発光実験

スペックルを光硬化性樹脂に照射し、ランダム媒質の作製を試みた。実験で用いた光硬化性樹脂は、硬化波長300~420 nmのGLX19-117(グルーラボ)である。この樹脂にレーザー色素ローダミン6Gを混合し、薄膜状にしたものをスライドグラス上に形成する。色素濃度は $5 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ とした。

光増幅ランダム媒質を作製する光学系を図7に示す。スリガラスを透過したレーザー光を色素と光硬化性樹脂を混合した色素ドープポリマーに3方向から照射する。媒質を硬化した後、未硬化部分をメタノールで除去することによって微小空隙を作り出し、光硬化性樹脂と空気によるランダムな屈折率分布を持つ構造を得る。スペックルは直径50  $\mu\text{m}$ 、100  $\mu\text{m}$ 、200  $\mu\text{m}$ のものを用いた。

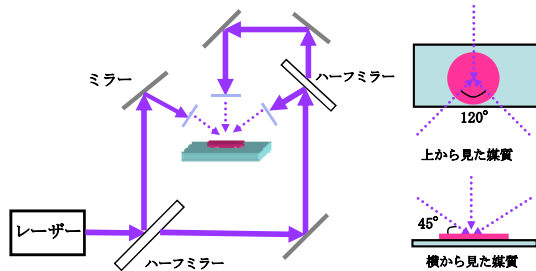


図7 媒質作製実験系

作製した媒質の発光スペクトルを測定する実験系を図8に示す。励起光にはNd:YAGレーザー(波長532 nm、パルス幅10 ns、出力1  $\mu\text{J}$ )を用い、レンズで集光し試料に垂直に照射した。放出された光をスペクトルアナライザー(波長分解能0.1 nm)で測定した。

薄膜状光増幅ランダム媒質で観測したスペクトルの半値全幅を図9に示す。2方向照射の媒質で発光スペクトルの狭帯域化が見られた。しかし、ランダムレーザー発振は得られなかった。これは、樹脂中にうまく空隙が

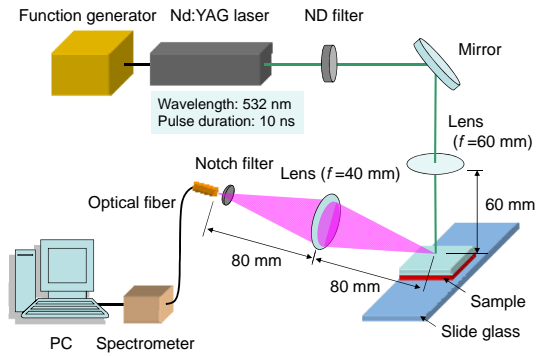


図8 発光スペクトル測定系

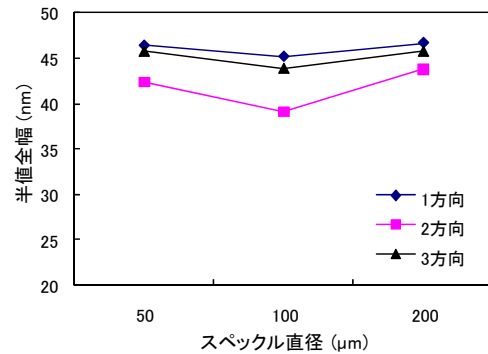


図9 発光スペクトルの半値全幅

作られていないため、光の多重散乱が十分に起こらなかったためと考えられる。

そこで、二つの薄膜媒質を積層した媒質を作製した。硬化用レーザーを照射した面には表面に微細な凹凸が形成されているため、図10に示すように構造および励起面の異なる3種類の媒質が考えられる。

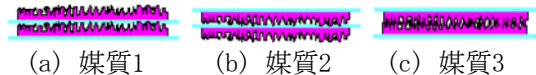


図10 積層構造光増幅ランダム媒質

図10の各媒質を上面から励起したときに得られたスペクトルの半値全幅を図11に示す。積層することによって、単層の発光スペクトルよりも狭い発光線幅が得られた。特に、膜厚が薄い媒質3での狭帯域化は顕著であった。

実験の結果から、スペックル照射方法や膜厚・構造の違いなどによって異なる発光スペクトルが得られることが分かった。まず、照射スペックル数については、2方向のスペックル照射媒質の方が良い発光特性が得られた。これは、3方向になると構造がより微細化し、樹脂が記録できる最小サイズより小さくなってしまったためと思われる。

また、積層の仕方と比較すると、膜厚0.2

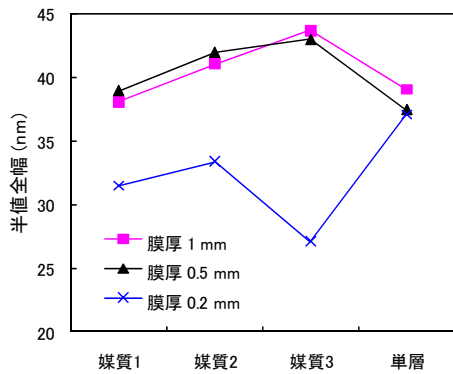


図11 発光スペクトルの半値全幅

mmの媒質を向かい合わせで重ねた媒質が一番良い結果を示した。これは、ランダム構造が媒質表面付近にしか形成されておらず、膜を薄くしなければ励起光がランダム構造にまで十分に到達できないためと考えられる。

今回の実験では、ランダムレーザー発振を確認することはできなかったが、実現の可能性を示唆する結果が得られた。レーザー発振を得るためには、より強い光散乱を生み出す媒質が不可欠であり、そのためには最適な光硬化性樹脂の選択や硬化方法のさらなる改良が必要である。

#### 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)

- ① T. Okamoto and S. Fujita, "Statistical properties of three-dimensional speckle distributions produced by crossed scattered waves," J. Optical Society of America A, 査読有, Vol. 25, No. 12, 2008, pp. 3030–3042.
- ② T. Okamoto, M. Miyamoto, and S. Tanaka, "Light scattering properties of random media with a structure of laser speckle," Proc. SPIE, 査読有, Vol. 7138, 71380V, 2008, 6 pages.
- ③ T. Okamoto, "Statistical properties of superposed fractal speckle fields," Proc. SPIE, 査読有, Vol. 6613, 66130E, 2007, 8 pages.

[学会発表] (計8件)

- ① 藤田大我、岡本 卓「フラクタルスペックル構造をもつランダムレーザー媒質の特性解析 (I)」第57回応用物理学関係連合講演会、2010年3月17日、東海大学湘南キャンパス
- ② 藤田大我、岡本 卓「フラクタルスペックル構造をもつランダム媒質の電磁界解析」Optics and Photonics Japan 2009、2009年11月24日、新潟コンベンションセンター

- ③ 安達史郎、岡本 卓「各種形状の散乱微粒子を含む色素ドープポリマーのランダムレーザー発振」Optics and Photonics Japan 2008、2008年11月4日、つくば国際会議場
- ④ 安達史郎、岡本 卓「各種散乱微粒子を含む色素ドープポリマー媒質の発光特性」第55回応用物理学関係連合講演会、2008年3月29日、日本大学理工学部
- ⑤ 村川正幸、岡本 卓「レーザーSpeckルを用いた光増幅ランダム媒質の作製」Optics and Photonics Japan 2007、2007年11月26日、大阪大学
- ⑥ 若松崇志、岡本 卓、「モンテカルロ法によるランダムレーザー媒質の光散乱解析」Optics and Photonics Japan 2007、2007年11月26日、大阪大学

[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：