

ランダム媒質のレーザー発振および局在モードの数値解析

藤原 英樹・笹木 敬司

Numerical Analysis of Laser Operation and Localized Modes in a Random Medium

Hideki FUJIWARA and Keiji SASAKI

By use of a finite difference time domain method combined with rate equations, we analyzed the characteristics of laser action induced in a two-dimensional random medium. Calculating the pumping rate dependences and the medium size dependences of the laser actions, we confirmed that the lasing modes were determined depending on their Q factors and the spatial profiles of individual resonant modes. The results suggest the possibility to control the lasing mode induced in the medium.

Key words: random medium, localized mode, laser operation

光をナノメートルオーダーの微小空間に局在させる構造として、フォトニック結晶や微小球がこれまで数多く報告されているが、波長オーダーで不規則な屈折率分布構造をもつランダム媒質においても、多重散乱光の干渉効果により局所領域において高い光閉じ込め効率を実現できることが、レーザー発振等の観測により示されている¹⁻⁵⁾。このランダム媒質の利点として、①光閉じ込めが可能、②作製がきわめて容易、③形状やサイズの自由度が大きい、④材料選択性が高い、⑤非線形材料や機能性材料を容易に取り込むことが可能、等が挙げられる。筆者らはこのような点に注目し、新しい三次元微小光共振器構造として、塗布するだけで機能発現可能な簡便かつ汎用性の高い光反応場への応用を目指して研究を行っている。しかし、最大の特徴である無秩序さのため、任意のモードを実現あるいは解析的に評価することは非常に困難である。本稿では、ランダム媒質中のレーザー発振挙動の解析を目的とし、レート方程式を組み込んだ時間領域差分 (FDTD) 法を用いて、ランダム媒質の共鳴特性やレーザー発振特性の解析を行った筆者らの研究について紹介する。

1. レート方程式を組み込んだ時間領域差分法

二次元解析モデルとして、一辺 $50 \mu\text{m}$ の計算領域内に一辺 $15 \mu\text{m}$ の散乱体分散領域を用意した。その領域に散乱体として、直径 400 nm 、屈折率 2.6 の誘電体円柱を充

填率が約 40% となるようにランダムに配置し、利得媒質は周辺媒質中 (屈折率 1.0) にあると仮定した (図 1)。解析プログラムは文献 6, 7 をもとに作成し、マクスウェル方程式に加え、利得媒質を表す分極方程式と反転分布密度を計算する 4 準位のレート方程式を差分化することにより計算を行った (式 (1)~(3))。

$$\Delta \times E = -\partial B / \partial t, \quad \Delta \times H = \varepsilon \partial E / \partial t + \partial P / \partial t \quad (1)$$

$$\partial^2 P / \partial t^2 + \Delta \omega_a \partial P / \partial t + \omega_a^2 P = 6\pi \varepsilon_0 c^3 / (\omega_a^2 \tau_{21}) (N_1 - N_2) E \quad (2)$$

$$\partial N_0 / \partial t = N_1 / \tau_{10} - Pr N_0$$

$$\partial N_1 / \partial t = N_2 / \tau_{21} - N_1 / \tau_{10} - 1 / (\hbar \omega_a) E \partial P / \partial t$$

$$\partial N_2 / \partial t = N_3 / \tau_{32} - N_2 / \tau_{21} - 1 / (\hbar \omega_a) E \partial P / \partial t$$

$$\partial N_3 / \partial t = Pr N_0 - N_3 / \tau_{32} \quad (3)$$

初期状態ではすべての分子は基底状態 (N_0) にあるとし、レート方程式中の励起レート (Pr) は領域全体にわたって一様であると仮定した。駆動光として十分弱いパルスで領域全体を励振すると、レート方程式中の誘導放出・吸収項が駆動され、計算が開始される。誘導放出・吸収の効果は分極方程式を介してレート方程式およびマクスウェル方程式へと戻される。励起レートが十分高く、誘導放出が支配的になると、電界強度の増加や反転分布密度 ($N_1 - N_2$) の減少がみられ、一定時間経過後ほぼ一定となる (図 1)

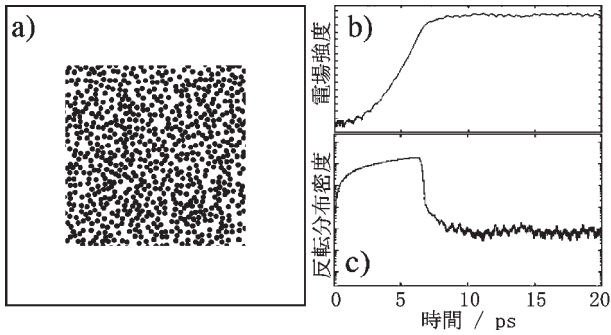


図1 (a) 二次元ランダム媒質の解析モデル, (b), (c) 発振強度および反転分布密度の時間変化。

(b), (c). この状態を定常状態とし, 各セルにおける電界強度あるいは反転分布密度をプロットすることにより, おおのこの空間分布を得た. さらに, 定常状態の時間ゆらぎをフーリエ変換することによって発振スペクトルを計算した. ただし, 本解析では, 自然放出過程を考慮しておらず, 発振閾値以上の状態についてのみ解析可能となるため, スペクトル中のピークはすべて発振ピークを表す. 計算では, 中心周波数 (ω_a) 281.3 THz, 半値全幅 ($\Delta\omega_a$) 16 THz の利得スペクトルを仮定し, 各準位の寿命は有機色素分子を仮定して, $\tau_{10}=10^{-11}$, $\tau_{21}=10^{-9}$, $\tau_{32}=10^{-12}$ s とした. また, セルサイズ, 時間ステップをそれぞれ 50 nm, 0.07 fs とし, 吸収境界条件として Mur の二次吸収境界条件を用いた.

2. ランダム媒質中レーザー発振の解析

図2は, 励起レート (a) 10^6 , (b) 10^7 , (c) 10^8 , (d) 10^9 s^{-1} とした場合のレーザー発振強度分布である. 励起レートの増加に伴い, 発振スポット数やスポットの現れる領域が拡大する様子が確認できる. このとき, 各励起レートにおける反転分布密度や発振スペクトルを計算した結果, 発振領域の拡大に応じて, 発振ピーク数の増加や反転分布の飽和領域の拡大を確認した. さらに, 発振スペクトルを利得のない場合の共鳴スペクトルと比較すると, 一部の共鳴モードのみが発振していることが確認できた.

このような挙動を解析するため, これらの共鳴波長における共鳴モード分布と Q 値 (=周波数×強度減衰時間) を計算し, 比較を行った. 図2中の円は発振スペクトル中に現れるいくつかの共鳴モードの大まかな分布を示しており, 数字は各モードの Q 値を表す. それぞれ発振するモードに対応する共鳴モードが存在し, 励起レートの増加に伴い, 高い Q 値をもつモードから順に発振している様子がわかる. さらに, 発振しない他の共鳴モードも同様に計算を行った結果, 各共鳴モード分布が空間的に重なる場合, Q 値の高いモードが発振し, 利得の飽和によって Q

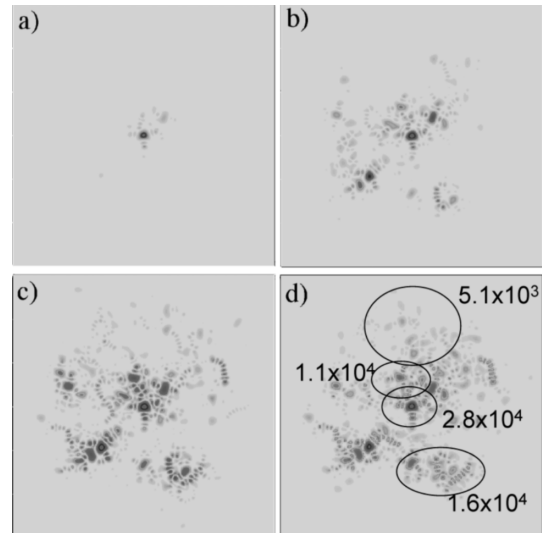


図2 媒質サイズ $15 \times 15 \mu m^2$ におけるレーザー発振強度分布. 励起レート (a) 10^6 , (b) 10^7 , (c) 10^8 , (d) 10^9 s^{-1} . 分布はおおのこの最大値で規格化している. 図 (d) 中の円は各共鳴波長における大まかな共鳴モードの分布の様子を示し, 数字は各モードの Q 値を表す.

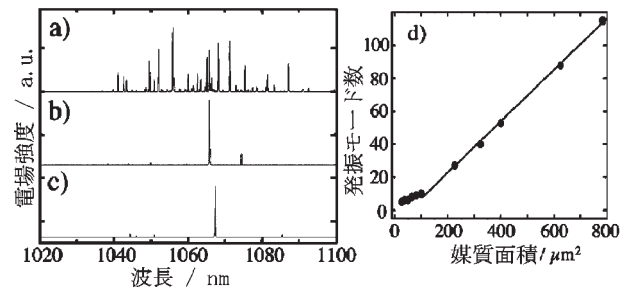


図3 発振スペクトルの媒質サイズ依存性. 励起レート $10^{10} s^{-1}$. 媒質サイズ (a) 25, (b) 15, (c) $5 \mu m$. (d) は発振モード数の媒質サイズ依存性を示す.

値の低い他のモードの発振が抑制される様子を確認できた. このような挙動は従来の実験的な観測ともよく一致することから, ランダム媒質におけるレーザー発振挙動を定性的に再現できていると考えられる^{3,4)}.

次に, この媒質サイズに対するレーザー発振挙動の変化について解析を行った. 図3左図は, 発振モード数が飽和するほどに十分高い励起レート ($10^{10} s^{-1}$) において, 媒質サイズを (a) 25, (b) 15, (c) $5 \mu m$ と変化させたときの媒質全体の発振スペクトルを示している. 媒質サイズの変化に対して, 発振モード数が変化している様子が確認できる. この発振ピーク数を媒質面積に対してプロットした結果を図3 (d) に示す. 面積の大きい領域 (約 $100 \mu m^2$ 以上) では, 発振モード数が面積に比例し, 面積当りの発振モード数がほぼ一定 (約 $0.15 \mu m^{-2}$) となるようにレーザー発振が誘起されていることを確認した. これは, 上述の

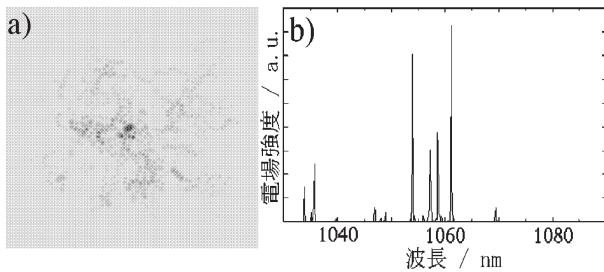


図4 ランダム媒質の中心に直径 600 nm の欠陥領域を配置した場合の (a) レーザー発振強度分布と (b) 中心点における発振スペクトル. 励起レート 10^9 s^{-1} , 充填率 52% とした.

ように、モード間の競合によって単位面積当りの発振モード数が制限されるためであると理解できる。一方、サイズの小さい領域では、局所的な構造の影響が強く表れてくるため、この比例関係からはずれれる。この挙動は、 Q 値のサイズ依存性を同様に計算した結果において、約 $10 \mu\text{m}$ 以下では光局在を仮定した指数関数的な振る舞いからはずれる様子が確認されることから、干渉効果に寄与する散乱体数の減少により光局在が起こらなくなっているためと理解できる。この挙動をうまく使うと、サイズを制御することによってほぼ単一モードのレーザー発振をランダム媒質中で実現することができる (図 3 (b), (c))。実際、すでに Cao らによって、直径約 $1 \mu\text{m}$ の酸化亜鉛ナノ微粒子クラスターにおいて単一モード発振が観測されている⁴⁾。また、筆者らも別の制御方法として、最適な散乱体密度をもったランダム媒質の中心付近に故意に散乱体を配置しない“欠陥”領域を設けることによって、空間的に発振位置を制御する方法について提案を行っている。図 4 は、充填

率 52%, 中心に直径 600 nm の欠陥領域を設けた媒質を高い励起レート (10^9 s^{-1}) で発振させた場合の、(a) 強度分布と (b) 中心点における発振スペクトルを示している。誌面の都合上詳細は省くが、ランダムさと高励起レートに起因してスペクトル中には複数の発振モードが観測されているにもかかわらず、充填率 40% の場合とは異なり、発振強度分布において中心の欠陥領域に局在したモードが優先的に発振する様子が観測される。このことから、ランダム媒質内の欠陥領域を用いたレーザー発振モード制御の可能性を示しているといえる。

文 献

- 1) N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes and E. Sauvain: "Laser action in strongly scattering media," *Nature*, **368** (1994) 436-438.
- 2) G. van Soest, M. Tomita and A. Lagendijk: "Amplifying volume in scattering media," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 306-308.
- 3) H. Cao, J. Y. Xu, S. H. Chang and S. T. Ho: "Transition from amplified spontaneous emission to laser action in strongly scattering media," *Phys. Rev. E*, **61** (2000) 1985-1989.
- 4) H. Cao, Y. Ling, J. Y. Xu and C. Q. Cao: "Spatial confinement of laser light in active random media," *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 5584-5587.
- 5) H. Fujiwara and K. Sasaki: "Observation of upconversion lasing within a thulium-ion-doped glass powder film containing titanium dioxide particles," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43** (2004) L1337-L1339.
- 6) X. Jiang and C. M. Soukoulis: "Theory and simulations of random lasers," *Photonic Crystals and Light Localization in the 21st Century*, ed. C. M. Soukoulis (Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 2000) pp. 417-433.
- 7) C. Vanneste and P. Sebbah: "Random laser in the localized regime," *Phys. Rev. B*, **66** (2002) 144202.

(2006 年 2 月 8 日受理)