

欠陥領域を用いたランダム構造内の局在モード特性制御

藤原 英樹^{*,**}・池田 匠^{*}・笹木 敬司^{*}

Localized Mode Control Using a Defect Region in a Random Structure

Hideki FUJIWARA^{*,**}, Takumi IKEDA^{*} and Keiji SASAKI^{*}

Wavelength-scale-disordered structures composed of strong scattering nanoparticles (random structures) have attracted much attention in recent years as low-cost and easily-fabricated resonators because of their potential for photon localization due to the interference of multiply scattered light. However, since, unlike the conventional microcavities, spectral and spatial mode control is difficult due to the randomness. Among several approaches for mode control, we have proposed a simple structure for manipulating resonant conditions in random structures, in which a “defect” region without scatterers is deliberately made. By employing a two-dimensional finite-difference time-domain method including rate equations, we numerically examine the resonant and lasing properties bound in the defect region and confirm that long-lived modes can be strongly confined in the defect region by optimizing the structure parameters.

Key words: random structure, localized mode, random laser

近年の省エネルギーあるいは環境保護の観点から、高効率な発光デバイスや光電変換等の実現に向けて、光化学・物理反応の高効率誘起が期待されている。このためには、材料側からのアプローチだけでなく、微細構造を用いた光捕集、局在、増強による光-分子間の相互作用の高効率化が図られている。このような構造として、フォトニック結晶や微小球・トロイド構造、金属ナノ構造等の周期性や対称性に優れた共振器構造により、精密な構造制御による効率的な光反応増強に関する研究が盛んに行われているが、これらのいわゆる“きれい”な構造の作製には、一般的に精密な加工技術や大規模・高価な装置が必要となるため、簡便かつ安価な光反応場としての用途にはあまり適さない。これに対して、本研究で注目している波長オーダーの不規則な屈折率分布をもつランダム構造では、光の多重散乱による光路長の増大やそれらの干渉効果により光局在現象を誘起できることから、発光デバイスや生体試料マーカー、光スイッチ、敵味方識別タグ、あるいは、光メモ

リー等を実現する新奇な光反応場のひとつとして近年注目を集めている¹⁻¹⁸⁾。このようなランダム構造は、微粒子散乱体の凝集²⁾や金属表面のラフネス⁷⁾、生体試料⁸⁾等のように自然界にはありふれた構造であり、自然発生的な方法で簡単に作製ができるため、簡便かつ安価に作製できる光デバイスへの応用（例えば、散乱体を塗布するだけで機能発現するような光反応増強場として、面発光デバイスや太陽電池等への応用）が可能となると期待されている。しかし、ランダムさは本構造の重要な特徴ではあるものの、局所的な構造の不規則さを反映して局在モードが決定されるため、構造内に現れる特定の局在モードを意図的に誘起することは困難である。高効率な光反応を誘起するためには、ランダム構造内においても光-分子間の周波数的かつ空間的なオーバーラップを実現することが重要となるため、ランダム構造内における局在モード制御を実現する技術的なブレイクスルーが期待されている。

このような問題に対してこれまでにも、温度制御による

*北海道大学電子科学研究所（〒001-0020 札幌市北区北 20 条西 10 丁目） E-mail: fuji@es.hokudai.ac.jp

**科学技術振興機構さきがけ（〒332-0012 川口市本町 4-1-8 川口センタービル）

共鳴周波数制御^{15,16} や励起領域の制限による少数モードの選択励起¹⁷⁻¹⁹, あるいは, ランダム構造の小型化による局在モード選択^{20,21} 等のいくつかのアプローチが実験的・解析的に提案されている. 例えば, Cao らのグループは, 直径 $1.7\ \mu\text{m}$ の ZnO 微粒子クラスターを作製し, そのクラスターにおいて単一モードでのレーザー発振に成功している¹⁸. また, 励起領域サイズを制限することにより, 利得を強く感じる局在モードの数を制限し, 特定のモードにおいてレーザー発振を誘起できることを数値解析的に示している^{20,21}. 近年ではさらに, 散乱体のサイズや分布状態等のランダムさのうち, 一部に規則性 (均一なサイズの散乱体がランダムに分布した構造等) を導入することによって, 局在モードの制御を試みる例も報告されている^{9,10,21-27}. 例えば, 宮嵜らのグループ²⁴ や Rockstuhl らのグループ²⁵ は, 散乱体サイズが単分散かつランダムに分布した構造では, 散乱体間のミー共鳴に基づくモード結合により, 透過スペクトル中にフォトニック結晶の透過バンドのようなディップ (周波数窓) が現れることを数値解析的に報告しており, このような構造が特定の周波数特性をもつミラーやフィルターとして働くことを示している. 一方, われわれはこれらの報告をもとに, このようなランダム構造内にフォトニック結晶と同様に散乱体を配置しない欠陥領域を設けることによって, この欠陥領域に周波数のみならず, 位置や入出力まで制御した特定の局在モードを実現する新奇な光反応場として利用することを提案している^{26,27}. 本稿では, われわれが提案している欠陥領域を用いたランダム構造内の局在モード制御方法の最近の成果を中心に, 近年のランダム構造内の局在モード制御に関する研究について紹介する.

1. 時間領域差分法を用いた解析方法・モデル

一般的に三次元のランダム構造では, 光の波数 k および平均自由行程 l を用いて Ioffe-Regel の条件 ($kl \sim 1$) を満たした場合に光が局在するが, 一, 二次元の低次元系では構造の厚みが局在長に比べて十分に厚ければ, 光が元の場所に帰還する確率が高くなるため, わずかな散乱によってもフィードバック的な機構 (光局在) が現れることになる. このような効果は, 実際にランダムに積層させた一次元ランダム構造において, 低閾値のレーザー発振が実現できることから確認されている⁹. このため, 本研究で扱っているような二次元モデルでは, 実際の三次元構造とは異なり, 構造が大きければ簡単に光局在が発生する. また, 実験的に二次元構造を作製したとしても, 構造面に対して垂直方向へのリークが存在するため, 二次元解析結果の Q 値

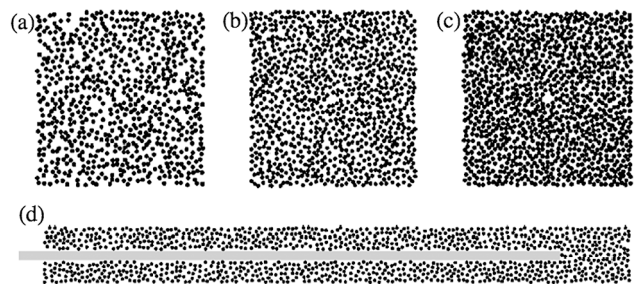


図1 二次元解析モデル. 散乱体充填率が (a) 40, (b) 50, (c) 60% の場合の点欠陥をもつランダム構造 ($15 \times 15\ \mu\text{m}^2$). 散乱体 (黒丸) は直径 $400\ \text{nm}$, 屈折率 2.6 とし, 点欠陥領域 (直径 $600\ \text{nm}$) は各構造の中心に配置している. (d) 導波路欠陥 (灰色) をもつランダム構造. 長さ $52.5\ \mu\text{m}$, 幅 $900\ \text{nm}$ の導波路をランダム構造の中心に配置し, 散乱体の充填率は 50% とした.

とは全く異なる値を示す. このため, 解析結果を定量的に議論するのは困難であり, 現象論的な議論のみ可能である点に注意しなければならない.

二次元解析モデルとして, 2種類の欠陥構造をもつランダム構造について解析を行った (図1)^{26,27}. 1つは, 一辺 $15\ \mu\text{m}$ 四方の領域内に, 散乱体として直径 $200\sim 400\ \text{nm}$, 屈折率 2.6 の誘電体円柱を充填率が約 $40\sim 60\%$ となるようにランダムに配置し, 中心に直径 $600\ \text{nm}$ の欠陥領域を配置した (点欠陥構造). もう1つの構造は, ランダム構造 ($5 \times 50\ \mu\text{m}$) 中心に導波路構造 (幅 $900\ \text{nm}$, 長さ $52.5\ \mu\text{m}$, 屈折率 1.5) を欠陥として配置した (導波路欠陥構造). 両構造とも周辺媒質として空気を仮定し, 屈折率を 1.0 とした. 計算には二次元時間領域差分 (2D-FDTD) 法を用い^{21-23,28}, セルサイズ, 時間ステップをそれぞれ $50\ \text{nm}$, $0.07\ \text{fs}$ とし, 総計算時間を 100 万ステップ ($70\ \text{ps}$) とした. 共鳴特性の解析のため, 点欠陥構造では, 領域全体をパルス励振し, 中心の欠陥において電場振幅の時間変化を記録した. 一方, 導波路構造では, 導波路に光を入射させ, その反射光を記録した. 両構造とも長寿命のモードについて議論するため, 励振後の $50\sim 70\ \text{ps}$ のデータのみをフーリエ変換することによって共鳴スペクトルを得ている. また, レーザー発振の解析には Sebbah ら²¹ や Nagra ら²⁸ の手法を用い, 利得媒質を仮定した計算セルにおいては, マクスウェル方程式の差分式に加え, 四準位のレート方程式と分極方程式を差分化して取り込んだものを使用している. 利得スペクトルの中心周波数 $280\ \text{THz}$, スペクトル幅 $16\ \text{THz}$ とし, 四準位のレート方程式では, 各準位の遷移レートは一般的な色素分子の値を仮定した. また, 利得媒質は周辺媒質にあると仮定した.

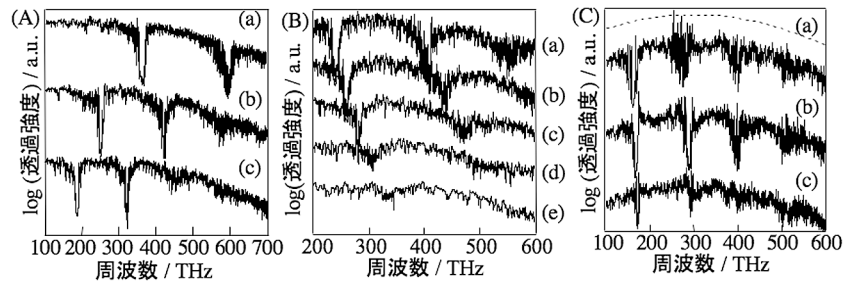


図2 (A) ランダム構造の透過光強度スペクトルの散乱体サイズ依存性. 散乱体の屈折率は2.3とし, 直径を (a) 200, (b) 300, (c) 400 nmと変化させた. (B) ランダム構造の透過光強度スペクトルの散乱体屈折率依存性. 散乱体の直径は300 nmとし, 屈折率を (a) 2.4, (b) 2.2, (c) 2.0, (d) 1.8, (e) 1.6と変化させた. 散乱体充填率はすべて50%とした. (C) ランダム構造の透過光強度スペクトルの散乱体充填率依存性²⁶⁾. 散乱体サイズおよび屈折率をそれぞれ400 nm, 2.6とし, 充填率を (a) 40, (b) 50, (c) 60%と変化させた. 図中の点線は入射パルスのスペクトルを表す.

2. ランダム構造の透過スペクトル

欠陥領域におけるモードの解析を行う前に, 欠陥領域周辺のランダム構造の周波数特性について計算を行った. 計算では, $5 \times 15 \mu\text{m}$ 四方のランダム構造に平面波パルスを入射させ, その透過電場振幅からスペクトルを計算している. 図2は, 構造のパラメーターを変化させた場合の透過スペクトルを示しており, それぞれ (A) 散乱体サイズ依存性, (B) 散乱体屈折率依存性, (C) 散乱体充填率依存性について計算した結果である. いずれの場合にも, 散乱体分布がランダムであるにもかかわらず, 特定の周波数帯において周期的な透過率のディップ (周波数窓) が確認できる. これらの周波数窓は, 散乱体サイズまたは屈折率が小さくなるにしたがって高周波数側にシフトし, 屈折率のコントラストの低下や充填率の変化により明瞭度が低下する様子が確認できる. これらの結果は, 宮寄らの数値解析結果²⁴⁾ とよく類似しており, 計算結果において散乱体サイズと波長の比であるサイズパラメーターに対して各周波数窓におけるこれらの値が一致していることから, ミー散乱共鳴に起因した現象であると理解できる. 以上の結果は, サイズ単分散かつ高屈折率の散乱体を用意できれば, ランダム構造でもフォトニック結晶のように, 散乱体サイズの調整により制御可能な周波数特性をもつミラー, あるいはフィルターとして働く可能性を示唆している. このように一部のランダムさを制限し, 例えば, サイズが均一でその分布のみがランダムな場合, 個々の散乱体の共鳴モードに起因して, 構造全体の平均的な特性を決定できることを示している. 実際に Gottardo らは, サイズが単分散なポリスチレン微粒子をランダムに分散した色素ドープフィルムにおいてレーザー発振の観測を行い, 散乱体サイズの調整によりレーザー発振波長の制御に成功した研究も報告している¹⁰⁾.

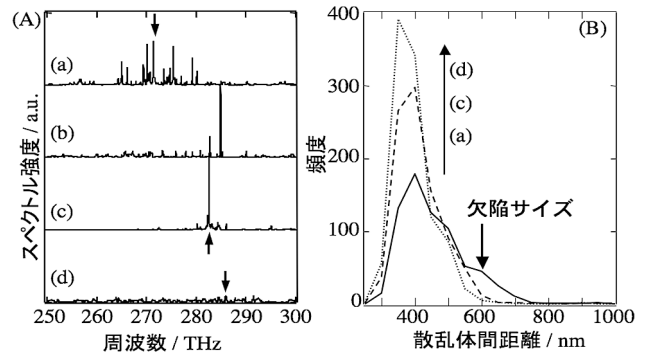


図3 点欠陥領域をもつランダム構造の (A) 共鳴スペクトルの散乱体充填率依存性と (B) 最近接散乱体間距離のヒストグラム²⁶⁾. 欠陥サイズは直径600 nmとした. 散乱体の屈折率およびサイズを2.6, 400 nmと仮定し, 充填率を (a) 40, (b) (c) 50, (d) 60%と変化させ, 設定した欠陥サイズを矢印で示している.

3. 点欠陥領域をもつランダム構造

このようなランダム構造内に散乱体を配置しない欠陥領域を設けた場合, ランダム構造の周波数特性に応じた特定の周波数バンドの局在モードが欠陥領域に現れると期待される. 図3 (A) は, 中心に直径600 nmの点欠陥領域をもつランダム構造 (散乱体サイズ400 nm, 屈折率2.6, 充填率 (a) 40%, (b) (c) 50%, (d) 60%) で観測される共鳴スペクトルを計算した結果を示している. 使用した構造は図1 (a)~(c) に対応し, 周辺のランダム構造の透過特性は図2 (C) に示している. また, 現れた共鳴ピーク (図中矢印) における局在モード分布を明らかにするため, おのおの共鳴周波数において電場強度分布を計算した結果が図4である.

共鳴スペクトルの結果をみると, 長寿命の共鳴ピークがランダムに現れているものの, その共鳴ピークの現れる周波数帯が常にランダム構造の周波数窓とよく一致していることが確認できる. 充填率が40%の場合, スペクトル中には周波数窓に対応した複数のピークが現れ, また, 強度

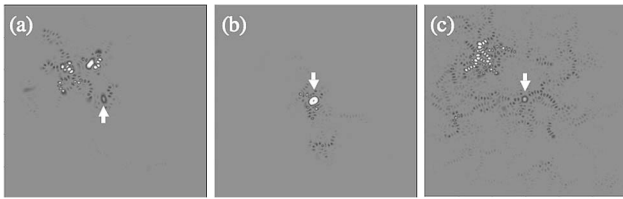


図4 点欠陥領域をもつランダム構造の電場強度分布²⁶⁾. 充填率をそれぞれ (a) 40, (b) 50, (c) 60%とした. 構造は図3で計算に用いたものと全く同じものを使用し, 図3の共鳴スペクトル中の矢印で示した周波数において励振した. 強度分布は各々の最大値で規格化している.

分布も欠陥領域以外に複数の強いスポットが観測される. 一方, 充填率が50%に増加すると, 共鳴スペクトルにはほぼ単一の強い共鳴ピークが観測され, この周波数における電界強度分布から, 欠陥領域において強く局在したモードが存在する様子が確認できる. また, 図3(A)の(b)は, この再現性を確認するため, 図3(A)の(c)と同じ条件で異なる散乱体分布をもつランダム構造における共鳴スペクトルを示しており, 分布のランダムさを反映して共鳴ピーク周波数が異なるものの, 構造の条件を揃えることによって, 似たような傾向の共鳴ピークを意図的に誘起できる可能性を示唆している. これらの結果は, 充填率50%において欠陥領域の導入により, 局在モードを制御できる可能性を示唆している. しかしながら, さらに充填率を60%まで上げると, 共鳴スペクトル中に長寿命の共鳴ピークは観測されず, 電界強度分布も構造全体に広がったような分布を示し, 特に屈折率の高い散乱体部分を伝搬しているような干渉パターンが確認できる.

これらの現象を理解するため, 各散乱体間の最近接距離のヒストグラムを作成した結果が図3(B)である. 図中の縦線は設定した欠陥サイズを示している. 図から, 充填率が40%の場合には欠陥よりも大きい隙間が存在し, 50%以上では欠陥よりも小さい空隙がほとんど存在しないことがわかる. このため充填率50%以上では, 欠陥領域がランダム構造の中で特異な点になっている様子がうかがえる. さらに充填率が60%になると, 欠陥よりも大きな隙間がなくなる一方で, 接触状態の散乱体数が増加していることが確認できる. これらの結果は, 充填率が十分ではない場合には, 欠陥に比べて同程度かそれ以上のサイズをもつ散乱体間の隙間が偶発的に存在できるため, 欠陥領域だけではなく他の領域においても長寿命の局在モードが存在し, 複数の共鳴ピークやスポットが現れていると解釈できる. 一方, 充填率が増大するとともに散乱体間の空隙サイズは減少するため, 周波数窓に対応した周波数の光に対して欠陥領域が構造内で特異な領域となり, 束縛された局

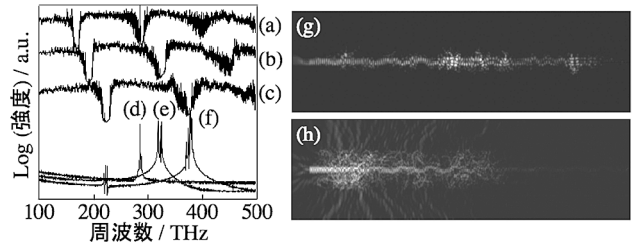


図5 導波路欠陥(幅900 nm, 屈折率1.5)をもつランダム構造の(a)~(c)周辺ランダム構造の透過光強度スペクトルと(d)(f)導波路欠陥における共鳴スペクトルの散乱体サイズ依存性. 散乱体充填率はすべて50%とし, 屈折率は2.6と仮定した. 散乱体サイズは, (a)(d)400, (b)(e)350, (c)(f)300 nmとした. (g)(h)導波路欠陥をもつランダム構造の電場強度分布²⁷⁾. それぞれ共鳴ピーク(d)(281 THz)および非共鳴の場合として325 THzの周波数で励振した. 強度分布は各々の最大値で規格化しており, 非共鳴の場合の強度は共鳴状態に比べて約1/100倍である.

在モードが現れていると理解できる. しかし, 充填率がさらに増大すると, 接触状態の散乱体が増加し, 散乱体を導波路として効率よく外部に光がリークするために, 明瞭な共鳴ピークや欠陥部に束縛された強度スポットが確認できなかったものと解釈できる. 以上の結果から, ランダム構造内の欠陥領域に狙った周波数帯の局在モードを選択的に誘起するためには, 閉じ込めたい周波数を周波数窓と一致させるように散乱体サイズを選び, 欠陥サイズを充填率で決まる散乱体間の空隙のサイズよりも大きく選ぶことが重要であることがわかる.

4. 導波路欠陥領域をもつランダム構造

一般的にランダム構造では, 光局在現象が多重散乱に起因していることから, 出力光は全空間へ放出し, 特定の放射モードへ選択的に結合することは困難であり, また, 応用上有用な高い Q 値の局在モードは構造の内部に存在するため, 外部からの光入出力を行うことは難しい. このような問題に対して, これまでに二光子励起^{12,13)}やZnOナノロッドアレイの二次元ランダム構造^{11,16)}を用いた内部モードの高効率励起の提案, あるいは, ランダムな一次元積層構造を用いた指向性をもつランダムレーザー発振⁹⁾等の報告があるが, われわれは欠陥領域を利用した方法として, ランダム構造内に導波路構造を配置した場合についても検討を行った.

図5(a)~(f)は, 欠陥領域として導波路をランダム構造中心に配置した場合(図1(d))の導波路端における共鳴スペクトルと周辺のランダム構造の透過スペクトルを計算した結果である. このとき, (a)(d)300 nm, (b)(e)350 nm, (c)(f)400 nmと散乱体サイズが変化するように, 図2に示したようにランダム構造の周波数窓のシフ

トに対応して、長寿命の局在モードの共鳴ピークが現れる周波数帯がシフトしている様子が確認できる。この結果は、点欠陥の場合と同様にランダム構造がミラーやフィルターとして働いた結果、欠陥領域に束縛された局在モードが現れているためと考えられる。また、100~200 THz 付近の最初の周波数窓において、低周波数側の周波数窓には共鳴ピークが観測されない理由は、周波数窓の波長に対して散乱体の相対的な厚みが十分でないために、界面からのリークにより長寿命の局在モードが存在できないことが原因と考えられる。実際、厚みを倍にすると、散乱体サイズが小さい場合でも低周波数側に共鳴ピークが現れることを確認している。

この共鳴ピークが導波路欠陥に束縛された局在モードであることを確認し、ランダム構造の周波数窓が重要な役割を担っていることを明らかにするため、共鳴ピーク (図 5 (d), 281 THz) および周波数窓外の周波数 (325 THz) において強度分布をそれぞれ計算した結果が図 5 (g), (h) である。図から明らかのように、共鳴周波数では導波路内に束縛された強度分布を示し、周波数窓と一致しない周波数においては電場強度が構造全体に広がり、ランダム構造からリークしている様子が確認できる。つまり、周波数窓と一致しない周波数帯では、ランダム構造からのリークにより短寿命の Q 値の低いモードしか存在できないが、周波数窓と一致した周波数帯においては、長寿命のモードに対して導波路を介した入出力が可能となることを示唆している。

5. 欠陥領域をもつランダム構造におけるレーザー発振

最後にこれらの欠陥領域をもつ構造において、光反応の代表例としてレーザー発振の計算を行い、欠陥領域において支配的に光反応が誘起されるかどうか検討を行った。図 6 の (a)~(c) に点欠陥、および (d), (e) に導波路欠陥をもつランダム構造におけるレーザー発振強度分布を示す。点欠陥構造の計算では、図 3, 4 で使用した構造と同じものを使用し、励起レートを閾値よりも十分高い値に設定することによって、意図的にマルチモードのレーザー発振が誘起される条件としている。結果をみると、図 4 の強度分布の結果と同様に、充填率に依存して現れるレーザー発振強度分布の異なる様子が確認でき、特に最適な充填率である 50% では、高い励起レートのために複数のモードが励起されているにもかかわらず、欠陥領域近傍で強いレーザー発振が支配的に誘起されている様子が確認できる。一方、図 6 (d), (e) の導波路欠陥では、図 5 と同じ構造を使用し、利得スペクトルの中心周波数が周波数窓と一致す

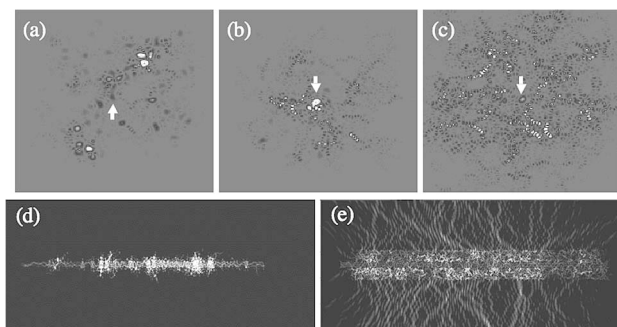


図6 (a)~(c) 点欠陥領域をもつランダム構造のレーザー発振強度分布の充填率依存性²⁶⁾. 構造は図4で計算に用いたものと全く同じものを使用し、励起レートは 10^9 s^{-1} とした。(d) (e) 導波路欠陥をもつランダム構造のレーザー発振強度分布の利得スペクトル中心周波数依存性. 構造は図5で計算に用いたものと全く同じものを使用し、励起レートと利得スペクトルの中心周波数をそれぞれ $1 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, 280 THz および $5 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, 325 THz とした. 各強度分布は各々の最大値で規格化している。

る場合としない場合について、それぞれ計算を行った。利得スペクトルが周波数窓と一致する場合の結果と、図 5 の強度分布を比較すると、複数のモードでレーザー発振が誘起されているものの、いずれも欠陥部周辺に強く束縛されたモードでレーザー発振が現れている様子が確認できる。一方、同じ構造で利得スペクトルの中心周波数を周波数窓から外した場合、周波数窓に対応した長寿命のモードではなく、リーキーなモードにおいてレーザー発振が誘起されている。このため導波路ではなく、構造全体に広がったような挙動が現れ、導波路を介した長寿命の局在モードへのアクセスが困難になっている。これらの結果から、導入する分子のスペクトルにあわせた構造の最適化が重要となることがわかる。

本稿では、不規則な構造中に不規則に現れる局在モードを制御する方法として、われわれが提案している欠陥領域を用いた局在モード制御方法を中心に紹介し、ランダム構造の最適化により誘起される局在モードを制御できる可能性を示した。このような現象は、光の波動としての特性に基づく現象であるため、例えば、近年高い注目を集めている金属表面ラフネス等の金属ナノ構造中の表面プラズモンへの応用も可能であると考えられ、物理学的な興味のみならず、従来の共振器とは相補的な特徴をもつ共振器構造として、低コストで作製が容易な光デバイスへの応用が期待できると考えている。特に作製の簡便さから、本構造に量子ドットや非線形微結晶、金・銀微粒子等の光機能性材料を簡単に導入できることから、例えば、太陽電池や光触媒フィルム、面発光素子、レジスト材、表面センサー等と

いった他分野への応用の親和性も高いことが期待でき、さまざまなランダム構造中の局在モード制御方法の提案により、応用的な報告も今後増えていくものと期待している。

文 献

- 1) D. S. Wiersma: "The physics and applications of random lasers," *Nat. Phys.*, **4** (2008) 359-367.
- 2) H. Cao: "Lasing in random media," *Wave. Random Complex Media*, **13** (2003) R1-R39.
- 3) C. Gouedard, D. Husson, C. Sauteret, F. Auzel and A. Migus: "Generation of spatially incoherent short pulses in laser-pumped neodymium stoichiometric crystals and powders," *J. Opt. Soc. Am. B*, **10** (1993) 2358-2363.
- 4) N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes and E. Sauvain: "Laser action in strongly scattering media," *Nature*, **368** (1994) 436-438.
- 5) G. V. Soest and A. Lagendijk: " β factor in a random laser," *Phys. Rev. E*, **65** (2002) 047601.
- 6) A. Kurita, Y. Kanematsu, M. Watanabe, K. Hirata and T. Kushida: "Wavelength- and angle-selective optical memory effect by interference of multiple-scattered light," *Phys. Rev. Lett.*, **83** (1999) 1582-1585.
- 7) S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov and K. Leosson: "Localization and waveguiding of surface plasmon polaritons in random nanostructures," *Phys. Rev. Lett.*, **89** (2002) 186801.
- 8) R. C. Polson and Z. V. Vardeny: "Random lasing in human tissues," *Appl. Phys. Lett.*, **85** (2004) 1289-1291.
- 9) V. Milner and A. Z. Genack: "Photon localization laser: Low-threshold lasing in a random amplifying layered medium via wave localization," *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 073901.
- 10) S. Gottardo, R. Sapienza, P. D. Garcia, A. Blanco, D. S. Wiersma and C. Lopez: "Resonance-driven random lasing," *Nat. Photon.*, **2** (2008) 429-432.
- 11) S. F. Yu, C. Yuen, S. P. Lau, W. I. Park and G. Yi: "Random laser action in ZnO nanorod arrays embedded in ZnO epilayers," *Appl. Phys. Lett.*, **84** (2004) 3241-3243.
- 12) A. L. Burin, H. Cao and M. A. Ratner: "Two-photon pumping of a random laser," *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.*, **9** (2003) 124-127.
- 13) 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.
- 14) H. Fujiwara and K. Sasaki: "Observation of optical bistability in a ZnO powder random medium," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 071115.
- 15) D. S. Wiersma and S. Cavaleri: "Light emission: A temperature-tunable random laser," *Nature*, **414** (2001) 708-709.
- 16) H. Y. Yang, S. P. Lau, S. F. Yu, A. P. Abiyasa, M. Tanemura, T. Okita and H. Hatano: "High-temperature random lasing in ZnO nanoneedles," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 011103.
- 17) H. Cao, J. Y. Xu, D. Z. Zhang, S.-H. Chang, S. T. Ho, E. W. Seeling, X. Liu and R. P. H. Chang: "Spatial confinement of laser light in active random media," *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 5584-5587.
- 18) H. Cao, J. Y. Xu, E. W. Seeling and R. P. H. Chang: "Microlaser made of disordered media," *Appl. Phys. Lett.*, **76** (2000) 2997-2999.
- 19) C. Vanneste and P. Sebbah: "Localized modes in random arrays of cylinders," *Phys. Rev. E*, **71** (2005) 026612.
- 20) G. V. Soest, M. Tomita and A. Lagendijk: "Amplifying volume in scattering media," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 306-308.
- 21) P. Sebbah and C. Vanneste: "Random laser in the localized regime," *Phys. Rev. B*, **66** (2002) 144202.
- 22) X. Jiang and C. M. Soukoulis: "Time dependent theory for random lasers," *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 70-73.
- 23) J. Liu and H. Liu: "Theoretical investigation on the threshold properties of localized modes in two-dimensional random media," *J. Mod. Opt.*, **53** (2006) 1429-1439.
- 24) H. Miyazaki, M. Hase, H. T. Miyazaki, Y. Kurokawa and N. Shinya: "Photonic material for designing arbitrarily shaped waveguides in two dimensions," *Phys. Rev. B*, **67** (2003) 235109.
- 25) C. Rockstuhl, U. Peschel and F. Lederer: "Correlation between single-cylinder properties and bandgap formation in photonic structures," *Opt. Lett.*, **31** (2006) 1741-1743.
- 26) H. Fujiwara, Y. Hamabata and K. Sasaki: "Numerical analysis of resonant and lasing properties at a defect region within a random structure," *Opt. Exp.*, **17** (2009) 3970-3977.
- 27) H. Fujiwara, Y. Hamabata and K. Sasaki: "Numerical analysis of resonant properties of a waveguide structure within a random medium," *Opt. Exp.*, **17** (2009) 10522-10528.
- 28) A. S. Nagra and R. A. York: "FDTD analysis of wave propagation in nonlinear absorbing and gain media," *IEEE Trans. Antennas. Propagat.*, **46** (1998) 334-340.

(2010年4月27日受理)