希土類イオン含有ガラス粉末ランダム媒質における アップコンバージョンレーザー発振

光システム計測研究分野　　藤原　英樹

高濃度の散乱体と発光物質から形成されるランダム媒質に励起光を照射すると，多重散乱の効果から媒質内部の微小領域に発光が閉じ込められ，レーザー発振等の非線形現象が誘起される．本稿では，希土類ガラス粉末を用いたランダム媒質を作製し，そのランダム媒質内における発光ダイナミクスを観測した結果について紹介する．

1　はじめに

微小領域に光を閉じ込める微小共振器の研究は，共振器内の原子・分子の発光過程や光反応ダイナミクスを制御する手法として注目を集めており，現在でも様々な種類の共振器を用いた研究が行われている[1，2]．これらの研究では，高い光閉じ込め効率が必要となるため，共振器内の散乱の影響を押さえる方向で研究が行われている．一方，高濃度の散乱体を含むランダム媒質においても光の多重散乱現象によって光閉じ込めを起こすことが比較的古くから指摘されており［3]，1994 年の Lawandy らによるランダム媒質におけるレーザー発振の報告を皮切りにランダム媒質を用いた光デバイス等への応用が盛んに研究されるようになってきた[4，5]．本稿では，我々が新たに作製した希土類イオン含有ガラス粉末ランダム媒質について述べ，このランダム媒質を用いたレーザー発振に関する最近の実験結果について紹介する．

2　実験

本研究では近赤外光の 3 光子励起により赤外・可視域にアップコンバージョン発光が得られるツリウムイオン（Tm^{3+}）含有フッ化ジルコニウム（ZBLAN）ガラスを用いている［6]．濃度 1 mol%のガラス板（屈折率～1.5）を粒径 1 μm 以下の粉末に粉砕し，これに散乱体として酸化チタン微粒子(粒径～250 nm，屈折率～2.6)を混ぜ，エタノール溶液中に分散させた．この上澄み溶液をカバーガラス上に数滴滴下し，室温大気下で乾燥させて厚さ 100 μm 程度の白色フィルム状の試料を作製した．励起光として Q スイッチ Nd^{3+}：YAG レーザー（1064 nm，300 kHz，70 ns)を試料に集光し，分光検出器によってランダム媒質からの発光強度の測定を行った．また，試料をピエゾステージ上に固定し，ピンホール（試料上で直径 500 nm）と光電子増倍管を用いて発光強度分布の測定も行っている（図 1）．

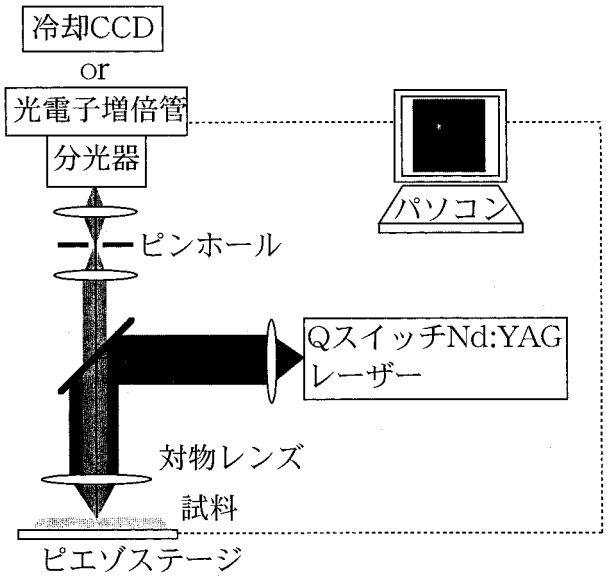

図 1　実験装置

3　結果と考察

図 2 (a)に波長 800 nm における励起光強度依存性の結果を示す．図中の●はランダム媒質からの発光強度を示し，比較として砕く前の Tm^{3+} 含有ガラス板からの発光強度を■で示している．また，図中の数字は対数プロットの傾きを示している．図から明らかなようにランダム媒質では励起光強度 0.8 W

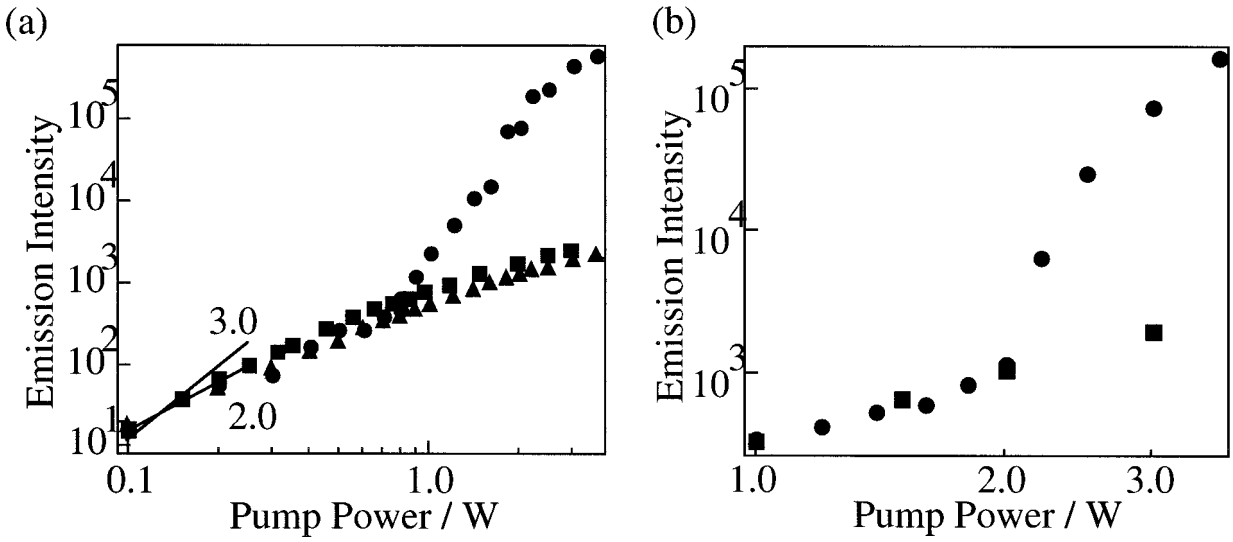

図 2　ランダム媒質（●，▲），ガラス板（■）の励起光強度依存性
観測波長(a) 800 nm，(b) 480 nm

付近にしきい値が確認できるが，ガラス板ではしきい値は観測されず，発光強度の飽和のみが観測されている．また，励起光強度が低い所ではランダム媒質，ガラス板からの発光とも 3 次の傾きを示していることから 3 光子励起によるアップコンバージョン発光であることが分かる．また，図中の▲は同じランダム媒質の異なる場所を測定した場合である．▲ではしきい値が現れていないことから，ランダム媒質の光閉じ込めの状態は場所毎に異なっているものと考えられる．さらに図 2 (a)の●と同じ場所において波長 480 nm 付近の励起光強度依存性を同様に測定すると，やはりしきい値（～2.0 W）が現れているのが分かる（図 2 (b)●）．このような現象はランダム媒質による光閉じ込め効果に起因しているものと考えられるので，ランダム媒質の発光強度の空間分布測定を行い，局在化の様子を観測した．図 3 (a)～(c)に結果を示す．各図とも同じ場所を走査し，励起光強度以外の条件は同じである．図の中心付近に現れる発光スポットに注目すると，励起光強度の変化に対して，発光強度の局所的な増大と発光スポットの先鋭化が観測できる．このような発光スポットの非線形な変化の原因としてまず考えられるのが希土類イオンの多光子過程の影響である．この場合には励起光強度の増大に伴って試料全体の発光強度が増加すると考えられ，各発光スポット間の強度の大小関係は変化しないものと思われる．しかし，図中の中心付近と右上の発光スポットの励起光強度に対する挙動を比べると，励起光強度の増加に伴って発光スポット間の大小関係が逆転している様子が分かる．この様な挙動は多光子励起過程だけでは説明できないことから，ランダム媒質の光閉じ込め効果に起因したレーザー発振が誘起されていると考えられる．

4　おわりに

以上の結果から，作製したランダム媒質においてレーザー発振が誘起されていることが確認された．今後は，このランダム媒質の特性評価を行い，光閉じ込め機構について明らかにした後，光局在特性を積極的に制御しながらランダム媒質内における発光過程制御や光デバイス等への応用に向けた研究を展開していきたいと考えている．

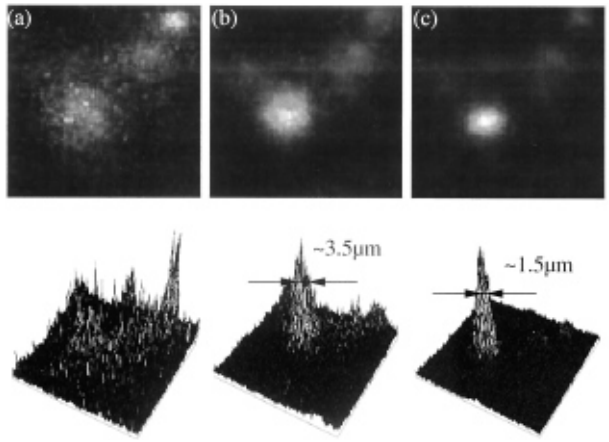

図 3　ランダム媒質の発光強度分布
励起光強度(a) 0.5，(b) 2.0，(c) 5.0 W

［参考文献］

［1］ H. Yokoyama, M. Suzuki, and Y. Nambu, Appl. Phys Lett. **58**, 2598 (1991).

［2］ H. Fujiwara, K. Sasaki, and H. Masuhara, J. Appl. Phys. **85**, 2052 (1999).

［3］ S. John, Phys. Rev. Lett. **53**, 1492 (1984).

［4］ N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, Nature **368**, 436 (1994).

［5］ H. Cao, J. Y. Xu, D. Z. Zhang, S.-H. Chang, S. T. Ho, E. W. Seeling, X. Liu, and R. P. H. Chang, Phys. Rev. Lett. **84**, 5584 (2000).

［6］ H. Fujiwara and K. Sasaki, J. Appl. Phys. **86**, 2385 (1999).