

光共振用微小球

東京工業大学 大学院理工学研究科

柴田 修一

Microspheres of Optical Cavity Structure

Shuichi Shibata

Tokyo Institute of Technology

1. はじめに

発光からレーザー発振への進展は、光共振構造の導入により可能となった。市販レーザーでは、2枚の鏡を向かい合わせたファブリー・ペロータイプの光共振器が適用されている。共振器中にレーザー活性物質を設置し、これを外部から電氣的あるいは光学的に励起する。生じた光を共振器中に閉じ込めレーザー発振動作を行わせる。一方、光ファイバーのようなコア・クラッド構造を有する光導波路に希土類金属イオンなどを添加し、光増幅器、あるいはレーザーとして用いることも広く行われるようになってきた。微小な光デバイスの性能を極限まで高めるためには、「微小な空間に光を効率よく閉じ込める」ことがキーポイントとなる¹⁾。現在、最も光閉じこめ効率(Q値)の高い共振器構造は球状を取ることである。このため、ガラスやポリマーなど可塑性の高い材料からなるミクロンサイズの球状微粒子にレーザー活性な原子・分子を添加し、「球状光共振器」としての機能を実現させ、光応用への道を開こうとする試み

が始まっている。

微小球光共振器を具体的にイメージしてもらうために、図1に微小球レーザー発振の模式図を示した。微小球(マイクロメートルサイズ)の屈折率 n_1 と周囲を取り巻く媒質の屈折率 n_2 は($n_1 > n_2$)の関係にある。入射した励起用レーザー光は、微小球内で活性分子から蛍光を生じさせる。その蛍光が界面近傍で全反射を繰り返しながら微小球の内面を多数回めぐることになる。この時、位相がそろった波長の蛍光のみに共振が生じ、これがレーザー発振光となる。この

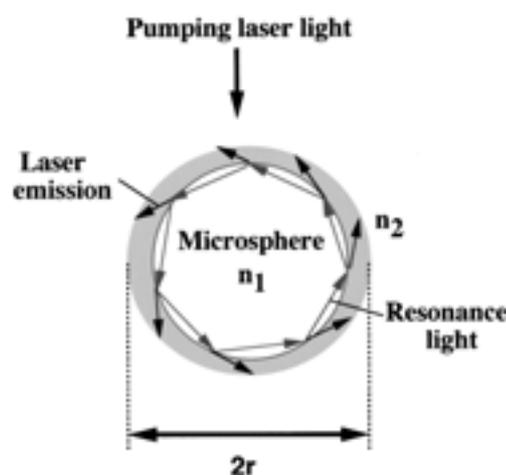


図1 微小球レーザー発振の模式図

〒152-8550 東京都目黒区大岡山 2-12-1
東京工業大学大学院理工学研究科
TEL 03-5734-2522
FAX 03-5734-2845
E-mail: sshibata@ceram.titech.ac.jp

光共振効果はレーザー発振にとどまらない。光と物質の相互作用が強まることにより、従来実現できなかった強い光電場内での物理現象が可能になる²⁾。強い光閉じ込め (Q 値 $> 10^4$) の条件下では、レーザーの発振閾値の低下¹⁾や、非線形感受率の実質的増大³⁾などの特異な現象が誘起される。

球状光共振器の歴史は、意外に古く最初のレーザー発振は、1961 年に行われている⁴⁾。液体窒素に浸けた数 mm 直径の固体球 (Sm^{2+} をドープした CaF_2) をキセノンフラッシュランプで励起し、レーザー発振を確認している。Maiman のルビーレーザーの発振⁵⁾が 1960 年であることを考えると、現在のファブリー・ペロー共振器レーザーとほぼ同時期に研究が開始されたことになる。通常のレーザーは、その後、急激な発展をとげたが、球状レーザーは、当時の技術水準では実用化に立ちふさがる壁が厚く、長期間にわたって、光散乱と光共振に関する基礎的研究が続けられた。

微小球レーザーに関する新展開は 1980 年代からである。1984 年、色素を添加した液滴 (粒

径 $60 \mu\text{m}$)⁶⁾、さらに、1990 年代、各種の色素添加プラスチック球においてレーザー発振が報告されている^{7)~9)}。著者は 1995 年、有機・無機ハイブリッド材料からなる球状微粒子にレーザー色素を含有させレーザー発振に成功した¹⁰⁾。一方、光通信の展開とともに現れたリング型光ファイバレーザー¹¹⁾、平面光回路として作製されたリング光共振器¹²⁾等も、もう一つの球状共振器の進展として挙げなければならない。近年、マイクロリング共振器 (microring resonator) での光回路が提案されている¹³⁾、これらはすべて微小球光共振器で置き換えることができる。むしろ、作りつけのリングとしてよりも、任意に配置できる柔軟性を考えると、光源、波長選択 (フィルター)、光スイッチの基本要素からなる光回路を各種微小球と光導波路から構成することが望ましい。図 2 に微小球と光導波路からなる光回路の概念図を示す。これからの研究展開では、(a)粒径制御や光安定性など微小球そのものの特性改善と、(b)微小球を適用した光回路への進展の 2 つが重要課題となっている。

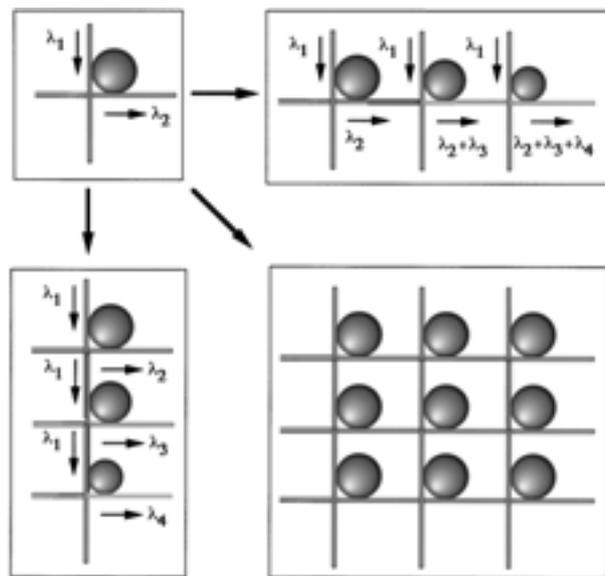


図 2 微小球と光導波路からなる光回路

ここでは、まず超音波振動させたオリフィスから原料の希釈液を空气中に噴出させ、微小液滴を得る「振動オリフィス法」による微小球の合成技術と、作製した微小球の光学測定について記述する。次に、光リソグラフィーにより自作した光導波路を用いた微小球の励起実験について述べ、最後に将来の展開について言及する。

2. 実 験

有機無機ハイブリッド材料からなる微小球の作製工程の概略を説明する。詳しくは既報を参照していただきたい^{14),15)}。フェニルトリエトキシシラン (PTES) などのシランカップリング剤を出発原料として、塩酸を触媒としてこれらを加水分・縮重合させオリゴマーを合成する。このオリゴマーと色素などの添加剤をアルコールで希釈した液を用い、「振動オリフィス法」により粒径のそろった微小球を作製した(図3)¹⁶⁾。超音波振動させたオリフィス(孔径10~20 μm)からオリゴマー希釈液を空气中に噴出させ、微小液滴を得る。この微小液滴を乾燥ガスで輸送することにより飛翔中にある程度乾燥・収縮させ、アンモニア水溶液中に捕集して固化させた。

微小球の粒径 d は、図3の右側に示した式によって決めることができる。ここで R は原料溶液の流速(噴出速度)を、 C は原料液での溶質の体積濃度を、 f (Hz) は振動周波数を表す。 R , f , C を変化させて粒径の制御を行うことができる。原料液のアルコール希釈度を変えることにより、約4 μm~10 μmの範囲にわたって、粒径をそろえながら(±0.1 μm)色素含有微小球を作製した。

微小球の屈折率は、光閉じ込めの原理(全反射)に影響を与える重要なパラメータである。実際の素子では低屈折率のクラッド材料で微小球を包むことになるため、微小球そのものは高い屈折率であることが望まれる。実用上、相対屈折率 $n_r \geq 1.5$ を満足するためには、微小球そのものは $n \geq 2.0$ を満たす必要がある。高屈折率化のため、ハイブリッド材料にTiアルコキシドを高濃度に添加し、振動オリフィス法で微小球を作製した。その後、加熱処理によって $n_D > 2.0$ の微小球を得ている¹⁷⁾。

図4に光共振効果を確認するための測定用光学系を示す。光源にはパルスQスイッチNd:YAGレーザーの第2高調波(波長532 nm, 繰り返し周波数10 Hz)を用いた。顕微鏡への励起光の導入と、微小球からの発振光の

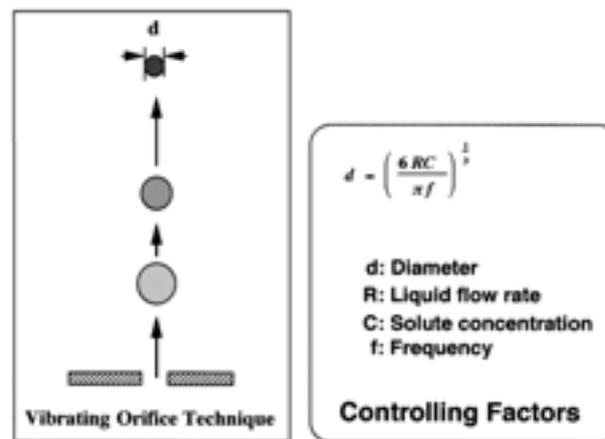


図3 振動オリフィス法による微小球作製の原理図

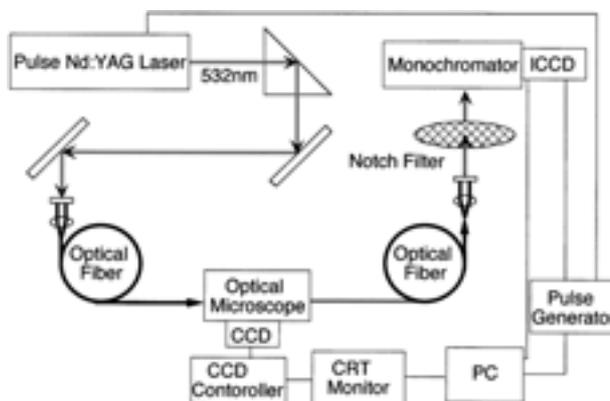


図4 光共振効果（レーザー発振）のための測定用光学系

取り出しには、シリカガラス光ファイバーを用いた。ノッチフィルターで励起光を除いた後、モノクロメータを通し、ICCDアレイによって発振光を検出した。レーザー光は数 nsec のパルスのため、検出器のゲートの開閉とレーザーの発振は同調させてある。

フォトリソグラフィーにより微小球励起用光導波路を作製した¹⁸⁾。ゾルに紫外線硬化剤を添加し、シリカガラス基板上にディップコーティング法によりハイブリッド膜を作製した。この膜をプレベイクした後、フォトマスクをのせて紫外線を照射し、つづいて有機溶剤によって未照射部のリーチングを行った。最後に窒素雰囲気下、90°Cでポストベイクを行い、光導波路を作製した。硬化剤添加量や紫外線照射時間等に関してパターン形成の最適作製条件を適用している。

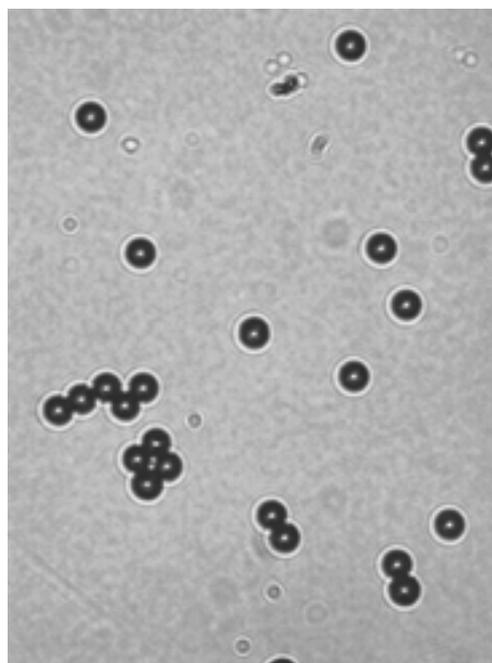


図5 色素含有微小球の顕微鏡写真（粒径は5 μ m）

3. 微小球の諸特性

図5には振動オリフィス法により作製した色素含有微小球の顕微鏡写真を示す。粒径がそろっていることが見て取れる。微小球を対象とした光学実験、特に光共振効果実験では、再現性あるデータを得るために粒径の精密制御が不可欠な条件となる。

図6(a), (b)には色素添加微小球の励起実験での光安定性の結果を示す。(a)には、発振スペクトルの変化を、照射したパルス数に対して10万発まで示してある。ハイブリッド微小球に色素を閉じ込め、色素濃度と励起パワーを最適化することにより、大幅に寿命が改善される

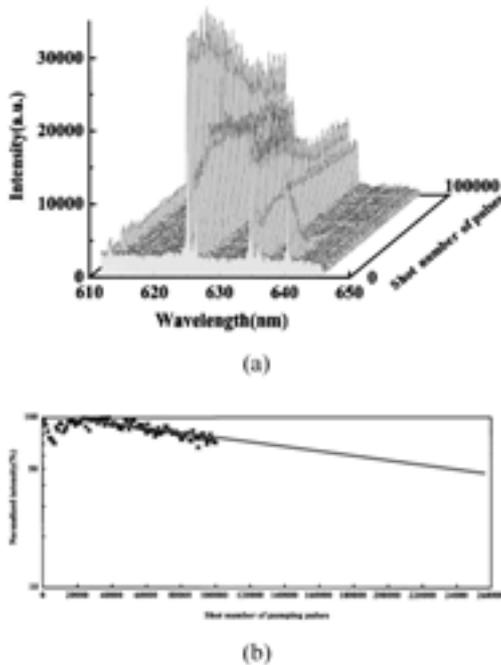


図6 色素含有微小球の光安定性実験
 (a) 発振スペクトルの経時変化（照射パルス数に対して示した）。
 (b) 発振パワー（波長 636 nm）の外挿（照射パルス数に対するもの）。

ことが判明した。発振ピークの減少を外挿すると（図 6(b)）、初期発振強度を 50% 減少させるためには、26 万発ものパルスを照射することになる（10 Hz で 7~8 時間の照射に相当する）。レーザー照射に弱い（通常は数分で劣化する）ことで知られている色素を対象にしていることを考えると驚かされる結果である。

さらに、より実用を意識して、これらの微小球を光導波路を用いて励起する試みも進行している¹⁸⁾。図 7 に示すように光ファイバーで励起光を導波路に導き、導波路に接するように配置した微小球の励起実験に成功している。

今まで述べてきた励起実験は、微小球と外界の相対屈折率差 n_r を大きくするため、すべて空気中で行った。低い屈折率のクラッド層で覆いながら同様の結果を得るためには、高屈折率微小球が必要となる。図 8 には、ハイブリッ

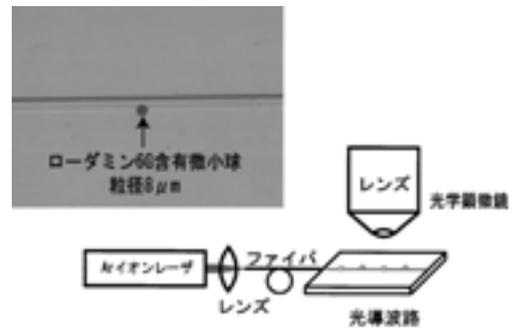


図7 光導波路による微小球の励起実験

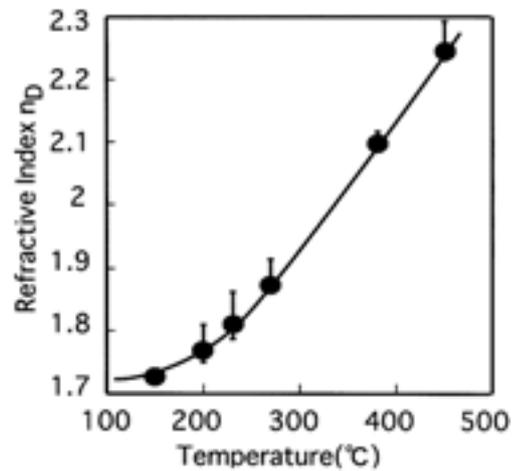


図8 加熱処理による Ti 含有微小球の高屈折率化

ド材料に高濃度に Ti を添加し、さらに加熱処理によって微小球の高屈折率化を実現した例¹⁷⁾を示す。100°C 以下では $n_D = 1.7$ 、約 400°C の加熱処理では、微小球の形状を損なうことなく 2.0 以上の高屈折率を実現している。加熱処理を実施する際には有機色素は使用できない。現在、温度 400°C に耐えるレーザー活性な添加物を試みている。

4. まとめと将来の展開

振動オリフィス法によって粒径のそろったマイクロメータサイズの色素含有・有機無機ハイ

ブリッド微小球を作製できることを明らかにし、その微小球の光共振効果実験（レーザー発振）を報告した。光劣化の激しいものの代表とされていた色素も、本研究のような微小球では予想以上の光安定性を示すことがわかってきた。また、光導波路との組み合わせも可能であることが実験を通じて確認された。

一方、球状光共振器としての性能は、いかに高い光閉じこめ効率（ Q 値）を示すかである。真球度、光学的均一性、高い透明度、機能性物質の最適添加などが、高い Q 値を実現するための因子である。材料系は異なるが、シリカガラス微小球（粒径数百 μm ）において、 $Q = 10^{10}$ の値が報告されていることは注目に値する¹⁹⁾。「どこまで光を閉じこめることができるか」の上限値はまだまだ上にあり、ガラスはその材料として最有力候補である。

最後に、応用の観点から微小球光共振器を眺めてみよう。室温で合成でき、色素のように熱に弱い分子も導入できることや、完全に近い球形であることを考えると微小球は、医療方面、センサーや表示素子などへの応用分野を開くことになる。近接場光顕微鏡の「共振球プローブ」としての使用²⁰⁾やフォトニック結晶の構成要素になる可能性も示唆される。さらに、非線形材料を球に閉じ込めると光双安定性を示すことから²¹⁾、微小光スイッチも応用として手の届く範囲にある。各種微小球と導波路からなる「将来の光制御技術」を夢見ることができる。著者は、実用的観点から眺めた時、ナノ構造を積み重ねた複雑なフォトニック結晶よりも、むしろ微小球光共振器の方が、究極の「光を閉じ込める機構」として有効ではないかとさえ考えている。

参考文献

- 1) 横山弘之；応用物理，61，9（1992）。
- 2) P. W. Barber and R. K. Chang; "Optical Effects Associated with Small Particles", World Scientific, Singapore, 1988.
- 3) V. B. Braginsky, M. L. Gorodetsky and V. S. Ilchenko; Phys. Lett. A, 137, 393 (1989).
- 4) C. G. B. Garrett, W. Kaiser and W. L. Bond; Phys. Rev. 124, 1807 (1961).
- 5) T. H. Maiman; Nature, 187, 493 (1960).
- 6) H. M. Tzeng, K. F. Wall, M. B. Long and R. K. Chang; Opt. Lett., 9, 499 (1984).
- 7) M. Kuwata-Gonokami, K. Takeda, H. Yasuda and K. Ema; Jpn. J. Appl. Phys., 31, L99 (1992).
- 8) H. Misawa, R. Fujisawa, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara; Jpn. J. Appl. Phys., 32, L788 (1993).
- 9) H. Taniguchi, T. Fujiwara, H. Yamada, S. Tanosaki and M. Baba; Appl. Phys. Lett., 62, 2155 (1993).
- 10) S. Shibata, M. Yamane, K. Kamada, K. Ohta, K. Sasaki and H. Masuhara; 8th Int. Workshop on Glasses and Ceramics from Gels, Faro, Portugal, Sept. 18-22, 1995. (J. Sol-Gel Sci. & Tech., 8, 959 (1997))
- 11) 「エルビウム添加光ファイバ増幅器」須藤昭一編，オプトロニクス社，1999年。
- 12) S. Suzuki, K. Shuto, Y. Hibino, IEEE Photo. Tech. Lett., 4, 1256 (1992).
- 13) B. E. Little and S. T. Chu; Optics and Photonics News 11, 24 (2000).
- 14) S. Shibata, T. Yano and M. Yamane, SPIE vol. 3136, Sol-Gel Optics IV, 68 (1997).
- 15) S. Shibata, T. Taniguchi, T. Yano, A. Yasumori and M. Yamane; J. Sol-Gel Sci. & Tech., 2, 755 (1994).
- 16) S. Shibata, A. Tomizawa, H. Yoshikawa. T. Yano and M. Yamane; SPIE vol. 3943, Sol-Gel Optics V, 112 (2000).
- 17) Y. Arai, T. Yano, S. Shibata, Appl. Phys. Lett., 82, 3173 (2003).
- 18) 高橋，荒井，矢野，柴田，The 13th Meeting on Glass for Photonics, p31, (2003).
- 19) V. S. Ilchenko, X. S. Yao and L. Maleki; SPIE vol. 3611, 190 (1999).
- 20) 大津，河田「近接場ナノフォトニクスハンドブック」，オプトロニクス社 1997年。
- 21) R. K. Chang and A. J. Campillo; "Optical Processes in Microcavities", World Scientific, Singapore, 1996.