HOKUGA 北海学園学術情報リポジトリ
学校法人北海学園
北海学園大学
北海商科大学

タイトル	レーザー誘起表面凹凸を用いた新規ランダムレーザー光源
著者	藤原，英樹; Fujiwara，Hideki
引用	工学研究：北海学園大学大学院工学研究科紀要(22): 19-27
発行日	2022-09-30

Hokkai-Gakuen Organization of Knowledge Ubiquitous through Gaining Archives.

研究論文

レーザー誘起表面凹凸を用いた新規ランダムレーザー光源

藤　原　英　樹*

Development of novel random laser source by using a laser-induced surface roughness

Hideki Fujiwara*

Abstract

本研究では，高価な装置も複雑なプロセスも必要とせず，短時間のレーザー照射だけで半導体表面にランダムレーザーを作製する新規な手法についての最近の研究成果を紹介する．レーザー誘起表面凹凸構造を利用することにより，紫外発光材料であるGaN基板だけでなく，近赤外発光材料であるGaAs基板表面にも直接ランダムレーザーを作製できることを示し，本手法の汎用性を示した．また，機能性材料をコートした半導体基板を用いることで，半導体基板表面に機能性を付加した低しきい値のランダムレーザーの作製にも成功した．本手法は，簡便かつ安価に半導体基板表面にレーザー素子を作製できることから，既存の半導体加工プロセスを併用することにより，外部変調機能を有する電気駆動ランダムレーザーの実現に向けた重要な一歩となると期待される．

1．まえがき

ランダムレーザーは光の多重散乱に基づくフィードバックにより動作し，明確な共振器構造を必要としないユニークなレーザー発振現象である[1-3]．微粒子凝集や表面ラフネスなどの不規則な散乱体構造においてレーザー発振を誘起できるため，精密な加工を必要とせず，安価かつ容易に作製が可能となる．近年では，高屈折率ナノ粒子分散色素溶液や半導体ナノ粒子凝集膜，半導体ナノワイヤ・アレイ構造，色素含有液晶，色素含有生体試料など，様々な形態のランダムレーザーが報告されている[4-8]．このランダムレーザーは，多重散乱に基づくレーザー発振現象であるため，低い空間コヒーレンスと高輝度を同時に実現する，つまり電球などの熱光源の低空間コヒーレンスと，レーザーの擬似単色かつ高輝度の両方の性質を併せ持つユニークな光源として注目することができる[9]．この性質により，レーザーでありながら散乱による無秩序な干渉の強度ムラ（スペックル）がなく，全視野を高輝度に照明できるレーザー光源として利用できるため，高速・高精度な全視野イメージングやセンサー，あるいは，殺菌消毒用の新規なレーザー光源として期待されている．また，光フィードバックを与えるような無秩序な構造は，光を吸収し，閉じ込める構造としても有用となるため，太陽電池や光触媒の光捕集構造としての応用も報告されている[10-12]．しかし，特に光源応用を目指す場合，従来のランダムレーザーの多くは，散乱体の凝集膜など，産業応用上重要となる電気駆動に適した構造ではなく，そのほとんどが光学励起によりレーザー発振を誘起している．また，無秩序な構造を利用するため，発振波長や空間パターンなどの発振モードの制御が難しい，しきい値が高い，深紫外や赤外領域での報告例が少ない，といった問題が存在する．発振モード制御に関しては，個々の散乱体の共鳴特性制御による発振波長制御や[13,14]，電場による液晶配向制御や熱的・機械的な構造変化による発振モード制御など[15-17]，幾つかのグループから提案されているが，いずれも光学励起かつナノ粒子凝集膜を用いた報告がほとんどであり，もう一つの重要な

* 北海学園大学大学院工学研究科電子情報生命工学専攻
Graduate School of Engineering (Electronics, Information, and Life Science Eng.), Hokkai-Gakuen University

課題である電気駆動化に適した半導体基板上への作り込みが可能な方法ではない．

このような状況に対し，近年，ナノ粒子凝集膜ではなく，電気駆動化が容易だと期待される 2 次元構造のランダムレーザーに注目が集まっている．しかし，トップダウン的に作製した乱れたフォトニック結晶や自発的に形成された半導体基板中の欠陥ピットを散乱体に用いた報告はあるものの[18,19]，発振モード制御は高価で大型な装置を必要とするトップダウン的な方法以外では報告がなく[20]，構造作製後に発振モードを自在に変調・制御することも難しい．

この問題を解決するため，当研究室では，レーザー誘起周期表面構造（Laser-induced periodic surface structure；LIPSS）に注目している．LIPSS は，直線偏光の高強度パルスレーザー（一般的にはフェムト秒パルスレーザー）を基板表面に数秒間集光照射すると，アブレーションによって基板表面に瞬間的にプラズマが誘起され，プラズマ中のプラズモン干渉による光場によって物質の偏りが起こり，周期構造が形成される（**図 1**）．縦波の干渉に起因するため，波長オーダー以下の周期構造が照射偏光と垂直な向きに形成される[21-23]．また，波長や強度，集光角など，照射条件の制御によりその形状を制御できる利点を持つだけでなく，半導体以外にも，ガラスや高分子，金属など，様々な材料基板表面に LIPSS を形成した報告が存在するが，回折格子などの受動的な光学素子応用しか報告がない．

本研究では，この LIPPS を利用した電気駆動ランダムレーザーの実現を目指し，半導体基板上に直接作製可能な 2 次元的なランダムレーザーの作製方法の確立と，その低しきい値化やモード制御技術の確立を行うことを目指した．このようなレーザープロセスでは，レーザー照射条件の制御によって比較的容易に表面構造を制御できるため，高強度レーザーを基板表面に数秒照射するだけで，低しきい値化や発振モード制御が可能となると期待される．また，基板上に機能性材料やドープ材料をあらかじめコートし，表面構造を作製すると，ランダムレーザーに何らかの機能を付与することも可能となると期待される．

図 1　レーザー誘起表面凹凸構造作製法による半導体基板表面上へのランダムレーザー素子作製の概念図．

2．実験系と試料

紫外域用および近赤外域用の発光材料として市販の窒化ガリウム（GaN）基板（バンドギャップエネルギー　～3.4 eV）およびヒ化ガリウム（GaAs）基板（バンドギャップエネルギー　～1.43 eV）をそれぞれ使用した．この基板を顕微鏡ステージ上にセットし，高強度の直線偏光パルスレーザーを集光照射することで，基板表面に擬似周期構造を作製した．照射レーザーの波長と強度，時間をパラメータとし，異なる照射条件で構造を作製した後，顕微分光装置を用いて各構造のレーザー発振特性について測定を行った．また，電子顕微鏡による画像測定により形状の評価を行った．

3．半導体基板上への表面凹凸構造形成と発光特性

3.1　GaN 基板を用いた紫外ランダムレーザー

紫外発光材料として知られている GaN 基板を用いて実験を行った．半導体基板上に高強度紫外パルスレーザー（355 nm，1 kHz，300 ps）を 10 倍対物レンズで集光照射することで表面凹凸構造を作製した（集光スポット径：20 μm）．**図 2** に GaN 基板表面に作製した表面凹凸構造の顕微鏡画像と電子顕微鏡画像を示す．構造作製用のレーザー強度は約 1 GW/cm^2，照射時間を 10 秒としている．図 2 (b)，(c) を確認すると，高強度パルスレーザー照射によって，横偏光照射の場合には縦方向

図 2　高強度の直線偏光パルスレーザー照射後の GaN 基板．(a) 光学顕微鏡像．(b，c) レーザー照射箇所の電子顕微鏡画像．図中の矢印は照射レーザーの直線偏光の向きを示す．

の縞が生じ，縦偏光照射の場合には横方向の縞が生じており，照射偏光とは垂直な向きに擬似的な周期構造が作製されている様子が確認できる．この結果は，レーザー誘起周期表面構造（LIPSS）の先行研究の結果とよく一致しており[21-24]，パルスレーザー照射による瞬間的なプラズマ発生とプラズマ中での縦波（プラズモン）の干渉が構造形成の原因であると考えられる．しかし，フェムト秒パルスレーザー照射を用いた先行研究に比べ，乱れた周期的な構造をしている．これはフェムト秒パルスよりもパルス幅の長いサブナノ秒パルスを実験で用いており，プラズモン干渉縞形成中にも継続して構造がアブレーションされるため，干渉縞が不安定になった結果であると推測される．実際，LIPSS の先行研究においても照射パルスレーザーのパルス幅が増加するとともに LIPSS 構造ができにくくなることが報告されている．

試作した構造の光学特性を評価するため，1/10 程度に強度を下げた同じ紫外パルスレーザーを励起光源として構造を励起し，発光スペクトルの励起光強度依存性を測定した．比較として，構造を作製していない GaN 基板の平坦な表面からの発光特性も同様に測定を行った．これらの結果を**図 3** に示す．表面構造の無い平坦な部分では，波長 370 nm 付近に一般的な GaN のブロードな発光スペクトルが確認され，励起光強度の増大とともに発光スペクトル強度が増大していく様子が確認できる（図 3 (a)）．一方，表面凹凸構造を作製した部分では，励起光強度の増大に伴い，ブロードな発光スペクトルが増加するとともに，ある励起光強度を超えるとブロードな発光スペクトル上にシャープな発光ピークが現れる様子が確認でき，表面構造由来の現象が起きていることがわかる（図 3 (b)）．この発光ピーク強度を励起光強度に対してプロットした結果が図 3 (c) である．白丸が平坦な GaN 基板，黒丸が表面構造を持つ GaN 基板からの 368 nm 付近の発光強度を示している．平坦な GaN 基板では，発光強度が弱く，励起光強度に対して単調に増加していく様子が確認できる．一方，表面構造のある GaN 基板では，励起光強度に対して単調な増加に加え，強度が 80 MW/cm^2 超えると急激に発光強度が増大するしきい値を示す．これらの結果から，表面凹凸の形成によるランダムなフィードバックにより，GaN 基板表面でレーザー発振を誘起することに成功したといえる．

図 3　(a) レーザー照射前の GaN 基板の発光スペクトルの励起光強度依存性．(b) レーザー照射による表面構造の発光スペクトルの励起光強度依存性．図中の写真は表面構造からの発光の様子．(c) 発光強度の励起光強度依存性．○：GaN 平坦基板，●：GaN 基板の表面構造．

次に，構造作製用レーザーの照射強度・時間を変化させながら同様の実験を繰り返し行い，ランダムレーザー発振の低しきい値化を試みた．照射時間を 0.1，1，10，100 秒と変えながら，構造作製用の照射パワーを 5〜15 mW の範囲で変化させて構造を作製し，レーザー発振の評価を行った．その際，構造のばらつきも評価するため，1 つの作製条件につき，10 個の構造を作製した．その結果を**図 4** に示す．全体の傾向からは，照射時間が短い場合，構造作製に必要なエネルギーを賄うために，全体的に高い照射パワーを必要とする一方，照射時間が長い場合には，低い照射パワーでランダムレーザーを作製できることがわかる．しかし，照射パワーが強すぎると，作製された表面構造が破壊されるために擬似周期構造が得られず，レーザー発振を確認できない（図中の青色の領域）．同様に，照射パワーが弱すぎる場合，表面構造ができないためにやはりレーザー発振を確認できない（図中の緑色の領域）．実験の結果，照射パワー 8 mW（800 MW/cm^2），照射時間 10 s においてしきい値が 0.6 mW（60 MW/cm^2）まで低下することを確認し，最適な作製条件が存在することが確認できた．これらの結果から，高強度パルスレーザーを数秒照射するだけで，GaN 基板表面にランダムレーザーを誘起できる新しいレーザープロセスを確立することができたと言える．

図 4　GaN 基板表面凹凸構造ランダムレーザーのしきい値のレーザー照射強度・時間依存性．図中の影の部分は発振が確認できなかった条件を示す．

3.2　GaAs 基板を用いた近赤外ランダムレーザー

本手法の汎用性を確認するため，近赤外領域でレーザー発振の報告のある GaAs 基板にも本手法を適用し，ランダムレーザー発振の確認を行った．当初，GaN 基板で使用した光学系と紫外パルスレーザーをそのまま流用してランダムレーザーの誘起を試みたところ，どのようなレーザー照射条件でもレーザー発振は確認できなかった．これは，GaAs のバンドギャップエネルギーよりも紫外波長のパルスレーザーのエネルギーが高すぎ，余剰の光吸収エネルギーが熱に変換され，この熱により擬似周期構造が破壊･溶融されるため，レーザー発振を誘起できなかったと考えられる．このため，研究室内で実験に使用できるパルスレーザーのうち，GaAs のバンドギャップにできるだけ近いエネルギーを持つレーザーとして，緑色パルスレーザー（532 nm，5 kHz，700 ps）を実験に用いた．GaN 基板の実験と同じ光学系を用い，緑色パルスレーザーを GaAs 基板に集光照射したところ，図 5 に示すようにレーザー照射によって表面構造を作製した箇所から近赤外ランダムレーザー発振が誘起される様子を確認した．この結果を踏まえ，ランダムレーザーの低しきい値化を達成するためのレーザー照射条件の探索を行った結果を図 6 に示す．GaN 基板の時と同様に，高パワーで短時間，あるいは，低パワーで長時間のレーザー照射により，レーザー発振を誘起できる表面凹凸構造が形成される様子が確認できる．特に 12 mW のレーザーパワーで，0.3 秒照射時，あるいは，10 mW のレーザーパワーで数秒の照射時にレーザー発振の観測確率が 100％となり，かつ，低いしきい値を達成できることがわかった．さらに表面凹凸構造の様子を確認するため，照射時間を 10 秒に固定し，照射レーザーパワーを 8，10，14，18 mW とした時の表面構造の電子顕微鏡画像を確認した（図 7）．結果を見ると，8 mW と 10 mW のレーザーを照射した場合，表面に擬似周期構造ができている様子が確認できる．14 mW と 18 mW でも擬似的な周期構造ができている箇所が見られるが，この他に GaAs 基板に周期

図 5　(a) レーザー照射前，(b) 照射後の GaAs 基板表面の顕微鏡画像．矢印はレーザー照射位置を示す．(c) レーザー照射前の GaAs 基板の発光スペクトルと，(d) レーザー処理後の発光スペクトル．

図 6　しきい値の作製条件依存性．図中の数字が照射パワーを示し，グラフの横軸がレーザー照射時間を示している．図中の赤丸，緑丸，青丸はそれぞれ発振確率が 90–100%，50–90%，50% 以下の場合を示している．

図 7　レーザー照射後の GaAs 基板の電子顕微鏡画像．図中の白矢印は入射光の偏光方向を示し，白線は 10 μm を示す．照射レーザーパワー：(a) 8，(b) 10，(c) 14，(d) 18 mW.

図 8　発光スペクトル（上段）と発光ピーク強度の励起光強度依存性．作製レーザーパワーと照射時間はそれぞれ，(a) 16 mW, 60 ms, (b) 12 mW, 600 ms，(c) 10 mW，3 s，(d) 8 mW，10 s である．図中の数字と矢印は繰り返し励起レーザーパワーを変化させた時の測定順序を表す．

構造とは別の穴が開き始めている様子が確認できる．これらの結果と先の図 6 の結果を比較すると，8 mW と 10 mW 照射時にはランダムレーザーが確認でき，14 mW と 18 mW では発振は確認できない．つまり，擬似周期構造がランダムなフィードバックを与え，ランダムレーザー発振を誘起するのに対し，高パワー照射で GaAs 基板へのダメージが起きると，レーザー発振が起きにくくなっていると理解できる．

最後に比較的低しきい値の近赤外レーザー発振が確認できる条件において，発光スペクトルの励起光強度依存性を確認した．表面凹凸構造を作製するためのレーザー照射条件を図 6 の結果を参考に決定し，照射パワーと照射時間をそれぞれ，(16 mW，60 ms)，(12 mW，600 ms)，(10 mW，3 s)，(8 mW，10 s) の組み合わせで作製した試料を用意した．図 8 に発光スペクトルと発振ピークの励起光強度依存性を示す．いずれの条件においても波長 870 nm 付近にシャープな発光ピークを確認し，レーザー発振が誘起できることを確認した．その後，レーザー発振の安定性を確認するため，励起光強度を増加させる方向に変化させながら測定を行った後，今度は励起光強度を下げながら確認し，最後にもう一度励起光強度を上げて測定を行った．その結果，(16 mW，60 ms) の条件を除き，いずれの場合も同じ経路を通り，安定したレーザー発振が誘起できていることが確認できる．し

かし，（16 mW，60 ms）の条件では，最初はレーザー発振が確認できるが，複数回の励起レーザー照射により発振が停止する様子を確認した．この現象は，高パワー照射による基板の破壊を抑制するために極短時間の照射を行う必要があるが，あまりに短時間の照射では，表面構造が安定せず，微弱な励起光によって構造がさらに変化してしまうことを示している．よって，安定かつ低しきい値の近赤外レーザーの作製には，数秒程度のレーザー照射が必要となることが分かった．

以上の結果から，本手法が紫外発光材料の GaN 基板だけでなく，近赤外発光材料である GaAs 基板にも適用できることから，利得媒質となる半導体基板の種類に応じて照射レーザー波長を選択することにより，様々な半導体基板上に直接ランダムレーザーを描画可能な汎用的なレーザープロセス手法であることを確認した．また，高価な装置も複雑な加工プロセスも必要とせず，短時間のレーザー照射だけで半導体基板表面にランダムレーザー素子を作製できることから，将来的には既存の半導体加工プロセスを併用することにより，ランダムレーザーの電気駆動化も可能となると期待している．

4．磁性薄膜コート GaN 基板上への表面凹凸構造の形成と発光特性の外部磁場制御

レーザープロセスを用いた簡易な手法により，一括で半導体基板表面に構造を作製するだけでなく，低しきい値化のための構造最適化と発振モードの磁場制御を同時に実現する新しい作製手法の提案を行った（**図 9**）．実験では，磁場応答を誘起するための磁性体として NiFe 合金薄膜（膜厚　～100 nm）を GaN 基板上にスパッタリングによりコートした試料を用いた[25]．この NiFe 薄膜コート GaN 基板に高強度の直線偏光紫外パルスレーザー（355 nm，1 kHz，300 ps）を 40 倍対物レンズで集光照射することで表面凹凸構造を作製した（スポットサイズ　～15 μm）．この時，磁性体膜と GaN 基板が同時にアブレーションされることにより，GaN 基板上に擬似周期構造が形成されるのと同時に，この表面構造上に磁性体ナノ粒子が分散されると期待される．構造を試作した後，顕微分光装置を用いてレーザー発振スペクトルの測定を行った．この時，市販のネオジム磁石を 1 軸電動ステージ上に固定し，基板との距離を

図 9　レーザー誘起表面凹凸構造作製法による磁性体薄膜コート半導体基板表面上へのランダムレーザー作製の概念図．

制御することで外部磁場強度を変化させた．磁場強度が高い場合，基板上に分散するナノ磁性体の磁気光学効果によって擬似周期構造中のランダムなフィードバックが変調され，ランダムレーザーの発振状態が変化することが期待される[26,27]．

実験で用いる NiFe 薄膜は，磁気カー効果を示す材料としてよく知られている[25]．この効果は，磁場を印加した NiFe 薄膜に直線偏光の光が入射すると，反射光の直線偏光が磁場の強さに応じて回転する現象である[27]．**図 10** は，NiFe 薄膜コート基板表面で波長 405 nm の直線偏光レーザーが反射する際の直線偏光の回転角度の磁場強度依存性を示している．5 kOe の磁場印加に対し，約 0.2° の直線偏光の回転が確認できる．非常に小さい回転角度に思えるが，共振器中でこの磁気カー効果が誘起されたとすると，共振器効果によってこの効果は増幅される（例えば，共振器内で何度も光反射が繰り返されると，その都度 0.2° の回転が起こるため，1000 回程度の反射で 200° もの回転が誘起されることになる）．ランダム構造内でこの磁気カー効果が起こると，ランダムなフィードバックを与える多重散乱による閉ループ中の局在モードの偏光が回転するため，レーザー発振を起こす共振器（閉ループ）の光閉じ込め効率が変化する．このため，品質が低下する場合には発振の抑制が，向上する場合には発振強度の増加が起きることが期待される．

図 11 は，レーザー照射強度 200 MW/cm^2，照射時間 10 秒で作製した表面凹凸構造の電子顕微鏡画像とエネルギー分散型 X 線分析（EDS）による元素分布を示している．結果を見ると，平坦な NiFe 薄膜コート基板がアブレーションにより，表面が酷く乱されている様子が確認できる（図 11 (a)，(b)）．NiFe 薄膜コート GaN 基板では，デブ

図 10　(a) NiFe 薄膜コートガラス基板の写真と，(b) 入射直線偏光のカー回転角の磁場強度依存性．

図 11　NiFe 薄膜コート GaN 基板の電子顕微鏡画像．(a) レーザー照射前，(b) 照射後．(c) レーザー照射後の GaN 基板の電子顕微鏡画像の拡大図．(d) レーザー照射跡の元素分布．青色が Ga，赤色が Ni の分布を示す．図中の白線は各画像のスケールを表し，(a，b，d) では 5 μm，(c) では 2 μm を示す．

リのようなものが多数表面に見られ，擬似周期構造が明確には見られない（図 11(b)）．しかし，一部を拡大すると，図 11(c) のような擬似周期構造がデブリの下に見られることから，同時にアブレーションした NiFe が GaN の擬似周期構造上に堆積し，擬似周期構造が見えにくくなっていると推測される．このことを確認するため，EDS 測定による元素分布を確認した結果が図 11(d) である．レーザー照射位置において NiFe 薄膜が吹き飛び，下地の GaN が見えている．また，GaN の上に微細化した NiFe が堆積している様子が確認でき，当初予想していた通り，磁性体材料である NiFe が分散した擬似周期構造を持つ GaN 基板をワンプロセスで作製できていることが確認できた．

この試料の磁場応答を確認するため，レーザー

図 12　(a) 発光スペクトルの励起光強度依存性．図中の On と Off は外部磁場印加の有無を示す．(b) 発光ピーク強度の励起光強度依存性．各シンボルの色は，図 (a) の各色の矢印で示されたピークに対応する．点線はしきい値の比較のためのガイドである．

照射跡の発光スペクトルの励起光強度依存性の測定を行った．この時，外部磁場を印加した場合（On）としない場合（Off）で比較を行った結果を図 12 に示す．磁場を印加する場合は，ネオジム磁石を試料直上 1 mm の位置に配置し，試料に約 5 kOe の磁場を印加した状態で測定を行い，磁場を印加しない場合は磁石を取り外して測定を行った．結果を見るとどちらもレーザー発振を示すシャープなピークがスペクトル上に現れていることがわかる（図 12(a)）．このピーク強度を励起光強度に対してプロットしてみると（図 12(b)），緑の矢印で示した自然放出光は磁場に対してほとんど変化を示さないが，青い矢印で示した発振ピークは磁場印加によりしきい値が増大し，レーザー発振が抑制されているのに対し，赤い矢印の発振ピークは磁場印加によりしきい値が下がり，ピーク強度が増大している様子が確認できる．これらの結果は，ランダムレーザーを誘起する局在場中にナノ磁性体が存在し，磁場の有無による磁気カー効果あるいは磁性体の屈折率変化が内部共振器効果により増幅され，局在場の光閉じ込め効率を変化させた結果，レーザー発振が変化したと考えられる．

さらにこの磁場応答を詳しく確認するため，電動ステージ上に固定したネオジム磁石と基板間の距離を変化させることにより，印加する磁場強度を変えながらレーザー発振スペクトルの測定を行った．その結果を図 13 に示す．実験では，励起光強度をしきい値の 1.2 倍で固定し，磁石の S 極を試料側にした時の磁場強度を正，N 極を試料側とした時を負の磁場強度として発振ピークの磁場強度依存性を測定している．結果をみると，ス

図 13　(a) 発光スペクトルの磁場強度依存性．スペクトル中の S と N はネオジム磁石の向きを示す．(b) レーザー発振ピーク強度の磁場強度依存性．図中の数字(1)–(3)はスペクトル中のピークに対応する．横軸の正負は S 極を試料に向けた時を正，N 極を向けた時を負の磁場強度としている．

ペクトル中に現れている 3 つの発振ピークはいずれも磁場応答を示している．また，磁場強度が増加すると，磁石の極性に関係なく，ピーク(1)(3)の強度は減少し，ピーク(2)は増加し，さらにいずれのピーク波長もほとんど変化しない．これらの結果は，散乱損失を伴うランダムレーザーでは，表面凹凸構造上に分散した NiFe ナノ材料の磁場強度に依存した散乱異方性によってフィードバック量が変化するため，ピーク波長は変化せずにレーザー発振強度の減少や増大が引き起こされると考えられる．

これらの結果から，レーザー誘起表面凹凸構造作製法を NiFe 合金薄膜コート GaN 基板に適用し，外部磁場応答を示すランダムレーザーをワンプロセスで作製することに成功した．この発振スペクトルの磁場応答は，GaN 基板上に分散した NiFe ナノ材料の磁気光学効果による発振モードの変化を示唆するものであり，遠隔・非侵襲的に制御できる磁気応答型ランダムレーザーの簡易作製方法を提案することができた．このような外部刺激応答を示すランダムレーザーの作製手法はこれまでになく，磁気光学効果をランダムレーザー制御に用いる試みも独自の技術である．特に近年，微小共振器を用いた巨大磁気効果に注目が集まっており，共振器とスピン状態の強い結合[28] や表面微細構造を利用した巨大ファラデー効果[29] などが報告されている．共振器の一種であるランダム構造を用いた本課題は，新規なレーザー光源としてだけでなく，スピントロニクスの観点からも興味深い課題であると言える．

5．まとめ

本研究課題では，簡便かつ制御可能なランダムレーザーの作製方法としてレーザープロセス技術に着目し，中でも短時間のパルスレーザー照射で作製が可能なレーザー誘起周期表面構造を利用したランダムレーザー作製・制御方法の確立を行った．本手法を用いて，紫外領域のみならず近赤外領域での低しきい値ランダムレーザー発振に成功し，本手法の汎用性を示した．また，半導体基板上に機能性材料として磁性体薄膜をコートした基板を用いることで，外部磁場応答を示す低しきい値のランダムレーザーの作製にも成功した．このように本手法は，高価な装置も複雑な加工プロセスも必要とせず，短時間のレーザー照射だけで半導体基板表面にレーザー素子を作製できることから，既存の半導体加工プロセスを併用することにより，外部変調機能を有する低しきい値の電気駆動ランダムレーザーに向けた重要な一歩となると期待している．

謝辞

本研究は，北海学園大学令和 3 年度学術研究助成（一般研究）および科研費（JP20K05290, JP19H04529）の支援によって行われた．実験に用いた磁性体膜は慶應義塾大学・海住英生准教授から提供を受け，電子顕微鏡や EDS 測定は北海道大学のオープンファシリティを利用した．また，本研究は，学部 4 年生の卒業研究プログラムと連携して進めてきた．米川大樹君, 川口翔平君, 三ツ石匡希君らの熱心な協力に謝意を表する．

【参考文献】

1）D. S. Wiersma: The physics and applications of random lasers, Nat. Phys. **4**, 359–367 (2008).
2）M. A. Noginov: Solid-State Random Lasers (Springer, New York, 2005).
3）A. S. L. Gomes, A. L. Moura, C. B. de Araújo, E. P. Raposo: Recent advances and applications of random lasers and random fiber lasers, Prog. Quantum. Electron. **78**, 100343 (2021).
4）N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, E.

Sauvain: Laser action in strongly scattering media, Nature **368**, 436–438 (1994).

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

6) H. Fujiwara, T. Suzuki, R. Niyuki, K. Sasaki; ZnO nanorod array random lasers fabricated by a laser-induced hydrothermal growth, New J. Phys. **18**, 103046 (2016).

7) S. Murai, K. Fujita, J. Konishi, K. Hirao, K. Tanaka: Random lasing from localized modes in strongly scattering systems consisting of macroporous titania monoliths infiltrated with dye solution, Appl. Phys. Lett. **97**, 031118 (2010).

8) R.C. Polson, Z. V. Vardeny: Random lasing in human tissues, Appl. Phys. Lett. **85**, 1289–1291 (2004).

9) B. Redding, M. A. Choma, H. Cao: Speckle-free laser imaging using random laser illumination, Nat. Photonics **6**, 355 (2012).

10) A. Convertino, L. Maiolo, V. Scuderi, A. Di Mauro, M. Scuderi, G. Nicotra, G. Impellizzeri, G. Fortunato, V. Privitera: A forest of SiO2 nanowires covered by a TiO2 thin film for an efficient photocatalytic water treatment, RSC Adv. **6**, 91121 (2016).

11) X. Shi, Z. Lou, P. Zhang, M. Fujitsuka, T. Majima: 3D-Array of Au-TiO2 Yolk-Shell as Plasmonic Photocatalyst Boosting Multi-Scattering with Enhanced Hydrogen Evolution, ACS Appl. Mater. Interfaces **8**, 31738–31745 (2016).

12) H. Wang, M. Miyauchi, Y. Ishikawa, A. Pyatenko, N. Koshizaki, Y. Li, L. Li, X. Li, Y. Bando, D. Golberg: Single-Crystalline Rutile TiO2 Hollow Spheres: Room-Temperature Synthesis, Tailored Visible-Light-Extinction, and Effective Scattering Layer for Quantum Dot-Sensitized Solar Cells, J. Am. Chem. Soc. **133**, 19102–19109 (2011).

13) S. Gottardo, R. Sapienza, P. D. García, A. Blanco, D. S. Wiersma, C. López: Resonance-driven random lasing, Nat. Photonics **2**, 429 (2008).

14) H. Fujiwara, R. Niyuki, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, and K. Sasaki: Low-threshold and quasi-single-mode random laser within a submicrometer-sized ZnO spherical particle film, Appl. Phys. Lett. **102**, 061110 (2013).

15) S. Gottardo, S. Cavalieri, O. Yaroshchuk, D. S. Wiersma: Quasi-Two-Dimensional Diffusive Random Laser Action, Phys. Rev. Lett. **93**, 263901 (2004).

16) T. Nakamura, K. Firdaus, S. Adachi: Electron-hole plasma lasing in a ZnO random laser, Phys. Rev. B **86**, 205103 (2012).

17) H. Fujiwara, R. Niyuki, K. Sasaki: White light induced photo-thermal switching in a graphene-flake-mixed ZnO nanoparticle random laser, J. Phys. Commun. **2**, 035022 (2018).

18) H. Noh, J. Yang, S. F. Liew, M. J. Rooks, G. S. Solomon, H. Cao: Control of Lasing in Biomimetic Structures with Short-Range Order, Phys. Rev. Lett. **106**, 183901 (2011).

19) H. Zhu, A. Chen, Y. Wu, X. Ji, Y. He, Z. Qiu, Z. Tang, S. Yu: Low-threshold GaN thin-film random laser through the weak scattering feedback, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 045107 (2017).

20) M. Lee, S. Callard, C. Seassal, H. Jeon: Taming of random lasers, Nat. Photonics **13**, 445–448 (2019).

21) L. Wang, B. Xu, X. Cao, Q. Li, W. Tian, Q. Chen, S. Juodkazis, H. Sun: Competition between subwavelength and deep-subwavelength structures ablated by ultra-short laser pulses, Optica **4**, 637–642 (2017).

22) L. Xu, J. Zhang, H. Zhao, H. Sun, C. Xu: Enhanced photoluminescence intensity by modifying the surface nanostructure of Nd^{3+}-doped (Pb, La) (Zr, Ti) O_3 ceramics, Opt. Lett. **42**, 3303–3306 (2017).

23) Y. Tamamura, G. Miyaji: Structural coloration of a stainless steel surface with homogeneous nanograting formed by femtosecond laser ablation, Opt. Mater. Express **9**, 2902–2909 (2019).

24) H. Fujiwara, K. Sasaki: Amplified spontaneous emission from a surface-modified GaN film fabricated under pulsed intense UV laser irradiation, Appl. Phys. Lett. **113**, 171606 (2018).

25) T. Misawa, S. Mori, T. Komine, M. Fujioka, J. Nishii, and H. Kaiju: Structural and magnetic properties of Ni78Fe22 thin films sandwiched between low-softening-point glasses and application in spin devices, Appl. Surf. Sci. **390**, 666–674 (2016).

26) H. Fujiwara, S. Kawaguchi, D. Yonekawa, H. Kaiju: Development of magnetic responsive random lasers fabricated by a laser-induced surface roughness, Appl. Phys. Lett. **119**, 041105 (2021).

27) H. Fujiwara, H. Kaiju, J. Nishii, K. Sasaki: Magnetic Response of Random Lasing Modes in a ZnO nanoparticle film deposited on a NiFe thin film, Appl. Phys. Lett. **113**, 131108 (2018).

28) A. Osada, R. Hisatomi, A. Noguchi, Y. Tabuchi, R. Yamazaki, K. Usami, M. Sadgrove, R. Yalla, M. Nomura, Y. Nakamura: Cavity Optomagnonics with Spin-Orbit Coupled Photons, Phys. Rev. Lett. **116**, 223601 (2016).

29) N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, S. Maekawa: Giant Faraday Rotation in Metal-Fluoride Nanogranular Films, Sci. Rep. **8**, 4978 (2018).