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 斎 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 |

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



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.

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.

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/cm²,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



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.

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/cm²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.

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8mW (800 MW/cm²), 照射時間 10 s におい てしきい値が 0.6 mW(60 MW/cm²) 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.





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



840 860 880 900 Wavelength / nm

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.

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.8mW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18mW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 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.

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,8mWと10mW照射時にはランダムレーザー が確認でき、14mWと18mW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



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.

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^{36,27)}.

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. 5kOe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/cm²,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5μm, (c)では2μm 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1mm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 laserinduced 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).
- 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).
- 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 Nd³⁺-doped (Pb, La) (Zr, Ti) O₃ 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-softeningpoint 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).