

氏名（本籍）	戸名 正英（京都府）
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	甲第14号
学位授与日	平成14年9月30日
学位授与の要件	学位規則第4条1項該当
研究科・専攻名	工学研究科 基盤工学専攻
学位論文題目	イオントラップに捕捉した微小球レーザーの研究 Study on Spherical Microlasers Levitated in an Ion Trap
論文審査委員	(主査)高知工科大学 教授 木村 正廣 高知工科大学 教授 野尻 洋一 高知工科大学 助教授 岡 宏一 高知工科大学 教授 井上 喜雄 高知工科大学 教授 古江 正興

内容の要旨

誘電体微小球が極めて高効率の光共振器であることを利用して、ローダミン 6G(Rh6G)分子を溶かした微小グリセリン液滴でレーザー発振を行い、その特性を詳しく調べた。マイクロメータサイズの液滴をイオントラップ中に捕捉し、R6G分子をNd:YAG SHG光(532 nm)で励起することにより、液滴の発光スペクトルと顕微鏡像とを得た。本研究により、次のことを明らかにした；(a)微小球レーザーが特定の方角モードで発振すること、(b)ポンプ光の偏光と発振レーザー光の偏光とには密接な相関があること、(c)発振レーザー光の偏光情報がモード解析に役立つこと。単一微小球を対象におこなわれてきた本研究は、新しい photonic device の開発に向けた、基礎研究として位置付けられる。

1. 研究の背景

分子が自由空間に存在するときと、マイクロメータサイズの誘電体微小球中に存在するときとは、分子の光学特性はまったく異なったものとなる。微小球中で分子から発生した光が、微小球表面に臨界角より浅い角度で反射するとき、光は全反射によって微小球内に閉じ込められる。全反射を繰り返しながら球の大円を周回する光の中で、出発点に同位相で戻ってくる光は共鳴現象を起こす。この共鳴現象は、共鳴周波数が微小球の形や大きさに強く依存するため、Morphology Dependent Resonances (MDRs) と呼ばれている。MDRs による光の閉じ込め効率は非常に高く($Q \sim 10^6$)、微小球の表面付近には強い光の場ができるので、微小球中の光学過程は様々な非線形現象を示す。

MDRs による非線形現象の1つにレーザー発振作用が挙げられる。微小球によるレーザー作用の研究は、次のような系；(a)液体中でレーザー捕捉されたポリマー微小球、(b)基板上のポリマー微小球、(c)落下する液滴、などを対象とし、これまでに、国内外で広くおこなわれてきた。本研究では、イオントラップ中に捕捉された液体微粒子のレーザー発振作用について調べた。イオントラップ装置をつかった本研究手法は、次の特色；(a)液滴を空中に孤立させることにより、壁からの影響を排除できること、(b)液滴自身の表面張力により、ほぼ完全な球形微小共振器が

実現できること, (c) 一様に, ポンプ光を液滴に照射できること, をもつ.

上で述べた本研究の特色は, 微小球のレーザー作用を調べるうえで, 次のような利点をもつ.

- (a) 光の閉じ込め効率は, 微小球の内側と外側の相対屈折率に強く依存する. 微小球を液体中ではなく気体中で捕捉することで, より大きな Q 値を得ることができる.
- (b) 閉じ込め効率は微粒子の形状に強く依存する. 微小球を空中で静止させることにより, 支持するときに生じる形状の変形をできるだけ小さくし, より大きな Q 値を得ることができる.
- (c) 一様に, ポンプ光を液滴に照射するので, ポンプ光による微小球内の電場の様子を, 微小球の光散乱を取り扱った Mie 理論から導くことができる.

このような利点を活かして, 微小球のレーザー発振特性を明らかにすることが本研究の目的である.

MDRs は 3 つの整数, order number s , mode number l , azimuthal mode number m , によって特徴づけられる. Order number は動径方向の電場強度のピークの数, mode number は円周に沿った波の数, azimuthal mode number は方位角方向の分布を表す数である. 微小球内で閉じ込められた光は, しばしば, クーロンポテンシャルに束縛された電子にたとえられる. なぜなら, 微粒子内の電磁波に対する波動方程式が, 水素原子に対するシュレディンガー方程式に類似しているからである. この類推により, MDRs の 3 つの整数, s , l , m , は水素原子内電子の radial quantum number, total angular momentum, z component of angular momentum にそれぞれ対応づけることができ, 光を閉じ込めた微小球は, 光の原子 “photonic atom” と呼ばれている.

このような類推を 2 つ以上の微小球に対応させると, 微小球を 2 つ連結させた “photonic molecule”, 3 つ以上連結させた “photonic cluster” といった系に発展させることができる. 2 つ以上の微小球の相互作用を制御することにより, 微小空間内で, 光を自由に操ることができるツールへの応用が期待できる. 単一微小球を対象におこなわれてきた本研究は, 新しい photonic device の開発に向けた, 基礎研究として位置付けられる.

2. 実験方法

ローダミン 6G (R6G) 分子を溶かしたグリセリン溶液をシリンジ中に注入し, ESI (Electrospray Ionization) 法により帯電した液滴をイオントラップ内へ射出した. イオントラップは 4 枚のディスクから構成されており (Fig. 2(A)), 中央の 2 枚の電極には交流電圧 (420 Hz, 1000 V_{pp}) を, 上下 2 枚の電極には液滴の重力とつりあわせるための直流電圧 (0 ~ 10 V) をそれぞれ印加している. 実験装置の配置を Fig. 2(B) に示す. 発光スペクトルと顕微鏡像を励起光ビームに対して 90° 方向から得た. 励起光として用いた Nd:YAG SHG 光のポンプパワーは, CW 励起のときは 1.1 W/cm², パルス (パルス幅 10 ns) 励起のときは 10⁵ ~ 10⁸ W/cm² であった.

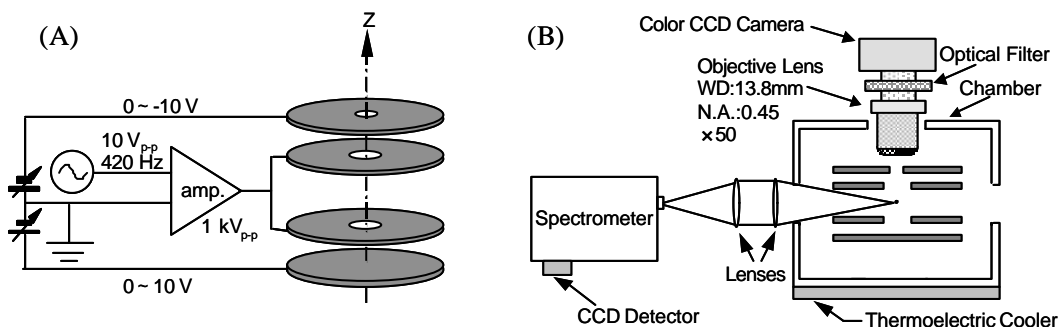


Figure 2. (A) Setup scheme of the electro-dynamical trap.

(B) Schematic of experimental setup for optical spectroscopy and microscopy of the droplet.

3. 結果と議論

3-1 微小球レーザー光の励起光強度依存性

Figure 3.1 に、同一の液滴の顕微鏡像(左側)と発光スペクトル(右側)を示す。励起レーザー光の入射方向は図の下方から上方である。レーザー閾値に達していない励起光強度では、指向性のない蛍光が液滴全体から放出されるために、ほぼ一様に光る液滴の像(A)が得られる。対応する発光スペクトル(a)には、バルク溶液と同様の蛍光スペクトルに加え、MDRs による多くのピークが現れる。励起光強度を上げていくと、レンズ効果により強く励起される液滴上部で、まずレーザー閾値に達し、この領域を含む大円を周回するモードでレーザー発振がおこる。このモードの中で観測方向に出射したレーザー光により、像(B)の液滴上部と下部がスポット状に明るくなる。スペクトル(b)における 600nm 付近の数本のレーザー線がスポットからの発光に対応している。さらに励起光強度を強くすると、スペクトル(c)のように、蛍光強度に比べ MDRs によるレーザー線の強度が著しく強くなる。また像(C)では、明るくリング状に光る液滴の周囲に、対称性の良い構造が確認される。この結果は、液滴の表面付近に、一様に azimuthal モードが励起されるのではなく、特定の azimuthal モードが選択されていること示している。

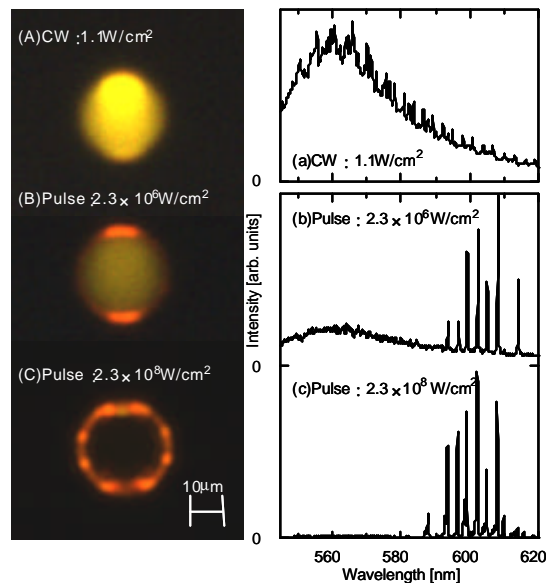


Figure 3.1. The spatial images of R6G-doped microdroplet obtained for various pump intensities (left side). Emission spectra of R6G-doped microdroplet for various pump intensities (right side). Only (A) and (a) are obtained by using the cw laser and, in these cases, the power is below the lasing threshold, whereas (B), (b), (C) and (c) obtained by using the pulsed laser.

3-2 微小球レーザー光の偏光特性

様々な励起強度のもとで得られた、液滴の顕微鏡像と発光スペクトルを対比させることにより、MDRs による液滴のレーザー発振について、特定の azimuthal モードが選択されていることが明らかとなった。この結果を解析するためには、レーザー発振線のモード解析により、液滴内部の電場分布を決定しなければならない。微小球による光散乱を扱った Mie の理論を用いて、発光スペクトルから MDRs のモードを決定し、発光スペクトルに現れるレーザー線の偏光状態を実験的に決定できれば、各レーザー線のモード解析が容易になることがわかっている。したがって、液滴の顕微鏡像の偏光特性と発光スペクトルの偏光特性とを測定することにした。

Figure 3.2 に液滴の顕微鏡像を示す．これら顕微鏡像は，図の下側から直線偏光の励起光を入射させ，その強度が $7 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ の時に紙面に垂直方向から観測して得られた結果である．励起光の偏光方向を各図中の左側に，観測方向に置かれた検光子の透過軸方向を右側にそれぞれ示している．

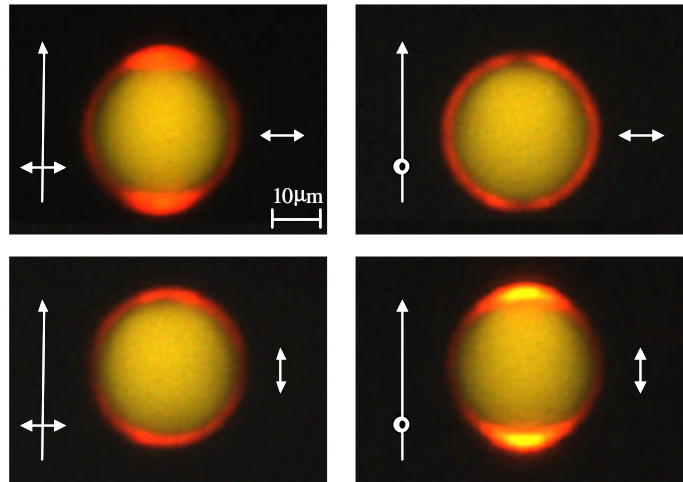


Figure 3. 2. Microscopic images of a lasing microdroplet. Arrows at the left of each image indicate the direction and polarization of the pump beam, while an arrow at the right indicates the transparent axis of the analyzer.

液滴中央部の蛍光は偏光条件に無関係であるのに対し，液滴の周囲に現れるレーザー発振による発光は顕著な偏光特性を持ち，その偏光方向は弾性散乱のそれらと密接な相関があることがわかった．また，発光スペクトルのレーザー発振線のピーク強度も偏光条件に依存し，顕微鏡像の結果とよく対応する．

3-3 微小球レーザー発振モードの色素分子濃度依存性

レーザー発振モードは，共振器内での光の吸収に強く依存すると予想される．そこで，液滴のレーザー発振モードの色素濃度依存性について調べることにした．その結果，それぞれの色素濃度において，吸収スペクトルの裾の波長領域で，MDRs によるレーザー線が観測された．色素濃度が薄い場合，レーザー線の構造が複雑になっていることから，より多くのモードでレーザー発振していることがわかった．発光スペクトルに現れるレーザー発振線のモード解析の結果，濃度が薄くなると，より小さい order number をもつ MDRs から，レーザー発振がおこることがわかった．

4. 今後の展望

量子力学の類推から，光を閉じ込める微小球は photonic atom と考えることができる．この類推を 2 つ以上の微小球に対応させると，photonic molecule, photonic cluster といった系が実現することになる．2 つの微小球を連結させたとき，MDRs の結合モードと反結合モードが形成されるといったことが，分子軌道論の類推から想像できる．これらの 2 つのモードに閉じ込められた光を，微粒子間の相互作用を解くことによって，微粒子外に取り出すことが可能となる．このような微小空間内で，光を自由に操ることができるツールの開発を今後おこなっていくつもりである．

審査結果の要旨

1. 論文の評価

申請者の本論文は、誘電体微小球を光学共振器として捉え、その光学特性を詳しく調べたものである。こういう微粒子を2次元、3次元的に周期的に配置することにより形成される photonic crystal は、未来の光学デバイスとしての応用が期待されている。ここでは1粒子を対象として基礎データを得る目的の研究を行った。

申請者の研究の特色は、帯電させた液体微粒子をイオントラップ内の空間に固定した状態で観測することにある。液滴サイズは $\sim 10 \mu\text{m}$ であるが、このような微小液滴では表面張力が重力や電気力よりも優勢であるため、液滴はほぼ真球になる。そのため、ある角度以上で液滴の内壁に入射する光は全反射するが、壁面が理想的な球面であるため、非常に大きなQ値の共振器ができることになる。この点が、固体微粒子や基板上の液滴で行われている従来の同種の研究との大きな違いであり、本研究の最も大きな特色の一つと言える。粒子サイズが光の波長のたかだか10倍程度であるため共鳴波長の離散性が顕著となり、光子を電子に置き換えてみたときの水素原子に微小液滴が対応させられるのも興味深い。

論文は英文で書かれている。第1章は研究の背景について述べたものである。第2章は、微小球内での電磁波の共鳴モードについての説明である。このような球形粒子による光の散乱としてよく知られている Mie 散乱についての解説もある。共鳴は、球形サイズと波長の比に強く依存するためこのような共鳴は Morphology Dependent Resonances (MDRs) と呼ばれている。第3章は実験方法の説明である。申請者は、微量の色素分子を混入させた単一微小液滴をイオントラップ内に浮遊させ、これにポンプ光を照射した場合、液滴から新たなレーザー発振が生じることを顕微鏡と分光器を使って調べた。発光の液滴内強度分布、分光特性や偏光特性などを観測するために申請者が組み立てた実験装置は独自のもので、独創的な工夫が施されている。第4章では、微小球レーザーの励起光強度依存性、偏光特性、色素濃度依存性を測定した結果とそれに対する解析が行われている。

液滴共振器のロスが少なくQ値が極めて高いため、低いしきいエネルギーでレーザー発振をするが、発振レーザー場の分布は液滴の表面付近に限られていることが観測された。共振器内での電場分布を決定するために粒子内の電場モードを解析した。発振レーザー線のモードを Mie の散乱理論を使って決定するに当たって、申請者は粘り強くモードの同定を行った。ポンプ光の液滴内の偏光分布と発振レーザー光の偏光状態を利用すればモード同定の困難さが大幅に軽減されることを示した点と、ポンプ光で励起された分子の配向が緩和する前にレーザー発振を起こすことを裏付けたことも本研究での新しい知見である。色素濃度によっても発振波長や発振モードが顕著に変化することも観測し、これらを定性的に説明することができた。

微小球を複数個相互作用させた photonic molecule や photonic crystal を対象とした研究が今後の課題として残されている。また本申請者は現在、レーザーマニピュレーション技術の開発も手がけている。この技術では荷電粒子に限らず中性粒子や液中での微粒子を操作することも可能になる。このように本申請者は新しい分野に挑戦する意欲にも富んでいて、研究者としての能力を十分持っていることが認められる。

審査委員会は全員一致で、本論文は博士(工学)の学位の授与に十分値するものであると認めた。

(公表された論文)

1) Masahide Tona and Masahiro Kimura:

“ Novel Lasing Mode Observed in a Levitated Single Dye-Doped Microdroplet”, J. Phys. Soc. Jpn., Vol.69, p. 3533-3535 (2000).

2) Masahide Tona and Masahiro Kimura:

“ Polarization effects in both emission spectra and microscopic images of lasing microdroplets levitated in an ion trap”, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 71, p. 425-428 (2002).

3) Masahide Tona and Masahiro Kimura:

“ Dependence of Lasing Modes of Microdroplets on Dye Concentration”, Submitted to J. Phys. Soc. Jpn. (2002).

2. 審査の経緯と結果

(1) 平成 1 4 年 7 月 1 7 日 (水)

知能機械システムコース会議で学位論文の受理を仮決定。

(2) 平成 1 4 年 7 月 3 1 日 (水)

大学運営委員会で学位論文の受理を決定し、5名がその審査委員として指名された。

(3) 平成 1 4 年 8 月 2 9 日 (木)

公開論文発表会の開催。論文審査委員会の開催。最終試験の実施。

(4) 平成 1 4 年 9 月 4 日 (水)

教授会で学位授与を可とした。