

E1

散乱体含有色素プラスチックの放射特性

Radiative properties of scattering dye plastics

嶺 康晴、杉崎 五郎、土志田 実、谷川 邦廣

Yasuharu Mine, Goro Sugizaki, Minoru Doshida, Kunihiro Tanikawa

防衛庁 技術研究本部 第2研究所

Second Research Center, TRDI, Japan Defense Agency

ABSTRACT

The radiative properties of a scattering dye plastic were investigated. The plastic in which the Rhodamine B dye (~1 mM) and TiO₂ scatterers (~10¹⁰ cm⁻³) are embedded was found to emit a laser-like light around 600 nm by pumping at 532 nm. It was observed in a series of the experiments that due to the index-mismatch at the dye plastic's interface the emission linewidth significantly broadened and the brightness accordingly decreased. However, provided that an adequate coating is put on the dye plastic's interface, its radiative properties would be improved, making the scattering dye plastic suitable as a transponder in the search and rescue operations.

1. はじめに

Lawandyら¹⁾が散乱体含有レーザ色素からのレーザ様光発生 (Laser-like action) を報告して以来、防衛用及び民生用を問わず、その応用に注目が集まっている²⁾。レーザ様光とは、共振器を構成することなく、高輝度で狭スペクトル、空間的には拡散パターンを持って放射される光のことである。

このレーザ様光が持つ最大の特徴は、光入出力特性の線形性である。強励起入力下で飽和する蛍光とは異なり、レーザ様光は、励起入力パワーが増加すれば、それに従って出力も増加する。そのため、遠距離からでも、強い光で励起してやれば、その入射強度に対応した強い狭スペクトルのレーザ様光が発生する。

この特性に着目し、筆者らは捜索・救難活動等でのレーザ・トランスポンダ（あらかじめ指定された波長で励起されると、特定の波長でレーザ様光を放射するもの）としての応用を目指し、研究を行ってきた。第一段階として、まず、メタノール溶媒中にレーザ色素 (Rhodamine B) を溶かし散乱体 (TiO₂) を添加し、そのレーザ様光の発生特性を調べた³⁾。その結果、溶媒中に色素濃度が mM、散乱体数密度が 10¹⁰ (cm⁻³) のオーダーの組み合わせのとき、高輝度のレーザ様光が得られ、また、放射スペクトルのcollapse (狭隘化) が発生することを確認した。このとき、散乱体含有レーザ色素は液体でガラス・セルに封入されていたため、散乱体が沈殿するなど、野外で長期間用いるには適当ではなく、固体化することが強く望まれていた^{4), 5)}。今回、筆者らは、プラスチック中にレーザ色素及び散乱体を溶かし整形した、散乱体含有色素プラスチックを製作し、そのレーザ様光放射特性を調べたので報告する。

2. 散乱体含有色素プラスチックのレーザ様光放射特性

筆者らは、Table. 1に示すような成分を持つ散乱体色素プラスチック試料を、一般的なプラスチック製法である、セルキャスト法により製作した。なお、Fig. 1中の平板は散乱体を含まない色素プラスチックであり、これは強励起すると出力は飽和する。

Table. 1 Dye concentration and number density of TiO₂ in the scattering dye plastic

	Molality Number density	Weight % to PMMA
Rhodamine B	1 mM	~0.04
TiO ₂	1 x 10 ¹⁰ cm ⁻³	~0.03

本試料のレーザ様光放射特性を調べるために、Fig. 2に示す機器構成で放射スペクトル等の測定を行った。

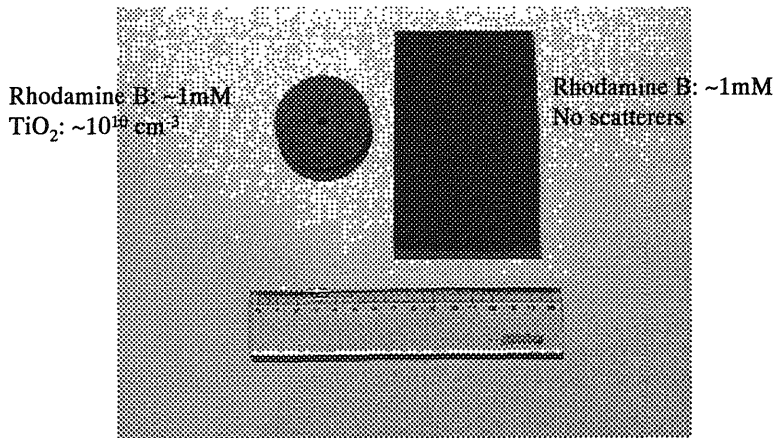


Fig. 1 Photographs of the dye plastic with (left) and without (right) scatterers.

一つの特徴である、入出力の線形性が現れてくるのが分かる。このときの放射中心波長は598 nmであった。一方、(b)にあるように、散乱体を混合しない色素プラスチックの方は、強励起状態では出力が飽和しているのが分かる。また、散乱体含有プラスチックは、Fig. 4に示すように、もう一つのレーザー様動作の特徴である、放射スペクトルの狭隘化も示した。これらのことから、散乱体含有色素プラスチックのレーザー様動作が確認された。

励起光からレーザー様光への変換効率についても測定を行った。レーザー様光は拡散放射パターンをもって全周へ広がるため、放射強度を全域にわたって測定し出力を見積もることは容易ではない。積分球を用いる方法もあるが、今回、筆者らは、以下に述べる間接的な測定方法を用いた。

最初に励起光をBaSO₄でできた、反射率~1の拡散板に入射し、その反射光パワーを測定する。そして、

検知系の配置を保持し、また、励起光の入射位置と検知系への見込み角を変えずに、拡散板を散乱体含有色素プラスチックに置き換え、レーザー様光の放射パワー（中心波長から半値全幅内にあるパワー）を測定する。励起光及びレーザー様光がほぼ同じ拡散パターンをもつことから³⁾、両者のパワーの比較から導かれる効率は、妥当な値を与えると考えられる。

メタノール中に1 mMのローダミンBと数密度 10^{19} cm^{-3} の散乱体をガラス・セル中に封入した試料及び散乱体含有色素プラスチック

励起光は、Nd:YAGレーザーの二倍波である、532 nmの緑色の可視光である。試料から放射されるレーザー様光は、レンズによりファイバー端に集光され、放射輝度及び線幅を測定するために、スペクトラム・アナライザーに導かれる。

Fig. 3(a)には、励起エネルギー密度に対する、レーザー様光の放射強度を示している。励起光は、パルス幅6~8 nsec、繰り返し10 Hzにて試料に入射している。励起エネルギー密度が~10 (mJ/cm²)を越えると、レーザー様動作の

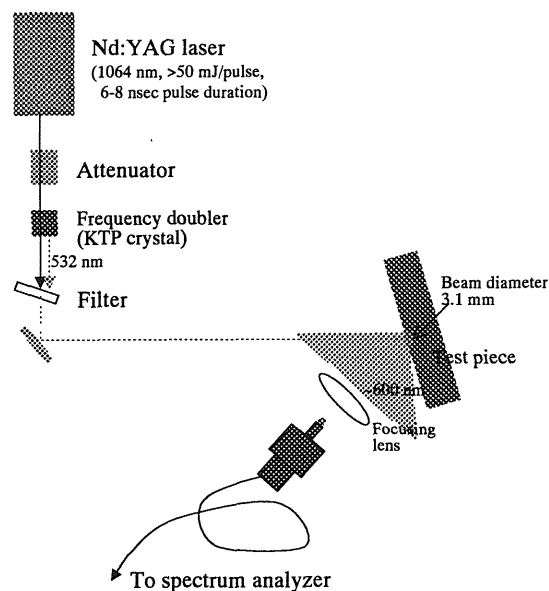


Fig. 2 Experimental set-up for measuring the radiative properties of the scattering dye plastic pumped at 532 nm.

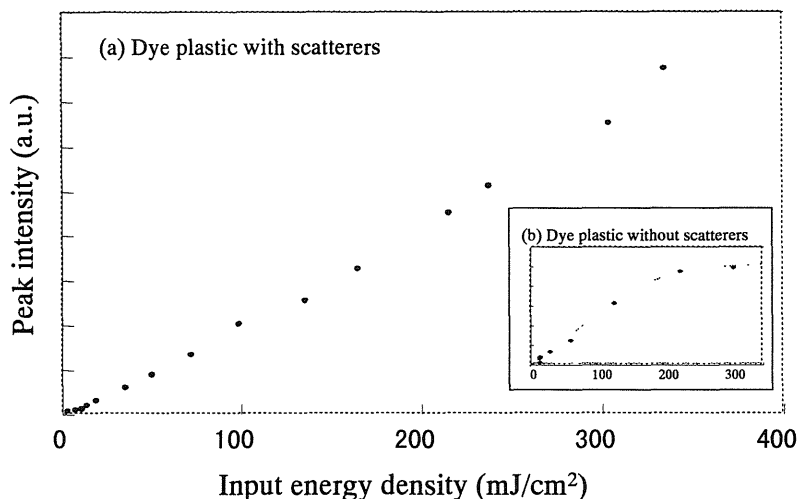


Fig. 3 Input-output characteristics of the scattering dye plastic (a) and the dye plastic without scatterers (b).

について、変換効率を上記の方法にて測定した。前者は、変換効率約 9 %、後者は、約 19 %であった。液体試料の変換効率は、共振器を構成し 532 nm で励起した場合に得られる、レーザ発振の効率に大変近い⁶⁾。一方、色素プラスチックの変換効率が低いのは、製作過程でゲイン媒質である色素が熱による劣化を起こした可能性もあるが、次節で述べるように、プラスチックとその外部との屈折率非整合 (index mismatch) によるものが主要因と考えられる。

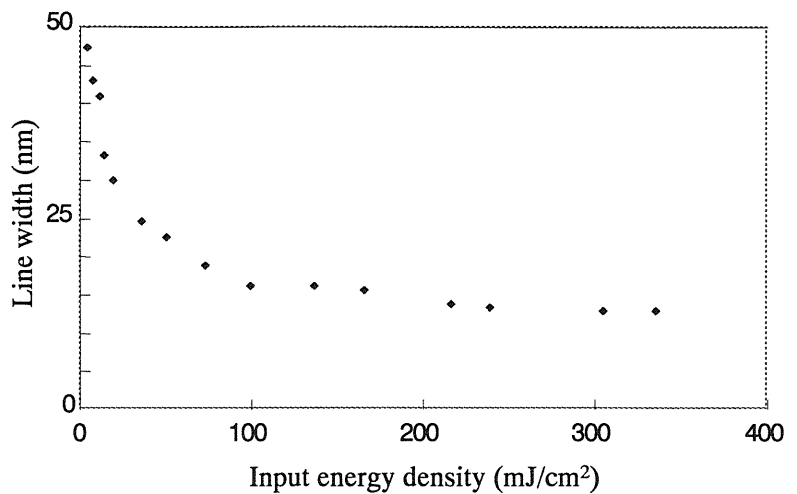


Fig. 4 Collapsing of the emission spectrum, one of typical behavior in laser action, was observed with the input-output linearity.

3. ^{インデックス・ミスマッチ} 屈折率非整合によるレーザ様光放射特性の劣化

散乱体を含有したゲイン媒質と外界 (例えば「空気」) の屈折率非整合が、レーザ様光の放射中心輝度の低下及び放射波長幅の非狭隘化を引き起こすことは、Lawandyら⁷⁾により初めて報告され、今回筆者らも同様の現象を観測した。この原因は、屈折率差に起因するフレネル反射により、レーザ様光がゲイン媒質中で再吸収・再放射されることによると考えられている。レーザ様光の一部が、境界で反射されゲイン媒質内を散乱されつつ長い光路長を進む過程で、再放射されるレーザ様光は赤色側にシフトしていくのである。結果として、放射されるレーザ様光は、ピーク部分が赤色側にシフトし、スペクトル幅も同様に赤色側に広がったものとなる。

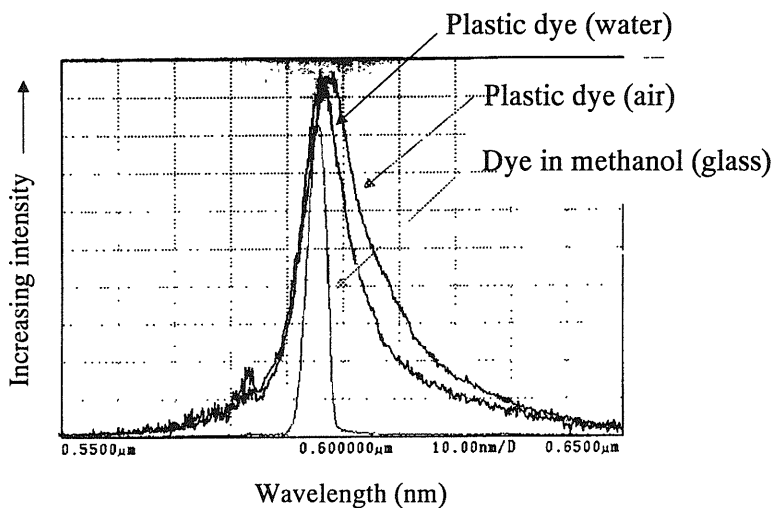


Fig. 5 Emission spectra of dye scattering media for various hosts and interfaces. The spectra in three cases are not in the same scale.

換えられると、広がりが押さえられているのが分かる。メタノール中の散乱体含有色素が最も波長広がりの少ないスペクトルを示しているのは、それがガラス・セル内に封入されており、メタノール (~1.33) と石英ガラス (~1.45) の屈折率が近いことから、屈折率非整合による影響が極めて小さいためである。

このような屈折率非整合によるレーザ様光放射特性の劣化を防ぐには、色素プラスチック上に ~532 nm と ~598 nm に対する AR コートを施すことが効果的であろう。前者の波長は励起光のそれに対応し、励起光を効率的に入射させることが出来、また、後者の波長でのコーティングは、発生したレーザ様光を効率的に外界に取り出すことを可能にする。

4. おわりに

レーザ色素と散乱体を含有したプラスチックを製作し、そのレーザ様光放射特性（入出力特性、スペクトルの狭隘化、変換効率等）を調べた。液体（メタノール）中の散乱体色素と同様に、本色素プラスチックでもレーザ様動作が観測された。ただし、放射輝度及び波長の狭隘度は液状の散乱体含有色素の方が優れていたが、これは、色素プラスチックの屈折率と外界（空気）のその差が大きく、発生したレーザ様光の一部が境界で反射されたためである。そのため、適当なコーティングを施せば、放射特性を向上できるであろう。

本報告では、可視域で動作する散乱体含有色素プラスチックについて述べたが、より汎用性を高めるためには、赤外域で動作するものの実現が望まれる。筆者らは、IR26と呼ばれる、波長1.064 μm で励起され、 $\sim 1.12 \mu\text{m}$ でレーザ様動作する色素⁸⁾について固体化を図っていく予定である。

5. 謝辞

本散乱体含有プラスチックの製作にご助力頂いた、東洋樹脂(株)風間氏と三井東圧ファイン(株)近藤氏に深謝致します。

6. 参考文献

- 1) N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, E. Sauvain, "Laser action in strongly scattering media", Nature, Vol. 363, No. 31, 436(1994)
- 2) N. M. Lawandy, "'Paint-On Lasers' Light the Way for New Technologies", Photonic Spectra, 119, July(1994)
- 3) 杉崎, 土志田, 嶺, 斉藤, 防衛庁技術研究本部 技報, 1996年
- 4) R. M. Balachandran, D. P. Pacheco, N. M. Lawandy, "Photonic textile fibers", Appl. Opt., Vol. 35, No. 12, 1991(1996)
- 5) R. M. Balachandran, D. P. Pacheco, N. M. Lawandy, "Laser action in polymeric gain media containing scattering particles", Appl. Opt., Vol. 35, No. 4, 640(1996)
- 6) U. Brachmann, "Lambdachrome Laser Dyes", 1994
- 7) R. M. Balachandran, N. M. Lawandy, "Interface reflection effects in photonic paint", Opt. Lett., Vol. 20, No. 11, 1271(1995)
- 8) 杉崎, 嶺, 斉藤, 白旗, "赤外レーザペイントの基礎実験", 1997年秋季応用物理学会