

擬似位相整合 LiNbO₃ リッジ導波路を用いた中赤外光の発生と分光応用

Mid-infrared light generation in Quasi-phase-matched LiNbO₃ ridge waveguides and their spectroscopic applications

柳川勉¹, 忠永修¹, 西田好毅², 曲克明¹, 梅木毅伺¹, 遊部雅生¹

Tsutomu Yanagawa¹, Osamu Tadanaga¹, Yoshiki Nishida², Katsuaki Magari¹, Takeshi Umeki¹, and Masaki Asobe¹

日本電信電話(株)NTT フォトニクス研究所¹, NTT エレクトロニクス(株)²

NTT Photonics Laboratories, NTT Corporation¹, NTT Electronics Corporation²

Abstract: We achieve efficient difference frequency generation in direct-bonded quasi-phase-matched LiNbO₃ ridge waveguides. Mid-infrared lights in the 2-4 μm bands are obtained with communication band laser diodes and are easily adjusted the optical axis with the input collinear near-infrared lights. There are many strong absorption lines in the wavelength range originating mainly from normal vibration modes of environmental and greenhouse effect gasses. Therefore, a drastic improvement in the sensitivity is expected in trace gas detection. We show simultaneous detection of CO isotopomer absorption spectra in the 2.3 μm band with a broadband mid-infrared generation utilizing the feature of small LiNbO₃ material refractive dispersion. We also show the detection of ambient CO₂ and CH₄ absorption spectra with multi-pass cells in the 2.7 μm and 3.3 μm bands.

1. はじめに

中赤外域（特に 2-4 μm 帯）には、温室効果ガスなど環境ガスにおける分子の基準振動周波数が多数存在し、他の波長領域より強い吸収が観測できる。したがって、従来近赤外域で行われてきた希薄ガスの測定が、中赤外域の光を用いることによって飛躍的に高感度化できるものと期待され、小型で高効率な計測器が検討されている。

中赤外域におけるコヒーレント光源は、従来から用いられてきた大型の高出力レーザを用いた波長変換光源、量子カスケードレーザや鉛塩レーザなどが知られている。しかしながら現状、常温動作で波長制御が容易なコンパクトで使い勝手の良い光源の入手は困難である。本稿では、技術が成熟し、周波数制御が容易な通信波長域の半導体レーザ（LD）をそれぞれ励起光と信号光に用いた擬似位相整合（QPM）LiNbO₃（LN）リッジ導波路（WG）における小型で高効率な差周波発生（DFG）について紹介し、中赤外域での希薄ガス検出などの分光応用について報告する。また、これら WG 素子のモジュール化や光源開発についても簡単に触れることとする。

2. QPM-LN 導波路素子の作製と中赤外光の発生

WG のコア層に LN、周囲の空気に接する部分以外のクラッド層には LiTaO₃（LT）を用いた。それぞれ 3 インチの Z カット基板を使用して直接接合法により貼付け、ダイシングソーを用いて切り出すことによりリッジ WG とした[1]。Fig. 1 に素子作製手順の概要を示す。まず LN 基板のみに電界印加による周期的な分極反転構造を生成し、直接整合により LN と LT 基板を貼付け、LN/LT 基板とする。研削・研磨により LN コア層の膜厚を 10 μm 程度にまで薄膜化し、

ダイシングソーにより WG 化する。断面写真から、ダイヤモンドブレードを用いた切断だけで、充分平坦な側面を有するリッジ導波路が作製できているのが確認できる。本稿で用いた直接接合 QPM-LN リッジ WG の作製は、基本的にはバルク材料を切断するだけであり、他の多くの例に見られるような WG 形成にイオン交換やドーピングをしておらず、接着剤使用も一切無い。このため、中赤外域でしばしば問題となる付加的な吸収が無い。また、バルク材料の特性をそのまま利用できるため、素子設計が容易で再現性もよく、バルク材料の光損傷耐性以上の更なる改善も容易である。Mg や Zn を加え光損傷耐性を強化した基板を利用できるためである。

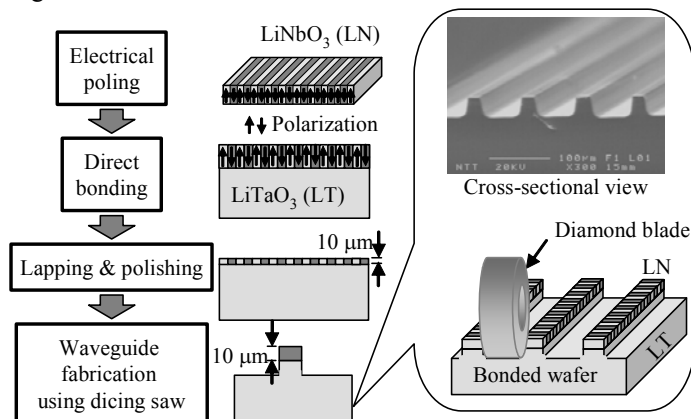


Fig. 1. Waveguide fabrication method using direct bonding technology.

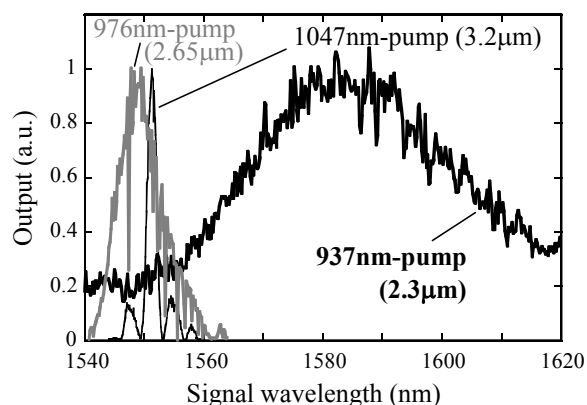


Fig. 2. Mid-IR outputs dependent on 1.5 μm band signal wavelength.

作製した QPM-LN WG 素子には、短波側のポンプ光と長波側のシグナル光をファイバカップラに入射して得た合波をバッティングによりファイバ射出端から直接入射し、差周波発生 (DFG) を行った。ここで用いた QPM-LN WG 素子は、2.3 μm 帯における CO の広波長帯域一括観測用、2.7 μm 帯における大気中 CO₂ の観測用、3.3 μm 帯における大気中 CH₄ の観測用の 3 種類である。おのおのの素子の長さはすべて 5 cm である。2.3 μm 帯と 2.7 μm 帯では QPM 周期が 25.6 μm と 26.3 μm の ZnO ドープ LN 基板を、3.3 μm 帯では 28.4 μm のノンドープ LN 基板を用いた。それぞれの波長変換効率は、100%/W、87%/W、40%/W であった[2-4]。出力光となるアイドラ光は、CaF₂ レンズでコリメートし、波長分波ミラーを介し、Ge 基板を波長フィルタとして用いて抽出した。この位相整合曲線の測定結果を Fig. 2 に示す。ポンプ光には、0.94 μm、0.98 μm、1.06 μm (図では 1.047 μm の LD ポンプ YLF レーザ) の LD をそれぞれ使い、シグナル光には、1.5 μm 帯の外部共振器構成の半導体レーザ (ECLD) を用いた。図の横軸はシグナル光 ECLD の発振波長である。図中、2.3 μm 帯出力は黒色の太線、2.7 μm 帯出力は淡色の実線、3.3 μm 帯出力は黒色の細線で各々示した。なお 2.7 μm 帯出力に出現する深いディップは、大気中の H₂O による吸収である。

3. QPM-LN 導波路素子の分光応用

前節 Fig. 2 は、ポンプ光とシグナル光波長の組み合わせによって、アイドラ光の波長変換幅が大きく変わることを示している。これは、LN 屈折率における材料分散がゼロに近くなる場合があるためである。実際、2.3 μm 帯は 0.94 μm のポンプ光と 1.5 μm 帯のシグナル光から得られ、材料分散がゼロに近づくことで群速度整合が起こり、sinc 関数の見かけ上の形状が歪んで広帯域化が実現される[5]。素子が 5 cm ともなれば、通常は同図 3.3 μm 帯位相整合曲線に順ずる幅がせいぜいであるが、容易に 100 nm 幅が得られる。この波長帯における 100 nm にも及ぶ波長変換幅は、CO isotopomer (同位体分子種) である ¹²CO と ¹³CO における基準振動の倍波 2ν の振動回転スペクトルが、P 枝、R 枝とも一括観測できることを示している。なお、2.7 μm 帯の波長変換幅は、2.3 μm 帯と 3.3 μm 帯の間に相当する値を示す。

ガスセルに封入した CO isotopomer の吸収線を観測する系の構成を Fig. 3 に示した。結果を Fig. 4 に示す[6]。透過率は、ガスセル透過光強度を参照セル透過光強度で除算した結果から得た。参照セル透過光は、アイドラ光自身の出力変動や、光学系のロスなどの雑音成分除去に用いる目的で設置している。¹²CO については、HITRAN データベースとよく一致し、吸収線おのおのの帰属も確認できた。

本稿で報告するガスが封入されたセル全ての長さは 20 cm、窓材は無水石英である。¹²CO と ¹³CO のガス圧は双方 100

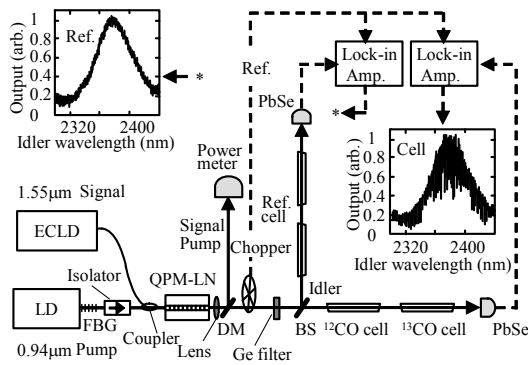


Fig. 3. Experimental setup for CO isotopomer absorption spectrum observation. DM, dichromatic mirror; BS, beam splitter; Ref, reference; PbSe, PbSe detector.

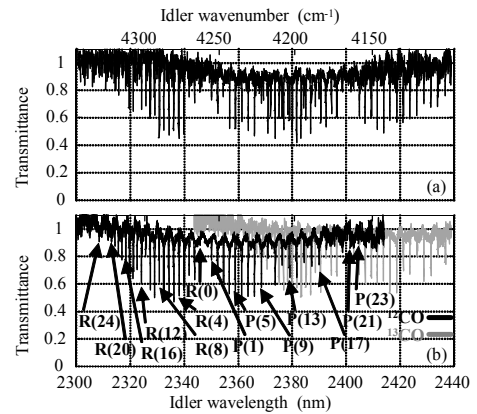


Fig. 4. Measured CO isotopomer absorption spectrum (a) Bundled absorption spectra for ¹²CO and ¹³CO (b) Individual absorption spectra and the ¹²CO absorption line assignment.

Torr である。中赤外光となって出力されるアイドラ光の軸調整は、入力光としてのポンプ光、シグナル光双方のWG出力を近赤外光ガイドとして用いることが可能なため、大気中の希薄ガスの測定などに用いるマルチパスセルを含む実験系であっても、従来に比較して容易になっている。

Fig. 3 で用いたガスセルを廃し、COセルの位置にマルチパスセルを挿入、0.94 μm LD を 0.98 μm LD ないしは 1.06 μm に変更し、QPM-LN WG チップを 2.7 μm 帯発生用ないしは 3.3 μm 帯発生用にする、大気中の CO₂ や CH₄ の吸収が観測できる。観測系構成を Fig. 5 に、光路長 10 m のホワイトセルを用いた CO₂ の観測結果を Fig. 6 に、光路長 107 m のハンストセルを用いた CH₄ の観測結果を Fig. 7 に示す[7]。

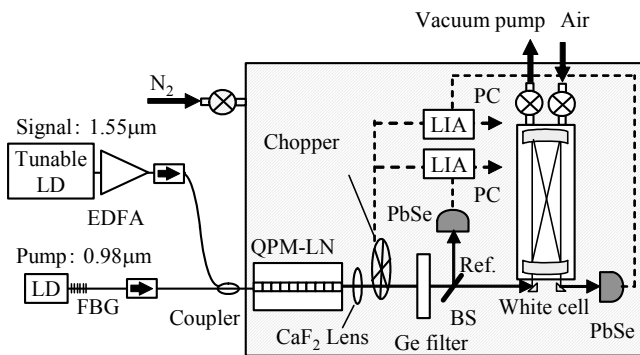


Fig. 5. Experimental setup for ambient CO₂ absorption.

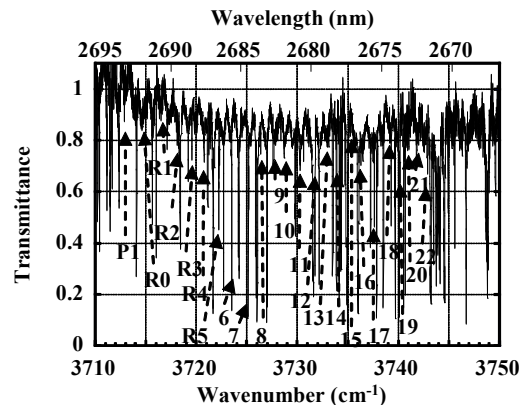


Fig. 6. Ambient CO₂ absorption spectrum at 2 kPa.

大気中 CO₂ 濃度は 400 ppm 程度で、2.7 μm 帯では 1% 程度含まれる水蒸気の吸収が強く、Fig. 5 のように光学系全体を窒素パーージした。2 kPa に減圧した大気中 CO₂ 吸収の結果を Fig. 6 に示した。HITRAN データベースからの予測値とよく一致し、H₂O の強い吸収間隙で P(1) と R 枝の 0~22 の帰属が行えた。

大気中 CH₄ 濃度は 1.78 ppm であるが、3.3 μm 帯では 2.7 μm 帯のような H₂O の強い吸収がないので、S/N が確保できさえすれば光路長を長くして観測が可能である。Fig. 7 左図は大気圧下、右図は 2 kPa における ν₃ 振動回転スペクトル Q 枝の吸収線観測図と HITRAN 予測値である[7]。これらの結果、他の圧力下における測定も含めて HITRAN データベースからの予測結果とよく一致した。特筆すべきは、減圧下で観測ガスの吸収強度が小さくなると、反射鏡表面やマルチパスセル内での散乱光などの迷光による光学フリッジ雑音により、実際のガス検出限界は数値的な予測値とは一致しないことである。

QPM-LN WG 素子を用いた DFG では、入力側のポンプ光とシグナル光の性能がそのままアイドラ光の出力光性能に影響する。ポンプ光にはファイバブラッググレーティング (FBG) によって単一縦モード化された LD を用いており、Fig. 8 のように FBG 配置によって分光性能 (特に分解能) が変わった。安定な単一縦モードの確保には、FBG は (a) LD モジュール外部設置より (b) 内部設置が望ましい[8]。

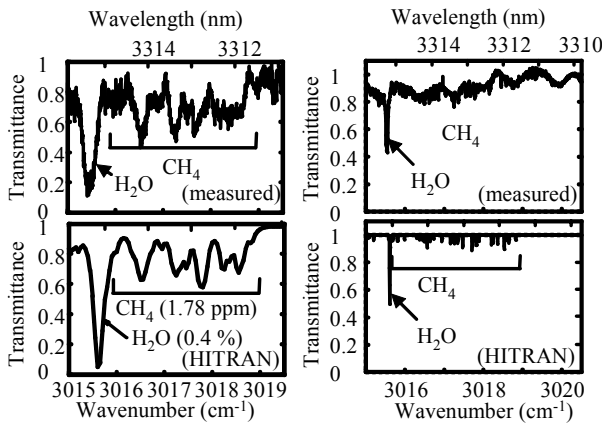


Fig. 7. Ambient CH₄ absorption spectra at different pressure conditions of 100 kPa and 2 kPa.

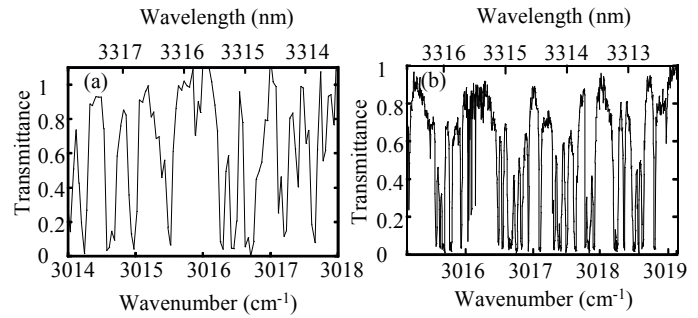


Fig. 8. Resolution difference in 9-Torr CH₄ absorption spectrum. It depends on pump LD configuration with (a) outer or (b) inner FBG.

本稿で紹介した QPM-LN WG を用いた中赤外光源は、その高性能化に向けて様々な試みが行われている。例えば、3 μm 帯素子においては、分極反転構造にチャージングとアポダイジングを施すことで、広帯域化を実現することができる[9]。高出力化に向けては Zn:LiNbO₃ 基板を用いて cw 出力 65 mW が確認されている[10]。また、励起用 LD の入射を容易にするため、入力ファイバを V 溝接続法により導波路端面に固定、ペルチエ素子搭載のパッケージ内に収容し、ファイバーピグテール付き波長変換モジュールを作製した[11]。この中赤外波長変換モジュールと FBG 安定化 1.064 μm -LD、1.55 μm 帯 DFB-LD を偏波保存ファイバにより接続し、100×100×180 mm の光源ヘッドに収容して電源とセットにした中赤外光源も開発した[12]。中赤外光光源の変調用に DFB-LD には変調入力端子を装備し、上記と同様の分光実験がリアルタイムで可能であることを示した。

4. まとめ

QPM-LN WG を直接接合法により作製し、2.3 μm 帯、2.7 μm 帯、3.3 μm 帯素子を作製した。それぞれ規格化変換効率 100%/W、87%/W、40%/W を達成した。2.3 μm 帯では 100 nm と非常に広い差周波発生幅を得、CO isotopomer の一括観測を行った。2.7 μm 帯と 3.3 μm 帯ではマルチパスセルを用い、大気中の CO₂ および CH₄ 吸収の直接観測を行った。さらに、中赤外波長変換モジュール、中赤外波長変換光源の作製も行い、簡便な方法でのリアルタイムガス検出を可能にした。

参考文献

- [1] Y. Nishida, H. Miyazawa, M. Asobe, O. Tadanaga, and H. Suzuki, *Electron. Lett.* **39**, 609-611 (2003).
- [2] O. Tadanaga, T. Yanagawa, Y. Nishida, H. Miyazawa, K. Magari, M. Asobe, and H. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L239-L241 (2006).
- [3] O. Tadanaga, Y. Nishida, T. Yanagawa, H. Miyazawa, T. Umeki, K. Magari, M. Asobe, and H. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 6643-6646 (2007).
- [4] O. Tadanaga, T. Yanagawa, Y. Nishida, H. Miyazawa, K. Magari, M. Asobe, and H. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 061101 (2006).
- [5] T. Yanagawa, H. Kanbara, O. Tadanaga, M. Asobe, H. Suzuki, and J. Yumoto, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 161106 (2005).
- [6] T. Yanagawa, O. Tadanaga, Y. Nishida, H. Miyazawa, K. Magari, M. Asobe, and H. Suzuki, *Opt. Lett.* **31**, 960-962 (2006).
- [7] T. Yanagawa, O. Tadanaga, K. Magari, Y. Nishida, H. Miyazawa, M. Asobe, and H. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 221115 (2006).
- [8] K. Magari, T. Yanagawa, O. Tadanaga, Y. Nishida, M. Asobe, and H. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, L209-L210 (2007).
- [9] T. Umeki, M. Asobe, Y. Nishida, O. Tadanaga, K. Magari, T. Yanagawa, and H. Suzuki, *Opt. Lett.* **32**, 1129-1131 (2007).
- [10] M. Asobe, O. Tadanaga, T. Yanagawa, T. Umeki, Y. Nishida, and H. Suzuki, *Electron. Lett.* **44**, 288-290 (2008).
- [11] O. Tadanaga, Y. Nishida, T. Yanagawa, H. Miyazawa, K. Magari, T. Umeki, K. Yoshino, M. Asobe and H. Suzuki, *Electron. Lett.* **42**, 988-989 (2006).
- [12] O. Tadanaga, Y. Nishida, T. Yanagawa, K. Magari, T. Umeki, M. Asobe, and H. Suzuki, *Proc. SPIE*, **6455**, 64550D (2007).