近赤外光パルスを用いた分光分析に関する可能性について

安　達　雅　浩[*1]　黒　川　　　悟[*2]
森　本　朗　裕[*3]
川　崎　昌　博[*4]　橋　本　　　訓[*5]
太　田　浩　二[*6]　鎌　田　賢　司[*6]
京都電子工業株式会社
ターボ・オプテックス株式会社

[要　　旨]

近赤外領域での物質固有の吸光スペクトル計測において、近年の高性能化する半導体レーザ等の光源を用いることで、計測の高感度化が期待されている。本研究開発においては、半導体レーザのゲインスイッチングにより発生する高速光パルスの駆動最適化を実施し、光パルスを用いた分光分析の可能性を検討した。更に、光パルスを用いた高感度計測手法であるキャビティ・リングダウン分光法への適用を検討し、光ファイバで構成する測定技術を開発し、微量サンプルでの高感度分光分析への有用性が確認されたので合わせて報告する。

1　はじめに

近年の光通信分野における高出力半導体レーザや光デバイスが製品化され、近赤外領域の光を高精度に制御できる技術が容易に入手可能になったことより、分析・計測分野への応用が期待されている。特に半導体レーザについては、ペルチェ素子内蔵型の高精度温度コントロールを可能にした線幅の狭いDFB（Distributed Feedback）やVCSEL(Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser)等は、線幅の狭いガス吸光スペクトルに最適であるため、今後コンパクトな形態でのレーザ分光分析装置の製品化へ大きく寄与することが予想できる。

このような技術インフラの整備を背景として、光源に光パルスを採用することで、リアルタイムスペクトル計測が可能になることにより、同時に多次元の情報が取得できる計測手法が今後有望である。本研究開発においては、半導体レーザのゲインスイッチ法による高速光パルス発生技術の最適化を検討し、次世代分光分析技術に用いられることを目的とし、様々な光源の評価を実施した。また、光パルスを用いた高感度計測技術であるキャビティ・リングダウン分光法への最適化を検討した。

2　光源開発に関する実験及び結果

2－1　ゲインスイッチ法の原理

半導体レーザは、結晶中の電子と正孔の再結合によりエネルギーバンドギャップで決定される波

＊1　研究開発課　技師
＊2　研究開発課　主任
　　（現在独立行政法人産業技術総合研究所）
＊3　立命館大学理工学部　教授
＊4　京都大学大学院工学研究科　教授
＊5　京都大学大学院工学研究科　助手
＊6　独立行政法人産業技術総合研究所　主任研究員

長で発光し、正のフィードバックにより増幅・発振を得ることができる。直流バイアス電流によるＣＷ光や直接変調による変調光など、入力する波形により容易に発光を制御できる半導体レーザにおいて「ゲインスイッチング」と呼ばれる動作形態による発振を起こして、変調周期よりも数桁高速に光パルスを発生することができる。このダイナミクスは、キャリア密度と光子密度の時間経過過程によりしばしば説明される。半導体レーザに駆動電流パルスを直接入力すると、キャリア密度が直線的に増大し、レーザ発振しきい値に達すると、光子密度も増大しレーザが発振を開始する。なおもキャリア密度は増大し続け、最大キャリア密度に達した瞬間に、それまで蓄積された利得が一挙に光パルスとして放出され、その瞬間キャリア密度は減少し、しきい値以下となりレーザ発振は起こらなくなる。入力する駆動電流は、パルスでも正弦波周期波形でも同様である。図１にゲインスイッチングにおけるキャリア密度と光子密度の時間変化のモデルを示す。

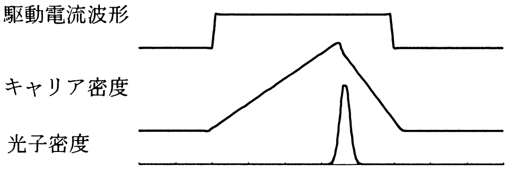

図１　ゲインスイッチング動作までのキャリア密度と光子密度の時間変化

ゲインスイッチング動作により発生する光パルスは､共振器中の光子寿命により決定されるため､半導体レーザの光子寿命～1psが最短パルス幅といえる。それより早い光パルスの生成は、発生した光パルスのチャーピング特性を利用したパルス圧縮素子によるパルス圧縮により実現できることが報告されており、1ps以下のパルス幅の光パルスを得ることができる。

２－２　高速パルス光発生回路

半導体レーザの駆動電流には、コーム発振器によりパルス入力する方法（図２）と直接正弦波周期波形入力（図３）により構成した。下記にゲインスイッチング動作のための駆動回路を示す。

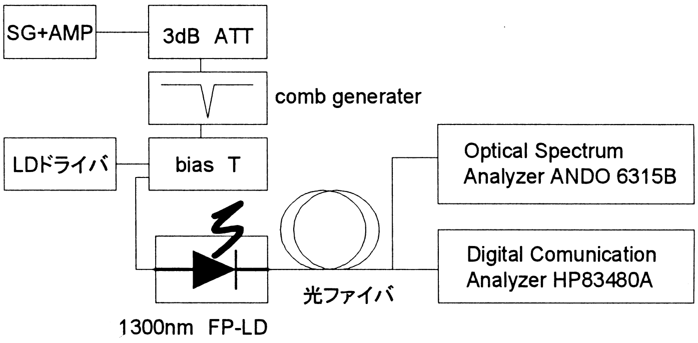

図２　パルス入力回路構成

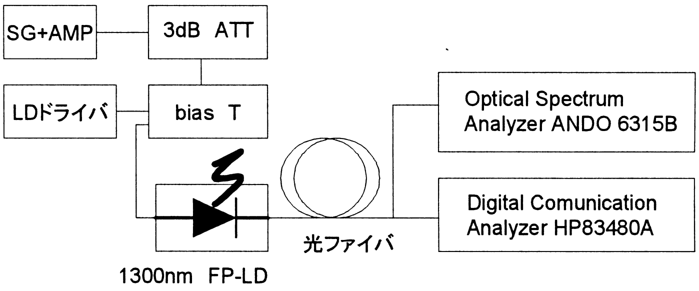

図３　正弦波入力回路構成

表１にパルス駆動方法と正弦波駆動方法の条件比較を示す。

表１　駆動方法の条件比較

駆動方法	条件	備考
パルス駆動	コーム発振器にて パルス入力 パルス幅　100ps 100MHz　周期	λ： 1310nm ファブリペロー型 半導体 レーザ 使用
正弦波駆動	100MHz　周期 バイアス電流　40mA ＲＦ入力パワー30dBm	

パルス駆動と正弦波駆動でのゲインスイッチング動作の光パルス波形を図４、図５に示す。半値全幅（以下ＦＷＨＭ）により比較すると、図４のパルス駆動により発生した光パルスが60ps程度

であるのに対し、図５の正弦波駆動により発生した光パルスが40ps程度となり、両者に差が出た。これは最大キャリア密度で蓄積されている利得の差によるものと考えられ、パルス入力条件により最適化を図ることは可能である。

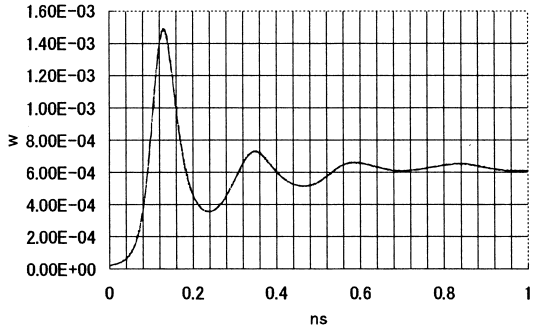

図４　パルス駆動により発生した光パルス波形

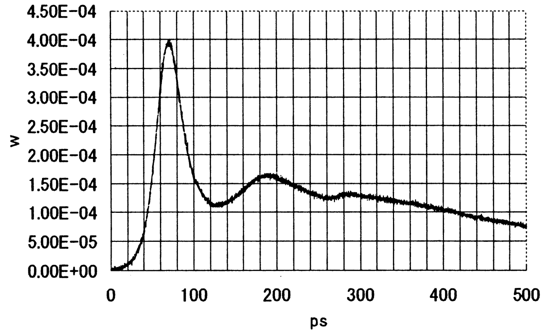

図５　正弦波駆動により発生した光パルス波形

ゲインスイッチング動作で発生していると考えられる光パルスは急峻に立ち上がり、急激に減衰しており､高速動作光スイッチを実現しているが､その後の鈍った光パルスは発振しきい値キャリア密度に再び達しているために発振している光と考えられる。これはキャリア密度上昇時間と利得の最適化を行うことで解消され、入力するパルス幅・周期・パワーの調整が必要である。今回使用した1310nmファブリペロー型半導体レーザに関しては、周期100MHzの繰り返しにより発生する光パルスの波形が最も高速で、再発光量も最も小さかった。

以上により、ゲインスイッチング動作で40psの光パルスを発生することが確認できたが、これを各種の半導体レーザにて、様々な波長にて可能かどうかについて検証を行った。

２－３　各種レーザ・光源に関する評価

正弦波駆動により周期とパワーの条件を変えながら、ゲインスイッチング動作の駆動方法について、各種レーザ・光源に関して実験・検証を行った。表２に実験・検証を実施した半導体レーザ・光源の種類を示す。駆動回路は図３を用いた。

表２　評価に用いた光源の種類

①ファブリペロー型半導体レーザ	λ：1310nm
②ＤＦＢ半導体レーザ	λ：1552nm
③面発光レーザ（ＶＣＳＥＬ）	λ：850nm
④スーパールミネッセント ダイオード（ＳＬＤ）	λ：850nm

①　ファブリペロー型半導体レーザ

自然放出光のフィードバック構造にへき開によるミラー反射を利用したファブリペロー型半導体レーザは、変調駆動時に多モード発振するため、波長スペクトルの広がりも大きい。図５はゲインスイッチング時の時間波形であるが、波長スペクトルを直流駆動時と比較したのが図６である。

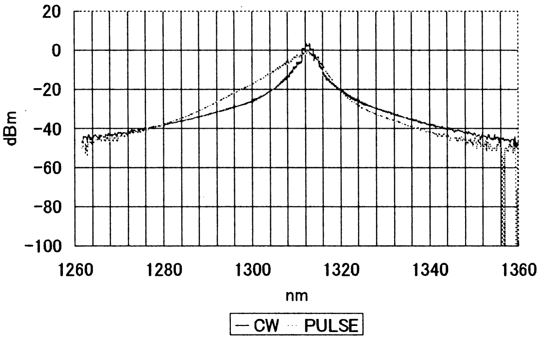

図６　波長スペクトル比較

ＦＷＨＭ（半値全幅）においてCW駆動時と比べて、パルス駆動時の方が波長が4nm程度広がっているのが確認できる。これは直流駆動時には単一縦モードで安定した発振が起こるのに対し、変

調駆動時には利得の変動に発振が安定しないため、多波長で発振が起こり、更にゲインスイッチング動作で短パルス化による波長広がりが重なったためである。ゲインスイッチング動作による発生パルスはFWHM40ps程度である。

② ＤＦＢレーザ

ＤＦＢレーザは、ファブリペロー型のように多モード発振した波長を選択的に取り出すよう内部に回折格子を配置した構造になっており、高速変調時にも単一モード発振が可能であるのが特徴であり、主に高速光通信向けに開発されたレーザである。ＤＦＢ半導体レーザのゲインスイッチング動作による発生パルス波形の観測を行ったところ、変調駆動電流の周波数による影響が大きかった。図７、図８に100MHz駆動時、図９，図10に500MHz駆動時の観測波形を示す。

100MHz駆動時では、ゲインスイッチング動作の後で利得が十分残留しており、変調電流に沿った形で発振が起こっている。500MHz駆動時では一挙に利得を得た形で発振が起こっており、残留利得は激減している。そのため、発生パルスも100MHz駆動時に比べて数ps高速化しており、ＦＷＨＭ35psを実現している。このようにゲインスイッチング動作による短パルス発生には駆動周波数による最適化が重要となる。

③ ＶＣＳＥＬ（面発光レーザ）

面発光レーザは高速変調用レーザとして開発が進められており、現在ではスループットで10Gbpsで安定した動作をするものが製品化されてきている。同様の実験にて、ゲインスイッチング動作を実現し、図11に発生パルス波形を示す。駆動条件は、ＲＦ周波数1GHz、入力パワー13dBmである。

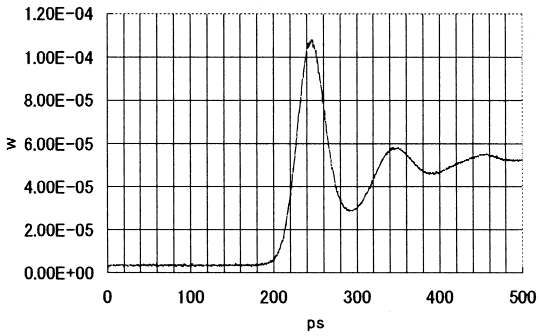

図７　100MHz正弦波駆動時発生パルス波形

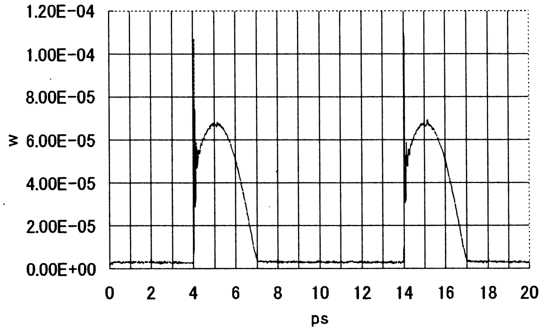

図８　100MHz正弦波駆動時発生パルス周期観測波形

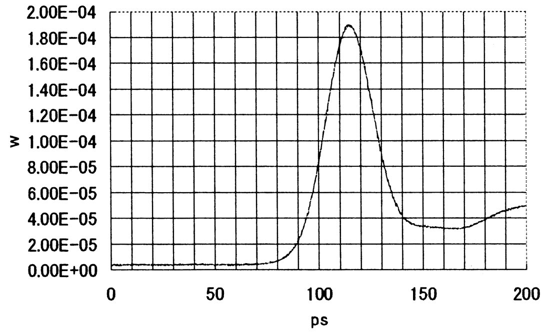

図９　500MHz正弦波駆動時発生パルス波形

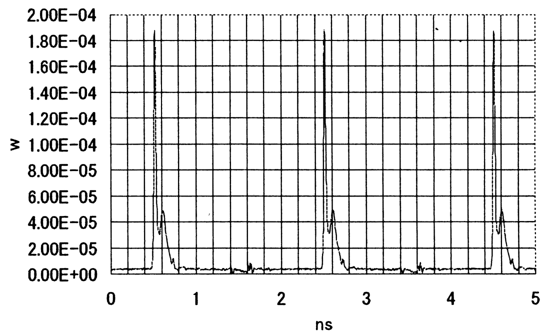

図10　500MHz正弦波駆動時発生パルス周期波形

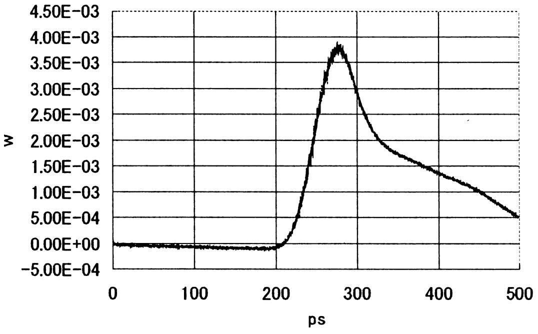

図11　ＶＣＳＥＬ正弦波駆動時発生パルス波形

波形を見てもわかるように残留利得がよく現れており、若干鈍った波形になる。ＦＷＨＭ75ps程度でしか短パルス化が実現できず、高速化のために更なる条件設定が必要である。

④ ＳＬＤ（スーパールミネッセントダイオード）

ＳＬＤは端面発光するＬＥＤで、ＬＤとＬＥＤの中間的な性質を兼ね備えた発光デバイスである。今回もゲインスイッチングが起こるかどうか不明であったが、短パルス発生が確認できた。図12に発生パルス波形を示す。

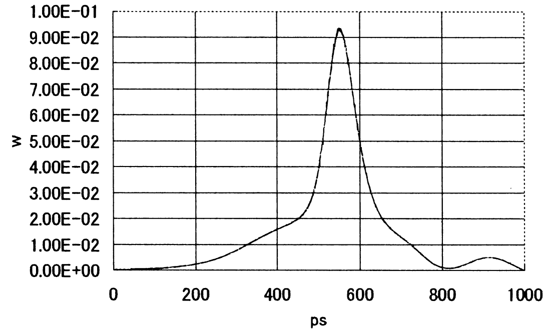

図12　ＳＬＤ正弦波駆動時発生パルス波形

動作条件はＲＦ周波数300MHz、入力パワーは35dBmであった。パルス波形としては残留利得がほとんどなく、良好であると考えられるが、高速化については限界であるとも言える。ＦＷＨＭは100ps程度である。

３　計測技術に関する実験及び結果

３－１　キャビティ・リングダウン分光法

光パルスを用いた高感度計測技術としてキャビティ・リングダウン分光法に関する検討を実施した。キャビティ・リングダウン分光法は、図13に示すように、高反射率のミラーを2枚対向させて、キャビティを構成し、そのキャビティ内に測定対象物を配置する。一方のミラーからパルス光を入射し、もう一方のミラーとの多重反射により、キャビティ内を光パルスが往復する波形を計測することで、高感度の吸光分光計測を実現する方法である。このとき、計測波形は、式（1)、(2）のように表される。両辺を自然対数により変形すると、減衰係数の傾きをもつ線形な式となるため、測定対象物が挿入されたときの傾きによる検量線を予め作成しておくことで、濃度の定量化が実現できる。

$$I_n(t) = I_0 \exp(-kt) \qquad (1)$$

$$I_a(t) = I_0 \exp(-(k+\Delta k)t) \qquad (2)$$

k　　：キャビティの減衰係数

Δk　：測定対象物固有の減衰係数

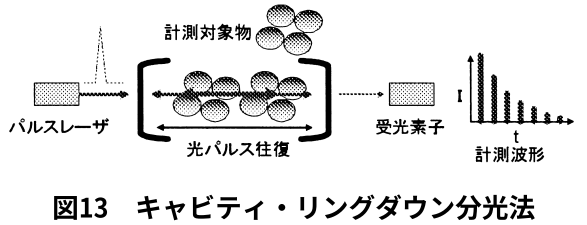

図13　キャビティ・リングダウン分光法

キャビティ・リングダウン分光法は、空間光学系での実験構成が一般的であるが、本研究開発においては、図14に示すとおり、光ファイバと光方向性結合器を組み合わせることで、光ファイバをループ状に接続し、キャビティ・リングダウン分光計測構成を実現した。光源に30MHzの正弦波入力で、ゲインスイッチ法にて発生した高速光パ

ルスと、結合度90:10の光方向性結合器と、光ファイバループ長30cmを用いたときの計測結果を図15に示す。

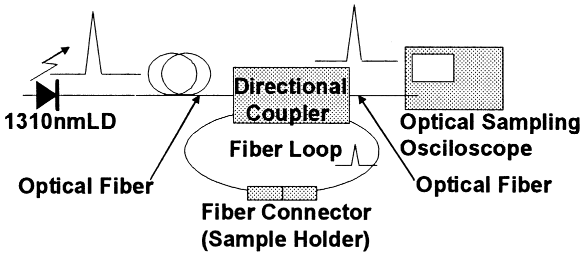

図14　ファイバループによるリングダウン分光計測構成

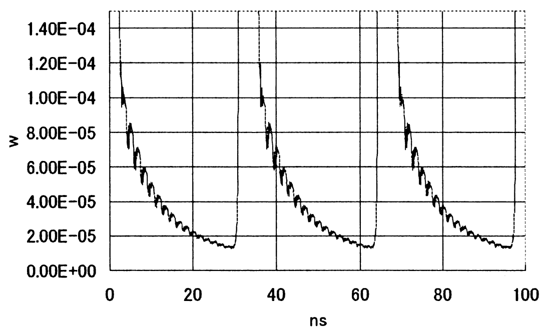

図15　ゲインスイッチ光パルスによるファイバループリングダウン計測波形

繰り返し周期が33nsで、伝送する光パルスの間隔は約1.5nsでリングダウンしていることが確認できたことから、光ファイバによる構成でのキャビティ・リングダウン分光計測構成を実現していることがわかる。

３－２　光ファイバループリングダウン分光計測手法の最適化

３－２－１　結合度の最適化

光ファイバループリングダウン分光計測手法に用いられる光方向性結合器の結合度を50:50、90:10にしたときの計測波形を図16、図17に示す。

図16において、光方向性結合器を光が通過する毎に光量は１／２となり、急速に光強度が減衰して、たちまちリングダウン波形が計測不可になる。図17においては、結合度が10%のため、計測できる光強度は低いが、緩やかに減衰するため、リングダウン波形が確認できる。このことから、光ファイバループリングダウン分光計測手法においては、光方向性結合器の結合度が、従来のキャビティ・リングダウン分光法で構成されるミラーの反射率に相当し、結合度を下げることで、高反射率ミラーを選択したときと同等の効果があることがわかる。これは、結合度を下げることで、結合する光強度は下がるが、長光路の計測が実現でき、高感度の計測が可能であることを示している。

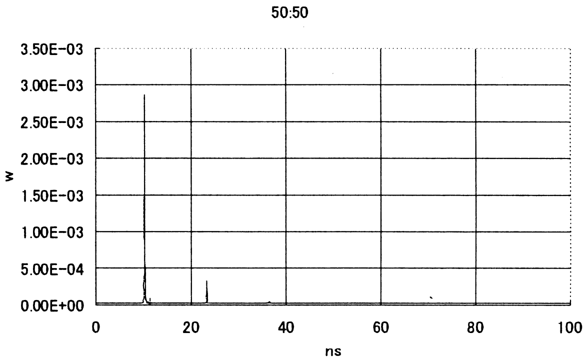

図16　結合度50:50

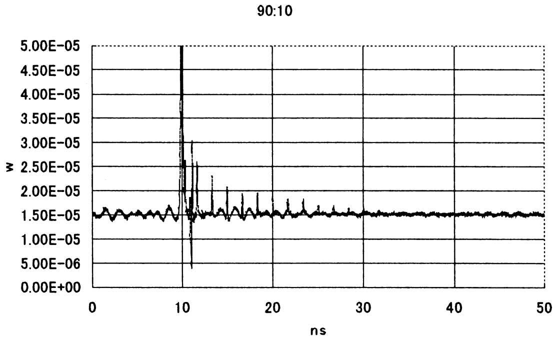

図17　結合度90:10

３－２－２　ダイナミックレンジの最適化

図17の波形から、最初の光パルスがレンジオーバーになっていることより、リングダウン波形の測定誤差の要因となる恐れがあるため、図18のように、光方向性結合器を２段にし、計測のダイナミックレンジの最適化の検討を行った。その結果を図19、図20に示す。

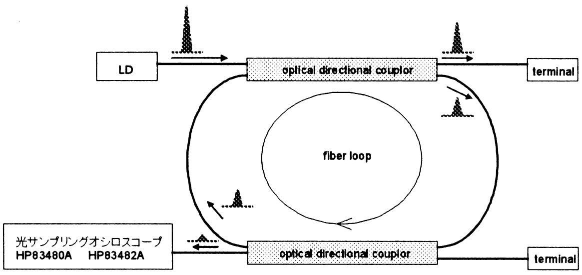

図18　ダイナミックレンジの最適化構成

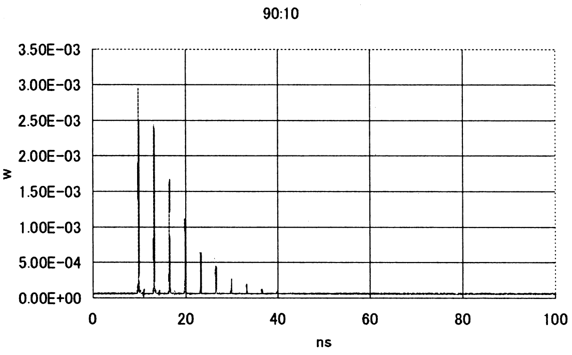

図19　結合度90:10

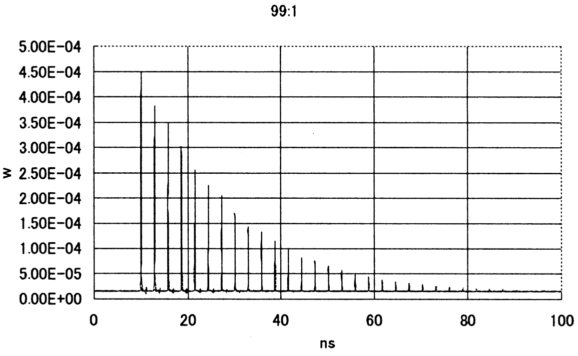

図20　結合度99:1

図17と図19との比較により、光ファイバループに閉じ込められた光のみ分離して計測可能となり、リングダウン波形が同一レンジ内で計測できていることが確認できる。当然のことながら、光方向性結合器を２段にしていることから、光強度は更に1/10となるため、結合度と受光素子感度とのトレードオフとなる。また図20は結合度99:1の計測波形である。結合度90:10よりもリングダウン波形が緩やかに減衰しており、長光路化していることが確認できる。

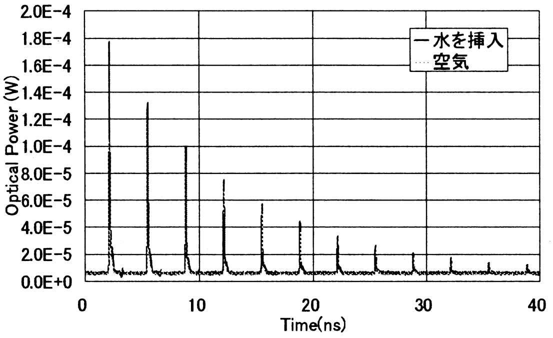

図21　リングダウン波形

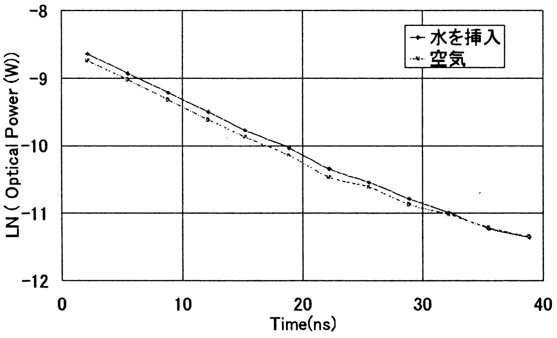

図22　自然対数（LN）波形

３－２－３　液体挿入による評価

図14におけるファイバコネクタ部分をサンプルホルダとして、間隙を約50μm設け、空気のときと水を挿入したときの測定結果を比較する。測定構成は図18の光方向性結合器を２段接続により行った。リングダウン波形比較結果を図21、自然対数比較波形を図22に示す。

図21によりリングダウン波形計測を実現できていることがわかる。空のときより水を挿入したときの方が光強度が大きいのは、水の屈折率が1.33程度であるため、光ファイバ端面から出射された光が水の中に閉じ込められ、丁度光ファイバが存在するかのように伝送効率が向上していると考えられる。また図22により、直線性は22nsまで得られている。22ns以上において直線性がずれているのは、受光素子感度及び測定器の量子化ビット誤差によるもので､入射光強度を上げることで､改善できることが期待できる。このサンプルホル

ダの容積は、ファイバコネクタ部分の間隙を50μm、シングルモードファイバのコア径を10μmとしたとき、およそ4pl（ピコリットル）となり、超微量のサンプルでの測定の可能性を示唆している。

4　まとめ

本研究開発においては、安価で入手できるようになった近赤外半導体レーザを用いて、光パルス分光計測のための光源評価を実施し、半導体レーザのゲインスイッチ法による高速光パルス発生条件を取得することができた。また、光パルスを用いた高感度計測可能なキャビティ・リングダウン分光法による光ファイバと光方向性結合器を用いた計測手法の開発を実施し、空間系計測と同等の計測が可能であることを確認した。また光ファイバコネクタを用いることで、超微量サンプルでの計測の可能性を示すことができたことから、今後微量溶液中の微量成分の計測の最適化を検討していく予定である。

5　謝　辞

本研究開発は、経済産業省　平成13年補正　即効型地域新生コンソーシアム研究開発事業にて実施した。

参考文献

[1] A.O'keefe and D.Deacon,“ Cavity ringdown optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources,” Rev.sci.Instruments,59, 2544(1988)

[2] Zhaoguo Tong,Richard D.Oleschuk,and Hans-Peter Loock,“ Fiber-Loop ringdown spectroscopy,” JOURNAL OF CHEMICAL PHISICS.VOL117,23(2002.12)

[3] 安達　雅浩、黒川　悟、川崎　昌博、森本朗裕、“ 光ファイバループによるリングダウン分光の可能性 ”、第63回応用物理学会講演会、29a-YR-10（2003. 3）

[4] 齋藤　冨士郎、“ 超高速光デバイス ”、共立出版株式会社（1998）