

超高繰り返しパルス光源開発に向けた微小共振器と CNT の結合

石田蘭丸(M2) 今村陸(M1) 長島圭吾(B4)

超高繰り返し周波数を持ったパルス光源は通信、宇宙物理の解明、レーザ加工のような応用の可能性秘めている。特に Er ドープ微小光共振器を作製と可飽和吸収体（カーボンナノチューブ）を組み合わせることで光パルスを生成する手法では、バックグラウンドフリーな動作や高い効率性を期待することができる。本研究では CNT とシリカトロイド微小光共振器と組み合わせる新たな手法を提案し、その光学特性を測定・評価した。

キーワード：パルス，微小光共振器，CNT

1. 導入

これまでに多くのプラットフォームを用いて多様な特性を持つパルスレーザが開発されてきている。特に超高繰り返し周波数を持ったパルス光源は通信、宇宙物理の解明、レーザ加工のような応用の可能性秘めている。先行研究ではファブリーペロー型[1]やカーレンズモード同期[2]を用いることで 20 GHz 程度の繰り返し周波数を持ったものが報告をされている。しかしこれらはオンチップで動作をさせることができないこと、さらなる高繰り返し化が難しいことが欠点であった。

微小光共振器を用いた光パルスの生成手法では一般的に散逸性カーソリトンが用いられてきた[3]。この手法でもまた 20 GHz を超える超高繰り返しを実現することができる。しかしながらソリトンの安定化は難しく、効率を高くすることもできないため実用的ではない。加えてパルスの強度が低いことが以前から指摘されており、励起用の光がパルスのバックグラウンド光になり除去できないことから原理的に増幅をすることができない。

そこで我々が注目しているのは図 1 に示すような、エルビウムドープトロイド微小光共振器に CNT を付けることでモードロックパルスを得る手法である。この手法ならば超高繰り返し/オンチップ動作を実現できると共に、励起波長と発振波長が異なることからバックグラウンドフリーな動作が可能となり、後段で増幅することも可能である。

本研究ではパルス化に必要な可飽和吸収体である Carbon NanoTubes (CNT) の評価やシリカトロイド共振器と結合させる手法の提案、そして実際に測定した可飽和吸収特性の評価を行っている。

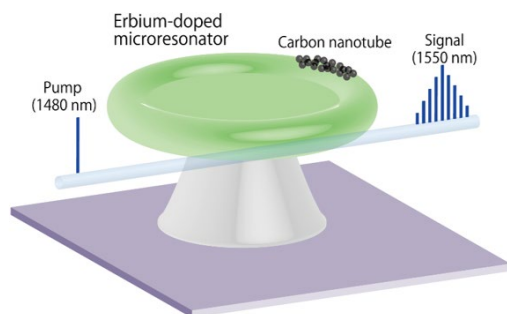


図 1：エルビウムドープ微小光共振器と CNT を結合させてモードロックパルスを得るイメージ図。

2. 適当な CNT の選定

本研究ではシリカトロイド共振器に CNT を結合させる手法として CNT を Polydimethylsiloxane(PDMS) に混ぜて混合物を作り、それをトロイドにコーティングするという手法を選択した。この手法のメリットは共振器の Q 値の低下を低く抑えることができることと CNT の濃度を容易に調整できることである。そこで最初に行ったのは吸光度測定による適当な CNT の選定である。この測定の目的は CNT の可飽和吸収と非飽和吸収の割合の測定である。CNT を共振器に付けてから十分な可飽和吸収を得ることを考えると、非飽和吸収が少ないことが望ましい。なぜならば非飽和の吸収成分はそのまま共振器の損失に直結し Q 値の減少を招くからである。そこで 3 種類の製法が異なる CNT を用意し、それらに対して吸光度測定を実施した。それらの結果を図 2 に載せる。吸光度測定において、可飽和吸収の割合は実験により得た青線で示されるスペクトルとそれに対して滑らかにフィッティングした黒い曲線の差分に相当する。すなわち図 2 における赤線部分が可飽和吸収の割合である。このことから HiPCO と呼ばれる CNT の性能が最も適していることが分かった。

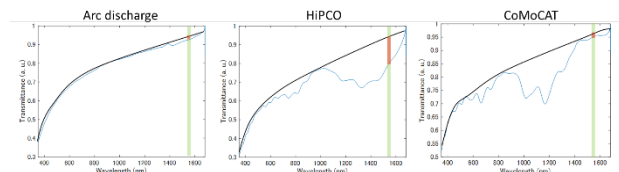


図 2：製法の異なる 3 種類の CNT に対して吸光度測定を実施した結果

3. CNT/PDMS の作製と共振器との結合

続いて CNT をポリマーと混ぜる手法についてである。本研究では、先行研究[4]で報告をされているような手法を参考にして CNT-PDMS の混合物を作製した。まずイソプロパノール (IPA) 10 g と CNT 0.6 mg を加え超音波洗浄をかけて CNT を分散させる。この溶液は非常に濃度が高く、そのまま使用することは本研究には適していないのでこの溶液から 0.5 g をとりさらに IPA を 10 g 加えて希釈する。このあとに 1 時間程度十分に超音波を当てることで CNT を分散させたあとに所望の量の CNT/IPA 溶液を取りシリコンオイルと PDMS を 1:4 の質量比で混ぜて超音波を 30 分程度かけた。最後にホットスターラーで 70 度熱し

ながら3日以上置くことでIPAを完全に揮発させる。このようにしてCNT/PDMS混合物を作製した。

4. トロイド共振器へのCNT/PDMSの転写

続いて作製したCNT/PDMSの転写を行った。本研究では[5]で報告されている手法を参考に、コーティングを行った。作製したCNT/PDMSに対して質量比10:1で硬化剤を混ぜ、図1(d)に示すようにテーパファイバにつけてからトロイド共振器にコーティングした。コーティング後は室温で48程度置くことでPDMSを完全に硬化させた。実際にコーティングしている時の様子を図3(a)に載せる。

また、図3(b)の挿入図に示されるようにコーティングした後のトロイド共振器のエッジ部分にラマン分光法を実施するとたしかにCNT特有のピークが存在し、トロイドの表面にCNTが付着していることを確認することができた。

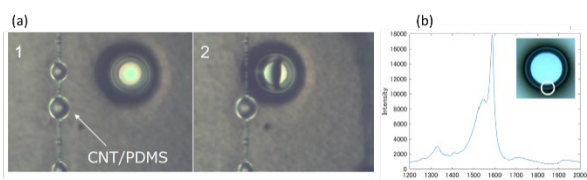


図3(a):CNT/PDMSをトロイドにコーティングしている様子。(b):CNT/PDMSをコーティングしたトロイド共振器に対してラマン分光法を実施した結果。

コーティングの時に注意すべきは Q 値と分散の変化についてである。 Q 値に関しては共振器の損失に関する物理量であるため、この値が大きく減少するとレーザー発振が難しくなる。また分散に関してもコーティングより例えば分散が大きく正常分散による場合、パルス発振には不利になる。そのためこれらを定量的に評価した。

1. Q 値の変化

3種類の濃度が異なるCNT/PDMSを用意し、それぞれの吸収係数を実験的に測定しそこからコーティングした後の理論的な Q 値を推測した。最初に行ったのは吸収係数の測定である。用意したのはCNT濃度がそれぞれ0, 0.03, 0.24 mg/mlのCNT/PDMSである。

$$Q = \frac{2\pi n}{\alpha\lambda} \quad (1)$$

それぞれにおいて微小球共振器を作製し、 Q 値を測定し、そこから吸収係数を式(1)を用いて導出した。その結果を図4に載せる。すると、濃度が上昇するにつれて吸収係数が増加する傾向があることが分かった。

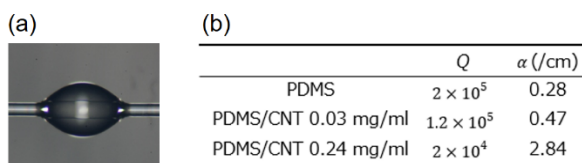


図4(a):作製した微小球共振器 (b):濃度の異なるCNT/PDMSの吸収係数の比較

続いてCOMSOLを用いてPDMSの膜厚を40nm~

240 nmまで40 nm間隔で変えていった時のポリマー中に存在する光の割合を計算した。その結果を図5(a)に載せる。膜厚が増加するにつれて、光の割合が増加していることが分かる。図5(b)ではそこから理論的な Q 値をそれぞれ導出している。横軸がPDMSの膜厚で縦軸は吸収にリミットされた際のトロイド共振器の Q 値である。PDMSの膜厚が増えるとともにポリマー中に存在する光の割合が増え、 Q 値が減少する傾向にあることがわかる。

さて、実際に純粋なPDMSをトロイド共振器にコーティングして Q 値を測定すると 2×10^7 程度であった。この結果を図2(a)を元に評価すると1回のコーティングで膜厚は100 nm程度であると考えられる。この結果は[6]で述べられている内容とよく一致する。実際、0.24 mg/mlのCNT/PDMSをコーティングすると、 Q 値は 2×10^6 程度であり、理論値と一致していることが分かった。

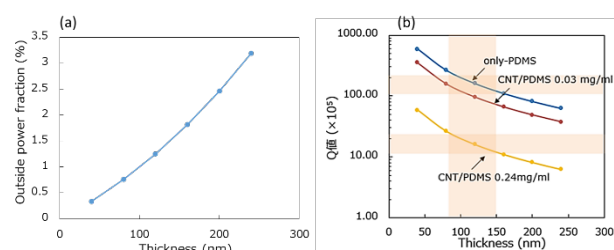


図5(a):COMSOLで計算をしたポリマーの膜厚とポリマー中に存在する光の割合の関係 (b):膜厚とCNTの吸収にリミットされた場合の Q 値の関係

2. 分散の変化

図6(a)が1500 nm~1640 nmまでで透過率を測定した結果であり、基本モードだと思われるオレンジのマーカーを付けたモードに関して分散の計算を行った。その計算結果を図6(b)に示している。青いドットが実験結果であり、赤い曲線は3次の分散まで考慮をして書いた1次のTEモードの分散曲線である。その結果、コーティングした時の実験結果とコーティングしていない時の計算結果がよく一致しており、コーティングによって分散が大きく変化していないということが分かった。このことからエルビウムドープ微小光共振器を異常分散で作る必要がある、もしくは異常分散のモードでレーザー発振をする必要があるということを確認することができた。

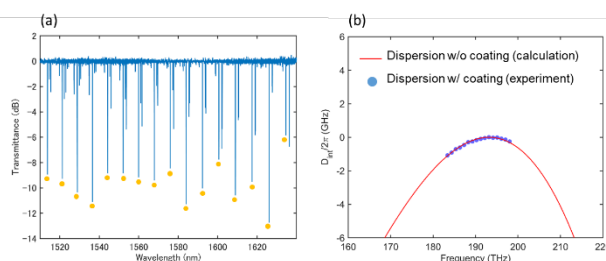


図6(a):1500-1640 nmにおける共振器の透過スペクトル (b):分散の理論値と実験値の比較

5. 飽和吸収特性の測定と評価

本研究では0.24 mg/mlの高濃度CNTをトロイド

表面にコーティングして SA の実験を行っている。

SA を測定するためには共振器内部の光強度を変化させた時に Q 値がどのように変化するかを測定する必要がある。そこで本研究では図 7(a)のようなセットアップを採用した。この実験ではポンプを 1539.516 nm, 5 dBm, 0.03Hz で非常にゆっくりスキャンしている。その間、プローブ光は 1547.103 nm, 0 dBm, 2 Hz とポンプと比較的高速にスキャンした。そうすることで共振器内部のパワーが徐々に増加したときに Q 値がどのように変化するかを連続的に測定することができる。図 7(b)は上からプローブ光、ポンプ光そしてプローブ光のディップをローレンツ関数でフィッティングした結果から換算される Q 値を示している。式(2)から共振器内部のパワーを算出し、式(1)から Q 値と吸収係数の関係性に置き換えてプロットすると図 7(c)のようになる。

$$P_{cav} = \frac{1 - T}{1 + \sqrt{T_0}} \frac{Q_{load} \nu_{FSR}}{\pi \nu} \cdot P_{in} \quad (2)$$

この結果、飽和強度が 15 MW/cm²。変調深度は 3.2 × 10⁻³ でたしかに可飽和吸収特性を測定することができた。

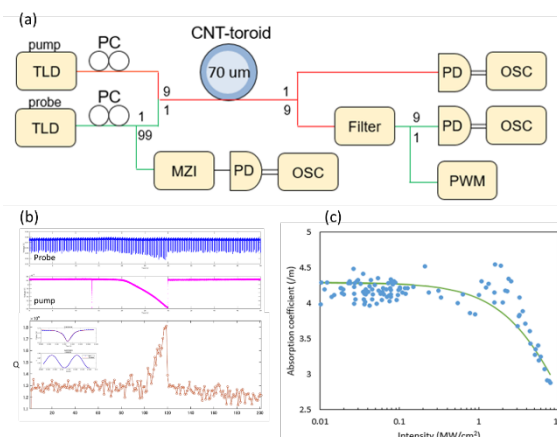


図 7 (a) : 可飽和吸収特性の測定のための実験セットアップ。(b) : 実験結果。上からプローブ光の透過強度、プローブ光の透過強度、そしてプローブ光の波形をローレンツ関数でフィッティングした際の Q 値 (c) : 共振器内部のパワーと吸収係数の関係

この値はパルス発振を得るために我々が行った計算結果と比べると、適当なパラメータと比較して少し値が大きい。なので今後の方針として CNT の濃度を下げてトロイドにコーティングすることが考えられる。

6. 結論

本研究では CNT/PDMS 混合物を作ってそれをトロイド共振器にコーティングし、SA の測定を行った。COMSOL を用いた計算結果から今回測定に用いたトロイド共振器の Q 値は CNT の吸収 (散乱も含む) によってリミットされており、新たな SA 測定のセットアップを用いて可飽和吸収特性を測定することができた。今回の結果では飽和強度 15 MW/cm²、変調深

度は 3.2×10⁻³ であった。このポリマーを用いたコーティング手法は CNT の濃度を変えることが可能であり、適当な SA 特性を利用することで、モードロックパルスの安定化に利用できる可能性がある。また CNT 以外の特異的な性質を示すナノ材料と共振器を組み合わせる新たな手法になる可能性もなりうる。

参考文献

- [1] A. Martinez and S. Yamashita, *Opt. Express* **19** 6155 (2011).
- [2] S. Kimura, S. Tani, and Y. Kobayashi, *Optica* **6** 532 (2019).
- [3] T. Herr, V. Brasch, J. D. Jost, C. Y. Wang, N. M. Kondratiev, M. L. Gorodetsky and T. J. Kippenberg, *Nature* **8** 145 (2014).
- [4] J. H. Kim, J.-Y. Hwang, H. R. Hwang, H. S. Kim, J. H. Lee, J.-W. Seo, U. S. Shin, and S.-H. Lee, *Sci. Rep.* **8** 1375 (2018).
- [5] L. He, Y.-F. Xiao, C. Dong, J. Zhu, V. Gaddam, and L. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **93** 201102 (2008).
- [6] B.-B. Li, Q.-Y. Wang, Y.-F. Xiao, X.-F. Jiang, Y. Li, L. Xiao, and Q. Gong, *Appl. Phys. Lett.* **96** 251109 (2010).