

2022年度 修士論文

マルチバンド分子振動イメージングに向けた
広帯域波長可変ファイバ光パラメトリック発振器

Broadband Wavelength-Tunable
Fiber Optical Parametric Oscillator
for Multiband Vibrational Imaging

2023年1月26日 提出

指導教員 小関 泰之 教授

東京大学大学院 工学系研究科
電気系工学専攻

37-216528 高橋 俊

論文要旨

生体の複雑な仕組みを解明するためには、細胞内の様々な生体分子を生きたまま可視化する技術が重要であり、新たな生体イメージング技術として誘導ラマン散乱 (SRS: stimulated Raman scattering) 顕微鏡が注目されている。特に、広帯域に亘る複数のラマンバンドの情報を同時に取得するマルチバンド SRS イメージングは、分子がもつ化学的特性を最大限に引き出し、識別性能を飛躍的に向上させる。マルチバンド SRS 顕微鏡には、高速で広帯域な波長可変光源が必要であるが、従来の波長可変光源はそれらを両立できない。このトレードオフを克服するために基本的アプローチの異なる様々な波長可変光源が提案されており、中でもファイバ光パラメトリック発振器 (FOPO: fiber optical parametric oscillator) は SRS 光源に十分なパワースペクトル密度が得られることから有力な候補である。しかしノイズ性能などにおいては未だに課題が多い。

本研究では、マルチバンド SRS イメージングの実現に向けて、フォトニック結晶ファイバ内での四光波混合と共振器内の波長フィルタを用いた広帯域波長可変 FOPO を提案・作製した。この FOPO は低ノイズレーザーとの同期によって、高感度な SRS イメージングへの応用が可能である。構築した FOPO はスペクトル幅 1.1 nm、パルス時間幅 1.0 ps のフーリエ限界に近いピコ秒光パルスを生成する。Yb 添加ファイバレーザー (YDFL: Yb-doped fiber laser) から出力されるポンプ光の波長と波長フィルタを操作することにより、832–922 nm (1200 cm^{-1}) のチューニング範囲を実現した。機械式ステージの移動量をわずか 0.8 mm に抑えることにより、高速化も可能であることを示した。また、FOPO の高出力化のために大面積ファイバを利用した YDFL を作製した。ポンプ光の出力パワーは 2 W 以上にまで向上し、ファイバ内での不要な非線形光学効果も大幅に抑制される。この YDFL を用いることで、FOPO の出力パワー約 60 mW を達成した。

報告する FOPO と低ノイズピコ秒レーザーとの同期レーザー光源は、SRS 顕微鏡による高感度かつ広帯域な分子振動イメージングの実現に貢献するだろう。

目次

論文要旨	i
第 1 章 序論	1
1.1 本研究の背景	1
1.1.1 誘導ラマン散乱顕微法	1
1.1.2 超多色誘導ラマン散乱イメージング	2
1.1.3 波長可変レーザー光源の先行研究	3
1.2 本研究の目的	6
1.3 本論文の構成	7
第 2 章 ファイバ中の光パルス伝搬	8
2.1 パルス伝搬方程式	8
2.1.1 非線形波動方程式	8
2.1.2 非線形シュレディンガー方程式	9
2.2 群速度分散	10
2.3 自己位相変調	11
2.4 四光波混合	14
2.4.1 四光波混合の原理	14
2.4.2 位相整合条件	16
2.4.3 パラメトリック利得	16
第 3 章 ファイバのモード理論	17
3.1 固有モード	17
3.2 モードの直交性	19
3.3 モードの結合	20
第 4 章 誘導ラマン散乱	22
4.1 調和振動子	22
4.2 コヒーレントラマン散乱	23
4.3 誘導ラマン散乱過程	24
第 5 章 広帯域波長可変レーザー光源の概要	27
5.1 四光波混合による波長可変範囲の拡大	27
5.2 光共振器を用いたパラメトリック発振	27
5.3 フォトニック結晶ファイバ	29
5.4 顕微法応用のための各指標	29

第 6 章	Yb 添加ファイバレーザの構築と評価	31
6.1	モード同期ファイバレーザ	31
6.2	スペクトル拡張と波長フィルタ	32
6.3	Yb 添加ファイバ増幅器	36
6.4	大モード面積ファイバによる高出力化	36
6.4.1	大モード面積ファイバ	37
6.4.2	大モード面積ファイバの高次モード抑制方法	39
6.4.3	特性評価	42
第 7 章	ファイバ光パラメトリック発振器の構築と評価	46
7.1	ファイバ光パラメトリック発振器の概要	46
7.2	光パルスの特性評価	48
7.3	波長チューニング特性	49
7.4	ポンプ光高出力化後の波長チューニング特性	52
第 8 章	総括	54
付録 A	波長フィルタなしでの発振スペクトル	55
付録 B	パルス時間幅と四光波混合利得の関係	56
付録 C	ファイバ端面の損傷	57
参考文献		57
発表文献		66
謝辞		68

第1章 序論

1.1 本研究の背景

1.1.1 誘導ラマン散乱顕微法

生体の複雑な仕組みを解明することは医学・生物学における主題の一つであり、科学的な探究にとどまらず、医薬品開発や臨床医療への応用とも密接に繋がっている。細胞のようなミクロな世界を観察することが生体の仕組みの理解にとって重要であり、そのために顕微法が用いられる。電子顕微法は高い空間分解能を持つが、真空状態を必要とするため水分のある環境の観察には適していない。一方で光学顕微法は非破壊的な観察手法であり、細胞内の様子を元の状態のまま観察することができる。

生体の仕組み・働きを解明するという目的において最も広く普及している光学顕微法は蛍光顕微法 [1-3] である。蛍光顕微法は感度が高く、空間分解能を向上させる手法も多く提案されている。機能性・操作性も高く、これまで医学・生物学分野の発展に大きく貢献している。その一方で原理的に解決が困難な幾つかの課題を抱えている。特に、蛍光分子と比較してサイズの小さな分子の観察が難しいこと、スペクトル分解能が低いことが問題である。図 1.1(a) に示したのは蛍光分子を結合させる抗体、蛍光分子、小さな生体分子の一つであるグルコースのサイズ比較である [4]。緑色蛍光タンパク質 [5] の大きさは約 4 nm、蛍光分子の中でも小さいとされる有機蛍光色素の大きさは約 1 nm である。サイズが蛍光分子と同等か小さな分子に蛍光分子を標識した場合、標的となる小さな分子の構造・機能は破壊されてしまうため分子本来の状態を観察できない。もはや蛍光分子を介して標的を観察しているのではなく、蛍光分子そのものを観察していることになる。蛍光顕微法が抱えるもう一つの大きな問題が低いスペクトル分解能である。図 1.1(b) は蛍光体の発光スペクトルを表している [1]。スペクトル幅が広く、分布が特定の帯域に偏っている。各スペクトルの重なりが大きく、同時に観察して識別できる分子の数は最大でも 5 種類ほどである。

コヒーレントラマン散乱 (CRS: coherent Raman scattering) 顕微法 [6-16]、とりわけ誘導ラマン散乱 (SRS: stimulated Raman scattering) 顕微法 [8-16] は、蛍光顕微法の課題を克服し、小さな生体分子がもつ本来の役割・機能を観察することや超多色イメージングを実現することが期待されている。SRS 顕微法は、2008 年に初のイメージング実証 [8] が報告され、ほぼ同時に 2 つのグループからもイメージング実証 [9,10] が報告されたのを皮切りに、この 15 年間で盛んに研究が行われ急速に発展している [16]。

ラマン散乱とは、分子の共鳴振動により、物質に入射した光とは異なる周波数の光が出てくる現象である [17]。入射光と散乱光の周波数差は分子の共鳴周波数と一致するため、この周波数差を測定することで分子のもつ情報を得ることができる。自発ラマン散乱を利用したラマン分光法は既に技術が確立されており、社会に広く普及している。しかし自発ラマン散乱による信号は非常に微弱であるため、分光とは異なり多数の点を測定するイメージングに用いるのは難しい。CRS では非線形光学効果によりコヒーレントに分子振動を励起するため、自発ラマン散乱と比較して信号強度が大幅に向上し、イメージング応用が可能となる。ラマン散乱は各分子固有の共鳴振動に伴った光散乱であり、任意の分子で起こる物理現象である。そのためラベルフリーでのイメー

著作権上の理由により掲載できません。

図 1.1: (a) Size comparison between IgG antibody, green fluorescent protein, organic fluorescent dye, and a typical small biomolecule (glucose) [4]. (b) Emission spectra for fluorophores [1].

ジニングが可能であり，生体試料への侵襲を伴わない．またラマンスペクトル上に現れるピークのバンド幅は 10 cm^{-1} 程と非常に狭く，ピーク位置も広い帯域に亘っているため，超多色イメージングが可能である．実際これまでに細胞代謝における分子の合成反応の可視化 [18] や 10 色の超多色生体イメージング [19] など蛍光顕微法では不可能だった生体イメージングが実証されている．

図 1.2 は SRS 顕微法の模式図である．周波数の異なる 2 色の同期したピコ秒光パルスレーザー（周波数の高い方がポンプ光，低い方がストークス光）を用いる．同時に試料へ入射した 2 色の光パルスの周波数差が分子の共鳴周波数と一致すると，SRS によってポンプ光が減衰，ストークス光が増幅される．繰り返し周波数が数十 MHz の 2 色の同期した光パルス列の一方（図 1.2 ではストークス光）に強度変調を施し，SRS を介して他方のパルス列（図 1.2 ではポンプ光）に転写された強度変調信号をロックイン検出することにより SRS 信号を取得する．また xy スキャナによりビーム照射位置を掃引することによりイメージングを行う．

1.1.2 超多色誘導ラマン散乱イメージング

図 1.3 は一般的な細胞のラマンスペクトルを示している [13]．各化学結合の共振モードに由来するピーク信号があり，主に $500\text{--}3100\text{ cm}^{-1}$ の波数領域にピークが現れる．ラマンスペクトル全体は大きく 3 つの領域に分類することができ，エネルギーの小さい方からそれぞれ指紋領域 ($500\text{--}1800\text{ cm}^{-1}$)，サイレント領域 ($1800\text{--}2800\text{ cm}^{-1}$)，CH 伸縮領域 ($2800\text{--}3100\text{ cm}^{-1}$) と呼ばれる．指紋領域には様々な共振モードが存在する．サイレント領域には生体分子に固有の共振モードは存在しないが，ラマンタグの導入 [20] や重水素化 [21,22] を行うことでラマンピークが現れる．生体固有のラマン信号がないため，バックグラウンドフリーで選択的に観察が行える．CH 伸縮領域は信

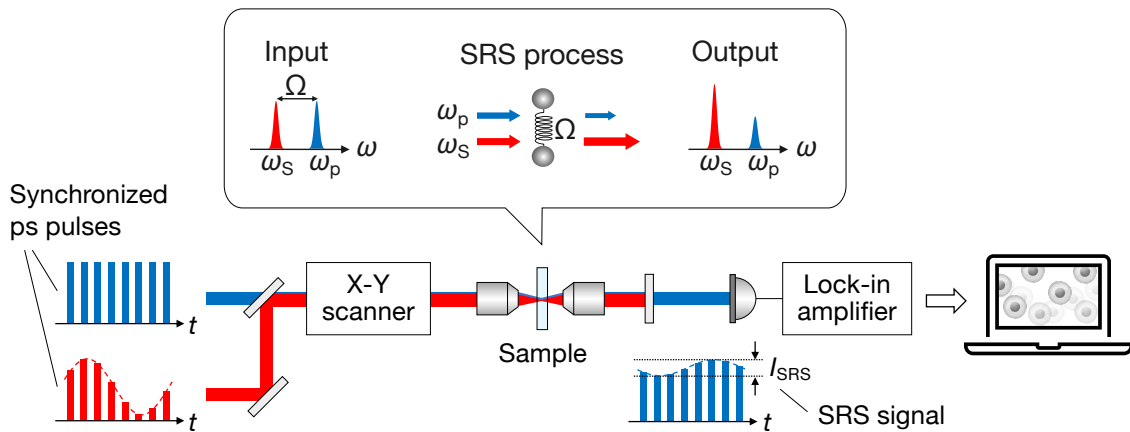


図 1.2: Schematic of SRS microscopy using a lock-in detection of the transferred intensity modulation. The inset shows SRS process. When a frequency difference between two-color laser light, which are typically picosecond pulsed light in SRS microscopy, matches a molecular vibrational frequency, Stokes light is amplified (stimulated Raman gain), and pump light is attenuated (stimulated Raman loss).

著作権上の理由により掲載できません。

図 1.3: Typical cell Raman spectrum [13]. Raman spectrum is classified as the fingerprint region ($500\text{--}1800\text{ cm}^{-1}$), silent region ($1800\text{--}2800\text{ cm}^{-1}$), and CH stretching region ($2800\text{--}3100\text{ cm}^{-1}$). Each chemical bond has a Raman peak in a specific wavenumber.

号強度が高く、高感度にイメージングを行える。

各分子は固有のラマンスペクトルを持つため、複数の波数で SRS 信号を測定すると分子の識別が可能であり、多色 SRS イメージングを行える。図 1.4 はこれまでに実証された超多色 SRS イメージングである [19,23,24]。いずれも蛍光顕微法との組み合わせではあるが、図 1.4(b),(c) は化学的特異性を有している状態でそれぞれ 8 色、10 色のイメージングを実現している。しかしこれらの超多色 SRS イメージングは、サイレント領域や CH 伸縮領域内の特定のラマンバンドにおける SRS 信号を検出したものであり、分子の持つ豊富な情報の一部にしかアクセスできていない。

1.1.3 波長可変レーザー光源の先行研究

理想的な超多色 SRS イメージングを実現するためには、SRS 顕微法で用いる 2 色のピコ秒光パルスレーザー光源の一方で高速かつ広帯域な波長チューニング性能が必要である (図 1.5)。同時に複数の分子を観測したり、高い時間分解能で細胞内の時間変化を追跡したりするためにはサブ秒オーダーの高速チューニングが求められる。また、図 1.3 に示したような広帯域なラマンスペク

著作権上の理由により掲載できません。

図 1.4: Examples of multicolor SRS imaging. (a) 16-color live-cell imaging [23]. (b) 8-color organelle imaging of live HeLa cells [24]. (c) 10-color organelle imaging of living HeLa cells [19].

トル全体をカバーするためには、 2600 cm^{-1} 程度のチューニング範囲も要求される。

しかし、現状の波長可変レーザー光源は上記の要求性能を満たしていない。SRS 顕微法の抱える課題の 1 つが波長可変レーザー光源のチューニング性能にある。波長可変レーザー光源として広く使われているのは、固体レーザーやファイバレーザーで励起した光パラメトリック発振器 (OPO: optical parametric oscillator) [25–27] またはイッテルビウム (Yb: ytterbium), エルビウム (Er: Erbium) 添加ファイバレーザー [28–30] であるが、これらのレーザー光源にはチューニング範囲とチューニング速度の間にトレードオフがある。OPO は 4000 cm^{-1} のチューニング範囲によりラマンスペクトル全体をカバーするが、波長チューニングのために非線形光学結晶の温度調整や角度調整を行うため、非常に低速である。もう一方の Yb/Er 添加ファイバレーザーはミリ秒オーダーのチューニングが可能であるが、利得媒質の利得帯域によりチューニング範囲は 300 cm^{-1} 程度に制限される。

OPO や Yb/Er 添加ファイバレーザーなどの既存の波長可変レーザー光源の課題を克服するために、ファイバ内の非線形光学効果を用いたチューニング手法が提案されている。大きく 3 つの手法があり、スーパーコンティニウム光生成 (SCG: super continuum generation) [31, 32], ソリトン自己位相シフト (SSFS: soliton self frequency shift) [33–35], そして四光波混合 (FWM: four-wave mixing) を用いたファイバ光パラメトリック発振器 (FOPO: fiber optical parametric oscillator) [36–39] である。

SCG は非線形光学効果の一つである自己位相変調によりスペクトル帯域を広げる手法であり、その後、波長フィルタを用いて特定のスペクトル範囲を切り出す。SSFS はファイバ材料による SRS を介してパルス内で長波長側にエネルギーをシフトさせる手法である。SCG と SSFS は時間幅の

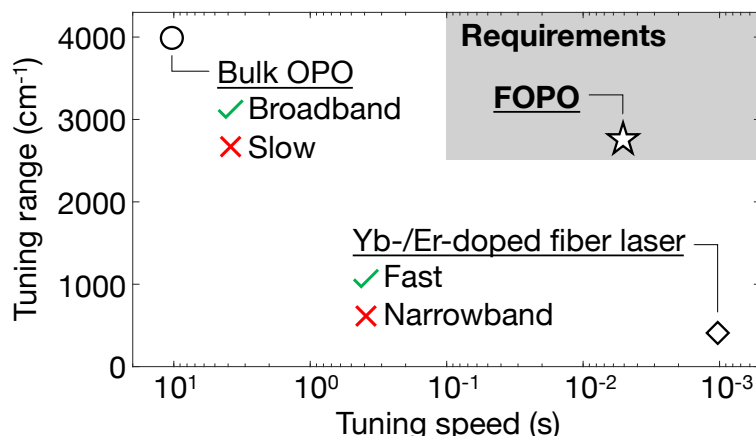


図 1.5: Comparison of conventional wavelength-tunable laser sources and a FOPO. About 2600 cm^{-1} tuning range and sub-second tuning speed are required to cover a whole Raman spectrum and to conduct videorate imaging.

短いフェムト秒パルスを用いるのが一般的であり、フェムト秒パルスをピコ秒パルスに変換する際のパワー損失が大きい。チャープしたピコ秒パルスを用いるスペクトルフォーカシング法 [40, 41] であれば、SSFSにより生成されるフェムト秒パルスを活用することができる。波長チューニング法に必要な広帯域に亘るピコ秒パルスの生成にはFWMの利用が最適である。共振器内の利得としてファイバ中のFWMを使用するFOPOではすでに光パワー 100 mW を超えるピコ秒パルスが実証されており、CRS 顕微法のレーザー光源として十分な出力パワーが得られる。波長チューニング性能だけでなく、出力パワーという観点からも、FOPOは新たな波長可変レーザー光源として最も有望である。

これまでに複数のグループがCRS 顕微法のためのFOPOを報告しており [42–46]、そのFOPOを用いたコヒーレント反ストークスラマン散乱 (CARS: coherent anti-Stokes Raman scattering) イメージングやSRS イメージングを実証している。FOPOは共振器の利得として、3次の非線形過程であるファイバ内でのFWMを用いる。FWMの利得バンド幅は10 nmを超えることもあるため、ピコ秒の光パルスを得るためには共振器内に波長フィルタが必要である。波長フィルタには、数百 m の長いファイバの群遅延分散 (GDD: group delay dispersion) を用いる方法 (分散フィルタリング) [42–45] や回折格子の角度分散を用いる方法 [46] があり (図 1.6)、これまでに報告された多くのFOPOは分散フィルタリングを用いている。

波長をチューニングする際に分散を補正し、ポンプレーザーとFOPOとの光路長を一致させる機構も重要である。機械式ステージにより共振器長を直接変える方法や、電氣的またはパッシブにポンプ光パルスの繰り返し周波数を変える方法がある。前者の場合は安定性の面からFOPO内に遅延ステージを配置するのが好ましいが、分散フィルタリングに用いる100 m以上の長いファイバのGDDを補正するために必要な遅延ステージの移動量は数十 cm に及ぶ。そのため高速チューニングを行うには、ポンプレーザーの光パルス繰り返し周波数を変化させるしかない。分散フィルタリングとポンプレーザー内のチャープファイバブラッググレーティングを組み合わせると、高速かつ広帯域な波長チューニングが実証されている [43] が、繰り返し周波数が増加することにより、SRS 顕微法に応用する際の同期レーザー光源の選択肢が著しく狭まることが問題となる。

もう一つの波長フィルタリング手法である回折格子フィルタの場合は、ファイバ長が数 m であるため、遅延ステージの移動量は1–2 cm以下に収まる。分散補償系を導入することで、その移動量をさらに削減でき、遅延ステージを用いても十分に高速チューニングが可能である。光パルス

著作権上の理由により掲載できません。

図 1.6: Previously reported FOPOs. (a) FOPO using a dispersion filtering method in combination with a chirped fiber Bragg grating, which eliminates a mechanical delay stage [43]. (b) FOPO using a spectral filter with a diffraction grating [46].

の繰り返し周波数は一定に維持されるため、外部の低ノイズレーザー光源との同期も可能であり、高感度 SRS イメージングを実現できる。一方で、回折格子による波長フィルタを用いた FOPO でこれまでに実証されたチューニング範囲は 30 nm に留まっている [46].

FOPO を低ノイズレーザーと同期させることは、高感度 SRS イメージングのために必要不可欠である。SRS 顕微法は高強度レーザー光の微弱な強度変調 (約 10^{-6} – 10^{-4}) を測定している。SRS を介して強度変調が転写される側 (つまりロックイン検出する側) のレーザー光源のノイズにより感度が制限されており [47], ショットノイズレベルの低ノイズ性能が要求される。FOPO は過剰ノイズが大きいため、同期したレーザー光源を検出する構成が好ましい。しかし、繰り返し周波数が変化する FOPO の場合、外部の低ノイズなレーザー光源との同期は難しい。FOPO を用いた際の低い感度が原因で、これまでに SRS イメージングへの応用に成功した FOPO は一例しかなく、実証された SRS イメージングも感度が低い [48–50]。これは CARS 顕微法において FOPO を用いたイメージング実証が多いこととは対照的である。

1.2 本研究の目的

本研究の目的は、高速・広帯域・高感度の全ての要件を満たしたマルチバンド SRS イメージングを実現することである。先述の通り、複数の分子共振モードの SRS 信号を同時に検出するためには、高速かつ広帯域な波長チューニングが求められるが、既存の波長可変レーザー光源のチューニング性能には限界がある。そこで新たな波長可変レーザー光源として FOPO が期待されており、要求性能を満たす高速・広帯域チューニングも実証されている。しかし報告された FOPO は大きなノイズが問題であり、SRS 顕微法の光源として用いた際のイメージング感度が極めて低い。

そこで本研究では高速・広帯域波長チューニングが可能であり、高感度 SRS 顕微法への応用を

見据えた FOPO を提案する。高速・広帯域波長チューニングに向けて、Yb 添加ファイバレーザー (YDFL: Yb-doped fiber laser) をポンプ光として用いた FOPO を作製する。まず FWM で高い利得を得るために、1–2 W の高出力 YDFL を設計・作製する。効率的な励起のためにファイバ増幅器内での不要な非線形光学効果の抑制にも取り組む。この YDFL をポンプ光として用いた FOPO を設計・作製し、広帯域波長チューニングの実現に取り組む。FOPO の波長フィルタには回折格子を用い、チューニングの際に光パルスの繰り返し周波数を一定に保つ構成を提案する。高速化が可能であることを示すとともに、YDFL の出力パワーを向上させることにより FOPO の高出力化にも取り組む。

1.3 本論文の構成

本論文は以下のように構成されている。まず第 1 章で SRS 顕微法が注目を集めている背景とこれまでの発展、克服すべき課題について述べた。SRS イメージング性能の飛躍的な向上には波長可変レーザー光源の進展が不可欠であることや、本研究で取り組む FOPO についても述べた。

第 2–4 章では本研究で必要となる基本的な原理について説明する。第 2 章ではファイバの非線形光学効果や分散が光伝搬に及ぼす影響と、FWM について述べる。第 3 章では大モード面積ファイバを利用する際に考慮する必要がある、ファイバの固有モードやモード間結合について述べる。第 4 章では SRS 過程について調和振動子モデルを用いて説明する。

第 5–7 章では本研究の提案手法や結果・成果について述べる。まず第 5 章では、FOPO による広帯域波長チューニングについて一般的な説明をするとともに、SRS 顕微法応用に求められる指標を紹介する。第 6 章では、YDFL について述べる。YDFL はモード同期ファイバレーザー、波長チューニング部分、ファイバ増幅器の 3 つの領域に分類することができ、それぞれについて構成や結果を述べる。ファイバ増幅器については 2 つの構成に取り組む。第 7 章では本研究の核である FOPO について述べ、広帯域波長チューニングを実証する。

最後に第 8 章で本論文を総括する。

第2章 ファイバ中の光パルス伝搬

本章ではファイバ中の光パルスの伝搬方程式を導き，群速度分散や非線形光学効果による影響について説明する．詳しくは [51] を参照されたい．

2.1 パルス伝搬方程式

2.1.1 非線形波動方程式

ファイバ中の光の伝搬はマクスウェル方程式

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho, \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.4)$$

から導かれる．ここで， \mathbf{E} ， \mathbf{H} はそれぞれ電界ベクトル，磁界ベクトルであり， \mathbf{D} ， \mathbf{B} はそれぞれ電束密度，磁束密度である． \mathbf{J} は電流密度ベクトル， ρ は電荷密度であり，ファイバ中では $\mathbf{J} = 0$ ， $\rho = 0$ である．式 (2.1) の curl をとり，式 (2.2) と関係式 $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ ， $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ (\mathbf{P} は誘電分極， ϵ_0 ， μ_0 はそれぞれ真空中の誘電率，透磁率) を用いると，

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.5)$$

となる． c は真空中の光速であり， $\mu_0 \epsilon_0 = 1/c^2$ を用いた．式 (2.5) にベクトル三重積の関係式

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} \equiv \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} = -\nabla^2 \mathbf{E} \quad (2.6)$$

を用いて (式 (2.3) より $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$)，さらに分極の線形成分と非線形成分を分解して

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) \quad (2.7)$$

と書き表すと，非線形波動方程式

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_L}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.8)$$

を得る．

2.1.2 非線形シュレディンガー方程式

光パルスの包絡成分が振動成分と比較してゆっくりと変化する場合、包絡線近似を用いて式 (2.8) を簡素化できる。電界 \mathbf{E} と誘電分極 \mathbf{P} について、その包絡成分と振動成分を分けると

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [E(\mathbf{r}, t) e^{-i\omega_0 t} + c.c.], \quad (2.9)$$

$$\mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [P_L(\mathbf{r}, t) e^{-i\omega_0 t} + c.c.], \quad (2.10)$$

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [P_{NL}(\mathbf{r}, t) e^{-i\omega_0 t} + c.c.] \quad (2.11)$$

と書き表せる。電界、誘電分極は一方向の成分のみを考える。式 (2.8) の両辺をフーリエ変換し、式 (2.9)–(2.11) と以下の関係式

$$\mathcal{F} \left[\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \right] = \mathcal{F} \left[\frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{F}^{-1} [\tilde{\mathbf{E}}] \right] = -\omega^2 \tilde{\mathbf{E}} \quad (2.12)$$

や分極についての関係式を用いると、ヘルムホルツ方程式

$$\nabla^2 \tilde{E} + \epsilon(\omega) k_0^2 \tilde{E} = 0 \quad (2.13)$$

を満たすことが分かる。ここで、 \tilde{E} は $\tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega - \omega_0)t} dt$ と定義され、 $k_0 = \omega_0/c$ である。3次の非線形性は光強度依存性をもつが、包絡線近似が適用できるような場合の光強度の時間変化は物質の応答と比較して極めて遅い。そのため式 (2.13) の導出の際に光強度が一定であると近似でき、

$$\epsilon(\omega) = 1 + \tilde{\chi}_{xx}^{(1)}(\omega) + \frac{3}{4} \chi_{xxxx}^{(3)} |E(\mathbf{r}, t)|^2 \quad (2.14)$$

と置ける。 $\chi^{(n)}$ は n 次の電気感受率である。ファイバ材料である SiO_2 は対称な構造をもつため、2次の非線形性は無く、3次の非線形性が最低次数となる。ここでは3次の非線形光学効果として Kerr 効果のみを考慮に入れる。式 (2.13) に

$$\tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = F(x, y) \tilde{A}(z, \omega - \omega_0) e^{i\beta_0 z} \quad (2.15)$$

を代入し包絡線近似を用いることにより、2つの方程式

$$\frac{\partial^2 F}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 F}{\partial y^2} + [\epsilon(\omega) k_0^2 - \tilde{\beta}^2] F = 0, \quad (2.16)$$

$$2i\beta_0 \frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} + (\tilde{\beta}^2 - \beta_0^2) \tilde{A} = 0 \quad (2.17)$$

を得る。

非線形光学効果を考慮した際の伝搬定数 $\tilde{\beta}$ は、非線形光学効果がない場合の伝搬定数 β に摂動成分 $\Delta\beta$ を加えたものとして $\tilde{\beta} = \beta + \Delta\beta$ と表せる。ここで $\Delta\beta$ は式 (2.16) から導出される。 $\tilde{\beta}$ を式 (2.17) に代入して、テイラー展開やいくつかの近似を用いた後、逆フーリエ変換すると電場の包絡成分 $A(z, t)$ について最終的に次式を得る。

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \beta_1 \frac{\partial A}{\partial t} + \frac{i\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{\alpha}{2} A = i\gamma(\omega_0) |A|^2 A \quad (2.18)$$

ここで、 α は吸収係数であり、 m 次の分散 β_m と非線形係数 γ はそれぞれ

$$\beta_m = \left(\frac{d^m \beta}{d\omega^m} \right)_{\omega=\omega_0} \quad (m = 1, 2, \dots), \quad (2.19)$$

$$\gamma(\omega_0) = \frac{\omega_0 n_2}{c A_{\text{eff}}}, \quad n_2 = \frac{3}{4\epsilon_0 n^2 c} \text{Re} \left(\chi_{xxxx}^{(3)} \right) \quad (2.20)$$

である。式 (2.18) から、2 次の分散 β_2 や非線形光学係数 γ により、光の伝搬に伴い位相変調が加わることが分かる。 $T = t - \beta_1 z$ と置いて変数変換し、パルスと共に移動する座標軸へと移行すると、式 (2.18) は

$$i \frac{\partial A}{\partial z} + \frac{i\alpha}{2} A - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial T^2} + \gamma |A|^2 A = 0 \quad (2.21)$$

と変形できる。上式で $\alpha = 0$ の特別な場合を非線形シュレディンガー方程式と呼ぶ。

時間 T を光パルスの初期状態の時間幅 T_0 で規格化し ($\tau = T/T_0$)、ピークパワー P_0 と規格化振幅 U とを用いて

$$A(z, \tau) = \sqrt{P_0} e^{-\alpha z/2} U(z, \tau) \quad (2.22)$$

と表すと、式 (2.21) は次のように変形できる。

$$\frac{\partial U}{\partial z'} = -i \frac{\text{sgn}(\beta_2) L}{2L_D} \frac{\partial^2 U}{\partial \tau^2} + i \frac{L}{L_{\text{NL}}} e^{-\alpha z} |U|^2 U \quad (2.23)$$

ここで、 z' はファイバ長 L を用いて $z' = z/L$ である。 L_D は分散長、 L_{NL} は非線形長と呼ばれ、それぞれ

$$L_D = \frac{T_0^2}{|\beta_2|}, \quad L_{\text{NL}} = \frac{1}{\gamma P_0} \quad (2.24)$$

と表せる。 L , L_D , L_{NL} の3者の相対的な関係により、分散や非線形性の影響が決まる。

2.2 群速度分散

群速度分散 (GVD: group velocity dispersion) による影響を調べるために、 $\gamma = 0$ の場合を考える。規格化振幅 $U(z, T)$ を用いると式 (2.21) は

$$\frac{\partial U}{\partial z} = -\frac{i\beta_2}{2} \frac{\partial^2 U}{\partial T^2} \quad (2.25)$$

となり、この方程式は周波数領域で簡単に解くことができる、 $U(z, T) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{U}(z, \omega)]$ を代入した際の方程式

$$\frac{\partial \tilde{U}}{\partial z} = i \frac{1}{2} \beta_2 \omega^2 \tilde{U} \quad (2.26)$$

を \tilde{U} について解くと

$$\tilde{U}(z, \omega) = \tilde{U}(0, \omega) \exp\left(\frac{i}{2} \beta_2 \omega^2 z\right) \quad (2.27)$$

と求まる。時間領域での解を得るために上式を逆フーリエ変換する。初期状態での時間波形が既知であれば、そのフーリエ変換である $\tilde{U}(0, \omega)$ を計算することができ、これを代入することで時間波形の一般解

$$U(z, T) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} U(0, T) \exp(i\omega T) dT \right] \exp\left(\frac{i}{2} \beta_2 \omega^2 z - i\omega T\right) d\omega \quad (2.28)$$

が求まる。

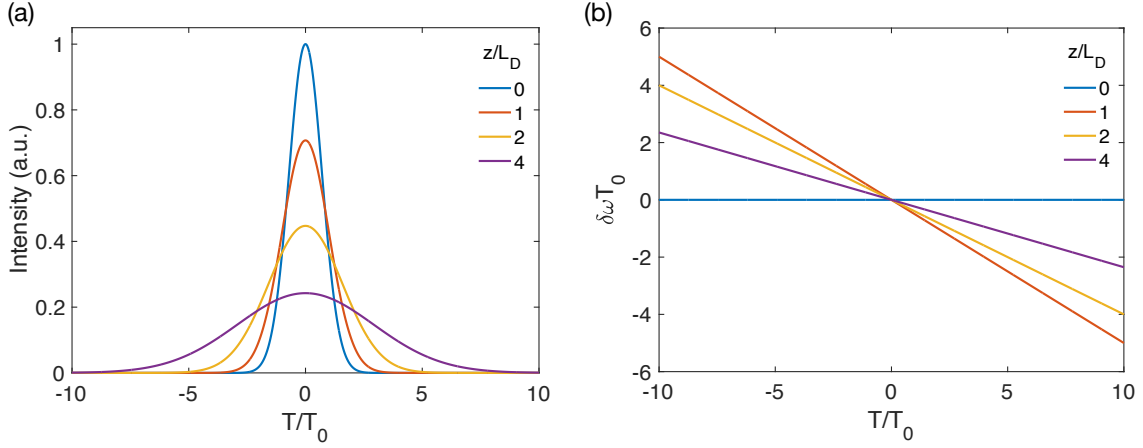


図 2.1: (a) Pulse shape and (b) GVD-induced frequency chirp as functions of T/T_0 for a Gaussian pulse at $z = 0, L_D, 2L_D, 4L_D$, where L_D is the dispersion length defined as $L_D = T_0^2/|\beta_2|$, T_0 is the initial pulse width, and β_2 is second-order dispersion.

式 (2.27) より, GVD はスペクトルを変化させないことが分かる. 一方で, 各周波数成分に周波数の 2 乗に比例した位相変化を与えるため, 時間波形は伝搬とともに変化する. GVD が時間波形を変化させることを確認するために, 簡単な例として入力パルスにガウシアン波形

$$U(0, T) = \exp\left(-\frac{T^2}{2T_0^2}\right) \quad (2.29)$$

を仮定する. 式 (2.28) とガウス積分の公式を用いて位置 z における時間波形を計算すると

$$U(z, T) = \frac{T_0}{(T_0^2 - i\beta_2 z)^{1/2}} \exp\left[-\frac{T^2}{2(T_0^2 - i\beta_2 z)}\right] \quad (2.30)$$

を得る. パルスの伝搬に伴いパルス時間幅 T_1 は

$$T_1(z) = T_0 \left[1 + (z/L_D)^2\right]^{1/2} \quad (2.31)$$

に従い広がっていく. 図 2.1(a) は分散長が L_D のファイバ中を距離 z ($z = 0, L_D, 2L_D, 4L_D$) だけ伝搬した場合の時間波形を表している. 伝搬するにつれてパルスが広がっていることが分かる.

式 (2.30) 内の \exp 部分を実数成分と虚数成分に分解することにより包絡成分の位相 ϕ が分かる. このとき瞬時周波数 $\delta\omega(T)$ は

$$\delta\omega(T) = -\frac{\partial\phi}{\partial T} = \frac{\text{sgn}(\beta_2)(z/L_D)}{1 + (z/L_D)^2} \frac{T}{T_0^2} \quad (2.32)$$

と求まる. 上式より, 時間軸に沿って線形に周波数が増加していることが分かる. また β_2 の符号により低周波化するか高周波化するかが異なる. 正常分散 ($\beta_2 > 0$) の場合はパルスの前側が低周波化, 後ろ側が高周波化し, 異常分散 ($\beta_2 < 0$) の場合はその逆である. 図 2.1(b) は時間軸に沿った周波数変化 (チャープ) の様子を表している.

2.3 自己位相変調

次にファイバ中の非線形光学効果として最も代表的な自己位相変調 (SPM: self-phase modulation) がパルスに与える影響を調べる. 分散の影響が無視できるとして, 規格化振幅 $U(z, T)$ を用いて

パルスの伝搬方程式 (2.23) は

$$\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{ie^{-\alpha z}}{L_{\text{NL}}} |U|^2 U \quad (2.33)$$

と表せる. 上式に $U(z, T) = V(z, T) \exp(i\phi_{\text{NL}})$ を代入して, 実数・虚数成分のそれぞれについて解くと次式を得る.

$$\frac{\partial V}{\partial z} = 0 \quad (2.34)$$

$$\frac{\partial \phi_{\text{NL}}}{\partial z} = \frac{e^{-\alpha z}}{L_{\text{NL}}} V^2 \quad (2.35)$$

1つ目の方程式から光が伝搬しても V は一定であることが分かる. すなわち SPM はパルスの時間波形を変えない. 一方で2つ目の式から, U の位相成分は強度に比例した変調を受ける. 式 (2.35) の両辺を積分して, V が位置 z に無依存であることを用いると,

$$U(L, T) = U(0, T) \exp[i\phi_{\text{NL}}(L, T)] \quad (2.36)$$

と求まる. ここで,

$$\phi_{\text{NL}}(L, T) = |U(0, T)|^2 (L_{\text{eff}}/L_{\text{NL}}), \quad L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha L)]/\alpha \quad (2.37)$$

である. 式 (2.37) から, SPM が光強度に比例した位相変調を与えることが分かる. SPM による瞬時周波数の変化は GVD の時のそれと同様に求めることができ,

$$\delta\omega(T) = -\frac{\partial \phi_{\text{NL}}}{\partial T} = -\left(\frac{L_{\text{eff}}}{L_{\text{NL}}}\right) \frac{\partial}{\partial T} |U(0, T)|^2 \quad (2.38)$$

となる. 位相変化量は光強度に比例し, チャープは光強度の変化率に依存している. 例えば入射光パルスがガウス波形である場合のチャープは

$$\delta\omega(T) = \frac{2}{T_0} \frac{L_{\text{eff}}}{L_{\text{NL}}} \frac{T}{T_0} \exp\left[-\left(\frac{T}{T_0}\right)^2\right] \quad (2.39)$$

である. 図 2.2 はガウス波形光パルスの SPM によるチャープを示している. GVD によるチャープが線形であったのに対し, SPM によるチャープは非線形であり, パルス中心付近と裾野部分で様子が異なる.

式 (2.36) をフーリエ変換し, その絶対値を 2 乗することによりスペクトル

$$S(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} U(0, T) \exp[i\phi_{\text{NL}}(L, T) + i(\omega - \omega_0)T] dT \right|^2 \quad (2.40)$$

を得る. 図 2.3 は, SPM によってガウス波形パルスが変化する様子を表している. 伝搬するにつれてスペクトルが広がり, 振動成分が現れる. この振動成分のピーク数 M は, 位相変化の最大量

$$\phi_{\text{max}} = L_{\text{eff}}/L_{\text{NL}} = \gamma P_0 L_{\text{eff}} \quad (2.41)$$

と次のような関係

$$\phi_{\text{max}} \approx \left(M - \frac{1}{2}\right) \pi \quad (2.42)$$

がある. また SPM によるガウシアン波形のスペクトル広がりには次式で表せる.

$$\delta\omega_{\text{max}} = 0.86 \Delta\omega_0 \phi_{\text{max}} \quad (2.43)$$

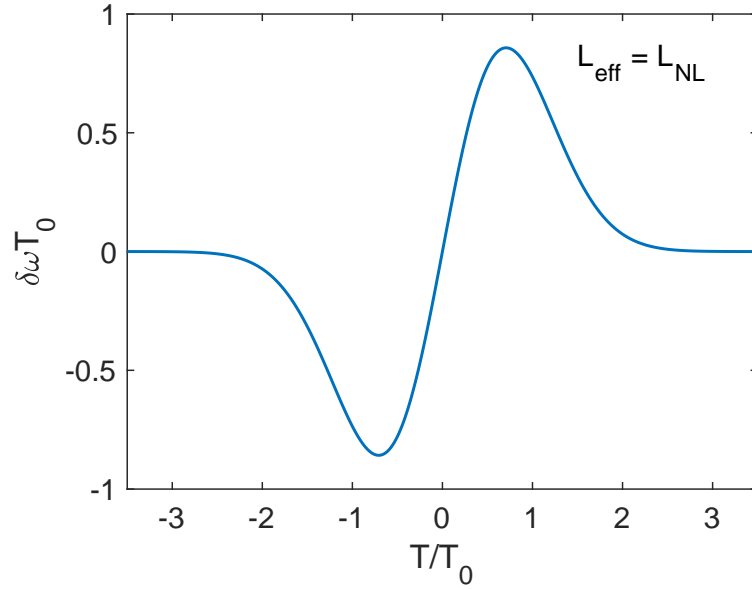


Figure 2.2: SPM-induced frequency chirp for Gaussian pulse at $L_{\text{eff}} = L_{\text{NL}}$, where L_{eff} is the effective length considering fiber losses, L_{NL} is the nonlinear length defined as $L_{\text{NL}} = (\gamma P_0)^{-1}$, γ is the nonlinear parameter, and P_0 is the initial peak power.

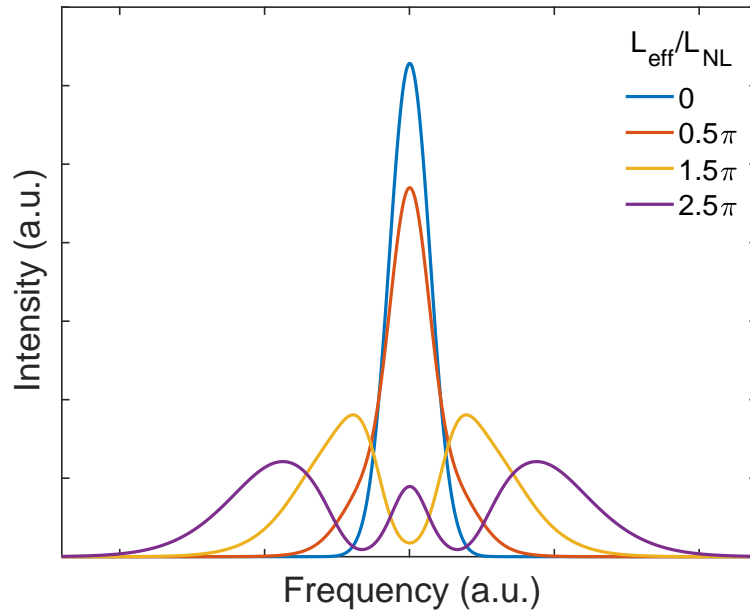


Figure 2.3: SPM-induced spectral broadening. Optical spectra for several values of $\phi_{\text{max}} = L_{\text{eff}}/L_{\text{NL}}$ when unchirped Gaussian pulse is launched into a fiber.

上式から光パルスの平均パワーが一定の場合，スペクトルの広がり $\delta\omega_{\max}$ は初期状態でのスペクトル幅 $\Delta\omega_0$ の2乗に比例することが分かる．

ここまではGVDとSPMを別々に考えてきたが，実際には両者の影響が共に存在する．そのような場合にはGVDによる時間波形の変化とSPMによるスペクトル変化が相互に作用し合い，時間波形・スペクトルがより複雑に変化する．

2.4 四光波混合

2.4.1 四光波混合の原理

四光波混合（FWM: four-wave mixing）は3次の非線形光学過程である．周波数がそれぞれ ω_1 , ω_2 , ω_3 , ω_4 の4つの電界が同時に存在する場合を考える．FWMは偏光に依存するため全ての偏光成分を考慮する必要があるが，ここでは1つの偏光成分のみを考える．4つの電界の和は

$$E = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^4 E_j \exp[i(\beta_j z - \omega_j t)] + c.c. \quad (2.44)$$

と表せる．3次の非線形光学効果により生じる非線形分極として例えば周波数が ω_4 の成分 P_4 は

$$P_4 = \frac{3\epsilon_0}{4} \chi_{xxxx}^{(3)} \left[|E_4|^2 E_4 + 2 \left(|E_1|^2 + |E_2|^2 + |E_3|^2 \right) E_4 + 2E_1 E_2 E_3 \exp(i\theta_+) + 2E_1 E_2 E_3^* \exp(i\theta_-) + \dots \right] \quad (2.45)$$

となる．ここで，

$$\theta_+ = (\beta_1 + \beta_2 + \beta_3 - \beta_4) z - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_4) t, \quad (2.46)$$

$$\theta_- = (\beta_1 + \beta_2 - \beta_3 - \beta_4) z - (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) t \quad (2.47)$$

である．式(2.45)の第1項は前節で扱ったSPM，第2項が相互位相変調（XPM: cross-phase modulation）を表しており，第3項が第三次高調波発生（THG: third-harmonic generation），第4項がFWMを表す．THGやFWMが効率的に生じるためには位相整合が必要である．ここではTHGを無視し，FWMのみを考える．FWMにより ω_1 , ω_2 の光から周波数 ω_3 , ω_4 の光へエネルギーが移行するとき，エネルギー保存則より

$$\omega_3 + \omega_4 = \omega_1 + \omega_2 \quad (2.48)$$

を満たす．建設的にFWMが生じ，生成された周波数成分の光が増幅されていくためには，位相整合条件

$$\Delta k = \beta_3 + \beta_4 - \beta_1 - \beta_2 = 0 \quad (2.49)$$

も満たす必要がある．

$E_j(\mathbf{r}) = F_j(x, y)A_j(z)$ ($j = 1, 2, 3, 4$) として式 (2.44), (2.45) を式 (2.8) に代入すると, 以下の4つの結合方程式

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{in_2\omega_1}{c} \left[\left(f_{11} |A_1|^2 + 2 \sum_{k \neq 1} f_{1k} |A_k|^2 \right) A_1 + 2f_{1234} A_2^* A_3 A_4 e^{i\Delta kz} \right], \quad (2.50)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{in_2\omega_2}{c} \left[\left(f_{22} |A_2|^2 + 2 \sum_{k \neq 2} f_{2k} |A_k|^2 \right) A_2 + 2f_{2134} A_1^* A_3 A_4 e^{i\Delta kz} \right], \quad (2.51)$$

$$\frac{dA_3}{dz} = \frac{in_2\omega_3}{c} \left[\left(f_{33} |A_3|^2 + 2 \sum_{k \neq 3} f_{3k} |A_k|^2 \right) A_3 + 2f_{3412} A_1 A_2 A_4^* e^{-i\Delta kz} \right], \quad (2.52)$$

$$\frac{dA_4}{dz} = \frac{in_2\omega_4}{c} \left[\left(f_{44} |A_4|^2 + 2 \sum_{k \neq 4} f_{4k} |A_k|^2 \right) A_4 + 2f_{4312} A_1 A_2 A_3^* e^{-i\Delta kz} \right] \quad (2.53)$$

を得る. 各方程式の第1項がSPM, 第2項がXPM, 第3項がFWMを表す. f_{jk} , f_{ijkl} はファイバ内での各周波数成分の空間モードの重なり積分である. 簡単のため全ての空間モードが等しいとして $f_{jk} = f_{ijkl} = 1/A_{\text{eff}}$ とする.

まず A_1, A_2 を求める. A_1, A_2 が A_3, A_4 と比較して十分に大きいとすると, 式 (2.50), (2.51) は A_1, A_2 だけで表され, 簡単に解くことができる. 式 (2.50), (2.51) の解は

$$A_1(z) = A_1(0) \exp[i\gamma(P_1 + 2P_2)z], \quad (2.54)$$

$$A_2(z) = A_2(0) \exp[i\gamma(P_2 + 2P_1)z] \quad (2.55)$$

と求まる. ただし $P_{1,2} = |A_{1,2}(0)|^2$ であり, 非線形係数 γ は全ての周波数成分で等しいとする.

次に A_3, A_4 を求める. 式 (2.54), (2.55) を式 (2.52), (2.53) に代入すると

$$\frac{dA_3}{dz} = 2i\gamma \left[(P_1 + P_2) A_3 + A_1(0) A_2(0) e^{-i\theta} A_4^* \right], \quad (2.56)$$

$$\frac{dA_4^*}{dz} = -2i\gamma \left[(P_1 + P_2) A_4^* + A_1^*(0) A_2^*(0) e^{i\theta} A_3 \right] \quad (2.57)$$

となる. ここで $\theta = [\Delta k - 3\gamma(P_1 + P_2)]z$ とした. $B_{3,4} = A_{3,4} \exp[-2i\gamma(P_1 + P_2)z]$ と置いて上式を解くと, 方程式の解

$$B_3(z) = (a_3 e^{gz} + b_3 e^{-gz}) \exp(-i\kappa z/2), \quad (2.58)$$

$$B_4^*(z) = (a_4 e^{gz} + b_4 e^{-gz}) \exp(i\kappa z/2) \quad (2.59)$$

が得られる. a_3, b_3, a_4, b_4 は境界条件により決まる定数, κ は有効位相不整合量, g はパラメトリック利得係数である. ここまでは周波数 ω_1, ω_2 の2つのポンプ光を区別して考えてきたが, 区別できない場合 (すなわちポンプ光が1つの周波数でのみ存在する場合) においても式 (2.58), (2.59) は成立する. このような縮退FWMの場合, ポンプ光パワーを P_0 とするとパラメトリック利得係数 g と位相不整合量 κ はそれぞれ次式で表される.

$$g = \sqrt{(\gamma P_0)^2 - (\kappa/2)^2} \quad (2.60)$$

$$\kappa = \Delta k + 2\gamma P_0 \quad (2.61)$$

2.4.2 位相整合条件

式 (2.49) と (2.61) で表される位相整合条件について、伝搬定数 β_3, β_4 を $\omega_p (= \omega_1, \omega_2)$ でテイラー展開して書き直すと次式で表される。

$$\sum_{m=2,4,\dots}^{\infty} \frac{\beta_m(\omega_p)}{m!} \Omega_s^m + \gamma P_0 = 0 \quad (\Omega_s = \omega_3 - \omega_p = \omega_p - \omega_4) \quad (2.62)$$

ここで β_m は m 番目の周波数成分の伝搬定数ではなく、 m 次の分散であることに注意されたい。奇数項はシグナル光 (ω_3) とアイドラ光 (ω_4) でちょうど打ち消し合う。例えば4次の分散までを考慮して、 $\beta_2 > 0$ かつ $\beta_4 < 0$ の場合に式 (2.62) を Ω_s について解くと

$$\Omega_s^2 = \frac{6}{|\beta_4|} \left(\sqrt{\beta_2^2 + \frac{2|\beta_4|\gamma P_0}{3}} + \beta_2 \right) \quad (2.63)$$

を得る。FWMによる周波数変化 Ω_s はファイバの分散とポンプ光のパワーで決まることが分かる。 Ω_s は特に、 β_2 が相対的に小さい周波数領域ではパワー依存性が大きく、 β_2 が相対的に大きな周波数領域では周波数依存性が大きい。

2.4.3 パラメトリック利得

初期条件を与えると式 (2.58), (2.59) を解くことができる。 $B_4^*(0) = 0$ とすると

$$B_3(z) = B_3(0) \left[\cosh(gz) + \frac{i\kappa}{2g} \sinh(gz) \right] e^{-i\kappa z/2}, \quad (2.64)$$

$$B_4^*(z) = -i \frac{\gamma}{g} A_1(0) A_2(0) B_3(0) \sinh(gz) e^{i\kappa z/2} \quad (2.65)$$

と求まる。ファイバ長 L のときのシグナル光のパラメトリック利得は、

$$G_s = \frac{P_3(L)}{P_3(0)} = 1 + \left(\frac{\gamma P_0 r}{g} \right)^2 \sinh^2(gL) \quad (2.66)$$

となる。上式と式 (2.60) より位相不整合 κ が大きいときは利得が非常に小さい。一方で完全に位相整合しており ($\kappa = 0$)、かつ gL が1より十分に大きい場合は、ポンプ光パワー P_0 やファイバ長 L に対して利得 G_s は指数関数的に増加する。

第3章 ファイバのモード理論

本章では光ファイバの固有モードを求めるとともに、モード間結合について説明する。詳しくは [52] を参照されたい。

3.1 固有モード

屈折率 n がステップインデックス状の分布をもつ一般的な光ファイバの固有モードについて考える。

$$n(r) = \begin{cases} n_1 & (0 < r < a) \\ n_2 & (a < r < b) \end{cases} \quad (3.1)$$

ここで、 r はファイバ中心からの距離、 a 、 b はそれぞれコア半径、クラッド半径を表す。導波路内での光の伝搬定数が β ($n_2 k_0 < \beta < n_1 k_0$) のときにコア、クラッドでの横方向の波数成分 h 、 q は

$$h = \sqrt{n_1^2 k_0^2 - \beta^2}, \quad q = \sqrt{\beta^2 - n_2^2 k_0^2} \quad (3.2)$$

と表せる。 z 方向に光が伝搬するとして、 y 方向に直線偏波したモードの電界成分を次式のように表す。

$$E_x = 0 \quad (3.3)$$

$$E_y = \begin{cases} A J_l(hr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)] & (r < a) \\ B K_l(qr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)] & (r > a) \end{cases} \quad (3.4)$$

ここで、方位角 ϕ は r に直交する軸、 J_l は l 次の第1種ベッセル関数、 K_l は l 次の第2種変形ベッセル関数である。座標 z および時間 t の依存性は $\exp[i(\beta z - \omega t)]$ と表す。マクスウェル方程式 (2.1), (2.2) と $E_z \ll E_y$ の過程を用いると、電界・磁界の他の成分を求めることができ、

$$H_x = \frac{i}{\omega\mu} \frac{\partial}{\partial z} E_y = -\frac{\beta}{\omega\mu} E_y, \quad (3.5)$$

$$H_y \approx 0, \quad (3.6)$$

$$H_z = -\frac{i}{\omega\mu} \frac{\partial E_y}{\partial x}, \quad (3.7)$$

$$E_z = -\frac{i}{\omega\epsilon} \frac{\partial H_x}{\partial y} = \frac{i\beta}{\omega^2\epsilon\mu} \frac{\partial E_y}{\partial y} \quad (3.8)$$

を得る。上式から分かるように電界・磁界の全成分が E_y で表せる。円筒座標系への変換とベッセル関数の関係式を利用することにより、式 (3.5), (3.7), (3.8) 内の微分演算を実行でき、コアとク

ラッドにおける電界・磁界の各成分が得られる。コア領域について

$$\begin{aligned}
E_x &= 0, \\
E_y &= AJ_l(hr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
E_z &= -\frac{hA}{\beta 2} \left[J_{l+1}(hr) e^{i(l+1)\phi} + J_{l-1}(hr) e^{i(l-1)\phi} \right] \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
H_x &= -\frac{\beta}{\omega\mu} AJ_l(hr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
H_y &\approx 0, \\
H_z &= \frac{ihA}{\omega\mu 2} \left[J_{l+1}(hr) e^{i(l+1)\phi} - J_{l-1}(hr) e^{i(l-1)\phi} \right] \exp[i(\beta z - \omega t)].
\end{aligned} \tag{3.9}$$

クラッド領域について

$$\begin{aligned}
E_x &= 0, \\
E_y &= BK_l(qr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
E_z &= -\frac{qB}{\beta 2} \left[K_{l+1}(qr) e^{i(l+1)\phi} - K_{l-1}(qr) e^{i(l-1)\phi} \right] \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
H_x &= -\frac{\beta}{\omega\mu} BK_l(qr) e^{il\phi} \exp[i(\beta z - \omega t)], \\
H_y &\approx 0, \\
H_z &= \frac{iqB}{\omega\mu 2} \left[K_{l+1}(qr) e^{i(l+1)\phi} + K_{l-1}(qr) e^{i(l-1)\phi} \right] \exp[i(\beta z - \omega t)].
\end{aligned} \tag{3.10}$$

コアとクラッドの境界における E_y の連続性から A と B の関係式

$$B = \frac{AJ_l(ha)}{K_l(qa)} \tag{3.11}$$

を得る。境界条件は E_z についても成立する必要がある。任意の方位角 ϕ について式 (3.9), (3.10), (3.11) を用いると、モード条件式

$$ha \frac{J_{l+1}(ha)}{J_l(ha)} = qa \frac{K_{l+1}(qa)}{K_l(qa)}, \tag{3.12}$$

$$ha \frac{J_{l-1}(ha)}{J_l(ha)} = -qa \frac{K_{l-1}(qa)}{K_l(qa)} \tag{3.13}$$

が導かれる。ここで H_z に対する境界条件からも同じ方程式が導出される。またここまでは y 方向に直線偏波した電界を出発点として考えてきたが、対称性から x 方向に直線偏波した電界からも同じ方程式が得られる。これら直交した2つのモードは縮退している。

直線偏波モードの2つのモード条件式 (3.12), (3.13) は数学的に等価な式であるため、一方だけを考えれば十分である。次数 l のときの m 番目の解に対応する固有モードを LP_{lm} と呼ぶ。式 (3.12) の解である固有値 β は、 V パラメータ

$$V = k_0 a \sqrt{n_1^2 - 2} = \sqrt{(ha)^2 + (qa)^2} \tag{3.14}$$

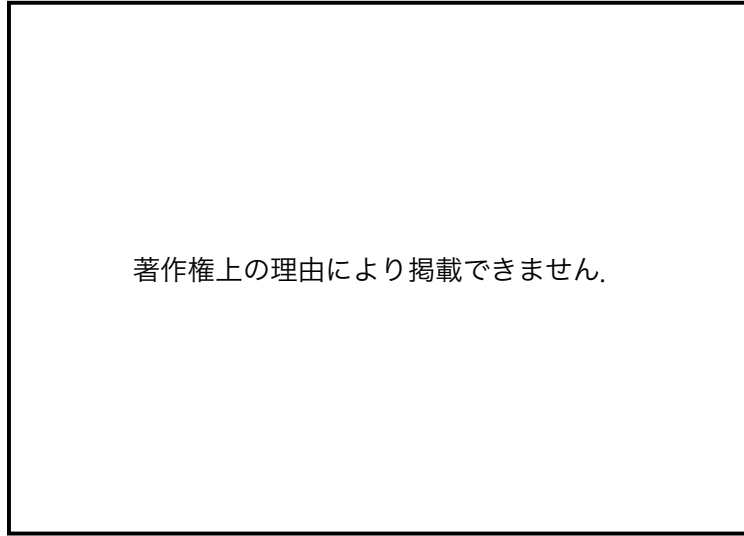


図 3.1: Normalized propagation constants $n_{\text{eff}} (= \beta/k_0)$ of typical guided modes in a optical fiber as functions of the normalized frequency V . Fiber parameters are $n_1 = 1.4628, n_2 = 1.4600, a = 4.7\mu\text{m}$ [52].

を定義することでグラフ解法的に解くことができる。式 (3.14) を qa について書き直し、式 (3.12) の左辺に代入すると、両辺ともに ha の関数となる。両辺を ha に対してプロットし、その交点から解 h が求まる。式 (3.2) より固有値 (伝搬定数) β も自動的に定まる。

図 3.1 は V パラメータの関数として有効屈折率 $n_{\text{eff}} = \beta/k_0$ を示したものである。式 (3.14) から明らかのように、光の周波数やコア径、コアとクラッドの屈折率差により V の値は変化する。 $V < 2.405$ のときは LP_{01} モードしか存在し得ない。一般的なファイバであるシングルモードファイバは $V < 2.405$ となるように設計されており、基本モードだけが伝搬できる。 V を大きくしていくと高次モードが現れ始める。

3.2 モードの直交性

導波路内の固有モードが互いに直交していることを導く。マクスウェル方程式の独立した 2 つの解の電磁界を $(\mathbf{E}_1, \mathbf{H}_1)$ と $(\mathbf{E}_2, \mathbf{H}_2)$ と置くと、誘電体導波路においては次の関係式

$$\nabla \cdot (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2 - \mathbf{E}_2 \times \mathbf{H}_1) = 0 \quad (3.15)$$

が成り立つ。伝搬定数をそれぞれ β_1, β_2 と置き、電磁界が

$$\mathbf{E}_{1,2} = \mathcal{E}_{1,2}(x, y) \exp[i(\beta_{1,2}z - \omega_{1,2}t)], \quad (3.16)$$

$$\mathbf{H}_{1,2} = \mathcal{H}_{1,2}(x, y) \exp[i(\beta_{1,2}z - \omega_{1,2}t)] \quad (3.17)$$

と表せるとすると、式 (3.15) は次式のように変形できる。

$$\nabla_t \cdot (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2 - \mathbf{E}_2 \times \mathbf{H}_1) + i(\beta_1 - \beta_2) \mathbf{e}_z \cdot (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2 - \mathbf{E}_2 \times \mathbf{H}_1) = 0 \quad (3.18)$$

ここで、 ∇_t は横方向勾配演算子、 \mathbf{e}_z は z 軸方向の単位ベクトルである。 xy 平面全域で積分し、発散定理や電磁界が無窮遠で 0 になることを用いると

$$(\beta_1 + \beta_2) \iint (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2 - \mathbf{E}_2 \times \mathbf{H}_1) \cdot \mathbf{e}_z dx dy = 0 \quad (3.19)$$

となる。式 (3.19) に加えて、式 (3.16), (3.17) や誘電体構造の対称性を用いると、最終的に、損失のない誘電体導波路での直交性

$$\iint (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2^*) \cdot \mathbf{e}_z dx dy = 0 \quad (3.20)$$

を得る。上式から分かるように直交する2つのモード $(\mathbf{E}_1, \mathbf{H}_1)$ と $(\mathbf{E}_2, \mathbf{H}_2)$ はパワーを伝送しない。各モードのパワーを規格化し、2つのモードから複数のモードへ一般化すると次式のようになる。

$$\frac{1}{2} \iint (\mathbf{E}_m \times \mathbf{H}_n^*) \cdot \mathbf{e}_z dx dy = \delta_{mn} \quad (3.21)$$

上式の左辺をマクスウェル方程式とベクトル公式を用いて変形すると

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \iint (\mathbf{E}_m \times \mathbf{H}_n^*) \cdot \mathbf{e}_z dx dy &= -\frac{i}{2\omega\mu} \iint (\mathbf{E}_m \times (\nabla \times \mathbf{E}_n^*)) \cdot \mathbf{e}_z dx dy \\ &= \frac{\beta_n}{2\omega\mu} \iint (\mathbf{E}_m \cdot \mathbf{E}_n^*) dx dy - \frac{i}{2\omega\mu} \iint (\mathbf{E}_m \cdot \nabla) (\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{E}_n^*) dx dy \end{aligned} \quad (3.22)$$

と表せる。電界の z 方向成分 $(\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{E})$ が0または無視できるような場合には、モードの直交性の式 (3.21) は簡略化することができ、

$$\frac{\beta_n}{2\omega\mu} \iint (\mathbf{E}_m \cdot \mathbf{E}_n^*) dx dy = \delta_{mn} \quad (3.23)$$

となる。外界とのエネルギーのやりとりがない誘電体構造において、横方向の波動方程式はエルミート演算子により記述できる。モードの直交性は、エルミート演算子の固有値の異なる固有状態が互いに直交することからも理解できる。

3.3 モードの結合

導波路内の固有モードの直交性から分かるように、各固有モードは独立に導波路を伝搬し、異なるモード間でのエネルギーのやりとりはない。しかし実際には、導波路の不均一性によって誘電率にランダムな変動が起きる。誘電率が変化するという事は固有モードそのものが変化するという事であり、元々の固有モード間での結合が生じる。ここでは z に無依存な誘電率摂動 $\Delta\epsilon(x, y)$ によるモード間結合を摂動理論を用いて考える。

式 (2.16) より、摂動がないときの横方向電界 \mathcal{E}_m の波動方程式は

$$[\nabla_t^2 + \omega^2 \mu \epsilon_a(x, y)] \mathcal{E}_m = \beta_m^2 \mathcal{E}_m \quad (3.24)$$

と表せる。 $\epsilon_a(x, y)$ は摂動がない場合の誘電率である。誘電率の摂動 $\Delta\epsilon(x, y)$ を加えると、波動方程式は

$$[\nabla_t^2 + \omega^2 \mu \epsilon_a(x, y) + \omega^2 \mu \Delta\epsilon(x, y)] (\mathcal{E}_m + \delta\mathcal{E}_m) = (\beta_m^2 + \delta\beta_m^2) (\mathcal{E}_m + \delta\mathcal{E}_m) \quad (3.25)$$

となる。ここで、 $\delta\mathcal{E}_m$ は波動関数の変化、 $\delta\beta_m^2$ は伝搬定数の2乗の変化である。無摂動の場合の波動方程式 (3.24) を用いるとともに摂動項の2乗成分を無視すると、上式は

$$[\nabla_t^2 + \omega^2 \mu \epsilon_a(x, y)] \mathcal{E}_m = \beta_m^2 \delta\mathcal{E}_m + \delta\beta_m^2 \mathcal{E}_m \quad (3.26)$$

と変形できる。

無摂動の場合の固有モードの線形結合により $\delta\mathcal{E}_m(x, y) = \sum_n a_{mn}\mathcal{E}_n(x, y)$ と表して式 (3.26) に代入し、式 (3.24) を用いると

$$\sum_n a_{mn} (\beta_n^2 - \beta_m^2) \mathcal{E}_n(x, y) = (\delta\beta_m^2 - \omega^2 \mu \Delta\epsilon) \mathcal{E}_m(x, y) \quad (3.27)$$

を得る。上式の左側から \mathcal{E}_m^* を掛けた上で xy 平面全体で積分し、モードの直交性 (3.23) を用いると

$$\delta\beta_m = \frac{\omega}{4} \iint \mathcal{E}_m^* \cdot \Delta\epsilon(x, y) \mathcal{E}_m dx dy \quad (3.28)$$

となる。ここで、 $\delta\beta_m^2 = 2\beta_m\delta\beta_m$ を用いた。係数 a_{mn} ($n \neq m$) は式 (3.27) の左側から \mathcal{E}_n^* をかけて xy 平面全体で積分することで、 a_{mm} は規格化条件を用いることで次式のように求められる。

$$a_{mn} = \frac{\omega\beta_n}{2(\beta_m^2 - \beta_n^2)} \iint \mathcal{E}_n^* \cdot \Delta\epsilon(x, y) \mathcal{E}_m dx dy \quad (n \neq m) \quad (3.29)$$

$$a_{mm} = -\frac{\omega}{8\beta_m} \iint \mathcal{E}_m^* \cdot \Delta\epsilon(x, y) \mathcal{E}_m dx dy \quad (3.30)$$

以上から誘電率の摂動 $\Delta\epsilon$ による波動関数の変動が求まる。結合係数を

$$\kappa_{nm} = \frac{\omega}{4} \iint \mathcal{E}_n^* \cdot \Delta\epsilon(x, y) \mathcal{E}_m dx dy \quad (3.31)$$

と定義すると、モードの変化は

$$\delta\mathcal{E}_m(x, y) = \sum_{n \neq m} \frac{2\beta_m}{\beta_m^2 - \beta_n^2} \kappa_{nm} \mathcal{E}_n(x, y) - \frac{\kappa_{mm}}{2\beta_m} \mathcal{E}_m(x, y) \quad (3.32)$$

と表せる。上式から、モード間距離が大きい、すなわち2つの固有モードの伝搬定数 β_m , β_n が離れている場合、式 (3.32) 右辺の第1項の分母が大きいので、モード m の波動関数変動 $\delta\mathcal{E}_m$ へのモード n の寄与は小さい。逆に伝搬定数差が近いとそのモードの寄与が大きくなり、結合し易いと言える。

第4章 誘導ラマン散乱

本章では調和振動子モデルを用いて分子振動について説明し、それにより生じるラマン散乱について述べる。詳しくは [16, 53, 54] を参照されたい。

4.1 調和振動子

図 4.1 のような調和振動子モデルを用いて分子の共鳴振動を考える。ばね質点系での質点の運動が分かりやすい。平衡点からの移動量を x とし、質点に周期的な力 $F(t)$ が働く状況での運動方程式は

$$\frac{d^2x}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = \frac{F(t)}{m} \quad (4.1)$$

と表せる。ここで Γ は減衰係数、 $\omega_0 (= k/m)$ は共鳴周波数、 k はばね定数であり、 $F(t) = F_0 e^{-i\omega t}$ とする。この方程式の解 $x(t)$ を求めるために $x(t) = x(\omega) e^{-i\omega t}$ とし上式へ代入すると

$$(-\omega^2 - i2\Gamma\omega + \omega_0^2) x(\omega) e^{-i\omega t} = \frac{F_0 e^{-i\omega t}}{m} \quad (4.2)$$

となる。 $x(\omega)$ について書き直すと次式を得る。

$$x(\omega) = \frac{F_0/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - i2\Gamma\omega} \quad (4.3)$$

駆動力 $F(t)$ の周波数が共鳴周波数近辺にあり、かつ減衰係数 Γ が十分小さいとすると、上式は複素ローレンツ関数

$$x(\omega) = \frac{F_0/(2m\omega_0)}{(\omega - \omega_0) + i\Gamma} \quad (4.4)$$

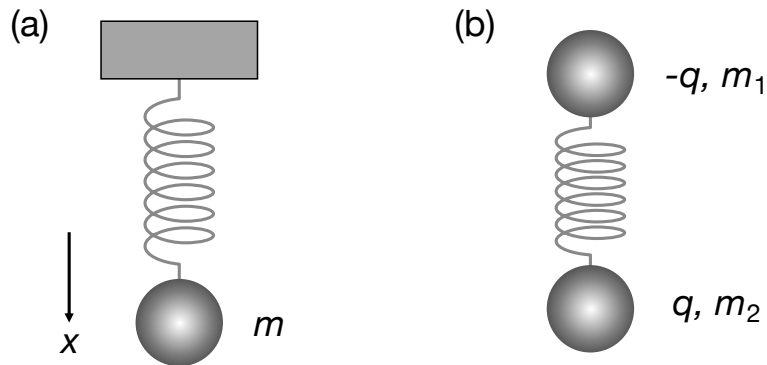


図 4.1: (a) Mass-spring system. x is the relative displacement. (b) Classical view of a diatomic molecule absorbing an infrared radiation.

に近似できる。

分子振動はばね質点系の運動にモデル化することができる。ここでは話を簡単にするために独立した二原子分子の分子振動を取り扱う。質量がそれぞれ m_1 , m_2 の分子の運動を同時に扱うのは難しいため、換算質量 $\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ を導入して1つの物体として取り扱う。式(4.1)より運動方程式は

$$\frac{d^2 x}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx}{dt} + \Omega_R^2 x = \frac{F(t)}{\mu} \quad (4.5)$$

となる。ここで Ω_R は分子の共鳴周波数である。

線形過程である赤外吸収はラマン散乱よりも単純であり、ラマン散乱との比較対象としても面白い。電子分布に偏りがある二原子分子はイオン分極しており、電荷がそれぞれ q , $-q$ である双極子を形成する(図4.1(b))。分子軸に沿った直線偏光をもつ周波数 ω の電界 $E = E_0 e^{-i\omega t}$ が入射する場合、双極子に働く外力は $F(t) = qE_0 e^{-i\omega t}$ である。あとは先ほどと同様に $x(t) = x(\omega) e^{-i\omega t}$ と置けば、 $x(\omega)$ について解くことができ、分極 $P(\omega)$ や1次の電気感受率 $\chi^{(1)}(\omega)$ が求まる。

4.2 コヒーレントラマン散乱

コヒーレントラマン散乱 (CRS: coherent Raman scattering) とは、電界のビートによってコヒーレントに励起された分子共鳴振動により分極率が時間変化することで、入射光から周波数シフトした散乱光が生じる過程である。光強度の高いレーザー光を用いて分子振動を励起していることから自発ラマン散乱と比較して信号が強い。CRSには主にコヒーレント反ストークスラマン散乱 (CARS: coherent anti-Stokes Raman scattering) と誘導ラマン散乱 (SRS: stimulated Raman scattering) の2つがある。

周波数 ω_p のポンプ光と周波数 ω_s のストークス光 ($\omega_p > \omega_s$) が同時に物質に入射する場合を考える。ここで周波数差は分子の共鳴周波数と一致しているものとする。2つの電界の和は

$$E(z, t) = A_p e^{i(k_p z - \omega_p t)} + A_s e^{i(k_s z - \omega_s t)} + c.c. \quad (4.6)$$

と表せる。 $c.c.$ は複素共役である。電界 $E(z, t)$ により、分極率 $\alpha(t)$ の物質に双極子モーメント $p(z, t) = \epsilon_0 \alpha(t) E(z, t)$ が誘起されるとき、ポテンシャルエネルギーは

$$U = -\frac{1}{2} p(z, t) E(z, t) = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \alpha(t) E^2(z, t) \quad (4.7)$$

で表せる。ポテンシャルエネルギーは、電界 E が存在し、電子の変位がゼロの状態を基準とする。エネルギー U を x で微分すると分子に働く力 $F(t)$ を求めることができる。式(4.6)と分子間距離 x に依存した分極率

$$\alpha(t) = \alpha_0 + \left(\frac{\partial \alpha}{\partial x} \right)_0 x(t) \quad (4.8)$$

を用いて $F(t)$ を計算すると

$$F(t) = -\frac{dU}{dx} = \epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial x} \right)_0 \left[A_p A_s^* e^{i(Kz - \Omega t)} + c.c. \right] \quad (4.9)$$

となる。ここで、 $K = k_p - k_s$, $\Omega = \omega_p - \omega_s$ である。電界の2乗 E^2 には周波数の異なるいくつかの項が現れるが、その中で関心があるのは周波数 Ω の成分である。それ以外の周波数成分については分子の共鳴周波数から大きく外れているため無視できる。

式 (4.9) を式 (4.4) に代入すると

$$x(\Omega) = \frac{-\left(\frac{\epsilon_0}{2m\Omega_R}\right) \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 A_p A_S^*}{(\Omega - \Omega_R) + i\Gamma} \quad (4.10)$$

となる。入射した光の周波数差が分子の共鳴周波数と一致するとき ($\Omega = \Omega_R$)，分子の振動振幅が大きくなり，式 (4.8) より分極率が周期 Ω_R で変動する。分極 P は

$$P(z, t) = Np(z, t) = N \left[\alpha_0 + \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 x(z, t) \right] E(z, t) \quad (4.11)$$

と表せ，上式に式 (4.6)，(4.10) を代入して非線形成分を書き出すと

$$\begin{aligned} P_{\text{NL}}(z, t) &= N\epsilon_0 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 \left[x(\Omega) e^{i(Kz - \Omega t)} + c.c. \right] \left[A_p e^{i(k_p z - \omega_p t)} + A_S e^{i(k_S z - \omega_S t)} + c.c. \right] \\ &= P(\omega_{\text{AS}}) e^{-i\omega_{\text{AS}} t} + P(\omega_{\text{CS}}) e^{-i\omega_{\text{CS}} t} + P(\omega_p) e^{-i\omega_p t} + P(\omega_S) e^{-i\omega_S t} + c.c. \end{aligned} \quad (4.12)$$

となる。ここで， $P(\omega_{\text{AS}}), P(\omega_{\text{CS}}), P(\omega_p), P(\omega_S)$ はそれぞれ

$$P(\omega_{\text{AS}}) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 x(\Omega) A_p e^{i(2k_p - k_S)z}, \quad (4.13)$$

$$P(\omega_{\text{CS}}) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 x^*(\Omega) A_S e^{i(2k_S - k_p)z}, \quad (4.14)$$

$$P(\omega_p) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 x(\Omega) A_S e^{ik_p z}, \quad (4.15)$$

$$P(\omega_S) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_0 x^*(\Omega) A_p e^{ik_S z} \quad (4.16)$$

であり，上から順にコヒーレント反ストークスラマン散乱 (CARS)，コヒーレントストークスラマン散乱，誘導ラマン損失 (SRL: stimulated Raman loss)，誘導ラマン増幅 (SRG: stimulated Raman gain) を表している。CRS 過程の各成分のエネルギー遷移図を図 4.2 に示した。今回興味があるのは SRS 過程であり，SRL と SRG が SRS 過程に伴うものである。

4.3 誘導ラマン散乱過程

SRS 過程に伴い，ポンプ光とストークス光の光強度がどのように変化するかを考える。3 次の非線形電気感受率 $\chi^{(3)}(\omega_p)$ ， $\chi^{(3)}(\omega_S)$ を用いて分極は次のように表せる。

$$P(\omega_p) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p) |A_S|^2 A_p e^{ik_p z} \quad (4.17)$$

$$P(\omega_S) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_S) |A_p|^2 A_S e^{ik_S z} \quad (4.18)$$

上式と式 (4.15)，(4.16) を比較して式 (4.10) に代入すると，

$$\chi^{(3)}(\omega_p) = \frac{a/2}{(\Omega - \Omega_R) + i\Gamma}, \quad (4.19)$$

$$\chi^{(3)}(\omega_S) = \frac{a/2}{(\Omega - \Omega_R) - i\Gamma} \quad (4.20)$$

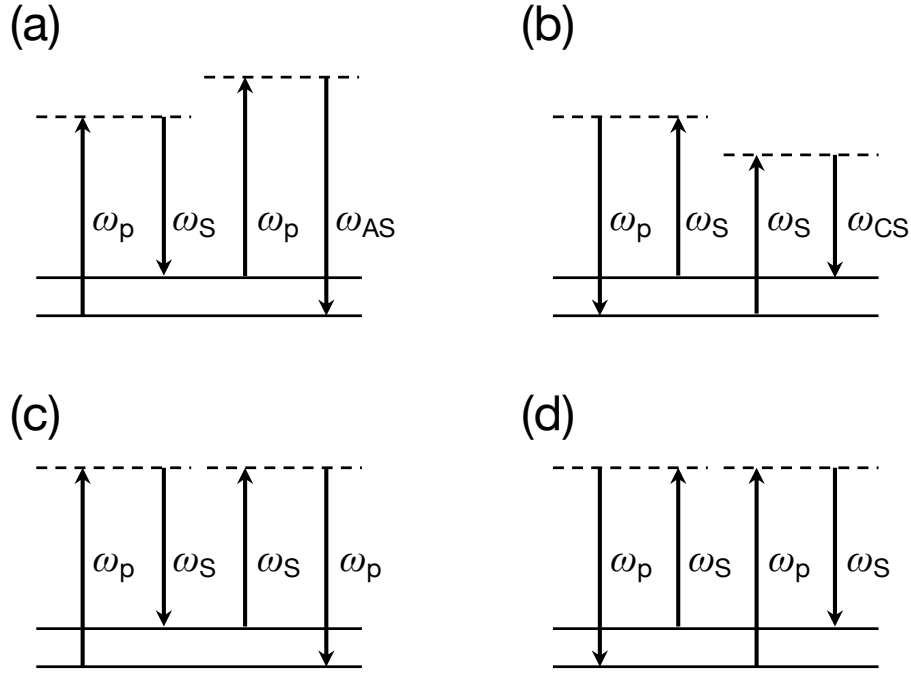


図 4.2: Coherent Raman process, a third-order nonlinear optical process. (a) Coherent anti-Stokes Raman scattering. (b) Coherent Stokes Raman scattering. (c) Stimulated Raman loss. (d) Stimulated Raman gain.

を得る. ここで, $a = -(2N\epsilon_0/6\mu\Omega_R)(\partial\alpha/\partial x)_0^2$ である. 3 次の非線形分極 P とそれにより生成される電界とは $A^{(3)}(\omega) \propto iP(\omega)$ の関係にあり, 式 (4.17)–(4.20) を用いて入射光と散乱光の位相関係を求めると

$$\varphi(A_p^{(3)}) - \varphi(A_p) = \frac{\pi}{2} + \varphi(\chi_p^{(3)}) = \pi, \quad (4.21)$$

$$\varphi(A_S^{(3)}) - \varphi(A_S) = \frac{\pi}{2} + \varphi(\chi_S^{(3)}) = 0 \quad (4.22)$$

となる. A_p と $A_p^{(3)}$ は逆位相, A_S と $A_S^{(3)}$ は同位相であるため, SRS 過程によりポンプ光は減衰 (SRL) され, ストークス光は増幅 (SRG) される.

非線形媒質での SRS 過程を経て, 入射したポンプ光, ストークス光の強度がどのように変化するかを考える. 伝搬方程式を用いて

$$\frac{\partial A_p}{\partial z} = \frac{i\omega_p}{2n_p\epsilon_0c} P(\omega_p) e^{-ik_pz}, \quad (4.23)$$

$$\frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{i\omega_S}{2n_S\epsilon_0c} P(\omega_S) e^{-ik_Sz} \quad (4.24)$$

と表す. ここで, n_p, n_S は周波数 ω_p, ω_S における有効屈折率である. 上式に式 (4.17), (4.18) を代入し, SRS による強度変調がごくわずかであると仮定すると, 距離 L 伝搬したときの光強度は

$$I_p(L) = I_p(0) \exp\left[-\frac{3\omega_p}{2n_p n_S \epsilon_0 c^2} \text{Im}(\chi_p^{(3)}) I_S(0) L\right], \quad (4.25)$$

$$I_S(L) = I_S(0) \exp\left[\frac{3\omega_S}{2n_p n_S \epsilon_0 c^2} \text{Im}(\chi_S^{(3)*}) I_p(0) L\right] \quad (4.26)$$

である．実際には SRS 過程の利得は 1 より非常に小さいため， \exp の部分は 1 次の項までの近似で表現できる．このとき損失と利得の大きさはポンプ光とストークス光の光強度に依存する．

第5章 広帯域波長可変レーザー光源の概要

本章では、四光波混合（FWM: four-wave mixing）を用いた波長チューニングの仕組みやファイバ光パラメトリック発振器（FOPO: fiber optical parametric oscillator）の特徴、動作原理について説明する。また SRS 顕微法へ応用する上で必要となる条件についても述べる。

5.1 四光波混合による波長可変範囲の拡大

FOPO は共振器中に置いたファイバ内で FWM を起こすことで、広い波長領域において光利得を生じさせる。効率的に FWM を起こすために、フォトニック結晶ファイバ（PCF: photonic crystal fiber）と呼ばれる特殊なファイバを利用する。実際に使用する PCF の分散値を基に計算した FWM の位相整合曲線（式 (2.62)）を図 5.1 に示す。このファイバのゼロ分散波長（ZDW: zero-dispersion wavelength）は 1050 nm である。ポンプ光の波長を横軸に、FWM により生成されるシグナル光とアイドラ光の波長を縦軸にプロットしている。ポンプ光の波長が変化すると、それに応じてシグナル光、アイドラ光の波長も変化する。図から分かるように、ポンプ光の波長変化のスケールが数十 nm であるのに対して、シグナル光、アイドラ光のそれは数百 nm であり、1桁程度大きい。

FWM を用いた波長変換は ZDW 付近で行うが、ZDW よりも長波長側を使用する方法と短波長側を使用する方法がある [39]。前者の特徴は利得帯域が広いことである。図 5.1 は位相整合が完璧に満たされた点をプロットしているが、位相不整合量が小さければ FWM の利得は存在し、ZDW よりも長波長側ではこの範囲が広い。そのため、ポンプ光波長を固定したままでもある程度の範囲でシグナル光、アイドラ光の波長をチューニングできる。一方でポンプ光の波長変化に対するシグナル光、アイドラ光の波長変化は小さい。広い利得帯域と低い波長変化率により、多段の FWM が生じやすい [55]。

それに対して、正常分散領域での FWM の特徴はポンプ光の波長変化に対してシグナル光、アイドラ光の波長変化が急峻なことである。この領域でシグナル光、アイドラ光の波長チューニングを行う際は、ポンプ光の波長そのものをチューニングする。つまり、ポンプ光に対するシグナル光、アイドラ光の波長変化率が大きなことを利用してチューニング範囲を拡大する。本研究では 100 nm を超えるチューニング範囲が求められるため、ZDW よりも短波長側（正常分散領域）を使用する。

5.2 光共振器を用いたパラメトリック発振

自発 FWM ではシグナル光、アイドラ光は量子ノイズから生成・増幅されるため、出力パワーが低い、ノイズが大きい、スペクトル幅が広い、といった特徴がある [38, 56, 57]。そこでポンプ光とともにシード光をファイバに入射させる必要があり、その構成には光パラメトリック増幅と光パラメトリック発振の 2 つがある。光パラメトリック増幅はポンプ光の他に外部からシード光を入射させる方法 [58, 59] であるが、この外部シードレーザーにも最終的に欲しいのと同じだけの

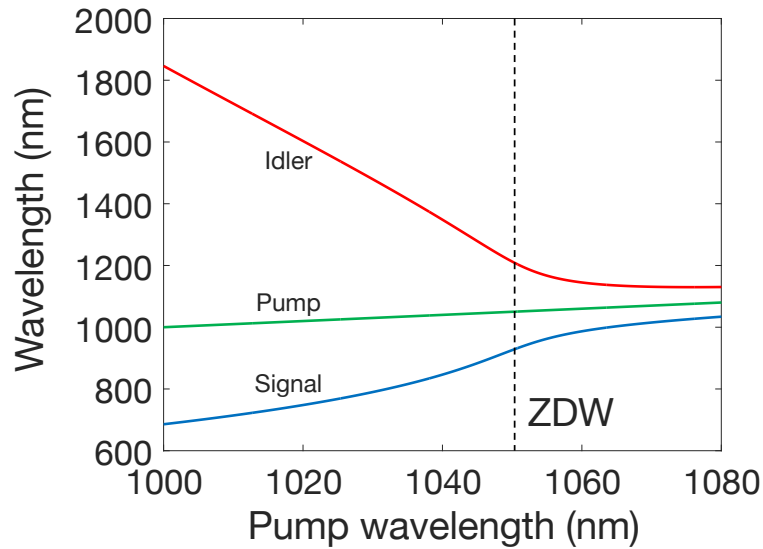


図 5.1: Phase-matching curve calculated from the dispersion of a photonic crystal fiber (Photonics Bretagne, SUP-5-125). ZDW: zero-dispersion wavelength.

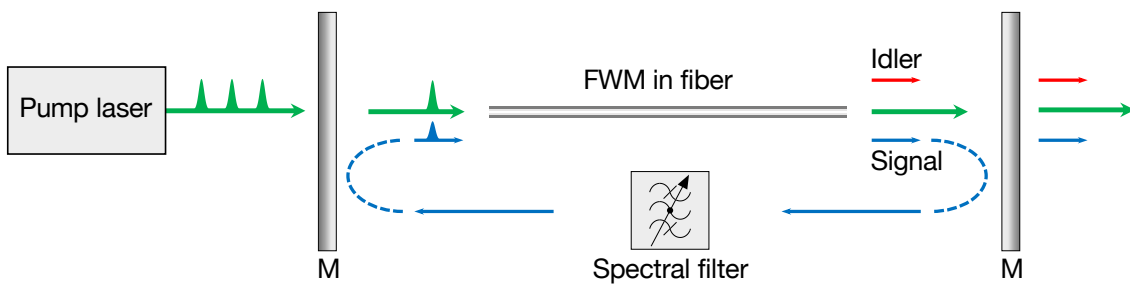


図 5.2: Simplified schematic of a FOPO using FWM in a PCF, where signal pulses are fed back to the cavity.

チューニング性能が求められる。それに対して光パラメトリック発振は、自発 FWM で生成したシグナル光，アイドラ光の一方を共振器内にフィードバックし，このフィードバックした光をシード光として用いる（図 5.2）。そのため光パラメトリック増幅のように外部のシードレーザーが不要である。またエネルギー変換効率が高く，ノイズも小さいことが知られている [46]。

FOPO は共振器であるが，そのパワーフィードバック比率は数%と低い [60]。フィードバックした光パワーが大きいと，それに伴いポンプ光パワーを上げる必要があるのに加え（十分なポンプ光パワーがないと，逆にポンプ光が増幅される），ファイバ内での非線形光学効果により安定した発振が得られない。ファイバ内での非線形光学効果による問題はモード同期ファイバレーザーと同様である。

シード光を FWM により増幅するためには，ポンプ光パルスとフィードバックしたシード光パルス（図 5.2 ではシグナル光）を時間・空間的にオーバーラップさせる必要がある。両方の光パルスがファイバに結合しファイバ内を伝搬すれば，空間的にオーバーラップしている。連続光の場合は時間的なオーバーラップは自動的に満たされるが，パルス光の場合，ポンプレーザーの光路長と FOPO のそれを一致させることで 2 つの光パルスのファイバへの入射タイミングを合わせる。さらに，波長をチューニングするとファイバの分散により光路長が変化するので，その変化を補償して光路長を一定に保つ。一般的に波長チューニングに伴う光路長補正がチューニング速

度のボトルネックとなっている。機械式ステージにより光路長を補正する場合は、その移動量が大きいほどチューニング速度が遅い。

波長フィルタも FOPO の中で重要な機構である。FOPO は自発 FWM により量子ノイズから生成されたシグナル光またはアイドラ光をシード光として用いるが、そのスペクトル幅は 10 nm を超える。出力パルスとして求められるスペクトル幅は自発 FWM から生成された光スペクトル幅よりも狭いため、波長フィルタによりスペクトルを狭窄化する必要がある。波長フィルタの使用はパラメトリック発振の安定化にも繋がる。

5.3 フォトニック結晶ファイバ

効率的に FWM を励起するためには石英ガラス内に規則的・周期的に空孔を配列した特殊なファイバである PCF が有用である。PCF を使用する利点は主に 3 つ挙げられる [39]。1 つ目は、ファイバ中を伝搬する光をコア部分にきつく閉じ込め、大きな光パラメトリック利得が得られることである。PCF にはいくつかの種類があるが、FWM などの用途に使用される PCF は有効コア断面積 A_{eff} が小さく非線形係数 γ が大きい。FWM の利得は式 (2.60), (2.66) で与えられるため、 γ が大きいと利得も大きい。2 つ目は、通常のスラブインデックスファイバと比較して PCF は構造の自由度が高く、ファイバの構造分散を柔軟にエンジニアリングできることである。式 (2.62) から FWM の位相整合条件はファイバの分散に強く依存していることがわかる。使用したい波長帯に合わせて PCF の構造を設計することにより、所望の位相整合曲線が得られる。そして 3 つ目は、PCF の伝搬モード形状の波長依存性が小さいことである。エンドレスシングルモード PCF [61] があることから分かるように、広帯域に亘りシングルモード動作が得られ、波長が大きく異なるポンプ光とシグナル光、アイドラ光でもその空間モードの重なりが大きい。

5.4 顕微法応用のための各指標

ここまでで FOPO の一般的な特徴や動作原理について説明したが、今回作製する FOPO は SRS 顕微法の光源として使用するものである。そのため、SRS 顕微法の光源に求められる幾つかの指標を満たす必要がある。各指標を表 5.1 にまとめる。

SRS 顕微法へ応用する波長可変レーザー光源に求められる代表的な指標を説明する。まず波長可変範囲についてであるが、第 1 章でも説明したようにラマンスペクトル全域をカバーするために必要なチューニング範囲は約 2600 cm^{-1} である。そして広範囲なだけではそのチューニング性能を活用することができないため、高速性も求められる。例えば 1 秒間に 30 フレームの画像取得を行うビデオレートでのイメージングには、フレーム毎に波長切り替えを行う場合は数十 ms、そうでなくとも最低百 ms 程度のチューニング速度が要求される。

また、典型的なラマンスペクトルのバンド幅は $15\text{--}20 \text{ cm}^{-1}$ 程度 [27, 30] であるため、レーザー光源のスペクトル幅はこれ以下であると良い。フーリエ限界パルスの場合これはピコ秒の光パルスに相当する。高感度なイメージングのためには光パワーが重要である。式 (4.25), (4.26) が示すように SRS 信号の大きさはレーザー光の光強度に比例するため、光パワーが高いほど高感度化できる。一方で高すぎる光パワーは試料を破壊するため、試料の損傷閾値を考慮すると、1 つのレーザー光源あたり照射パワー 50 mW 程度が上限となる。顕微鏡システムの透過率が 50% であると仮定するとレーザー光源の出力パワーは 100 mW である。光パルスの繰り返し周波数にも要件がある。時間分解能の高い高速イメージングのためには繰り返し周波数が高い方がよい。また高周波領域は $1/f$ ノイズなどの古典的ノイズが小さいのも利点である。繰り返し周波数が高くなるの

に伴いパルスのピークパワーが低下するとモード同期が難しくなることから、バランスを考慮して、80 MHz 程度がよく用いられる。強度変調を加える側のレーザー光源は 80 MHz の半分である 40 MHz でよく、今回作製する FOPO はこちらに該当する。

表 5.1: Required laser performance parameters.

Parameters	Requirements
Tuning range	2,600 cm^{-1}
Tuning speed	<100 ms
Spectral width	<20 cm^{-1}
Pulse duration	~ps
Average power	>100 mW
Repetition rate	~80 MHz (~40 MHz)

第6章 Yb添加ファイバレーザーの構築と評価

本章ではFOPOのポンプレーザーであるYb添加ファイバレーザー(YDFL: Yb-doped fiber laser)について述べる。YDFLは3つのステージに分類でき、まず初段にモード同期ファイバレーザーがある。その後、スペクトル拡張と波長フィルタからなるチューニング部分があり、最後にファイバ増幅器が続く。YDFLのファイバは全て偏波保持ファイバである。

FOPOのポンプ光には広いチューニング範囲と高い出力パワーが求められる。本章で、1020–1050 nmのチューニング範囲と~Wレベルの高出力を実現したYDFLを報告する。高出力化のために大モード面積(LMA: large mode area)ファイバを利用したYDFLも作製し、ポンプ光のパワースペクトル密度を大幅に向上する。

6.1 モード同期ファイバレーザー

光パルスを生成する方法はいくつかあるが、その中でもモード同期レーザーはピコ秒・フェムト秒という時間幅の非常に短いパルスを生成することができる。モード同期レーザーは、共振器の各縦モードの位相が揃っている(同期している)状態を作り出すことにより光パルスを生成する。この各モードの位相を揃えるのがモードロッカーと呼ばれる機構であり、モード同期レーザーのなかで重要な役割を果たす。モード同期ファイバレーザーにおいては主に2つの手法があり、1つ目が半導体可飽和吸収ミラー[62]やカーボンナノチューブ[63]、グラフェン[64]などの可飽和吸収体を用いた手法である。もう1つの手法が、非線形偏波回転[65]や非線形増幅ループミラー(NALM: nonlinear amplifying loop mirror)[66,67]などのファイバの非線形性を利用したものである。1 μm 帯のモード同期Ybファイバレーザーには、モードロッカーに加えて、ファイバ中の分散を補償する仕組みも必要である。Ybの利得帯域である1 μm 帯はファイバの正常分散領域であり、SPMと同じ方向にチャープが加わる。このチャープを打ち消すように共振器内で異常分散を与える。

図6.1に作製したモード同期ファイバレーザーの概要を示す。NALMを基にしたfigure-nine構成[68,69]である。NALMはファイバ増幅器が非対称に配置されたループ構造を持ち、ループに入射した光強度に依存して反射率・透過率が変化する。具体的には、パワー増幅位置の非対称性によりループ部分を双方向に周回する光パルスに異なる位相変調を与える。図6.1で40/60カプラから入射し、時計回りに周回する光パルスはループ入射直後に増幅され、反時計回りに周回する光パルスはループから出る直前で増幅される。このため前者は全体的にSPMが大きく、後者は小さい。また周回方向だけでなく光パルス内での位置(中心/裾野)に応じてSPMが異なり、光パルス中心でのSPMが最も大きい。周回方向とパルス内位置でのSPMの違いにより、光強度に応じて反射率が決まる。figure-nine構成の場合は、反射率が光強度に比例して上昇すれば、NALMがモードロッカーとしてはたらく。純粋なNALMは透過率が光強度に比例して増加し、figure-nine構成でのモード同期は難しいため、入射方向に依存した位相シフトを与える非相反位相シフトをループ内に導入する。さらに、位相変調器を加えることで、モード同期がかかるまでアクティブに位相変調を与える。

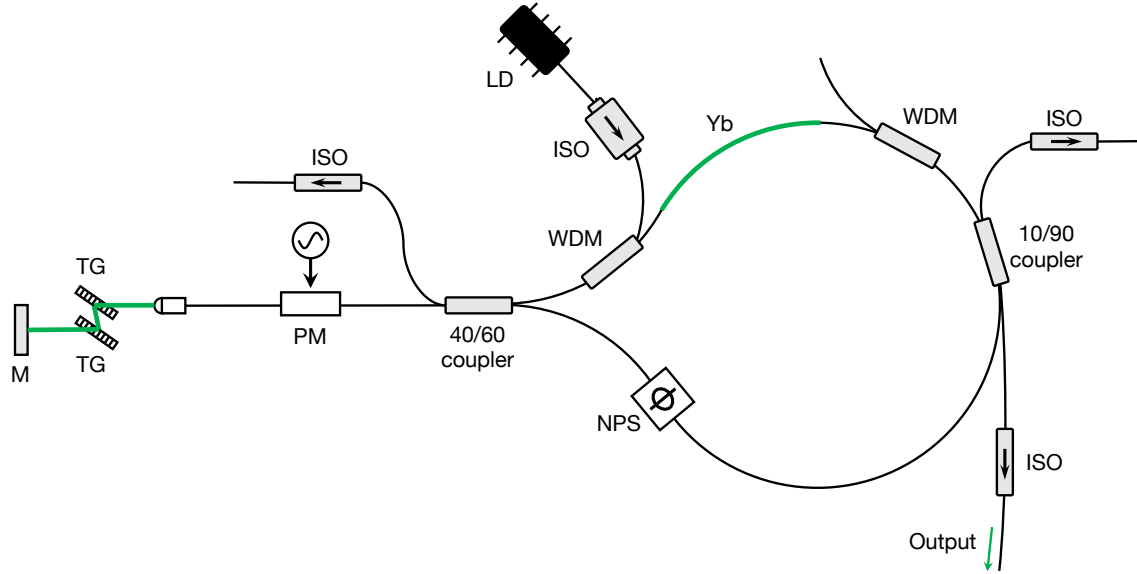


図 6.1: Schematic of the mode-locked fiber laser of a figure-nine configuration. TG: transmission grating, PM: phase modulator, NPS: nonreciprocal phase shifter, ISO: isolator, WDM: wave-length division multiplexer, LD: laser diode.

位相変調器の左側にあるコリメータから出た光は2枚の回折格子を透過し、ミラーに反射されて再び回折格子を透過したのち、コリメータに戻る。この透過型の回折格子ペアにより異常分散を与え、ファイバの正常分散やSPMを補償する。Littrow配置の回折格子ペアを往復した際の群遅延分散 (GDD: group delay dispersion) は

$$\text{GDD}(\lambda) = -\frac{\lambda^3 d}{\pi c^2 \Lambda_g^2} \left(1 - \left(\frac{\lambda}{\Lambda_g} - \sin(\alpha) \right)^2 \right)^{-3/2} \quad (6.1)$$

であり、 d は2枚の回折格子間隔、 α は入射角、そして Λ_g は回折格子の溝間隔である [69]。上式に、 $\lambda = 1030 \text{ nm}$ 、 $d = 4 \text{ mm}$ 、 $\Lambda_g = 1/1600 \text{ mm}$ 、 $\alpha = 55.5^\circ$ を代入してGDDを計算すると、 $\text{GDD} = -0.218 \text{ ps}^2$ である。

出力光は10/90カプラの10%ポートから取り出す。出力光パルスのスペクトルを図6.2に示す。スペクトル幅は3.2 nmであり、フーリエ限界の sech^2 の強度波形を仮定するとパルス時間幅は345 fsである。また出力パワーは約0.5 mWである。本構成のYDFLにおけるモード同期ファイバレーザの出力としては、パルス時間幅が短く、ピークパワーの高い光パルスが好ましい。高いピークパワーにより後段のスペクトル拡張部分でのSPMが大きくなり、スペクトルを広帯域に広げることができるからである。SRS顕微法への応用を見据えてパルスの繰り返し周波数は38.6 MHzとした(図6.3)。パルスの繰り返し周波数は共振器内の光路長 L_{light} により決まり、 $f_{\text{rep}} = c/L_{\text{light}}$ である。

6.2 スペクトル拡張と波長フィルタ

YDFLの波長をチューニングするために、モード同期ファイバレーザの出力光スペクトルを広帯域化した後に可変波長フィルタにより波長選択するという方法を用いる。その後、Yb添加ファイバ増幅器 (YDFA: Yb-doped fiber amplifier) により光パワーを増幅する。図6.4はYDFLの

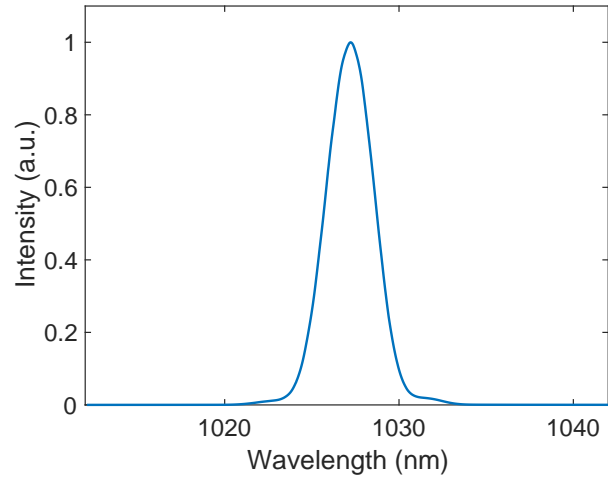


图 6.2: Output spectrum of the mode-locked fiber laser.

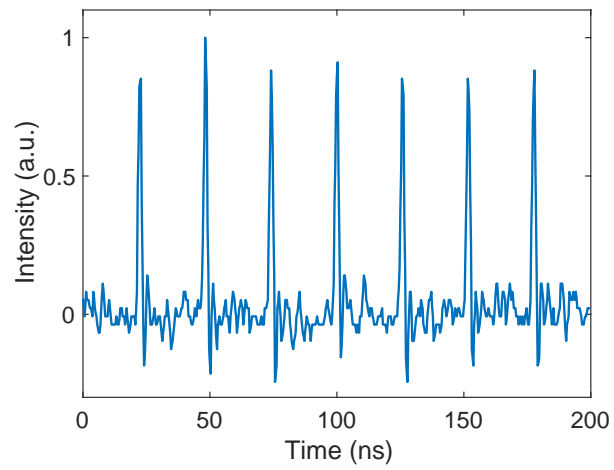


图 6.3: Pulse trains of the mode-locked fiber laser. The repetition rate is 38.6 MHz.

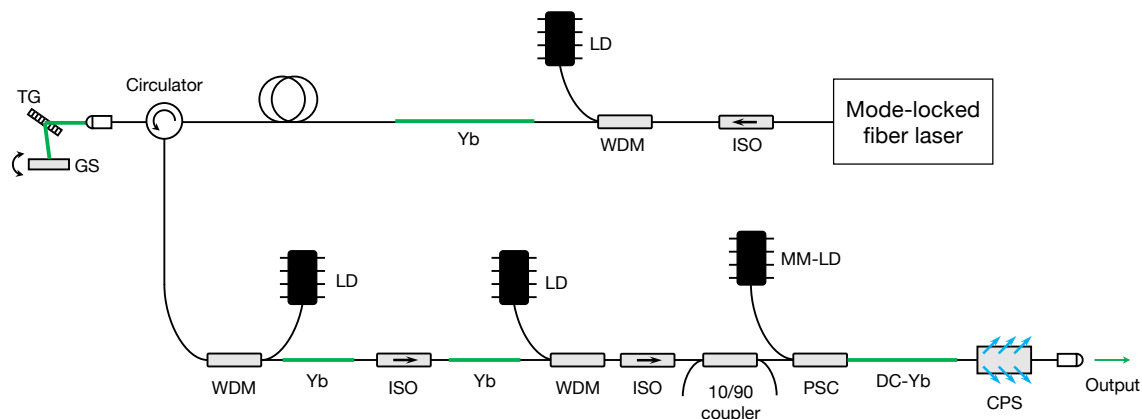


図 6.4: Schematic of the Yb-doped fiber laser that consists of the mode-locked fiber laser, spectral broadening and filtering parts, and Yb-doped fiber amplifiers. GS: galvano scanner, MM-LD: multimode LD, DC-Yb: double-clad Yb, PSC: pump and signal combiner, CPS: cladding power stripper

概要を示している。モード同期ファイバレーザは図 6.1 に示したものである。モード同期ファイバレーザ後の YDFA とそれに続く長いシングルモードファイバがスペクトル拡張部分である。モード同期ファイバレーザからの出力光を長さ 60 cm の Yb ファイバをもつ YDFA によりパワー増幅し、その後、長さ約 1.5 m のシングルモードファイバに通す。高ピークパワーにより誘起した大きな SPM により、光パルスのスペクトルを広帯域化する。

光パルスのスペクトルを拡張した後、ファイバサーキュレータを介してコリメータと透過型回折格子、ガルバノスキャナからなる波長フィルタへ入射する。波長フィルタは回折格子の角度分散を利用している。回折格子に入射したコリメート光は、回折格子の角度分散の影響で波長に応じて異なる方向に回折する。ミラーに対して垂直に入射した光だけが入射角と等しい方向へ反射され、コリメータに戻る。それ以外の光はミラーへの入射角と反射角が異なり、コリメータには結合しない。波長フィルタのバンド幅はビーム径と回折格子の溝間隔、入射角により決まる。1/e² ビーム径 1.2 mm, 回折格子溝間隔 1/1600 mm, 入射角 55.5° より、バンド幅は約 0.2 nm である。また、ガルバノスキャナを操作してミラーの角度を変えることにより波長チューニングを行う。

図 6.5 は、YDFA の励起パワー増加に伴う、モード同期ファイバレーザからの出力光スペクトルの広がり性を示している。測定場所はスペクトル拡張後、すなわちファイバサーキュレータの直前である。伝搬光の光パワーを 0.06 mW から 105 mW, 275 mW まで増幅したときのスペクトル半値全幅 (FWHM: full-width at half-maximum) はそれぞれ 3 nm, 26 nm, 43 nm である。スペクトル拡張前の FWHM 3 nm と比較して、最終的に 10 倍以上の 43 nm まで広帯域化している。中心波長は約 1030 nm である。ここで、図 6.2 に示したモード同期ファイバレーザのスペクトルの中心波長 1026 nm からシフトしているのは、光学系をアライメントしたことによるものであり、ファイバ中でシフトしている訳ではない。

図 6.6 は波長をチューニングした際の波長フィルタ後のスペクトルとその FWHM を示している。チューニング範囲は 1020–1050 nm の 30 nm であり、スペクトル FWHM はチューニング範囲全体に亘り約 0.2 nm である。チューニング範囲 30 nm は FOPO のポンプ光として用いるのに十分である。

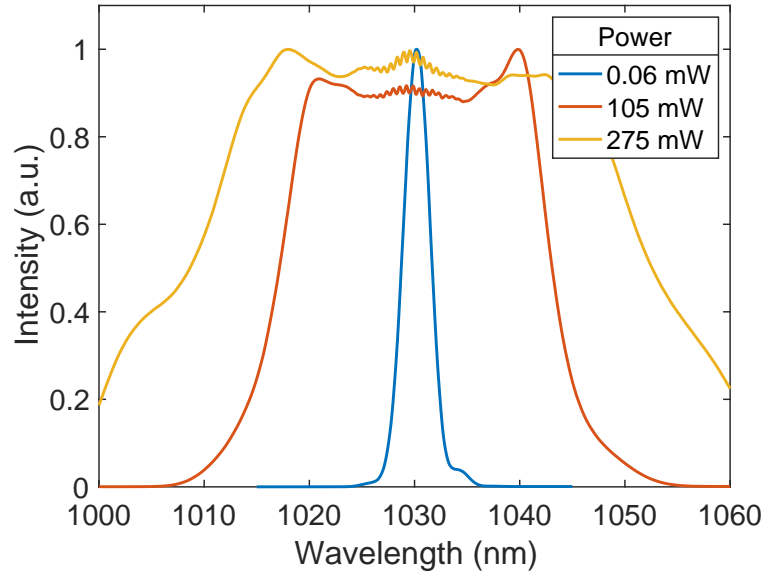


Figure 6.5: Spectral broadening when seed pulses are amplified by the first amplifier. Spectral FWHMs are 3 nm, 26 nm, and 43 nm when the output powers are 0.06 mW, 105 mW, and 275 mW, respectively.

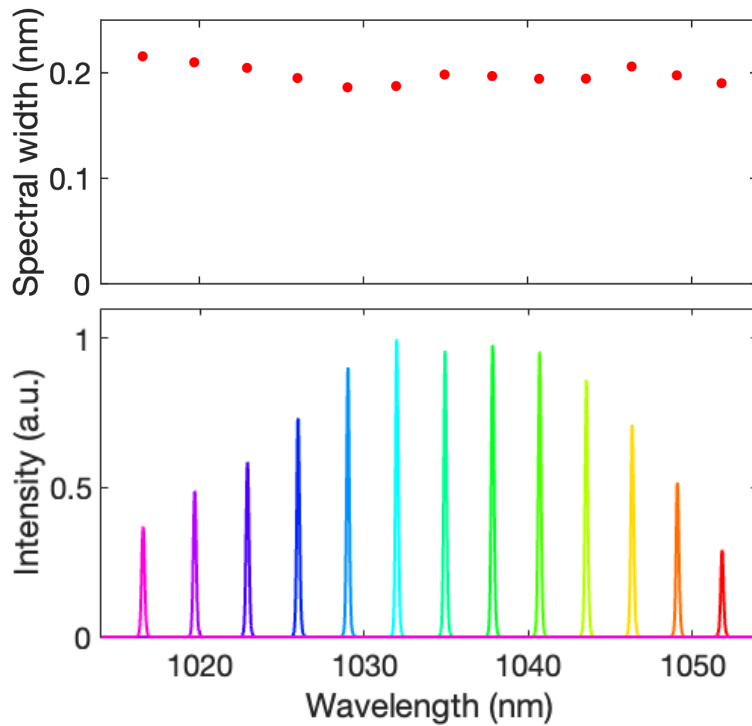


Figure 6.6: Spectrum and spectral width right after the spectral filter. The tuning range is from 1020 to 1050 nm, where spectral FWHM is approximately 0.2 nm.

6.3 Yb 添加ファイバ増幅器

波長フィルタを透過した光はファイバサーキュレータを通り、多段に繋がった YDFA に入射する。前半 2 つの YDFA は、Yb ファイバ長が約 35 cm のコア励起 YDFA である。YDFA 入射前のパワーが約 0.15 mW であり、2 つ目の YDFA 後のパワーは 100 mW を超える。YDFA を多段にしている理由は ASE の増幅を抑えるためである。逆方向に伝搬する ASE のパワーが大きいため、アイソレータを挟むことで ASE を排除し、ASE の増幅に励起パワーが奪われるのを防いでいる。

その後さらにパワーを増幅するためにダブルクラッド Yb 添加ファイバ (CorActive, DCF-YB-6/128S-PM) を用いる。ファイバ長は 1.2 m である。ダブルクラッドファイバとはポンプ光がクラッドを伝搬するファイバのことであり、シングルクラッドファイバよりも高い光パワーを扱うことができる [70–72]。コア励起の通常のゲインファイバの場合、コアの外側にコア部よりも屈折率の低いクラッド、その外側に屈折率の高い被覆がある。増幅されるシグナル光も利得媒質に吸収されるポンプ光もコアを伝搬し、クラッドに漏れ出た場合は損失となる。一方でクラッド励起のダブルクラッドファイバの場合、ファイバ中心のコアに加えて、第 1 クラッド、第 2 クラッドと続き、外側の層ほど屈折率が低い。そのため、コアと同時に第 1 クラッドも導波路の役割を果たす。ダブルクラッドファイバ入射前に通常のシングルモードファイバを伝搬していたシグナル光はそのままコアを伝搬し、マルチモードレーザーダイオード (LD: laser diode) から出射されてマルチモードファイバを伝搬してきたポンプ光は第 1 クラッド内を伝搬する。ポンプ光の有効コア断面積が大きくなりファイバ内での光強度が低下するため、注入するポンプ光パワーに対するファイバの損傷閾値が上昇する。

ダブルクラッドのゲインファイバを利用するため、励起 LD にはシングルモード LD の代わりにマルチモード LD を使用する。シングルモード LD の出力パワーが最大で 1 W 程度であるのに対し、マルチモード LD の出力パワーは 10 W 程度まで高められる。シグナル光とポンプ光のダブルクラッドファイバへの結合にはポンプシグナルコンバイナを使用する。またその後のクラッドパワーストリッパ (CPS: cladding power stripper) により、ゲインファイバ内で吸収されずに残ったポンプ光をファイバ外へ除去する。

図 6.7 は YDFL 出力光のパワーとスペクトルを示している。チューニング範囲内でのパルス幅は約 6 ps、平均パワーは 750 mW 以上である。平均パワーは 1038 nm で最大 915 mW に達し、これはパルスエネルギー 23.6 nJ、ピークパワー 3.7 kW に相当する。FWM の励起に必要な高いピークパワーを実現している。チューニング範囲は 1020–1050 nm であり、広範囲でポンプ光の波長をチューニングできる。その一方で、出力スペクトルは YDFA 入射前のスペクトル (図 6.6) と比較して明らかに広がっている。YDFA 入射前のスペクトル FWHM は 0.2 nm であるが、出力された励起光パルスのスペクトル FWHM は 3 nm を超えている。スペクトルが広がった原因は YDFL のファイバ中での SPM である。特に、ダブルクラッド YDFA で増幅されてコリメータで出射させるまでの間は、ファイバ内での光強度が高く SPM も大きい。モード同期ファイバレーザー後の意図的なスペクトル拡張とは異なり、パワー増幅のための YDFA 内でのスペクトル広がりには好ましくない。スペクトルの広がりは見られるがそれでもスペクトル幅は数 nm であり、また FOPO のポンプ光として十分なパワーが得られているため、まずはこの YDFL を FOPO のポンプ光として使用する。

6.4 大モード面積ファイバによる高出力化

ここまでで作製した YDFL の課題は、SPM によるスペクトル広がり度でパワースペクトル密度が低いことである。さらに、ファイバ中の非線形光学効果により出力パワーも制限されている。ポ

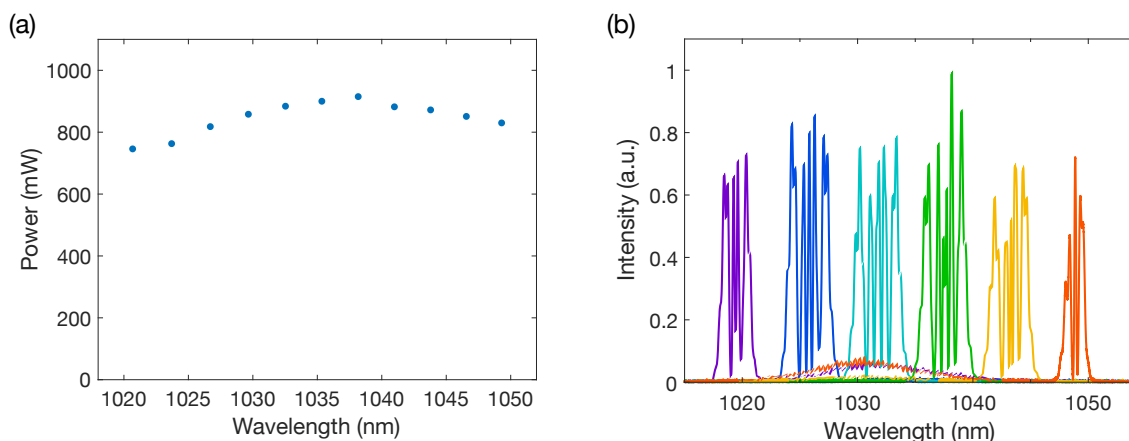


図 6.7: YDFL output (a) power and (b) spectrum. The power increases up to 915 mW at 1038 nm.

ンプ光の広いスペクトルは、FWMの低いエネルギー変換効率に繋がる。図 6.8 は FWM の利得分布を表しており、横軸がポンプ光の波長、縦軸がシグナル光の波長である。ポンプ光が連続光であり特定の波長成分しか持たない場合、シグナル光の利得はそのポンプ光波長における利得と一致する。ポンプ光の波長が変化すると、位相整合曲線に沿って利得のあるシグナル光の波長も変化する。ポンプ光がパルス光の場合はポンプ光のスペクトルに有限の幅があるため、シグナル光の利得はポンプ光スペクトルでの利得を積分したものとなる。ポンプ光のスペクトル幅が広いとシグナル光の利得バンド幅も広がる。FOPO 出力光として欲しいスペクトル幅が決まっているため、FWMの利得バンド幅も適切に決める必要があり、これはポンプ光のスペクトル幅に依存する。FOPO 内にある波長フィルタの非透過帯域でシグナル光が生成されたとしても、波長フィルタによりブロックされるため、所望のシグナル光のスペクトル幅に対してポンプ光のスペクトル幅が広いと、ポンプ光のエネルギーの一部が無駄になる。FOPO の出力として取り出すシグナル光の生成・増幅に無関係なポンプ光はエネルギー的に無駄であるばかりではなく、ファイバ内においてシグナル光、アイドラ光に不要な相互位相変調を与え、スペクトルを歪める。

今回、YDFL と FOPO の両方がピコ秒のため、ポンプ光のスペクトル幅が狭すぎるということは無い。スペクトル広がりを抑制し、パワースペクトル密度をいかに向上させられるかが重要である。高出力化と非線形光学効果を抑制するために、YDFA 最終段のダブルクラッド Yb 添加ファイバに大モード面積 (LMA: large mode area) ファイバを使用する。図 6.9 は最終段 YDFA 変更後の YDFL の概要を示している。変化しているのは出力付近の光学部品である。まずダブルクラッド Yb 添加ファイバを LMA ダブルクラッド Yb 添加ファイバ (LIEKKI, Yb1200-20/125DC-PM) に置き換えた。LMA ファイバの高次モードを抑制するために、ファイバを円形に巻き付けている。コア径は $6\ \mu\text{m}$ から $20\ \mu\text{m}$ になり、ファイバ長は $1.2\ \text{m}$ から $0.8\ \text{m}$ へ短くなった。さらに、CPS を除去することにより、パワー増幅後のパッシブファイバの長さが約 $30\ \text{cm}$ 短くなっている。

6.4.1 大モード面積ファイバ

LMA ファイバを利用することにより 2 つの観点から SPM を抑制することができる。1 つ目は LMA という名前の通り、通常のシングルモードファイバと比較してモード径が大きいことによるものである。有効コア断面積が大きくなるのに伴い非線形係数 γ が小さく (式 (2.20)) になると、 γ に比例する SPM は抑制される (式 (2.41))。2 つ目はファイバ長を短くできることによるものであ

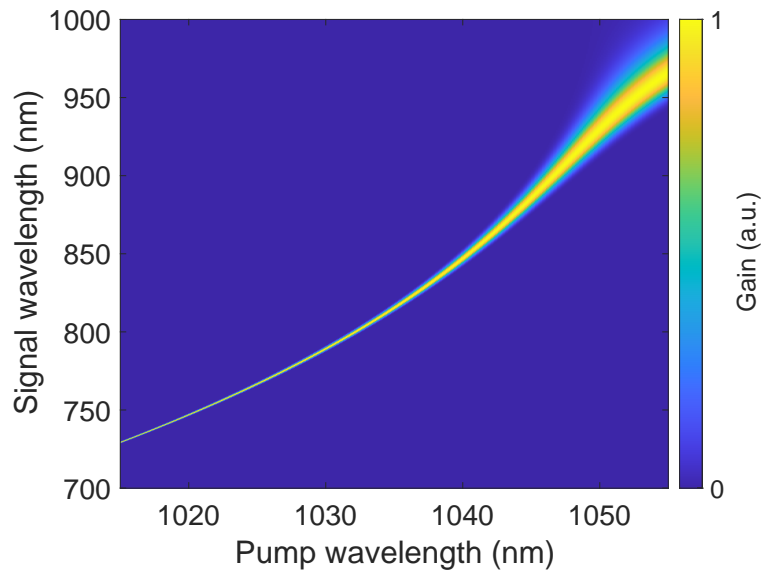


图 6.8: FWM gain as a function of the wavelengths of the pump and signal light.

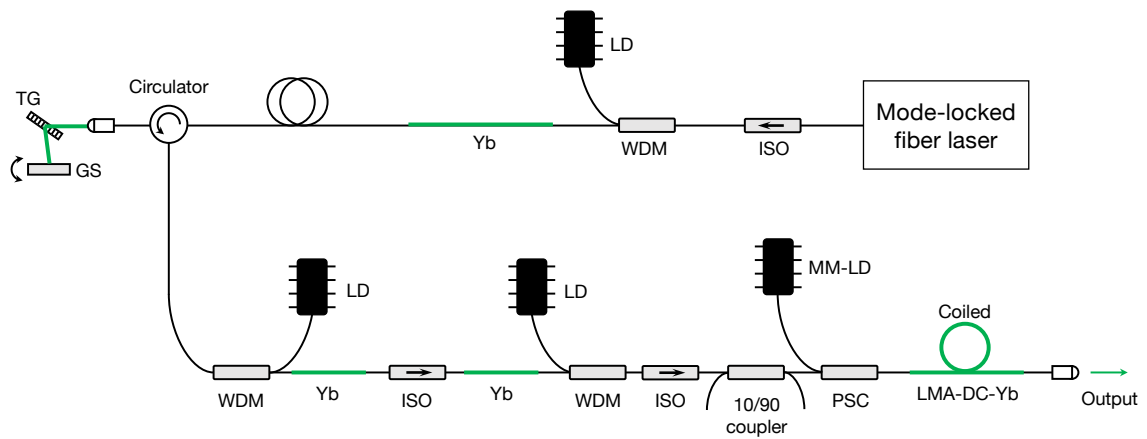


图 6.9: Schematic of the high-power YDFL. The main difference from Fig.6.4 is the use of large mode area DC-Yb (20 μm core diameter).

る。ダブルクラッド希土類添加ファイバは通常のゲインファイバと同様にコア部分に利得媒質が添加されている。コアとクラッドの面積比を考慮しただけでもポンプ光の吸収効率は低いが、実際には面積比以上に低効率であることが知られている [73, 74]。吸収効率が低いとポンプ光パワーを全て吸収するために必要なファイバ長は長くなる。クラッド径はそのままにコア径が大きくなるとポンプ光の吸収効率が上がる。そのため、ゲインファイバ長を短くすることができ、式 (2.41) より SPM を抑えられる。

LMA ファイバの導入により SPM 由来のスペクトル広がりがどれほど抑えられるかを見積もる。LMA ファイバ導入前の YDFL 出力光スペクトル (図 6.7) にはピークが約 5 個ある。このとき SPM による最大位相変調量は、式 (2.42) より

$$\phi_{\max} \approx (5 - 1/2) \pi = 14 \text{ rad} \quad (6.2)$$

である。この ϕ_{\max} を式 (2.43) へ代入すると、スペクトル幅は約 12 倍に広がる。スペクトルの測定結果と比較すると計算によるスペクトル幅の広がりはいささか小さいが、目安としては妥当な値である。

LMA ファイバを導入したことによる ϕ_{\max} の変化を計算する。まず非線形係数 γ の変化についてである。Marcuse の方程式 [75]

$$2w = 2a \left(0.65 + \frac{1.619}{V^{3/2}} + \frac{2.879}{V^6} \right) \quad (6.3)$$

より、有効モード径 $2w$ はコア径 $2a$ と V パラメータから計算できる。変更前のファイバ (コア径 $6 \mu\text{m}$, $\text{NA} = 0.12$) の波長 1030 nm における基本モードの有効モード径は $7 \mu\text{m}$ であり、変更後の LMA ファイバ (コア径 $20 \mu\text{m}$, $\text{NA} = 0.08$) の波長 1030 nm におけるそれは $16 \mu\text{m}$ である。モード径が $16/7$ 倍、有効コア断面積はその 2 乗の $(16/7)^2$ 倍となり、 γ は $(7/16)^2 \approx 0.19$ 倍となる。

次に有効ファイバ長 L_{eff} について、ゲインファイバとその後のパッシブファイバを分けて考える。ゲインファイバの利得は 20 倍 (13 dB) とする。増幅後のパワーを基準にしたゲインファイバの有効ファイバ長は、式 (2.37) より

$$L_{\text{eff}} = L_{\text{gain}} \frac{1 - 1/G}{\ln(G)} \quad (6.4)$$

である。上式に G を代入して、最終段 YDFA 入射点からコリメータまでのファイバ長 ($L_{\text{eff}} = L_{\text{eff,gain}} + L_{\text{eff,passive}}$) を計算すると、LMA ファイバ導入前は $0.38 + 0.36 = 0.74 \text{ m}$ であり、LMA ファイバ導入後は $0.25 + 0.08 = 0.33 \text{ m}$ である。両者を比較すると、 L_{eff} は 0.45 倍に短くなっている。 γ と L_{eff} の積からスペクトル広がりの変化を計算すると元々の 0.086 倍 ($= 0.19 \times 0.45$) であり、SPM を大幅に抑制できることが分かる。

6.4.2 大モード面積ファイバの高次モード抑制方法

LMA ファイバは非線形光学係数が小さいことや高い光パワーを扱えることといった利点がある一方で、伝搬モードとして高次モードもサポートしている。FOPO のポンプ光にはシングルモードが適しているため、高次モードの存在は問題となる。複数のモードが存在すると、光ビーム強度分布の不安定化やモード分散によるパルス時間波形の歪みに繋がる。さらに、FWM を起こすための PCF は基本モードだけをサポートしているため、高次モードによって PCF への結合効率は低下する。以上の理由から、LMA ファイバ内の高次モードを抑制し、シングルモード動作を実現することが重要である。

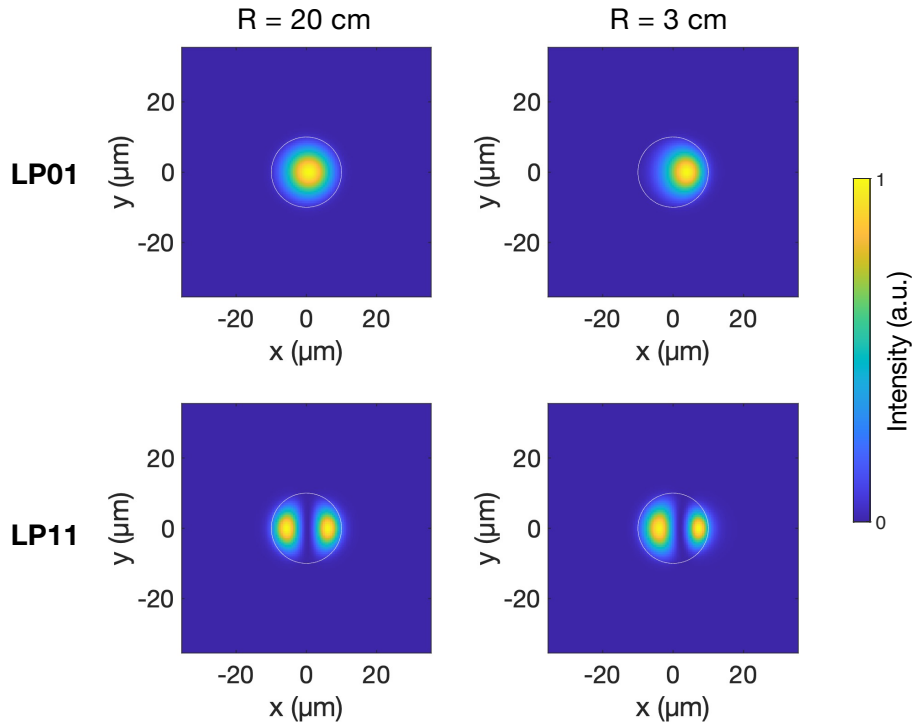


図 6.10: Simulated mode field distributions of LP_{01} and LP_{11} modes when fiber bend radii are 20 cm (left) and 3 cm (right). The circular outline denotes the core-cladding interface.

LMA ファイバの伝搬モード数は数個から十数個程度であり，モード間の有効屈折率もある程度離れている．数百の伝搬モードがあり，ランダムにモード間結合が生じるマルチモードファイバとは異なる．そのため，LMA ゲインファイバの高次モードを抑制することは可能であり，実際に様々な手法が提案されている [76–80]．例えば，高次モードの曲げ損失が基本モードのそれよりも大きいことを利用し，ファイバをコイル状に巻き付けることで損失のモード依存性を誘起して高次モードを抑制する手法がある [78]．その逆に，利得媒質の濃度分布を操作して，利得のモード依存性により高次モードを抑制する手法もある [80]．数ある手法の中でも，ファイバの曲げ損失を利用した高次モード抑制手法が効果的かつ簡易であり，本研究ではこの手法を用いる．

曲げ損失のモード依存性は，簡単には以下のように説明できる．ストレートファイバの屈折率分布はステップインデックス状である．ファイバを曲げたときの屈折率分布は，元々の屈折率分布に曲げ中心から外側に向かって線形に上昇するような屈折率分布が加わったものとして考えることができる [81,82]．屈折率分布の変化に応じて各伝搬モードは外側に移動する．真っ直ぐな川と曲がった川での水の流れをイメージすると，モードの変化が理解しやすい．導波路では高次のモードほど元々の有効屈折率が低く，クラッド側への染み出しが大きいいため，ファイバを曲げた場合に放射モードへ結合しやすい．有効屈折率の高い基本モードほど曲げによる損失が小さく，高次モードほど損失が大きい．図 6.10 は実際に使用する LMA ファイバにおける基本モード (LP_{01}) と最低次の高次モード (LP_{11}) の電界強度分布のシミュレーション結果を示している． xz 平面上でコイル上にファイバを曲げており，ファイバの曲げ半径は 20 cm (図左) と 3 cm (図右) である．曲げ半径 20 cm はストレートなファイバであると考えて良い．曲げ半径 3 cm のとき， LP_{01} モード， LP_{11} モード共に強度分布が外側に移動していることが見てとれる．さらに， LP_{01} モードと比較して LP_{11} モードの方がコア・クラッド境界面近くまで押し出されている．曲げ半径を小さくしていくとこの傾向が顕著になる．

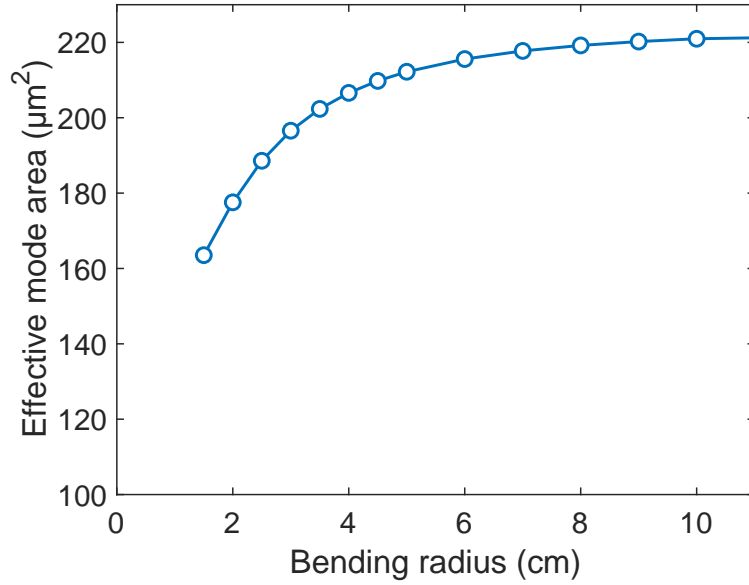


図 6.11: Simulated effective mode area of the fundamental mode as a function of the bending radius of a fiber. The effective mode area of the straight fiber is 224 μm^2 .

ファイバの曲げ損失を求めるには数値解析的手法と半数値解析的手法がある。後者の手法を用いる場合、曲げ損失は次式 [83]

$$2\alpha = \frac{\pi^{1/2} h^2 \exp \left[-\frac{2q^3 (R+a)_{\text{eff}}}{3\beta^2} - 2qa \right]}{2(R+a)_{\text{eff}}^{1/2} q^{3/2} V^2 K_{l-1}(qa) K_{l+1}(qa)} \quad (6.5)$$

で与えられる。ここで、 2α はパワー損失係数、 h 、 q は式 (3.2) で表される横方向波数成分、 V は規格化周波数 (V パラメータ)、 R_{eff} は応力を考慮した曲げ半径 [84]、 K は第 2 種変形ベッセル関数、 l は LP モード次数である。上式は、曲げ損失の式 [85] を LMA ファイバにも適合するように修正したものである。曲げファイバ中の伝搬定数 β を解析的に求めるのは困難であり、数値計算に頼る必要がある。また、曲げ平面に対して振幅の正負が反転した分布を持つモードの損失は、上式では求められない。そのため今回はシミュレーションにより曲げ損失を求める。

ファイバ曲げ半径を小さくしていくと高次モード損失は指数関数的に上昇する。基本モードの曲げ損失も同様に指数関数的に上昇するが、高次モードの損失と比較した基本モードのそれは無視できる程度である。YDFA のファイバ長が約 1 m であることから、基本モードの損失は無視して良い。この場合、曲げ半径を小さくした方がより効果的に高次モードを抑制できると考えるかもしれないが、あまりにも小さな曲げ半径は別の問題を生じさせる。それは有効コア断面積が小さくなること [82, 86] である。図 6.11 はファイバ曲げ半径に対する LP₀₁ モードの有効コア断面積のシミュレーション計算を示している。ストレートファイバでの有効コア断面積は約 224 μm^2 である。曲げ半径を小さくしていくと、有効コア断面積は指数関数的に小さくなる。有効コア断面積の減少はファイバ内の非線形光学効果を増加させる。

曲げ半径に対する高次モードの損失と基本モードの有効コア断面積を数値計算し、両者のバランスを考慮した上で、ファイバの曲げ半径を 3.5 cm とした。この時の LP_{11x} モード、LP_{11y} モードの損失はそれぞれ 0.56 dB/m、0.005 dB/m である。ここで、LP_{11x} モードは図 6.10 に示したものであり、LP_{11y} モードはそれを 90° 回転させたものである。基本モードの有効コア断面積は 202

μm^2 であり、ストレートファイバの有効コア断面積と比較して 90% である。そのためファイバ曲げによる非線形光学係数の変化は小さい。

ゲインファイバの利得と比較して高次モードの損失は小さいが、これでも十分に高次モードを抑制できていると考えられる。まず ASE による高次モードの影響を計算する。利得 G の光増幅器における ASE 出力パワーは、次式

$$P_{\text{ASE}} = Mn_{\text{sp}}hf\Delta f(G - 1) \quad (6.6)$$

で表せる。ここで、 M は伝搬モード数、 n_{sp} は自然放出光係数、 h はプランク係数、 Δf は利得帯域を表す。上式に $M = 12$, $n_{\text{sp}} = 2$, $\lambda = 1030 \text{ nm}$, $\Delta\lambda = 30 \text{ nm}$, $G = 50$ を代入すると、 $P_{\text{ASE}} = 1.9 \text{ mW}$ となる。12 個のモードの内 10 個が高次モードであるが、 P_{ASE} から、ASE の高次モードパワーは出力パワーと比較して 3 桁ほど小さい。また LMA ファイバのある最終段 YDFA で生じた ASE は、その後に増幅されることもないため、やはり ASE による高次モードの影響はないとして良い。

次に基本モードから高次モードへの結合について考える。モード間結合により高次モードへパワーが移行されると、高次モードのパワーは基本モードのパワーと同等になり得る。導波路内での摂動によるモード結合は式 (3.32) で表され、モード間距離が大きい、すなわち 2 つのモードの伝搬定数 β_m , β_n の差が大きいほどモード結合しにくい。具体的には有効屈折率 $n_{\text{eff}} (= \beta/k_0)$ が約 10^{-4} 以上離れていればモード結合は起きないとして良い [87, 88]。一般的に LMA ファイバの基本モードと高次モードの有効屈折率差は 10^{-4} よりも大きく [89–91]、また使用する LMA ファイバについて計算すると、LP₀₁ モードと LP₁₁ モードの有効屈折率差は 5×10^{-4} 以上である。以上から摂動によるモード間結合の影響は小さい。一方で、ファイバの曲率が急激に変化するなどしてモード形状が大きく変わるとモード間結合するので注意が必要である。

6.4.3 特性評価

図 6.12 にマルチモード LD の注入電流に対する YDFL の出力パワーを示す。中心波長は 1038 nm である。注入電流 4 A で出力パワー 940 mW に達している。LMA ゲインファイバ使用前の YDFL は注入電流 6 A で最大 915 mW であり、増幅効率が大幅に向上していることが分かる。さらに注入電流を上げていくと、6 A で 2 W を超える出力パワーを得る。最大出力パワーも 2 倍以上に増加している。使用したマルチモード LD の注入電流の上限は 9 A であり、さらに増幅することも可能であるが、これ以上のパワーは不要である。LMA ゲインファイバの長さは利得の飽和や残留ポンプの光パワーを基に決めた。

図 6.13 は波長 1036 nm において出力パワー 0.9 W, 2.1 W の時のスペクトルを示している。スペクトルの FWHM はそれぞれ 0.48 nm, 0.73 nm である。最終段 YDFA 入射前のスペクトルの FWHM, 0.2 nm と比較すると、SPM によるスペクトル広がりが見られるが、それでも SPM を抑制できていることが分かる。LMA ゲインファイバ導入前のスペクトルと比較すると、同程度の出力パワーの時、スペクトル幅は約 0.12 倍である。さらに、スペクトルに干渉縞が無いことは、シングルモード動作を支持している。

図 6.14 は光パルスの強度自己相関波形を示している。測定時の出力光パワーは 2.1 W であった。強度自己相関波形の FWHM は 9.9 ps であり、ガウシアン波形を仮定すると、パルス時間幅は 7.0 ps である。

出力ビームの強度分布についても測定を行った。コリメータから出射された光を $f = -12 \text{ mm}$ の凹レンズと $f = 100 \text{ mm}$ の凸レンズからなるビームエキスパンダで拡大した後、CCD カメラで

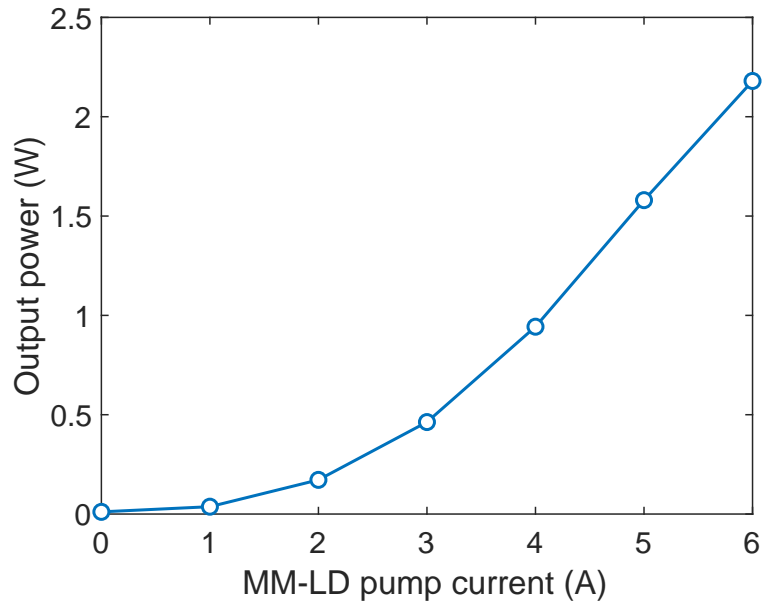


图 6.12: Output power of the high-power YDFL as a function of the MM-LD pumping current.

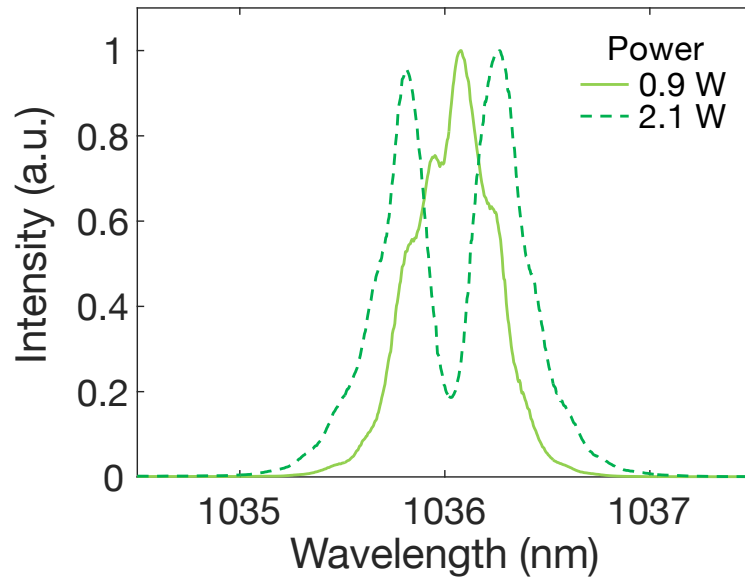


图 6.13: Spectra of the high-power YDFL at 0.9 W and 2.1 W output powers. The spectral FWHMs are 0.48 nm and 0.73 nm, respectively.

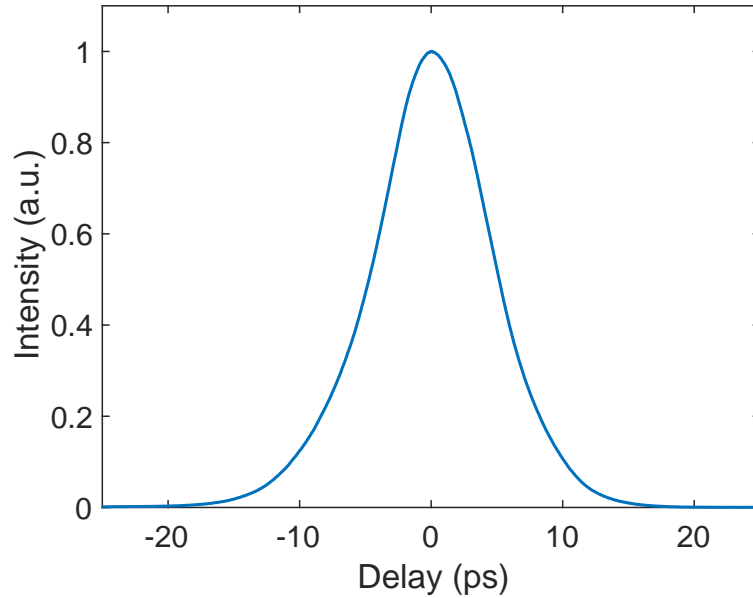


図 6.14: Intensity autocorrelation trace of the high-power YDFL at the 2.1 W average power and the 1036 nm center wavelength. Its FWHM is 9.9 ps.

測定した．2次元の強度分布（図 6.15）から円形に近い光ビームであることが分かる．また，ビーム中心を通り x 軸と y 軸それぞれに沿った1次元の強度分布をプロットしている．灰色の点が測定点であり，青色の線は測定点に対してガウシアンでフィッティングした近似曲線である．1次元の強度分布から，ガウス波形に近い強度分布であることが分かる．ガウス関数の $1/e^2$ ビーム幅は x 軸， y 軸それぞれで 2.26 mm, 2.27 mm であり，ほぼ一致している．LMA ファイバの出射光のビームパターンがガウス波形であることは必ずしもシングルモードであることを保証しない（ビーム品質 M^2 についても同様）[92] が，シングルモード動作を支持する要素である．

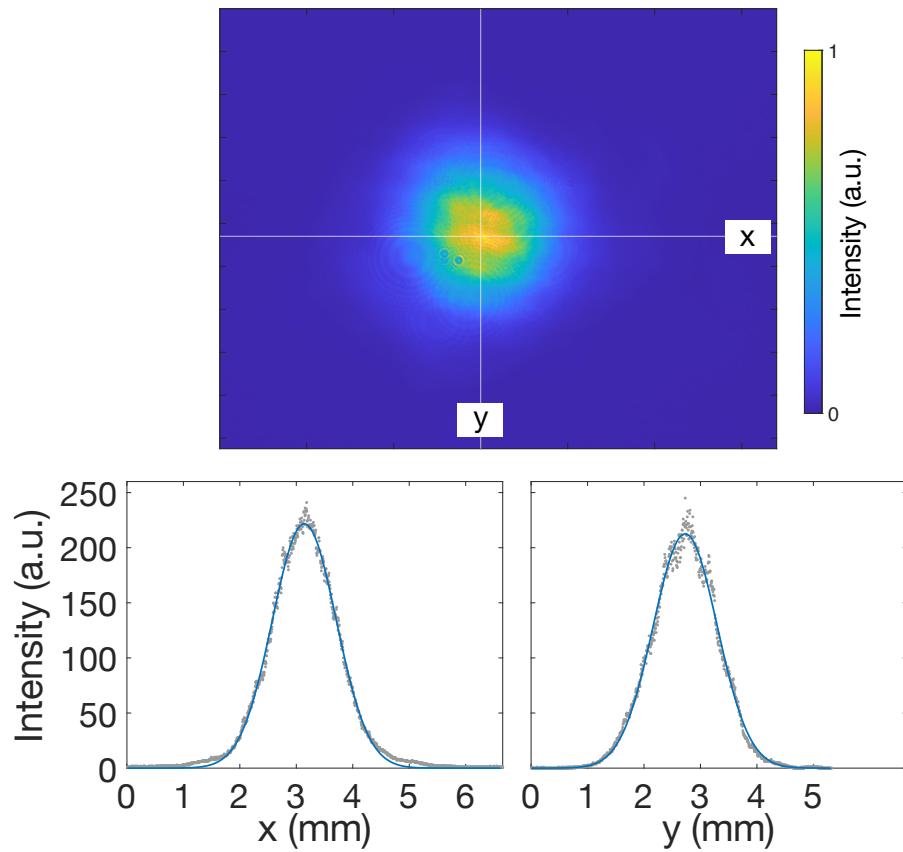


图 6.15: Measured beam profile of the YDFL at a far-field plane when the bending diameter is 7 cm. One dimensional beam profiles are also shown (gray dots) with the Gaussian curve fitting (blue lines). The $1/e^2$ beam widths are 2.26 mm and 2.27 mm at x and y axes, respectively, which are almost the same values.

第7章 ファイバ光パラメトリック発振器の構築と評価

本章では前章で説明した Yb 添加ファイバレーザ（YDFL: Yb-doped fiber laser）をポンプ光として用いたファイバ光パラメトリック発振器（FOPO: fiber optical parametric oscillator）について述べる。FOPO によりチューニング範囲を 90 nm にまで拡大する。

7.1 ファイバ光パラメトリック発振器の概要

図 7.1 は YDFL の出力をポンプ光として用いた FOPO の概要を示している。YDFL は図 6.4 または図 6.9 に示したものであり、まずはシングルモードファイバを使用した YDFL（図 6.4）を利用する。その後、FOPO の高出力化を実現するために LMA ファイバを利用した YDFL（図 6.9）を利用する。

YDFL から出射されたポンプ光パルスは半波長板（HWP1: half-wave plate）とダイクロイックミラー（DM: dichroic mirror）を通過する。HWP1 によりポンプ光の偏光状態を PCF の基底軸に合わせ、焦点距離 10 mm のアクロマティックレンズにより PCF のコア部分に集光する。このときのファイバへの結合効率は約 70% である。使用した PCF のゼロ分散波長（ZDW: zero-dispersion wavelength）は 1051 nm であり、YDFL のチューニング範囲（1020–1050 nm）に最適である。その理由は、ZDW 付近の正常分散領域においては FWM の位相整合波長がポンプ光波長に応じて急峻に変化し、広いチューニング範囲を確保できるからである [93]。パラメトリック利得と出力光パルスのスペクトル品質のバランスを考慮して、PCF の長さは 49 cm である。PCF 内での FWM を介して、ポンプ光パルスは高周波側にシフトしたシグナル光と低周波側にシフトしたアイドラ光に変換される。ポンプ光だけが存在する場合、シグナル光とアイドラ光は量子ノイズから生成される（自発 FWM）。図 7.2 は自発 FWM により生成されたシグナル光のスペクトルを示している。

PCF を通過した後で残留ポンプ光とアイドラ光はショートパスフィルタ（SPF: short-pass filter）により遮断し、シグナル光だけを透過させる。シグナル光の光パワーの大部分は偏光ビームスプリッタ（PBS: polarizing beam splitter）により出力パルス光として取り出す。PBS での出力結合効率は、HWP2 を回転させることにより変化させる。PBS を透過したシグナル光は共振器内に留まり、自由空間中でパラボリックミラーと遅延ステージからなる遅延線を伝搬する。遅延線により FOPO の光路長をモード同期ファイバレーザの共振器長に揃えることで、ポンプ光の繰り返し周波数と FOPO のそれを一致させる。その後シグナル光は HWP3（回折格子の回折効率を最大化するために使用）を通過し、波長フィルタへと入射する。

波長フィルタはガルバノスキャナ、4-f 光学系、反射型回折格子（Thorlabs, GR25-0608）で構成される。フィルタの透過率は約 65% であり、主に回折格子の回折効率により決まる。ガルバノスキャナを回転させることにより、波長フィルタを透過波長を変化させる。波長フィルタのバンド幅とチューニング範囲を考慮して、回折格子の溝密度やレンズペアを選択した。回折格子の溝周期 600 lines/mm、ビーム径 5.2 mm ($1/e^2$)、入射角、波長を考慮すると、波長フィルタのスペ

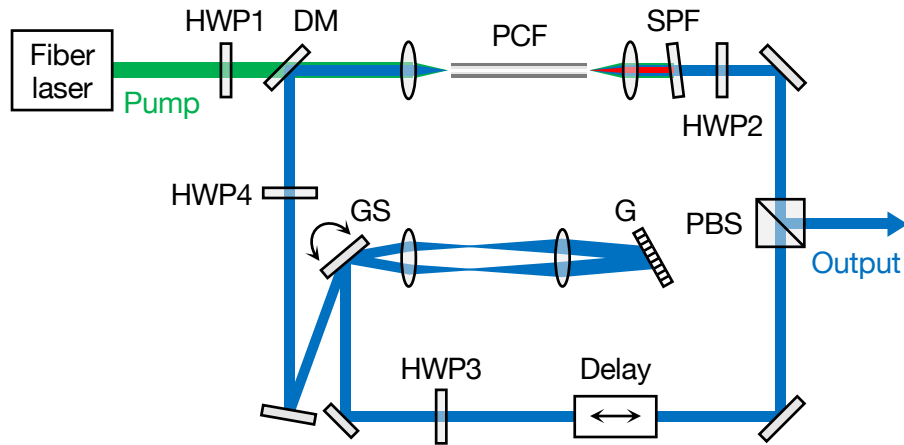


图 7.1: Schematic of the FOPO. HWP: half-wave plate, PBS: polarizing beam splitter, SPF: short-pass filter, DM: dichroic mirror, GS: galvanometric scanner, G: grating, PCF: photonic crystal fiber.

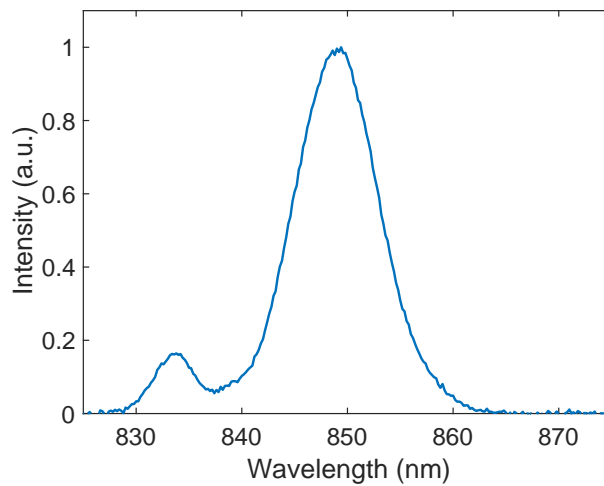


图 7.2: Spectrum of spontaneous FWM

クトル FWHM は 0.2 nm である（後で導出）。光ビームがレンズでケラれないガルバノスキャナ回転角の測定結果と波長チューニング時の回折角の計算結果から、波長フィルタで扱えるチューニング範囲は 200 nm 以上である。

波長フィルタを透過し、HWP4 を通過したシグナル光は DM で反射され PCF へ入射する。シグナル光の偏光状態は、HWP4 によりポンプ光の偏光状態に揃えられる。PCF 内では、シグナル光パルスと次のポンプ光パルスが時間・空間的にオーバーラップし、FWM を介してシグナル光がコヒーレントに増幅される。この過程を何度も繰り返すことにより、シグナル光が安定して発振する。出力パルスの繰り返し周波数はポンプパルスのそれと一致しており、波長をチューニングしても一定である。

波長フィルタのスペクトル FWHM について時間領域で説明する。 $1/e^2$ ビーム径 D 、角周波数 ω_0 の光ビームが d Littrow 配置の回折格子に入射角 θ_i で入射した場合（図 7.3）、そのインパルス応答は

$$E(t) = \exp\left(-\frac{t^2}{T^2}\right) \sum_n \delta(t - n\tau) \quad (7.1)$$

と表せる。ここで、 $T = \tau D / (2\Lambda_G \cos \theta_i)$ 、 $\tau = 2\pi m / \omega_0$ 、 m は回折次数、 Λ_G は回折格子の溝間隔である。 τ は隣合う溝を反射または透過した光の時間間隔である。スペクトル幅を求める際に重要となる包絡線の成分について考える。包絡線の項を $g(t) = \exp(-t^2/T^2)$ と置いてフーリエ変換すると

$$\begin{aligned} \tilde{G}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} g(t) \exp(i\omega t) dt \\ &= T\sqrt{\pi} \exp\left(-\frac{T^2}{4}\omega^2\right) \end{aligned} \quad (7.2)$$

となる。 $\tilde{G}(\omega)$ の絶対値の 2 乗をとるとインパルス応答のスペクトル幅が求められる。 T を代入するとスペクトルの FWHM

$$\Delta\omega_{\text{FWHM}} = 2\sqrt{2 \ln 2} \left(\frac{\cos \theta_i \Lambda_G \omega_0}{m\pi D} \right) \quad (7.3)$$

を得る。上式に $\theta_i = 14.8^\circ$ 、 $\Lambda = 1/600 \text{ mm}$ 、 $\lambda_0 = 850 \text{ nm}$ 、 $m = 1$ 、 $D = 5.2 \text{ mm}$ を代入すると、波長フィルタのバンド幅は $\Delta\lambda_{\text{FWHM}} = 0.2 \text{ nm}$ となる。ここで、波長を周波数に変換した上で計算していることに注意されたい。回折格子波長フィルタを通過した光のスペクトルは、入射前の光スペクトルと回折格子のフィルタ特性との積となる。

7.2 光パルスの特性評価

FOPO を評価するためにまず、出力光パルスのスペクトルと強度自己相関波形を測定した。図 7.4(a),(c) に示すように、スペクトル幅は 850.0 nm で 1.1 nm、890.2 nm で 1.0 nm である。スペクトル FWHM が 0.2 nm に設計されている波長フィルタのバンド幅と比較すると、実験により測定されたスペクトル幅は広い。これは、PCF 内において高パワーのポンプ光パルスの相互位相変調 (XPM: cross-phase modulation) により、シグナル光パルスのスペクトル幅が広がったためである。それでも、 $\sim 1 \text{ nm}$ のスペクトル幅は SRS 顕微法で高いスペクトル分解能を実現するのに許容できる狭さである。加えて、波長フィルタを用いない場合の FOPO パルス光のスペクトル幅は 850 nm 付近で 27.4 nm に達しており（付録 A）、波長フィルタの有無による比較から、波長フィルタが効果的に動作していることが分かる。

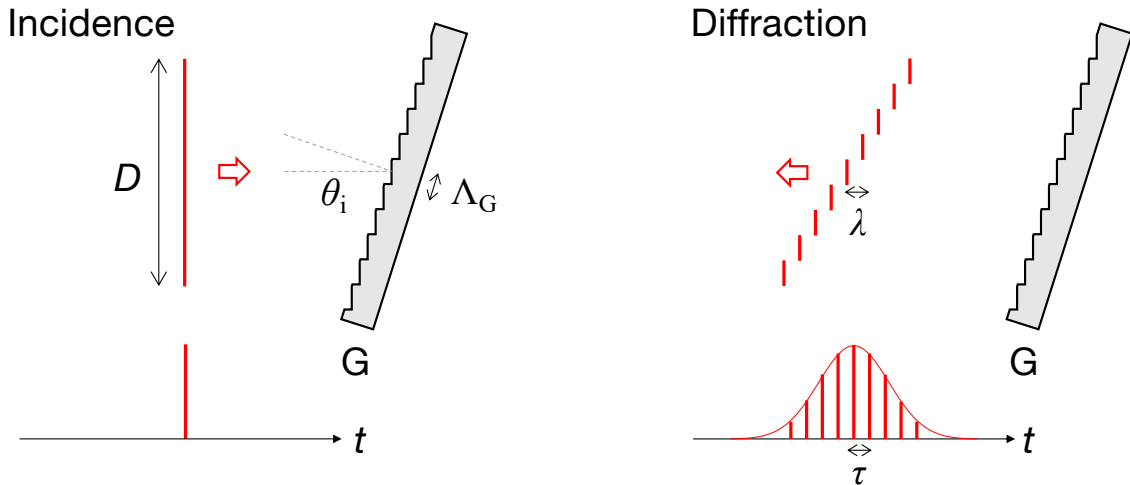


図 7.3: Impulse response of a reflection grating in a Littrow configuration. D : $1/e^2$ beam diameter, θ_i : angle of incidence, Λ_G : grating spacing, λ : wavelength.

図 7.4(b),(d) はそれぞれ 850.0 nm, 890.2 nm での強度自己相関波形を示している. 各波長における強度自己相関波形の FWHM は 1.4 ps と 2.4 ps であり, ガウシアン強度波形を仮定すると, パルス時間幅はそれぞれ 1.0 ps と 1.7 ps に相当する. スペクトル幅とパルス時間幅から時間帯域幅積 (TBP: time-bandwidth product) が計算できる. 850.0 nm での TBP は 0.45 であり, これはほぼフーリエ限界のパルスである. 890.2 nm での TBP は 0.62 であり, フーリエ限界ガウシアンパルスの TBP (0.44) の 1.4 倍である. 出力パルス光は PCF 内で多少の非線形光学効果を受けているが, それでも TBP は低い. フーリエ限界に近い TBP は今回提案した FOPO 内での群遅延分散 (GDD: group delay dispersion) が小さいことによるものであり, 特に回折格子を基にした波長フィルタの利点の一つである. 分散フィルタリングを用いる場合, その動作原理から GDD が大きく TBP も大きい [43,44].

7.3 波長チューニング特性

次に, FOPO の波長をチューニングした際の実出力パルス光の特性を測定した. 波長をチューニングするために, 2つのガルバノスキャナ, 2つの HWP (HWP2, HWP4), および遅延ステージを調整した. 2つのガルバノスキャナは, ファイバレーザと FOPO の波長フィルタ内にそれぞれ 1つずつある. HWP2 と HWP4 は, FOPO の出力光パワーが最大になるように調整した. この 2つの HWP の調整は, 複屈折光学素子によって引き起こされる伝搬光の偏光状態の変化を補正するものである. 自由空間中に構成されている現状の共振器をファイバ共振器に置き換えることにより, これらの HWP を排除することが可能である. また励起ファイバレーザは 1020–1050 nm の範囲で波長チューニングが可能であるが, 本実験では 1034–1048 nm の範囲のみでチューニングを行った. 使用した波長範囲内では十分な FWM 利得により光パラメトリック発振が得られた.

図 7.5 は FOPO の波長をチューニングした際の実出力パルス光のスペクトル, スペクトル幅, 光パワー, および遅延ステージ移動量を示している. 図 7.5(a) に示すように, チューニング範囲は 832 nm から 922 nm の 90 nm (1170 cm^{-1}) である. 図 7.5(b) に示すようにスペクトル幅はチューニング範囲の大部分で約 1 nm であり, $>908 \text{ nm}$ では約 1.7 nm である. スペクトル幅の違いは FWM の位相整合条件の波長依存性によるものである. 具体的には, 正常分散領域においてポン

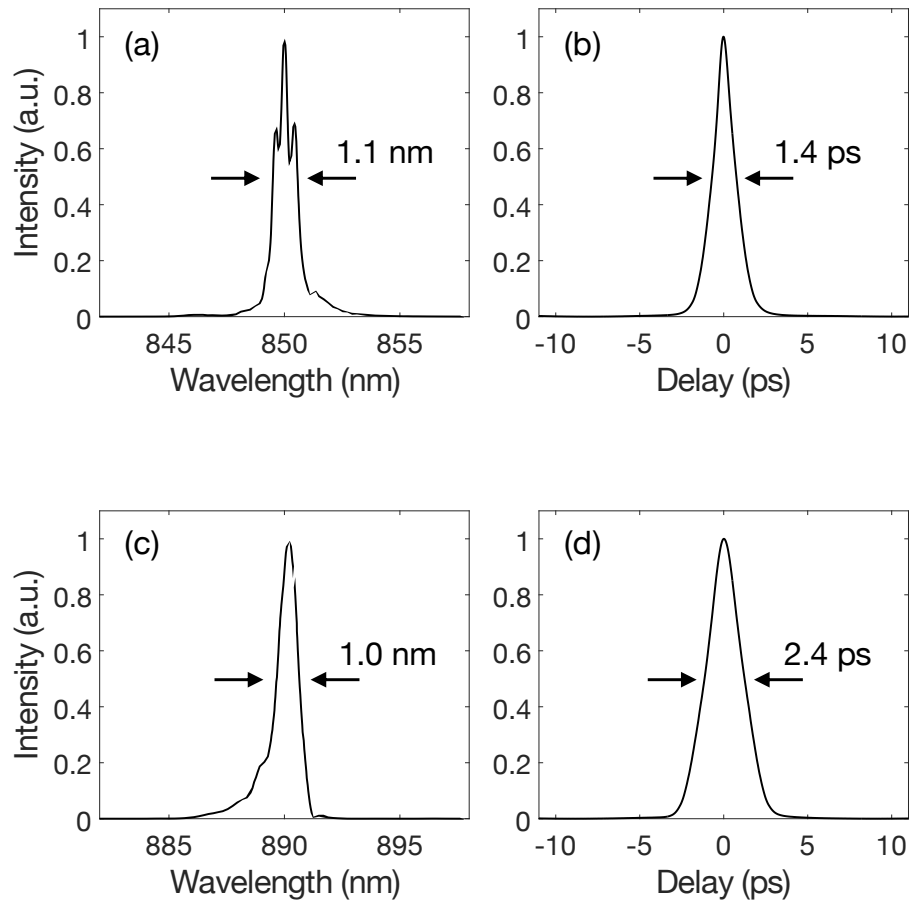


图 7.4: Spectra and intensity autocorrelation traces of the FOPO at 850.0 nm and 890.2 nm. (a) Spectrum and (b) autocorrelation trace at 850.0 nm. (c) Spectrum and (d) autocorrelation trace at 890.2 nm.

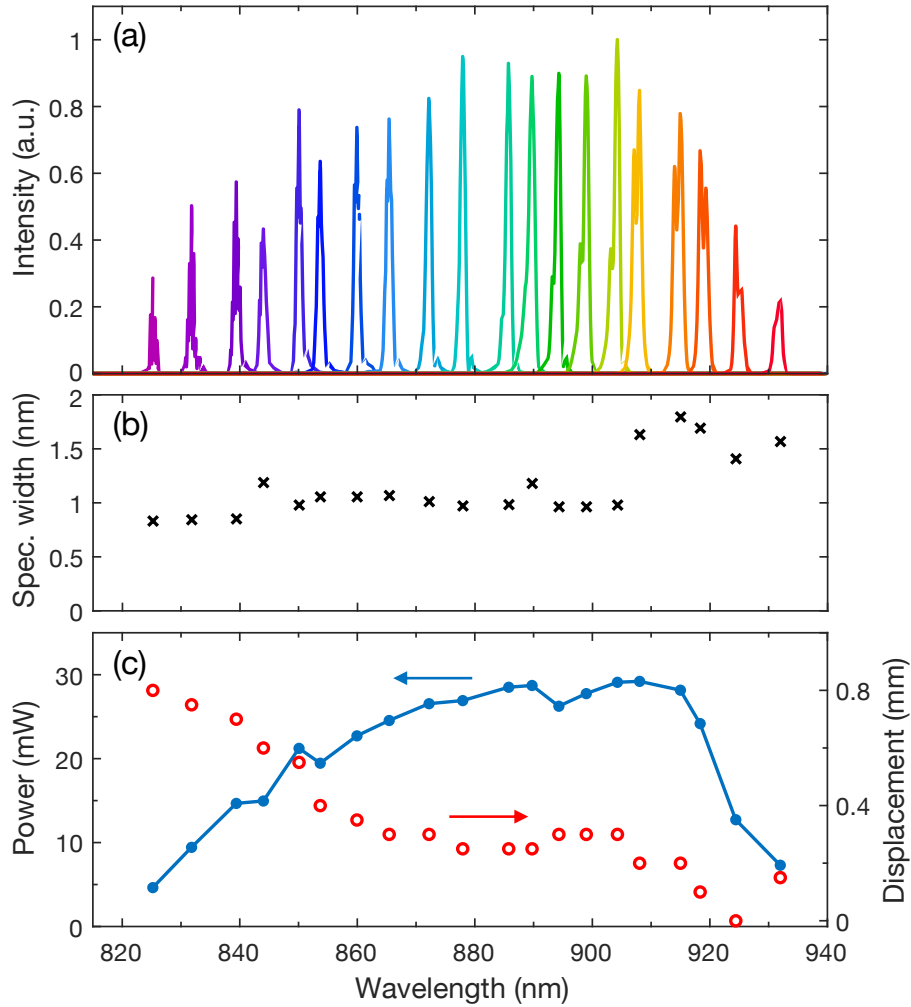


図 7.5: Characteristics of the output pulses when tuning the wavelength of the FOPO. (a) Spectrum, (b) spectral width, and (c) power (left) and displacement of the delay stage (right).

プ光の波長が ZDW に近づくにつれて、位相整合条件を満たすシグナル光の波長は長波長側にシフトし、さらに FWM の利得バンド幅は広がる [93]。そのため、PCF 内のポンプ光による XPM でシグナル光のスペクトル幅が拡大した際に、短波長領域と比較して長波長領域においては、シグナル光の広がったスペクトル部分が FWM により増幅されやすくなる。図 7.5(c) は FOPO の平均出力光パワーを示しており、最大光パワーは 30 mW である。さらに、GDD の小さな FOPO の構成により、チューニング範囲全体にわたる遅延ステージの移動量はわずか 0.8 mm である。ここで GDD 全体に占める支配的な要因は、PCF 内での GDD である。遅延ステージの短い移動量は、現状の FOPO に導入されている手動ステージをピエゾステージなどの自動ステージに置き換えることにより高速な波長チューニングが実現できることを示している。

図 7.6 はポンプ光の波長に対する FOPO のシグナル光の波長（青色 X）と共振器へのフィードバックを遮断して得られた自発 FWM によるシグナル光の波長（灰色 O）を示している。実線は使用した PCF の分散曲線を基に導出された FWM の理論的な位相整合条件である。理論曲線と実験結果の特徴がよく一致していることが見てとれる。両者の間にあるポンプ光波長数 nm のオフセットは、(1) SPM によって歪んだ励起パルス光の中心波長とピーク波長の違いによるもの、(2) 偏波保持 PCF の各基底軸における分散の不確かさによるものであると考えられる。また図 7.6 に

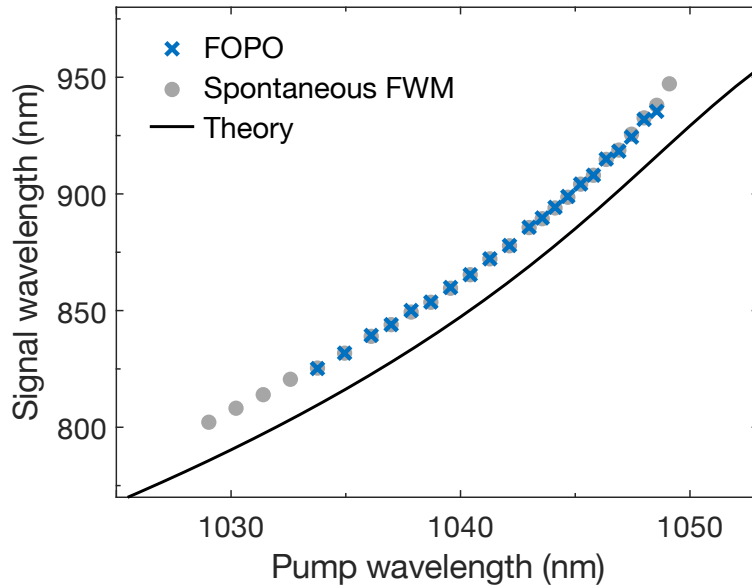


図 7.6: Experimentally measured wavelength of the signal pulses of the FOPO (blue cross) and the spontaneous FWM (gray circle) as functions of the pump wavelength. The solid line is the theoretical phase-matching curve.

示した理論曲線は、FOPO や励起パルス光を最適化することにより、FOPO のチューニング範囲をさらに拡大できることを示唆している。

7.4 ポンプ光高出力化後の波長チューニング特性

ここまでに説明した FOPO のポンプ光には、図 6.4 に示した高出力化前の YDFL を使用している。FWM のエネルギー変換効率が低く、FOPO の最大パワーは 30 mW に留まっている。そこで、LMA ファイバにより高出力化した YDFL (図 6.9) を利用して、FOPO の高出力化を図った。

FOPO の概要は図 7.1 の通りである。アライメントの簡略化や光の偏光状態を安定させるために、適宜、光学素子の位置を変更し、YDFL の残留ポンプ光を除去するために、YDFL の出力後にロングパスフィルタを配置した。ポンプ光の PCF への結合パワーは約 650 mW である。波長チューニングの手順は先程説明したものと同様である。

図 7.1(a),(b) は FOPO の波長をチューニングした際の実出力パワーとスペクトルを示している。出力パワーは最大 57 mW である。これは高出力化前の FOPO の出力パワー 30 mW (図 7.5) の約 2 倍であり、FOPO の高出力化を実現できている。波長チューニング範囲は 798.7 nm から 885.8 nm の 87.1 nm (1230 cm^{-1}) であり、 1170 cm^{-1} から 1230 cm^{-1} へと向上している。PCF への結合パワーを上昇させることにより、目標とする 100 mW 以上まで FOPO をさらに高出力化することも可能である。

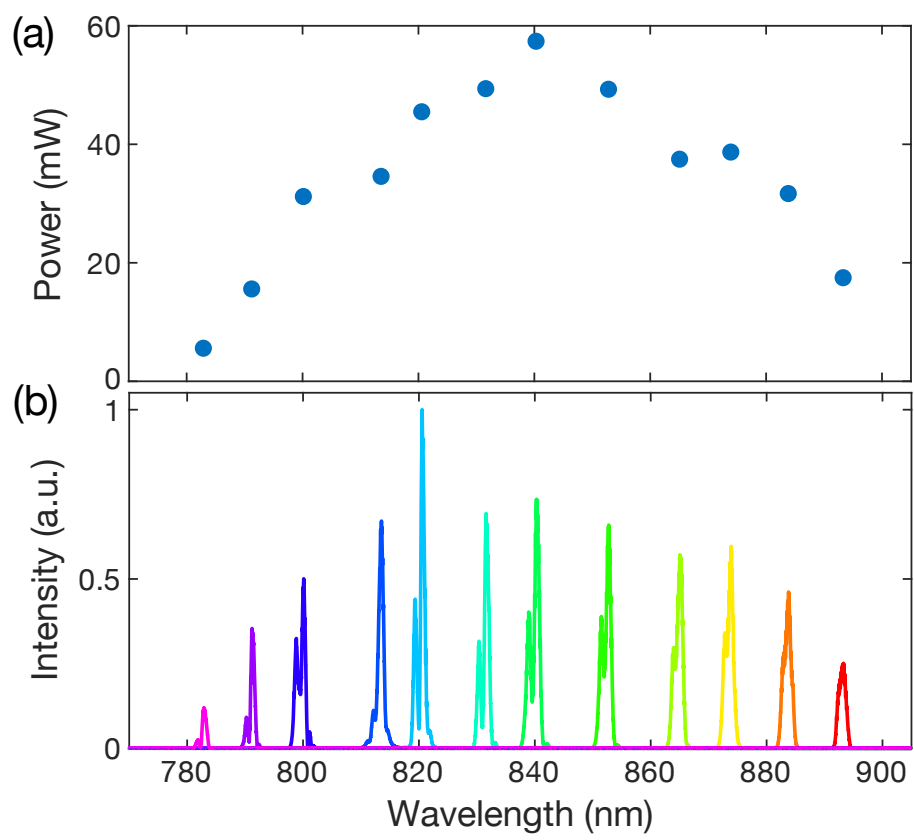


图 7.7: (a) Power and (b) spectrum when tuning the wavelength of the high-power FOPO.

第8章 総括

本修士論文ではまず、SRS 顕微法が新たな生体イメージング手法として期待されている背景とこれまでの成果、さらに現状の課題について述べた。SRS 顕微法の更なる発展には波長可変レーザー光源の性能向上が不可欠であり、提案されている様々な構成の中で FOPO が最も有望であることを述べた。本研究の目的であるマルチバンド SRS イメージングの実現に向けて、現状の FOPO が抱えている課題についても説明した。

その上で波長フィルタに回折格子を用いた FOPO を提案した。このような FOPO はこれまでにほとんど報告されていないことに加え、そのチューニング範囲やイメージング実証も限定的である。一方で、波長チューニングの際に光パルスの繰り返し周波数が一定であり、低ノイズレーザーとの同期が可能であるため、高感度な SRS イメージングへの応用に適している。

FOPO による広帯域波長チューニングを実証するために、上述の FOPO とポンプ光として使用する YDFL を作製した。YDFL はモード同期ファイバレーザー、スペクトル拡張と波長フィルタ、YDFA の 3 つの領域から構成される。モード同期ファイバレーザーは繰り返し周波数 38.6 MHz の光パルスを生成する。YDFL のチューニング範囲は 1020–1050 nm、平均出力パワーは 900 mW 以上を達成した。この YDFL により広帯域に亘る FWM の励起を可能にした。高出力化のために LMA ファイバを使用した YDFL も作製し、出力パワーを 2 W 以上にまで向上させるとともに、ファイバ内での非線形光学効果の抑制にも成功した。また、ファイバ内の固有モードの状態やモード間結合について詳細に検討することにより、LMA ファイバ使用時においてシングルモード動作を得た。

波長可変 YDFL と、ガルバノスキャナ、4-f 光学系、回折格子からなる共振器内波長フィルタとを用いることにより、繰り返し周波数を一定に保ちながら広帯域にチューニング可能な FOPO を作製した。この FOPO では、ピコ秒光パルスを発振させることに成功し、チューニング範囲は 90 nm (1200 cm^{-1}) を実現した。これは角度分散フィルタを用いた FOPO でこれまでに報告されているチューニング範囲 30 nm を大きく上回る結果である。また、YDFL と FOPO の光路長を一致させるために必要な遅延ステージの移動量は、全チューニング範囲においてわずか 0.8 mm であり、高速化が可能であることを示した。FOPO の高出力化にも取り組み、パワースペクトル密度の高い YDFL を使用することで、FOPO 出力パワー 57 mW を達成した。

本研究で報告した FOPO が高感度かつ広帯域な SRS 顕微法の実現に貢献するものと期待している。

付録 A 波長フィルタなしでの発振スペクトル

図 8.1 は波長フィルタがない場合の FOPO の発振スペクトルである。つまり、FOPO の波長フィルタ内にある回折格子をミラーに替えた場合の FOPO 出力光のスペクトルである。スペクトル幅は 27.4 nm であり、波長フィルタがある場合と比較して 1 桁以上広い。また発振も非常に不安定である。本結果から FOPO 内の波長フィルタは、スペクトルの狭窄化と発振安定化において重要な役割を果たしていることが分かる。

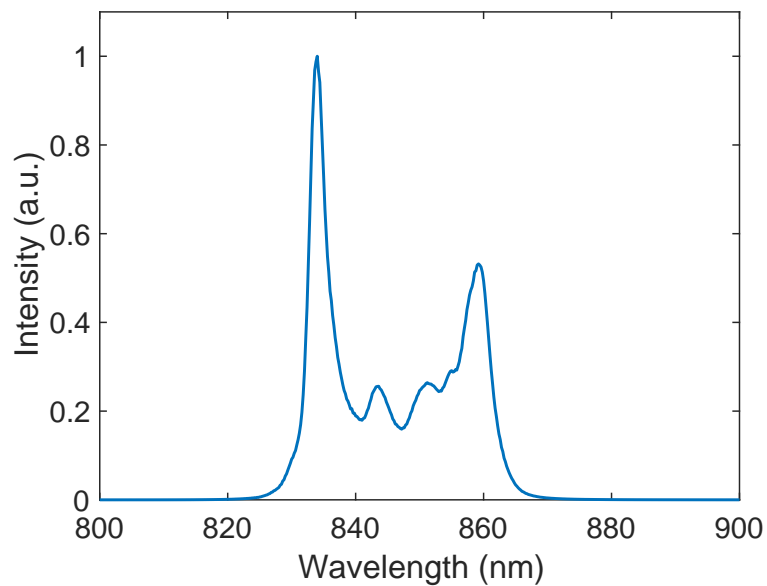


図 8.1: Spectrum of the FOPO when its spectral filter is eliminated. The spectral FWHM is 27.4 nm.

付録B パルス時間幅と四光波混合利得の関係

図 8.2 はポンプ光パルスの時間幅を変えた場合の、自発 FWM により生成されたシグナル光のピーク強度を示している。横軸がシグナル光の波長であり、縦軸がそのピーク強度である。ポンプ光の波長をチューニングして、各ポンプ光波長において生成されたシグナル光のピーク波長と強度をプロットしている。パルス時間幅は 3 ps, 4.5 ps, 6 ps, 8 ps の 4 つである。YDFL 内にある波長フィルタの透過バンド幅を変更することでポンプ光パルス時間幅を変えている。SPM によるスペクトル広がりの変化はパルス時間幅の変化の 2 乗に比例することに注意されたい。

ポンプ光パルス時間幅が短いほど利得の最大値は高い。これは、パルスの時間幅に反比例してパルスのピークパワーが増加するためである。一方でポンプ光パルスの時間幅が長いほど、FWM の利得は平坦である。これは、ポンプ光パルスの時間幅が長いと、フォークオフによる影響が大きくなる短波長側においても、長い相互作用長が得られるためである。また、時間幅が長いと SPM によるスペクトル広がりも小さく、FWM 利得帯域の狭い短波長側においても利得が得られる。

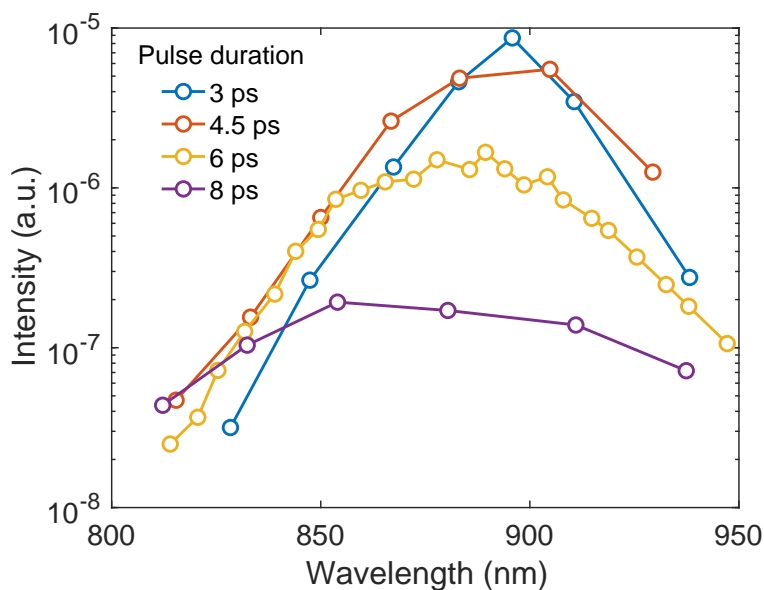


図 8.2: Measured peak intensity of the generated signal pulses by spontaneous FWM. The pulse duration is changed from 3 ps to 8 ps.

付録C ファイバ端面の損傷

図 8.3 はダメージを受けた PCF の端面の SEM 画像である。一部明るくなっているのはチャージアップによるものである。多数のエアホールが並ぶ中心にエアホールがない箇所があるが、この部分が PCF のコアである。よく見ると他の領域と比較して、断面がザラついているのが分かる。これは恐らくファイバ端面がダメージを受けているためであり、このような状態の PCF を使用すると、PCF への結合効率や FWM の信号強度が大幅に低下する。

石英ガラス端面での短パルスレーザによるダメージについてはいくつか報告がある [94,95]。PCF へ入射する光パルスの平均パワー 1 W，繰り返し周波数 40 MHz，集光スポット径 5 μm としてフルエンスを計算すると、その値はパルス時間幅 7 ps における損傷閾値より 1 桁以上低い。ただし、端面の汚染状況などにより損傷閾値は大幅に低下する。ファイバ端面の損傷は長期安定性を損なうため、ファイバキャップを着ける、シングルモードファイバと融着する、といった対策が必要である。

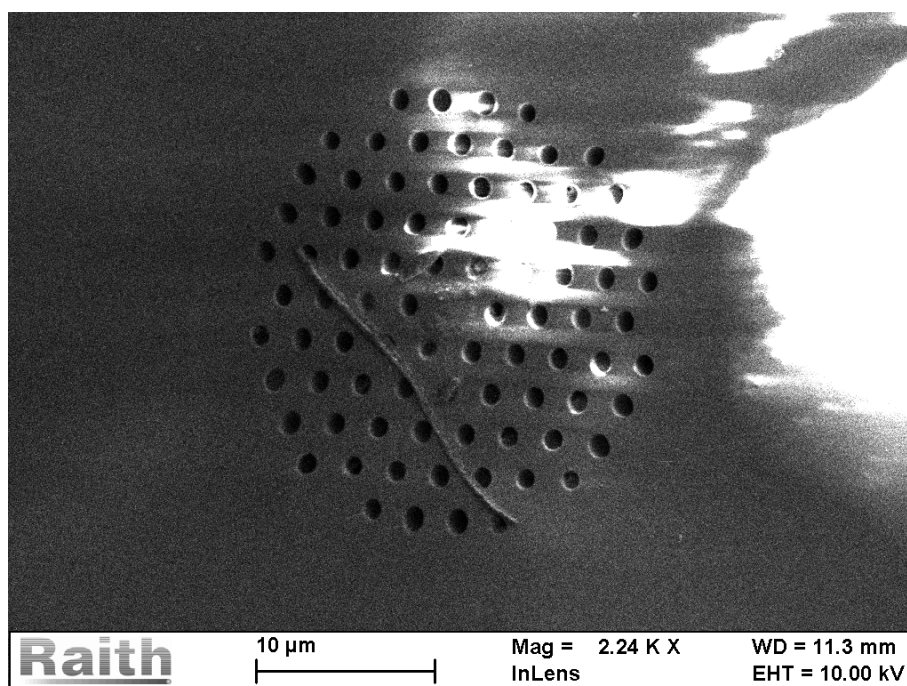


図 8.3: SEM image of the damaged PCF facet.

参考文献

- [1] A. M. Valm, S. Cohen, W. R. Legant, J. Melunis, U. Hershberg, E. Wait, A. R. Cohen, M. W. Davidson, E. Betzig, and J. Lippincott-Schwartz, “Applying systems-level spectral imaging and analysis to reveal the organelle interactome,” *Nature*, vol. 546, no. 7656, pp. 162–167, 2017.
- [2] K. M. Dean and A. E. Palmer, “Advances in fluorescence labeling strategies for dynamic cellular imaging,” *Nat. Chem. Biol.*, vol. 10, no. 7, pp. 512–523, 2014.
- [3] M. Bates, B. Huang, G. T. Dempsey, and X. Zhuang, “Multicolor super-resolution imaging with photo-switchable fluorescent probes,” *Science*, vol. 317, no. 5845, pp. 1749–1753, 2007.
- [4] Y. Shen, F. Hu, and W. Min, “Raman imaging of small biomolecules,” *Annu. Rev. Biophys.*, vol. 48, pp. 347–369, 2019.
- [5] O. Shimomura, F. H. Johnson, and Y. Saiga, “Extraction, purification and properties of aequorin, a bioluminescent protein from the luminous hydromedusan, *Aequorea*,” *J. Cell. Comp. Physiol.*, vol. 59, no. 3, pp. 223–239, 1962.
- [6] A. Zumbusch, G. R. Holtom, and X. S. Xie, “Three-dimensional vibrational imaging by coherent anti-Stokes Raman scattering,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, no. 20, pp. 4142–4145, 1999.
- [7] C. L. Evans and X. S. Xie, “Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy: chemical imaging for biology and medicine,” *Annu. Rev. Anal. Chem.*, vol. 1, pp. 883–909, 2008.
- [8] C. W. Freudiger, W. Min, B. G. Saar, S. Lu, G. R. Holtom, C. He, J. C. Tsai, J. X. Kang, and X. S. Xie, “Label-free biomedical imaging with high sensitivity by stimulated Raman scattering microscopy,” *Science*, vol. 322, no. 5909, pp. 1857–1861, 2008.
- [9] P. Nandakumar, A. Kovalev, and A. Volkmer, “Vibrational imaging based on stimulated Raman scattering microscopy,” *New J. Phys.*, vol. 11, p. 033026, 2009.
- [10] Y. Ozeki, F. Dake, S. Kajiyama, K. Fukui, and K. Itoh, “Analysis and experimental assessment of the sensitivity of stimulated Raman scattering microscopy,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 5, pp. 3651–3658, 2009.
- [11] J.-X. Cheng and X. S. Xie, “Vibrational spectroscopic imaging of living systems: an emerging platform for biology and medicine,” *Science*, vol. 350, no. 6264, p. aaa8870, 2015.
- [12] Y. Ozeki, T. Asai, J. Shou, and H. Yoshimi, “Multicolor stimulated Raman scattering microscopy with fast wavelength-tunable Yb fiber laser,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 25, p. 7100211, 2019.

- [13] F. Hu, L. Shi, and W. Min, “Biological imaging of chemical bonds by stimulated Raman scattering microscopy,” *Nat. Methods*, vol. 16, no. 9, pp. 830–842, 2019.
- [14] A. H. Hill and D. Fu, “Cellular imaging using stimulated Raman scattering microscopy,” *Anal. Chem.*, vol. 91, no. 15, pp. 9333–9342, 2019.
- [15] Y. Ozeki, H. Kano, and N. Fukutake, *Bioimaging: imaging by light and electromagnetics in medicine and biology*, CRC Press, , 2020.
- [16] J.-X. Cheng, W. Min, Y. Ozeki, and D. Polli, *Stimulated Raman scattering microscopy: techniques and applications*, Elsevier, , 2021.
- [17] C. V. Raman and K. S. Krishnan, “A new type of secondary radiation,” *Nature*, vol. 121, no. 3048, pp. 501–502, 1928.
- [18] L. Shi, C. Zheng, Y. Shen, Z. Chen, E. S. Silveira, L. Zhang, M. Wei, C. Liu, C. de Sena-Tomas, K. Targoff, and W. Min, “Optical imaging of metabolic dynamics in animals,” *Nat. Commun.*, vol. 9, no. 1, pp. 1–17, 2018.
- [19] F. Hu, C. Zeng, R. Long, Y. Miao, L. Wei, Q. Xu, and W. Min, “Supermultiplexed optical imaging and barcoding with engineered polyynes,” *Nat. Methods*, vol. 15, no. 3, pp. 194–200, 2018.
- [20] H. Yamakoshi, K. Dodo, M. Okada, J. Ando, A. Palonpon, K. Fujita, S. Kawata, and M. Sodeoka, “Imaging of edu, an alkyne-tagged cell proliferation probe, by Raman microscopy,” *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 133, no. 16, pp. 6102–6105, 2011.
- [21] D. Berry, E. Mader, T. K. Lee, D. Woebken, Y. Wang, D. Zhu, M. Palatinszky, A. Schintlmeister, M. C. Schmid, B. T. Hanson, N. Shterzer, I. Mizrahi, I. Rauch, T. Decker, T. Bocklitz, J. Popp, C. M. Gibson, P. W. Fowler, W. E. Huang, and M. Wagner, “Tracking heavy water (D₂O) incorporation for identifying and sorting active microbial cells,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, vol. 112, no. 2, pp. E194–E203, 2015.
- [22] L. Zhang, L. Shi, Y. Shen, Y. Miao, M. Wei, N. Qian, Y. Liu, and W. Min, “Spectral tracing of deuterium for imaging glucose metabolism,” *Nat. Biomed. Eng.*, vol. 3, no. 5, pp. 402–413, 2019.
- [23] L. Wei, Z. Chen, L. Shi, R. Long, A. V. Anzalone, L. Zhang, F. Hu, R. Yuste, V. W. Cornish, and W. Min, “Super-multiplex vibrational imaging,” *Nature*, vol. 544, no. 7651, pp. 465–470, 2017.
- [24] J. Shou, R. Oda, F. Hu, K. Karasawa, M. Nuriya, M. Yasui, B. Shiramizu, W. Min, and Y. Ozeki, “Super-multiplex imaging of cellular dynamics and heterogeneity by integrated stimulated Raman and fluorescence microscopy,” *iScience*, vol. 24, no. 8, p. 102832, 2021.
- [25] C. L. Evans, E. O. Potma, M. Puoris’haag, D. Côté, C. P. Lin, and X. S. Xie, “Chemical imaging of tissue *in vivo* with video-rate coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, vol. 102, no. 46, pp. 16807–16812, 2005.

- [26] F. Ganikhanov, S. Carrasco, X. S. Xie, M. Katz, W. Seitz, and D. Kopf, “Broadly tunable dual-wavelength light source for coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 31, no. 9, pp. 1292–1294, 2006.
- [27] K. Kieu, B. G. Saar, G. R. Holtom, X. S. Xie, and F. W. Wise, “High-power picosecond fiber source for coherent Raman microscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 13, pp. 2051–2053, 2009.
- [28] Y. Ozeki, W. Umemura, K. Sumimura, N. Nishizawa, K. Fukui, and K. Itoh, “Stimulated Raman hyperspectral imaging based on spectral filtering of broadband fiber laser pulses,” *Opt. Lett.*, vol. 37, no. 3, pp. 431–433, 2012.
- [29] S. Bégin, B. Burgoyne, V. Mercier, A. Villeneuve, R. Vallée, and D. Côté, “Coherent anti-Stokes Raman scattering hyperspectral tissue imaging with a wavelength-swept system,” *Biomed. Opt. Express*, vol. 2, no. 5, pp. 1296–1306, 2011.
- [30] C. W. Freudiger, W. Yang, G. R. Holtom, N. Peyghambarian, X. S. Xie, and K. Q. Kieu, “Stimulated Raman scattering microscopy with a robust fibre laser source,” *Nat. Photonics*, vol. 8, pp. 153–159, 2014.
- [31] H. Tu, Y. Liu, D. Turchinovich, M. Marjanovic, J. K. Lyngsø, J. Lægsgaard, E. J. Chaney, Y. Zhao, S. You, W. L. Wilson, B. Xu, M. Dantus, and S. A. Boppart, “Stain-free histopathology by programmable supercontinuum pulses,” *Nat. Photonics*, vol. 10, pp. 534–540, 2016.
- [32] C. Riek, C. Kocher, P. Zirak, C. Kölbl, P. Fimpel, A. Leitenstorfer, A. Zumbusch, and D. Brida, “Stimulated Raman scattering microscopy by nyquist modulation of a two-branch ultrafast fiber source,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 16, pp. 3731–3734, 2016.
- [33] M.-C. Chan, S.-H. Chia, T.-M. Liu, T.-H. Tsai, M.-C. Ho, A. A. Ivanov, A. M. Zheltikov, J.-Y. Liu, H.-L. Liu, and C.-K. Sun, “1.2- to 2.2- μm tunable Raman soliton source based on a Cr:forsterite laser and a photonic-crystal fiber,” *IEEE Photo. Technol. Lett.*, vol. 20, no. 11, pp. 900–902, 2008.
- [34] G. Krauss, T. Hanke, A. Sell, D. Träutlein, A. Leitenstorfer, R. Selm, M. Winterhalder, and A. Zumbusch, “Compact coherent anti-Stokes Raman scattering microscope based on a picosecond two-color Er: fiber laser system,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 18, pp. 2847–2849, 2009.
- [35] B. Li, M. Wang, K. Charan, M.-j. Li, and C. Xu, “Investigation of the long wavelength limit of soliton self-frequency shift in a silica fiber,” *Opt. Express*, vol. 26, no. 15, pp. 19637–19647, 2018.
- [36] J. E. Sharping, M. Fiorentino, A. Coker, P. Kumar, and R. S. Windeler, “Four-wave mixing in microstructure fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 26, no. 14, pp. 1048–1050, 2001.
- [37] L. Lavoute, J. C. Knight, P. Dupriez, and W. J. Wadsworth, “High power red and near-IR generation using four wave mixing in all integrated fibre laser systems,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 15, pp. 16193–16205, 2010.

- [38] M. Baumgartl, M. Chemnitz, C. Jauregui, T. Meyer, B. Dietzek, J. Popp, J. Limpert, and A. Tünnermann, “All-fiber laser source for CARS microscopy based on fiber optical parametric frequency conversion,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 4, pp. 4484–4493, 2012.
- [39] J. E. Sharping, “Microstructure fiber based optical parametric oscillators,” *J. Light. Technol.*, vol. 26, no. 14, pp. 2184–2191, 2008.
- [40] D. Fu, G. Holtom, C. Freudiger, X. Zhang, and X. S. Xie, “Hyperspectral imaging with stimulated Raman scattering by chirped femtosecond lasers,” *J. Phys. Chem. B*, vol. 117, no. 16, pp. 4634–4640, 2013.
- [41] C.-S. Liao, K.-C. Huang, W. Hong, A. J. Chen, C. Karanja, P. Wang, G. Eakins, and J.-X. Cheng, “Stimulated Raman spectroscopic imaging by microsecond delay-line tuning,” *Optica*, vol. 3, no. 12, pp. 1377–1380, 2016.
- [42] M. Brinkmann, S. Janfrüchte, T. Hellwig, S. Dobner, and C. Fallnich, “Electronically and rapidly tunable fiber-integrable optical parametric oscillator for nonlinear microscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 10, pp. 2193–2196, 2016.
- [43] M. Brinkmann, A. Fast, T. Hellwig, I. Pence, C. L. Evans, and C. Fallnich, “Portable all-fiber dual-output widely tunable light source for coherent Raman imaging,” *Biomed. Opt. Express*, vol. 10, no. 9, pp. 4437–4449, 2019.
- [44] T. Gottschall, T. Meyer, M. Schmitt, J. Popp, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Four-wave-mixing-based optical parametric oscillator delivering energetic, tunable, chirped femtosecond pulses for non-linear biomedical applications,” *Opt. Express*, vol. 23, no. 18, pp. 23968–23977, 2015.
- [45] K. Yang, J. Jiang, Z. Guo, Q. Hao, and H. Zeng, “Tunable femtosecond laser from 965 to 1025 nm in fiber optical parametric oscillator,” *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 30, no. 7, pp. 607–610, 2018.
- [46] E. S. Lamb, S. Lefrancois, M. Ji, W. J. Wadsworth, X. S. Xie, and F. W. Wise, “Fiber optical parametric oscillator for coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 38, no. 20, pp. 4154–4157, 2013.
- [47] X. Audier, S. Heuke, P. Volz, I. Rimke, and H. Rigneault, “Noise in stimulated Raman scattering measurement: from basics to practice,” *APL Photonics*, vol. 5, no. 1, p. 011101, 2020.
- [48] T. Würthwein, K. Wallmeier, M. Brinkmann, T. Hellwig, N. M. Lüpken, N. S. Lemberger, and C. Fallnich, “Multi-color stimulated Raman scattering with a frame-to-frame wavelength-tunable fiber-based light source,” *Biomed. Opt. Express*, vol. 12, no. 10, pp. 6228–6236, 2021.
- [49] H. Ni, P. Lin, Y. Zhu, M. Zhang, Y. Tan, Y. Zhan, Z. Wang, and J.-X. Cheng, “Multiwindow SRS imaging using a rapid widely tunable fiber laser,” *Anal. Chem.*, vol. 93, no. 47, pp. 15703–15711, 2021.

- [50] K. Wallmeier, T. Würthwein, N. Lemberger, M. Brinkmann, T. Hellwig, and C. Fallnich, “Frequency modulation stimulated Raman scattering scheme for real-time background correction with a single light source,” *Biomed. Opt. Express*, vol. 14, no. 1, pp. 315–325, 2023.
- [51] G. P. Agrawal, *Nonlinear fiber optics*, Elsevier, six edition, 2019.
- [52] A. Yariv and P. Yeh, *Photonics: optical electronics in modern communications*, Oxford university press, six edition, 2007. 光エレクトロニクス 基礎編・応用編 丸善出版.
- [53] H. Rigneault and P. Berto, “Tutorial: coherent Raman light matter interaction processes,” *APL Photonics*, vol. 3, no. 9, p. 091101, 2018.
- [54] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic press, fourth edition, 2020.
- [55] J. E. Sharping, M. Fiorentino, P. Kumar, and R. S. Windeler, “Optical parametric oscillator based on four-wave mixing in microstructure fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 27, no. 19, pp. 1675–1677, 2002.
- [56] M. Baumgartl, T. Gottschall, J. Abreu-Afonso, A. Díez, T. Meyer, B. Dietzek, M. Rothhardt, J. Popp, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Alignment-free, all-spliced fiber laser source for CARS microscopy based on four-wave-mixing,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 19, pp. 21010–21018, 2012.
- [57] T. Gottschall, M. Baumgartl, A. Sagnier, J. Rothhardt, C. Jauregui, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Fiber-based source for multiplex-CARS microscopy based on degenerate four-wave mixing,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 11, pp. 12004–12013, 2012.
- [58] S. Lefrancois, D. Fu, G. R. Holtom, L. Kong, W. J. Wadsworth, P. Schneider, R. Herda, A. Zach, X. S. Xie, and F. W. Wise, “Fiber four-wave mixing source for coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 37, no. 10, pp. 1652–1654, 2012.
- [59] M. Chemnitz, M. Baumgartl, T. Meyer, C. Jauregui, B. Dietzek, J. Popp, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Widely tuneable fiber optical parametric amplifier for coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 24, pp. 26583–26595, 2012.
- [60] T. Gottschall, T. Meyer, M. Baumgartl, B. Dietzek, J. Popp, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Fiber-based optical parametric oscillator for high resolution coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscopy,” *Opt. Express*, vol. 22, no. 18, pp. 21921–21928, 2014.
- [61] T. A. Birks, J. C. Knight, and P. S. J. Russell, “Endlessly single-mode photonic crystal fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 13, pp. 961–963, 1997.
- [62] O. Okhotnikov, A. Grudinin, and M. Pessa, “Ultra-fast fibre laser systems based on sesam technology: new horizons and applications,” *New J. Phys.*, vol. 6, no. 1, p. 177, 2004.
- [63] N. Nishizawa, Y. Seno, K. Sumimura, Y. Sakakibara, E. Itoga, H. Kataura, and K. Itoh, “All-polarization-maintaining Er-doped ultrashort-pulse fiber laser using carbon nanotube saturable absorber,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 13, pp. 9429–9435, 2008.

- [64] E. J. Lee, S. Y. Choi, H. Jeong, N. H. Park, W. Yim, M. H. Kim, J.-K. Park, S. Son, S. Bae, S. J. Kim, K. Lee, Y. H. Ahn, K. J. Ahn, J.-Y. Park, F. Rotermund, and D.-I. Yeom, “Active control of all-fibre graphene devices with electrical gating,” *Nat. Commun.*, vol. 6, no. 1, pp. 1–6, 2015.
- [65] M. Hofer, M. E. Fermann, F. Haberl, M. Ober, and A. Schmidt, “Mode locking with cross-phase and self-phase modulation,” *Opt. Lett.*, vol. 16, no. 7, pp. 502–504, 1991.
- [66] M. E. Fermann, F. Haberl, M. Hofer, and H. Hochreiter, “Nonlinear amplifying loop mirror,” *Opt. Lett.*, vol. 15, no. 13, pp. 752–754, 1990.
- [67] I. N. Duling, “All-fiber ring soliton laser mode locked with a nonlinear mirror,” *Opt. Lett.*, vol. 16, no. 8, pp. 539–541, 1991.
- [68] N. Kuse, J. Jiang, C.-C. Lee, T. R. Schibli, and M. E. Fermann, “All polarization-maintaining Er fiber-based optical frequency combs with nonlinear amplifying loop mirror,” *Opt. Express*, vol. 24, no. 3, pp. 3095–3102, 2016.
- [69] A. S. Mayer, W. Grosinger, J. Fellingner, G. Winkler, L. W. Perner, S. Droste, S. H. Salman, C. Li, C. M. Heyl, I. Hartl, and O. H. Heckl, “Flexible all-PM NALM Yb: fiber laser design for frequency comb applications: operation regimes and their noise properties,” *Opt. Express*, vol. 28, no. 13, pp. 18946–18968, 2020.
- [70] J. Limpert, F. Roser, T. Schreiber, and A. Tunnermann, “High-power ultrafast fiber laser systems,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 12, no. 2, pp. 233–244, 2006.
- [71] D. J. Richardson, J. Nilsson, and W. A. Clarkson, “High power fiber lasers: current status and future perspectives,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 27, no. 11, pp. B63–B92, 2010.
- [72] M. N. Zervas and C. A. Codemard, “High power fiber lasers: a review,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 20, no. 5, pp. 219–241, 2014.
- [73] D. Kouznetsov, J. V. Moloney, and E. M. Wright, “Efficiency of pump absorption in double-clad fiber amplifiers. I. Fiber with circular symmetry,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 18, no. 6, pp. 743–749, 2001.
- [74] D. Kouznetsov and J. V. Moloney, “Efficiency of pump absorption in double-clad fiber amplifiers. II. Broken circular symmetry,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, no. 6, pp. 1259–1263, 2002.
- [75] D. Marcuse, “Loss analysis of single-mode fiber splices,” *Bell Syst. Tech. J.*, vol. 56, no. 5, pp. 703–718, 1977.
- [76] D. Taverner, D. Richardson, L. Dong, J. Caplen, K. Williams, and R. Penty, “158- μ J pulses from a single-transverse-mode, large-mode-area erbium-doped fiber amplifier,” *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 6, pp. 378–380, 1997.
- [77] M. E. Fermann, “Single-mode excitation of multimode fibers with ultrashort pulses,” *Opt. Lett.*, vol. 23, no. 1, pp. 52–54, 1998.

- [78] J. P. Koplow, D. A. Kliner, and L. Goldberg, “Single-mode operation of a coiled multimode fiber amplifier,” *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 7, pp. 442–444, 2000.
- [79] H. Offerhaus, N. Broderick, D. Richardson, R. Sammut, J. Caplen, and L. Dong, “High-energy single-transverse-mode Q-switched fiber laser based on a multimode large-mode-area erbium-doped fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 23, no. 21, pp. 1683–1685, 1998.
- [80] J. R. Marciante, “Gain filtering for single-spatial-mode operation of large-mode-area fiber amplifiers,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 15, no. 1, pp. 30–36, 2009.
- [81] J. M. Fini, “Bend-resistant design of conventional and microstructure fibers with very large mode area,” *Opt. Express*, vol. 14, no. 1, pp. 69–81, 2006.
- [82] J. M. Fini, “Intuitive modeling of bend distortion in large-mode-area fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 12, pp. 1632–1634, 2007.
- [83] R. T. Schermer and J. H. Cole, “Improved bend loss formula verified for optical fiber by simulation and experiment,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 43, no. 10, pp. 899–909, 2007.
- [84] A. Sharma, A.-H. Al-Ani, and S. Halme, “Constant-curvature loss in monomode fibers: an experimental investigation,” *Appl. Opt.*, vol. 23, no. 19, pp. 3297–3301, 1984.
- [85] D. Marcuse, “Curvature loss formula for optical fibers,” *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 66, no. 3, pp. 216–220, 1976.
- [86] R. T. Schermer, “Mode scalability in bent optical fibers,” *Opt. Express*, vol. 15, no. 24, pp. 15674–15701, 2007.
- [87] F. Yaman, N. Bai, B. Zhu, T. Wang, and G. Li, “Long distance transmission in few-mode fibers,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 12, pp. 13250–13257, 2010.
- [88] Y. Yang, Q. Mo, S. Fu, B. Liu, M. Tang, and D. Liu, “Panda type elliptical core few-mode fiber,” *APL Photonics*, vol. 4, no. 2, p. 022901, 2019.
- [89] J. Liang, Q. Mo, S. Fu, M. Tang, P. Shum, and D. Liu, “Design and fabrication of elliptical-core few-mode fiber for MIMO-less data transmission,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 13, pp. 3058–3061, 2016.
- [90] Q. Mo, Z. Hong, D. Yu, S. Fu, L. Wang, K. Oh, M. Tang, and D. Liu, “All-fiber spatial rotation manipulation for radially asymmetric modes,” *Sci. Rep.*, vol. 7, no. 1, pp. 1–9, 2017.
- [91] Y. H. Kim and K. Y. Song, “Distributed analysis on the spatial mode structure in a panda-type few-mode fiber by brillouin dynamic gratings,” *J. Light. Technol.*, vol. 39, no. 2, pp. 612–619, 2020.
- [92] S. Wielandy, “Implications of higher-order mode content in large mode area fibers with good beam quality,” *Opt. Express*, vol. 15, no. 23, pp. 15402–15409, 2007.

- [93] W. H. Reeves, D. V. Skryabin, F. Biancalana, J. C. Knight, P. S. J. Russell, F. G. Omenetto, A. Efimov, and A. J. Taylor, "Transformation and control of ultra-short pulses in dispersion-engineered photonic crystal fibres," *Nature*, vol. 424, pp. 511–515, 2003.
- [94] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou, "Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, no. 19, p. 3883, 1999.
- [95] A. V. Smith and B. T. Do, "Bulk and surface laser damage of silica by picosecond and nanosecond pulses at 1064 nm," *Appl. Opt.*, vol. 47, no. 26, pp. 4812–4832, 2008.

発表文献

* の付いたものは本研究内容と特に関係が深いものである。

学術雑誌

1. **S. Takahashi**[†], T. Fukui[†], R. Tanomura, K. Komatsu, Y. Taguchi, Y. Ozeki, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Silicon photonic optical phased array with integrated phase monitors,” IEICE Trans. Electron. (submitted)
- 2*. **S. Takahashi**, J. Shou, G. Dai, and Y. Ozeki, “Fiber optical parametric oscillator with wide tuning range and fixed repetition rate,” IEEE Photon. Technol. Lett., vol. 34, no. 23, pp. 1293–1296, 2022.
3. T. Mizuguchi, C. T. Knight, M. Asanuma, M. Goto, M. Ninomiya, **S. Takahashi**, H. Akaboshi, M. Egawa, and Y. Ozeki, “Three-dimensional analysis of water dynamics in human skin by stimulated Raman scattering,” J. Phys. Chem. B. (submitted)
4. Z. Xu, K. Oguchi, Y. Taguchi, **S. Takahashi**, Y. Sano, T. Mizuguchi, K. Katoh, and Y. Ozeki, “Quantum-enhanced stimulated Raman scattering microscopy in a high-power regime,” Opt. Lett., vol 47, no. 22, pp. 5829–5832, 2022.
5. Y. Taguchi, K. Oguchi, Z. Xu, D. Cheon, **S. Takahashi**, Y. Sano, F. Harashima, and Y. Ozeki, “Phase locking of squeezed vacuum generated by a single-pass optical parametric amplifier,” Opt. Express, vol. 30, no. 5, pp. 8002–8014, 2022.
6. T. Fukui, R. Tanomura, K. Komatsu, D. Yamashita, **S. Takahashi**, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Non-redundant optical phased array,” Optica, vol. 8, no. 10, pp. 1350–1358, 2021.

学会発表

- 1*. ○**S. Takahashi**, J. Shou, G. Dai, and Y. Ozeki, “Widely Tunable and Repetition-Rate-Fixed Fiber Optical Parametric Oscillator,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO’23), San Jose, May 2023. (査読中)
2. ○**S. Takahashi**, T. Fukui, R. Tanomura, Y. Taguchi, Y. Ozeki, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Characterization of silicon optical phased array with on-chip phase monitors,” Photonics in Switching and Computing (PSC’22), MD2-2, Toyama, Jul. 2022. (口頭発表)

- 3*. ○高橋俊, 小関泰之, “広帯域波長可変ファイバ光パラメトリック発振器の高出力化,” 第70回応用物理学会春季学術講演会, 18a-A501-4, 東京, Mar. 2023. (口頭発表)
- 4*. ○高橋俊, 寿景文, 戴高宇, 小関泰之, “広帯域波長可変ピコ秒ファイバ光パラメトリック発振器の構築,” 第83回応用物理学会秋季学術講演会, 22p-C206-8, 仙台, Sep. 2022. (口頭発表)
5. ○高橋俊, 福井太一郎, 田之村亮汰, 田口富隆, 小関泰之, 中野義昭, 種村拓夫, “位相モニタ集積光フェーズドアレイ素子の検証,” 第82回応用物理学会秋季学術講演会, 11p-N207-12, オンライン, Sep. 2021. (口頭発表)
6. ○Z. Xu, K. Oguchi, Y. Taguchi, Y. Miyawaki, Y. Sano, **S. Takahashi**, F. Harashima, D. Cheon, K. Katoh, and Y. Ozeki, “Stimulated Raman scattering imaging with quantum-enhanced balanced detection,” The 15th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-PR’22), CThP7G-03, Sapporo, Jul./Aug. 2022. (口頭発表)
7. ○T. Fukui, R. Tanomura, K. Komatsu, D. Yamashita, **S. Takahashi**, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Ultra-high-resolution beam steering using non-redundant optical phased array,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO’22), STh4J.2, San Jose, May 2022. (口頭発表)
8. ○Y. Taguchi, K. Oguchi, Z. Xu, D. Cheon, **S. Takahashi**, Y. Sano, F. Harashima, and Y. Ozeki, “Phase Locking of Pulsed Squeezed Light Generated by a Single-Pass Optical Parametric Amplifier,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO’22), JTu3A.23, San Jose, May 2022. (ポスター発表)
9. ○Z. Xu, K. Oguchi, Y. Taguchi, **S. Takahashi**, Y. Sano, T. Mizuguchi, K. Katoh, and Y. Ozeki, “Quantum-enhanced stimulated Raman scattering imaging in a high-power regime,” 第83回応用物理学会秋季学術講演会, 22a-C302-4, 仙台, Sep. 2022. (口頭発表)
10. ○田口富隆, 小口研一, 徐自聡, チョンドンウク, 高橋俊, 佐野由季, 原島郁弥, 小関泰之, “シングルパス光パラメトリック増幅で生成されたパルススクイズド真空場の位相ロック,” 第69回応用物理学会春季学術講演会, 25p-D214-10, 相模原, Mar. 2022. (口頭発表)
11. ○福井太一郎, 田之村亮汰, 小松憲人, 山下大之, 高橋俊, 中野義昭, 種村拓夫, “非冗長光フェーズドアレイによる高分解能光掃引,” 第69回応用物理学会春季学術講演会, 22p-E303-1, 相模原, Mar. 2022. (招待講演)
12. ○福井太一郎, 田之村亮汰, 小松憲人, 山下大之, 高橋俊, 中野義昭, 種村拓夫, “非冗長光フェーズドアレイによる超高分解能光偏向：提案と実証,” 第82回応用物理学会秋季学術講演会, 11p-N207-13, オンライン, Sep. 2021. (口頭発表)

受賞

1. Best Paper Award, Photonics in Switching and Computing (PSC’22), 2022.

謝辞

本研究を行うにあたり、多くの方々からご支援およびご協力を賜りました。この場を借りて皆様に感謝申し上げます。

まず、指導教員である小関泰之教授に感謝申し上げます。先生にはあらゆる面においてご支援とご協力を賜りました。ミーティングなどで議論を交わして頂いただけでなく、実験の現場にも参加して頂き、アドバイスを下さいました。物理に対する深い理解から私自身も理解のヒントを得ることができ、現場での一挙手一投足から実験の進め方を学ぶことができました。論文や原稿の執筆などを通して、研究におけるストーリーとメッセージの重要性についてもご指導頂き、常に拠り所となっております。

種村拓夫准教授に感謝申し上げます。修士課程2年間に亘り度々、卒業論文の研究内容についての論文や原稿の添削をして頂きました。論文の構成や実験手法と結果の重要度の差異など、多くのご指導を頂いたことに感謝しております。また学会発表も提案して下さい、非常に貴重な機会を得ることができました。これらはそのまま、本研究における原稿作成や研究発表に生かされております。

研究室運営においては、加藤先生はじめ秘書の馬場さん、水野さん、そして学術専門員の田村さんのご尽力に感謝申し上げます。インターネット回線やサーバー環境の整備、出張や物品購入の際の事務処理などでサポート頂き、我々学生は気兼ねなく研究に取り組むことができました。

本研究の遂行は小関研究室の皆様のご協力によるものです。まず小関研究室OBであるShouさん、Daiさんに感謝申し上げます。本研究の成果は御二方の研究の上に成り立っております。Shouさんからはクリティカルな質問や意見、アドバイスを度々頂きました。また随所に見られる光学系の工夫や研究アイデアには感嘆するばかりです。Daiさんには手厚い指導を賜りました。ファイバレーザー作製の初期段階においてファイバの融着方法すら分からないなか、付きっきりでサポートして頂きました。小口さん、Xuさん、田口さんには実験手法や装置の使い方、研究で使用する物理について丁寧に教えて頂きました。佐野さんとは同期として気兼ねなく議論することができました。Sprattさん、水口さん、赤星君、似内君、Maさん、OBの浅沼さんにも日々ご協力を頂きました。皆様に感謝申し上げます。

中野種村研究室の皆様にも大変お世話になりました。特に福井さんには学部4年次に続き修士課程2年間においても研究のアドバイスを頂いたことに感謝しております。田之村さん、小松さん、相馬さんにも度々声を掛けて頂きました。宮野君、鈴木君とは同期として楽しく刺激的な時間をともに過ごすことができました。

ここに挙げることのできなかった方々も含め、関係した全ての皆様のご支援とご協力により、ここまで研究を進めることができました。改めて深く感謝申し上げます。最後に、常に私を支えてくださる家族への感謝の意を表して結びとさせていただきます。