

技術報告

光ファイバーにおける四光子混合への誘導ラマン散乱効果

坪井 泰住

京都産業大学工学部情報通信工学科 〒603 京都市北区上賀茂本山

(1994年6月20日受付, 1995年5月8日受理)

Effect of the Stimulated Raman Scattering on the Four-Photon Mixing in Optical Fibers

Taiju Tsuboi

Faculty of Engineering, Kyoto Sangyo University, Kamigamo, Kita-ku, Kyoto 603

(Received June 20, 1994; Accepted May 8, 1995)

When 532 nm light of the second harmonic wave from a pulsed Nd: YAG laser was fed into a multi-mode fiber, we observed several pairs of the Stokes and anti-Stokes radiations which have different LP modes but same frequency shift from the pumping light. These are generated by the four-photon mixing. This is confirmed by numerical check for the phase matching among the Stokes, anti-Stokes and pumping beams. As the shift increases, it was observed that the Stokes enhances, while the anti-Stokes becomes weak and disappears in a shift region over 250 cm^{-1} where the Raman gain becomes large. This is concluded to be caused by a competition between the four-photon mixing process and the stimulated Raman scattering process, resulting in the amplification of the Stokes by the stimulated Raman scattering while the absorption of the anti-Stokes by the inverse Raman effect.

1. はじめに

レーザー光が入射されたガラスファイバーにおいて現れる非線形光学現象として、これまでに、誘導ラマン散乱、誘導ブリュアン散乱、四光子混合、光カー効果、多光子吸収などが観測されている¹⁻⁹⁾。これらの現象を利用して、波長可変レーザーの製作、光スイッチや光シャッターや光変調器などのデバイスの開発、光増幅、光ソリトンの発生がなされている。四光子混合は、発振振動数の up-conversion やパラメトリック光増幅などに利用されている。

ファイバーのコアの屈折率が入射光の強度によって変わるのが光カー効果である。屈折率の変化は光パルスの圧縮や光ソリトンの形成や光強度変調などを可能にする。光カー効果が導波路の屈折率の非線形な変化のために入射光の波形などの性質を変えるのに対し、誘導散乱や四光子混合の非線形光学効果は入射光の波長と異なる光を発生させる。入射光が強くなるとガラスファイバー

の光学フォノンとの非線形な相互作用により、入射光の波長より長波長側に光学フォノンのエネルギーに相当する分だけシフトしたコヒーレントで方向性をもった光の発生がみられるのが、誘導ラマン散乱である。シフト量が 1 cm^{-1} 以下と誘導ラマン散乱の場合よりはるかに小さいストークス光の発生が音響フォノンとの相互作用によって引き起こされるのが、誘導ブリュアン散乱である。

一方、振動数 ν_p の入射光フォトンが2個衝突して振動数 ν_s ($\nu_s < \nu_p$) のストークス光と振動数 ν_a ($\nu_a > \nu_p$) の反ストークス光を発生するのが、四光子混合である。このとき $2\nu_p = \nu_s + \nu_a$ のエネルギー保存則が成り立つので、 ν_s ストークス光と ν_a 反ストークス光が入射光の低エネルギー側と高エネルギー側に同じエネルギー分だけ(すなわち、同じ振動数分だけ)シフトし、そして互いに同じ強度で対になって現れる。この場合シフト量は、入射光、ストークス光、反ストークス光の間の運動量保存則によって、すなわちファイバーの材料分散および構

造分散を考慮した位相整合条件によって決まる⁷⁾.

光ファイバーでの四光子混合効果によって発生する Stokes 光と反 Stokes 光が、その振動数シフト (Stokes 光は ν_s のシフト量, 反 Stokes 光は $\nu_a - \nu_p$ のシフト量. ただし, $\nu_p - \nu_s = \nu_a - \nu_p$) の値がラマン利得の大きい 100 cm^{-1} から 600 cm^{-1} の範囲にあれば, ラマン・Stokes 光のシフト量とほぼ同じとなる. この場合, ラマン利得が関与して Stokes 光強度を増大させ反 Stokes 光強度を減少させると考えられている⁷⁾. 実際, ファイバーからの出射光をプリズムによって分散させファイバーの中で作られた LP モード模様をスクリーンに映し出して, このことが定性的に確かめられている⁸⁾. しかし, スペクトルを使つての定量的な観測は行われていない.

本稿では, このような四光子混合と誘導ラマン散乱との競合による効果がどのように現れるかについて述べる.

2. ラマン利得とラマン吸収

一般に, ラマン散乱により, 分子振動または格子振動の振動数だけシフトした Stokes 光と反 Stokes 光が放射される. 反 Stokes 光は, Fig. 1(a) に示すように基底準位より振動エネルギーが高い準位からの励起に関係しているのので, そこに占める分子の数が少ないような低温では, その強度は Stokes 光より小さい. ラ

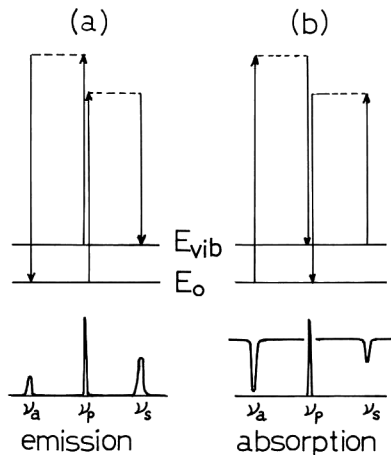


Fig. 1 Processes leading to (a) emission of Stokes (ν_s) and anti-Stokes (ν_a) radiation by normal Raman effect, and leading to (b) absorption of Stokes and anti-Stokes radiation by the inverse Raman effect. ν_p : frequency of pump radiation, E_{vib} : vibrational energy state, E_0 : ground state.

マン散乱では, Fig. 1(a) のような Stokes・反 Stokes 光の放射に至るラマン効果のほかに, 逆ラマン効果と呼ばれるラマン光の吸収が起こる. には, ラマン散乱で放射された反 Stokes 光によって基底準位にある電子が励起され入射光と同じ波長の光を放射する場合 (Fig. 1(b) の左) と, Stokes 光によって振動エネルギーが高い準位から電子が励起され入射光と同じ波長の光を放射する場合 (Fig. 1(b) の右) とがある. 前者の場合は反 Stokes 光の吸収を引き起こし, 後者は Stokes 光の吸収を引き起こす. 通常は基底準位にある分子の数が多いため, 反 Stokes 光の吸収のほうが大きい⁹⁾. ラマン散乱ではラマン効果と逆ラマン効果とが同時に起こるので, ラマン・Stokes 光のみが観測されることになる. しかし, ラマン・反 Stokes 光に相当する波長領域に四光子混合による反 Stokes 光が発生する場合, その光は逆ラマン効果により吸収を受けることになる. 一方, 四光子混合により発生したその反 Stokes 光と対となる Stokes 光は, ラマン・Stokes 光と波長が近いのでラマン増幅を受け強度が大きくなる.

長さ L のファイバーでは, Stokes 光・反 Stokes 光が距離 L を伝播中にそれぞれラマン増幅・ラマン吸収を受け, ファイバー終端からのそれらの出力は

$$P_s(L) = P_s(0) \exp(g(\Delta\nu) I_0 L) \quad (1)$$

$$P_a(L) = P_a(0) \exp(-g(\Delta\nu) I_0 L) \quad (2)$$

で与えられる⁴⁾. ここで $g(\Delta\nu)$ はラマン利得, $\Delta\nu$ はラマンシフト, I_0 はポンプ光強度である. $P_s(0)$ および $P_a(0)$ はそれぞれ, ポンプ光がファイバーに入射したとき入射端よりコヒーレンス長の範囲内で四光子混合によって作られた Stokes 光および反 Stokes 光の強度を意味する. $g(\Delta\nu) I_0 L$ が非常に小さいときは, 反 Stokes 光の Stokes 光に対する強度比は

$$P_a(L)/P_s(L) = \{P_a(0)/P_s(0)\} (1 - 2g(\Delta\nu) I_0 L) \quad (3)$$

と近似でき, 強度比は, ラマン利得, ポンプ光強度, ファイバー長に比例して減少する.

3. 実験方法

入射するレーザー光として, Q スイッチされた Nd^{3+} : YAG レーザーの二倍高調波 (波長: $\lambda = 532 \text{ nm}$) を用いた. パルス幅は 7 ns で, 繰返し周波数は 10 Hz である. レーザー光は焦点距離 10 mm の凸レンズを通してファイバーに入力した. ファイバーの入射面は, 入力するレーザー光が散乱を受けないきれいな断面にしておく必要がある. そのため, 入射断面となる部分

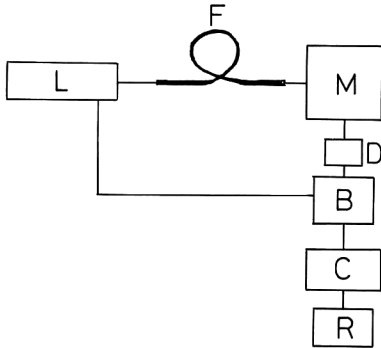


Fig. 2 Experimental setup for detection of the spectrum of radiation from an optical fiber. L: pulsed Nd³⁺: YAG laser emitting the second harmonic wave of $\lambda=532$ nm, F: a few-mode optical fiber, M: monochromator, D: PIN photo diode, B: Boxcar integrater, C: computer, R: recorder.

を加熱し室温に戻して瞬間的に力を加えて折り、きれいな表面を作った。

実験に用いた多モードファイバーのコアはGeO₂を3%含むSiO₂から作られており、コアとクラッドの屈折率の差は約 3×10^{-3} である。コアの直径が12 μm であるため、コア中に作られるモード数は少なく4~5モード以下である。ファイバーの長さは10 mである。

ファイバーからの出射光をレンズで絞り分光器に入れ、PINフォトダイオードで光の強度を検出した(Fig. 2)。強度はボックスカー積分器を用いて信号の積算を行った。分光器の波長を走査してファイバーからの光のスペクトルを測定するほかに、ファイバーから出てきた光を回折格子に入射し、その回折像を3 m離れたスクリーンに映し光のモードを観測した。Stolen⁹⁾が観測したようなLP₂₁モードのストークス光とLP₁₁モードの反ストークス光などがみられた。このようにして四光子混合が起こっていることを確認した後、スペクトルの記録を行った。

4. 実験結果と考察

測定されたスペクトルの一例をFig. 3に示す。0.5 mJのポンプ光強度のときポンプ光より低エネルギー側にa, b, c, d, Rピークが高エネルギー側にa', b'のピークが観測された。ポンプ光からのそれらのエネルギー差は、a, b, c, d, Rストークスピークに対しそれぞれ100, 150, 210, 250, 440 cm^{-1} であり、a', b'反ストークスピークに対し100, 150 cm^{-1} である。これより、aとa'ピークは対をなし、bとb'ピークは対をなしていると

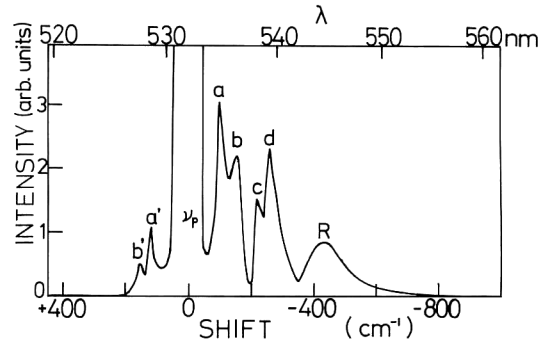


Fig. 3 An example of the spectrum of the Stokes and anti-Stokes radiation from a 10 m long fiber which was excited by $\lambda=532$ nm laser beam. ν_p : frequency of the pump radiation.

結論できる。

スクリーン上で観測したLP₂₁モードのストークス光はbピークに対応し、LP₁₁モードの反ストークス光はb'ピークに対応する。このときのポンプ光はLP₂₁モードとLP₁₁モードの2つからなる²⁾。したがってこの場合、四光子混合が起こるための位相整合条件は、

$$N_{21}^s \nu_p + N_{11}^a \nu_p = N_{21}^s \nu_s + N_{11}^a \nu_a \quad (4)$$

である⁷⁾。ここで、 N_{21}^s や N_{11}^a はそれぞれ、ポンプ光のLP₂₁モードや反ストークス光のLP₁₁モードの実効屈折率を意味する。LP_{mn}モードの実効屈折率 N_{mn} は、規格化伝搬定数 $(N_{mn} - n_1)/(n_0 - n_1)$ の規格化振動数 $2\pi a(n_0^2 - n_1^2)^{1/2}/\lambda$ 依存性を示す分散曲線^{2,8)}より求められる(n_0 : コアの屈折率, n_1 : クラッドの屈折率, a : コア半径)。b, b'ピークに対しその計算を行うと、式(4)の左辺は $54772.766 \text{ cm}^{-1}$ 、右辺は $54772.488 \text{ cm}^{-1}$ となり、位相整合をほぼ満足しているといえる。このようにしてFig. 3のb, b'などのピーク対が四光子混合によって生じていることが確認できた。

Fig. 3で現れている幅の広いRピークはその位置がファイバーのラマン利得スペクトルのピーク振動数に対応することから、ラマン散乱によるものと考えられる。このことは、入射光があまり強くないときは、ラマン散乱による発光はそれよりシフト量の少ない四光子混合による発光より弱い⁹⁾ことと矛盾しない。

ポンプ光の入力パワーを少し大きくすると、Rピークよりさらに 440 cm^{-1} の低エネルギー側にRピークと同じような幅の広いバンド(R'と呼ぶ)が現れた。このR'バンドは、その位置と形からラマン第1ストークスバンドのRピークに対するラマン第2ストークスバンドとみなすことができる¹⁰⁾。これらより、Rピークがラ

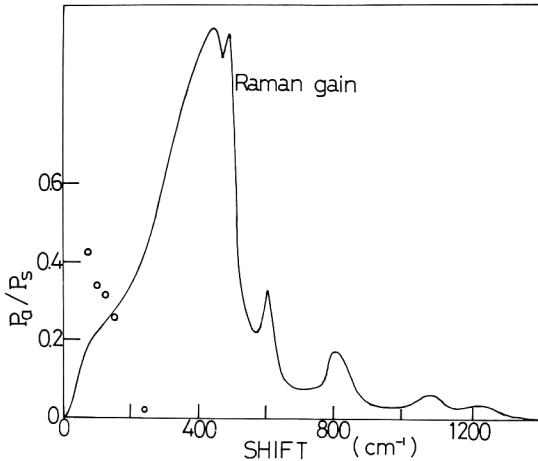


Fig. 4 Power ratio P_a/P_s of the anti-Stokes radiation to the Stokes radiation plotted against the frequency shift $\Delta\nu$ from the pump laser. The solid curve shows the Raman gain spectrum of the SiO_2 -core fiber.¹⁰⁾

マン散乱によると確定される。ラマン散乱による反ストークス光が発生しているとすると、それはポンプ光より高エネルギー側の 440 cm^{-1} 付近に現れるが、そのようなピークは観測されなかった。

反ストークス光の強度がシフトが大きくなるとともに急激に減少し、 300 cm^{-1} を越えると反ストークス光が観測されない。反ストークス光のストークス光ピーク強度比 P_a/P_s をシフト量に対してプロットしたのが、Fig. 4 の○点である。Fig. 3 からは、a-a' 対と b-b' 対より 2 点がプロットされた。ファイバー入射面へのポンプ光の入射角を変えると異なるモード（したがって、異なる振動数）のストークス光・反ストークス光が作られる²⁾。Fig. 4 ではそれらを含めてプロットした。

図からわかるように、シフト量が 90 から 300 cm^{-1} へと大きくなるとともに強度比は減少している。その図には、比較のためラマン利得スペクトル $g(\Delta\nu)$ ¹⁰⁾ も示した。強度比の減少はラマン利得の増大 (Fig. 4 の実線) に対応しているともみることができる。

この強度比 P_a/P_s を、式(3)の $P_a(L)/P_s(L)$ と比較しよう。式(3)より強度比 $P_a(L)/P_s(L)$ はラマン利得スペクトルを反映したものであることが期待され、Fig. 4 に示した測定結果はこのことと矛盾していない。

例えば、シフト量が $75, 100, 150, 240 \text{ cm}^{-1}$ のピークについて強度比を比較してみる。 100 cm^{-1} と 75 cm^{-1} との間での P_a/P_s 値の減少分を 1 とすると、 150 cm^{-1} と 75 cm^{-1} との間での減少分は約 2.5、 240 cm^{-1} と 75

cm^{-1} との間での減少分は約 5.4 となった。一方、ラマン利得 $g(\Delta\nu)$ については、 100 cm^{-1} と 75 cm^{-1} との間での $g(\Delta\nu)$ 値の増加分を 1 とすると、 150 cm^{-1} と 75 cm^{-1} との間での増加分は 3、 240 cm^{-1} と 75 cm^{-1} との間での増加分は 7 となる。両者の値はほぼ似ており、このような相対的な比較から式(3)が成り立っているとみなされる。ただし、例えばシフト量が 250 cm^{-1} を越えるような $g(\Delta\nu)I_0L$ が大きくなる場合は、 P_a/P_s に対して式(3)は成り立たない。

以上のことから、四光子混合によって作られた反ストークス光は逆ラマン効果により減衰を受け、一方ストークス光は誘導ラマン散乱により増幅されると考えられる。

シフト量が 1000 cm^{-1} を越えるような大きい場合、反ストークス光強度はストークス光強度に比べて大きいかほぼ等しい¹¹⁻¹⁴⁾。またシフト量が 6 cm^{-1} と小さい場合でも、同じ強度の反ストークス光とストークス光が観測されている¹⁵⁾。このようにシフト量がガラスファイバーのラマン利得領域すなわち光学フォノン振動数領域からずれるときは、四光子混合は逆ラマン効果も誘導ラマン散乱も受けない。これらの実験結果と Fig. 4 とから、四光子混合によって発生した反ストークス光がストークス光より強度がかなり小さいのは、逆ラマン効果によるためであることが明らかになった。

光ファイバーの誘導ブリュアン散乱によるストークスシフト領域 (数 cm^{-1} 以下) に四光子混合による反ストークス光が現れる場合、観測されたその強度はストークス光に比べてかなり小さい¹⁶⁾。これは、逆ラマン効果に対応した逆ブリュアン効果による反ストークス光の吸収であると考えられる。つまり、上に述べたのと同じことが、光学フォノンだけでなく音響フォノンとの共鳴によっても起こりうることを示している。フォノンの種類によらず、格子振動のような素励起単位が存在すれば、四光子混合による反ストークス光のシフト量がそれらの素励起のエネルギーに近いとき、反ストークス光に減衰を生じさせると結論される。

5. おわりに

四光子混合によって光ファイバー中に作られた反ストークス光が、そのポンプ光からのシフト量がラマン振動数に近いとき、逆ラマン効果により減衰が生じることが明らかになった。同時に生じる誘導ラマン散乱によるストークス光に対する増幅作用を利用して、ラマン増幅の場合と同じように、ストークス光の増幅によりポンプ光

から $200\sim 500\text{ cm}^{-1}$ (すなわち, ラマン利得の大きい振動数範囲) だけシフトしたコヒーレントな光を作ることができるかと期待される。

ロシア科学アカデミー総合物理学研究所 A. Karasik 教授の光ファイバーの提供と実験に関する有益なコメントに, 感謝の意を表したい。本研究の一部は, 文部省科学研究費補助金 (重点領域研究「希土類錯体の新展開」(課題番号: 07230287)) より援助を受けた。

文 献

- 1) G. P. Agrawal: *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, New York, 1989).
- 2) E. M. Dianov, P. V. Mamyshev, A. M. Prokhorov and V. N. Serkin: *Nonlinear Effects in Optical Fibers* (Harwood Academic Publ., Chur, 1989).
- 3) R. H. Stolen: "Nonlinear properties of optical fibers," *Optical Fiber Telecommunications*, eds. S. E. Miller and A. G. Chynoweth (Academic Press, New York, 1979) Chap. 5.
- 4) R. H. Stolen: "Fiber Raman lasers," *Fiber Integrated Opt.*, **3** (1980) 21-51.
- 5) A. R. Chraplyvy: "Impact of nonlinearity on light wave systems," *Opt. Photon. News*, **5** (1994) 17-22.
- 6) J. R. Taylor: *Optical Solitons—Theory and Experiment* (Cambridge University Press, Cambridge, 1992).
- 7) R. H. Stolen and J. E. Bjorkholm: "Parametric amplification and frequency conversion in optical fibers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-18** (1982) 1062-1072.
- 8) R. H. Stolen: "Phase-matched-stimulated four-photon mixing in silica-fiber waveguides," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-11** (1975) 100-103.
- 9) W. J. Jones and B. P. Stoicheff: "Inverse Raman spectra: Induced absorption at optical frequencies," *Phys. Rev. Lett.*, **13** (1964) 657-659.
- 10) R. H. Stolen, C. Lee and R. K. Jain: "Development of the stimulated Raman spectrum in single-mode silica fibers," *J. Opt. Soc. Am.*, **1** (1984) 652-657.
- 11) C. Lin and M. A. Bosch: "Large-Stokes-shift stimulated four-photon mixing in optical fibers," *Appl. Phys. Lett.*, **38** (1981) 479-481.
- 12) C. Lin, W. A. Reed, A. D. Pearson and H. T. Shang: "Phase matching in the minimum-chromatic-dispersion region of single-mode fibers for stimulated four-photon mixing," *Opt. Lett.*, **6** (1981) 493-495.
- 13) E. M. Dianov, E. A. Zakhidov, A. Ya. Karasik, P. V. Mamyshev and A. M. Prokhorov: "Stimulated four-photon nonlinear processes in few-mode glass-fiber optic waveguides," *Sov. Phys. JETP*, **56** (1982) 21-26.
- 14) K. Washio, K. Inoue and T. Tanigawa: "Efficient generation of near-I.R. stimulated light scattering in optical fibers pumped in low-dispersion region at $1.3\ \mu\text{m}$," *Electron. Lett.*, **16** (1980) 331-333.
- 15) K. Inoue: "Suppression technique for fiber four-wave mixing using optical multi-/demulti-plexers and a decay line," *J. Lightwave Technol.*, **11** (1993) 455-461.
- 16) K. O. Hill, D. C. Johnson, B. S. Kawasaki and R. I. MacDonald: "cw three-wave mixing in single-mode optical fibers," *J. Appl. Phys.*, **49** (1978) 5098-5106.