レーザーレター

不完全モード同期パルスの二光子相関

宮本 洋子*・松岡 正浩**

(1995年10月6日 受理)

Two-Photon Correlation of Imperfectly Mode-Locked Pulses

Yoko MIYAMOTO* and Masahiro MATSUOKA**

(Received October 6, 1995)

The Gaussian noise burst model and the domain model for imperfectly mode-locked pulses are examined through comparison with two types of two-photon correlation experiments. These models are known to agree with autocorrelation measurements using nonlinear optical methods. The Gaussian noise burst model does not give correct results for the pulse-cycle-averaged, normalized second-order correlation function at zero time-delay, and the domain model fails to explain the two-component dip in coincidence count rate curves obtained with the interferometer configuration.

Key Words: Mode-locked laser, Imperfect mode-locking, Two-photon correlation, Gaussian noise burst, Domain model

1. はじめに

モード同期 (ML) レーザーは、周波数の異なる多数のモードを同期して発振させるもので、数ピコ秒から100フェムト秒程度の光パルスを得るための代表的な手法である¹⁾。このような短いパルスの波形は、光電流の時間変化として直接測定することが困難なので、何らかの相関法によって間接的に測定するのが普通である。代表的な測定法としては、二光子蛍光、第二高

調波発生 (SHG)、第三高調波発生等の非線形光学応答を用いて、強度の自己相関を測定する方法がある。著者らは干渉計と二光子相関測定を組み合わせた測定法を提案・実現した^{2,3)}。

単一の相関測定からパルス波形を一意に決めることはできないから、実際には何らかのモデルを用いて実験で測定される量を計算し、それを測定結果と比較するという方法が取られる。モード間の同期が完全な場合や、逆に全くない場合には、モデル化は比較的容易である。しか

* 東京大学工学部物理工学科 (〒113 東京都文京区本郷7-3-1)

現在の所属：理化学研究所 (〒351-01 埼玉県和光市広沢2-1)

** 熊本大学理学部物理学科 (〒860 熊本市黒髪2-39-1)

* Department of Applied Physics, Faculty of Engineering, University of Tokyo (7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113)

Present address: The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN) (2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-01)

** Department of Physics, Faculty of Science, Kumamoto University (2-39-1 Kurokami, Kumamoto 860)

し、その中間である不完全なモード同期の場合にはモデル化は難しく、現在に至るまで決定版というべきモデルは見つかっていない。最も頻繁に用いられているのは、Gaussian noise burst (GNB) モデル⁴⁾である。このモデルは、モード間の同期が全くない場合に得られる、ガウス統計を示す乱雑な光を、適当なパルス波形で切り出したものである。パルス波形を強制的に外から与えているため、パルス波形がモード間のどのような秩序に由来するのかは明らかでない。

現実のMLレーザーはしばしば不完全にモード同期した状態で発振する。従って不完全モード同期パルスの性質を明らかにすることは、そのようなレーザーを用いた分光測定の結果を正しく解釈する上でも、またモード同期のメカニズムを明らかにする上でも重要である。決定的なモデルが得られていないのは、同一の相関図形を与える光が何通りも考えられるためであり、従ってモデルを確立するためには異なる種類の測定法を組み合わせることが有効な手段となる。そこで本論文では、非線形光学応答による測定結果をうまく再現することが知られているGNBモデルとPicardらのドメイン・モデル⁵⁾を対象に、Hanbury BrownとTwissの強度干渉の配置⁶⁾および干渉計配置の二光子相関測定の結果との比較を行う。不完全モード同期パルスの具体例としては、代表的なモード同期レーザーの一つである連続発振(CW)モード同期色素レーザーのパルスの実験を取り上げる。

2. 実験

まずモデルとの比較対象とする測定結果を示す。測定対象はCWモード同期YAGレーザーで同期励起した色素(ローダミン6G)レーザーである。パルスの繰り返しは82 MHz、パルス幅は数ピコ秒程度で、発振帯域を制限する複屈折板の枚数を減らすことによって、パルス幅(τ_p)がコヒーレンス時間(τ_c)の5倍から7倍程度になるように調整したものである。

Fig. 1にSHGによる自己相関測定¹⁾の結果を

Fig. 1 SH autocorrelation curve for the dye laser ($\tau_c/\tau_p \sim 0.15$)²⁾.

示す。この手法は被測定光と適当な遅延時間($\delta\tau$)を付けたレプリカとを非線形結晶に入射し、発生する第二高調波の強度を $\delta\tau$ の関数として測定するものである。測定される信号は、被測定光の強度を $I(t)$ 、パルスの繰り返し周期を T_0 とすると、

$$I_{SH}(\delta\tau) = \frac{K_{SH}}{T_0} \int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt \langle I(t)I(t+\delta\tau) \rangle \quad (1)$$

となり、 $I(t)$ の自己相関を与える。Fig. 1の幅の広い山型の構造の中央にさらに鋭いピークを持った二成分の相関図形は、不完全モード同期パルスに特徴的なものである。通常、幅の広い成分はパルス波形の相関、狭い成分はコヒーレンス時間を与えるものと解釈される。ピーク中央での二成分の寄与がほぼ1対1であるのも、重要な特徴である。

Fig. 2はHanbury BrownとTwissの配置⁶⁾による二光子相関測定のスキームを示したものである。光検出器 D_1 と D_2 から同時に光子数計信号が出力される「同時計数」の頻度を測定することによって、二光子の間の相関を測るものである。古典光の場合には、この相関は強度の相関

Fig. 2 Scheme for the Hanbury-Brown-Twiss intensity interference experiment. E : input optical field, BS : beam splitter, D_1 , D_2 : photodetectors.

として理解される。時間分解能が検出系の応答時間で制限される一方で、相関の絶対量を測るのには適した方法である。そこで同一パルス内の二光子に起因するものは全て「同時」と考えることにし、その頻度を D_1 , D_2 での強度の間に全く相関がないと仮定した場合の同時計数の頻度で割って規格化することを考える。このようにして規格化された同時計数率は、1パルス周期 T_0 の平均として定義した規格化された二次の相関関数の遅延時間 0 での値：

$$g_{pulse}^{(2)}(0) = \frac{\int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt_1 \int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt_2 \langle I(t_1)I(t_2) \rangle}{\left(\int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt \langle I(t) \rangle \right)^2} \quad (2)$$

を与える。ここで検出系の応答時間は数ナノ秒程度で、 T_0 (12 ns) より小さいが、パルス幅 (数 ps) よりはずっと大きい場合を想定している。一般に検出系の応答時間よりも速い強度変化は平均化されて観測されないと考えがちであるが、パルス光の場合は平均化はパルス幅程度の時間でしか起こらないため、パルス幅と同程度のタイムスケールの揺らぎであれば $g_{pulse}^{(2)}(0)$ の値に影響を及ぼし得ることに注意したい。実際の測定では、 D_1 , D_2 からの信号の時間差を測って、 $\pm (T_0/2)$ 以内であるものを全て同時とみなして計数する。(2) 式の分母の

Fig. 3 Measurement scheme. E : input optical field, BS : beam splitter, D_1 , D_2 : photon-counting detectors, C_1 , C_2 : corner cubes, PM : phase modulator, AT : attenuator.

Fig. 4 Plot of the coincidence count for the dye laser ($\tau_c/\tau_p \sim 0.15$), normalized by the product of the single-detector counting results obtained at D_1 and D_2 in order to eliminate fluctuations caused by minor instabilities in laser power. The dots represent experimental results, and solid line is the theoretical curve for the GNB model with parameters determined to best fit the data. Photon-counting errors are estimated to be of the order of the dot size²⁾.

部分は、 D_1 , D_2 それぞれ単独での光子計数結果から求めることができる。SHGによる相関図形を頼りに $\tau_c/\tau_p \sim 1/6$ に調整したレーザー

パルスで測定したところ、 $g_{pulse}^{(2)}(0)$ の値は 1.017 ± 0.003 であった。 $\tau_c/\tau_p \sim 1/2$ に調整した測定でも 1.016 ± 0.003 とほとんど変わらない値を示した。

Fig. 3, Fig. 4に干渉計配置の二光子相関測定のスキームおよび測定結果を示す^{2,3)}。基本的な測定方法はHanbury BrownとTwissの配置の場合と同様だが、同時計数率を干渉計の二本の腕の間の光路差の関数として測定している点異なる。一般に干渉計の二本の出力の間には負の相関が生じるので、同時計数率には光路差0に中心を持つ凹みができる。不完全モード同期パルスの場合には、Fig. 3に見えるように、SHGによる自己相関図形とよく似た二成分の凹みが現れる。ただし、中心での寄与は鋭い成分が1に対し広い成分は τ_c/τ_p 程度しかないのが特徴である。この場合、測定される量は、被測定光の電場 $E(t)$ を用いて、

$$C_{12}(\delta\tau) = \frac{\eta_1\eta_2}{T_0} \cdot K_{IF} \int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt_1 \int_{-T_0/2}^{T_0/2} dt_2 \\ \times [\langle |E(t_1)|^2 |E(t_2)|^2 \rangle \\ - D_{IF}/2 \langle E^*(t_1)E^*(t_2+\delta\tau)E(t_2) \\ \times E(t_1+\delta\tau) \rangle + c.c.] \quad (3)$$

によって与えられる。 D_{IF} は干渉計によって決まる凹みの深さで、最大で50%である。

3. Gaussian noise burstモデル

このモデルでは、光の複素電場 $E(t)$ は、パルス波形 $C(t)$ 、乱雑なガウス揺らぎ $A(t)$ 、中心周波数 ω_0 を用いて、

$$E(t) = C(t) A(t) \exp(-i\omega_0 t) \quad (4)$$

と表される⁴⁾。

まず手始めに、SHGによる自己相関図形を求めてみる。パルス波形、スペクトルともにガウス型であると仮定すると、

$$I_{SH}(\delta\tau) = \frac{K_{SH}}{T_0} \cdot \frac{I_0^2}{\tau_p \sqrt{\pi}} \\ (\exp[-(\delta\tau)^2/\tau_c^2] + \exp[-(\delta\tau)^2/\tau_p^2]) \quad (5)$$

となり、前節の結果をよく再現する。ここで τ_c は $C(t)$ と $A(t)$ の両方によって決まるコヒーレンス時間である。干渉計配置の二光子相関測定についても、

$$C_{12}(\delta\tau) = \frac{\eta_1\eta_2}{T_0} \cdot K_{IF} I_0^2 \\ \times [1 - D_{IF} \exp[-(\delta\tau)^2/\tau_c^2] \\ + \tau_c/\tau_p \{1 - D_{IF} \exp[-(\delta\tau)^2/\tau_p^2]\}] \quad (6)$$

となり、各成分の寄与の比も含めてよく一致する²⁾。

ところが、 $g_{pulse}^{(2)}(0)$ を計算してみると、 $g_{pulse}^{(2)}(0) = 1 + \tau_c/\tau_p$ となる。これは、ガウス統計の揺らぎが遅延時間0で示す強い相関が、そのまま現れたものである。 $\tau_c/\tau_p \sim 1/6$ のパルスではこの値は1.17、 $\tau_c/\tau_p \sim 1/2$ のパルスでは1.5となり、全く実験と合わないことが分かる。これは少なくともこの色素レーザーのパルスに関してはGNBがよいモデルではないことを示している。

4. ドメイン・モデル

GNBモデルにはそもそも、パルス波形が外から与えられるため、その起源が明らかでないという欠点があった。理想的には、異なるモード間の位相の関係が全くランダムなガウス揺らぎに対して、部分的に秩序を導入することによって自然にパルス波形が現われるようなモデルが望ましい。そのようなモデルの一つにドメイン・モデルがある⁵⁾。

ドメイン・モデルでは全体のスペクトルはいくつかの「ドメイン」に分かれており、ドメイン内のモードの位相は完全に同期しているが、異なるドメイン間では位相の関係やモード間隔は不定であるとする。各ドメイン内のモードは

理想的なモード同期パルスを形成するはずだから、 j 番目のドメインが形成するパルス波形を $C_j(t)$ 、中心周波数を Ω_j 、総ドメイン数を M とすると、全体の複素電場は

$$E(t) = \sum_{j=1}^M C_j(t) \exp[-i(\Omega_j t + \phi_j)] \quad (7)$$

と表される。ここで ϕ_j は各ドメインの持つランダムな位相である。全体の強度は $[C_j(t)]^2$ が平均されたようなパルス波形を持ち、その幅は各ドメインの幅の逆数程度になる。一方コヒーレンス時間はあくまで全体のスペクトル幅によって決まるので、ドメイン数 M はパルス幅とコヒーレンス時間の比 (τ_p/τ_c) の意味合いを持つ。全体の電場が独立な振動子の和として与えられるという点で、ドメイン・モデルはGNBモデルと形式的な類似性を持つが、GNBモデルでは和は膨大な数のモードについてとられるのに対して、ドメイン・モデルではドメインについての和であり、その総数 M は上述のように決けて多いとは言えない。このことは二光子相関測定で測定される量を計算する上で重要となる。

試みに、 $\langle I(t_1) I(t_2) \rangle$ という量を計算してみる。

$$\langle I(t_1) I(t_2) \rangle =$$

$$\begin{aligned} & \sum_{j,l} [C_j(t_1)]^2 [C_l(t_2)]^2 + \sum_{j,l} [C_j(t_1) C_j(t_2) C_l(t_1) C_l(t_2)] \\ & \times \exp[-i(\Omega_j - \Omega_l)(t_2 - t_1)] - \sum_j [C_j(t_1)]^2 [C_j(t_2)]^2 \end{aligned} \quad (8)$$

ここで最初の二つの和は M^2 個の和であるのに対して、三つ目の和は M 個の和である。 M が大きい場合はこの三つ目の和を無視する近似によってガウス統計の式を得る。実際、SHGによる自己相関図形のように、(8)式を $(t_2 - t_1)$ を一定に保ったまま t_1 (もしくは t_2) で積分して得られる量の場合は、コヒーレンス時間を示す狭い成分とパルス波形を示す広い成分の寄与率の比が1対1だったのが1対 $(1 - 1/M)$ になる他は

GNBモデルと大きな違いはない。

t_1, t_2 の両方で積分を行う $g_{pulse}^{(2)}(0)$ の場合には、事情が大きく異なる。 $(t_2 - t_1)$ の関数としてみたとき、二つ目の和と三つ目の和の持つ幅の比は τ_c/τ_p だから、最終的に t_1, t_2 で積分して得られる値の大きさは $M^2 \tau_c : M \tau_p \sim 1 : 1$ となり、同程度である。より厳密には、ドメイン間には周波数の重なりがないから、 $j \neq l$ のとき $[C_j(t) C_l(t)]$ の最大周波数成分は常に $|\Omega_j - \Omega_l|$ より小さく、二つ目の和のうち積分後も寄与が残るのは $j=l$ の項だけである。従って二つ目の和の寄与は完全に三つ目の和の寄与と相殺して、 τ_c/τ_p の値によらず $g_{pulse}^{(2)}(0) = 1$ となる。これはGNBモデルよりも実際の測定値の振る舞いに近い。

しかし干渉計配置での同時計数率の場合は、同様の相殺によって、凹みがコヒーレンス時間の幅を持つ1成分のみになってしまい、測定結果と合わなくなる。 m 番目のモードの複素振幅を ϵ_m 、周波数 ω_m とすると、凹みの形状は

$$|\sum_m \epsilon_m|^2 \exp(-i\omega_m \delta \tau) \quad (9)$$

与えられる。ドメイン間でモード間隔が一定の場合は、この量はパワースペクトルのみで与えられ、位相の分布すなわちドメインの分け方によらない。

5. まとめ

SHGによる自己相関測定、Hanbury BrownとTwissの配置および干渉計配置の二光子相関測定の三つの観点から、GNBモデルとドメイン・モデルを検討した。GNBモデルは $g_{pulse}^{(2)}(0)$ の値を、ドメイン・モデルは干渉計配置での同時計数率を正しく与えず、いずれも対象とした不完全モード同期パルスのモデルとしては適当でないことが分かった。同時に、異なるタイプの測定を組み合わせることの有効性が示された。最後に、本論文では専ら測定結果の再現という点に重点を置いたが、レーザー媒質や同期原理の側からの検討も重要であることを指摘したい。

謝辞

色素レーザーパルスの $g_{pulse}^{(2)}(0)$ の測定データを提供して頂いた李瑛さん、またそのデータをとることを勧め、議論して頂いた小芦雅斗さんに感謝いたします。

参考文献

- 1) S. L. Shapiró ed.: *Ultrashort Light Pulses*, second ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1984).
- 2) Y. Miyamoto, T. Kuga, M. Baba and M. Matsuka: *Opt. Lett.* **18** (1993) 900.
- 3) Y. Miyamoto: Doctoral Thesis, Univ. Tokyo (1994).
- 4) H. A. Pike and M. Hercher: *J. Appl. Phys.* **41** (1970) 4562.
- 5) R. H. Picard and P. Schweitzer: *Phys. Rev. A* **1** (1970) 1803.
- 6) R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss: *Nature* **177** (1956) 27.

レーザーワード

不完全モード同期 (imperfect mode-locking)

広い利得帯域を持ったレーザーでは、一般に複数の縦モードが同時に発振する。それらのモードが周波数間隔や位相の関係の定まらない状態で発振する場合には(フリーランニング)、出力は雑音状となる。関与する全てのモードの間隔を一定にし、位相を同期して発振させることをモード同期と呼び、理想的にはスペクトル幅の逆数で決まる幅を持ったコヒーレントなパルスを作ることができる。しかし現実にはしばしばそれからのずれが起こる。それを不完全モード同期と言い、パルス幅がスペクトル幅の逆数まで狭くならないこと、コヒーレントなパルスにならないこと等に現れる。

不完全モード同期パルスのモデルとしては、よく用いられる Gaussian noise burstモデルの他に、ドメイン・モデルや、帯域の一部が同期して残りがフリーランニングである partial lockingモデル、線形分散とランダムな位相揺らぎが複合したモデル等が検討されている。

(宮本 洋子)

二光子相関 (two-photon correlation)

二つの光子の間の相関を二光子相関と呼び、通常、二つの検出器の光子計数信号の相関として測定される。光子計数信号の頻度は光強度に比例するという仮定のもとに古典的な強度相関として理解できるケースと、同一ビーム内の二光子の間に負の相関が観測されるアンチバンチングのように量子力学的解釈が必要なケースがある。

二光子相関測定 of 草分けとなったのは1956年の Hanbury Brown と Twiss の光電流による強度相関測定の実験で、輻射場の二次の相関関数を測定するタイプのものであった。二光子相関測定はその弱い極限における測定に相当する。1987年に Mandel らが干渉計型の配置によって検出器の応答時間よりも短い時間間隔を測れること、またパラメトリック蛍光の光子対を用いることで量子力学的な干渉効果が観測できることを示し、以後量子力学的非局所性等の実験的確認手段の一つとして注目されている。

(宮本 洋子)