

横方向光励起分子レーザーの出力特性

松島 恭治, 梶山 昌宏[†], 大槻 昌徳^{††}, 高井 正弘

関西大学 工学部電気工学科 (〒564-8680 大阪府吹田市山手町3-3-35)

Output Properties of an Optically Side-Pumped Molecular Laser

Kyoji MATSUSHIMA, Masahiro KAJIYAMA,[†] Masanori OHTSUKI,^{††} and Masahiro TAKAI

Department of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Kansai University

3-3-35 Yamate-cho, Suita, Osaka 564-8680

(Received June 9, 2000)

This paper presents a novel type of optically pumped molecular laser and its output properties which were measured for several operational parameters. This optically side-pumped laser emits a sub-millimeter wave and features a lateral incidence of the infrared pump light. The dimension of the fabricated laser is $640 \times 190 \times 185 \text{ mm}^3$ and is considerably compact compared to conventional, optically pumped molecular lasers. The optically side-pumped laser, which operates on a CH_3OH 119 μm line pumped with CO_2 9P(36), emitted a power of 39 μW at a pump power of 13 W. Gain profiles, absorption efficiency and the reflection loss of pump light in the new laser are theoretically discussed and compared with those of the conventional end-pumped type.

Key Words: Sub-millimeter wave, Far-infrared laser, Molecular laser, Optically side-pumped laser, Gain profile

1. はじめに

波長 $50\mu\text{m}$ から 1mm に及ぶ遠赤外波長域においても,近年電子工学的方法を用いた発振器が短波長化を進めている. その結果,小型のコヒーレント光源が実用的になりつつあるが,波長 $100\mu\text{m}$ 前後のサブミリ波領域においては,未だに光励起分子レーザーが唯一の実用的なコヒーレント光源である.

光励起分子サブミリ波レーザーは,1970年にChangらが赤外レーザーを光源とした光励起により CH_3OH や CH_3F などの分子ガスからの遠赤外発振を報告して以来^{1,2)},現在に至るまでサブミリ波・ミリ波領域に2000本近いレーザー線が報告され³⁾,連続発振で最大 1.2W の出力が得られている⁴⁾.

このような長い歴史を有する光励起サブミリ波レーザーであるが,残念ながら,現時点でこのレーザーが広く利用される状況には至っていない. これは,光励起サブミリ波レーザー自体が,非常に扱い難いレーザーであるためと考えられる. 光励起サブミリ波レーザーの取り扱いが困難である理由の一つは,そのサイズである. ミリワット級の光励起サブミリ波レーザーですら,その標準的な大きさは全長 $1\sim 2\text{m}$ ほどのものとなる. それ自体はさして大型

のレーザーとは言えないが,励起光源である波長選択型赤外レーザーと組み合わせた場合,レーザー間の結合光学系も含めると,数メートル四方の光学実験台を占有することになり,實際上その利用は簡単ではない.

これらの光励起サブミリ波レーザーでは,一般にサブミリ波共振器内で励起光とサブミリ波は同軸であるが,近年,金属平面導波路を有するサブミリ波共振器の光軸に対してほぼ直交する方向に励起光を導入する構成の横方向光励起サブミリ波分子レーザーが提案されている⁵⁾. このような構成のサブミリ波分子レーザーにはいくつかの潜在的な利点が予想される. 例えば,従来の縦方向光励起と比較すると,横方向光励起では,サブミリ波共振器および励起光路の設計の自由度が広がるため,より小型化を進めた設計が容易になると考えられる. また,縦方向励起ではその大きさのために励起赤外レーザーとサブミリ波レーザーを一体的に製作することが困難である上,多くの場合励起光をサブミリ波共振器ミラー上の微小な結合孔から導入するため,2台のレーザーの光軸を常に最適に調整することは容易ではない. 横方向励起では共振器ミラー上に励起光導入用の結合孔は必要ないため,この点も緩和される. 縦方向励起で結合孔による励起光の導入が必要な理由は,赤外とサブミリ波のそれぞれの光に対して反射や

現在の所属: [†]いすゞ自動車(株)パワートレイン第一開発室

^{††}(株)日立製作所通信事業部光リンク部

Present address: [†]ISUZU MOTORS Ltd., Powertrain Engineering No.1

^{††}HITACHI Ltd., Telecommunication Systems Division, Fiberoptics Dept.

部分透過などの複雑な特性を有する共振器ミラーが必要であり、そのミラー材料に適切なものが少ないためである。さらに、光励起分子サブミリ波レーザーでは、高い変換効率を得るためには一般に高い励起入力が必要であり、縦方向励起では共振器ミラーや高分子化合物で製作されることが多い出力窓の損傷が生じるため、サブミリ波から励起光を分離する機構が必要になる。これらの点は横方向励起ではほぼ解消されると考えられる。また、共振器内からの戻り光による励起レーザーの不安定化が縦方向励起では問題になることも多く、これを安定化するためには、共振器の温度安定化⁶⁾や、励起光入力方法の十分な最適化が必要である^{7,8)}。横方向励起ではこのような戻り光は本質的に生じない。

横方向光励起サブミリ波レーザーには他にも副次的な利点が予想できる。近年Cs原子標準を一次標準とする多段階の周波数チェーンを経て、赤外や可視の領域において周波数安定化レーザーの絶対周波数の測定が行われており、それによって光の周波数領域において新しい周波数標準が確立されている^{9,10)}。この様な周波数チェーンでは、中間段にサブミリ波領域の局所発振器が必要であり、光励起分子サブミリ波レーザーが用いられている。この様な用途や、サブミリ波を用いたプラズマ診断等においては局所発振器の周波数自体が十分に安定であることが要求される。安定化サブミリ波レーザーとしては、各構成要素の高度な最適化により、すでに岡島らが非常に優れたサブミリ波レーザーを報告している^{7,8)}。横方向光励起では、この様な安定化サブミリ波レーザーの製作を容易にする、あるいはさらなる安定性の改善に寄与する可能性もある。

従来の縦方向光励起分子レーザーの発振周波数は励起レーザー光の周波数に強く依存しており、分子のサブミリ波遷移の中心周波数とサブミリ波共振器の共振器長だけでは決定されない¹¹⁾。縦方向光励起において、励起光周波数と発振周波数に強い結合が生じる要因は二つある。一つ目は、媒質分子の速度分布を介した結合である。縦方向光励起では、励起光の周波数が分子の吸収線の中心から外れた場合、光軸方向に非零の速度成分を有する分子群が励起される。その結果、観測されるサブミリ波利得のピーク周波数はドップラーシフトしており、たとえ利得のピークに共振するように共振器長を調整しても、レーザー出力の周波数は、分子のサブミリ波遷移の中心周波数とは異なる¹²⁾。そのため例えば、観測する方向によっても利得が異なり、リング共振器を構成した場合には自発的な単方向出力が生じ、その出力方向は励起レーザー光の周波数に依存することが知られている^{13,14)}。また二つ目の要因として、赤外吸収遷移とサブミリ波放出遷移が共有するエネルギー準位を介したラマン型の2光子過程があげられる。この2光子過程により、一般に光励起サブミリ波レーザーの分散曲線は励起光の周波数に依存しており¹⁵⁾、その結果、その発振周波数はやはり励起光の周波数に依存する¹⁶⁻¹⁸⁾。以上のような励起光周波数とサブミリ波周波数の結合は、励起光を共振器光軸と直交する方向に導入する横方向光励起では、本質的に消失するはずである。

以上の様に、横方向光励起分子レーザーには、従来の縦

方向光励起型には無いいくつかの潜在的な利点が予想できるが、一方で製作例が極めて少なく、実際の動作時の特性もほとんど報告されていない。また、共振器光軸と垂直に励起した場合の利得曲線の性質や、実際にはジグザグの光路をたどる励起光の光路設計など、不明な点が数多い。そこで、我々は同様の横方向光励起サブミリ波レーザーを製作し、その出力特性の測定を行なった。また、半古典的気体レーザー理論を用いた横方向光励起分子レーザーの小信号利得の特性、および励起光の吸収効率と反射損失についても議論を行なった。

2. 横方向光励起導波路型共振器

2.1 横方向光励起共振器の構成

Fig.1 (a)に一般的な光励起サブミリ波レーザーの構造を模式的に示す。この構成の光励起分子レーザーでは、レーザー媒質ガスを満たした気密容器中に設置した光共振器の一方のミラー M_1 より赤外の励起レーザー光を導入する。この励起レーザー光は、光共振器を構成するもう一方のミラー M_2 により反射され、共振器内を往復する間に媒質に吸収され、媒質を励起する。

一方、発生したサブミリ波は、共振器の他方のミラーから出力される。このため、一般に入力側ミラー M_1 にはサブミリ波を効率よく反射し、励起赤外光を透過する材質のミラーが必要であり、また、出力側ミラー M_2 は、逆に励起赤外光を効率よく反射し、サブミリ波に対しては部分透過ミラーとして働く必要がある。これを実現する方法として、金属ミラー上の結合孔が一般に用いられるが、反射コートに部分的に設ける透過窓や、赤外用の反射グレーティングによる励起光の導入法¹⁹⁾なども用いられている。

また、この構成に特有の問題として、共振器内で反射往復する励起赤外光が M_1 より入射経路を逆に辿り、励起赤外レーザーに再入射することが挙げられる。CO₂レーザーのように高利得なレーザーは一般に出力のごく一部でも共振器内にフィードバックすると動作が不安定になるため、

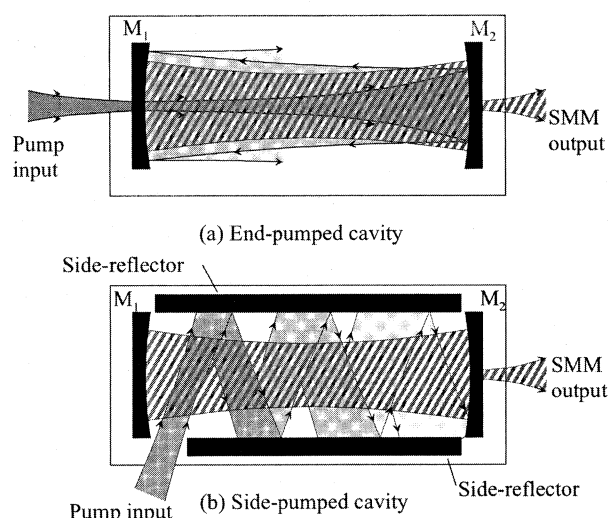


Fig.1 Schematic comparison between an optically end-pumped (a) and a side-pumped (b) molecular laser.

サブミリ波レーザー出力にも時間的な変動が発生することが多い。これを防ぐため、励起光路にアイソレーターを挿入する²⁰⁾、あるいは励起光を共振器軸に対してわずかに軸はずれに入射させる²¹⁾などの措置が必要になる。

一方、Fig.1 (b) に示した横方向光励起分子レーザーでは、励起光は共振器光軸に対して垂直に近い角度で入射し、共振器の側面に設けた反射ミラーにより、共振器中をジグザグに反射伝播し、媒質分子を励起する。そのため、共振器ミラー M_1 と M_2 は、遠赤外光に対してのみ全反射あるいは部分反射を有するのみでよい。また、本質的に戻り光による励起赤外レーザーの擾乱は生じない。

2.2 横方向光励起導波路型共振器の構造

本研究で試作した横方向光励起導波路型共振器の構造をFig.2に示す。この共振器は間隔5mmのアルミ製平行平板導波路の間に側面ミラーおよび共振器ミラーを設置した構造を有し、共振器の断面は $5 \times 50 \text{mm}^2$ のスラブ形状である。なお、平行平板導波路の内側は人手で鏡面研磨している。赤外励起光は共振器側面にある $24 \times 5 \text{mm}^2$ の矩形入射口より入射し、パイレックスガラスに金コーティングして製作した側面ミラー間をジグザグに反射伝播し、共振器内の分子ガスを励起し吸収される。吸収されなかった残存励起光はモニター用として出射口より漏洩させている。

一方、サブミリ波共振器は平行平板導波路内に固定した折り返しミラーを介して、同じく導波路内に固定した全反射ミラー M_2 と導波路外に設置した可動ミラー M_1 で構成している。折り返しミラーおよび固定ミラー M_2 は鏡面研磨したアルミに金コーティングした全反射ミラーであるが、同様の素材の可動ミラー M_1 には中央部に直径1.5mmの結合孔を設けることにより部分反射ミラーとしている。可動ミラー M_1 は、角度調整可能なミラーホルダーに取り付けた上、全体をパルスモータにより駆動される超微動ステージ上に設置し、共振器長を電気的に操作できるようにしている。

この横方向光励起導波路型共振器は、 M_1 を除く部分の面積は、 $100 \times 488 \text{mm}^2$ であり、標準的な共振器長は931mmで

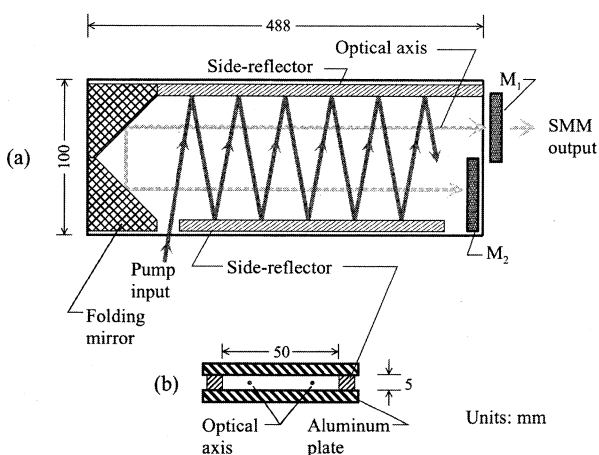


Fig.2 Schematic structure of an optically side-pumped waveguide cavity (a) and its sectional sketch (b).

ある。

3. CH_3OH サブミリ波レーザーの出力特性

3.1 測定方法

製作した横方向光励起共振器を用い、 $^{12}\text{CH}_3\text{OH}$ を媒質としてサブミリ波レーザーの発振を試みた。用いた実験装置をFig.3に示す。横方向光励起共振器は、アルミおよびアクリルのパネルで構成した気密容器内に設置した。この気密容器では、励起赤外光の入射窓およびモニター用の励起光漏洩窓にはZnSeを用い、特に入射窓はほぼブルースター角で用いている。またサブミリ波出力はテフロン製の窓から取り出している。

気密容器内は油回転ポンプにより20mTorr程度まで排気し、その後で CH_3OH を導入している。励起光源としては波長選択型の炭酸ガスレーザーを用い、平面ミラーPMと曲率半径1500mmの凹面ミラー CM_1 を用いて励起赤外光を共振器の入射口に集光し、共振器内に導入している。この時、ブルースター窓で表面反射される入射光の一部を気密容器壁面で反射させ、焦電型検出器 D_2 で検出し、また、共振器内で吸収されずに漏洩する赤外光を同じく焦電型検出器 D_3 で検出した。

一方、テフロン窓から出力されサブミリ波は曲率半径400mmの CM_2 と曲率半径300mmの CM_3 の2枚の凹面ミラーで焦電型検出器 D_1 の検出面上に集光して検出した。なお、この検出器 D_1 は、別に用意した光励起サブミリ波レーザーを用いて、その検出電圧と入射パワーの関係を較正済みである。

3.2 測定結果

CO_2 レーザーの発振線として9P(36)線を選択し、蒸気圧力197mTorrで CH_3OH を共振器内に満たした。次にミラー M_1 を載せたステージを駆動し、共振器長を変化させてレーザー発振出力の検出を行った。この時、励起光は共振器光軸と1.4radの角度を為して入射しており、そのパワーは13Wである。得られた共振器同調曲線をFig.4に示す。この同調曲線のピーク間隔が $59 \mu\text{m}$ であることから、これは、

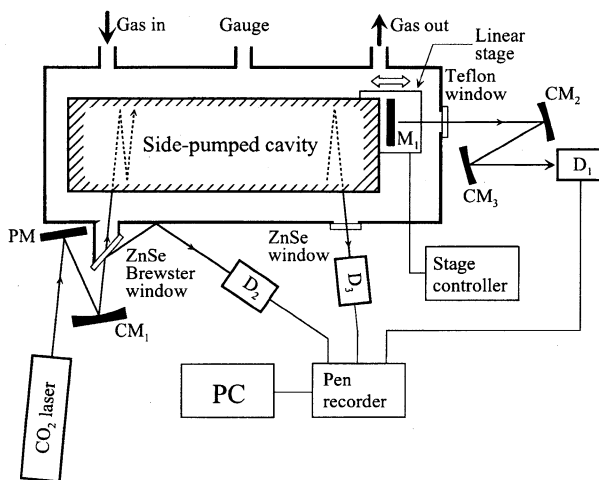


Fig.3 Experimental setup for an optically side-pumped CH_3OH laser.

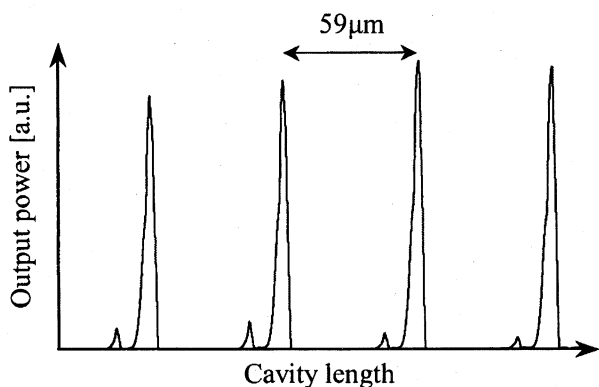


Fig. 4 A cavity tuning curve of CH_3OH 119 μm line pumped with CO_2 9P(36). The pump power and vapor pressure was 13 watts and 197 mTorr, respectively.

CH_3OH でもっとも強いレーザー発振線として知られている119 μm 線と判断できる。さらに、 CO_2 レーザーの発振線を変え、別の既知レーザー発振線の発振を試みたが、残念ながら今回は119 μm 線以外の発振を確認することはできなかった。

発振が確認された119 μm 線を再び発振させ、媒質蒸気圧を変化してサブミリ波レーザー出力を測定した。その結果をFig. 5に示す。なお、媒質の蒸気圧は全圧真空計によって CH_3OH に対して校正したピラニ真空計を用いて測定している。この実験では、 CH_3OH 蒸気圧212mTorrにおいて最大出力20 μW を確認した。また、この曲線からわかるとおり、最大出力が得られる圧力を含む約50mTorrの圧力範囲以上でも以下でも最大出力の35%程度までも出力が減少しており、従来型の光励起サブミリ波レーザーに比べて圧力の最適範囲は狭いことがわかった。最適圧力自体は従来の縦方向光励起のサブミリ波分子レーザーとそれほど大きな差異はないが、縦方向光励起ではこれほどピークは急峻ではない。これは、励起光が長い光路長を持つことから、媒質圧力増加時には励起光が共振器内の半ばで消耗し、励

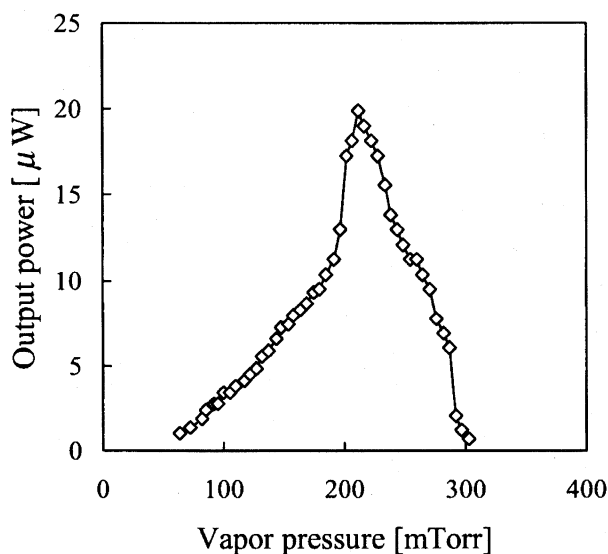


Fig. 5 Output power of the side-pumped laser operated on CH_3OH 119 μm line vs vapor pressure. The pump power was 11 watts.

起分子の空間分布が不均一化して急激な出力の減少を生じているためと考えられる。

発振が確認できた範囲で媒質蒸気圧を変え、励起パワーに対する出力の変化を測定した。その結果をFig. 6に示す。この実験では共振器アライメント等を再調整したため、Fig. 5に示した先の実験よりも若干出力が向上しており、最適圧力である212mTorrでは、励起入力11Wに対して最大出力30 μW が得られた。また、このとき励起入力のレーザー発振閾値は約6Wであることが確認された。当然ながら、圧力の最適値を外れると閾値は増加し、最大出力は減少する。しかし、このレーザーでは閾値は概ね6から9Wの範囲内にあることがわかった。また、図からわかるとおり発振可能圧力範囲の両端では励起入力の増加に従ってサブミリ波出力は飽和および減少の傾向にある。さらに共振器アライメント等を最適化した結果、本稿の時点で得られた最大出力は励起入力13Wに対して39 μW であった。すでに報告されている、同形式の HCOOH レーザーにおける励起パワー40Wに対して出力8mWという結果⁵⁾に比べると、この結果ではかなり効率が低い。光励起サブミリ波レーザーでは効率は励起入力に強く依存しているため、励起レーザーの出力が低いことが主な要因と考えられる。

CH_3OH の蒸気圧を200mTorrとして、 CO_2 レーザーの発振周波数を変化したときのサブミリ波レーザー出力および励起入力パワーと漏洩パワーの変化をFig. 7に示す。この測定は、共振器をほぼ正確に119 μm 線に共振するよう調整した後、波長選択型 CO_2 レーザーの共振器長を変化することによりおこなった。この時、検出器 D_1 によりサブミリ波パワーを、 D_2 により励起入力パワーを、またさらに D_3 により共振器内から漏洩する励起パワーの一部を測定した。図中に示した周波数スケールは CO_2 レーザーの共振器の自由スペクトル範囲から算出したものである。

この結果から、サブミリ波が出力されている励起光周波数の範囲は約20MHzであることがわかる。次節で述べる

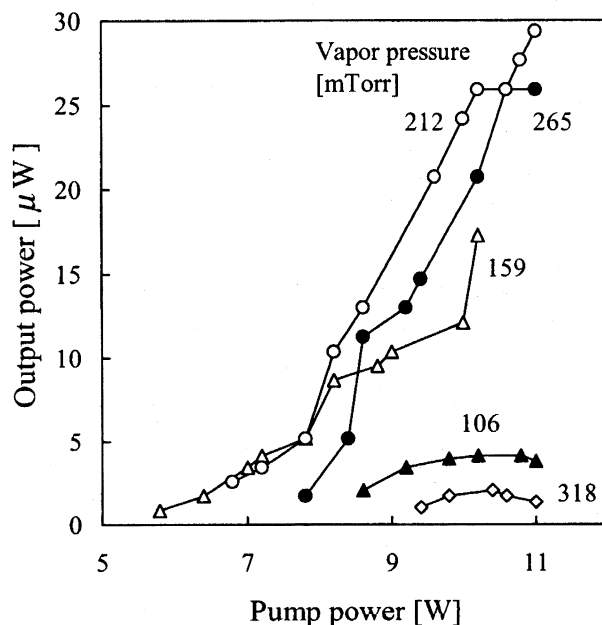


Fig. 6 Output power of the side-pumped laser operated on CH_3OH 119 μm line vs pump power.

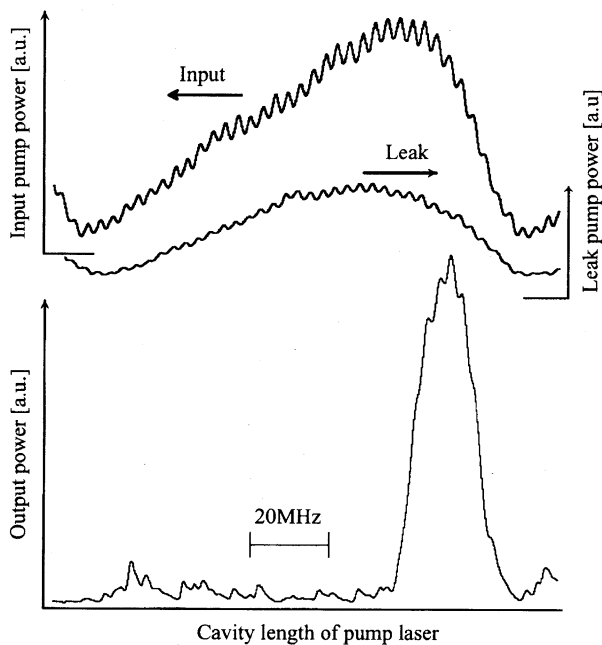


Fig.7 Cavity length of the pump CO₂ laser vs input pump power, leak pump power, and output power. The vapor pressure and the peak pump power were 200 mTorr and 11 watts respectively.

とおり、従来の縦方向光励起分子レーザーでは、利得曲線は均一広がりによるローレンツ型の曲線と分子速度分布によるガウス型の曲線の畳み込み積分となる。そのため、同じCO₂レーザーで縦方向光励起CH₃OHレーザーの119 μ m線を励起した場合、出力が得られる励起光周波数範囲は、Fig.7の結果の3~4倍になる。これはこの共振器の損失がかなり高いか、CH₃OH 119 μ m線の利得曲線そのものが縦方向励起のそれとは異なることを示している。なお、実験では焦電型検出器を用いるために励起光パワーを低周波で変調している。Fig.7の励起パワーに見られる細かな揺らぎは、信号処理が不十分であったためこの低周波信号が重畳したものである。

4. 議論

4.1 横方向光励起における利得曲線の解析

光励起気体分子レーザーの場合、励起光の周波数およびその進行方向によって励起分子の速度分布が変わるため、横方向光励起の利得の特性は縦方向光励起とは異なると考えられる。以下、小信号利得について簡単な解析を行った結果について述べる。この解析では、光励起気体分子レーザーに関する既存の理論解析¹³⁾の一部を利用した。ここで用いた準位モデルをFig.8 (a)に示す。分子は単一波長の励起光によって準位2から準位0に励起され、準位1へ遷移してサブミリ波を放出するものとする。励起光は分子の吸収線の中心周波数と角周波数 Δ_p だけ異なった周波数を有し、Fig.8 (b)に示したように波数ベクトル \mathbf{K}_p で媒質内を進むものとする。ここで、励起光の離調周波数 Δ_p は励起光の周波数が吸収線のそれより高い場合に正値をとるものとする。共振器の光軸方向にz軸、導波路の厚み方向にy

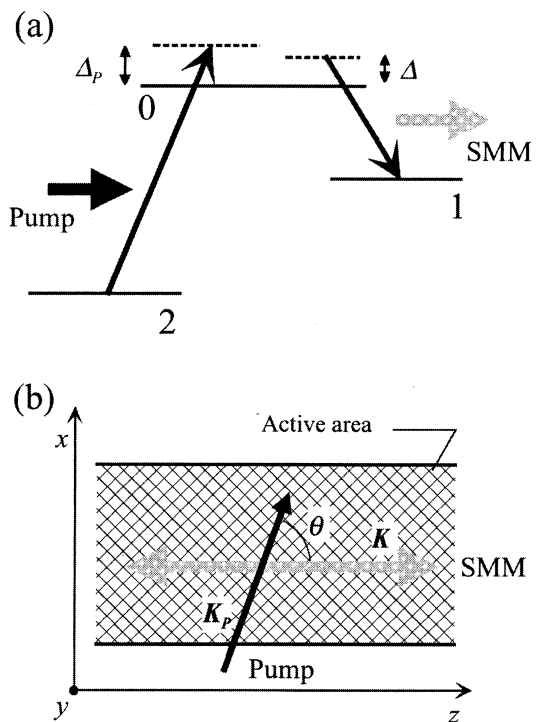


Fig.8 An energy scheme (a) and a geometrical model (b) of the optically side-pumped CH₃OH laser.

軸、そしてこれらに垂直にx軸をとる座標系を考えると、波数ベクトル \mathbf{K}_p は、縦方向光励起では(0, 0, K_p)である。ここで $K_p = |\mathbf{K}_p|$ である。また、横方向光励起では、共振器光軸と \mathbf{K}_p の為す角度を θ とすると、 $\mathbf{K}_p = (K_p \sin \theta, 0, K_p \cos \theta)$ となる。一方、分子の遷移中心周波数と角周波数 Δ だけ異なった周波数を有するサブミリ波を考え、共振器の光軸に沿って、波数 $\mathbf{K} = (0, 0, \pm K)$ で進行するものとする。ここで、 $K = |\mathbf{K}|$ であり、正号はz軸の正方向へ進行するサブミリ波を示す。また、離調周波数 Δ は、励起光の場合と同様、サブミリ波の周波数が分子の遷移周波数より高い場合に正値とする。

このようなモデルにおいて、媒質分子の小信号利得 $g^{(\pm)}$ を次式で表すことができる¹³⁾,

$$g^{(\pm)} \propto \iiint L(\Delta - \mathbf{K} \cdot \mathbf{v}) B(\Delta_p - \mathbf{K}_p \cdot \mathbf{v}) F(\mathbf{v}) d\mathbf{v} \quad (1)$$

ここで $g^{(\pm)}$ の正号はz軸の正方向へ進行するサブミリ波に対する利得を、負号は逆方向へのそれを示す。 $\mathbf{v} = (v_x, v_y, v_z)$ は分子群の速度ベクトルである。 $F(\mathbf{v})$ は規格化したマックスウェル速度分布であり、分子の最確速度 u と規格化したガウス関数 $f(\xi) = (u\sqrt{\pi})^{-1} \exp[-(\xi/u)^2]$ を用いて、 $F(\mathbf{v}) = f(v_x)f(v_y)f(v_z)$ と表される。また、ローレンツ型関数 $L(\xi)$ と $B(\xi)$ は、それぞれ

$$L(\xi) = \gamma_{01}^2 / (\xi^2 + \gamma_{01}^2) \\ B(\xi) = \frac{\gamma_{02} \beta^2}{\gamma_0 [\xi^2 + \gamma_{02}^2 + 2\gamma_{02}(\gamma_0 + \gamma_2)\beta^2 / \gamma_0 \gamma_2]} \quad (2)$$

で定義する。ここで、 γ_i は準位*i*のエネルギー緩和定数、 γ_{ij} は準位*ij*間のコヒーレンス緩和定数である。また、 β は0-2準位間におけるラビ周波数であり、励起光強度 I_{PUMP} と $\beta^2 = (\mu_{02}^2 / 2\hbar^2 c_0 \epsilon_0) I_{PUMP}$ の関係にある。ここで、 μ_{02} 、 c_0 、 ϵ_0 、 \hbar はそ

それぞれ、0-2準位間の電気双極子行列の要素、真空中の光速と誘電率、プランク定数である。

横方向光励起でも縦方向光励起でも、式(1)の v_x に関する積分は実行することができ、小信号利得

$$g^{(+)} \propto \iint L(\Delta \mp K v_z) B(\Delta_p - K_p v_x \sin \theta - K_p v_z \cos \theta) \times f(v_x) f(v_z) dv_x dv_z \quad (3)$$

を得る。縦方向光励起の場合には、 $\theta = 0$ であるため、さらに v_x に関する積分も実行でき、

$$g^{(+)} \propto \int L(\Delta \mp K v_z) B(\Delta_p - K_p v_z) f(v_z) dv_z \quad (4)$$

を得る。これは既存の小信号利得の表式¹³⁾と一致する。また横方向光励起で、励起光が共振器光軸に垂直に入射する $\theta = \pi/2$ の場合には、

$$g^{(+)} \propto \int L(\Delta \mp K v_z) f(v_z) dv_z \times \int B(\Delta_p - K_p v_x) f(v_x) dv_x \quad (5)$$

となる。

4.2 利得曲線の計算結果と物理的解釈

横方向光励起の利得曲線が縦方向光励起と最も異なる点は、励起光周波数が変化するときの利得曲線の振る舞いである。Fig.9 (a)は、 CH_3OH 119 μm 線のパラメータ²²⁾と式(4)を用いて計算した縦方向光励起の利得曲線である。この場合は、励起光の離調周波数 Δ_p が増加するに従って利

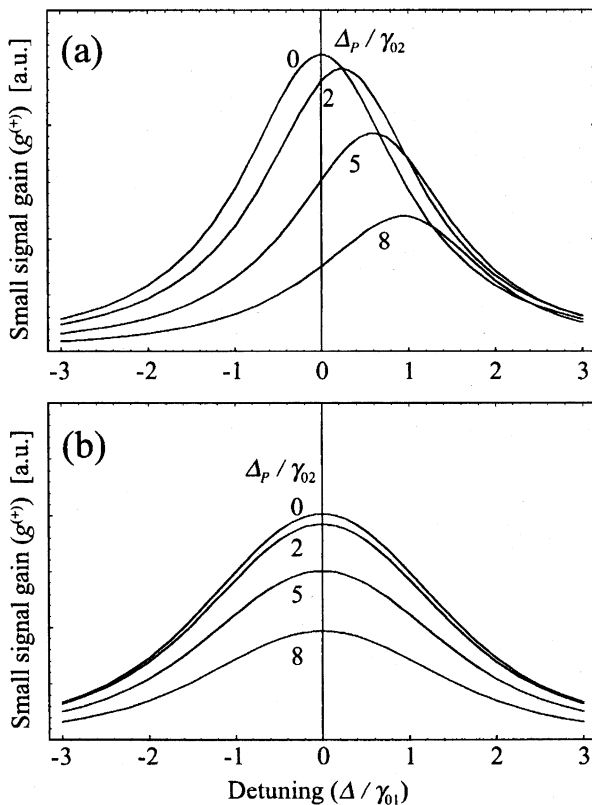


Fig.9 Small signal gain profiles calculated for an optically end-pumped (a) and a side-pumped (b) CH_3OH laser. The profiles are calculated for the operating conditions of a vapor pressure of 200 mTorr and a pump intensity of 4 W/cm^2 . Molecular constants used for the calculations are in Ref.22.

得曲線のピークがシフトする。これは、マクスウェル速度分布している分子のうち、 z 軸方向への並進速度 $v_z = \Delta_p/K_p$ を中心とする分子群がドップラー効果により共鳴し、励起されるためである。吸収線の均一広がり範囲内で励起されたこの分子群は、ほとんどその並進速度を保持してサブミリ波を放出するため、利得のピーク周波数がシフトすることになる。

Fig.9 (b)は、励起光の垂直入射($\theta = \pi/2$)を仮定して、式(5)より求めた横方向光励起の利得曲線である。この場合には、縦方向励起で見られるようなピーク周波数のシフトは生じない。この場合、 x 方向へは $v_x = \Delta_p/K_p$ の並進速度を中心とする分子群が励起されるが、 z 方向の速度分布は x 方向速度分布と独立であるため、特定の z 方向速度群が励起されるわけではない。すなわち、 z 軸の方向に沿って観測するとき、励起分子の速度分布は温度と分子量で決まるマクスウェル速度分布そのものである。その結果、励起光周波数が変化しても利得のピーク周波数はシフトせず、励起光の吸収量の変化によりピークの高さのみが変化する。 $0 < \theta < \pi/2$ の場合には、 θ が小さくなるに従って励起分子の z 方向速度分布の偏りが大きくなり、利得のピークのシフト量が大きくなる。

以上の結果は、Fig.7に示した実験結果において、横方向光励起では励起光の周波数変化に対する出力の範囲が狭い理由を説明しているように見える。励起光の離調周波数が増加するに従って、縦方向励起では利得のピークが高周波側にシフトする。従って例えば、共振器の共振周波数が遷移の中心周波数より若干高く設定されている場合は、励起光の周波数が増加する過程で、利得のピーク周波数が共振周波数を横切ることになる。そのため、励起光周波数のより広い範囲で利得が閾値を超えているように見えるものと考えられる。一方、横方向励起では、励起光の離調周波数の増加は単純に利得の減少を招き、利得が閾値を下回ったとき発振が停止する。そのため、横方向励起で発振が生じる範囲が狭いと考えられる。

横方向光励起では、分子の z 方向速度分布全体が励起されるが、実際に利得を与えるのは、サブミリ波遷移の均一広がり範囲内で共鳴した一部の励起分子である。一方、縦方向励起では z 方向速度分布の一部の分子だけが集中して励起され、そのほとんどが利得に寄与する。そのため、同じ条件で比較した場合、横方向光励起の小信号利得は縦方向光励起に比べて低下する。従って、周波数安定性の点では入射角度が大きいことが望ましいが、入射角度が垂直に近いほど利得は低下し、出力も低下することになる。ただし、実際の効率や出力は、本節で考察した利得曲線よりも、次節で述べる励起光の吸収効率と反射損失により強く依存していると考えられるので、入射角度の減少が単純に効率向上に結びつくわけではない。

以上のように、小信号利得が低下することは分子レーザーを横方向励起することのひとつの本質的な問題点と考えられる。しかし、ここでは比較的低い励起光強度を仮定したが、縦方向光励起においても、励起光パワーの増加や導波路の導入などにより励起光強度が増加する場合は、強度広がりにより吸収遷移の均一幅が広がり、やはり速度

分布全体が励起されるようになる。本研究ではこの様な高い励起入力の場合の結果は得ていないが、より高出力の励起レーザーを用いた場合には、横方向光励起の利得が縦方向光励起のそれに近づくことが期待できる。

4.3 励起光の吸収効率と反射損失

側面ミラーによって励起光を多数回反射するため、その反射損失と媒質による励起光の吸収効率は本レーザーでは重要な指標である。これららを評価するための簡易的なモデルをFig.10に示す。ここでは、励起光は単純に断面積一定で伝搬する光線として扱い、導波路内の伝搬モードなどは考えていない。Fig.10は本来ジグザグ状の励起光軸を左から右方向への直線として示したものである。励起光は光強度 I_0 で入射し、距離 d 進む毎に反射面を通過し、 n 回反射した後漏洩するものとする。このとき、媒質分子の吸収係数を α 、側面ミラーの反射率を r とし、 k 回目の反射直後の励起光強度を I_k とすると、 $I_k = I_{k-1} \exp[-\alpha d] r = I_{k-1} ar$ の関係がある。ここで、 $a = \exp[-\alpha d]$ は一つの区間の始めと終わりにおける、吸収による励起光強度の減少の比率である。励起光の断面積を s とすると、この区間において媒質に吸収されるパワー a_k と反射損失で失われるパワー r_k はそれぞれ、

$$\begin{aligned} a_k &= sI_{k-1}(1-a) = a_{k-1}ar \\ r_k &= sI_{k-1}a(1-r) = r_{k-1}ar \end{aligned} \quad (6)$$

となる。 $k=1$ から n の全ての区間において媒質に吸収されるパワーの合計値と入射パワーの比を吸収効率 $\eta_a(n)$ 、また同様に側面ミラーの反射損失の合計と入射パワーの比を全反射損失 $\eta_r(n)$ と定義すると、

$$\begin{aligned} \eta_a(n) &= \sum_{k=1}^n \frac{a_k}{sI_0} = \frac{(1-a)[1-(ar)^n]}{(1-ar)} \\ \eta_r(n) &= \sum_{k=1}^n \frac{r_k}{sI_0} = \frac{a(1-r)[1-(ar)^n]}{(1-ar)} \end{aligned} \quad (7)$$

となる。実際の反射回数 n や一区間の光路長 d は、入射角度 θ と共振器の具体的な構造に依存しているが、ここでは簡単に側面ミラーの長さ L と側面ミラーの間隔 w を用いて、 $n(\theta) = \lceil L \cos \theta / w \rceil$ および $d(\theta) = w / \sin \theta$ とする。ここで $\lceil \xi \rceil$ は ξ を超えない最大の整数を表す。

$W = 50[\text{mm}]$, $L = 400[\text{mm}]$ として、 CH_3OH の CO_2 9P(36)線に対する非飽和吸収係数 $1.5 (\text{m} \cdot \text{Torr})^{-1}$ を用いて²²⁾、媒質

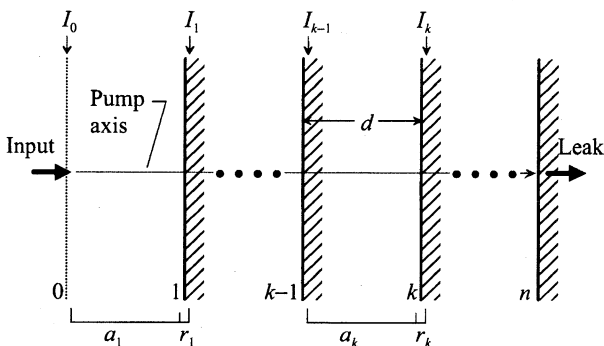


Fig.10 A schematic model for discussion on absorption efficiency and the reflection loss of pump light.

圧力を250mTorrとして求めた吸収効率と反射損失を、角度 θ の関数としてFig.11に示す。ここで、側面ミラーの反射率 r は実測値の97%を用いた。本研究では、励起の空間的均一性と励起光の垂直入射のために $\theta = 1.4[\text{rad}]$ 程度の角度で励起したが、この結果から、この角度では、分子に吸収され励起に寄与しているのは入力パワーのわずか35%程度に過ぎず、反射損失は54%にも及ぶことがわかる。より吸収係数の大きな吸収線の場合は、同じ設定でも吸収効率は増加する。例えば、同じ圧力と角度であっても、 CO_2 の9P(34)線で CH_3OH を励起した場合は、計算上、吸収効率は47%に増加し反射損失は同じ47%に低下する。しかしながら、9P(34)線で励起できる CH_3OH の既知の発振線は、本レーザーでは確認できなかった。媒質圧力を増加しても、吸収効率は増加し反射損失は低下する。例えば、9P(36)線励起でも、媒質圧力を400mTorrに増加した場合は、吸収効率と反射損失は再び同じ47%になる。しかし、Fig.5に示したように、本レーザーはこの圧力では動作しなかった。これらのことは単純な吸収効率の見積もりだけでは、このタイプのレーザーの最適化は困難であることを示している。飽和吸収および励起光のオーバーラップを考慮した励起の空間的均一性や反射回数の最適化が必要であると思われる。

空間的均一性を満足するために必要な反射回数は、入射ビームの断面形状に強く依存している。共振器内での励起分子の空間的偏りが少なく、かつもっとも反射回数が減少するような入射角度を設定することが望ましい。そのためには、TEM₀₀モードの励起光を単純に集光するのではなく、導波路と平行な方向へ扁平な非対称ガウシアンモードに整形して反射回数を減少する必要があると考える。また、最近開発が進んでいる拡散冷却を用いたスラブ CO_2 レーザーは、その放電空間の形状が本レーザーと酷似しており、本レーザーに適した形状の励起光を発生できる可能性が高い。スラブ CO_2 レーザーが小型高出力であることも併せて、本レーザーとの高い整合性が期待できる。

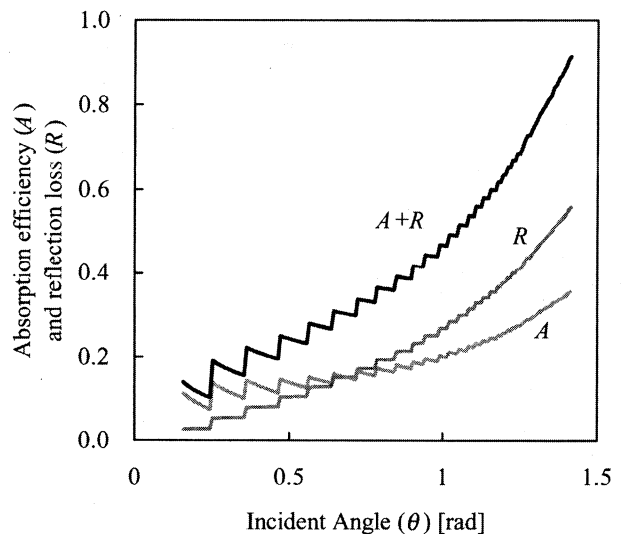


Fig.11 Absorption efficiency and the reflection loss calculated as a function of the incidence angle of pump light.

5. 結 論

従来から用いられてきた光励起分子レーザーとは全く異なった構成の横方向光励起分子レーザーを作製しその特性を測定した。このレーザーは、出力ミラーを除く導波路の大きさが、 $100 \times 488 \times 28 \text{mm}^3$ で、真空容器まで含めたサイズが $640 \times 190 \times 185 \text{mm}^3$ であり、従来の光励起サブミリ波レーザーと比較して数分の1以下にまで小型化されている。このレーザーの励起光軸は共振器光軸とほぼ直交しているため、励起光周波数の出力周波数への影響が少ないと予想され、また従来の光励起分子レーザーで問題になることが多い励起レーザーへの戻り光が全く生じない。さらに励起光によるサブミリ波窓への損傷もほとんどなく、共振器のミラー材料にも広い選択の余地を与えるものとなっている。

媒質として $^{12}\text{CH}_3\text{OH}$ を用いて、波長選択型炭酸ガスレーザーにより入射角度 1.4rad でこのレーザーを励起したところ、波長 $119 \mu\text{m}$ において出力を確認することができた。その最大出力は、媒質蒸気圧力 212mTorr 、励起パワー 13W で $39 \mu\text{W}$ であった。また、励起パワーの閾値は概ね $6 \sim 9 \text{W}$ であった。

本研究では、従来報告例の無かった、出力の媒質蒸気圧力依存性や励起光周波数依存性の測定も行った。その結果、縦方向光励起レーザーに比べて、最適圧力範囲や、励起光周波数の最適範囲が狭いことがわかった。前者は主に圧力変化による励起の不均一性、後者は主に横方向励起特有の利得特性に起因するものと考えられる。

半古典的気体レーザー理論に基づいて媒質の小信号利得を解析したところ、励起光が垂直入射する場合には、媒質分子の速度分布を介して生じる励起光周波数のサブミリ波周波数への影響が消失することを確認できた。また、簡易的なモデルを用いて励起光の吸収効率と側面ミラーによる反射損失を評価したところ、本研究でレーザー発振を確認した条件下では吸収効率は35%に過ぎず、反射損失は54%にもおよぶことがわかった。励起の空間的均一性の改善とあいまって吸収効率の改善は今後の大きな課題である。

本研究で製作した横方向光励起 CH_3OH レーザーは、従来の縦方向光励起に比較して非常にコンパクトなものと

なっている。しかし現時点では、残念ながら、横方向光励起が潜在的に備えていると思われるその他の様々な利点を実際に確認するには至っていない。これは、やはり励起の最適化設計が為されていない点が最も大きな問題点と思われる。励起光のビーム形状やオーバーラップを考慮した励起光路の最適化設計が最重要課題である。

参考文献

- 1) T. Y. Chang and T. J. Bridges: *Opt. Commun.* **1** (1970) 423.
- 2) T. Y. Chang, T. J. Bridges, and E. G. Burkhardt: *Appl. Phys. Lett.* **17** (1970) 249.
- 3) S. Jacobsson: *Infrared Physics* **29** (1989) 853.
- 4) J. Farhoomand and H. M. Pickett: *Int. J. Infrared and Millimeter Waves* **8** (1987) 441.
- 5) A. Harth: *Optical and Quantum Electron.* **24** (1992) 1339.
- 6) T. Hori and N. Hiromot: *Int. J. of Infrared and Millimeter Waves* **13** (1992) 483.
- 7) S. Okajima, Y. Naitou, K. Kawahata, A. Ejiri, and K. Tanaka: *Proc. the 19th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves*, Sendai (1994) 161.
- 8) 岡島 茂樹, 川端 一男, 江尻 晶, 田中 謙治, 伊藤 康彦: レーザー学会研究報告 **RTM-96-1** (1996) 1.
- 9) 黒澤 富蔵, 三木 幸信, 大苗 敦, 作間 英一: レーザー研究 **19** (1991) 746.
- 10) 秋元 義明: レーザー研究 **21** (1993) 1226.
- 11) J. O. Henningsen: *Infrared and Millimeter Waves* **5** ed. K. J. Button (Academic Press, New York, 1982) p.47.
- 12) R. A. Wood, A. Vass, C. R. Pidgeon, and W. J. Firth: *Opt. Commun.* **35** (1980) 105.
- 13) K. Matsushima, N. Higashida, N. Sokabe, and T. Ariyasu: *Opt. Commun.* **117** (1995) 462.
- 14) K. Matsushima, K. Hirata, T. Ariyasu, and N. Sokabe: *Opt. Commun.* **130** (1996) 272.
- 15) K. Matsushima, N. Togawa, Y. Horiuchi, and N. Sokabe: *Proc. the 19th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves*, Sendai (1994) 174.
- 16) C. R. Pidgeon, W. J. Firth, R. A. Wood, A. Vass, and B. W. Davis: *Int. J. of Infrared and Millimeter Waves* **2** (1981) 207.
- 17) A. Vass, B. W. Davis, W. J. Firth, and C. R. Pidgeon: *Appl. Phys.* **B29** (1982) 131.
- 18) B. Dahmani and A. Clarion: *Int. J. of Infrared and Millimeter Waves* **5** (1984) 1053.
- 19) J. Heppner and C. O. Weiss: *Appl. Phys. Lett.* **33** (1978) 590.
- 20) D. K. Mansfield, A. Semet, and L. C. Johnson: *Appl. Phys. Lett.* **37** (1980) 688.
- 21) I. A. Ramsay and J. J. Degnan: *Appl. Opt.* **9** (1970) 385.
- 22) J. Heppner, C. O. Weiss, U. Hübner, and G. Schinn: *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-16** (1980) 392.