

## レーザーオリジナル

## 光励起遠赤外リングレーザー出力の方向特性

松島 恭治\*・曾我部 伸\*\*・村井 昭\*\*・有安 富雄\*

(1991年1月24日 受理)

## Direction Characteristics of an Optically Pumped Far Infrared Ring Laser Emission

Kyoji MATSUSHIMA\*, Noburu SOKABE\*\*, Akira MURAI\*\* and Tomio ARIYASU\*

(Received January 24, 1991)

Direction characteristics of emission have been observed on an optically pumped far-infrared (FIR) ring laser. The FIR output from a  $\text{CH}_3\text{OH}$  laser is emitted in only a direction depending on the tuning of the FIR cavity. This phenomenon is analyzed theoretically by a 3-level laser model supported by a well-known 2-mode laser theory. The model explains the directionality of the FIR output for significant pump detunings and for small pump powers. The model also predicts that bidirectional emission occurs for large pump powers or for small detunings of the pump transition.

**Key Words:** Optically pumped FIR laser, Ring laser, 2-mode laser, Unidirectionality, Mode competition.

## 1. まえがき

レーザー光の高い単色性とコヒーレンスを利用した回転運動検出用の高感度干渉計はRosenthalにより着想され<sup>1)</sup>1963年にMacek達によってHe-Neリングレーザーとして実現された<sup>2)</sup>。その後、幾多の技術的改良を経てレーザージャイロとして実用化の道を進んだことはよく知られている。これらのリングレーザーは互いに逆方向に進行する二つのレーザー光の干渉効果を利用することにその本質がある。また他方で、近年定常発振色素レーザーにおいて単一方

向のみで発振するリングレーザーが開発され<sup>3)</sup>、実用的に用いられている。これは、一つの方向に進行するレーザー光をリング共振器内に挿入したファラデー素子により抑圧し、共振器内のレーザー光波を単一方向の進行波としたものである。この場合のリング共振器利用の目的は、光定在波による反転分布密度の空間的ホールバーニングを除去し、出力特性の改善を図ることにある。

一方、1978年にはHeppner等が遠赤外共振器に入射する赤外レーザー励起光が同じ経路をたどって励起レーザーに再入射するのを防ぐ目的

\* 関西大学工学部電気工学教室 (〒564 吹田市山手町3-3-35)

\*\* 大阪市立大学工学部応用物理教室 (〒558 大阪市住吉区杉本3-3-138)

\* Department of Electrical Engineering, Kansai University (3-3-35 Yamate-cho, Suita 564)

\*\* Department of Applied Physics, Osaka City University (3-3-138 Sugimoto, Sumiyoshi-ku, Osaka 558)

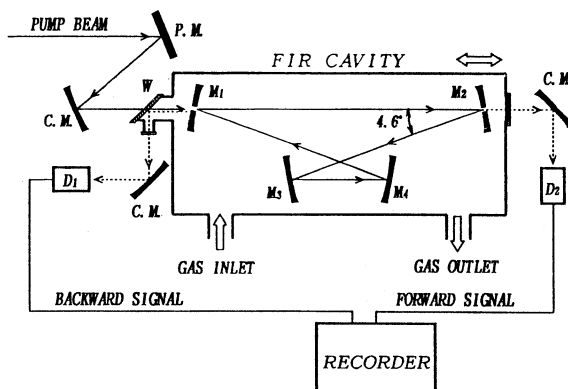


Fig.1 Experimental setup of an optically pumped FIR ring laser. P. M., plane mirror; C. M., concave mirror; W, NaCl window; D<sub>1</sub>, Golay cell; D<sub>2</sub>, pyroelectric detector.

で光励起遠赤外リングレーザーを開発している<sup>4)</sup>。彼らは、このレーザーでは色素レーザーにおけるファラデー素子のような特別な機構無しで自発的に共振器内のレーザー光波が単一方向の進行波として発振し、またその進行波の方向が共振器の共振周波数に依存して切り替わることを報告している。これらの現象はすでに Heppner等によって、励起遷移の離調によりそれぞれの方向の進行波に対する利得曲線のピークが一致しないためであるとして定性的に説明されている<sup>4)</sup>。しかし、実際には利得曲線の不一致はごくわずかであり、それだけでは双方向に発振しないことを説明できない。

本研究では、まず光励起CH<sub>3</sub>OHリングレーザーを用いて出力放出方向のスイッチング現象の観測を行った。さらに光励起遠赤外リングレーザーの三準位模型に2モードレーザーの理論を適用することにより、この現象の解析を試みた。以下では、これらの結果を示し、自発的な単一方向発振現象とその方向のスイッチング現象が、励起の強度及び励起レーザー光と励起遷移の離調に依存していることを示す。

## 2. 光励起遠赤外リング共振器と実験装置

実験装置の構成をFig. 1に示す。実験に用いた遠赤外リング共振器はM<sub>1</sub>~M<sub>4</sub>の4枚のミラーで構成している。各ミラーは同一の曲率半

径5mを持ち、M<sub>1</sub>とM<sub>2</sub>にはその中央部に直径2mmの開口を設けた。図に示したように変形8の字状の光路となるように4枚のミラーを配置し、M<sub>1</sub>の開口上に焦点を結ぶ凹面ミラーを用いて励起光を導入し、遠赤外出力はM<sub>1</sub>またはM<sub>2</sub>の開口から取り出した。以下ではこれらの出力のうち、励起光と同じ方向に進行するものを、すなわちM<sub>2</sub>の開口から放出されるものを前方出力と呼び、逆方向に進行しM<sub>1</sub>の開口から放出されるものを後方出力と呼ぶ。後方出力は励起光入射用のNaCl窓の表面反射を用いて取り出している。またM<sub>2</sub>を精密ステージ上に設置することにより共振器長を変化させた。

この実験では、遠赤外レーザー活性媒質のなかでも最も多くの発振線が報告されているCH<sub>3</sub>OHを用い、CO<sub>2</sub>レーザーの9P(36)線の励起により119μm線を発振させた。また前方出力の検出には焦電素子を、後方出力の検出にはGolay cellを使用した。

## 3. 出力放出方向の観測結果

遠赤外リング共振器のM<sub>2</sub>を微動し、共振器長を変化したときの前方と後方それぞれの出力強度の相対的な変化をFig. 2 (b)に示す。後方出力に対しては上向き、前方出力に対しては下向きに出力が大になるように描いてあり、共振器長の変化を共振周波数の変化に換算して書き

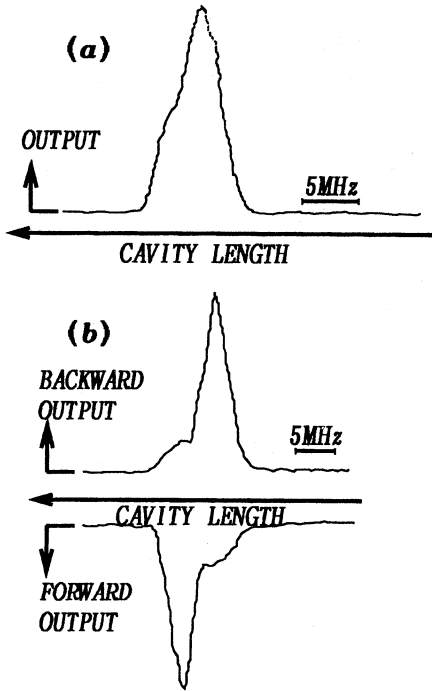


Fig.2 Cavity tuning curves of a 119  $\mu\text{m}$   $\text{CH}_3\text{OH}$  laser with a Fabry-Perot cavity (a) and a ring cavity (b). The  $\text{CH}_3\text{OH}$  vapor pressure was 130m Torr and the pump power was 8 W.

入れた。また、比較の為に  $M_1$  と  $M_2$  を対向させた Fabry-Perot 型遠赤外共振器で観測した出力の変化を Fig. 2 (a) に示す。(a) では遠赤外遷移の中心周波数を中心としたほぼ対称な出力曲線であるのに対し、(b) では低周波数側に前方出力のピークがあり、高周波数側に後方出力のピークがある。この出力放出方向の変化は実験条件に関らず必ず起きるようであるが、その出力放出方向と共振周波数の関係は、励起光の周波数を変化することにより逆転する場合もある。またこの変化はかなり急峻に起きるが、検出系の応答速度が十分でなく、同調曲線にはそれはあまりはっきりとは現れない。さらに、Fig. 1 の共振器中に示したようにミラー  $M_1$ ,  $M_2$  での入射光と出射光の角度差は実際の装置ではわずかに  $4.6^\circ$  にしか過ぎない。したがって、この角度差で  $M_2$  側にも後方出力を、また  $M_1$  側にも前方出力を放出している。実験では、 $M_1$ ,

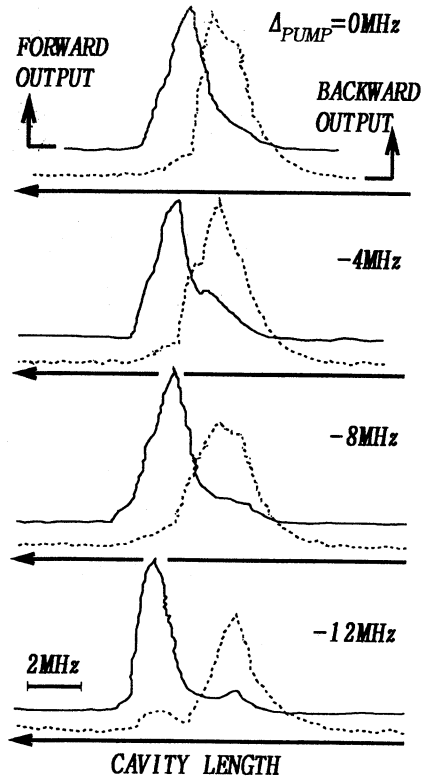


Fig.3 Cavity tuning curves of forward (solid line) and backward (broken line) emissions for different pump detunings. The  $\text{CH}_3\text{OH}$  pressure was 130m Torr and the pump power was 6 W.

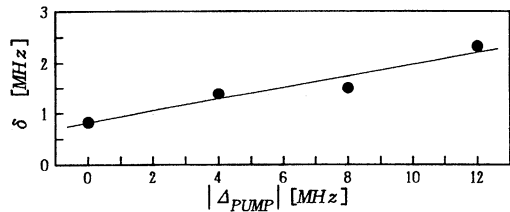


Fig.4 Frequency difference between the dominant peaks of the forward and backward outputs vs. pump detuning.

$M_2$  の開口から検出器まで十分に長い光路長をもたせ、また別の開口をその光路中に挿入するなどの方法で、この不要な逆方向出力が検出器に入射するのを阻止するようにしているものの、波長が長いと回折によりいくぶん入射し

ている可能性が強い。実際、前方出力のピークで検出される弱い後方出力は前方出力の回折光で、その逆の場合の弱い前方出力は後方出力の回折光であるものと考えられる。これは、これらの弱い信号が光路に挿入する開口の径や検出器自体の位置に強く依存していることから裏付けられている。

この現象が励起光の周波数と励起遷移の中心周波数との離調に起因していると考えられることから、離調  $\Delta_{PUMP}$  をパラメータとして同様の出力曲線を測定したのが Fig. 3 である。 $\Delta_{PUMP}$  の絶対値が大きくなるに従ってそれぞれの方向の出力ピークの分離が大きくなっている。但し、 $\Delta_{PUMP}$  の値は次第で用いる励起離調  $\Delta_P$  とは異なり、励起光の吸収が最大となる離調を  $\Delta_{PUMP} = 0$  としている。CO<sub>2</sub> レーザーの 9P (36) の中心周波数が CH<sub>3</sub>OH の吸収線  $\nu_5^q Q$  (018, 16) のそれに対して約 -24MHz のオフセットを持っているため<sup>5)</sup>、吸収線の中心では励起レーザーの出力は発振周波数に対して大きな勾配を持っている。そのため、吸収が最大となる周波数が必ずしも吸収線の中心とは一致せず、CO<sub>2</sub> レーザーの中心周波数側にシフトしている。このシフトの大きさは励起レーザーの動作に依存して多少変化する。

両方向の同一曲線のピークの分離の大きさ  $\delta$  を  $\Delta_{PUMP}$  に対して示したのが Fig. 4 である。この関係はほぼ直線となり、その勾配の大きさは約 0.12 である。

#### 4. 光励起遠赤外リングレーザーの三準位模型と半古典論による解析

##### 4.1 三準位模型

三準位模型レーザーの理論解析はすでに古くからなされているが<sup>6)</sup> 本稿ではリングレーザーの特徴である前後方向の進行波を独立に取扱、また最終的に三次近似理論による 2 モードレーザーの安定性解析<sup>7)</sup> を利用することを念頭に置いて解析を進める。

本稿で用いる準位模型を Fig. 5 に示す。ここで励起遷移は 2 - 0 準位間で、遠赤外レーザー

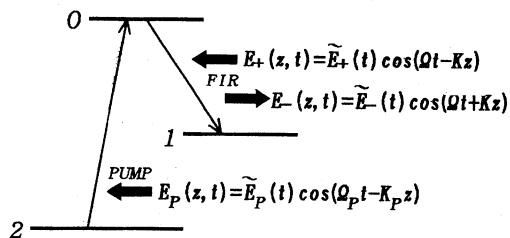


Fig.5 Energy-level scheme and designation of electric fields associated with the pump ( $E_P$ ) and forward ( $E_+$ ) and backward ( $E_-$ ) FIR radiation fields in an optically pumped FIR ring laser.

発振は 0 - 1 準位で起きるとする。また、1 - 2 準位間の遷移は禁制である。この媒質と相互作用する光の電界を、

$$E = E_+ + E_- + E_P \quad (1)$$

とする。ここで、 $E_{\pm}(t, z)$ 、 $E_P(t, z)$  の定義は Fig. 5 中で与えており、 $E_+$  は  $E_P$  と同方向、 $E_-$  は  $E_P$  と逆方向に進み、それぞれ  $\tilde{E}_{\pm}(t)$ 、 $\tilde{E}_P(t)$  を振幅とする進行波とする。すなわち、添え字 + は前方、- は後方、P は励起光に対応している。いま簡単化のため、前後方向の光の周波数と波数は互いに等しいとし、遠赤外光と励起光の、角周波数をそれぞれ  $\Omega$ 、 $\Omega_P$ 、又波数を  $K$ 、 $K_P$  で表す。

このとき媒質の密度行列の要素は次の方程式に従う。

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{00} = & -\gamma_0(\rho_{00} - \rho_{00}^0) \\ & -iE\hbar^{-1}\mu_{01}(\rho_{01} - \rho_{01}^*) \end{aligned} \quad (2-a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{11} = & -\gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^0) \\ & -iE\hbar^{-1}\mu_{01}(\rho_{01} - \rho_{01}^*) \end{aligned} \quad (2-b)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{22} = & -\gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) \\ & +iE\hbar^{-1}\mu_{02}(\rho_{02} - \rho_{02}^*) \end{aligned} \quad (2-c)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{01} = & -(\gamma_{01} + i\omega) \rho_{01} - iE\hbar^{-1}\mu_{01} \\ & (\rho_{00} - \rho_{11}) + iE\hbar^{-1}\mu_{02}\rho_{12}^* \end{aligned} \quad (2-d)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{02} = & -(\gamma_{02} + i\omega_P) \rho_{02} - iE\hbar^{-1}\mu_{02} \\ & (\rho_{00} - \rho_{22}) + iE\hbar^{-1}\mu_{01}\rho_{12} \end{aligned} \quad (2-e)$$

$$\rho_{12} = -[\gamma_{12} + i(\omega_P - \omega)] \rho_{12} + iE\hbar^{-1}(\mu_{01}\rho_{02} - \mu_{02}\rho_{01}^*) \quad (2-f)$$

ここで、 $\dot{\cdot} \equiv d/dt$ で、また $2\pi\hbar$ はプランク定数である。 $\gamma_i$ は準位 $i$ の分布数密度の緩和定数、 $\gamma_{ij}$ は $i$ - $j$ 準位間のコヒーレンスの緩和定数である。また $\gamma_{ij}$ は電気双極子能率の行列要素、 $\omega$ と $\omega_P$ はそれぞれ遠赤外レーザー遷移と励起遷移の中心角周波数を表す。

(2-a)～(2-f)に対して、次の置き換えを行う。

$$\rho_{01} \equiv \sigma_{01+} \exp[-i(\Omega t - Kz)] + \sigma_{01-} \exp[-i(\Omega t + Kz)] \quad (3-a)$$

$$\rho_{02} \equiv \sigma_{02} \exp[-i(\Omega_P t - K_P Z)] \quad (3-b)$$

$$\rho_{12} \equiv \sigma_{12+} \exp[-i[(\Omega_P - \Omega)t - (K_P - K)Z]] + \sigma_{12-} \exp[-i[(\Omega_P - \Omega)t - (K_P + K)Z]] \quad (3-c)$$

さらに、回転波近似を用いることにより<sup>8)</sup>,

$$\dot{\rho}_{00} = -\gamma_0(\rho_{00} - \rho_{00}^0) - i\alpha_+(\sigma_{01} - \sigma_{01}^*) - i\alpha_-(\sigma_{01-} - \sigma_{01-}^*) - i\beta(\sigma_{02} - \sigma_{02}^*) \quad (4-a)$$

$$\dot{\rho}_{11} = -\gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^0) + i\alpha_+(\sigma_{01+} - \sigma_{01+}^*) + i\alpha_-(\sigma_{01-} - \sigma_{01-}^*) \quad (4-b)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^0) + i\beta(\sigma_{02} - \sigma_{02}^*) \quad (4-c)$$

$$\dot{\sigma}_{01\pm} = -\gamma_{01}\sigma_{01\pm} + i(\Delta \mp Kv)\sigma_{01\pm} - i\alpha_{\pm}(\rho_{00} - \rho_{11}) + i\beta\sigma_{12\pm} \quad (4-d)$$

$$\dot{\sigma}_{02} = -\gamma_{02}\sigma_{02} + i(\Delta_P - K_P v)\sigma_{02} - i\beta(\rho_{00} - \rho_{22}) + i\alpha_+\alpha_{12+} + i\alpha_-\alpha_{12-} \quad (4-e)$$

$$\dot{\sigma}_{12\pm} = -\gamma_{12\pm}\sigma_{12\pm} + i[(\Delta_P - \Delta) - (K_P \mp K)v]\sigma_{12\pm} + i\alpha_{\pm}\alpha_{02} - i\beta\sigma_{01\pm} \quad (4-f)$$

を得る。ここで、 $\Delta = \Omega - \omega$ 、 $\Delta_P = \Omega_P - \omega_P$ はそれぞれ遠赤外光、励起光の離調であり、また $2\alpha_{\pm} = \mu_{01}\tilde{E}_{\pm}/\hbar$ と $2\beta = \mu_{02}\tilde{E}_P/\hbar$ はそれぞれ

遠赤外光と励起光の電界強度に対応するRabi周波数である。

この計算の最終的な目的は、光励起遠赤外リングレーザーの定常動作において前後方向それぞれの光強度の解の安定性を調べることにあつた。従つて、ここでは媒質分子は定常状態にあるとし、(4)式の全ての時間微分項を0とおく。また、出力放出方向の観測結果では変化が周波数軸についてほぼ対称に起きることより、本稿で取り扱う現象についてはラマン型の二光子遷移の寄与は小さいと仮定する<sup>9-10)</sup>。この結果、速度 $v$ と $v+dv$ の間の分子群の反転分布密度は

$$N(v)dv \equiv (\rho_{00} - \rho_{11})dv = \frac{f_3 D^0(v) + f_1 N^0(v)}{f_1 + f_2 [L_1(\Delta - Kv)I_+ + L_1(\Delta + Kv)I_-]} dv \quad (5)$$

と求められる。ここで、

$$N^0(v)dv \equiv (\rho_{00}^0 - \rho_{11}^0)dv,$$

は遠赤外光も励起光もないときの反転分布密度であり、同様に $D^0(v)dv \equiv (\rho_{22}^0 - \rho_{00}^0)dv$ は励起遷移の分布密度差である。各係数は

$$f_1 \equiv 1 + (\gamma_{02}/2)(\gamma_0^{-1} + \gamma_2^{-1})L_2(\Delta_P - K_P v)I_P$$

$$f_2 \equiv f_1(\gamma_{01}/2)(\gamma_0^{-1} + \gamma_1^{-1}) - (\gamma_{01}\gamma_{02}/4)\gamma_0^{-2}L_2(\Delta_P - K_P v)I_P$$

$$f_3 \equiv (\gamma_{02}/2)\gamma_0^{-1}L_2(\Delta_P - K_P v)I_P$$

である。ここで $L_1(x)$ 、 $L_2(x)$ は無次元のローレンツ関数であり、 $I_{\pm}$ 、 $I_P$ は無次元の光強度である。これらの定義及び $I_P$ と実際の励起光強度 $\Delta_{PUMP}$  [w/cm<sup>2</sup>]の関係をTable Iにまとめる。

また一方で、 $\tilde{P}_{\pm}$ を各方向の遠赤外光電界によって誘起される分極の振幅とすると、

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{\pm} + (\gamma_c/2)\tilde{E}_{\pm} &= -(\Omega/2\epsilon_0)\text{Im}(\tilde{P}_{\pm}) \\ &= -(\Omega/2\epsilon_0)\text{Im}(\mu_{01} \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{01\pm} dv) \end{aligned}$$

が成り立つことから<sup>12)</sup>、(4-d)式より、

$$\begin{aligned} \dot{i}_{\pm} &= -\gamma_c I_{\pm} + \frac{\mu_{01}^2 \Omega}{2\epsilon_0 \gamma_{01} \hbar} \\ &\times I_{\pm} \int_{-\infty}^{\infty} L_1(\Delta \mp Kv)N(v)dv \quad (6) \end{aligned}$$

Table I Definitions of the quantities appearing in the present analysis.

---


$$g_{\pm} \equiv \int_{-\infty}^{\infty} L_1(\Delta \mp Kv) B(\Delta_P - K_P v) f(v) dv - \gamma_c$$

$$s_{\pm} \equiv \kappa \frac{\gamma_{01}}{\gamma_0} \int_{-\infty}^{\infty} L_1(\Delta \mp Kv)^2 B(\Delta_P - K_P v) \left[ \frac{\gamma_0 + \gamma_1}{2\gamma_1} - \frac{\gamma_{01}}{\gamma_0} B(\Delta_P - K_P v) \right] f(v) dv$$

$$c \equiv \kappa \frac{\gamma_{01}}{\gamma_0} \int_{-\infty}^{\infty} L_1(\Delta \mp Kv) L_1(\Delta \mp Kv) B(\Delta_P - K_P v) \left[ \frac{\gamma_0 + \gamma_1}{2\gamma_1} - \frac{\gamma_{01}}{\gamma_0} B(\Delta_P - K_P v) \right] f(v) dv$$

$$\kappa \equiv \frac{\mu_{01}^2 \Omega d^0}{\epsilon_0 \gamma_{01} \hbar}, f(v) \equiv \frac{\exp[-(v/u)^2]}{\pi^{1/2} u}, D^0(v) \equiv d^0(v) \equiv d^0 f(v)$$

$$L_1(x) \equiv \frac{\gamma_{01}^2}{x^2 + \gamma_{01}^2} L_2(x) \equiv \frac{\gamma_{02}^2}{x^2 + \gamma_{02}^2}, B(x) \equiv \frac{\gamma_{02} \beta^2 / \gamma_0}{x^2 + \Gamma^2}$$

$$\Gamma^2 \equiv \gamma_{02}^2 + \frac{2\gamma_{02}(\gamma_0 + \gamma_2)}{\gamma_0 \gamma_2} \beta^2, I_{\pm} \equiv \frac{4\alpha_{\pm}^2}{\mu_{01}^2}, I_P \equiv \frac{4\beta^2}{\mu_{02}^2} = \frac{2\mu_{02}^2}{\gamma_{02}^2 \hbar^2 c_0 \epsilon_0} I_{PUMP}$$


---

となる。ここで  $\gamma_c$  は共振器損失による遠赤外光強度の減衰定数である。

いま、2モードレーザー理論を適用するために、(5)式の分母を  $I_{\pm}$  の中に展開し、最低次から2項のみで近似する。すなわち、

$$\begin{aligned} & [f_1 + f_2 [L_1(\Delta - Kv)I_+ + L_1(\Delta + Kv)I_-]]^{-1} \\ & \approx f_1^{-1} - f_2 f_1^{-2} [L_1(\Delta - Kv)I_+ + L_1(\Delta + Kv)I_-] \end{aligned} \quad (7)$$

とし、また  $N^0(v) \approx 0$  とすると、反転分布密度は、

$$\begin{aligned} N(v) dv &= [N_g(v) - N_{s+}(v)I_+ - N_{s-}(v)I_-] dv \\ N_g(v) &\equiv f_3 f_1^{-1} D^0(v) \\ N_{s\pm}(v) &\equiv f_2 f_1^{-1} N_g(v) L_1(\Delta \mp Kv) \end{aligned} \quad (8)$$

となる。ここで  $N_g(v) dv$  は遠赤外光が存在しないときの反転分布密度であり、 $N_{s\pm}(v) dv$  は遠赤外光の強度に対して線形に減少する反転分布密度の成分である。(6)式に(8)を代入することにより、遠赤外光強度に関して、

$$\dot{I}_+ = I_+ (g_+ - s_+ I_+ - c I_-) \quad (9-a)$$

$$\dot{I}_- = I_- (g_- - s_- I_- - c I_+) \quad (9-b)$$

を得る。各係数  $g_{\pm}, s_{\pm}, c$  の定義を Table I に示した。

#### 4.2 2モードレーザー理論と解の安定性

前節で得られた(9)式によれば、係数  $c$  が0の場合には前方光と後方光は独立に振る舞い、相互に全く干渉しない。この場合の光強度  $I_{\pm}$  の振舞いは単一モードレーザーのそれに等しくなる。従って係数  $c$  は前後方向の光強度間の結合係数の役割をはたしている。また、 $g_{\pm}$  は各方向に対応した線形純利得であり、同様に  $s_{\pm}$  は飽和係数と考えられる。

励起の離調が  $\Delta_P / 2\pi = -8$  [MHz] で、本実験での推定励起光強度  $2 \text{ W/cm}^2$  の場合の前後両方向の線形純利得曲線を Fig. 6 (b) に図示した。この計算に用いた定数を Table II に示す<sup>13)</sup>。なお、 $\gamma_c$  と  $\kappa$  の比は観測した同調曲線と計算が会うようにその値を定めている。また今、仮に  $c = 0$  として両方向が独立に発振するものとする、 $g_{\pm} > 0$  ならば0以外の安定な定常解  $I_{(s)\pm} = g_{\pm} / s_{\pm}$  が存在する。この定常解の計算値を Fig. 6 (a) に示した。Bの領域では単一の方向のみが正の純利得を持つが、Aの領域では両方向とも正の純利得を持つ。もしも両方向間の結合がなく、 $c = 0$  ならば両方向が同時に発振するはずであるが、実際には方向間の結合 ( $c \neq 0$ ) が存在し、そのため実験で示したような出力放出方向の変化が生じていると考えられる。この場合の定常解の安定性は単純ではない

Table II Cavity and molecular parameters used for numerical calculations. Note that dephasing is neglected, i.e.  $\gamma_{02} = (\gamma_0 + \gamma_2)/2$ .

Cavity decay constant	$\gamma_c / \kappa$	$1 \times 10^{-2}$	
Molecule	$^{12}\text{CH}_3\text{OH}$		
FIR wavelength	$\lambda$	119 $\mu\text{m}$	
Pump wavelength	$\lambda_P$	9.7 $\mu\text{m}$	
Relaxation constants	$\gamma_{01}, \gamma_0, \gamma_1$	$92 \times 10^6 \text{ (s} \cdot \text{Torr)}^{-1}$	Ref. 13
	$\gamma_2$	$209 \times 10^6 \text{ (s} \cdot \text{Torr)}^{-1}$	Ref. 13
	$\gamma_{02}$	$151 \times 10^6 \text{ (s} \cdot \text{Torr)}^{-1}$	
Dipole matrix element for the FIR transition	$\mu_{01}$	$2.2 \times 10^{-30} \text{ c} \cdot \text{m}$	Ref. 13
Dipole matrix element for the IR transition	$\mu_{02}$	$4.0 \times 10^{-31} \text{ c} \cdot \text{m}$	Ref. 13
Most probable speed of molecules	$u$	395 m/s	

Table III Steady-state solutions for Eq. (9) and the conditions for their stability.

Steady solutions	Conditions for stability
(i) $I_+ = 0, I_- = 0$	$g_+ \leq 0, g_- \leq 0$
(ii) $I_+ = g_+/s_+, I_- = 0$	$\{g_+ > 0, g_- \leq 0\}$ or $\{G_+ > 0, G_- \leq 0\}$
(iii) $I_+ = 0, I_- = g_-/s_-$	$\{g_+ \leq 0, g_- > 0\}$ or $\{G_+ \leq 0, G_- > 0\}$
(iv) $I_+ = G_+/(S_+ \theta), I_- = G_-/(S_- \theta)$	$G_+ > 0, G_- > 0$

$$G_{\pm} = g_{\pm} - c g_{\mp} / s_{\mp} \text{ and } \theta = 1 - c^2 / (s_+ s_-).$$

が、(9)式が2モード発振するレーザーに対する表式とまったく同じ形であることから、ここでは2モードレーザーに対する安定性解析の結果を適用できる。

式(9)の定常解と2モードレーザーの線形化解析<sup>7)</sup>による解の安定条件をTable IIIに示した。ここで $G_{\pm}$ は有効利得、また $\theta$ は結合定数と呼ばれている。この結果によると、Fig. 6のC領域では線形純利得 $g_+, g_-$ は共に負であり、明らかに(i)の解が安定である。同様にB領域でも2方向間の結合が存在するものの、一方の純利得が正值であり、かつ他方が負であることから(ii)あるいは(iii)の解が安定である。この場合は明らかに単一方向のみが発振する。問題はA領域の前後両方向とも正の純利得を持つ領域で(iv)の解が安定かどうか、すなわち双方向の

同時発振が可能か否かに帰着する。安定性解析<sup>7)</sup>の結果によれば、結合定数 $\theta$ が1より小さいときには二つのモード間の結合は弱く、この解が安定である条件は有効利得 $G_{\pm}$ が共に正值を取ることである。本稿の解析で用いたパラメータの範囲内では常に $\theta < 1$ であるので、この結果が適用できる。

励起光の離調が励起遷移のドップラー幅 $K_{PM}$ の5分の1程度の場合の有効利得 $G_{\pm}(\Delta)$ の計算結果をFig. 7(a)に示す。この結果から、 $G_+(\Delta)$ と $G_-(\Delta)$ は $\Delta = 0$ に対して対称であり、励起光強度がおよそ $10 \text{ W/cm}^2$ よりも小さければ、離調が中心よりも高い側と低い側で $G_{\pm}(\Delta)$ の符号が逆転していることがわかる。この場合 $G_+$ と $G_-$ が同時に正值をとることはなく、従って解は(iv)が安定となることはない。すなわち、

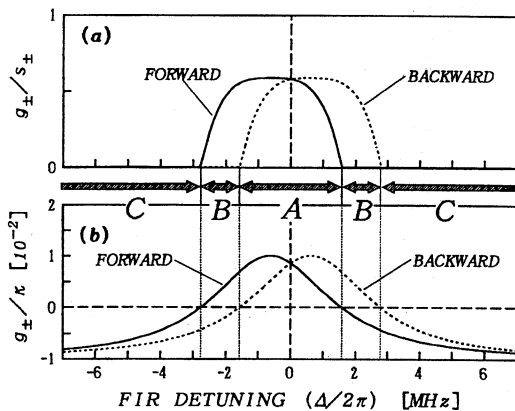


Fig.6 Unidirectional steady-state solutions for dimensionless FIR intensity (a) and net-gain (b) of the 119  $\mu\text{m}$   $\text{CH}_3\text{OH}$  laser with a ring cavity. Profiles are calculated for the laser operating at a pressure of 130 Torr and a pump detuning of  $-8$  MHz and are shown for forward (solid lines) and backward (dashed lines) emissions.

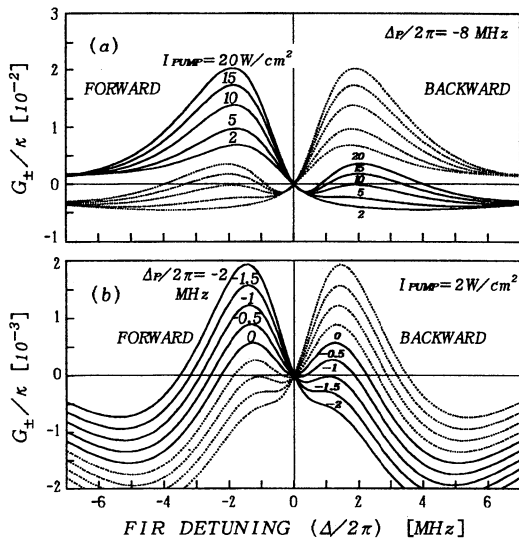


Fig.7 Effective gains calculated for different pump intensities and fixed pump detuning of  $-8$  MHz (a) and for different pump detunings and a fixed pump intensity of  $2$   $\text{W}/\text{cm}^2$  (b). The forward and the backward emission profiles are symmetric with respect to  $\Delta=0$ .

離調  $\Delta$  が負の場合は前方のみの単一方向発振が安定, 正の場合は後方の単一方向発振が安定で

ある。しかし, 励起光強度がおよそ  $10$   $\text{W}/\text{cm}^2$  よりも強い場合についてはこの関係は当てはまらず, 部分的に  $G_+$  と  $G_-$  が共に正で (iv) が安定, すなわち双方向の発振が起こり得ることが示されている。

遠赤外共振器内の励起光強度を正確に見積もることは困難であるが, 少なくとも本実験の範囲では  $I_{\text{PUMP}} \approx 10$   $[\text{W}/\text{cm}^2]$  ほど大きな励起光強度は現実的な値ではない。従って, この計算結果はここでの実験結果を支持していると思われる。

また, 励起光の強度がほぼ実験条件程度でかつ離調が小さいと仮定したときの励起光の離調に対する  $G_{\pm}(\Delta)$  曲線の変化を, Fig. 7 (b) に示した。これから励起の離調の大きさが  $1$  MHz よりも大きければ, やはり  $G_{\pm}$  の値が同時に正になることはなく,  $\Delta = 0$  を中心にして, 対称に発振方向が切り替わることがわかる。3 節で述べたように実験で  $\Delta_{\text{PUMP}} = 0$  の場合でも, 励起レーザー光の出力周波数は励起レーザーの発振線の中心よりかなりシフトし,  $\Delta < 0$  と考えられるため, Fig. 7 (b) の結果も実験結果を再現しているように見える。

### 4.3 モード競合と物理的解釈

解析結果によれば, 本実験の励起光強度と励起の離調の範囲内では光励起  $\text{CH}_3\text{OH}$  リングレーザーの双方向同時発振は安定な動作状態ではなく, 単一方向のみが発振し, またその安定な発振方向は遠赤外光の離調の符号により切り替わる。また, 遠赤外光強度が式 (7) の近似の成り立つ範囲内で励起光強度が本実験よりも十分に強い場合や, 励起遷移の離調が十分に小さい場合には双方向発振を起こすことも可能であることが示される。これらの結果は以下のような要因によると考えられる。

まず, 第一に Fig. 6 のように線形利得と飽和係数のピークが遠赤外遷移の中心からはずれる問題がある。この物理的な原因は単純である。励起遷移の中心周波数と励起光の周波数の離調  $\Delta_P$  が  $0$  でないとき, ドップラー効果により,



媒質分子群のなかでも励起光の進行方向に $v = \Delta_P / K_P$ 近傍の速度成分を持つ分子群のみが励起され、反転分布が生じる。もし、この励起分子群の速度の緩和が遠赤外レーザー発振準位の反転分布の緩和よりも十分に遅ければ、遠赤外遷移の中心周波数は再びドップラー効果によるシフトを受ける。ただし、この場合受けるシフトの符号は観測する方向によって異なっている。すなわち、励起光と同じ方向には中心周波数に対して $\Delta = Kv = (K/K_P) \Delta_P$ だけシフトした光を放出するのにたいして、励起光と逆の後方向には $\Delta = -Kv = -(K/K_P) \Delta_P$ シフトした光を放出する。このため、利得曲線のピークは遠赤外周波数軸上でそれぞれ反対方向にシフトする。その結果、 $\Delta = 0$ 以外の離調の値では、二つの方向の利得には差が生じる。ここで、前方と後方のシフト量の差は $\delta' = (2K/K_P) \Delta_P$ であるから、本実験では $\delta' / \Delta_P = 0.16$ となる。Fig. 4 から得られた両方向のピーク間隔の励起離調に対する勾配は0.12であり、ほぼ一致している。

この利得の差により一つの方向の発振が抑圧され、単一方向のみの発振状態になるためには二つの方向の発振モード間の競合が必要である。表式の上ではその役割は(9)式の結合係数 $c$ が担っており、物理的には反転分布を介して結合している。すなわち、励起され反転分布が生じている分子群は励起遷移の均一幅に対応する狭い速度範囲にあり、従って前方光が相互作用する速度群と後方光が相互作用する速度群はほぼ重なっている。換言すれば、両方向の発振は同じ速度群の反転分布によって維持されることになる。この様子を示すため、反転分布の速度曲線の計算結果をFig. 8 に示した。ここで速度はTable II の最確速度 $u$ を単位に取っている。 $N_g(v) dv$ は、式(7)に示したように、遠赤外光が存在しない場合の速度 $v$ と $v+dv$ の間の分子群の反転分布密度を表している。それに対し、 $N_{s+}(v) dv$ は同様に遠赤外レーザーが発振している場合にその遠赤外光強度に対して線形に減少する反転分布密度の大きさを示している。す

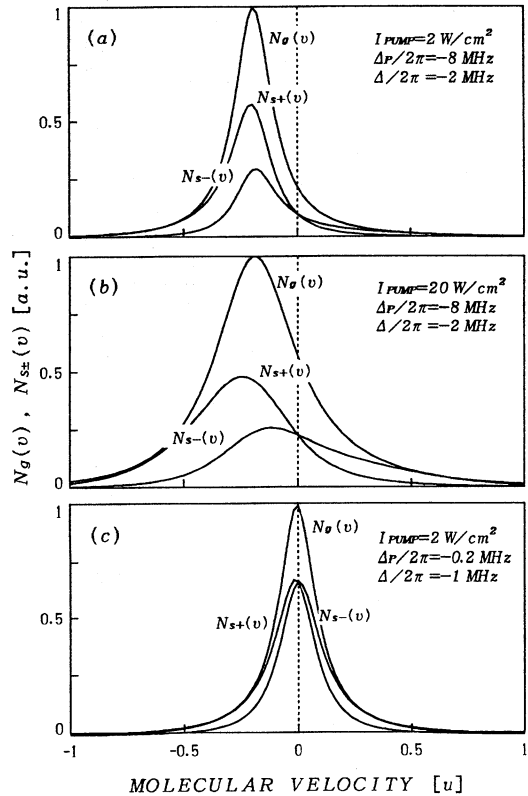


Fig.8 Inversion densities calculated for non-resonant and weak pump intensity (a), non-resonant and strong intensity (b) and nearly resonant and weak intensity (c) as functions of the molecular velocity component along the light axis in an unit of the most probable speed (u) of the molecules.

なわち、 $N_{s+}(v) dv$ と $N_{s-}(v) dv$ はそれぞれ無次元強度 $I_+ = 1$ あるいは $I_- = 1$ でレーザーが発振している時、その発振を維持するために「費やされる」反転分布密度を表していると考えられることができる。

Fig. 8 (a)はほぼ本報告の実験条件程度での計算結果である。これからわかるとおり、 $N_{s\pm}(v)$ の曲線はほぼ完全に重なり合っており、前後方向の発振は競合を起こしている。この結果、より利得の大きな方向の発振のみが安定に持続し、利得の小さな方向の発振は抑圧されると考えられる。

しかし、Fig. 7 (a)に示したように励起光強度が十分に大きければ、双方向の同時発振が起り得る。これは、飽和広がりにより励起遷移の均一幅が広がり、その結果、より広い範囲の速度群が励起され反転分布を起こしているからである。この様子をFig. 8 (b)に示す。(a)に比べると反転分布の速度分布 $N_g(v)$ の幅は広がり、そのためそれぞれの方向の発振が依存する反転分布 $N_{s_{\pm}}(v)$ の重なりは減少している。この結果、発振方向間の競合は減少し、双方向同時発振が安定に生じると考えられる。また同様に、励起光の中心周波数と励起遷移のその離調が小さい場合も、反転分布の重なりは減少し、双方向に安定に発振する。これをFig. 8 (c)に示した。この場合は、 $N_{s_{\pm}}(v)$ 曲線の対称性のため競合が弱まっているようである。

#### 4.4 $\Delta = 0$ 近傍での解の安定性と問題点

Table Iの各係数の表式からわかるとおり、 $\Delta = 0$ の場合には $g_+ = g_-$ かつ $s_+ = s_- = c$ となる。この場合、式(9)の定常解は不定となり、本報告の解析では扱えない。また、物理的には $\Delta = 0$ では、前方と後方のモード間のpushingなどの効果により両方向間で発振周波数が異なる可能性があるが、本報告の解析ではそれぞれの方向の光の周波数を初めから等しく置いていることと、光の位相を考慮していないことのためこの効果を正しく扱えない。またその結果、反転分布の脈動等の効果も完全に無視してしまっている。これらの理由のため、 $\Delta = 0$ 近傍では本稿の解析は適用できない。

#### 5. まとめ

光励起遠赤外リングレーザーの出力は単一方向に放出され、その方向は遠赤外レーザー遷移の中心周波数とリング共振器の共振周波数の離調に対して対称に切り替わる事がわかった。また、半古典論による解析に2モードレーザー理論を適用することにより、その要因が媒質分子の速度分布の偏りによる利得曲線の非対称性と二つの発振方向間の競合であることがわかつ

た。さらに、励起光の強度が十分に大きい場合や励起光と励起遷移の離調が十分に小さい場合には、発振方向間の競合が弱まり、安定な双方向同時発振が起こることを示した。

$\text{NH}_3$ リングレーザーによるローレンツカオス<sup>14)</sup>の観測<sup>15)</sup>以来、単一方向の進行波で発振する単一モードレーザーの解析や計算機実験は多数報告されているが<sup>16-17)</sup>、本報告で示したように光励起遠赤外リングレーザーは必ずしも単一方向で発振するわけではなく、それらの解析では単に単一方向発振を仮定しているに過ぎない。自発的に単一方向発振を引き起こすような精密な理論模型は、三準位で不均一広がりを考慮したものでなければならないことがわかった。

本報告における実験に多大な協力を頂いた東田憲佳氏(現、大阪市立大学工学研究科修士課程在学)に深く感謝いたします。

#### 参 考 文 献

- 1) A. H. Rosenthal: J. Opt. Soc. Am. 52 (1962) 1143.
- 2) W. M. Macek and D. T. M. Davis, Jr.: Appl. Phys. Lett. 2 (1963) 67.
- 3) S. M. Jarrett and J. F. Young: Opt. Lett. 4 (1979) 176.
- 4) J. Heppner and C.O. Weiss: Appl. Phys. Lett. 33 (1978) 590.
- 5) M. Inguscio, F. Strumia and J.O. Henningsen: in *Optically Pumped Far-Infrared Lasers*, ed. K. J. Button, M. Inguscio and F. Strumia (Reviews of Infrared and Millimeter Waves Vol.2, Plenum Press, New York, 1984) p.119.
- 6) A. Javan: Phys. Rev. 107 (1957) 1579.
- 7) M. Sargent III, M.O. Scully and W.E. Lamb, Jr.: *Laser Physics* (Addison-Wesley, Massachusetts, 1974) p.120.
- 8) 例えば、霜田光一: レーザー物理入門(岩波, 東京, 1983年) p.179.
- 9) B. J. Feldman and M. S. Feld: Phys. Rev. A5 (1972) 899.
- 10) D. Seligson, M. Ducly, J. R. R. Leite, A. Sanchez and M.S. Feld: IEEE J. Quantum Electron. QE-13 (1977) 468.
- 11) N. Skribanowitz, I. P. Herman, R. M. Osgood, Jr., M. S. Feld and A. Javan: Appl.

- Phys. Lett. 20 (1972) 428.
- 12) M. Sargent III, M.O. Scully and W.E. Lamb, Jr.: *Laser Physics* (Addison-Wesley, Massachusetts, 1974) p.100.
- 13) J. Heppner, C. O. Weiss, U. Hubner and G. Schinn: IEEE J. Quantum Electron. **QE-16** (1960) 392.
- 14) H. Haken: Phys. Lett. **A53** (1975) 77.
- 15) C. O. Weiss, W. Klische, P. S. Ering and M. Cooper: Optics Commun. **52** (1985) 405.
- 16) M. L. Shin, P. W. Milonni and J. R. Ack-  
erhart: J. Opt. Soc. Am. **B2** (1985) 130.
- 17) P. Mandel: J. Opt. Soc. Am. **B2** (1985) 112.