報 文 2

シュタルク吸収線による導波路型 CO₂
レーザーの周波数安定化と掃引

中村 拓男*, 大津 元一**, 田幸 敏治*

*東京工業大学精密工学研究所, 横浜市緑区長津田町4259(〒 227)

**東京工業大学理工学国際交流センター, 東京都目黒区大岡山2-12-1(〒 152)

(1984年12月11日受理)

Frequency Stabilization and Sweep for a Waveguide CO₂
Laser by Using Stark Absorption Lines

Takuo NAKAMURA*, Motoichi OHTSU** and Toshiharu TAKO*

*Research Laboratory of Precision Machinery and Electronics, Tokyo Institute of Technology,
4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 227**International Cooperation Center for Science and Technology, Tokyo Institute of Technology,
2-12-1, O-Okayama, Meguro-ku, Tokyo 152

(Received December 11, 1984)

A waveguide-type CO₂ laser was constructed, whose frequencies were stabilized and simultaneously swept by using Stark shifts of molecular spectral lines. The frequency of the laser was stabilized at the center of the inverted Lamb dip of a Stark line of NH₂D, and the frequency stability obtained was 1×10^{-11} at the integration time of 250s. This stability was kept when the laser frequency was then swept by slowly varying Stark electric field applied to NH₂D. The swept range was as wide as the free spectral range of the cavity (340 MHz).

1. 序 論

導波路型 CO₂ レーザーはその発振波長 9 μm 帯及び 10 μm 帯において数多くの発振ブランチがあり, また導波路に封入された媒質ガスの圧力を高くできるため, 圧力広がりにより各発振ブランチの発振周波数の可変幅をドップラー幅より大きくすることができ, しかも小型で高出力なので, 他の CO₂ レーザーに比べ分光用光源として有利である. 導波路型 CO₂ レーザーを高分解能レーザー分光用光源として用いるにはレーザー周波数の安定化が必要である. 高い周波数安定度を得るためには適当な分子ガスの飽和吸収線を用いるのがよい方法である

が, 導波路型レーザーの広い周波数可変範囲をいかすにはレーザー周波数が安定化され, かつ周波数が可変であることが望ましい. この条件に合う周波数安定化法としては周波数オフセットロック法が提案されている¹⁾. これは周波数が安定化された周波数基準となるレーザーともう一台のレーザーとの周波数差を光ビートを用いて一定となるように制御するもので, 非常に高い安定度が得られる. しかし, この方法はレーザーが二台必要であり, また光ビートを処理するために数百 MHz~数 GHz で安定に動作する信号処理系が必要のため, 導波路型レーザーの小型軽量という特徴をいかせず, 信号処理系の製作に高度の技術を必要とする. これらに対し筆者らは

既にレーザーが一台ですみ構造も比較的単純で信号処理系も低周波のものですみ簡便で実用的な方法を考案した²⁾。すなわち、導波路型 CO_2 レーザーの共振器内にシュタルクセルを設置してレーザーの周波数を分子ガスのシュタルク吸収線に安定化することにより、周波数が高度に安定化され、かつ周波数が広範囲にわたり連続的に変化できるレーザーを試作した。本研究ではこれにひきつづきレーザーの構造を改良し、周波数安定度及び周波数可変範囲を向上させることを試みたので、これらの結果につき報告する。

2. 導波路型 CO_2 レーザーの構成

Fig. 1 に試作したレーザーの構成を示す。共振器は回折格子、レンズ、導波路及び出力取出し用ミラーから構成される。レンズを用いた共振器を採用したのは、共振器内部にシュタルクセルを設置するスペースを確保し、かつできる限り共振器長を短かくして自由スペクトル域を広げ、レーザーの周波数可変幅を大きくするためである。この結果、従来の折返し型共振器²⁾の共振器長 640 mm に対し 441 mm と短くすることができた。以下に共振器の各部分を説明する。

Fig. 2 に導波路の構造を示す。この構造は堀田ら³⁾によるもので、その断面を (b), (c) に示す。(b) に示す角材

Fig. 1 Cavity configuration of the laser. A grating and a PZT are supported by a rotation stage.

Fig. 2 (a) Schematic diagram of the hollow waveguide made of Al_2O_3 ceramics. (b), (c) Cross sectional view of the ceramics.

を二個真空用接着剤で(c)のように接着し、銅製の電極を取付け、ブリースター角に切断された(a)の左端に ZnSe の窓材を取り付け中空の導波路とした。導波路の内壁は表面精度 $1\mu\text{m}$ 以下で研磨されている。導波路は放電による温度上昇より生じる利得の低下を防ぐため、Fig. 3 に示す様に黄銅製のヒートシンクの中に埋め込まれ、水道水をヒートシンク内部に循環させて冷却している。出力取出し鏡 M_1 は反射率97%の平面鏡で Fig. 3 に示す様に導波路右端より 2~3 mm のところに置かれている。図中のフランジ A~D とマイクロメーターヘッド F は鏡 M_1 の光軸調整を行なう部分である。

Fig. 4 に回折格子とその回転機構を示す。用いた回折格子の刻線数は 150本/mm、ブレイズ波長は $10.6\mu\text{m}$ である。回折格子はレーザー周波数を制御するため PZT に取付けられているが、レーザー周波数の安定化の際、PZT の伸縮による反作用を PZT を支える回転台が受ける。この力に対して回転台の軸が振動するのを極力小さくするため、回転台は Fig. 5 に示す様に回転軸を 51mm

Fig. 3 Schematic diagram for the heat sink and optical alignments of waveguide and output mirror M_1 .

Fig. 4 Top view of the rotation stage, which supports the PZT. The d. c. motor is used to smoothly change the grating angle.

間隔の二個のアンギュラー玉軸受で支える方式とし十分な剛性を得、回転軸の振動をできる限り小さくした。回折格子の向きは Fig. 4 の減速ギア付き DC モーターにより滑らかに変えることができ、容易に発振ブランチを選択することができる。

レンズは反反射防止膜付の ZnSe 製で焦点距離は 127 mm である。Fig. 1 に示す様に回折格子とレンズとの距離及

Fig. 5 Schematic diagram for the rotation shaft supported by two angular ball bearings separated by 51 mm.

Fig. 6 A stark electrode made of a glass plate. Thin films of Cr and Au are coated onto the shaded portion.

Fig. 7 Illustration for the Stark cell assembly.

び導波路左端とレンズとの距離をレンズの焦点距離と等しくした。この配置では、導波路左端より出たレーザー光はレンズと回折格子を経て再び導波路端に同じ波面となって戻り、導波路左端における結合損失が非常に小さくなる。

吸収ガスを封入するシュタルクセルは、レーザー装置全体を小型にし、さらに容易に飽和吸収信号を得るために Fig. 1 に示す様に共振器内部に設置した。セルの電極の形状を Fig. 6 に示す。BK-7 ガラス製で厚さは 15 mm、表面を 0.1 μm の精度で研摩し、斜線の部分にクロムと金を順次蒸着して電極とした。セルは Fig. 7 に示す様にシュタルク電極が真空容器の壁を兼ねる構造とし、両端には反射防止膜付の ZnSe 製窓材を光軸に対し 5 度傾けて取り付けた。電極スペーサーの厚さは 6 mm、0 級の鋼鉄製ブロックゲージを用いた。

3. レーザーの発振特性

Fig. 8, Fig. 9 に製作したレーザーの発振特性を示す。レーザー光の強度の安定性、周波数の可変範囲及び発振強度の大きさの三つの特性の兼ね合いから経験的に、媒質ガスの全圧を 71 Torr、媒質ガスの分圧比を $\text{CO}_2 : \text{Xe} : \text{He} : \text{N}_2 = 1 : 0.25 : 3.9 : 0.75$ 、放電電流は 3 mA とした。この節以降の測定はすべてこの条件下で行なわれた。Fig. 8 はレーザーの各発振線の最大発振強度である。10 μm 帯 P ブランチでは 16 本、R ブランチでは 15 本、9 μm 帯 P ブランチでは 9 本、R ブランチでは 6 本の発振が得られた。Fig. 9 は 10 μm 帯 P (20) 線の

Fig. 8 Output powers of laser lines when the laser oscillation was tuned to each line.

Fig. 9 Tuning curve of the P(20) line at $10.6 \mu\text{m}$. The free spectral range was 340 MHz.

同調曲線で、横軸はレーザーの周波数に対応する PZT に印加した電圧、縦軸はレーザーの発振強度である。P(20)線ではレーザーは共振器の自由スペクトル域の全域で発振し、周波数可変幅は 340 MHz となった。同調曲線は滑らかであり、シュタルクセルの挿入によるレーザービームの乱れがなく雑音の少ない安定な発振が得られたことを示している。

4. NH_2D のシュタルクスpekトル

シュタルクスpekトルを周波数基準として用い、高精度の周波数安定化を実現するために、本研究では NH_2D の吸収線 $(0_a, 4_{04}) - (1_a, 5_{05})$, $(0_a, 4_{04}) - (1_s, 5_{14})$, $(0_s, 4_{14}) - (1_a, 5_{24})$ の三本のシュタルクスpekトルを用いた。これらの周波数はそれぞれ CO_2 レーザーの $10 \mu\text{m}$ 帯 P(20), P(14), R(12) 線の周波数に近接している。

Fig. 10 に吸収線のエネルギー準位図を示す。吸収線の下準位 $(0_a, 4_{04})$ と $(0_s, 4_{14})$ とはわずか 644 MHz しか離れていないため近接効果⁴⁾により高電界において二次のシュタルクシフトに比して十分に大きな一次のシュタルクシフトが得られる。両準位は電界の増加に伴い互いに反発する方向へシフトし、一次のシュタルク係数は $1.45 \times 10^8 M [\text{Hz}/(\text{V}/\text{m})]$ (M : 磁気量子数 $M = -4, -3, \dots, 0, \dots, 3, 4$)⁴⁾ と大きな値となるので比較的低電界で発振線の発振周波数領域内に吸収線を同調できる。

Fig. 11 に NH_2D のシュタルクスpekトルを測定するために用いた測定系を示す。図中の Detector は液体窒素で冷却したバッテリー駆動の HgCdTe 光検出器を用いた。シュタルクセル用の高圧電源の長期的な電圧のドリフトは 200 s 間で 5×10^{-7} 程度、電圧の可変範囲は 0.5

Fig. 10 Energy levels of NH_2D . Three transitions shown by arrows were used for the frequency stabilization.

Fig. 11 Experimental set up for measuring absorption lines and the frequency stabilization.

～6 kV であり、電圧は 0.05 V/s から 50 V/s の速度で掃引することができる。吸収線の検出にはシュタルク変調法を用いた。シュタルク電界に 5 kHz の正弦波状の電界を重畳し、光検出器の出力信号をロックインアンプを用いてその三次の高調波成分を同期検波し、吸収スペクトルの三次微分信号を得た。シュタルクセルに封入する NH_2D は NH_3 と ND_3 を混合することにより得られる。 NH_3 と ND_3 の圧力比を 1:1 とし、全圧を 50 mTorr として用いた。

Fig. 12 に $10 \mu\text{m}$ 帯 P(20)線 で測定した NH_2D の飽和吸収線 $(0_a, 4_{04}) - (1_a, 5_{05})$ の三次微分曲線を示す。飽和吸収線の半値全幅は 15 MHz となり、圧力広がりから予想される幅(約 3 MHz)⁶⁾よりも大きい。この幅はレーザーの発振強度と吸収ガスの圧力を変えても変化しないことから、シュタルク電極の歪みにより幅が広がってい

Fig. 12 The third derivative signal of the saturated absorption line of NH₂D measured by the lasing P (20) line at 10.6 μ m.

ることがわかった。原因はシュタルク電極が真空容器の壁を兼ねているので、大気圧により電極に歪みが生じたためと思われる。他の二本の吸収線についても同様の測定を行ない、ほぼ同様の結果を得た。すなわち、半値全幅の値は $(0_a, 4_{04})-(1_s, 5_{14})$ については 17 MHz, $(0_s, 4_{14})-(1_a, 5_{24})$ については 18 MHz であった。

5. 周波数の安定化

まず、シュタルク電圧の値を調節することにより CO₂ レーザーの発振線の中央に NH₂D の飽和吸収線を同調して固定し、レーザーの周波数を飽和吸収線の三次微分信号の中心周波数に安定化して、レーザーの周波数安定度を測定した。飽和吸収線の三次微分信号を周波数弁別曲線として用い、Fig. 11 のスイッチ SW を閉じて周波数の制御ループを形成し、制御を行なった。制御法として PID⁹⁾制御を用いた。

Fig. 13 に 10 μ m 帯 P(20) 線の発振周波数を NH₂D の飽和吸収線 $(0_a, 4_{04})-(1_a, 5_{05})$ に安定化した際の周波数安定度を示す。吸収ガスの圧力とレーザーの発振条件は前出の通りである。安定度はロックインアンプより出力される周波数の誤差信号より得た。図の縦軸は周波数安定度を表わすアラン分散の平方根 σ 、横軸は積分時間 τ である。周波数安定度は $\tau=250$ s において 1×10^{-11} が得られ、フリーラング時に比べ $\tau=1$ s において一桁、 $\tau=100$ s において三桁、安定度の向上がみられた。他の二本の吸収線においてもほぼ同様の結果が得られた。また、この値は既報の値 5.5×10^{-11} ($\tau=250$ s) よりもよいことが確認された。

Fig. 13 Frequency stability of the laser. σ is the square root of Allan variance and τ is the integration time.

Fig. 14 Result of a continuous sweep of the laser frequency; the abssisa represents the d. c. Stark electric field, and the ordinate the PZT voltage.

6. 周波数掃引

Fig. 14 に 10 μ m 帯 P(20) 線でのレーザーの周波数掃引の様子を示す。図の横軸はシュタルク電界である。縦軸は PZT に印加した電圧であり、これは掃引されるレーザー周波数の値に対応している。また、図中の矢印は周波数掃引の方向を示す。レーザー周波数の掃引速度は 1 s 当り 0.5 MHz とした。図よりレーザーの周波数が飽和吸収線の三次微分の中心周波数に安定化されたまま飽和吸収線のシュタルクシフトに追従し、周波数が掃引されていることがわかる。曲線上に細かな凹凸があるのは PZT のヒステリシスによるものである。周波数掃引可能な周波数幅は 10 μ m 帯 P(20) 線で 314 MHz であった。これは既報の値 195 MHz⁹⁾ より大きい値になっており、

Fig. 15 Dependence of the frequency traceability on the sweeping rate.

性能の向上が確認できる。また、今回あらたに10 μ m 帯 P (14), R (12) ブランチについても周波数掃引ができ、その範囲はそれぞれ 113 MHz, 164 MHz であった。

P (20) 線ではレーザーの自由スペクトル域 (340 MHz) のほぼ全域で周波数の掃引が可能だが、P (14), R (12) ではレーザーの光強度不足のため自由スペクトル域の全域での発振が得られず可変範囲が制限された。これは、導波路形状と媒質ガスの最適化、導波路の冷却等により改善されると思われる。

Fig. 15 に掃引中のレーザー周波数の飽和吸収線の中心周波数に対するレーザー周波数の追従度と掃引速度との関係を示す。図の縦軸は追従度であり、積分時間は 10s 及び 100s とした。この図より掃引速度が約 0.1 MHz 以下ならば追従度が劣化しないことが確認できる。これは、この範囲では周波数安定化のための積分制御が十分に効いているためと考えられる。

7. ま と め

本研究では、シュタルクセルを共振器内部に設置し、レンズを用い、PZT を回転台で支えた構造の導波路型 CO₂ レーザーを試作し、この周波数の安定化及び周波数の安定な掃引を行なう技術を開発した。試作したレーザ

ーは 10 μ m 帯及び 9 μ m 帯において計 46 本の線で発振が得られ、10 μ m 帯の P (20), P (14) 及び R (12) ブランチにおいて NH₂D の飽和吸収線にレーザー周波数を安定化し、積分時間 250 s において 1×10^{-11} の安定度が得られた。NH₂D のシュタルクシフトを利用してレーザーの周波数を吸収線に安定化したまま掃引した。その掃引範囲は 10 μ m 帯 P (20), P (14), R (12) の各線でそれぞれ 314 MHz, 113 MHz, 164 MHz となった。これらの値は既報の結果²⁾ よりすぐれていることが確認できた。上の三本の線の他に、CH₃Cl⁷⁾, CH₃Br, CH₃F, NH₃, NF₃, C₂H₄F₄⁸⁾, C₂H₂F₂, PF₅ などの吸収ガスを用いれば、9 μ m, 10 μ m 帯の多くの発振線で周波数の安定化と掃引が可能であると考えられる。

本研究の一部は文部省科学研究費補助金試験研究(2)の援助を受けた。

References

- 1) Ch. Borde, M. Ouhayoun, A. Van Lerberghe, C. Salmon and S. Avriller: *Laser Spectroscopy* IV eds. H. Walter and K. W. Rothe, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 21 (Springer-Verlag, Berlin, 1979) p. 142.
- 2) T. Kunikane, M. Ohtsu, T. Nakamura and T. Tako: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **23** 600 (1984).
- 3) K. Hotta, K. Inoue and K. Washio: *Proc. Conf. Lasers and Electro-Optics Systems*, 1978, San Diego (Opt. Soc. Am. Washington, 1978 Th AA 4).
- 4) C. H. Townes and A. L. Schawlow: *Microwave Spectroscopy*. (McGraw-Hill, New York, 1955).
- 5) A. R. Johnston and R. D. S. Melville, Jr.: *Appl. Phys. Lett.* **19** 503 (1972).
- 6) M. Ohtsu, S. Katsuragi and T. Tako: *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17** 1100 (1981).
- 7) F. Shimizu: *J. Phys. Soc. of Japan* **38** 1106 (1975).
- 8) J. M. Martin, V. J. Corcoran and W. T. Smith: *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-10** 191 (1974).