レーザーオリジナル

高出力CO₂レーザーにおける可飽和吸収ガスの特性

北島 巖*・久所之夫*

(1982年7月26日 受理)

Characteristics of Gaseous Saturable Absorbers
for a High Power CO₂ Laser

Iwao KITAZIMA and Yukio KYUSHO

(Received July 26, 1982)

A few measurements were made of the saturation characteristics of the SF₆ absorption at the 10.6μm P-branch of CO₂ lasers. 1) The observed nonlinear absorption properties can be divided into two characteristic regions, namely P (12) ~ P (22) and P (24) ~ P (30), each of which has distinctive features in the measured transmission as a function of incident radiation intensity. 2) Either the gas pressure effects of SF₆, or He and N₂ gas additive effects were studied to increase the contrast ratio for the gain isolation in a CO₂ laser system. 3) The absorption spectrum was red shifted as the incident radiation intensity was increased. 4) The characteristics of the induced transmission or absorption were observed by a pump-probe technique, at the region of the probe beam P (12) ~ P (22) or P (24) ~ P (30), respectively, in coincidence with these of the nonlinear absorption.

1. はじめに

CO₂レーザー 10.6μm 帯P分枝に大きな吸収係数 ($\alpha_0 \approx 1 \text{ Torr}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$)¹⁾ をもつSF₆ ガスは従来よりCO₂レーザーのQ-スイッチング(Q-switching)²⁾, モード周期(mode locking)³⁾ や利得選別(gain isolation)⁴⁾のための可飽和吸収体としてよく用いられてきた。最近ではSF₆ にフロン系の吸収ガスを混合して吸収波長域を拡げ、レーザーパルス増幅段で発生する寄生発振(parasitic oscillation)の抑制が行われている。⁵⁾ところで、ガス分子の回転緩和、振動緩和の速さは、ガス温度、ガス圧、混合ガスの種

類などに影響されるので、低ガス圧セルを用いて低出力レーザーに対して求められた結果を、そのまま高出力短パルスレーザーの利得選別、波形整形などに用いることには困難がある。それ故、対処するレーザー光の波長、出力、波形に応じた可飽和吸収特性を把握しておくことが肝要であると考えられる。

我々は、TEA CO₂レーザーにおける若干の吸収ガスについて、その可飽和吸収特性のガス圧依存性、入射光波長依存性、添加ガス効果などを調べてきた。⁶⁾更に吸収飽和状態即ち高密度励起状態、多光子励起状態の緩和過程についても調べてきた。⁷⁾ここではSF₆の可飽和吸収特性を

* 福井大学工学部 電子工学科 (〒910 福井市文京3丁目)

* Department of Electronics, Fukui University(Bunkyo 3, Fukui 910)

改善すること、吸収飽和の機構を検討すること、 He 、 N_2 の添加ガス効果を明確にすることなどを目的として若干の実験と考察を行ったので、その結果の一部を報告する。実験としては、先づ波長可変 TEA CO_2 レーザーを用いて SF_6 の可飽和吸収の諸特性を調べることに、又それらの結果より求められる吸収スペクトルのシフトを求めることである。次にその高出力パルスレーザーをポンプ(pump)光、別に波長可変 CW CO_2 レーザーをプローブ(probe)光として用いて誘導透過(Induced transmission)、誘導吸収(Induced absorption)を調べることである。更に以上の実験を通して、吸収飽和の非線形光学過程とその励起状態の緩和過程を考察する。

2. 可飽和吸収特性 (実験 I)

ガス分子系の赤外吸収の飽和については、先づ SF_6 の CO_2 レーザー光吸収について、1969年に Wood ら⁸⁾は2準位系モデルで説明した。しかしその後、Armstrong ら⁹⁾は SF_6 の可飽和吸収特性は $10.6 \mu\text{m}$ P (26) 分枝に対しては、Huff ら¹⁰⁾が提唱した4準位系モデルで説明できると示唆した。数年後 Kaufman ら¹¹⁾は高いガス圧(100~500 Torr)の試料を用いて、P (28) に対する透過率曲線に“へこみ”の生じることを観測した。Garside ら¹²⁾も同じく SF_6 (10~100 Torr)で、 $10.6 \mu\text{m}$ 各分枝に対する透過率の入射光強度依存性を調べP (24)~P (30)の波長域では、2つの吸収過程のある4準位系モデルで説明できることを確認した。一方、Stafast ら¹³⁾はP (26)、P (28)で現われる吸収の増加即ち透過率曲線の“へこみ”は次節で述べる多光子励起における分子振動の非調和項の影響(anharmonicity)によって、吸収スペクトルが長波長側へシフトすることに起因するものだと報告している。我々は SF_6 (1~20 Torr)において、可飽和吸収特性が入射光の波長により2つの型に分れることを確認すると共に、従来まで不十分な報告¹⁴⁾しかなかった He と N_2 の添加ガス効果についても、その重要な役割と明白な相異のあることを確認した。

Fig. 1 Schematic diagram of the apparatus for the measurement of SF_6 nonlinear absorption.

2-1 実験方法

可飽和吸収特性測定の実験系を Fig. 1 に示す。高出力 CO_2 レーザーとしては、電極長 120 cm 極間距離 20 mm の自作製 Blumlein 放電管に CO_2 : N_2 : He を 1 : 1 : 3 の比率で封入し、全ガス圧 60~300 Torr を冷却のため循環させた。波長選択用回折格子 (100 本/mm) と Ge 平板出力鏡で、2 m 長の共振器を構成した。Fig. 2 で見るようにレーザー出力は緩和振動をし、半値幅は 250 ns、全出力は数 J であった。波長選択されたレーザー光を Ge レンズ ($f = 50 \text{ cm}$) で集光し、窓材として NaCl 板を用いた 14 mm 厚の吸収セルに照射した。入射レーザー光強度はゼロハン減衰器の枚数で調整した。その入射光強度は、ジュールメーター (Molelectron J3) でモニターし、透過光の波形および強度は、Au : Ge 検知器或いはパイロ検知器 (Molelectron P3-01) で測定した。主パルスは副パルスより 1 桁大きいので尖頭値よりもエネルギー密度を単位として用いた。

Fig. 2 Oscilloscope trace of incident P [20] CO_2 laser pulse. Time scale : $1 \mu\text{s}/\text{div}$.

2-2 結果と考察

吸収セル中の SF_6 ガス圧をパラメータとして $10.6\mu\text{m}$ P (20) 発振線における透過率の入射光強度即ち入力エネルギー密度依存性 (可飽和吸収特性) を Fig. 3 に示す。ガス圧を大きくすれば線形透過率 T_0 は小さくなる。ここで小信号吸収係数 (α) は低ガス圧では約 $0.4\text{ Torr}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ であった。入射光強度を大きくすれば、ある入力値より透過率が次第に増大する。ここで異った波高のパルスを選別する能力即ちコントラスト比 (contrast ratio) γ は入射光強度の比 (I_2/I_1) に対する透過率の比 (T_2/T_1) で与えられるので、ガス圧が大きい方が雑音除去の選別能力は大きい。しかし入射光エネルギー密度が 1 J/cm^2 近くでは透過率の上昇は飽和し、その飽和透過率 T_s はガス圧が大きい方が小さくなるので、利得選別には、主パルスと副パルス (雑音パルス) の出力に応じたガス圧およびセル長を選ぶ必要がある。

Fig. 3 Transmission as a function of the input energy density for the P (20) CO_2 line as a parameter of SF_6 gas pressures.

Fig. 4 は CO_2 $10.6\mu\text{m}$ P (12), P (20), P (28) 各発振線に対する SF_6 5 Torr の可飽和吸収特性を示す。Fig. 4-a は SF_6 5 Torr のみをセル内に封入したときの各発振線に対する透過率の入射光エネルギー密度依存性である。P (12) に対しては 1 mJ/cm^2 以下で既に吸収の飽和が始まっており 100 mJ/cm^2 付近では完全に飽和し、 100% 透過に近くなっている。P (20) は SF_6 の常温における吸収スペクトルのピーク P (16)

～P (18) に近いので、P (12), P (28) に比べて数倍大きい吸収係数 ($\approx 0.4\text{ Torr}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$) をもっている。それ故、P (20) に対する吸収飽和の始まりは、P (12) に比べて 1 桁近く大きなレーザー光強度で始まっている。即ち SF_6 振動準位内の特定のエネルギーに対する状態密度が大きければ、当然吸収飽和に必要な入射光強度も大きくなるものと考えられる。ここで注目すべきことは、P (28) に対する透過率曲線

Fig. 4 Transmission as a function of input energy density for the P (12), P (20), P (28) CO_2 lines at SF_6 pressure of 5 Torr, a) without any additive gas, b) with He gas additive of 50 Torr, and c) with N_2 gas additive of 50 Torr.

Table 1 Some parameters observed and deduced from the transmission as a function of the incident laser intensity: for some samples: linear transmission T_0 , and absorption coefficient α_0 , saturation Parameter I_s , contrast ratio γ , saturated transmission T_s and absorption coefficient α_s .

Gas	SF ₆	SF ₆ : He	SF ₆ : N ₂
Pressure [Torr]	5	5 : 50	5 : 50
T_0 [%]	6.3	0.67	0.18
α_0 [cm ⁻¹ · Torr ⁻¹]	0.39	0.71	0.91
I_s [W/cm ²]	6.8×10^4	5.2×10^5	4.0×10^5
γ	0.8	1.4	2.7
T_s [%] [%]	70	45	32
α_s [cm ⁻¹ · Torr ⁻¹]	0.05	0.11	0.16

でみるように、吸収が飽和する前に一度30mJ/cm²付近で吸収の増大、即ち透過率の“へこみ”がなだらかに生じていることである。

このような透過率曲線の入射光波長依存性は、He ガスを添加することにより、Fig. 4-b のように更に明確になる。即ち He (50 Torr) を添加することにより、P (12)、P (20) に対する吸収係数は2倍近く大きくなり、吸収飽和の始まりはSF₆のみのときと比べて、1桁大きい入力にシフトする。又、コントラスト比 γ も数倍大きくなる。一方 P (28) に対する透過率の“へこみ”も1桁大きな入力へ、シフトし且つ“へこみ”の深さも大きくなっている。ところで、He ガスの代りにN₂ガスを添加した場合、Fig. 4-cでみるように幾つかの点でHe ガス添加と異った結果が出ている。先づ小信号吸収係数 α_0 が更に大きくなり、透過率はSF₆のみのときと比べて数10分の1に小さくなる。それ故、コントラスト比 γ が著しく改善される。次に、P (28) に対する透過率の“へこみ”は、その位置を変えずに切れ込みが深くなる。

Table 1 に P (20) 発振線に対する透過率の入射光強度依存性について、小信号吸収係数 α_0 、飽和強度 (α_0 を $\frac{1}{2}$ にする入射光強度) I_s 、飽和吸収係数 α_s 、コントラスト比 γ などの実験値をまとめておく。以上のように He、N₂ の添加は可

飽和吸収特性の改善において非常に重要な役割をしており、かつ、He と N₂はその添加ガス効果において幾つかの点で著しく異なることが分かった。これらのことはTaylor ら¹⁴⁾の調査では実験が不十分なために明確にされなかったところのものであり、SF₆を可飽和吸収ガスとして用いる際には、留意すべきことであると考えられる。¹⁵⁾

3. 吸収スペクトルのシフト (実験II)

分子の振動準位は高い準位ほど次の準位との間のエネルギーギャップは非調和項の影響で小さくなる。¹⁶⁾又、各振動準位もその影響でスプリットして広がるので、¹⁷⁾SF₆では第6励起準位 ($\nu=6$) あたりから準連続的にエネルギー状態が重なってくる。¹⁸⁾ところで分子に強いレーザー光を照射すると基底状態 ($\nu=0$) から第1励起状態 ($\nu=1$) への吸収ばかりでなく、多光子励起によって更に高い振動状態への吸収が行われる。それ故、解離を受けない分子の吸収スペクトルでも、幾つかの準位間の吸収スペクトルの重なりとなり、入射光強度に依存して、スペクトルのピークは長波長側へシフトすると考えられる。この多光子吸収によるスペクトルのシフトはBagratashvili ら¹⁹⁾による光音響分光法で確かめられている。ここでは入射光波長を

変えて透過率の入射光強度依存性を調べた結果から、吸収スペクトルの変化を調べた。Fig. 4-aで求めたSF₆ 5 Torr 試料において、5段階の入射強度における吸収係数(Torr⁻¹・cm⁻¹)を各発振波長での透過率より計算したものが、Fig. 5の吸収スペクトルである。入射光強度が最も小さい線形吸収領域では、P(14)に吸収スペクトルのピークが現われた。入射レーザー光強度を大きくしていくと次第に吸収係数は小さくなり、長波長側へスペクトルのピークがシフトする。0.7 J/cm²の最大入力段階では、吸収は既に飽和しており、スペクトルピークはP(18)になっている。

Fig. 5 Absorption spectra of SF₆ (5 Torr) as a parameter of the input energy density.

4. 誘導透過, 誘導吸収 (実験Ⅲ)

入射レーザー光強度を大きくして、SF₆ ν₃モードの振動励起状態が飽和するように、ポンプ(励起)した後、弱いプローブ光を入射させると、その透過率は、ポンプ光がないときと比べて増大するという誘導透過が生じる。これとは反対にポンプ光の照射により、新たな吸収過程が生じれば、プローブ光透過率が減少するという誘導吸収が起る。若し2. 節の2つの波長域で生じた異った可飽和吸収特性と、このポンプ-プローブ法で調べるプローブ光透過率の変化が対応すれば、SF₆の可飽和吸収機構が更に明確になるものと期待される。

Burak ら²⁰は1969年にQ-スイッチレーザーとCWレーザーを用いて、初めてSF₆について

ポンプ-プローブ法を行なった。そしてポンプ光P(20)に対してプローブ光P(16)では誘導透過、プローブ光P(26)では誘導吸収が生じること、又、プローブ光P(20)に対してはホールバーニング(hole burning)による鋭い誘導透過パルスが観測されたことを報告している。²¹数年後には Petersen ら²²或いは、Stafast ら¹³もポンプ光としてTEA CO₂レーザーを用いてプローブ光の時間変化を調べた。Fuss ら (1978)²³はポンプ光照射後のプローブ光透過率の変化から多光子励起状態の吸収スペクトルが長波長へシフトすることを報告している。近年 Deutsch ら²⁴及び Lyman ら²⁵はポンプ光照射後の非平衡分布の時間変化について論じている。ここでは、誘導透過、誘導吸収の波長依存性、入射光強度依存性などについて調べてみる。

4-1 実験方法

可飽和吸収特性と対応させるために用いたポンプ光レーザー、試料セル、検知系などは、2-1節で述べたものと同じである。プローブ光源として、放電長1 m、出力20WのCW CO₂レーザーを用いた。回析格子(75本/mm)により波長選択を行ないPZTで可動できるGe平板出力鏡を用いて発振出力と周波数の安定化を行った。プローブ光透過信号はAu:Ge検出器およびP3-01パイロ検知器を用いた。実験系をFig. 6に示す。

Fig. 6 Schematic diagram of the apparatus for the measurements of SF₆ induced transmission and absorption by use of a pump-probe technique.

4-2 結果と考察

Fig. 7 Oscilloscope traces of SF₆ transmission behavior of the probe beam after the incidence of the pump beam. Sweep time : 1msec/div.

- a) P (20) pump-P (16) probe
b) P (20) pump-P (28) probe.

Fig. 8 Spectra of the induced transmission and absorption of the probe beam at SF₆ 5 Torr as a parameter of the pump P (20) beam energy densities.

Fig. 7 に SF₆ 5 Torr でポンプ光 P (20) に

対するプローブ光透過波形を示す。(a)はプローブ光波長がP (16) のときのものであり、(b)はプローブ光波長をP (28) にしたときのものである。(a)ではポンプ光照射後、プローブ光透過は大きくなる。即ちポンプ光照射後、振動励起状態が飽和しており、その後ゆっくり緩和するので、その間は、プローブ光透過率が増加するものと考えられる。他方(b)では、プローブ光はポンプ光照射直後、やはり透過率の増大があるものの、その後100 μ 秒後には、プローブ光透過率は減少する。このことは次のFig. 8で示すように透過率の変化が正(誘導透過)の波長域と負(誘導吸収)の波長域に分れることを表わしており、この波長区分は可飽和吸収特性の波長区分に対応する。ただし区分の境界にあたるP (24)においては、ポンプ光強度が弱いときには誘導吸収であるが、ポンプ光が強いときには誘導透過となる。このことは吸収飽和と緩和の過程が励起密度により影響されることを示唆している。ところで、エネルギーの高いP (12)~P (22)の波長域に対して誘導透過が現われるのに対し、それよりエネルギーの低いP (26)~P (30)で誘導吸収が現われるということは、どうしても新たな吸収過程が存在すると思えなければ説明のできないことである。例えば ν_6 モードへの共鳴移乗があり、そのモード内で新たな吸収が起るとも推測されている。²⁶⁾ P (20)のプローブ光透過率が特に大きいのは、その回転エネルギー準位が、ポンプ光P (20)により既に十分に飽和していることによるホールバーニングの効果によるものだと考えられる。HeとN₂の添加によって、以上の波長区分が大きく変えることはないが、N₂の添加の場合は、励起強度に依存して区分の境界がシフトする。²⁷⁾

5. 可飽和吸収モデルの考察

以上の実験結果を考察してみると、強いレーザー光入射に対してSF₆ ν_3 モードの励起状態は2つの波長区分で異った型で吸収が飽和することが分った。しかし、この異った特性は、4準位系モデルで統一的に解釈できる可能性もある。

Fig. 9 Four energy level schemes for absorption in SF_6 . The A_{ij} terms represent collisional rates. The absorption and stimulated emission rates are given by $\sigma_i I$, where σ_i is a cross section in cm^2 and I is in photons $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Saturation parameters are defined by $I_s^1 = h\nu A_{31}/\sigma_1$ and $I_s^2 = h\nu A_{42}/\sigma_2$.

Fig. 10 Transmission as a function of input intensity for the P(12), P(20), P(28) CO_2 lines at SF_6 , 5 Torr mixed with He 50 Torr. The curves represent the theoretical transmission predicted by the four-level (or two-level) model. The data points come from Fig. 4-b.

即ち、2つの吸収過程のある4準位系モデル¹⁰⁾において、極端に考えて2番目の吸収が0であるものが2準位系であるとも考えられる。Fig. 9には、分りやすくするために ν_3 モード内と ν_6 モード内の2つの吸収過程をもつ4準位系モデルを示す。図中の記号を用いれば、理論式は次のようになる。

$$\frac{dI}{dz} = -[\sigma_1(N_1 - N_3) + \sigma_2(N_2 - N_4)]I \dots (1)$$

但し、 N_i は各準位の分布密度、 σ_i は吸収断面積である。この理論式の各パラメータを適当に選んで、実験値と合致するように計算機によるシミュレーションを行った。¹⁵⁾その計算結果をFig. 10の実線で示す。実験値としては可飽和吸収特性を明確にするため、 SF_6 にHeを添加したものを選んでいる。P(28)では σ_2 ($\equiv \sigma_2/\sigma_1$)は24.3となり、 σ_2 の役割が非常に大きい。これに対してP(12)、P(20)では、 σ_2 は0.025、

0.27と非常に小さくなり、2準位系モデルとして簡単に考えてもさしつかえのないことが分る。即ち2つの波長域で2番目の吸収過程の果す役割には、非常に大きな差異がある。ここで4準位系モデルとしては、 ν_3 モード内と ν_6 モード内の2つの吸収過程が考えられるが、非調和項の影響による吸収スペクトルのシフトを考慮すれば、 ν_3 モード内の回転緩和を含んだ2段階励起も、4準位モデルとして考える必要がある。²⁷⁾

次に可飽和吸収特性における添加ガス効果について考察してみる。 SF_6 のみでもガス圧が高くなれば、レーザーパルス幅内での衝突回数が増大し、 $R \rightarrow T$ 緩和、 $V - V$ 移乗などが促進されるが、²⁸⁾Heガスの添加は更に衝突周波数と熱伝導率を高めて SF_6 の振動・回転準位の緩和を速めて吸収係数を大きくし、コントラスト比 γ を改善する。又、透過率曲線に現われる“へこみ”もなだらかではあるが深くなる。他方 N_2 ガスは質量が大きく、かつ内部に振動準位 (2331 cm^{-1}) をもっているのも、単なる緩和過程の促進だけでなく、選択的共鳴移乗を通してエネルギーのリザーバー(reservoir)となり、吸収係数の増大が生じると考えられる。それ故透過率曲線の“へこみ”はある入射光強度のところで選択的に鋭くなる。²⁹⁾

6. 結論

以上に述べた実験結果とその考察をまとめる。

- 1) SF_6 のガス圧が高くなれば、吸収係数 α_0 が大きくなり、コントラスト比 γ が改善される。

- 2) P (12) ~ P (22) の波長域においては, 2 準位系の単調な可飽和吸収特性となり, P (24) ~ P (30) においては, 4 準位系となり, 透過率曲線に“へこみ”が生じる。
- 3) He と N₂ の添加により, 吸収係数が増大し, コントラスト比 γ が格段に改善される。又, N₂ 添加は, 透過率曲線の“へこみ”を深く鋭くする。
- 4) 入射レーザー光強度を大きくすると, 吸収スペクトルのピークが長波長側へシフトする。
- 5) ポンププローブ法による誘導透過と吸収の波長区分から, 可飽和吸収特性で分れた吸収飽和のモデルの波長区分が再確認される。

尚, 現在我々は CO₂ レーザーの他の波長帯に吸収のある数種のガスについても可飽和吸収特性を調べ, SF₆ で求めた結果と比較し検討している。³⁰⁾

謝辞

本論文を達成するにあたり, 少なからぬ示唆と御協力をいただきました, 阪大, 山中千代衛教授, 井澤靖和助教授, 藤田尚徳助手に深く感謝の意を表します。本実験で用いた機器の製作, 整備, 或いは, 測定に協力された, 岡井善四郎技官, 宮守良夫君に感謝いたします。末筆ながら, 本実験遂行に御厚情, 御理解をいただきました本学, 岩 宏教授に慎んで感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) F. Shimizu: Appl. Phys. Lett., **14** (1969) 378.
- 2) O. R. Wood and S. E. Schwarz: Appl. Phys. Lett., **11** (1967) 88.
- 3) A. Nurmikko, T. A. DeTemple and S. E. Schwarz: Appl. Phys. Lett., **18** (1971) 130.
- 4) V. V. Apollonov, P. B. Corkum and R. S. Taylor: Appl. Phys. Lett., **35** (1979) 147.
- 5) R. F. Haglund, Jr., A. V. Nowak, and S. J. Czuchlewski: IEEE J. Quant. Electron., **QE-17** (1981) 1799.
- 6) 北島: レーザー学会 (1981年2月).
久所, 北島: 応用物理学会 (1981年10月).
- 7) 久所, 北島: レーザー学会 (1982年1月).
久所, 北島: 応用物理学会 (1982年4月).
- 8) O. R. Wood II, P. L. Gordon and S. E. Schwarz: IEEE J. Quant. Electron., **QE-5** (1969) 502.
- 9) J. A. Armstrong and O. L. Gaddy: IEEE J. Quant. Electron., **QE-8** (1972) 797.
- 10) L. Huff and L. G. DeShazer, J. Opt. Soc. Am., **60** (1970) 157.
- 11) Y. J. Kaufman, S. Ruschin and U. P. Oppenheim: Appl. Opt., **16** (1977) 1187.
- 12) B. K. Garside, R. S. Taylor, and E. A. Ballik: Can. J. Phys., **55** (1977) 849.
- 13) H. Stafast, W. E. Schmid and K. L. Kompa: Opt. Commun., **21** (1977) 121.
- 14) R. S. Taylor, V. V. Apollonov and P. B. Corkum: IEEE J. Quant. Electron., **QE-16** (1980) 314.
- 15) 久所, 北島: 福井大工報 **30** 2号 (1982).
- 16) N. Bloembergen: Opt. Commun., **15** (1975) 416.
- 17) C. D. Cantrell and H. W. Galbraith: Opt. Commun., **18** (1976) 513.
- 18) J. G. Black, E. Yablonovitch, N. Bloembergen and S. Mukamel: Phys. Rev. Lett., **38** (1977) 1131.
- 19) V. N. Bagratashvili, I. N. Knyazev, V. S. Letokhnov and V. V. Lobko: Opt. Commun., **18** (1976) 525.
- 20) I. Burak, A. V. Nowak, J. I. Steinfeld and D. G. Sutton: J. Chem. Phys., **51** (1969) 2275.
- 21) J. I. Steinfeld, I. Burak, D. G. Sutton and A. V. Nowak: J. Chem. Phys., **52** (1970) 5421.
- 22) A. B. Petersen, J. Tiee and C. Wittig: Opt. Commun., **17** (1976) 259.
- 23) W. Fuss, J. Hartman and W. E. Schmid: Appl. Phys., **15** (1978) 297.
- 24) T. F. Deutsch and S. R. Brueck: J. Chem. Phys., **70** (1979) 2063.
- 25) J. L. Lyman, L. J. Radziemski, Jr. and A. C. Nilsson: IEEE J. Quant. Electron., **QE-16** (1980) 1174.
- 26) U. P. Oppenheim, and P. Melman: IEEE J. Quant. Electron., **QE-7** (1971) 426.
- 27) I. Kitazima and Y. Kyusho: Opt. Commun. 投稿予定。
- 28) T. F. Deutsch and S. R. J. Brueck: Chem. Phys. Lett., **54** (1978) 258.
- 29) I. Kitazima and Y. Kyusho: unpublished.
- 30) 久所, 北島: 応用物理学会 (1982年9月) 発表予定