レーザー解説

シュタルク効果を用いた光励起サブミリ波
レーザーの安定化

阪 井 清 美*

(1987年1月8日 受理)

Stabilization of Optically Pumped Submillimeter
Laser by the Stark Effect

Kiyomi SAKAI*

(Received January 8, 1987)

Methods based on the Stark effect are reviewed for dither-free frequency stabilization of the optically pumped submm laser. The CO₂ pump laser was stabilized using either the linear absorption or the nonlinear Lamb dip of the submm laser in an external Stark cell. Estimated frequency stability ($\Delta f/f$) of the order of $10^{-8} \sim 10^{-9}$, over a period of one hour, was obtained by these methods for several CO₂ laser lines. The frequency of the submm laser was stabilized using the d.c. and a.c. Stark effects for a metal-dielectric rectangular waveguide laser. An estimated frequency stability of $\pm 6 \times 10^{-8}$ was obtained, for example, for 119 μm line of CH₃OH laser for one hour recording.

1. はじめに

サブミリ波レーザーはこの領域のコヒーレントな光源として、プラズマ計測、電波天文学、分子分光学等の分野で重宝されている。とりわけ光励起サブミリ波レーザーは、サブミリ波全領域に亘り多くの発振線が得られる事から重要である。光励起サブミリ波レーザーは最初1970年に発表されて以来、多くの研究者の研究によりまたたく間に完成度の高いものになってしまったが、実用的には未だに2つの問題が残っている。1つは戻り光の問題、他の1つは周波数、出力の安定化の問題である。これらについてもこれまでにいくつかの研究がなされて来たが¹⁾

かなり複雑なものであったり、簡単にしたためあまり効果があがらなかったりして、決め手になるものは未だ現れていない。このような状況から筆者らは比較的簡便で効果的な安定化法を確立するための研究を進めて来た。サブミリ波レーザーの周波数或は出力を安定化させる上で最も重要なことは、励起用の光源（殆どの場合CO₂レーザーが用いられる）の周波数を安定化させることである。この点についてこれまで研究がなされたいくつかを挙げると1) CO₂レーザーの利得曲線が変化しないものとして、その曲線上で最初に設定したパワーを基準として安定化を行う方法、2) 安定度の高いファブリー・ペロー型干渉計など外部共振器を使って安定

* 大阪大学工学部応用物理学教室 (〒565 吹田市山田丘2-1)

* Department of Applied Physics, Faculty of Engineering, Osaka University (Yamadaoka, Suita, Osaka 565)

化する方法, 3) 共振器内部又は外部の気体セル中に CO_2 レーザーを通し, そこからの蛍光を赤外検出器でモニターすることにより, 気体の吸収中心に安定化する方法, 或は気体セル中にマイクロフォンを入れて, 光音響効果を使って吸収中心を検出しそこに安定化する方法, 4) オプトガルバニック効果により, レーザー放電管のプラズマインピーダンスを測って安定化する方法等がある。これらの中には, 制御のため CO_2 レーザーの出力鏡を微小振動させるものともうでないものがある。出力鏡を振動させると, レーザー出力は変調を受けてリップルがのった形になり, 使いにくい場合もおこる。筆者らの方法ではこの様なリップルは現れない。

一方サブミリ波レーザーそのものの安定化についての研究は, これまで, 励起用のレーザーほど積極的にはなされてこなかった。例えばレーザー共振器のスペーサーに線膨張係数の極めて小さいものを使い, 出来るだけ伸び縮みを少なくする受動的なものであったり, CO_2 レーザーの安定化法の一つと同様, サブミリ波レーザーの同調曲線上で, 最初に設定したパワーを基準にとるものであったり, 正確に周波数を制御するものではなかった。筆者らはこのサブミリ波レーザーについても, シュタルク効果を用いて積極的に安定化を行う方法を考案した。この解説では筆者らの2つの方法, すなわち分子の吸収とシュタルク効果を用いた CO_2 レーザーの周波数安定化法と, 同じくシュタルク効果を用いたサブミリ波レーザー周波数安定化法を紹介する。

2. 光励起サブミリ波レーザーの構成

光励起サブミリ波レーザーの構成は, 励起用の CO_2 レーザーと励起されるサブミリ波レーザーから成る。Fig. 1 は筆者等の装置で, CO_2 レーザーは管径 8 mm の放電管と, ピエゾ素子にマウントされた曲率半径 10 m・反射率 60% の ZnSe 出力鏡及び 150 線/mm の回折格子より成り, 共振器長は 170 cm, 最大出力 30 W のものである。またサブミリ波レーザーとして円型の金属 (又

Fig. 1 Schematic drawing of optically pumped submillimeter lasers including the stabilization systems.

は誘電体) 導波管型共振器と, 矩型の金属-誘電体混成導波管型共振器の2種類を備えており, 鏡 M_7 又は M_9 の配置によって, そのどちらかを CO_2 レーザーで励起して使う様になっている。サブミリ波レーザーの共振器長は両方共 132 cm, 円型共振器の径は 27 mm, 矩型の方は 4 cm × 130 cm のアルミ板 2 枚を 10 mm 厚の亚克力をスペーサーにして平行に保持したもの, また両方とも中心に 3 mm の穴のあいた入力鏡と, 5 mm の穴のあいた出力鏡を持っている。他の研究者等の装置もこれと大同小異である。

3. 分子の吸収におけるシュタルク効果を用いた CO_2 レーザーの安定化

CO_2 レーザーの安定化は, Fig. 1 のシュタルクセルに CH_3OH 分子気体等, サブミリ波レーザーの活性媒質と同じ物を入れてその吸収を利用して行う。気体分子の吸収中心に CO_2 レーザーの周波数を固定する場合, シュタルク変調をかけないで行なおうとすると, CO_2 レーザー出力鏡を微小振動させなければならないが, その場合には出力にリップルが現れる。しかし分子にシュタルク変調をかけ, その変調周波数でロックイン検波すると, リップルの現れない安定化を行うことが出来る。その方法に, レーザー

Fig. 2 Illustrations showing the principles to stabilize the CO₂ laser using (A) linear absorption of the molecular gas in the d.c. and a.c. Stark fields, (B) Stark Lamb dip signal.

光をガスセル中を1回通し、セルの出力側で検出する通常の線型吸収を利用する場合と、セルの出力側に平面鏡を置いて光を折り返し、非線型な吸収のラムディップを利用する場合がある。各々の原理をFig. 2によって説明する。

Fig. 2 Aは線型の吸収を利用する場合である。気体分子を入れたシュタルクセルに適当な電場を加え、その中にCO₂レーザー光の一部を通して2 A(a)の様にセル出口の所で光を検出する場合を考える。この時検出器への入射光強度は $I = I_0 \exp[\alpha(E)l]$ で表される。但し I_0 はセルへの入射光強度、 l はセルの長さ、 $\alpha(E)$ は電場 E の関数で表される吸収係数である。吸収線はもともとドップラー拡がりを持っているが、一次のシュタルク効果を示す吸収線に於ては、電場を加えてその値を増して行くと、ピーク値が下り幅の拡がった形に変化して行く。実際的な印加電場として0~1000 V/cmを選び、その

範囲で形状を計算したものの中、適当な2つを図式的に示したものがFig. 2 A(b)で、実線は低電場、破線は高電場の場合である。また計算から上記範囲のどの2つの電場を取りあげても吸収中心の ω_0 から左右~30 MHzの位置で交叉する結果が得られた。適当な直流バイアス電圧に交番電圧を重畳しその交番周波数でロックイン検波すると、一番高い電場の時と一番低い電場の時との透過光強度の差

$$\Delta I = I_0 e^{-\alpha(E)l} - I_0 e^{-\alpha(E+\Delta E)l} = lI \frac{d\alpha}{dE} \Delta E = lI \Delta\alpha \quad (1)$$

が得られる。 $\Delta\alpha$ は2つの電場に対する吸収係数の差でFig. 2 A(c)の様に表される。0レベルと交叉する点は2 A(b)の交点に対応して吸収中心の左右~30 MHzの所に表れる。CO₂レーザーの出力鏡をマウントしたピエゾ素子に高電圧をかけて、CO₂レーザーの共振器長を変化させ同調曲線を描かせた場合、吸収セル入口での I_0 は同調曲線そのままの形となり、出口での I はこれに吸収が掛ったものになるが、気体の吸収線はドップラー拡がりにより幅は広く、また吸収の深さも余り深くない場合には(深い場合には圧力等で調整出来る) I と I_0 の形は殆ど同じ形になる。また l は定数であるので、同調曲線を描かせた時の ΔI の形はほぼ $I_0 \Delta\alpha$ の形を残すことになる。一般には同調曲線のピーク位置と吸収中心はずれているので、 ΔI は例えば2 A(d)の様な形となり、図では左側の0交叉点でロックする事になるため、吸収中心から~30 MHz離れた点で安定化する事になる。この様な方法によって安定化した一例をFig. 3に示す²⁾。図はサブミリ波レーザーの代表的な発振線の1つである、CH₃OHの119 μ m線を励起するCO₂レーザーの9 P(36)線についてのもので、シュタルクセルにCH₃OH気体を入れて安定化に使用している。安定化されたレーザー出力の周波数安定度を同調曲線とパワーのふらつきから推定すると $\pm 4.5 \times 10^{-8}$ であった。

Fig. 2 Bは非線型なラムディップを利用する場合で、2 B(a)に示す様にシュタルクセルの出

Fig. 3 Recording of output power of cw 9 P(36) CO_2 laser in the stabilized mode using linear absorption of CH_3OH gas and Stark effect, and free-running operation mode over a period of 60 min. [After S. Okajima et al.²⁾]

口に平面鏡を置いて光を折り返し、入口側で検出する配置になっている。この場合も検出器への入射光強度は $I = I_0 \exp[\alpha(E)l]$ で表されるが、 $\alpha(E)$ は $\alpha(E) = \alpha_0(E) [1 - D(E)]$ の形になる。 $\alpha_0(E)$ は線型の吸収係数、 $D(E)$ は飽和による吸収の減少を表す。 $D(E)$ は $E = 0$ の時には飽和パラメータ S とローレンツの線型関数 $L(\omega_0)$ 及び係数 $1/2$ の積で表されるが、 $E \neq 0$ の時には複雑な形になる³⁾。この場合も電場をかけずに、 CO_2 レーザーの出力鏡を微小振動させてラムディップの中心にロックをかける事が可能であるが、そうすると CO_2 レーザーの出力にリップルが生じる。それをさけるため分子にシュタルク変調をかけるが、分子の吸収が P 分枝、Q 分枝、R 分枝で形状が変わる。例えば Q 分枝の場合の一例として、シュタルク分裂したラムディップパターンが 2 B(b) の様な形状になる場合について考えると、二つの印加電場に対して図の実線と破線の様になり、その差は 2 B(c) の様になる。この場合 0 交叉点は分子の吸収中心 ω_0 の左右 ~ 3 MHz 離れた所に来る。前の方法と同様、分子に直流バイアス電圧に交番電圧を重ねて加え、その交番周波数でロックイン検波すると

$$\Delta I = II \Delta E \left[\frac{d\alpha_0(E)}{dE} \{1 - D(E)\} - \alpha_0(E) \frac{dD(E)}{dE} \right] \\ = II [\Delta \alpha_0(E) \{1 - D(E)\} - \alpha_0(E) \Delta D(E)] \quad (2)$$

に比例する電圧が得られる。(1) 式と比べるとかなり複雑な形になっているが、飽和が強くない場合 ($S \ll 1$) には $D(E) \ll 1$ となるので、前の項は Fig. 1 A(c) とほぼ同様の形で背景信号の様に作用し、 $\alpha_0(E) \cdot \Delta D(E)$ の形が浮び出る事が考えられる。この中 $\alpha_0(E)$ はドップラー幅を持った幅広いものであるから、結局分子の吸収中心付近では $\Delta D(E)$ の形になるものと思われる。そして CO_2 レーザーの同調曲線を書かせた場合には Fig. 2 B(d) の実線の様な ΔI が得られ、その 0 交叉点すなわち吸収中心から ~ 3 MHz しかはなれていない極めて吸収中心に近い点に固定させる事が可能になる。シュタルクセル中にレーザービームを通す場合、光の電界方向は Fig. 2 A(a), B(a) の様にシュタルク電場に対して垂直になっている方が、平行の場合よりも伝播損失が少く高い S/N で観測が出来る。

この様なシュタルクラムディップの方法を、シュタルク効果が顕著に現れるサブミリ波レーザー媒質の吸収線のいくつかに対して適用し、その安定度について実験的に調べたが^{4,5)}、その中から CH_3OH 気体に CO_2 レーザーの 9 P(34) 線を通した場合、 CD_3OD 気体に 10 R(12) 線を通した場合、 CD_3OH 気体に 10 R(36) 線を通した場合について Fig. 4 に示す^{5,6)}。安定度の評価については、周波数安定度が十分高い事が分っている $9 \sim 10 \mu\text{m}$ 帯のコヒーレントな光源と、安定度を調べようとする CO_2 レーザーの発振線

Fig. 4 Recordings of the output power of cw CO₂ laser stabilized using the Stark Lamb dip signal, with those for free running operation. Error signals to control the CO₂ laser are also shown. Upper 9 P(34) line, CH₃OH gas was used. Middle 10R(12) line, CD₃OD gas was used. Lower 10R(36) line, CD₃OH gas was used.

の間で、例えば MOM ダイオードなどを使ってビートを取り、その IF (中間周波) をスペクトラムアナライザーで観測すれば直接評価出来るが、筆者らにとっては容易なことではなかったので、簡便な方法として、誤差信号の振れ幅から推論した。すなわち誤差信号 ΔI の極大と極小の間の周波数差はその出来方から、圧力 (均一)

拡がりしたラムディップ信号の半値幅と同程度であるとして見積った。その際圧力係数についてのデータが各々の場合について必ずしも出そろっていなかったのが、CH₃OH の 9 P(34) 線について測られた 28 MHz/Torr という値を代表的に利用して評価を行なった。Table I にこの様にして見積った 1 時間当りの安定度とその時

Table I Summary of the estimated frequency stability of some CO₂ laser lines stabilized by means of the Stark Lamb dip method. Optimum conditions to obtain respective error signal in good S/N are added.

ガス媒質	CH ₃ OH		CD ₃ OD		CD ₃ OH
CO ₂ レーザー発振線	9 P (36)	9 P (34)	10 R (12)	10 R (24)	10 R (36)
発振周波数 (THz)	30.9	31.0	29.1	29.3	29.5
周波数ゆらぎ (kHz)	500	200	800	200	400
周波数安定度	$\pm 8 \times 10^{-9}$	$\pm 3 \times 10^{-9}$	$\pm 1.4 \times 10^{-8}$	$\pm 3 \times 10^{-9}$	$\pm 7 \times 10^{-9}$
直流電界 (V/cm)	250	250	100	200	140
交流電界 (V _{pp} /cm)	50	50	50	50	50
変調周波数 (Hz)	1 k	1 k	460	460	460
ガス圧力 (m Torr)	150	140	110	100	80

Fig. 5 Recordings of 70.5 μm and 119 μm CH₃OH laser power. The 119 μm line was recorded in free running operation, while the 70.5 μm line was recorded both in free running and in stabilized operation. For the stabilization, the slope of the tuning curve was used.

の測定条件をまとめた⁵⁾。

4. サブミリ波レーザーの周波数安定化

サブミリ波レーザーの安定化は、励起用のCO₂レーザーの周波数を安定化すれば大部分は達成される。残る部分を更に安定化するために従来、サブミリ波レーザーの利得曲線上で最初に設定した値と比較しながら制御する方法が、簡便な方法として使われて来た。先ず一般の円型導波管型レーザーを、周波数安定化したCO₂レーザ

Fig. 6 Illustrations showing the principle to stabilize the submillimeter laser by means of the d. c. and a. c. Stark effects.

ーで励起した場合の安定度、更に利得曲線を使って安定化した場合の結果をFig. 5に示す^{4,6)}。119 μm 線のパワーのふらつきは1時間当たり $\pm 2.5\%$ 、70.5 μm 線のパワーのふらつきは1時間当たり $\pm 4\%$ 、利得曲線を使って制御すると $\pm 1\%$ という値が得られた。この様な方法ではパワーの安定化は可能であるが、利得が変化する事もあるため正確な周波数の制御にはならない。

Fig. 7 Recordings of the output power of $119\text{ }\mu\text{m}$ laser line stabilized using the Stark effect and of $9\text{ P}(36)\text{ CO}_2$ laser stabilized by means of the Stark Lamb dip technique. Error signal to control the submillimeter laser is also recorded.

そこでシュタルク効果を用いた次の様な安定化法を考案した。この方法は、シュタルク変調がかけられる矩型の金属—誘電体混成型レーザー共振器を用いて行われるが、その原理をFig. 6を用いて説明する⁷⁾。この方法は電場を加えてその値を増して行くと、サブミリ波レーザーの発振線が2つのグループに分裂する様な場合 (Fig. 6 (a)) に適用出来る。サブミリ波レーザー媒質に直流バイアス電圧を加え、更に交番電圧を加えると、レーザー出力は Fig. 6 (b) の様に変化する。その交番周波数でロックイン検波をかけると、6 (c) の様に両者の交点に対応した0交叉点 (ω_A 又は ω_B) を持つ両出力の差が得られ、この0交叉点を使って安定化を行う事が出来る。この方法を実行するためには、出力の一部を取り出してモニターしながら行わなければならない。この様な安定化の実験を、よく使われる CH_3OH の $119\text{ }\mu\text{m}$ 線に対して行ない、Fig. 7の様な結果を得た^{5,6)}。図の上から、シュタルク効果により制御したサブミリ波 ($119\text{ }\mu\text{m}$ 線) レーザーパワー、サブミリ波レーザー共振

器長を制御する誤差信号、シュタルクラムディップ信号により安定化された励起用 CO_2 レーザー ($9\text{ P}(36)$ 線) のパワーの記録である。サブミリ波レーザーに加えた直流電場は 300 V/cm 、交番電場 $100\text{ V}_{p-p}/\text{cm}$ (交番周波数 460 Hz)、ガス圧 240 m Torr であった。安定度の評価は、サブミリ波レーザーの同調曲線と誤差信号のふれ幅から行い、推定値で周波数変化 $\sim\pm 150\text{ kHz}$ 、周波数安定度 $\pm 6\times 10^{-8}$ が得られた。

5. おわりに

以上シュタルク効果を用いた、励起用 CO_2 レーザーの周波数の安定化と、サブミリ波レーザーの周波数安定化について述べて来た。これらの安定化法では出力光にリップルが乗らないので、安定化された出力光は使い易いものと思われる。

筆者らは安定化法を考える上で、調整に余り手間取らない比較的簡単な方法で、高価でなく、しかも有効なものを目指した。実験的に確かめた安定度の推定値は、 CO_2 レーザー、サブミリ

波レーザーとも 10^{-8} のオーダーで、マイクロ波発振器にフェーズロックをかけた場合の安定度 ($\Delta f/f \sim 10^{-8} \sim 10^{-9}$) とほぼ同様の安定度が得られ、実用的になりうるものと思われる。

参 考 文 献

- 1) M.S. Tobin: Proc. IEEE, **73** (1985) 61.
- 2) S. Okajima, M. Yamanaka, A. Nishizawa, S. Maki-no, M. Kondo, S. Kon and J. Fujita: Infrared Phys. **25** (1985) 569.
- 3) R.A. Forber, J. Tenenbaum and M.S. Feld: Int'l J IR and MM Waves **1** (1980) 527.
- 4) 吉田, 久場, 阪井, 藤田: 応用物理, **53** (1984) 52.
- 5) 加藤嘉明: 修士論文 (大阪大学工学部, 昭和61年)
- 6) K. Sakai, T. Yoshida, K. Kuba, Y. Kato and Y. Ichioka: Int'l J. IR and MM Waves, **8** (1987).
- 7) 久場一樹: 修士論文 (大阪大学工学部, 昭和59年)