レーザーオリジナル

光励起連続発振遠赤外レーザー出力の成長過程 —— レート方程式とMaxwell-Bloch 方程式 ——

松島 恭治*・曾我部 伸*・村井 昭*

(1987年12月23日 受理)

Growth of the Output Power of an Optically Pumped CW Far Infrared Laser

—— Rate Equation and Maxwell-Bloch Equation ——

Kyouji MATSUSHIMA*, Noburu SOKABE* and Akira MURAI*

(Received December 23, 1987)

Growth of the output power of an optically-pumped CH_3OH FIR laser has been observed by an intracavity Stark-switching technique and discussed by a two-level model. The output power shows a relaxation oscillation similar to the one observed previously on many solid state lasers. The curves of growth calculated using a rate equation approximation fail to fit the observations, when the buildup time of the output power becomes comparable to or shorter than the relaxation time of polarization of the lasing medium. In that case, Maxwell-Bloch type equations, which give more precise description of the model than the rate equation, yield curves of growth in better agreement with the observations.

Key Words: Optically-pumped FIR lasers, Stark switching, Rate equation approximation, Maxwell-Bloch equation.

1. まえがき

ルビー・レーザーに代表される固体レーザーにおいてその発振出力がスパイク状になったり緩和振動を示すことは、レーザーが発明された当初よりよく知られた現象である¹⁾。この現象はStatzとde Marsのレート方程式によって解析されており、この様な現象が起きる主な要因が共振器内の光の緩和時間に比べて媒質のレーザー発振準位の緩和時間が長いためであることが

知られている²⁾。

一方、一般に連続発振の気体レーザーは、固体レーザーほどには複雑な過渡的特性を示すことは少ない。これはガス媒質のレーザー準位の緩和時間が共振器のそれに比べて短いためである。そのため一般の連続発振気体レーザーはvan der Pol方程式で記述されるスパイクや緩和振動を示さない過渡的振舞いを示す³⁾。しかし、光励起遠赤外レーザーは気体レーザーであるにもかかわらず、媒質のレーザー発振準位の緩和

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

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

時間が共振器内の光の緩和時間と同程度からより長くなることがあり⁴⁾、その場合の振舞いは固体レーザーのそれと類似していると考えられる。

また、光励起遠赤外レーザーは、ある条件下では二準位モデルで記述される均一広がりを持つ理想的な単一モードのレーザーとして動作することが知られている⁵⁾。このモデルは、レーザーの半古典的理論のもっとも単純なものであり光励起遠赤外レーザーはレーザーが示す非線形ダイナミックスの実験的研究に適しているといえる。このため、近年光励起遠赤外レーザーを用いてレーザーのカオスの研究なども行われている^{6,7)}。

レーザーの半古典的理論の近似のひとつであるレート方程式は、レーザーの過渡的現象を解析するもっとも有力な手段であり、レーザーの種類を問わず広く用いられている。この近似が成立する条件は、レーザー共振器内の光の電場や反転分布が、媒質の分極の緩和時間程度の時間スケールではほとんど変化しない⁸⁾。あるいはレーザーの利得線幅の逆数程度の時間ではほとんど変化しない⁹⁾事として知られている。しかし、それらの条件はかなり漠然としており、カオスなどのレート方程式だけでは解析できない現象の研究の進展と相まって、レート方程式に限らず広く断熱近似として理論的にその条件を明確にすることも試みられている¹⁰⁾。

実際には、例えば通常の固体レーザーにおいては 10^{-9} s より長い時間スケールの現象にはレート方程式近似が許されることが多いといわれている²⁾。これに対して、光励起遠赤外レーザーではその利得線幅はわずか数MHz程度であり、前述の条件からするとレート方程式近似が有効であるのは 10^{-7} s より長い時間スケールの現象である。連続発振の光励起遠赤外レーザーでは通常の動作条件下でもこの限界程度の時間スケールの現象を実験的に観測することは困難ではない。また、レート方程式よりも精密な理論としてMaxwell-Bloch (以下M-Bと略記する)方程式*が知られているが、我々の知る限りでは

カオス以外にこのM-B方程式が実験的にレーザーの過渡的振舞いと比較されたことはない。近年のレーザーの短パルス化あるいは変調周波数の高周波化によりレート方程式だけでは対応することが不可能になりつつあり、より精密な理論による取扱いが必要となってきた。

我々は共振器内Stark-switching法により光励起遠赤外レーザーの発振の立ち上がりの過程を観測し、得られたレーザー出力の成長曲線とレート方程式並びにM-B方程式から計算した成長曲線を比較した。その結果、レーザー出力の立ち上がり時間がレート方程式近似の条件に抵触すると考えられる場合には、観測された成長曲線とレート方程式によって理論的に計算される曲線とのずれが大きくなり、さらにその場合にはM-B方程式によって計算された成長曲線がよく一致することを確認した。

2. シュタルク・スイッチング法と実験装置

レーザー光の成長の過程を観測するためには、共振器内でQ値をスイッチする方法や励起をパルス化する方法などが考えられる。前者の方法は、遠赤外領域で有効な素子が見あたらず困難である。後者の方法は既にパルスCO₂レーザーによる方法¹²⁾や光音響変調器による方法等が報告されている^{5,13)}。パルスCO₂レーザーによる方法は、パルス波形の適切な制御が困難なため満足のいく結果が得られない。光音響変調器を使用して励起光を矩形パルス化する方法による実験は、フランスのLille大学のグループにより行われ、興味深い結果が得られている。しかし、この方法では光変調器の損傷を避けるため、励起光の強度がわずか1 W以下に制限される。その結果、媒質のガス圧力は低い値に制限され、利得が低下するため発振を維持するのに高いQ値を持つ共振器が必要とされる。

我々は連続励起光を用い、分子にパルス電場

* 半古典的理論によるレーザーの基礎方程式は、単一モードの場合単にレーザー方程式あるいはMaxwell-Bloch方程式と呼ばれることがある¹¹⁾。本稿では後者で統一した。

を与えてそのエネルギー準位をシュタルク・シフトさせることにより、同様な効果をあげることを試みた。この方法はシュタルク・スイッチングと呼ばれ、コヒーレント過渡分光の実験手法として既に大きな役割を果たしてきた¹⁴⁾。この方法の利点は、実験装置が簡便なパルス電圧発生器と共振器内シュタルク電極とで構成できること、また励起光の強度が制限を受けないため広い媒質の圧力範囲で実験が可能となること等である。その反面、実験は1次のシュタルク効果を示す遷移に限られる短所もある。

実験装置の模式図をFig. 1に示す。励起光源として用いている連続発振のCO₂レーザーは波長選択可能で最大10W程度の連続出力のものである。その出力は結合孔を通して遠赤外共振器内に入射させている。遠赤外共振器（共振器長137cm）内には、長さ135cm、幅40mmの研磨した二枚のアルミ板が5mmの間隔で平行に設置されており、シュタルク電圧はこのアルミ板に印加した。遠赤外レーザー出力はW-Ni点接触ダイオードで検出し、シグナル・アベレージャーを通してマイクロ・コンピューターで記録した。なお、実験に使用したW-Ni点接触ダイオードの出力と入射光強度の線形性はあらかじめ確認している。

実験には主にCO₂ 9 μm バンドのP (36) 発振線で励起されるCH₃OH の119 μm 発振線を用いた。この119 μm 線のレーザー遷移は(J, K) =

Fig. 1 Experimental setup of Stark-switching FIR laser.

Fig. 2 Cavity tuning curves of the CH₃OH 119 μm line pumped with CO₂ 9 P(36) in the absence (a) and the presence (b) of a static electric field of 360 V/cm in the cavity.

(16, 8) → (15, 7) で励起遷移は(J, K) = (16, 8) → (16, 8) である¹⁵⁾。これらは両方とも1次のシュタルク効果により $\Delta M = \pm 1$ の成分に分裂し、レーザー遷移ではこの両成分間の分裂の大きさは 26 MHz/kV/cm と測定されている¹⁶⁾。この119 μm 線の共振器同調曲線をFig. 2に示す。(a)はシュタルク場を印加していない状態であり、(b)は360 V/cmの静的なシュタルク場によって $\Delta M = \pm 1$ 成分に分裂している状態である。(b)の状態では、共振器を零電場でのレーザー発振の中心周波数に同調させると発振は止まる。従って、共振器を発振の中心周波数に同調しておき、(b)から(a)への状態変化を起こさ

Fig.3 Observed curves of growth of the output power of CH_3OH $119\mu\text{m}$ line for different vapour pressures. The pump powers were 2 watts (a) and 4.5 watts (b).

せることにより、レーザー光の成長過程を観測することができる。

3. レーザー出力光の成長曲線

種々の圧力における遠赤外レーザー出力の時間変化をFig. 3(a) 及び(b) に示した。励起パワーは(a)が約2W, (b)が4.5Wであり、シュタルク電場の強度はいずれの場合も $360\text{V}/\text{cm}$ である。一番下に示したシュタルク電場の強度の時間変化と比較すると明らかなように、遠赤外レーザー光強度は何れもシュタルク・パルスの立ち下がりエッジから数 100ns ~ 数 μs 遅れて立ち上がっている。励起遷移は 100ns 程度の緩和時間を持つので、その時間内で閾値を超えて反転分布が生じ定常状態になると考えられるにもかかわらず、レーザー発振が遅延していることがわかる。また、(a) では 60mTorr 近傍の圧力でその立ち上がりにおいて軽いオーバー・シュートがみられ、それと共に遅延時間が減少している。また、(b) では(a) に比べて全体に遅れ時間が減少し、圧力の低い側でのオーバー・シュートの傾向がさらに顕著になり、 $50 \sim 70\text{m}$

Torr ではオーバー・シュートに続いて僅かに振動も認められる。ここで、出力の立ち上がり時間 T_r と遅れ時間 T_d 並びにピーク出力強度 I_p と定常状態での出力強度 I_s をFig. 4 に示すように定義する。Fig. 3(b) の場合について、 I_s の相対値とオーバー・シュート $R = (I_p - I_s)/I_s$ の

Fig.4 Definition of the rise time (T_r), delay time (T_d), the steady-state power (I_s) and peak power (I_p) of the curves of growth.

圧力依存性をFig. 5に示す。この様にオーバー・シュートは60m Torr付近で最大となり、定常出力が最大となる130m Torr付近では逆にオーバー・シュートは観測されなくなっている。なお、W-Ni点接触ダイオードの安定性が十分でないため、 I_s の相対値については数パーセ

Fig. 5 Steady-state FIR output power (I_s) and overshoot (R) vs vapour pressure of methanol. The pump power was 4.5 watts. R is defined in the text.

Fig. 6 Rise (T_r) and delay (T_d) times defined in Fig. 4 vs vapour pressure of methanol. The pump power was 4.5 watts. The broken line curve shows the relaxation time γ^{-1} of polarization of methanol¹⁷.

セントの誤差が見込まれる。

一方、同じくFig. 3(b)の場合について T_r と T_d の圧力依存性をFig. 6に示した。これより T_r , T_d ともに70~120m Torrの範囲では各々 ~300 ns, ~500 ns 程度のほぼ一定の値を取ることが分る。

Fig. 6に破線で示したのは、圧力広がりによる利得曲線の半値全幅 $\Delta\nu$ から $2\pi\Delta\nu = 2\gamma$ として求めた極度の緩和時間(横緩和時間) γ^{-1} である¹⁷。既に述べたレート方程式近似の条件からすると、現象の時間スケールがこの時間よりも短いときにはレート方程式はよい近似ではなくなる。出力の立ち上がり時間に注目すると、この図からCH₃OHの圧力が50~70m Torrの範囲において観測された成長曲線に関しては、レート方程式による記述は近似が悪くなると予想される。

4. 半古典的レーザー理論とレート方程式近似

4.1 二準位近似

連続発振の光励起遠赤外レーザーは通常コヒーレントな赤外光で励起され、Fig. 7(a)に示

Fig. 7 (a) Energy level diagram of an optically-pumped FIR laser. (b) Scheme describing two level approximation.

されるような三準位系で記述される。そのため一光子過程に加えて準位2から準位1への二光子遷移も同時に起こるが、いま励起赤外光と遠赤外レーザー光の周波数が両方とも完全にそれぞれの遷移の中心周波数に共鳴しているとし、二光子遷移を無視し通常の遷移 $2 \rightarrow 0$, $0 \rightarrow 1$ のみで議論する。また、励起赤外光が十分に弱く励起遷移の飽和が無視できるとして、励起のレートは遠赤外遷移 $0 \rightarrow 1$ の過渡的な振舞いと無関係に一定と見なす。この仮定のもとでは、励起遷移 $2 \rightarrow 0$ のパワー広がりを見無視することができ、赤外レーザー光によって励起される分子の速度分布が、圧力幅に対応する狭い速度範囲内に集中していると考えることができる。すなわち、遠赤外遷移 $0 \rightarrow 1$ の利得曲線は均一広がりを持つと見なすことができる。

この様な仮定に基づき、ここでは単一モードの光励起遠赤外レーザーを、均一広がりを持ちFig. 7(b)の様な2準位系で記述されるレーザーとして扱う。それはレーザー理論のテキストに現われるもっとも単純なモデルとして知られているものでもある。

なお、2.で述べたように赤外吸収線もシュタルク電場により $\Delta M = \pm 1$ 成分に分裂する。分子の吸収線の中心周波数と光の周波数が急速に共鳴に持ち込まれる時、一般に光章動による吸収量の振動が生じる¹⁸⁾。しかし、ここでの実験結果ではレーザー発振はシュタルク電場パルスの立ち下りのエッジに対して励起遷移の緩和時間(~ 100 ns)以上遅延しているため、電場をスイッチ・オフした直後の赤外遷移における過渡的な振舞いは、遠赤外レーザー発振には直接影響しないものと考えた。

4.2 Maxwell-Bloch 方程式

Fig. 7(b)に示したような二準位系のモデルで扱われる単一モード・均一広がりレーザーは、良く知られているように半古典論ではMaxwell-Bloch方程式(レーザーの基礎方程式)で記述できる¹⁹⁾。

いま、共振器内の遠赤外光の電場を、

$$E(z, t) = E(t) \cos \Omega t \sin Kz$$

で定義する。ここで、 Ω , K はそれぞれ光の周波数と波数であり、簡単化のため光の周波数と媒質の中心周波数は一致しているとする。共振器長を L とすると K は、 $KL = \pi n$ (n : 整数)を満たす。この光と電気双極子相互作用する2準位系の密度行列 ρ の要素は方程式

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{00} - \dot{\rho}_{11} &= -\gamma_D(\rho_{00} - \rho_{11} - w^0) \\ &\quad - 2i \frac{\mu E(t)}{\hbar} \cos \Omega t \sin Kz (\rho_{01}^* - \rho_{01}) \end{aligned} \quad (1a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{01} &= -(\gamma + i\Omega) \rho_{01} \\ &\quad - i \frac{\mu E(t)}{\hbar} \cos \Omega t \sin Kz (\rho_{00} - \rho_{11}) \end{aligned} \quad (1b)$$

に従う²⁰⁾。 $\cdot \equiv d/dt$ また $\hbar = h/2\pi$ (h : プランク定数) であり、 μ と w^0 はそれぞれ電気双極子モーメントの行列要素と遠赤外光のない定常状態での反転分布密度である。 ρ_{00} と ρ_{11} の緩和定数は等しく γ_D とおき、 ρ_{01} の緩和定数を γ とした。 σ_{01} を ρ_{01} の振幅として、

$$\rho_{01} = \sigma_{01} \exp(-i\Omega t) \sin Kz$$

とおき、ラビ周波数 $\alpha = \mu E(t)/\hbar$ を用いると光の電場の振幅が従う方程式は、

$$\dot{\alpha} = -\gamma_c \alpha + \eta L^{-1} \int dz i(\sigma_{01}^* - \sigma_{01}) \quad (1c)$$

である。ここで、

$$\begin{aligned} \gamma_c &\equiv \frac{1}{2} \frac{\Omega}{Q} \\ \eta &\equiv \frac{1}{2} \frac{\mu^2 \Omega}{\epsilon_0 \hbar} \end{aligned}$$

であり、 ϵ_0 は真空の誘電率、 Q は共振器の Q 値、 γ_c は共振器内の光の電場振幅の減衰定数である。また、 $\int dz$ は共振器内の光軸に沿った空間積分を表している。

方程式(1a~c)に次の三つの無次元の変数

$$P \equiv L^{-1} \int dz i(\sigma_{01}^* - \sigma_{01}) / \left[w^0 \left(\frac{\gamma_D}{\gamma} \right)^{1/2} \right]$$

$$D \equiv L^{-1} \int dz (\rho_{00} - \rho_{11}) / w^0$$

$$A \equiv \alpha / (\gamma \gamma_D)^{1/2}$$

を導入する。 P , D 及び A はそれぞれ媒質の分極, 反転分布密度, 光の電場の振幅に対応し, 回転波近似²⁰⁾で方程式

$$\dot{P} = -\gamma(P - AD) \quad (2a)$$

$$\dot{D} = -\gamma_D(D + AP/2 - 1) \quad (2b)$$

$$\dot{A} = -\gamma_c(A - \lambda P) \quad (2c)$$

に従う。ここで,

$$\lambda \equiv \frac{\eta w^0}{\gamma \gamma_c}$$

であり, 発振の閾値での反転分布密度 $(w^0)_{th}$ が $\gamma \gamma_c / \eta$ であることから, λ は相対的励起強度を表している。定常状態では, A に対する解は

$$A^2 = 2(\lambda - 1)$$

となり, A が 0 以外の定常解を持つための条件は $\lambda > 1$ である。

方程式(2a~c) はファブリ・ペロー型共振器を持つ単一モード動作レーザーに対する M-B 方程式と等価であり, 空間的 hole burning に対する補正として式(2b)の右辺第二項に係数 1/2 が掛かっている。

4.3 レート方程式

式(2)で扱う現象の時間スケールが γ^{-1} より十分長いときには, 分極 P の時間的変化は速やかに定常値を取る。すなわち式(2a)を変形すると,

$$\dot{P} / \gamma + P = AD$$

であり, $|\dot{P} / \gamma| \ll |P|$ のとき $\dot{P}$ の項は無視できる。このとき式(2b)と(2c)を書き直すと,

$$\dot{D} = -\gamma_D(D + ID/2 - 1) \quad (3a)$$

$$\dot{I} = -2\gamma_c(1 - \lambda D)I \quad (3b)$$

となり, $I \equiv A^2 = (\alpha / \gamma)^2$ は規格化されたレーザー光強度である。これは Statz-de Mars 方程式と等価なものである²¹⁾。光強度の定常値からの微小な変位 I' の時間的振舞いは, このレート方程式の線形化解析から容易に求められて,

$$I' \propto \exp(-\Gamma t) \cos(\Omega_m t) \quad (4)$$

となる。ここで,

$$\Gamma \equiv \frac{\gamma_D \lambda}{2}$$

$$\Omega_m \equiv \frac{\gamma_D}{2} \left[8 \frac{\gamma_c}{\gamma_D} (\lambda - 1) - \lambda^2 \right]^{1/2}$$

である。固体レーザーでは一般的に $\gamma_c \gg \gamma_D$ であるので,

$$\Omega_m \simeq \gamma_D \left[2 \frac{\gamma_c}{\gamma_D} (\lambda - 1) \right]^{1/2}$$

と近似でき, 相対的励起強度 λ が大きいほど緩和振動の周期が短くまた減衰が速い。連続発振気体レーザーでは一般に $\gamma_c \ll \gamma_D$ であるので式(4)の調和項は無視されて, 緩和振動は生じない。しかし, 後述するように $\gamma \sim \gamma_D$ とすると本研究での圧力範囲では $\gamma_c / \gamma_D = 0.3 \sim 1.4$ であり, 緩和振動が生じ得ることが分かる。

4.4 van der Pol 方程式

さらに, 光の電場強度が γ_D^{-1} 程度の時間スケールで変化しないときには, 式(3a)で $\dot{D}$ の項は無視することができて,

$$\dot{I} = (g - sI)I$$

$$g \equiv 2\gamma_c(\lambda - 1) \quad (5)$$

$$s \equiv \gamma_c \lambda$$

となり, これは解析的に解くことができる。光

励起遠赤外レーザーでは既にHCOOH 743 μm において、オーバー・シュートのない曲線がこのvan der Pol 方程式とよく一致することが報告されている¹³⁾。また、He-Ne レーザーで観測された成長曲線もやはりこの方程式とよく一致している⁹⁾。

5. 成長曲線によるレート方程式と Maxwell-Bloch 方程式の評価

式(2), (3)の数値積分の結果を観測された成長曲線と比較し議論する。その計算のためには各変数の初期値、緩和定数及び相対的励起強度 λ の値が必要である。それらの値は以下のように与えた。

変数の初期値は、ほとんど遅れ時間 T_d にししか影響しないので実験結果と矛盾しないような値を与えた。

γ に関しては利得曲線の圧力広がりから測定された値が報告されている¹⁷⁾のでこれを用いた。

γ_0 については、測定例を見つけることはできなかったが、遠赤外レーザーの発振線では一般に $\gamma \sim \gamma_0$ と近似することが多く^{5, 17, 22)}、我々もこれに従った。

γ_c は、装置に固有の定数であり独自に測定する必要がある。我々はこの実験の出力の立ち下がり、すなわち利得が定常発振の状態から急激に零になったときのレーザー出力の減衰曲線からこの定数を求めた。ただし、レーザー出力の立ち下がりとはシュタルク電場の立ち上がりとはほぼ同時であるため、励起遷移の過渡的振舞いが減衰曲線に影響している可能性がある。事実、立ち上がりにオーバー・シュートを生じているような低圧力の動作条件下では、この減衰曲線が指数関数と必ずしも一致しないことがHCOOHで報告されている⁹⁾。従って我々は十分に圧力の高い、すなわち成長曲線がvan der Pol方程式とよく一致するような条件下でこの測定を行った。また、このときシュタルク電場による利得曲線の分裂の大きさが十分でないと、測定される γ_c の値は媒質の圧力などにより変化する。これは利得曲線が分裂したときにも、零電場で

の発振の中心周波数で残留利得が存在し、損失が見かけ上減少するためと考えられる。これを防ぐため、 γ_c の測定では成長曲線の測定で印加した際の約2倍(680V/cm)の電場を印加した。しかしながら、これらの問題点は完全に除去されてはならず、ここで用いた γ_c の値にはなお検討の余地がある。

相対的励起強度 λ は媒質の小信号利得と比例関係にあり、小信号利得は緩和定数、電気双極子モーメントの行列要素、励起赤外線の強度等の関数であり容易には求めることができない。従って、我々は λ を計算することは避け、観測された成長曲線の立ち上がり時間と一致するように λ を決定するようにした。これは、レート方程式とM-B方程式のいずれを用いても、計算された成長曲線の立ち上がり時間は λ に対して単調に減少するためである。この性質のため曲線の立ち上がり時間が実験結果と一致するように式(2), (3)の数値計算の反復によって λ を決定することができる。この方法によると、 λ の値はM-B方程式(2)で2.5~5.0、レート方程式(3)で1.6~2.7になる。媒質の利得 G は、式(5)から λ によって

$$G = g/c = 2\gamma_c(\lambda - 1)/c$$

のように表される。ここで c は光速である。

このようにして求めた小信号利得の圧力依存性をFig. 8に示す。全体にM-B方程式で求めた方が大きな値になっているが、実験条件の違いを考慮すると、この G の値は文献¹⁷⁾で報告されている値と大きな違いはない。計算に用いた各変数の初期値と λ を除く定数の値をまとめてTable Iに示した。

こうして決定した λ とTable Iに示した値を用いて計算した成長曲線の例をFig. 9に示す。(a)の曲線群はM-B方程式によるものであり、(b)はレート方程式によるものである。 $\gamma = 11.3, 7.1, 5.4$ ($10^6/\text{s}$)はそれぞれ圧力123, 77, 59 m Torrに対応している。何れの方程式による結果もオーバー・シュートを示すが、その大きさは異っている。Fig. 10に示したように、一

Table I Parameters used in this work to calculate the curves of growth of the CH_3OH 119 μm output power.

Initial value of I	0.01	
Initial value of D	0	
Initial value of P	0	
Pressure coefficient of γ	92×10^6	$[\text{s} \cdot \text{Torr}]^{-1}$
Pressure coefficient of γ_D	92×10^6	$[\text{s} \cdot \text{Torr}]^{-1}$
γ_c	6×10^6	s^{-1}

Fig. 8 Small signal gain of the CH_3OH 119 μm line for a pump power of 4.5 W vs vapour pressures of methanol. The result was obtained by fitting the observed rise times to those predicted by rate and Maxwell-Bloch equations.

般的に立ち上がり時間から相対的励起強度 λ を決定すると, λ と計算で得られる成長曲線のオーバー・シュート R_{cal} は M-B 方程式による結果よりもレート方程式による結果の方が小さな値となる。この差は立ち上がり時間が短いほど大きくなる。これは次のような理由によるものと考えられる。

式(2a)を P について形式的に解き, 式(2c)に代入すると

$$\dot{A} = -\gamma_c [A - \lambda (AD - \dot{P}/\gamma)] \quad (6a)$$

を得る。一方, 式(3b)を A を用いて書くと,

$$\dot{A} = -\gamma_c [A - \lambda AD] \quad (6b)$$

となるが, レーザー出力の立ち上がりにおいては $\dot{P} > 0$ であるので, 式(6a)の中で $\dot{P}$ を含む項は光の電場の振幅に対応する変数 A の成長を抑制する因子として働く。一方, レート方程式(6b)では初めから分極の時間的変化を無視しているのでこの様なことは起こらない。従って全く同一の定数の値で計算した場合はレート方程式の方が立ち上がりの速い結果が得られる。逆に, 立ち上がり時間が観測結果と一致するように相対的励起強度 λ を決定すると, レート方程式によって決定した λ の方が小さな値になる。これが Fig. 8 においてレート方程式によって求

Fig. 9 Curves of growth calculated by Maxwell-Bloch (a) and rate (b) equations for different values of γ ($= \gamma_D$).

Fig. 10 Overshoot (R_{cal}) and relative excitation (λ) determined from the rise time. We have chosen the parameters that $\gamma = \gamma_D = \gamma_C = 6 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$.

めた利得の方が小さな値となる理由であると考えられ、またそのためFig. 9 でやはりレート方程式によって描いた成長曲線のオーバー・シュートの方が小さくなっている。

我々はレート方程式近似の限界領域での二つの方程式の近似の良さを評価するために、式(2)、(3)で描いた成長曲線のオーバー・シュートと利得の値に着目した。すなわち、もし観測された成長曲線の時間スケールが γ^{-1} と同程度であるために媒質の分極の時間的变化の影響を受けているとすれば、オーバー・シュートの観測値と媒質の利得はレート方程式による計算値よりも大きな値になると考えられる。逆に分極の時間変化が無視されてレート方程式近似が成り立つならばほぼ一致した値となるはずである。この関係はM-B方程式では逆になると考えられる。

利得の値は既に静的な方法で測定された値が報告されている¹⁷⁾ものの、実験条件が異なり、それを本実験の動作条件に換算することは困難である。従って、我々はオーバー・シュート

Fig. 11 Relative residual between the experimental and calculated overshoots vs vapour pressure of methanol.

ート R により二つの方程式の結果を評価した。観測された成長曲線の R と計算された成長曲線のオーバー・シュート R_{cal} との相対残差 $(R - R_{cal})/R$ の圧力による変化を示したのがFig. 11である。観測値が計算値より大きい場合には残差の符号は正であるから、レート方程式は常に観測値よりも小さいオーバー・シュートの値を又、M-B方程式はその逆の結果を与えている。一方、両計算結果とも圧力範囲50~70m Torrを除いて全般に残差の絶対値が圧力の増加につれて大きくなる傾向が見られる。これは残差を測定値 R で正規化したために、高圧力域即ち、オーバー・シュートが減少する領域では残差 $(R - R_{cal})/R$ の値が強調されたためと考えられる。しかしながら、圧力範囲50~70m Torrでは両計算結果はこの傾向と一致しない。即ち、レート方程式による残差の絶対値は増加しているがM-B方程式によるそれは減少を示している。この圧力範囲はFig. 6で立ち上がり時間 T_r が γ^{-1} 程度になる範囲であり、 $\dot{P}$ の影響を考慮しないレート方程式がもはや近似として適切ではない

ため、残差の増加を招いていると思われる。

6. 議論

理論的にはレート方程式(3)はM-B方程式(2)の近似である。そうすると、Fig. 11の様に圧力範囲50~70m Torrを除いてM-B方程式よりもレート方程式の方がよく観測結果と一致する傾向があることは一見不可解であるが、これは数値計算における γ_c や γ_D 等の定数の誤差がM-B方程式に影響しているためである可能性が強い。特に、我々は数値計算において $\gamma/\gamma_D = 1$ の近似を用いている。しかし遠赤外の発振線では γ は測定されているものの γ_D の測定値は乏しい。一般的に $\gamma/\gamma_D \geq 1$ であるから、現実の γ_D の値が γ よりも小さいとすると、M-B方程式で計算した成長曲線は観測結果とは異なってくる。一方、レート方程式の数値計算においては γ の値は不要なので、与えた γ_D の値が誤差を持つという形でしか結果に影響してこない。

この γ_D がどのくらいの値であるかを見積るために、数値計算による R_{cal} が観測結果に一致するような γ_D の値をレート方程式で求めた結果を

Fig. 12 Relaxation constant (γ_D) of population inversion for CH_3OH 119 μm line obtained by fitting both the experimental rise time and overshoot to those calculated by rate equations.

Fig. 12に示した。明らかにレート方程式が有効でない圧力50~70m Torrを除くと、 γ_D はほぼ圧力に対して直線となり、その圧力定数は $76 \cdot 10^6 (\text{s} \cdot \text{Torr})^{-1}$ となる。この値からは $\gamma/\gamma_D \sim 1.2$ となり、上の議論を支持しているように見える。

7. まとめ

CW- CH_3OH レーザーの共振器内でシュタルク・スイッチングを行うことによりレーザー出力の時間的な成長過程を観測した。その結果得られた成長曲線は固体レーザーにみられるような緩和振動を示す。またレート方程式近似の条件に抵触する場合には、出力の成長曲線はより精密な理論であるM-B方程式による計算結果に近いことが分かった。しかし、それ以外の条件下では γ_D 等の誤差の影響により、M-B方程式による計算はレート方程式によるものよりもかえって誤差が増大することを確認した。

今後は遠赤外共振器の Q 値測定法などを改善し、本稿で述べた手法により遠赤外レーザー発振線の γ , γ_D を精度よく見積る方法を開発していく予定である。

最後に、御助言を頂いた安田幸夫氏(現ウシオ電機株)と実験に協力して頂いた田伐智氏(本学修士学生)に感謝します。

参考文献

- 1) 例えば, M. Birnbaum, P.H. Wendzikowski and C.L. Fincher: Appl. Phys. Letters **16** (1970) 436.
- 2) 霜田光一: レーザー物理入門 (岩波, 東京, 1983年) 第6章.
- 3) B. Pariser and T.C. Marshall: Appl. Phys. Letters **6** (1965) 232.
- 4) N.B. Abraham, L.A. Lugiato and L.M. Narducci: J. Opt. Soc. Am. **B2** (1985) 7.
- 5) M. Lefebvre, D. Dangoisse and P. Glorieux: Phys. Rev. **A29** (1984) 758.
- 6) C.O. Weiss, W. Klische, P.S. Ering and M. Cooper: Optics Commun. **52** (1985) 405.
- 7) J. Opt. Soc. Am. **B2** January (1985), *Special Issue on Instabilities in Active Optical Media*.
- 8) M. Sargent III, M.O. Scully and W.E. Lamb, Jr.: in *Laser Physics* (Addison-Wesley, Massachusetts, 1974) p.104.
- 9) 例えば, 稲場, 霜田他編: レーザーハンドブック

- (朝倉, 東京, 1973年) p. 33.
- 10) L.A. Lugiato, P. Mandel and L.M. Narducci: Phys. Rev. **A29** (1984) 1438.
- 11) 例えば, Mei-Li Shin, P.W. Milonni and J.R. Ackerhalt: J. Opt. Soc. Am. **B2** (1985) 130.
- 12) H.J.A. Bluyssen, R.E. McIntosh, A.F. van Etteger and P. Wyder: IEEE J. Quantum Electron. **QE-11** (1975) 341.
- 13) J. Wascot, D. Dangoisse, P. Glorieux and M. Lefebvre: IEEE J. Quantum Electron. **QE-19** (1983) 92.
- 14) R.L. Shoemaker: in *Laser Applications to Optics and Spectroscopy*, ed. S. Jacobs M. Sargent III, J.F. Scott and M.O. Scully (Physics of Quantum Electronics Vol. 2, ed. S.F. Jacobs, M.O. Scully and M. Sargent III, Addison-Wesley, Massachusetts, 1975) p.485.
- 15) J.O. Henningsen: IEEE J. Quantum Electron. **QE-13** (1977) 435.
- 16) N. Sokabe, A. Higuchi, K. Imura, Y. Yasuda and A. Murai: Opt. Commun. **34** (1980) 255.
- 17) J. Heppner, C.O. Weiss, U. Hubner and G. Schinn: IEEE J. Quantum Electron. **QE-16** (1980) 392.
- 18) R.G. Brewer and R.L. Shoemaker: Phys. Rev. Letters **27** (1971) 631.
- 19) 例えば, 霜田光一: レーザー物理入門 (岩波, 東京, 1983年) p. 179.
- 20) 霜田光一: レーザー物理入門 (岩波, 東京, 1983年) 第7章.
- 21) 例えば, 霜田光一, 矢島達夫, 上田芳文, 清水忠雄, 粕谷敬宏: 量子エレクトロニクス (上) (物理学選書13, 山内他編, 裳華房, 東京, 1980年) p. 106.
- 22) N.B. Abraham, D. Dangoisse, P. Glorieux and P. Mandel: J. Opt. Soc. Am. **B2** (1985) 23.