レーザー解説 1

陽光柱型金属イオンレーザーの励起機構

後 藤 俊 夫*

(1979年12月8日 受理)

Excitation Mechanisms of Positive Column Metal Ion Lasers

Toshio GOTO*

(Received December 8, 1979)

1. はじめに

金属イオンレーザーの歴史は比較的長く、1964年には既にHg(II)の615.0nmのレーザー発振が得られている。¹⁾ それに続いてHgの他のイオン線、^{2)~7)} Cd,⁸⁾ Zn,^{8),9)} Pb, Ge, In, Sn,⁹⁾ Ca,¹⁰⁾ Se, As,¹¹⁾ Te^{12),13)} Sb¹²⁾等の金属のイオン線のレーザー発振が報告された。しかしこれらのレーザーはすべてパルス発振で、蒸気圧制御もめんどろであったため、必ずしも実用的価値は持っていなかった。

金属イオンレーザーが初めて有用な可視レーザーとして注目されるようになったのは、1967年から1968年にかけてHe-Cd混合気体放電中でCd(II)441.6nmの連続発振^{14),15)}が実現されてからである。その後数年の間にCdの他のイオン線や、^{16)~21)} Zn^{17),21)~23)}, Sn,¹⁷⁾ Hg^{24)~26)}, Se^{27),28)}, Te,²⁹⁾ I³⁰⁾ -³⁴⁾ As,³⁵⁾ Mg³⁶⁾等のイオン線の連続レーザー発振が得られた(Iは非金属であるが、蒸気を利用するという点で金属蒸気レーザーに類似しており、実用的価値もあるので、ここに含めることにする)。これらのレーザー発振を得る方法としては、^{16)~19),22),25)~30),33),34),36)} 20),21),23),24),31),32),35) 陽光柱放電とホローカソード放電が用い

られてきた*。前者の陽光柱金属イオンレーザーはGoldsboroughがカタフォレス効果を利用して、レーザー細管部中に様な金属蒸気圧を得る方法³⁷⁾を開発した後、実用的なレーザー装置の製作が可能になった。そして現在では寿命約5000時間、出力数十mW、雑音5%以下の優れた陽光柱He-Cd⁺レーザー(441.6nm)装置が市販され、物性研究用機器の励起光源、計算機やファクシミリの印字用光源等として使用され始めている。また325.0nmのレーザー装置も作られているが、これは現在までに実用化された連続発振レーザーのうちで最も波長の短いレーザーであると思われる。Cdの他に、SeやIに関しても実用的なレーザー装置を作る試みが行われてきた。^{33),34)} 一方ホローカソード金属イオンレーザーは陽光柱放電励起では得られないレーザー発振線が数多く得られる点で優れているが、

* ホローカソードレーザーにはこの他にレーザー物質を陰極として用い、そのスパッタリングにより最適蒸気圧を得るタイプのものがある。Cu, Al, Agイオンレーザーがその例である。このレーザーに関しては、C. L. Tang編: Quantum Electronics Part A (Methods of Experimental Physics, Vol. 15), pp. 157-166 にまとめられているので、それを参照していただきたい。

* 名古屋大学工学部電子工学教室 (〒464 名古屋千種区不老町)

* Department of Electronics, Faculty of Engineering, Nagoya University, Furocho, Chikusaku, Nagoya

電極のスパッタリング, buffer gas圧力の低下等の問題があるので, まだ比較的高出力で長寿命の実用的な装置は作られていないようである。

実用上最も重要な金属イオンレーザー, 陽光柱He-Cd⁺レーザー (441.6nm)^{(15), (38)}の主要な励起過程は, Silfvastの研究以来10年近く, He準安定原子とCd中性原子との衝突によるPenning励起過程であると信じられてきた。そしてこの励起機構に関する研究は数多く行われてきたが, 3節で述べるようにPenning過程が支配的であるという考えはレーザー出力特性を理解するうえで大きな矛盾を含んでいることが明らかになってきた。筆者らはこの問題を解明するため, すべての必要な粒子密度を同一条件下で注意深く測定し,^{(39) - (42)} レート方程式と組み合わせて詳細な解析を行った結果, Cd⁺基底イオンが電子衝突によりレーザー準位へ励起される階段励起過程が重要であるとの結論を得た。⁽⁴³⁾陽光柱金属イオンレーザーは多くの人々によって研究され, ほとんどすべての問題は解決したと思っている方々もいるかもしれないが, 陽光柱He-Cd⁺レーザーの励起機構に関しては上記のように定説を否定する結果が報告され, 研究は新しい段階にはいった。この問題の最終的な結論を得るには, まだなすべきことがいくつか残っている。

本解説では, 2節で陽光柱金属イオンレーザーの種類と発振線について簡単に述べた後, 3節で筆者らの仕事を中心に陽光柱He-Cd⁺レーザーの励起機構研究の現状を詳しく説明する。他の陽光柱金属イオンレーザーの励起機構は4節で説明する。

2. 陽光柱金属イオンレーザーの種類と発振線

Table. 1は陽光柱放電励起により連続発振が得られる金属イオンレーザー線をまとめたものである。他の励起法により得られる金属イオンレーザー線は文献44に与えられているので, それを参照していただきたい。

Table. 1のなかでHe-Cd⁺レーザーは最初から有用なレーザーとして注目され, レーザー出

力特性,^{(15), (18), (45) - (53)} カタフォレスシス効果,^{(18), (37), (54)} 装置の改良,^{(18), (55) - (60), (52)} 雑音,^{(61) - (63)} モードロッキング,^{(64) - (66)}に関する研究が行われてきた。そして現在では1節で述べたような優れた製品が市販され, 最も重要な金属イオンレーザーとなった。可視領域で多くの発振線が得られるHe-Se⁺レーザーも白色レーザーとして注目され, レーザー出力特性,^{(27), (28), (67), (68)} 雑音,⁽⁶⁹⁾ レーザー上準位密度の径方向分布⁽⁷⁰⁾などが調べられた。He-I⁺レーザーはmolecular sievesによって高いヨウ素蒸気圧を制御する方法が開発された⁽³³⁾後, 安定で長寿命の装置を作ることが可能となり, 実用的な封じ切りレーザー装置が試作された。^{(71), (72)} 一方Zn, Te, Hg, Sn, Mgに関しては連続発振が得られているだけで, 現在のところ実用的価値はあまりない。

3. 陽光柱He-Cd⁺レーザー(441.6nm, 325.0nm)の励起機構

3.1 従来の研究結果とその問題点

Silfvastは1968年初めて441.6nmの連続レーザー発振を報告した論文⁽¹⁵⁾のなかで, 主要な励起過程として次式で与えられるPenning励起過程を提案した。

Fig.1 Energy level diagram of Cd(II).

Table I CW metal ion lasers obtained in positive column discharges.

Metal	Wavelength (nm)	Transition	Buffer gas	Ref.
Cd	325.0	$5s^2\ ^2D_{3/2} - 5p\ ^2P^{\circ}_{1/2}$	He	16), 17), 18)
	441.6	$5s^2\ ^2D_{5/2} - 5p\ ^2P^{\circ}_{3/2}$	He	14), 15), 17)
	488.2	$5p'\ ^4F^{\circ}_{5/2} - 5d\ ^2D_{3/2}$	He	19)
	502.6	$5p'\ ^4F^{\circ}_{7/2} - 5d\ ^2D_{5/2}$	He	
Zn	589.4	$4s^2\ ^2D_{3/2} - 4p\ ^2P^{\circ}_{1/2}$	He	22)
	747.8	$4s^2\ ^2D_{5/2} - 4p\ ^2P^{\circ}_{3/2}$	He	17), 22)
	758.8	$5p\ ^2P^{\circ}_{3/2} - 5s\ ^2S_{1/2}$		
Se	497.6	$5p\ ^2D^{\circ}_{5/2} - 4p'\ ^2P_{3/2}$	He	27)
	499.3	$5p\ ^4P^{\circ}_{3/2} - 5s\ ^4P_{3/2}$		
	506.9	$5p\ ^4P^{\circ}_{5/2} - 5s\ ^4P_{5/2}$		
	517.6	$5p\ ^4D^{\circ}_{5/2} - 5s\ ^4P_{3/2}$		
	522.8	$5p\ ^4D^{\circ}_{7/2} - 5s\ ^4P_{5/2}$		
	530.5	$5p\ ^2D^{\circ}_{3/2} - 5s\ ^2P_{1/2}$		
	Other 40 lines		He	27), 28)
Te	545.0	$103_{3/2} - 85'_{5/2}$	Ne	29)
	570.8	$103_{7/2} - 85'_{5/2}$	Ne, He	
	575.6	$100_{5/2} - 82_{3/2}$	Ne, He	
	623.0	$105_{3/2} - 88_{3/2}$	Ne	
	Other 27 lines		Ne, He	
I	540.7	$6p'\ ^3D_2 - 6s'\ ^3D^{\circ}_2$	He	33)
	567.8	$6p'\ ^3F_2 - 6s'\ ^3D^{\circ}_2$		
	576.1	$6p'\ ^3D_2 - 6s'\ ^3D^{\circ}_2$	He	30), 33)
	612.7	$6p'\ ^3D_1 - 6s'\ ^3D^{\circ}_2$		
	658.5	$6p'\ ^3D_1 - 6s'\ ^3D^{\circ}_1$	He	33)
	Other 4 lines		He	34)
Hg	615.0	$7p\ ^2P^{\circ}_{3/2} - 7s\ ^2S_{1/2}$	He	25), 26)
	794.5	$7p\ ^2P^{\circ}_{1/2} - 7s\ ^2S_{1/2}$	He	26)
Sn	645.3	$6p\ ^2P^{\circ}_{3/2} - 6s\ ^2S_{1/2}$	He	17)
	684.4	$6p\ ^2P^{\circ}_{1/2} - 6s\ ^2S^{\circ}_{1/2}$		
Mg	921.8	$4p\ ^2P^{\circ}_{3/2} - 4s\ ^2S_{1/2}$	He	36)
	924.4	$4p\ ^2P^{\circ}_{1/2} - 4s\ ^2S_{1/2}$		
	Other 2 lines			

Fig. 1 に示すように441.6nmや325.0nmの上準位 $5s^2\ ^2D$ は $\text{He}(2^3\ ^1S)$ 準安定原子より少し低いエネルギーを持っているので、(1)式の過程は十分起こりうる。そしてもしPenning過程がレーザー上準位に対して支配的ならば、 He 準安定原子密度と Cd 原子密度の積は441.6nmの自然光強度に比例するはずである。Silfvastは $\text{He}(2^3\ ^1S)$ 準位の原子密度と441.6nmのsidelight強度の Cd 原子密度依存性を測定し、この予想を裏づける

Fig. 2 のような結果を得た。⁷³⁾ また Schearer⁷⁴⁾ や Collins ら⁷⁵⁾ は afterglow 放電中で441.6nmの自然光強度と $\text{He}(2^3\ ^1S)$ 準位の原子密度の減衰のしかたがよく一致していることを観測し、Penning 励起断面積が $5 \times 10^{-15} \text{cm}^2$ 程度のかかなり大きな値であることを示した。更に Webb らはマイクロ波放電に高周波パルスを重畳する励起法と flowing afterglow technique とを組み合わせ、afterglow 領域で441.6nm, 325.0nmの上準

Fig. 2 Correlation of helium metastable density with 441.6 nm sidelight intensity (ref. 73).

位はPenning過程により励起されることを示した。^{76), 77)}これらの実験事実により, Penning励起過程がHe-Cd⁺レーザーの支配的な励起過程であると信じられるようになった。また441.6 nmレーザー出力のパラメータ依存性は自然光強度のそれと類似しており, 従ってレーザー下準位の励起イオン密度は上準位のそれに較べて無視できるほど小さいとの結果が報告され,^{15), 47)}レーザー出力の飽和はレーザー上準位の密度の飽和によって説明された。^{47), 78)}

上記の研究の他に, 励起機構をより定量的に解明するため, 多くの研究が行われてきた。レーザー上下準位の寿命はphase shift法,⁷⁹⁾fast cavity dumping法,⁸⁰⁾delayed coincidence法,^{81), 82)}beam foil法,⁸³⁾により決定され, 上準位の寿命は下準位のそれより2桁長いことが明らかになった。これらの測定値の一致は非常によく, 結果の信頼性は高いと思われる。Penning励起断面積に関してもレーザー上下準位への個々の値が求められた。⁸⁴⁾またHe-Cd⁺レーザー放電中の電子温度はプローブ法,⁸⁵⁾電子密度はプローブ法⁸⁶⁾及びマイクロ波法,⁸⁷⁾レーザー発振領域におけるHe(2^{3,1}S)準安定原子密度は吸収法,^{88), 89)}及びフック法⁹⁰⁾(後者ではCd原子密度も)により測定された。プローブ法によりHe⁺とCd⁺イオン密度を分離する試みも行われた。^{91), 92)}レーザー上下準位の粒子密度は自然光の絶対強度測定と利得特

性とを組みあわせて求められた。⁹³⁾長い寿命をもつレーザー上準位の電子衝突によるdeexcitation過程の断面積も測定された。^{94), 95)}また以上のような測定結果を用い, (1)式のPenning励起過程によってレーザー出力特性を説明する試みもいくつか行われた。^{47), 88)–90), 96), 97)}

上記のような研究によって, 441.6 nmや325.0 nmの主要な励起過程は(1)式のPenning過程であることがほぼ確かめられたように見えた。励起機構に関するreview paper⁹⁸⁾や教科書^{78), 99)}もこの立場で書かれているものが多い。ところが従来の測定及びPenning励起過程が支配的であるとする考えは以下のような問題点を含んでいる。

(i) レーザー上準位へのPenning励起過程が存在しないNe-Cd放電中で441.6 nmのレーザー発振が報告されている^{100), 101)}(ただしレーザー出力は小さい)。またホローカソードレーザーであるが, Ne-Cd, Ar-Cd, Xe-Cd放電中で441.6 nm, 325.0 nmのレーザー発振が得られた。¹⁰²⁾これらは明らかにPenning過程以外の励起過程が反転分布形成に寄与していることを示している。

(ii) Silfvastは直径10 mmの管, 放電電流10 mAでFig. 2の結果を得,⁷³⁾441.6 nmレーザーにおける支配的な励起過程はPenning過程であるとの結論を導きだした。しかし実際のレーザー発振の最適電流領域は3 mmの管において100~140 mAであり, 電流密度で比較すると2桁も異なっている。いろいろな励起過程の割合は放電条件に依存するので, 低電流における結論が高電流領域で成り立つとは限らない。

(iii) Webbらの実験^{76), 77)}やPenning励起断面積測定^{74), 75)}はいずれもafterglow放電を利用している。しかしafterglow放電中には原子やイオン衝突による励起過程しか存在しないのに対して, レーザー用放電中には電子衝突励起や原子衝突励起が混在している。従ってafterglow放電中でPenning過程の存在が確認され, 断面積が比較的大きいことがわかって, 実際のレーザー放電中でPenning過程が支配的であることの証明にはならない。

(iv) 吸収法⁸⁹⁾やフック法⁹⁰⁾による測定はHe(2^{3,1}S)

準安定原子密度がかなり低い電流で飽和することを示すのに対して、441.6nmの自然光強度は100mA以上の電流領域まで増加し続ける。これはPenning励起が支配的であるという仮定と矛盾する。Silfvastはこの矛盾を除くため、高電流領域まで密度が飽和しないHeの 2^3S やより高い励起準位を含めたPenning励起過程を提案した。Miyazakiらはこの考えに従ってHeの 2^3S と 2^3P 準位の原子密度を測定し、その和と441.6nm上準位密度の電流依存性を比較した。⁹⁰⁾しかし定量的には2つの差はかなり大きく、いぜんとして上記の矛盾は解決されていない。

(V) Giallorenziら⁴⁷⁾はCd炉温度とHe圧力を固定して、441.6nmのレーザー出力と自然光強度の電流依存性を測定し、それらが似た振舞をすることから、レーザー下準位の粒子密度は上準位のそれよりずっと小さいと結論した。しかしその測定では電流が40mAから160mAまで増加する間にCd(I) 326.1nmの自然光強度はいくらか減少している。これはCd原子密度がその間に $\frac{1}{4}$ 以下に減少していることを意味し(326.1nmの強度は近似的に電子密度とCd原子密度の積に比例する)、測定結果は真の電流依存性ではない。筆者らが注意深い測定をくり返した結果によれば、Cd炉温度を一定に保った場合は電流増加と共に細管中のCd原子密度が減少し、レーザー出力と自然光強度が同じような振舞をする。一方Cd原子密度を一定に保った場合はレーザー出力が飽和しても自然光強度は飽和しない。従って従来の結果は大きなあいまいさを含んでおり、もう一度注意深い測定を行う必要がある。

(VI) Cd^+ 及び He^+ イオン密度のプロープ法による決定法^{91), 92)}はよく知られていないHe-Cd混合放電中のイオン移動度を用いる必要があるので、信頼できる結果は得られていない。レーザー下準位の粒子密度のパラメーター依存性もまだ調べられていない。He準安定原子密度、Cd中性原子密度、電子密度、441.6nmレーザー上準位密度は異なる研究者により測定されたが、放電条件が完全には一致していないので、励起機構解明に用いることは難しい。従って以上の粒子密

度を同一条件のもとで正確に測定することが必要である。

3.2 正確な粒子密度測定による励起機構の定量的研究

3.1 で述べたいろいろな問題点を含まない真の励起機構を解明するために、筆者らは電流、Cd原子密度、He圧力の関数として、電子、 Cd^+ イオン、 He^+ イオン、 He(I) 励起準位(2^3S , 2^3P , 3^3P , 3^3D , 4^3P 等)、441.6nmレーザー上下準位、他のCd(II)励起準位の密度を正確に測定し、これらと理論的に求めた電子エネルギー分布関数とを用いて各種の励起割合及び消滅割合を計算した。その結果、441.6nmに対してPenning励起過程は支配的な励起過程であり得ないこと、次の階段励起過程

を考慮すればレーザー出力特性を矛盾なく説明できること、レーザー出力への下準位の影響は無視できないことを見出した。これらの結果について以下順に述べていく。

正確な測定を行うには、放電条件(Cd原子密度、He原子密度、電流)を正確に把握しなければならない。それゆえ以下の測定では、常に放電管を330℃に保ってCdの管壁への付着と温度変化によるHe原子密度の大幅な変動を防ぎ、常にCd原子密度を測定したうえで、各種密度を決定した。

3.2.1 Modified Absorption Method³⁹⁾

吸収法は励起準位の粒子密度を測定する有用な方法で、その原理は文献103に詳しく述べられている。これには2本の同じ放電管を用いる方法、異なる光源を用いる方法、¹⁰⁴⁾ Harrisonの自己吸収法¹⁰⁵⁾がある。しかしHe-Cd放電の場合は、2本の放電管中で同一のCd原子密度を得ること、光源と被測定プラズマ中のprofileの違いを正確に知ること、時間と共に変化する窓の透過率を知することは難しい。従って特に紫外線の

吸収係数の正確な測定は難しいので、 Cd^+ イオン密度は決定できない。またフック法も 10^{11}cm^{-3} 程度のイオン密度測定には使えない。それゆえ筆者らは新しく modified absorption method を考案した。

この modified absorption method において用いられた吸収管及び測定装置を Fig. 3 に示す。最初 A-K1 間に He-Cd 放電を得、チョッパー、分光器を用いてプラズマ I から放出された波長入

Fig. 3 Diagram of the optical arrangement including a modified discharge tube. AP1 and AP2: identical apertures, A: anode, K1 and K2: identical cathodes, SW: switch, LED: light emitting diode, PD: photodiode, PMT: photo-multiplier tube (ref. 39).

のスペクトル線の強度 I_1 を測定する。次にスイッチを切りかえて A-K2 間に放電を得、プラズマ I + II からの光の強度 I_2 を測定する。この時 $(I_2/I_1) - 1$ は

$$(I_2/I_1) - 1 = G(k_0 l) = \frac{\int \{1 - \exp(-k_0 f_\nu l)\} \exp(-k_0 f_\nu l) d\nu}{\int \{1 - \exp(-k_0 f_\nu l)\} d\nu} \quad (3)$$

で与えられる。ただし f_ν は超微細構造や Isotope shift 成分をもつ line の profile 関数、 k_0 は profile 中のある周波数における吸収係数と誘導放出係数との差である。 f_ν が既知ならば $G(k_0 l)$ は $k_0 l$ の関数として計算できるので、 I_2/I_1 から $k_0 l$ が求まり、上準位密度が無視できる場合は $k_0 l$ から下準位密度が決定できる。自己吸収法と違って (3) 式は窓の透過率を含まないので、測定誤差が小さく、紫外線の吸収測定が可能である。またスイッチを切りかえる時 Cd だめの炉温度は

一定に保ったままでよく、A-K2 放電時に K1 へ逃げる Cd の量も少ないので、プラズマ I と II 中の Cd 原子密度は等しい。

以下のすべての測定において用いた放電管の直径は 3.5mm で、細管部は常に 330°C に保たれた。またすべての密度測定は管軸上で行った。

3.2.2 陽光柱 He-Cd⁺ レーザー中の各種粒子密度^{39) - 42)}

上記の吸収法を用いて直接測定した密度は Cd^+ 基底イオン密度 (214.4nm, 226.5nm) $n(\text{Cd}_g^+)$, Cd 原子密度 (326.1nm) $n\text{C}_a$, He の 2^3S (318.8nm), 2^1S (396.5nm), 2^3P (402.6nm), 2^1P (492.2nm) 準位の密度, $n(2^3\text{S})$, $n(2^1\text{S})$, $n(2^3\text{P})$, $n(2^1\text{P})$ である。ただしかつこの数字は測定に用いた線の波長を表している。ここで Cd 線の遷移確率及び f_ν はそれぞれ文献 82, 83 及び 106 の結果を用いた。

He の $n \geq 3$ の励起準位及び Cd(II) のいくつかの励起準位の密度は吸収法で直接求めるには小さすぎるので、吸収法で求めた Cd(I) 326.1nm 上準位の密度と 326.1nm 及び He の関係する線の side-light 強度とを組み合わせて決定した。

Cd^+ イオン密度 $n(\text{Cd}^+)$ は $n(\text{Cd}_g^+)$ に Cd^+ 励起イオン密度を加えて求めた。電子密度 n_e は modified double probe 法⁸⁹⁾ により決定した。He⁺ イオン密度 $n(\text{He}^+)$ は測定した n_e と $n(\text{Cd}^+)$ との差から求めた。5 Torr 以下の He 圧力領域では分子状イオンは少ないようであるから、¹⁰⁷⁾ この方法は $n(\text{He}^+)$ の正しい値を与える。

電子衝突励起の割合を計算する際、電子エネルギー分布関数 (EDF) が必要であるが、He-Cd⁺ レーザー用放電に近い放電中の EDF は Maxwell 分布からはずれているとの報告がある。^{108) - 112)} それゆえ筆者らは Vokaty らの方程式¹¹¹⁾ に電界強度と $n(2^3,1\text{S})$, $n(2^3,1\text{P})$ の測定値を代入し、EDF を計算で求めた。ただし必要な衝突断面積は文献 113) ~ 117) の値を引用した。その EDF の例は文献 42) の Fig. 1 に示されている。この分布は Maxwell 分布より高エネルギー電子の数が少ない。

Fig. 4 は $n(\text{Cd}^+)$, n_e , $n(\text{He}^+)$, $n(2^3,1\text{S})$, $n(2^3,1\text{P})$ の $n\text{C}_a$ 依存性を示している。 $n(\text{Cd}_g^+)$ は示されて

Fig. 4 Electron, He^+ ion and Cd^+ ion densities, and population densities of the He first excited states as a function Of Cd atom density(ref. 40).

いないが、これは $n(\text{Cd}^+)$ より絶対値が15%程度小さくなるだけで、相対変化はほぼ同じである。破線は直接電離、 $2^3,1\text{S}$ と $2^3,1\text{P}$ 準位からの階段電離、 2^3S 準位同士の衝突による電離、拡散過程を考慮して計算した $n(\text{He}^+)$ である。衝突断面積は文献75, 118~120の値を用いた。計算値は絶対値において20%程度測定値と異なるが、相対変化はよく一致している。またこの $n(\text{He}^+)$ と $n(2^3,1\text{S})$, $n(2^3,1\text{P})$ の相対変化はほぼ同じである。

Janossyらは3.1(IV)で説明した矛盾を避けるため、(1)式の過程の代りに、最初 Cd^+ 基底イオンがPenning過程で作られ、それに電子が衝突して441.6nmレーザー上準位が生成されるという励起過程を提案した。¹⁰¹⁾ もしこれが真ならば、 $n(\text{Cd}_g^+)$ は $n(2^3,1\text{S})n\text{Cd}_g$ に比例するので、 10^{13}cm^{-3} 付近の $n\text{Cd}_g$ で最大を示すはずである。しかし測定した $n(\text{Cd}_g^+)$ は単調増加する。従って上記の過程は441.6nmレーザー上準位の支配的な励起過程で

はありえない。実際測定した n_e , $n\text{Cd}_g$ 等を用いてCdのPenning電離割合と直接電離割合を計算すると、後者の方がずっと大きく、直接電離と拡散を考慮して計算した $n(\text{Cd}^+)$ の相対変化(一点鎖線)は測定結果とほぼ完全に一致する。この結果から Cd^+ 基底イオンの主要な生成過程は直接電離過程であることがわかる。同じ結論は他の測定法によっても得られている。¹²¹⁾

Fig. 5 Population densities of the He excited states in the He-Cd discharge as a function of discharge current. The solid lines denote the calculated results(ref. 42).

Fig. 5はHe励起準位密度の電流依存性を示している。 $n(2^3,1\text{S})$ は $n\text{Cd}_g$ を完全に一定に保っている。同じ結果は以前にも報告されているが、^{89), 90)} 飽和の機構は解明されなかった。そこで Fig. 6の $n(2^3,1\text{S})$ を理論的に説明するため、 $2^3,1\text{S}$, $2^3,1\text{P}$ 準

位に対して重要と思われる電子衝突過程, カスケード励起過程, radiative decay, 拡散過程等をすべて考慮して4つの連立レート方程式をたて, それを解いて $n(2^{3,1}S)$ 及び $n(2^{3,1}P)$ を求めた。必要な衝突断面積, 拡散係数は文献75, 118, 122~128の値を引用した。図中の実線は計算結果を示している。これは $n(2^{3,1}S)$ の振舞をよく説明している。以前は $2^{3,1}S$ の主要な消滅過程は He^+ 基底準位への電子衝突電離と拡散であると考えられたが, この場合 $n(2^{3,1}S)$ の飽和は100 mA付近でしか生じない。⁹⁶⁾しかし断面積をよく調べてみると, $2^{3,1}S + e^- \rightarrow 2^{3,1}P + e^-$ という消滅過程の割合は上記の過程やPenning過程の割合よりずっと大きい。この過程の割合は20mA付近で拡散による消滅割合よりかなり大きくなり, $n(2^{3,1}S)$ は n_e に依存しない一定値になる。この過程は以前は $2^{3,1}P$ から $2^{3,1}S$ へのカスケード励起過程とほぼつりあうとして無視されたが, その割合が大きい場合無視してはならない。

3.2.3 レーザー上下準位密度の測定と階段励起過程の重要性⁴³⁾

441.6nmの上準位密度 n_2 と下準位密度 n_1 のパラメーター依存性は, まず100 mA, $1.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ n_{Cd} , 3.5 Torr He圧力という条件下で絶対値を測定し, これと441.6nm, 214.4nmのsideliht強度の相対変化の測定値とを組みあわせることによって求められた。上準位密度の絶対値は3.2.1の方法により, 下準位密度は上準位密度と利得測定で求めた反転分布密度との差をとることにより決定した。いろいろな条件における反転分布密度 Δn は測定した n_2 と $(g_2/g_1)n_1$ との差から求めた。

測定した n_2 , n_1 , Δn の電流依存性, n_{Cd} 依存性, He圧力依存性をそれぞれFig. 6(a), 7(a), 8(a)に示す。Fig. 6(a)にはFig. 5から求めた全Penning励起割合も示してある。Fig6(b), 7(b)には441.6nmレーザー出力の測定結果を実線で, Δn と測定した共振器損失とを用いて計算した結果を一点鎖線で示してある。現在の n_2 と n_1 はレーザー発振の最適条件付近で測定された他の結果

と比較的よく一致している。^{93), 129)}

測定した n_1 の絶対値はかなり大きな誤差を含んでいるが, Fig. 6(a)~8(a)から, n_2 に較べて無視できるほど小さくはないと思われる。また n_1 は近似的に電流の2乗で増加しているの, 高電流領域ではレーザー出力の飽和にもある程度寄与していると思われる。

Fig. 6 (a) Penning excitation rate, population densities of the upper and lower states of the Cd(II) 441.6 nm laser line, n_2 and n_1 , respectively, and population inversion density Δn as a function of discharge current. The dotted line represents the calculated n_2 and dash-dot line represents the calculated n_1 . (b) Laser output power as a function of discharge current. The dash-dot line represents the calculated laser output power (ref. 43).

Fig. 6(a)は, Heの $n \geq 3$ の準位まで含めてもPenning励起割合はこの領域でほぼ一定であること, n_2 は電流と共に増加することを示している。従って(1)式のPenning過程は441.6nm上準位の主要な励起過程ではあり得ない。更に上準位の電子衝突によるdeexcitationを考慮すると,

Fig. 7 (a) Population densities of the upper and lower states of the Cd(II) 441.6 nm laser line, n_2 and n_1 , respectively, and population inversion density Δn as a function of Cd atom density. The dotted and dash-dot lines represent the calculated results. (b) Laser output power as a function of Cd atom density. The dash-dot line represents the calculated result (ref. 43).

80), 95), 130) Penning 過程による n_2 の説明は一層困難になる。

レーザー上準位に対する他の可能な励起過程としては電子衝突による直接励起と Cd(II) 基底準位からの階段励起過程、カスケード励起がある。しかし直接励起割合は文献 131 の断面積を用いて計算すると Penning 励起割合よりかなり小さく、無視してもよい。カスケード励起の割合も Penning 励起割合より小さい。そこで励起過程として Penning 過程と階段励起過程を、消滅過程として radiative decay, 電子衝突による deexcitation, 拡散を考慮し、レート方程式をたてて n_2 を求めると、

$$n_2 = \frac{P_2 + n_e n(\text{Cd}_g^+) M_2}{A_{21} + \Lambda + n_e D_2} \quad (4)$$

Fig. 8 Population densities of the upper and lower states of the Cd(II) 441.6 nm laser line, n_2 and n_1 , respectively, and population density Δn as a function of initial He pressure (ref. 43).

ここで P_2 は Penning 励起割合, M_2 及び D_2 は階段励起及び電子衝突による deexcitation の rate coefficient, A_{21} は A 係数, Λ は拡散による消滅の項である。このなかで M_2 以外は既知である。 M_2 の計算に必要な階段励起断面積 $\sigma_k(E)$ は関数形を Drawin の公式¹³²⁾ から求め、次に (4) 式で求めた n_2 が 100 mA で測定した n_2 と一致するように絶対値を選んだ。図中の破線は n_2 の計算結果を表しているが、これは測定結果をよく説明している。レーザー発振領域では $n_e n(\text{Cd}_g^+) M_2$ が P_2 よりかなり大きく、階段励起過程が支配的である。

Fig. 7(a) の n_2 の n_{Cd} 依存性は、電流が 2 桁異なり、主要な励起過程が異なるにもかかわらず、Fig. 2 のそれと定性的に一致している。これは P_2 と $n_e n(\text{Cd}_g^+) M_2$ がほぼ同じ n_{Cd} 依存性をもつからである。後者が最大を示すのは、 n_{Cd} の増加と共に $n(\text{Cd}_g^+)$ が増加するのに対し、 M_2 が平均エネルギーの低下によって減少するからである。

この事実はFig. 2のような結果だけでPenning過程が支配的であるとの結論をだすことが誤りであることを示している。

レーザー下準位の励起機構は上準位に較べると簡単である。その寿命は3nsec程度⁸³⁾なので、radiative decayの割合が大きく、電子衝突によるdeexcitation, 拡散は無視できる。従ってFig. 6(a)で n_1 の測定値が電流の2乗に近い形で増加していることから、階段励起過程が支配的であると考えられる。この時 n_1 は $n_e n(\text{Cd}^+)_1 M_1 / A_{10}$ で与えられる。 n_2 の場合と同様の方法で階段励起断面積を決め、 n_1 を計算した結果をFig. 6(a)~8(a)に一点鎖線で示す。それらはいずれも測定結果をよく説明している。Fig. 7(a)で n_1 の最大は n_2 のそれより高い n_{Cd} で現れている。これは n_{Cd} が増加して平均エネルギーが減少した時、低いエネルギーをもつ下準位の M_1 が M_2 よりゆつくり減少することによる。

3.3 今後の課題

陽光柱He-Cd⁺レーザー441.6nmに対する階段励起過程の重要性、下準位の重要性は3.2の研究でかなり明らかになった。しかし今後更に、(i)レーザー準位への階段励起断面積の測定、(ii)He励起準位からCd(II)レーザー準位への各々のPenning励起断面積の測定、(iii)電子衝突による上準位のdeexcitation断面積のより正確な測定、(iv)Ne-Cd⁺レーザーの出力がHe-Cd⁺レーザー出力より2桁程度小さい事実の階段励起過程による解釈、(v)Cd(II)スペクトル線強度の径方向分布の階段励起過程による説明、(vi)He-Cd⁺レーザーに類似しているHe-Zn⁺レーザー(589.4nm等)の励起機構の定量的な研究等が必要である。

4. 他の陽光柱金属イオンレーザーの励起機構

He-Zn⁺レーザーは3本の発振線を持っている。このなかで589.4nmと747.9nmの上準位 $4s^2^2D$ はHe準安定準位より低いエネルギーを持ち、He-Cd⁺レーザー441.6nmと類似した性質を示すので、主要な励起過程はやはり(1)式のPenning励

起過程であるといわれ、^{17)He-Cd⁺レーザーと同様のafterglow実験も行われてきた。^{75)-77), 133)}しかしこれは励起機構がHe-Cd⁺レーザーと同じ問題点を含んでいることを意味している。筆者らの最近の測定によれば、レーザー上下準位密度の電流依存性やZn原子密度依存性はFig. 6やFig. 7とほぼ同じである。従ってPenning励起過程は支配的ではないと考えられ、その代りに電子衝突励起を考慮する必要がある。}

一方他の発振線758.8nmの上準位 $5p^2P_{3/2}$ の主要な励起過程は

であるといわれている。¹³⁴⁾他に $\text{Zn}^+(6s^2S_{1/2})$ を経る励起も考えられるが、この準位がcharge transfer過程により励起される割合は小さいことが報告されている。¹³⁵⁾

He-Sn⁺レーザー、He-Mg⁺レーザーの励起機構は研究されていないが、レーザー上準位はHe準安定準位より低いエネルギーを持つことから、(1)式と同じPenning励起過程が主要であると考えられてきた。^{17), 136)}しかしこれらもHe-Cd⁺レーザーと同様の問題点を含んでいる可能性がある。

He-I⁺レーザーのレーザー上準位は $\text{He}^+(1^2S_{1/2})$ 基底準位とほぼ同じエネルギーを持ち、主要な励起過程は次のcharge transfer過程であるといわれている。¹³⁶⁾

この仮定を支持する結果¹³⁷⁾や励起断面積^{137), 138)}も報告されている。またHe-CdI₂放電中の電子温度、電子密度も測定された。¹³⁹⁾

He-Se⁺レーザー、He(Ne)-Te⁺レーザーの主要な励起過程も(7)式のcharge transfer過程であるといわれている。^{27), 29)}He-Sn⁺レーザーに関しては、この考え方を裏づけるflowing afterglow測定の結果や、⁷⁷⁾電子温度、電子密度、¹⁴⁰⁾レーザー上準位密度の径方向分布、⁷⁰⁾レーザー準位

の寿命¹⁴¹⁾が報告されている。

He-Hg⁺レーザーの主要な励起過程としては、最初6)式のcharge transfer過程と、⁶⁾He及びHgの準安定原子間の衝突によるPenning様励起過程¹⁴²⁾が提案された。しかしその後charge transfer過程の重要性を示す多くの研究結果が報告され、^{143)~148)}断面積として $1.4 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ 程度の値^{145), 146)}が得られている。

5. むすび

本解説ではHe-Cd⁺レーザーを中心に陽光柱金属イオンレーザーの励起機構の最近までの研究結果についてまとめた。

実用化されている陽光柱He-Cd⁺レーザーは多くの人々によって研究され、励起機構もほぼ解明されたと思われたにもかかわらず、前述したようにPenning過程の重要性が否定され、階段励起過程が提案されたことによって、再び興味ある問題となった。これは金属イオンレーザーの最も基本的な問題であるから、あいまいなままに残すべきではない。今後更に精度の高い測定を積み重ねて、最終的な結論を得ることが必要であると思われる。

参 考 文 献

- 1) W. E. Bell: Appl. Phys. Letters, **4** (1964) 34.
- 2) A. L. Bloom, W. E. Bell and F. O. Lopez: Phys. Rev. **135** (1964) A578.
- 3) H. G. Heard and J. Peterson: Proc. IEEE, **52** (1964) 1049.
- 4) H. J. Gerritsen and P. V. Goedertier: J. Appl. Phys., **35** (1964) 3060.
- 5) N. Suzuki: Japan J. Appl. Phys., **4** (1965) 452.
- 6) D. J. Dyson: Nature, **207** (1965) 361.
- 7) J. P. Goldsborough and A. L. Bloom: IEEE J. Quantum Electron., **QE-5** (1969) 459.
- 8) G. R. Fowles and W. T. Silfvast: IEEE J. Quantum Electron., **QE-1** (1965) 131.
- 9) W. T. Silfvast, G. R. Fowles and B. D. Hopkins: Appl. Phys. Letters, **8** (1966) 318.
- 10) W. T. Walter, N. Solimene, M. Pilch and G. Gould: IEEE J. Quantum Electron., **QE-2** (1966) 474.
- 11) W. E. Bell, A. L. Bloom and J. P. Goldsborough: IEEE J. Quantum Electron., **QE-1** (1965) 400.
- 12) W. E. Bell, A. L. Bloom and J. P. Goldsborough: IEEE J. Quantum Electron., **QE-4** (1968) 154.
- 13) C. E. Webb: IEEE J. Quantum Electron., **QE-4** (1968) 426.
- 14) G. R. Fowles and B. D. Hopkins: IEEE J. Quantum Electron., **QE-3** (1967) 419.
- 15) W. T. Silfvast: Appl. Phys. Letters, **13** (1968) 169.
- 16) J. P. Goldsborough: IEEE J. Quantum Electron., **QE-5** (1969) 133.
- 17) W. T. Silfvast: Appl. Phys. Letters, **15** (1969) 23.
- 18) J. R. Fendley, Jr., I. Gorog, K. G. Hernqvist and C. Sun: RCA Rev. (1969) 422.
- 19) A. L. Bloom and J. P. Goldsborough: IEEE J. Quantum Electron., **QE-6** (1970) 164.
- 20) W. K. Schuebel: Appl. Phys. Letters, **16** (1970) 470.
- 21) Y. Sugawara and Y. Tokiwa: Japan J. Appl. Phys., **9** (1970) 588; Y. Sugawara et al.: Japan J. Appl. Phys., **9** (1970) 1537.
- 22) R. C. Jensen, G. J. Collins and W. R. Bennett, Jr.: Phys. Rev. Letters, **23** (1969) 363.
- 23) R. C. Jensen, G. J. Collins and W. R. Bennett, Jr.: Appl. Phys. Letters, **18** (1971) 50.
- 24) W. K. Schuebel: IEEE J. Quantum Electron., **QE-7** (1971) 39.
- 25) A. Ferrario: Opt. Commun., **7** (1973) 376.
- 26) H. Kano, T. Goto and S. Hattori: J. Phys. Soc. Japan, **38** (1975) 596.
- 27) W. T. Silfvast and M. B. Klein: Appl. Phys. Letters, **17** (1970) 400.
- 28) M. B. Klein and W. T. Silfvast: Appl. Phys. Letters, **18** (1971) 482.
- 29) W. T. Silfvast and M. B. Klein: Appl. Phys. Letters, **20** (1972) 501.
- 30) G. J. Collins et al.: IEEE J. Quantum Electron., **QE-8** (1972) 679.
- 31) J. A. Piper, G. J. Collins and C. E. Webb: Appl. Phys. Letters, **21** (1972) 203; J. A. Piper: J. Phys. D: Appl. Phys., **7** (1974) 323.
- 32) J. A. Piper and C. E. Webb: IEEE J. Quantum Electron., **QE-12** (1976) 21.
- 33) S. Hattori, H. Kano, T. Goto et al.: IEEE J. Quantum Electron., **QE-10** (1974) 530.
- 34) H. Kano, T. Goto and S. Hattori: J. Phys. Soc. Japan, **38** (1975) 586.
- 35) J. A. Piper and C. E. Webb: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **6** (1973) L116.
- 36) D. T. Hodges: Appl. Phys. Letters, **18** (1971) 454.
- 37) J. P. Goldsborough: Appl. Phys. Letters, **15** (1969) 159.
- 38) W. T. Silfvast: Phys. Rev. Letters, **27** (1971) 1489.
- 39) T. Goto, M. Mori, S. Hattori: Appl. Phys. Letters, **29** (1976) 358.
- 40) M. Mori, K. Takasu, T. Goto and S. Hattori: J. Appl. Phys., **48** (1977) 2226.
- 41) M. Mori, T. Goto and S. Hattori: J. Phys. Soc.

- Japan, **43** (1977) 662.
- 42) M. Mori, T. Goto and S. Hattori: J. Phys. Soc. Japan, **44** (1978) 1715.
- 43) M. Mori, M. Murayama, T. Goto and S. Hattori: IEEE J. Quantum Electron., **QE-14** (1978) 427.
- 44) 服部秀三: 応用物理, **40** (1971) 1113.
- 45) L. Csillag et al.: J. Phys. D: Appl. Phys., **3** (1970) 64.
- 46) A. Dienes and T. P. Sosnowski: Appl. Phys. Letters, **16** (1970) 512.
- 47) T. G. Giallorenzi and S. A. Ahmed: IEEE J. Quantum Electron., **QE-7** (1971) 11.
- 48) V. J. Stefanov and M. D. Petrova: Phys. Letters, **35A** (1971) 424.
- 49) N. V. S'botinov, P. K. Telbizov and S. D. Kalchev: Sov. Phys. Tech. Phys., **18** (1974) 1646.
- 50) F. A. Korolev et al.: Opt. Spectrosc., **37** (1974) 669.
- 51) V. S. Aleinikov et al.: Sov. Phys. Tech. Phys., **20** (1976) 1245.
- 52) T. F. Johnston, Jr. and W. P. Kolb: IEEE J. Quantum Electron., **QE-12** (1976) 482.
- 53) T. Arai and T. Yabumoto: IEEE J. Quantum Electron., **QE-13** (1977) 405.
- 54) T. P. Sosnowski: J. Appl. Phys., **40** (1969) 5138.
- 55) K. G. Hernqvist: Appl. Phys. Letters, **16** (1970) 464.
- 56) K. G. Hernqvist and D. C. Pultorak: Rev. Sci. Instrum., **41** (1970) 696.
- 57) W. T. Silfvast and L. H. Szeto: Appl. Opt., **9** (1970) 1484.
- 58) W. T. Silfvast and L. H. Szeto: Appl. Phys. Letters, **19** (1971) 445.
- 59) K. G. Hernqvist: IEEE J. Quantum Electron., **QE-8** (1972) 740.
- 60) D. J. Brink and V. Hasson: J. Phys. D: Appl. Phys., **8** (1975) L35.
- 61) D. C. Brown and N. Ginsburg: Appl. Phys. Letters, **24** (1974) 287.
- 62) M. Janossy: Phys. Letters, **47A** (1974) 409.
- 63) D. Fromm and E. Schmidt: Z. Naturforsch., **30a** (1975) 372.
- 64) G. R. Willenbring and J. A. Carruthers: J. Appl. Phys., **41** (1970) 5040.
- 65) F. R. Faxvog, G. R. Willenbring and J. A. Carruthers: Appl. Phys. Letters, **16** (1970) 8.
- 66) W. T. Silfvast and P. W. Smith: Appl. Phys. Letters, **17** (1970) 70.
- 67) V. F. Keidan, V. S. Mikhalevskii and M. F. Sem: J. Appl. Spectrosc., **15** (1971) 1089.
- 68) K. G. Hernqvist and D. C. Pultorak: Rev. Sci. Instrum., **43** (1972) 290.
- 69) T. Suzuki and S. Ieiri: Appl. Phys. Letters, **31** (1977) 328.
- 70) A. L. McKenzie: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **7** (1974) L141.
- 71) S. Hattori, H. Kano and T. Goto: VIII Int. Quantum Electron. Conf. (San Francisco, 1974).
- 72) T. Goto et al.: J. Phys. E: Sci. Instrum., **10** (1977) 292.
- 73) W. T. Silfvast: Phys. Rev. Letters, **27** (1971) 1489.
- 74) L. D. Schearer and F. A. Padovani: J. Chem. Phys., **52** (1970) 1618.
- 75) G. J. Collins, R. C. Jensen and W. R. Bennett, Jr.: Appl. Phys. Letters, **19** (1971) 125.
- 76) C. E. Webb, A. R. Turner-Smith and J. M. Green: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **3** (1970) L134.
- 77) A. R. Turner-Smith, J. M. Green and C. E. Webb: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **6** (1973) 114.
- 78) C. S. Willett: *Introduction to Gas Lasers: Population Inversion Mechanisms* (Pergamon Press, New York, 1974) p. 225.
- 79) S. R. Baumann and W. H. Smith: J. Opt. Soc. Amer., **60** (1970) 345.
- 80) M. B. Klein and D. Maydan: Appl. Phys. Letters, **16** (1970) 509.
- 81) D. A. Shaw, A. Adams and G. C. King: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **8** (1975) 2456.
- 82) A. R. Schaefer: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **11** (1971) 197.
- 83) T. Andersen and G. Sorensen: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **13** (1973) 369.
- 84) V. Cermak: Collect. Czechoslov. Chem. Commun., **36** (1970) 948.
- 85) T. Goto, A. Kawahara, G. J. Collins and S. Hattori: J. Appl. Phys., **42** (1971) 3816.
- 86) J. K. Mizeraczyk: J. Appl. Phys., **46** (1975) 1847.
- 87) M. H. Dunn: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **5** (1972) 665.
- 88) M. K. Dyatlov, E. P. Ostapchenko and V. A. Stepanov: Opt. Spectrosc., **29** (1970) 539.
- 89) P. G. Browne and M. H. Dunn: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **6** (1973) 1103.
- 90) K. Miyazaki et al.: Japan. J. Appl. Phys., **13** (1974) 1866.
- 91) I. G. Ivanov and M. F. Sem: Sov. Phys. Tech. Phys., **17** (1973) 1234.
- 92) J. K. Mizeraczyk, Z. Zakrzewski, T. Goto and S. Hattori: Proc. 12 Int. Conf. Phenomena in Ionized Gases, Eindhoven, 1975, 224.
- 93) D. T. Hodges: Appl. Phys. Letters, **17** (1970) 11.
- 94) T. Sakurai: J. Appl. Phys., **45** (1974) 2666.
- 95) P. G. Browne and M. H. Dunn: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **7** (1974) 1113.
- 96) J. K. Mizeraczyk: IEEE J. Quantum Electron., **QE-11** (1975) 218.
- 97) S. Watanabe, K. Kuroda and I. Ogura: J. Appl. Phys., **47** (1976) 4887.

- 98) G. J. Collins: J. Appl. Phys., **44** (1973) 4633.
- 99) C. C. Davis and T. A. King: *Advances in Quantum Electronics*, Vol. 3, ed. D. W. Goodwin (Academic Press, London and New York, 1975), Chap. Gaseous Ion Lasers.
- 100) L. Csillag, V. V. Itagi, M. Janossy and K. Rozsa: Phys. Letters, **34A** (1971) 110.
- 101) M. Janossy, V. V. Itagi and L. Csillag: Acta Phys. Acad. Scient. Hungaricae, **32** (1972) 149.
- 102) S. C. Wang and A. E. Siegman: Appl. Phys., **2** (1973) 143.
- 103) A. C. G. Mitchell and M. W. Zemansky, *Resonance Radiation and Excited Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, 1934).
- 104) A. M. Bruneteau et al.: Phys. Letters, **A46** (1974) 309.
- 105) J. A. Harrison: Proc. Phys. Soc. London, **73** (1959) 841.
- 106) R. H. Contreras and F. M. Kelly: Can. J. Phys., **47** (1969) 1979.
- 107) R. L. Fitzwilson and L. M. Chanin: Rev. Sci. Instrum., **44** (1973) 963.
- 108) H. Margenau: Phys. Rev., **73** (1948) 297.
- 109) J. Y. Wada and H. Heil: IEEE J. Quantum Electron., **QE-1** (1965) 327.
- 110) E. E. Mainwaring and J. D. Swift: J. Phys. D: Appl. Phys., **5** (1972) 1433.
- 111) E. Vokatý and K. Masek: Czech. J. Phys., **B22** (1972) 776.
- 112) M. I. Ciobanu, A. I. Ciura, E. Cojocaru and I. M. Popescu: Rev. Roum. Phys., **20** (1975) 29.
- 113) R. B. Brode: Phys. Rev., **35** (1930) 504.
- 114) N. P. Penkin and T. P. Redko: Opt. Spectrosc., **22** (1967) 252.
- 115) V. N. Savchenko: Opt. Spectrosc., **30** (1970) 6.
- 116) J. W. Otvos and D. P. Stevenson: J. Am. Chem. Soc., **78** (1956) 546.
- 117) R. F. Pottier: J. Chem. Phys., **44** (1966) 916.
- 118) D. R. Long and R. Geballe: Phys. Rev., **A1** (1970) 260.
- 119) L. Vriens: Phys. Letters, **8** (1964) 260.
- 120) A. V. Phelps and J. P. Molnar: Phys. Rev., **89** (1953) 1202.
- 121) A. L. McKenzie: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **10** (1977) 541.
- 122) R. Mewe: Physica, **47** (1970) 373.
- 123) J. D. Jobe and R. M. St. John: Phys. Rev., **164** (1967) 117.
- 124) B. L. Moiseiwitsch and S. J. Smith: Rev. Mod. Phys., **40** (1968) 238.
- 125) S. Trajmar: Phys. Rev., **A8** (1973) 191.
- 126) M. R. Flannery, W. F. Morrison and B. L. Richmond: J. Appl. Phys., **46** (1975) 1186.
- 127) J. G. Showalter and R. B. Kay: Phys. Rev., **A11** (1975) 1899.
- 128) A. V. Phelps: Phys. Rev., **99** (1955) 1307.
- 129) T. Goto, M. Murayama and S. Hattori: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **20** (1978) 255.
- 130) F. A. Korolev et al.: Opt. Spectrosc., **37** (1974) 669.
- 131) S. P. Varshavskii, A. A. Mityureva and N. P. Penkin: Opt. Spectrosc., **29** (1970) 341.
- 132) H. W. Drawin: Assoc.-Euratom-CEA, Rep. EUR-CEA-FC 383 (revised) 1967.
- 133) L. A. Riseberg and L. D. Scheerer, IEEE J. Quantum Electron., **QE-7** (1971) 40.
- 134) G. J. Collins, R. C. Jensen and W. R. Bennett, Jr.: Appl. Phys. Letters, **18** (1971) 282; Erratum **19** (1971) 122.
- 135) J. M. Green, G. J. Collins and C. E. Webb: J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **6** (1973) 1545.
- 136) G. R. Fowles and R. C. Jensen: Proc. IEEE, **52** (1964) 851.
- 137) T. Shay, H. Kano and G. J. Collins: Appl. Phys. Letters, **26** (1975) 531; Erratum **29** (1970) 221.
- 138) Yu. A. Tolmachev: Opt. Spectrosc., **33** (1972) 653.
- 139) H. Kano, T. Goto and S. Hattori: IEEE J. Quantum Electron., **QE-9** (1973) 776.
- 140) T. Goto, H. Kano and S. Hattori: J. Appl. Phys., **43** (1972) 5064.
- 141) A. Ferrario: Opt. Commun., **8** (1973) 333.
- 142) N. Suzuki: Japan. J. Appl. Phys., **4** (1965) 452.
- 143) V. S. Aleinkov: Opt. Spectrosc., **28** (1970) 15.
- 144) C. S. Willett: IEEE J. Quantum Electron., **QE-6** (1970) 469.
- 145) V. S. Aleinkov and V. V. Ushakov: Opt. Spectrosc., **33** (1972) 116.
- 146) H. Kano, T. Shay and G. J. Collins: Appl. Phys. Letters, **27** (1975) 610.
- 147) T. Shay, H. Kano, S. Hattori and G. J. Collins: J. Appl. Phys., **48** (1977) 4449.
- 148) I. M. Littlewood, J. A. Piper and C. E. Webb: Opt. Commun., **16** (1976) 45.