

プラズマ計測のための高出力 LC 反転形 窒素レーザーの製作

松田良信*・藤山 寛*

A Home-Built High-Power LC Inversion Nitrogen Laser for Use in Plasma Diagnostics

by

Yoshinobu MATSUDA* and Hiroshi FUJIYAMA*

A high-power, high-repetition rate, LC inversion nitrogen laser has been made for use in processing plasma diagnostics. The maximum output of 1.8mJ was obtained at a repetition rate of 5 pps, a gas pressure of 40 Torr, a gas flow rate 5 l/min and a charging voltage of 20kV. The laser output was stable over 5×10^4 shots within a power decrease of 20%. The home-built nitrogen laser is sufficient to pump a tunable dye laser.

1. まえがき

近年、波長可変の窒素レーザーを用いたレーザー分光が各方面で積極的に利用されている。^{1,2)}機能性薄膜の形成を目的としたプラズマプロセッシングの分野においては、膜質の制御の観点からラジカルの発生、輸送、消滅過程を解明する必要があるが、レーザー分光による荷電粒子・ラジカル粒子の計測はここでも有力な研究手段になっている。³⁾プロセッシングプラズマのような弱電離プラズマの診断にレーザー分光法を適用すれば、以下のような利点がある。

- 1) 本質的にプラズマを乱さない。
- 2) プラズマ中の原子、分子およびそれらのラジカル種の同定が可能である。
- 3) プラズマ中の原子、分子およびそれらラジカル種の絶対数密度と並進運動状態(エネルギー分布)と内部エネルギー状態(電子状態)が測定できる。
- 4) レーザー励起で生成した高励起状態原子の応答から局所的な電界強度が求められる。

以上のレーザー分光からの情報を、プローブ法による荷電粒子に関する情報および発光分光法による発光種に関する情報と結びつけることにより、プラズマ内部の反応過程がより詳細に明らかになる。そこで、本研究ではプロセッシングプラズマのレーザー分光計測に必要な波長可変窒素レーザーの製作の一環として、その励起源となる高出力高繰返し窒素レーザーを製作した。本論文では、まず窒素レーザーの一般的な概要を述べ、次に製作した窒素レーザーの説明を行い、最後に得られたレーザー光出力の特性評価結果について述べる。

2. 窒素レーザーの概要

1963年に Heard によって初めて報告された窒素レーザーは、窒素分子の Second Positive 帯の337.13 nmでパルス発振動作を行う近紫外域レーザーである。^{4,5)}レーザー利得が大きいため、簡単な装置でも発振し数百kWの尖頭出力が容易に得られ、パルスの繰返し

し数も数十Hzでも可能である。また、窒素レーザーは装置の維持・保守が簡単であり、使用ガスがほとんどの場合 N_2 ガスのみであるため安全で、経費も少なくすむ。このため従来より、波長可変色素レーザーの励起用に一般的に用いられてきた。^{6,7)}

一方、色素レーザーの励起に有用な他の紫外域レーザーとしてエキシマレーザーがある。エキシマレーザーは窒素レーザーと比べて出力が2桁ほど大きく、大出力の色素レーザーを得ることができる。従って、高出力レーザー光を用いた非線形光学の研究には特に有効である。⁸⁾しかし、エキシマレーザーは窒素レーザーに比べてはるかに大型・高価であり、装置の維持も簡単とは言えない。本研究の目標であるプラズマ計測用色素レーザーの励起源としては、1パルス当たり1mJ程度あれば良く、窒素レーザーで十分である。⁹⁾

2.1 窒素レーザーの発振原理

図1に、窒素レーザーの発振過程に関する N_2 分子のエネルギー準位図を示す。窒素ガス中で速い立ち上がりの放電を起こすと、基底準位 ($X^1\Sigma_g^+$) にある N_2 分子は電子衝突により $C^3\Pi_u$ 準位に効率よく励起され、 $C^3\Pi_u$ と $B^3\Pi_g$ の電子準位間で反転分布が生成される。通常の放電励起では、最強の発振線は $C \rightarrow B$ 準位間の (0,0) 帯337.13nm の紫外光である。C準位の自然放出寿命は約40nsであり、一方B準位のそれは10 μ s程度である。従って反転分布を生じさせるには、C準位の寿命40nsより短いパルス幅の放電が必要になる。¹⁰⁾

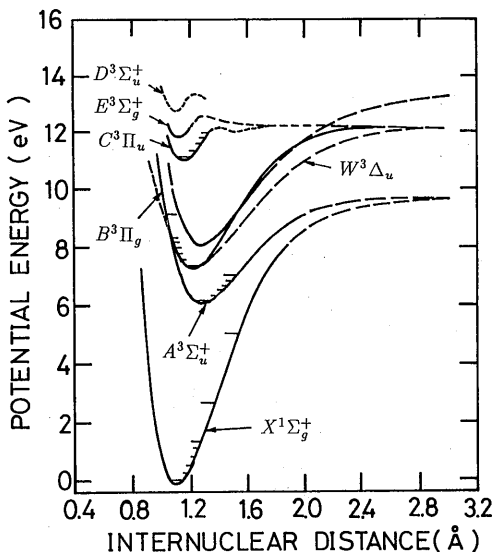


Fig. 1 Potential energy curves for N_2 .¹⁰⁾

電子衝突による N_2 分子の励起断面積を図2に示す。これによると $C \rightarrow B$ 準位間に反転分布を作るうえでは電子のエネルギーが15~16eVにある場合が最も効率が高くなる。このような電子エネルギーを与えるためには放電中の電場と気体圧力の比 (E/P) の最適値は約200Vcm⁻¹Torr⁻¹と見積られており、この E/P 値は放電回路において重要な値となる。¹⁰⁾

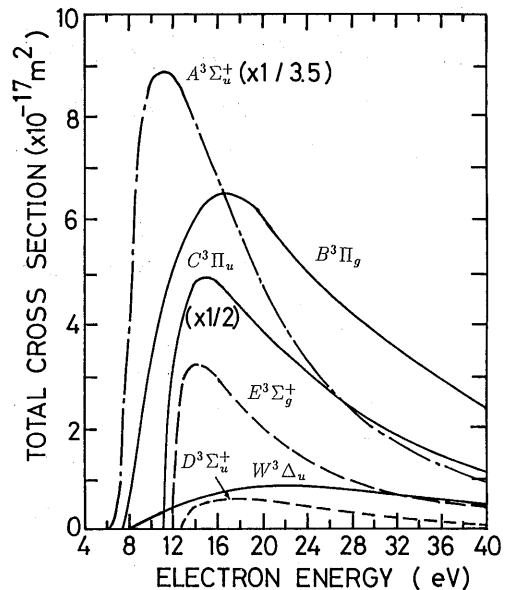


Fig. 2 Electron impact excitation cross section data for N_2 .¹⁰⁾

準安定状態の希ガスから N_2 分子へのエネルギー移乗を利用して N_2 分子を効率よく励起することも可能で、たとえば $Ar(3p)$ と $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ との衝突で $N_2(C^3\Pi_u)$ に励起される。通常このような雰囲気ガスとしては He, Ne などが利用される。

2.2 窒素レーザー出力光の特徴

窒素レーザーの利得は普通の装置でも約10~100 dB/mと高く、共振器を使用しなくても強力な誘導放出光が得られる。このような出力光を Amplified Spontaneous Emission (ASE) と呼ぶ。ASE では利得が大きく出力の飽和効果が生じるが、紫外域では飽和利得が比較的大きいため出力光の強度はかなり大きなものとなる。窒素レーザーのように高利得のパルスレーザーでは、反転分布の生じる時間が短いため通常のレーザーで使われる光共振器は有効でなく、上述の ASE を出力として利用したほうが効率が良い。ただ

し、周波数的小および空間的なコヒーレンスはあまり良くない。

2.3 窒素レーザーの放電回路

窒素レーザーパルスのピーク強度とそのパルス幅は、励起回路でいかに早く電流が立ち上がるかに大きく依存する。放電の立ち上がり時間を少なくとも数十 ns 以下にするために、いろいろな励起技術が開発されている。¹¹⁻¹³⁾

N_2 分子の励起方法には、電子ビーム励起と放電励起があり、さらに後者はレーザー光軸と放電電場の向きにより縦励起と横励起に分けられる。汎用の窒素レーザーには横形の放電励起方式が通常用いられる。立ち上がりの速い横励起のパルス放電は、容量移行形回路や LC 反転形回路で実現され、最も速い立ち上がりの放電は平行平板形ブルームライン回路で得られる。

ブルームライン形パルス放電回路の一例として平行平板対向電極の構成図を図 3 に示す。伝送路となる平行平板コンデンサーの上と下の平板の間には、誘電体であるマイラーなどの耐圧の高い高分子フィルムが詰められている。高圧電源によって充電させておいた平板コンデンサーの一方のスパークギャップスイッチを閉じることにより、レーザー媒質を横方向に放電励起する。通常は、放電管の一方から光の出口に向かって光速度と等しい速度で励起の進行波が進むように分布定数を設定し、いわゆる進行波励起効果を利用する。この種のレーザーは利得が大きいため必ずしも共振器構成を必要とせず、その効率は 0.1~0.2% 程度である。このように平行平板コンデンサーを用いた場合には、回路特性の点からかなり高い効率が期待できるが、

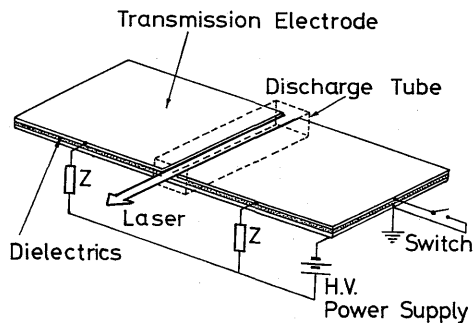


Fig. 3 Schematic diagram of the fast pulse blumlein laser geometry using parallel plate electrodes.

一般にこの種のコンデンサーは耐圧、耐久性に関して問題が多い。

そこで、平行平板コンデンサーの代わりに強誘電体材料を用いたセラミックコンデンサーを用いた装置が提案されている。この場合、形状、電極構造による制約から平行平板間隔が大きくなるが、誘電率が前述の高分子フィルムに比べて1000倍以上大きいため、回路の特性インピーダンス自体は同程度にすることができる。しかし、コンデンサーと放電管およびスイッチとの結合においてインダクタンスが大きくなるために、効率はあまり良くない。とはいえ、レーザー装置の寿命、信頼性を重視するとセラミックコンデンサーを用いた装置の方が有利と考えられる。

以上より、LC反転回路は、純粋のブルームライン回路と比較すると放電の立ち上がりが遅く効率は低下するが信頼性・寿命で優れ、通常容量移行回路に較べると電源電圧が約半分で済み放電の立ち上がりが速い。そこで本研究では高電圧パルス発生回路としてブルームライン類似のLC反転回路を採用した。

3. 窒素レーザーの設計、製作

今回製作した窒素レーザーは、レーザーヘッド部、高圧電源・トリガーパルサー系、ガス供給・排気系より構成されている。以下に各部毎に詳述する。

3.1 レーザーヘッド部

今回製作した窒素レーザーのレーザーヘッド本体部分の構成図を図 4 に示す。ここで、(a)は平面図、(b)はビーム出力窓側からみた正面図である。

主放電電極は、長さ600mm、直径20mmの2本のステンレス丸棒を研磨したもので、電界の集中を防ぎ一様な放電を行うために両端を放物面状に加工した。両電極はアルミ板にネジ止めし、電極間距離は30mmである。また、主放電を低ジッターで再現性良く起こすための予備電離用電極として、長さ660mm、直径0.3mmのステンレス製ワイヤーを放電軸上約20mm、やや陰極側に近づけて張った。

放電管は、電極を支持するアルミ板を側板とし、それを厚さ15mmの亚克力製の天板と底板ではさみこむ構造とした。底板と側板はシリコンゴムで接着し、天板はゴムシートをOリング代わりに用いてねじ止めして取り外し可能とした。天板と底板には窒素ガスの吸気・排気のためのコネクタを各4箇所取り付け付けた。また放電管の両端には、レーザーミラー装着のための直径30mmの穴とOリング溝を加工した厚さ15mmの亚克力板を取り付けた。

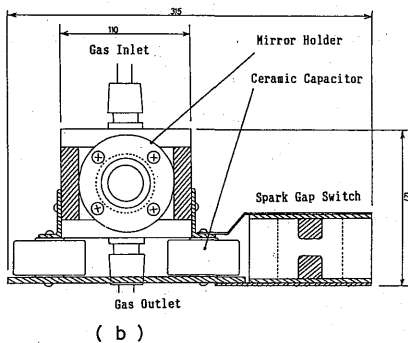
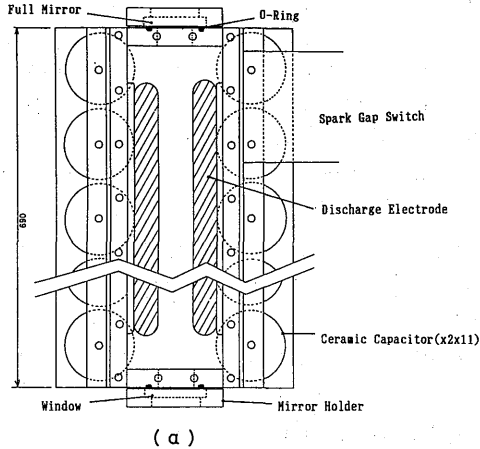


Fig. 4 Cross section of the laser head of the home-made N_2 laser, (a) top view and (b) side view.

レーザー共振器は、直径50mm、厚さ8mm、面精度 $\lambda/10$ の石英ガラスと、紫外光を完全反射する直径50mm、厚さ8mm、面精度 $\lambda/10$ の誘電体ミラーとで構成した。両ミラーはOリングシールされており、その弾性を利用して角度調節が行える。

充電コンデンサーは、2nFのセラミックコンデンサー（TDK製、耐圧40kV）を使用し、両電極にそれぞれ11個並べて22nF並列とした。回路の自己インダクタンスを小さくするためには、放電管内にコンデンサーを組み込むなどして出来るだけ緻密に並べたほうが好ましいが、コンデンサーを取り外し可能とするために図のような外置き構造とした。

スパークギャップスイッチには自動車エンジン用のプラグを利用した。電極は直径20mmのステンレス丸棒を加工したもので、Al製天板と底板にOリングを介してボルトで固定した。ギャップスイッチ自身はアクリル容器に密閉し、内部圧力を調節することにより自爆電圧を調整できるようにした。

レーザーヘッド部の電気回路を図5に示す。図中の

L および L_s は回路の残留インダクタンスを意味する。コンデンサー C_1 、 C_2 の初期電圧を V_0 としてスパークギャップスイッチを閉じると、 C_2 の電圧は $V_0 \cos \omega t$ で変化し放電電極間には $V_0(1 - \cos \omega t)$ の電圧がかかる。ただし $\omega = (L_s C_2)^{-1/2}$ である。実際の回路には抵抗成分が存在するため減衰振動となり、電極間の尖頭電圧は $2V_0$ よりも小さな値になる。電極間電圧 $V_0 + V_r$ (V_r は C_2 に生じる反転電圧)が絶縁破壊電圧 V_b を越えると主放電が開始する。主放電電流 I は、 $C_1 = C_2$ の場合、 $I = (C_1 / 2L)^{1/2} V_b \sin [t / (LC_1 / 2)^{1/2}]$ となる。例えば $L = 20\text{nH}$ 、 $C_1 = 22\text{nF}$ 、 $V_0 = 20\text{kV}$ 、 $V_r = 15\text{kV}$ のとき、放電電流の立ち上がり時間は23ns、そのピーク値は26kAに達する。

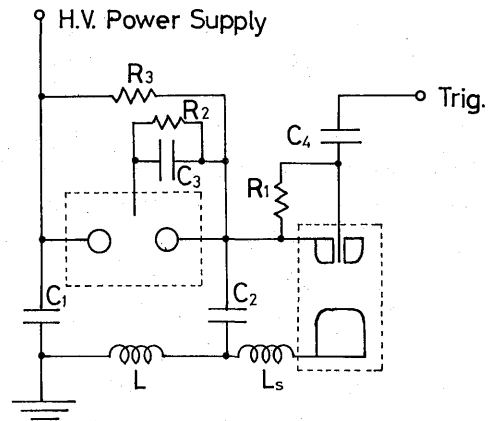


Fig. 5 Schematic diagram of the LC inversion circuit of the N_2 laser. $C_1 = C_2 = 22\text{nF}$, $C_3 = C_4 = 700\text{pF}$, $R_1 = 400\text{k}\Omega$, $R_2 = 100\text{k}\Omega$, $R_3 = 20\text{k}\Omega$.

3.2 高圧電源およびトリガパルス発生器

コンデンサー充電用高圧電源には、パルス電子技術(株)製の定電流制御形高電圧スイッチング電源 HDV-20K25SS (出力電圧0~20kV, 最大出力電流26mA, 最大出力エネルギー250J/s, 最大繰り返し20pps)を用いた。

スパークギャップスイッチ始動用のトリガパルスには、サイリスタを用いた高電圧パルス発生器(パルストランス巻き線比1:50, 無負荷時出力の波高値20kV, 立ち上がり時間約20 μs , 最大繰り返し20Hz)を自作し、使用した。

3.3 ガスの供給・排気系

放電管内の窒素ガスの圧力分布をできるだけ一様に

するため、ガス供給は放電管軸上の4ヶ所からシンプレックスチューブを経由して行った。排気は、底板4箇所に取り付けたシンプレックスチューブを経由しロータリーポンプ (120 l/min) で行った。レーザー放電管内の圧力及びガス流量調整は、窒素ガスポンベの流量調整器と2個の流量調整用バルブ、排気量調整バルブで行った。圧力のモニターは放電管に組み込んだブルドン管式真空計 (測定範囲0~760Torr) で行い、ガス流量のモニターはガスポンベに付随の流量計 (測定範囲0~25 l/min) で行った。窒素ガス流量と圧力の調節可能範囲は、それぞれ0~10 l/min, 0~180 Torrである。

4. 試作した窒素レーザーの性能評価

4.1 実験装置と実験方法

窒素レーザーの性能評価は、出力エネルギーとレーザービームの空間強度分布およびレーザースペクトルに関して行った。単位面積当たりの出力エネルギーの測定は、レーザー光をジュールメーター (gentec, ED-100A, エネルギー感度104V/J, 受光部直径4.3mm) で受光し、オシロスコープに出力して行った。全出力エネルギーは、スリット (1mm) を付けたジュールメーターを空間掃引してレーザーの空間強度分布を求め、それを積分して求めた。またレーザーの出力測定においては、レーザー1パルス毎の変動があるので、32または64パルスの平均値を測定値とした。レーザースペクトルは、レーザービームを分光器 (日本分光 CT-25C, 逆分散2 nm/mm) に直接入力し、ステッピングモーターで波長を自動掃引しながら、光電子増倍管 (Hamamatsu, R1509) で測定した。

4.2 実験結果及び考察

4.2.1 出力エネルギーの充電電圧特性

図6に、圧力40Torr, ガス流量1 l/min, 繰り返し周波数5 Hzの条件で得られたレーザー出力エネルギーの充電電圧特性を示す。レーザーエネルギーはほぼ充電電圧の2乗の比例して増加し、20kVで1.7mJに達している。スパークギャップスイッチの始動電圧は14kVで、それ以下の電圧では放電は起きない。外挿すれば、レーザー発振の閾値は約10kV程度である。充電電圧が20kVにおいてもスパークギャップの自爆がほとんど無く、安定したレーザー発振が確認できた。

いま、充電コンデンサー容量を C_1, C_2 、充電電圧の発振閾値を V_{th} とすると、充電電圧 V のときレーザー出力 E_L は、次式で表されるものとする。

$$E_L = \eta \cdot 1/2 \cdot (C_1 + C_2) (V^2 - V_{th}^2), \text{ ここで } \eta \text{ は,}$$

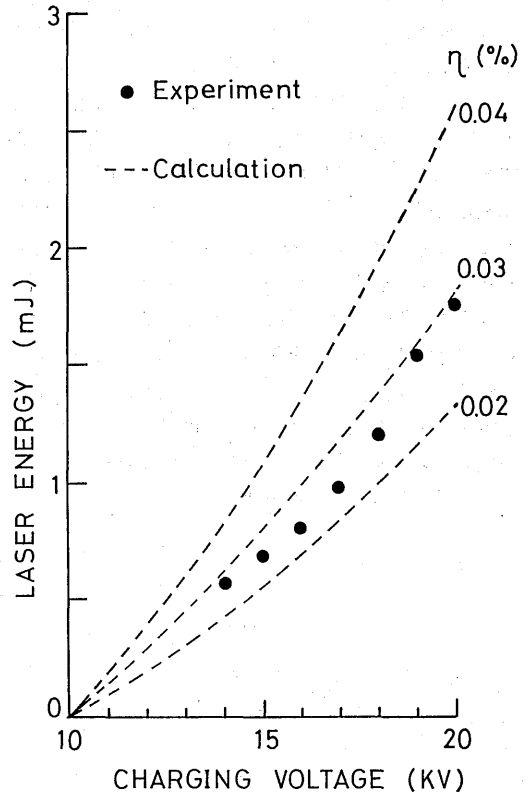


Fig. 6 Laser output energy versus charging voltage. Dotted lines are calculated ones for different lasing efficiency η of which definition is given in the text.

閾値以上の入力に対するレーザーの発振効率である。図7中の実線は、 η をパラメータとしてこの式をプロットしたものであり、実験で得られた発振効率の値は約0.02~0.03%であることがわかる。この値は市販の装置で報告されている値よりやや低めである。これは、本窒素レーザーで使用したスパークギャップスイッチ側の電気抵抗とインダクタンスが大きく電圧反転が不十分であることと、主放電回路の自己インダクタンスが大きく放電の立ち上がりが遅いことが主に影響しているものと考えられる。これらを最適化すれば約2倍の効率改善が期待できる。

4.2.2 出力エネルギーの圧力特性

図7に窒素ガス圧に対するレーザー出力エネルギーの変化の様子を示す。充電電圧が16kVのときを黒丸で、18kVのときを白丸で示す。いずれの場合も圧力

上昇とともにレーザー出力は上昇し、最適ガス圧でピークをとった後再び減少する。低圧側での出力低下は窒素分子密度の低下によるものであり、高圧側での出力低下は放電プラズマ中の電子エネルギーの低下によるものである。特にガス圧力が100Torr付近になると、放電が空間的に不均一になり、アーク状の放電が観測された。最高出力を与える最適ガス圧は、16kV充電と18kV充電に対し、それぞれ35Torr、40Torrである。放電電極間に充電電圧の1.6倍の電圧が印加されるとして最適圧力での E/P を計算すると、いずれの場合も約 $240\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ であった。この結果から、充電電圧が高いほど最適ガス圧も上昇することがわかるが、本窒素レーザーの入力電圧範囲では最適動作ガス圧を40Torrと考えると十分問題ない。ただし最適圧力範囲が狭いので、設定圧力の安定性がレーザーを安定に動作させる上で重要となる。

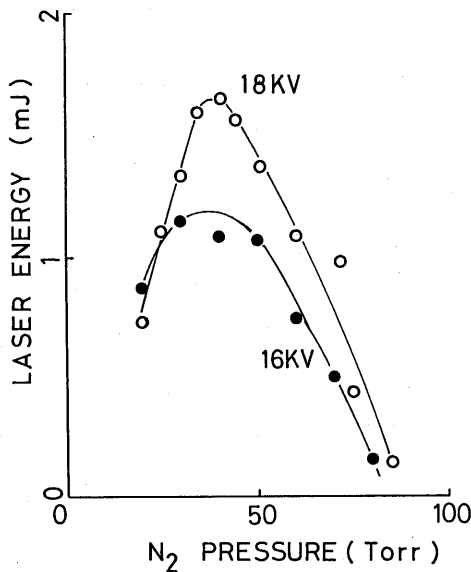


Fig. 7 Laser output energy versus N_2 pressure for charging voltages of 16kV (black circles) and 18kV (open circles).

4.2.3 出力エネルギーの繰り返し周波数及びガス流量特性

図8に、窒素ガス流量をパラメータとしてレーザー出力の繰り返し周波数に対する変化を示す。全体の傾向としては、繰り返し周波数が10Hzまではほとんど出力の低下は無く、20Hzでわずかに減少する傾向にある。これは、放電繰り返し周波数20Hzでは、高電圧電源と充電コンデンサーとのマッチングが不十分で

充電が繰り返し周波数に追従できていないこと、トリガーパルス電圧が周波数上昇とともに低下してLC反転回路のスイッチング動作が不安定になり放電自体の安定性が劣下すること、等によるものと考えられる。また、実験誤差の範囲内で、レーザー出力はガス流量には依存せず、流量を変化させた際の圧力設定の違いが出力の違いに効いているものと考えられる。繰り返し周波数とガス流量に関して議論するには、さらに詳細な実験が必要である。

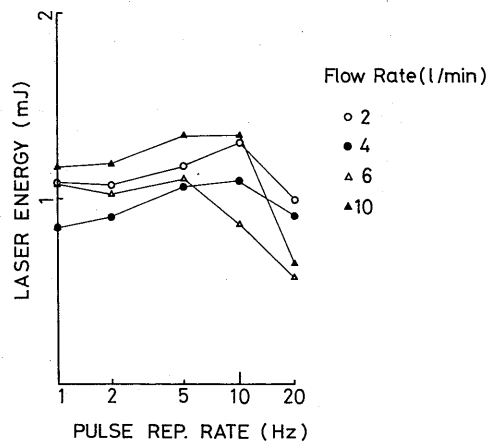


Fig. 8 Laser output energy versus laser pulse repetition rate as a parameter of N_2 gas flow rate.

4.2.4 レーザー出力の空間強度分布

図9に窒素レーザー出力の空間強度分布を示す。これは、ジュールメーターに幅1mmのスリットを取り付け、レーザー光の出射窓から20cmの位置でそれぞれ縦、横方向に1mmずつ掃引したものである。ビームパターンは縦8mm、横30mm、断面積 240mm^2 の矩形である。また強度分布の対称性が十分良いことから、光軸のアライメントがうまくできていることがわかる。

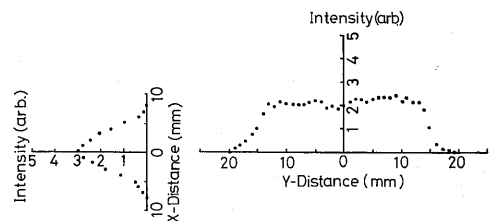


Fig. 9 Spatial intensity distribution of the N_2 laser beam.

4.2.5 レーザー発振スペクトル

図10に、試作した窒素レーザーの波長300~410nmでの発振スペクトルを示す。ここで窒素レーザーの動作条件は、充電電気19kV、窒素ガス圧力40Torr、ガス流量2 l/min、繰り返し10Hzである。図には、N₂分子の Second Positive 帯特有の、短波長側へシェードする回転スペクトルからなる振動帯スペクトル構造が確認される。最も強いスペクトルは337.13nm であり、これはC³Π_u(v=v')準位からB³Π_g(v=v')準位への振動帯スペクトルの内、v'=0→v''=0のものである。一方、他の Δv=v'-v''=-3, -2, -1, +1等のスペクトル帯もかなり含まれているが、これは窒素レーザーが本質的に ASE レーザーであるためである。このことは、窒素レーザー-色素レーザー励起用として使用する場合の障害にはならない。

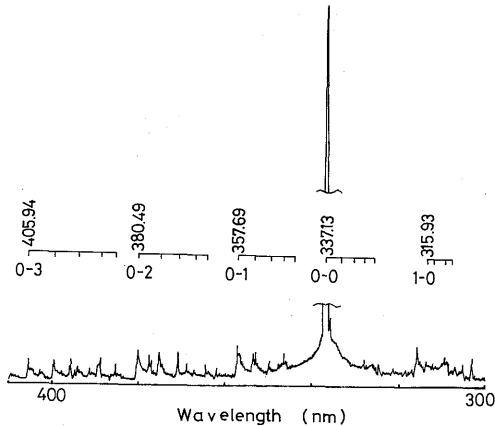


Fig. 10 Spectral structure of the N₂ laser beam.

4.2.6 レーザー出力のパルス変動

図11に、レーザー出力のショット毎の変動を100パルスにわたって調べた結果を示す。平均出力エネルギー1.8mJ に対し、標準偏差σ=0.19 (±10%) のばらつきであった。市販装置のカタログ値では±5%以下が普通であるのでこの点でもまだ改善の必要がある。ただし本測定では、レーザービームの一部(面積で約1/16)を切り出して測定しているため、空間的な変動も含まれており、ビーム全体のエネルギーのばらつきはもっと小さいと考えられる。

4.2.7 レーザー出力の長時間安定性

窒素レーザーを実用的に実験に使用するためには、少なくとも数時間、または数万ショットにわたる安定

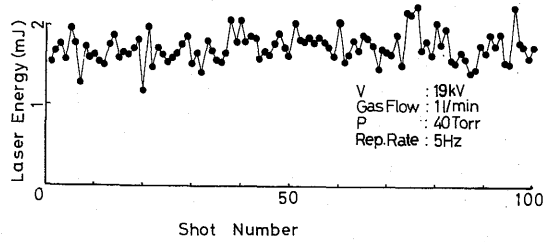


Fig. 11 Shot by shot variation of the N₂ laser output energy.

性が要求される。長時間にわたりレーザー出力の安定性を調べた結果を図12に示す。測定は、窒素レーザーを充電電圧19kV、ガス圧40Torr、繰り返し周波数5Hzで打ち続けて行った。図はレーザー出力を128ショット平均したものを640ショット毎にプロットし、60800ショットまで測定したものである。図の中の波線は測定開始後、圧力にずれが生じたため40Torrに再設定した地点であり、レーザーエネルギーが大きく変化している。レーザーエネルギーは、圧力変動が原因と思われる30分程度の周期変動を繰り返しながら徐々に減少し、圧力の再設定後5万ショット後に約20%減少した。長時間にわたる出力低下の原因は、スパークギャップスイッチの汚れによるミスショットの増加によるものと考えられる。出力の長時間安定化は、サイラトロンスイッチを使用し、さらに出力のフィードバック制御を行えば容易に達成できると考えられるが、本研究の目的には現状で問題ないと考えている。

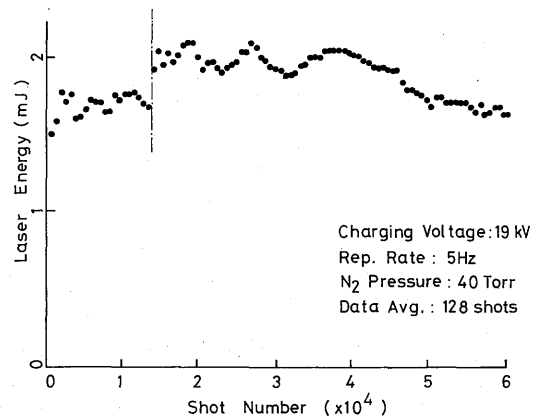


Fig. 12 Long time variation of the N₂ laser output energy.

5. まとめ

プロセッシングプラズマ中の粒子計測に用いるため、LC 反転形窒素レーザーを製作した。製作した窒素レーザーの出力を、充電電圧、窒素ガス圧、窒素ガス流量、繰り返し周波数をパラメーターとして測定し、最適動作条件を調べた。その結果、充電電圧19kV、窒素ガス圧40Torr、ガス流量2 l/minで、最大レーザー出力約2 mJ が得られた。レーザー出力は、繰り返し周波数10Hz までほぼ一定で、5万ショット後に約20%低下した。レーザーのビーム空間強度分布は8 mm×30mmの矩形状で、そのスペクトルには337.13nm 以外の電子振動帯スペクトルが含まれることを確認した。以上により、製作した窒素レーザーは色素レーザー励起用としては十分な性能を有することを確認した。

今後本窒素レーザーを更に高信頼性のものとするには、高電圧電源とのマッチングや予備電離効果も考慮したレーザー放電の不安定性の詳細な解析が必要である。また、レーザー発振時の電磁波ノイズ対策などにも対策を施す必要がある。

終わりに、本窒素レーザーの製作と性能評価に協力いただいた卒業生の田中保志氏（現東芝(株)）、首藤勉氏（現オンキヨー(株)）に感謝いたします。

参考文献

- 1) レーザー学会編, 「レーザーハンドブック」オーム社 (1982)
- 2) 前田三男, 「量子エレクトロニクス」昭晃堂 (1986)
- 3) 小沼光晴, 「プラズマと成膜の基礎」日刊工業新聞社 (1986)
- 4) 小林喬郎, 村上英信, 稲場文男, 応用物理 第44巻 第10号 (1975) 1042-1055
- 5) 島津備愛編, 「分光化学分析のためのレーザー」学会出版センター (1986)
- 6) F. P. Schafer ed., "Dye Lasers" Springer-Verlag, Berlin (1973)
- 7) M. L. Stitch ed., "Laser Handbook Vol.3" North-Holland, Amsterdam (1986)
- 8) M. D. Levenson, S. S. Kano, "非線形レーザー光学" 狩野覚・狩野秀子共訳, オーム社 (1988)
- 9) 片山幹郎, 「レーザー化学II」, 裳華房 (1985)
- 10) D. C. Cartwright, Phys. Rev. A, Vol.2, No. 4 (1970) 1331.
- 11) A. J. Schwab and F. W. Hollinger, IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol. QE-12, No. 3 (1976) 183.
- 12) R. A. Fitch, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-18 (1971) 190.
- 13) W. A. Fitzsimmons, L. W. Anderson, C. E. Riedhauser, and Jan. M. Vrtilik, IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol. QE-12, No. 10 (1976) 624.