

4P046 NO の Rydberg 状態における一光子レーザー駆動四波混合過程
 (東理大理) 小田部 やよい, 小城 吉寛, 築山 光一

【序】当研究室では NO 分子を用いた四波混合 (four-wave mixing; FWM) 過程についての研究を行ってきた. FWM 過程は, 新しい周波数変換法の開発, 気相における非線形分光法の開発, という二点から大変魅力のあるテーマである. 例えば図 1 (a) は短波長コヒーレント光の発生に利用される和周波四波混合である. (b) の二色レーザー誘起格子と (c) のパラメトリック四波混合は, 励起状態の観測を目的とした非線形分光法として用いられる. (a) 及び (b) は四光波のうち三光波が入力光で, 一光波が出力光である. また (c) は二光波が入力光で, 二光波が出力光である. 一方今回報告する過程は (d) の入力光が一光波で出力光が三光波の極めて稀なケースである. この FWM は NO 分子系では当研究室で始めて観測され, 駆動波がレーザー光子のみなので, 一光子レーザー駆動四波混合 (single-photon laser driven four-wave mixing; SPD-FWM) と呼んでいる. 本研究では NO の Rydberg 状態 $3s\sigma A^2\Sigma^+ (\nu=1)$ から $5p\sigma R^2\Sigma^+ (\nu=0)$ を励起した際に観測された SPD-FWM の詳細を調べることを目的とした.

【方法】 $R^2\Sigma^+ (0)$ には, $A^2\Sigma^+ (1)$ を中間状態として光 - 光二重共鳴法で励起した. 励起光源には Nd:YAG レーザー励起の 2 台のパルス色素レーザーを用い, $A \leftarrow X (1, 0)$ に相当する約 215 nm の光 ω_1 (約 645 nm の出力を第 3 高調波に変換) と, $R \leftarrow A (0, 1)$ に相当する約 448 nm の ω_2 を発生させた. NO を約 5 Torr 封入したセルに, ω_1 と ω_2 を時間的・空間的に重ね合わせて導入した. このときレーザー光軸上進行方向に発生した光を分光器で波長分散後, 検出して発光スペクトルを得た.

【結果及び考察】可視 ~ 赤外発光スペクトルより, 図 2 のような $5p\sigma R^2\Sigma^+ \rightarrow 5s\sigma S^2\Sigma^+ \rightarrow 4p\sigma M^2\Sigma^+ \rightarrow 4s\sigma E^2\Sigma^+ \rightarrow 3p\sigma D^2\Sigma^+ \rightarrow 3s\sigma A^2\Sigma^+$ (全て $\nu=0$) というカスケード的な自然放射増幅光 (Amplified Spontaneous Emission; ASE) 緩和が確認された. これらの遷移は, Franck-Condon 因子が最大になる $\Delta\nu=0$ バンドに限定されている. これと同時に, 約 552 nm の $M-A (0, 1)$ 遷

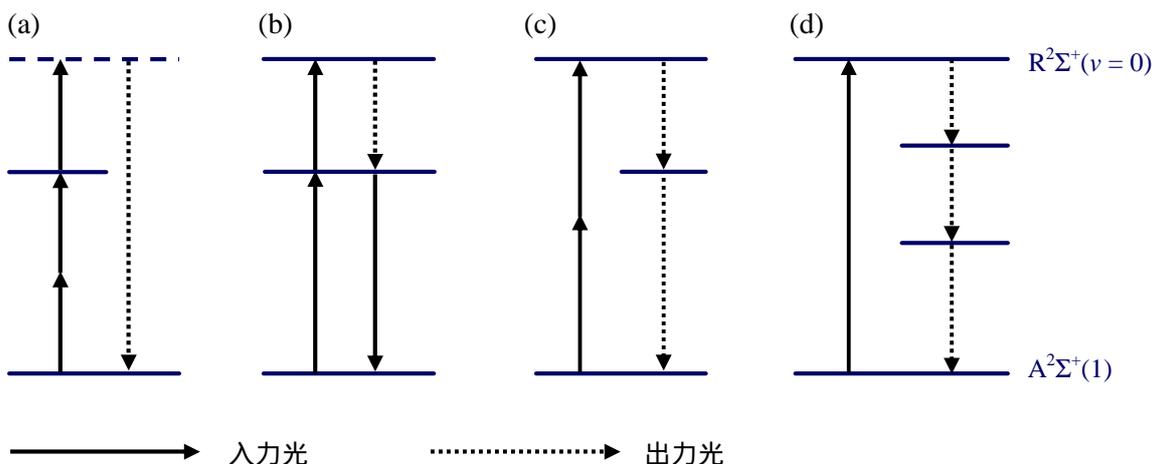


図 1 四波混合過程のエネルギー準位図 (a) 和周波四波混合 (b) 二色レーザー誘起格子 (c) パラメトリック四波混合 (d) 一光子レーザー駆動四波混合 (本研究).

移に対応する強い指向性を持った光が観測された。図3は $A(v=1, N=3)$ から $R(v=0, N=4)$ を励起した際の $M-A(0, 1)$ 遷移に相当する発光スペクトルである。二本の回転線はそれぞれ $R(3)$ 及び $P(3)$ 枝に帰属された。この光は FWM に起因する信号であり、ASE ではありません。その理由として以下の三つの観測事実が挙げられる。

$M-A(0, 1)$ の下準位と、 ω_2 による $R \leftarrow A(0, 0)$ 遷移の下準位とが一致している。ASE は二準位間の反転分布により発生するが、 $A(v=1, N=3)$ は直接 ω_1 で励起されており、 $M-A(0, 1)$ 間には反転分布が成立し得ない。

同じ $A(v=1, N=3)$ から $R(v=0, N=2)$ を励起した場合も、(ASE の回転線は異なったが) $M-A(0, 1)$ については同じ回転線が観測された。FWM 過程では入力光と出力光との間にエネルギー保存則が成立し、FWM 過程の始準位に一周して戻る必要があるが、これが満たされていることを示している。

Rydberg 状態間の ASE 遷移は $\Delta v = 0$ バンドが支配的であり、 $M-A(0, 1)$ のような $\Delta v \neq 0$ バンドは観測されない。

以上より、 ω_2 レーザー光子と $R \rightarrow S(0, 0)$ 及び $S \rightarrow M(0, 0)$ 遷移に対応する ASE 二光子とが相互作用した結果、 $A(1) \rightarrow R(0) \rightarrow S(0) \rightarrow M(0) \rightarrow A(1)$ という周遊経路の FWM 過程が発現したものと考えられる。

また、前期解離性を有する $4p\sigma M^2\Sigma^+(v=1)$ 状態を $3s\sigma A^2\Sigma^+(0)$ 状態から励起した際にも SPD-FWM が確認されたので、その結果も併せて報告する。

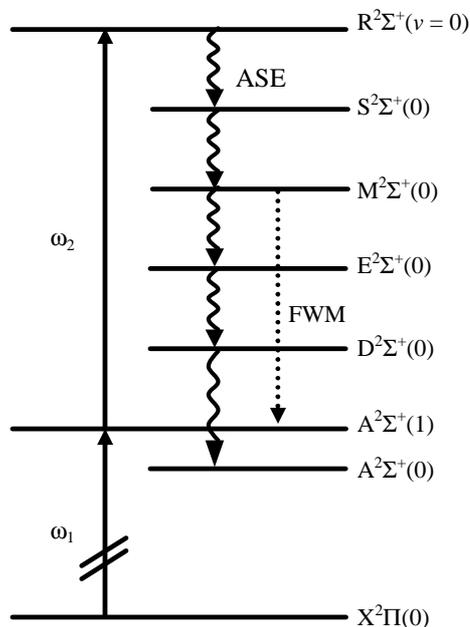


図2 自然放射増幅光と共存する一光子レーザー駆動四波混合過程。

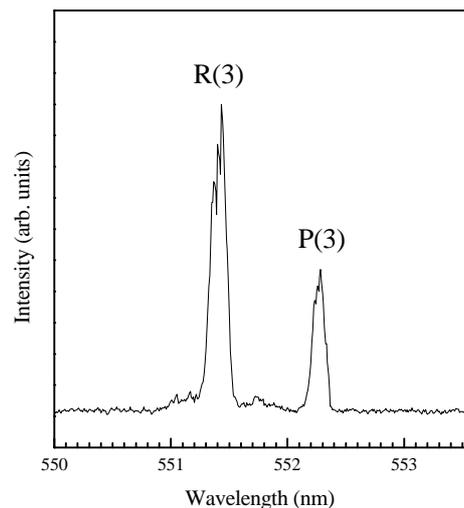


図3 $A(v_A=1, N_A=3)$ から $R(v_R=0, N_R=4)$ を励起した際の $M-A(0, 1)$ 発光スペクトル。