

[光学論文受賞記念]

解 説

## 飽和吸収による光波混合特性\*

宮 永 滋 己

室蘭工業大学電気電子工学科 〒050 室蘭市水元町 27-1

(1994年4月11日受理)

## Wave-Mixing Properties in Saturable Absorbers

Shigeki MIYANAGA

Department of Electrical and Electronic Engineering, Muroran Institute  
of Technology, 27-1, Mizumoto, Muroran 050

## 1. はじめに

物質の複素感受率は弱い入射光に対しては定数とみなすことができるが、レーザー光のような強い入射光に対しては複素感受率は厳密には光の強さに依存して変化する。特に吸収中心波長近傍の入射光に対しては、光の吸収に関与する基底状態の占有数が光強度の増加に伴って減少することにより、物質の吸収係数が(したがって一般には屈折率も)変化する。このような非線形光学現象は飽和吸収<sup>1,2)</sup>と呼ばれる。

近年、有機色素の飽和吸収特性に伴う非線形性を利用した縮退4光波混合(縮退とは相互作用するすべての波の周波数が等しいことを意味する)による位相共役波の発生、近縮退2光波混合による2光波結合などの研究が行われている<sup>3-9)</sup>。これらの現象では位相整合条件が自動的に満たされるため応用上非常に有利な特性をもつことに加え、ある種の有機色素では比較的低い光強度で非線形性が顕著に現れることから、画像演算・干渉計測・動物体の検出などの実時間光情報処理への応用が検討されている<sup>9)</sup>。

飽和吸収を用いた位相共役波の発生効率・2光波結合特性は、密度行列のレート方程式近似に基づいて求められた分極を波動方程式に代入し結合方程式を導出することにより計算されるが、現象の理解と同時に位相共役波・2光波結合素子設計の観点からは、飽和吸収媒質の

巨視的なパラメータとの関連で、実験結果をどのようなモデルでどこまで説明できるかが重要な問題となる。

本報告では飽和吸収媒質として有機色素薄膜を考え、色素のエネルギー準位を3準位および4準位で近似し、主に位相共役波の発生効率について、飽和吸収効果による計算結果と実験結果を比較し、位相共役波の発生に関与する機構および発生効率に対するパラメータの影響などについて述べる。また、2光波結合については最近得られた結果を含めて簡単に結果のみを述べる。なお、有機色素薄膜を用いた位相共役波・2光波結合の応用については本号解説<sup>10)</sup>も参照されたい。

## 2. 飽和吸収に伴う非線形分極

弱い入射光に対しては分極は光の電場に比例するが、レーザー光のような強い光に対しては、入射光が強くなるにつれて物質は非線形応答を示し分極はもはや光電場に比例しなくなる。このとき、入射光の周波数が物質の共鳴周波数(吸収中心周波数)から大きく外れている場合(非共鳴)には、分極は物質のすべてのエネルギー準位間の仮想励起に基づく摂動法などを用いて求められ、電場に関するべき級数展開の形で表される<sup>11)</sup>。一方、飽和吸収効果のように入射光の周波数が実励起(吸収)を伴う共鳴周波数近傍にある場合には一般に摂動法は適用できないが、吸収に関与する少数のエネルギー準位のみを扱うことによって分極を求めることができる<sup>12)</sup>。

## 2.1 色素のエネルギー準位モデル

ここでは、計算結果と実験結果を比較するため飽和吸

\* 本稿は平成5年度光学論文受賞記念講演(1994年3月29日, 明治大学)を中心として、まとめたものである。

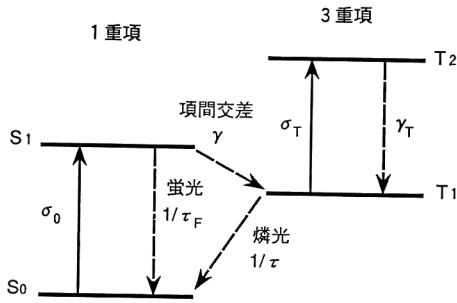


図1 有機色素のエネルギー準位モデル

収媒質として有機色素薄膜を考え、色素のエネルギー準位を図1に示すような4準位系で近似する。基底1重項状態  $S_0$  にある色素分子に  $S_0$ - $S_1$  準位のエネルギー差に相当する周波数の光が入射すると、色素分子は光を吸収(周波数依存吸収断面積  $\sigma_0$ ) して  $S_1$  準位に遷移した後、一部は蛍光を発するなどして基底状態に遷移(寿命  $\tau_F$ : 遷移確率  $1/\tau_F$ ) する。残りは項間交差により励起3重項状態  $T_1$  に遷移(遷移確率  $\gamma$ ) し、燐光寿命  $\tau$  で基底状態に緩和する。 $T_1$  準位は準安定状態であり比較的長い寿命をもつため、入射光強度が大きくなるにつれて  $T_1$  準位の占有確率が無視できなくなり、吸収係数が変化する飽和吸収現象が生じると共に、一般には3重項-3重項吸収(周波数依存吸収断面積  $\sigma_T$ ) が無視できず、励起3重項吸収の影響を受ける。 $1/\tau_F$ ,  $\gamma$  および  $T_2$  から  $T_1$  への内部転換の遷移確率  $\gamma_T$  は入射光強度が余程大きくない限り双極子遷移確率に比べて十分大きい<sup>2)</sup>ので、 $S_1$  からの励起1重項吸収の影響および励起3重項吸収に伴う飽和の影響は無視することができる。

## 2.2 非線形分極

このようなエネルギー準位モデルにおける巨視的な分極  $\mathbf{P}$  は、分極の緩和時間に比べて十分遅い現象にのみ注目する場合には、双極子相互作用に基づく密度行列方程式にレート方程式近似を適用することにより求めることができ、

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = i(\epsilon_0 N/k_0)[\sigma_0 \Delta_0(\rho_1 - \rho_2) + \sigma_T \Delta_T(\rho_3 - \rho_4)]\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

で与えられる。ただし、

$$\Delta_0 = 1 + i\delta_0, \Delta_T = 1 + i\delta_T \quad (2)$$

であり、 $\mathbf{E}$  は電場、 $\epsilon_0$  および  $k_0$  はそれぞれ真空中における誘電率・波数、 $\rho_1 \sim \rho_4$  はそれぞれ  $S_0, S_1, T_1$  および  $T_2$  準位の占有確率、 $N$  は色素分子の数密度である。また、 $\delta_0$  および  $\delta_T$  は離調パラメータであり、周波数  $\omega$ 、基底状態および励起状態吸収に付随する吸収中心周波数  $\omega_0, \omega_T$ 、分極の緩和時間  $T_0, T_T$  を用いて

$$\delta_0 = (\omega - \omega_0)T_0, \delta_T = (\omega - \omega_T)T_T \quad (3)$$

で定義される。レート方程式の定常解を用いると分極  $\mathbf{P}$  は次式のように求められる。

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{i\epsilon_0 N}{k_0} \left( \sigma_T \Delta_T + \frac{\sigma_0 \Delta_0 - \sigma_T \Delta_T}{1 + I/I_s} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (4)$$

ここで、 $I = \epsilon_0 c |\mathbf{E}|^2/2$  ( $c$  は真空中の光速) および  $I_s$  は光強度および周波数に依存する飽和強度である。前述のように、吸収および燐光遷移の遷移確率に比べてそれ以外の放射・非放射遷移の遷移確率が十分大きいので、準位占有確率の飽和は基底状態吸収によって支配され、飽和強度  $I_s$  は

$$I_s = \hbar\omega/\sigma_0 q \tau \quad (5)$$

で与えられる。ただし、 $q = \gamma/(\gamma + 1/\tau_F)$  は項間交差の量子収率で3重項収率といわれ、 $q\tau \gg (1-q)\tau_F$  を満たすとした。この仮定は各遷移確率を数値的に概算する<sup>2)</sup>と、比較的長い燐光寿命をもつ多くの色素においては妥当なものである。(1), (4)式で  $\sigma_T = 0$  とおくと3準位近似における分極が得られる。

(4)式において、括弧内の第2項の分母に光強度が入っているので分極は非線形であり、この場合準位の占有確率が光強度に依存して変化することを反映して媒質の吸収係数が(吸収中心からずれている場合には屈折率も)光強度に依存して変化する。吸収係数の変化が顕著になる入射光強度に対する目安を与えるのが飽和強度  $I_s$  であり、飽和吸収を特徴付ける最も重要なパラメータである。ある種の色素では  $I_s$  が  $1 \text{ W/cm}^2$  程度であり、連続発振のレーザーを用いて比較的容易に飽和現象を観測することができる。励起状態吸収のない3準位 ( $\sigma_T = 0$ ) では光強度の増加と共に吸収係数は単調に減少し、光強度が無限大の極限で媒質は完全に透明(吸収係数がゼロ)になるが、一方励起状態吸収を考慮する(4準位)と、光強度の増大と共に励起状態吸収の影響が大きくなるため、 $\sigma_0 > \sigma_T$  の場合には光強度が無限大の極限でも完全に透明にはならず残留吸収が生じる<sup>1,2)</sup>。 $\sigma_0 < \sigma_T$  の場合には光強度の増大と共に逆に吸収係数が増加する逆飽和吸収現象が生じる<sup>2,13)</sup>。さらに、 $\sigma_0 = \sigma_T$  の場合は、各準位の占有確率は光強度と共に変化するが媒質全体としての吸収係数は全く変化しない。ただしこの場合でも離調パラメータがゼロでなければ屈折率は変化しうる。このように励起状態吸収を考慮すると現象は複雑になってくる。

一般に分子の場合の各エネルギー準位は多数の振動副準位から成っているが、個体媒質中に分散された色素などの場合には振動準位の緩和は非常に速いので<sup>2)</sup> 図1の

ような準位構造は妥当なものと考えてよい。また、エネルギー準位としては2準位、3準位、4準位など種々のモデルが考えられるが、これまでで仮定されたように飽和に影響する遷移が基底状態からの吸収のみである場合には、飽和強度に対する表式(5)式が変わるだけで分極自体は  $\sigma_T=0$  の場合も含めて(4)式の形で与えられることを注意しておく。

### 3. 位相共役波の発生効率

ある入射波の波面の形を変えずに正確にその光路を進む光波を位相共役波といい、その特異な性質を利用した光情報処理への応用が期待されている。位相共役波の発生法は種々の非線形光学効果に基づいているが、縮退4光波混合<sup>14)</sup>による方法は広い視野にわたって自動的に位相整合条件が満たされることから応用上特に優れた特性をもっている。実時間ホログラフィモデルに基づく位相共役波の発生原理およびその応用などについては本号解説<sup>10)</sup>に述べられているので参照されたい。ここでは位相共役波素子特性として重要になる位相共役波の発生効率について、前述の4準位近似に基づく計算結果を紹介し実験結果との比較について述べる。

Abrams と Lind<sup>15)</sup> による最初の理論解析が行われて以来、飽和吸収媒質を用いた縮退4光波混合による位相共役波の発生効率に関してこれまで、励起状態からの吸収を無視した2準位・3準位近似に基づく飽和分極を用いた計算<sup>16-18)</sup> や励起状態からの吸収効果を考慮した4準位近似に基づく飽和分極を用いた計算<sup>5, 8, 19, 20)</sup> など種々の計算が行われてきた。これらの計算では、吸収による媒質内でのポンプ光の伝搬効果は無視してポンプ光強度は一定と仮定しているが、ポンプ光の吸収効果を考慮した計算としては、励起状態からの吸収を無視して、ポンプ光の線形吸収を仮定した計算<sup>21)</sup> やポンプ光に対する結合方程式を解いて吸収伝搬効果を考慮した計算<sup>22-24)</sup> なども行われてきた。

有機色素分散高分子薄膜によって得られた実験結果とこれらの計算結果を比較すると、いずれの計算でも特に吸光度の大きな試料におけるポンプ光強度の大きなところで実験値から大きくずれることがわかった。この原因としてはポンプ光の吸収効果だけでなく励起状態からの吸収が影響していることが考えられる<sup>25, 26)</sup>。そこで、4準位近似による飽和分極を用いて、ポンプ光の吸収伝搬効果と共に励起準位からの吸収を考慮することにより、実験結果をきわめてよく説明できることがわかった<sup>26)</sup>。

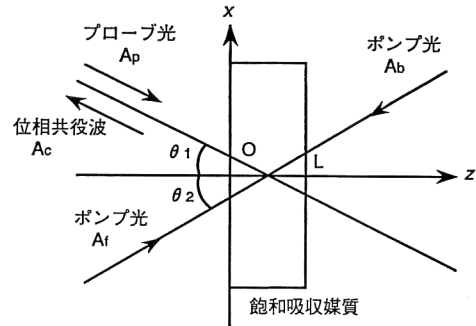


図2 縮退4光波混合の相互作用系。厚さ  $L$  の有機色素膜内で対向する二つのポンプ光（振幅  $A_f, A_b$ ）とプローブ光（ $A_p$ ）が相互作用し、位相共役波（ $A_c$ ）が発生する。四つの波はすべて  $y$  軸方向に偏光していると仮定する。

#### 3.1 結合方程式と位相共役波発生効率

位相共役波の発生効率は以下の手順で計算される。4準位の飽和分極(4)式とポンプ光（振幅  $A_f, A_b$ ）・プローブ光（ $A_p$ ）・位相共役波（ $A_c$ ）の電場を図2の相互作用系のもとで波動方程式に代入し、ポンプ光強度に比べてプローブ光・位相共役波の強度が十分小さいと仮定して適当な空間平均をとることにより、4光波の結合方程式

$$\frac{dA_f}{d\xi} = -\alpha_f A_f, \quad \frac{dA_b}{d\xi} = \alpha_b A_b \quad (6)$$

$$\frac{dA_p}{d\xi} = -\alpha A_p + \kappa^* A_c^*, \quad \frac{dA_c^*}{d\xi} = \alpha^* A_c^* - \kappa A_p \quad (7)$$

が得られる。ただし  $\xi = z / \cos \theta_1$ ,  $\xi = z / \cos \theta_2$  であり、\* は複素共役を表す。詳細は省くが<sup>26)</sup>、前述の仮定から結合方程式はポンプ光のみを含む(6)式と、係数にポンプ光振幅を含むプローブ光・位相共役波に対する方程式(7)式に分離される。また、励起状態からの吸収を考慮したことを反映して、弱い強度での吸収係数・基底状態の離調パラメータ・飽和強度の他に、励起状態および基底状態の吸収断面積の比  $G$

$$G = \sigma_T / \sigma_0 \quad (8)$$

および励起状態の離調パラメータ  $\delta_T$  を用いて各係数は表される。 $G=0$  とおくと(6), (7)式は3準位近似における結果<sup>22-24)</sup>を与える。

媒質内でのポンプ光の吸収伝搬効果は無視し、ポンプ光強度を一定と仮定すると(6)式は考える必要がなく、位相共役波発生効率は(7)式から解析的に求めることができる<sup>5, 8, 15-20)</sup>。一方、ポンプ光の吸収伝搬効果を考慮する場合は、ポンプ光に対する結合方程式(6)式を数値的に解き、その結果をプローブ光・位相共役波の結合方程

式(7)式に代入して位相共役波発生効率を数値的に求める。

### 3.2 計算結果

ここでは、位相共役波発生効率のポンプ光強度依存性を中心に計算結果を示し、3単位近似 ( $G=0$ ) と4単位近似の比較から励起状態吸収およびポンプ光吸収伝搬効果の影響を明らかにする。簡単のため  $\theta_1=\theta_2=0$  とし、ポンプ光の媒質入射面での強度は等しく  $I_r(0)=I_b(L)=I_0$  とした。

計算の一例を図3(a), (b)に示す。横軸は飽和強度  $I_s$  で規格化した媒質入射面でのポンプ光強度  $I_0$ 、縦軸は位相共役波発生効率  $R$  を表す。図3(a)は3単位近似 ( $G=0$ )、(b)は  $G=0.5$  ( $\sigma_T=\sigma_0/2$ ) とした4単位近似における結果であり、離調パラメータを  $\delta_0=\delta_T=0$  として弱い強度における吸光度  $\alpha_0 L$  ( $\alpha_0=\sigma_0 N$ ) の六つの値に対する曲線を示した。また、比較のためポンプ光の吸収伝搬効果を無視した場合の結果 (以下一定ポンプ近似と呼ぶ) についても図に破線で示した。図3の実線・破線全体にわたる傾向として、発生効率  $R$  はポンプ光強度の増加に対してピークをもつことがわかる。

弱い強度での吸光度  $\alpha_0 L$  に対して、発生効率  $R$  のポンプ光強度依存性は次のような特徴をもつ。図3(a)において、3単位一定ポンプ近似の結果 (破線) では

$\alpha_0 L$  の増加と共に  $R$  は全体的に単調に増加しているが、ポンプ光の吸収効果を考慮すると特に  $\alpha_0 L$  が大きく  $I_0/I_s$  が小さいところで  $R$  はかなり低下することがわかる。これはポンプ光の吸収によって媒質内でポンプ光強度が減少するためであるが、 $I_0/I_s$  が大きくなるにつれて吸収の飽和が生じるので実線と破線は一致する。したがってポンプ光の吸収効果を考慮すると、 $I_0/I_s$  を比較的小さいある値に固定したときには  $R$  は  $\alpha_0 L$  の増加に対してあるところで最大になるが、一方  $I_0/I_s$  の増加に対するピークの発生効率 (以下ピーク発生効率と呼ぶ) はやはり  $\alpha_0 L$  と共に増加する。

図3(b)の4単位一定ポンプ近似 (破線) では、3単位ほどではないがやはり発生効率  $R$  は  $\alpha_0 L$  と共に全体的に増加する曲線に近づく傾向を示している。しかしポンプ光の吸収効果を考慮すると、 $I_0/I_s$  が小さいときは主に基底状態の、 $I_0/I_s$  が大きいときは主に励起状態の吸収の影響により  $R$  が低下するため、 $R$  曲線は  $\alpha_0 L$  の増加と共にあるところから全体的に低下することがわかる。したがって、ピーク発生効率も  $\alpha_0 L$  の増加に対してピークを取る。これがポンプ光の吸収伝搬効果と励起状態からの吸収効果を同時に考慮した場合の特徴であり、他のいずれのモデルでもピーク反射率は  $\alpha_0 L$  と共に増加する。ピーク反射率が最大になる吸光度を以後最適吸光度と呼ぶ。

最適吸光度の振舞いを明らかにするため、 $\alpha_0 L$  に対す

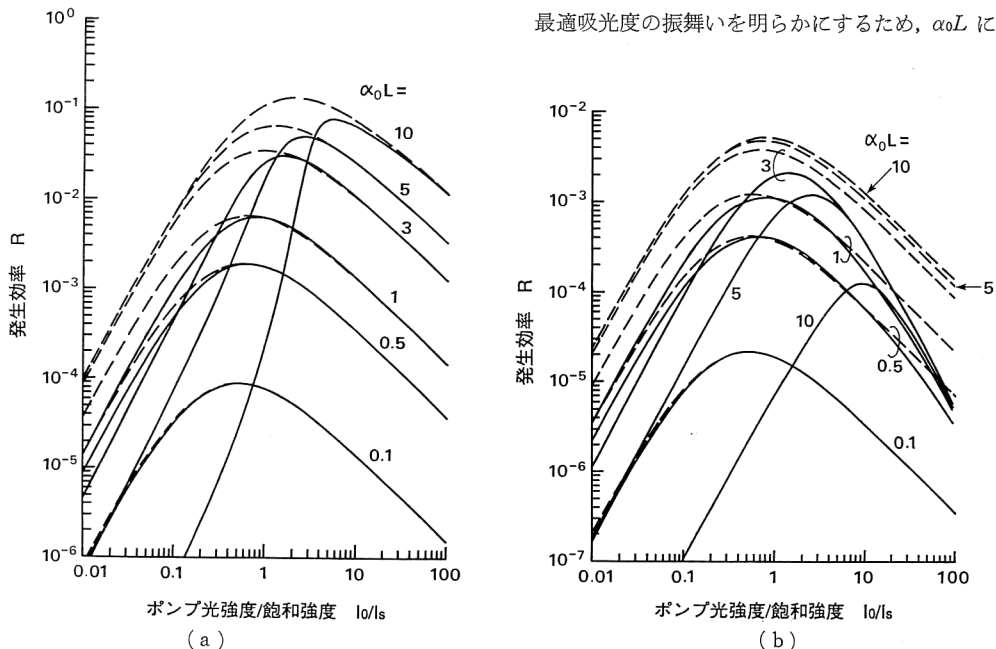


図3 (a) 3単位近似 ( $G=0$ ) と (b) 4単位近似 ( $G=0.5$ ) におけるポンプ光強度に対する位相共役波発生効率  $R$  の変化 ( $\delta_0=\delta_T=0$ )。横軸は飽和強度で規格化した。弱い強度での吸光度  $\alpha_0 L$  は 0.1, 0.5, 1, 3, 5, 10 とした。一定ポンプ近似の結果は破線で示した。

るピーク反射率の変化を  $G$  をパラメータとして図4に示す。図から3単位近似 ( $G=0$ ) では  $\alpha_0 L$  と共にピーク反射率は単調に増加するが、4単位近似では最適吸光度が存在し、さらに最適吸光度が  $G$  と共に減少することがわかる。このことは、実験結果との比較から  $G$  の値が決定できることを示唆している。また、離調パラメータに対しては  $R$  曲線の形は変化せず、 $|\delta_0 - G\delta_T|$  と共に全体に増加することがわかった<sup>26)</sup>。

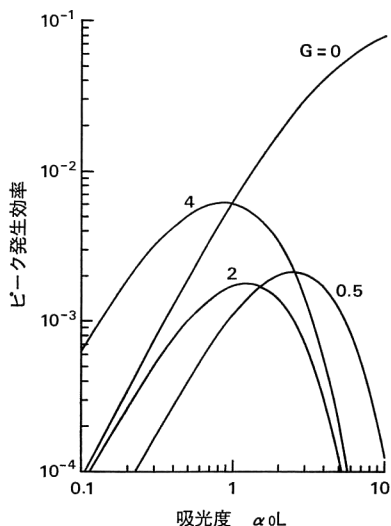
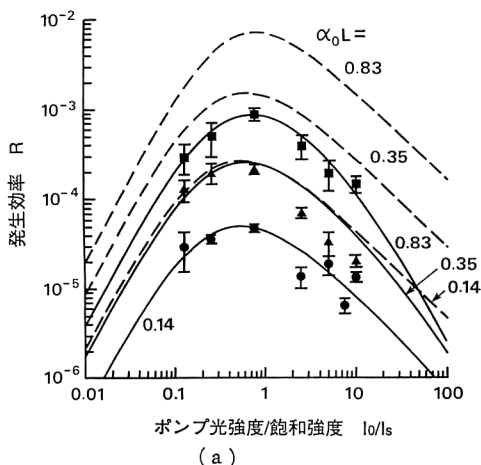


図4  $\alpha_0 L$  に対するピーク発生効率の変化 ( $\delta_0 = \delta_T = 0$ ). 吸収断面積比  $G$  は0 (3単位近似), 0.5, 2, 4とした。



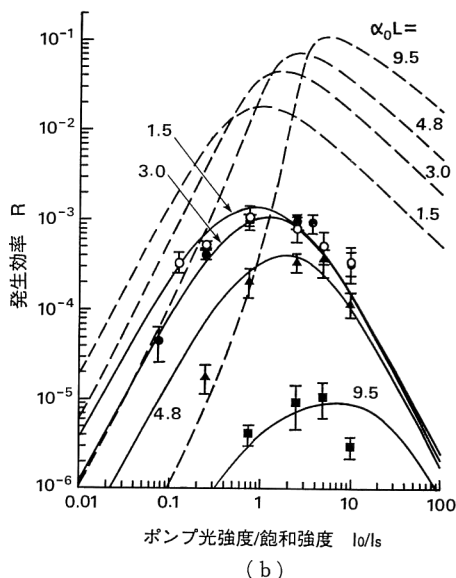
(a)

### 3.3 実験結果との比較

飽和吸収媒質として色素サフランin Tを分散させたポリビニルアルコール (PVA) 薄膜を用いた実験結果と前節の計算結果を比較し、モデルの妥当性を検討する。実験は通常の縮退4光波混合系<sup>4)</sup>を用い、波長 514.5 nm の Ar イオンレーザーを用いて行われた。

図5 (a), (b)に位相共役波発生効率のポンプ光強度依存性の実験結果を  $\alpha_0 L$  の七つの値に対してエラーバー付きの記号で示した。ピーク発生効率は  $\alpha_0 L$  に対して最大値を取っており、4単位でポンプ光の吸収伝搬効果を考慮した計算結果の傾向と一致している。計算結果は図5に実線で示したが、計算に必要なパラメータは一部実測値を用い、飽和強度  $I_s$ , 吸収断面積比  $G$ , 離調パラメータ  $\delta_T$  はフィッティングにより決定したものをを用いた。 $I_s$  は曲線の横軸の平行移動から  $I_s = 0.4 \text{ W/cm}^2$ ,  $G$  は図4とのフィッティングから  $G = 0.8$ ,  $\delta_T$  は曲線の縦軸の平行移動から  $\delta_T = 1.2$  と決定した。 $I_s$  は(5)式から実測値を用いて計算した値とも比較的良好に一致した。図5からわかるように、実験値と計算値はすべての  $\alpha_0 L$  の値に対してよく一致している。比較のために図5に破線で同じパラメータの値を用いた3単位近似 ( $G=0$ ) の計算結果<sup>22-24)</sup>を示したが、特に吸光度が大きくなるにつれて実験結果とのずれが著しい。

以上のように、飽和吸収による位相共役波の発生効率



(b)

図5 ポンプ光強度に対する位相共役波発生効率  $R$  の変化の実験結果 (サフランin T/PVA).  $\alpha_0 L$  は (a) 0.14 (●), 0.35 (▲), 0.83 (■) および (b) 1.5 (○), 3.0 (●), 4.8 (▲), 9.5 (■) である。実線はパラメータフィッティングにより求めた4単位近似による計算結果である。比較のため、3単位近似による結果を破線で示す。

について色素分散高分子薄膜で得られた実験結果と比較したところ、4 準位近似を用いて励起 3 重項吸収の影響と媒質中でのポンプ光の吸収伝搬効果を考慮することにより、計算結果は実験結果と非常によく一致することがわかった。

#### 4. 2 光波結合特性

図 2 と同様の相互作用系で飽和吸収媒質にポンプ光・プローブ光の二つの波を入射させると、媒質中に二つの波の干渉縞に応じて実時間で回折格子が形成され両者の一部は互いに他方の進行方向に回折され互いに干渉する。そこで、ポンプ光の周波数をわずかにずらす(周波数差を  $\Omega$  とする)と干渉縞は流れるが、媒質が有限の応答時間をもつため実時間格子は干渉縞に遅れて追従し、一定の位相差をもった走行格子が形成される。干渉縞と格子の位相差はポンプ・プローブの透過光と回折光の干渉条件を変化させるので、ポンプ光がプローブ光に比べて十分強い場合プローブ光の増幅あるいは減衰が起こる<sup>5-7)</sup>。これを 2 光波結合という。

飽和吸収媒質における 2 光波結合特性は、前節と同様飽和分極を波動方程式に代入して 2 光波の結合方程式を導くことにより解析することができる<sup>27,28)</sup>。結合方程式はポンプ光の強度を一定とすると解析的に解くことができ、結合利得を  $\Omega=0$  のときのプローブ光射出強度との比で定義すると、3 準位近似のもとで

$$\frac{I_p(\Omega, L)}{I_p(0, L)} = \exp \left[ \frac{\alpha_0 L S \phi (\delta - \phi)}{(1+S)^2 (1+\phi^2)} \right] = \exp (G_a + G_s) \quad (9)$$

と求められる<sup>28)</sup>。ただし、 $S = I_0/I_s$ 、 $\phi = \Omega \tau / (1+S)$  である。結合利得は指数部が周波数差  $\Omega$  に対して反対称な成分と対称な成分に分けられる<sup>7)</sup>。3 準位近似では対称成分  $G_s$  は常に負で  $\Omega$  に対して単調に減少し、反対称成分  $G_a$  は  $\delta$  の符号で正負が決まり  $\phi=1$  でピークをもつ。また、両者の比は  $R = -G_s/G_a = \phi/\delta$  で  $\Omega$  に比例する。 $\phi$  の式よりポンプ光強度の増大と共に、 $G_a$  がピークを取る周波数差  $\Omega$  は大きく、 $R$  の傾きは小さくなる。

このような 2 光波結合特性のポンプ光強度依存性はエリスロシン B/PVA 薄膜において実験的にも確かめられ、実験値と計算値は比較的良好に一致したが、波長依存性において(9)式では説明できない結果も得られた<sup>28)</sup>。

図 6 は  $G_a$  と  $G_s$  の比  $R$  の  $\Omega$  に対する変化の波長依存性を示したものである。514.5 nm と 488.0 nm では(9)式から予想されるような  $\Omega$  に比例する結果が得

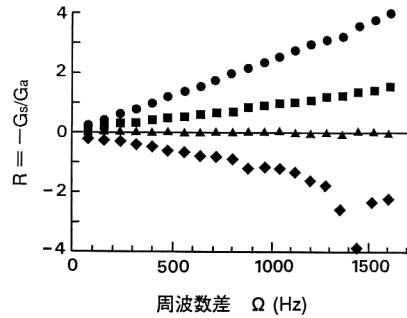


図 6 対称・反対称 2 光波結合利得比  $R$  の周波数差  $\Omega$  に対する変化の波長依存性 (エリスロシン B/PVA)。 $\alpha_0 L$  は波長 457.9 nm のとき 2.03 (◆), 476.5 nm のとき 2.57 (▲), 488.0 nm のとき 2.35 (■), 514.5 nm のとき 1.85 (●) とした。ポンプ光強度は 457.9 nm のとき  $1.0 \text{ W/cm}^2$  で、それ以外は  $2.0 \text{ W/cm}^2$  である。

られているが、476.5 nm と 457.9 nm では対称成分  $G_s$  の振舞いにより  $R$  がほとんどゼロになったり負になるような結果が得られた。しかし最近、4 準位近似を用いて励起 3 重項吸収の影響を考慮することにより、このような傾向が説明できることがわかった。

#### 5. おわりに

飽和吸収による 4 光波・2 光波混合特性のレート方程式近似に基づく結合方程式による解析結果と色素分散薄膜で得られた実験結果の比較について述べたが、飽和吸収に伴う非線形分極を励起 3 重項吸収を考慮した 4 準位近似で求め、ポンプ光の吸収効果を考慮して計算することによりかなりよく実験結果を説明できることがわかった。また、媒質の種々のパラメータが 4 光波・2 光波混合特性に及ぼす影響についても明らかになってきた。これらの結果は材料の探索、位相共役波・2 光波結合素子設計などに役立つものと考えられる。

#### 文 献

- 1) M. Hercher: "An analysis of saturable absorbers," *Appl. Opt.*, **6** (1967) 947-954.
- 2) C.R. Giuliano and L.D. Hess: "Nonlinear absorption of light: optical saturation of electronic transitions in organic molecules with high intensity laser radiation," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-3** (1967) 358-367.
- 3) Y. Silberberg and I. Bar-Joseph: "Low power phase conjugation in thin films of saturable absorbers," *Opt. Commun.*, **39** (1981) 265-268.
- 4) H. Fujiwara and K. Nakagawa: "Phase conjugation in fluorescein film by degenerate four-wave mixing

- and holographic process," *Opt. Commun.*, **55** (1985) 386-390.
- 5) M.A. Kramer, W.R. Tompkin and R.W. Boyd: "Nonlinear-optical interactions in fluorescein-doped boric acid glass," *Phys. Rev. A*, **34** (1986) 2026-2031.
  - 6) W.R. Tompkin, R.W. Boyd, D.W. Hall and P.A. Tick: "Nonlinear-optical properties of lead-tin fluorophosphate glass containing acridine dyes," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 1030-1034.
  - 7) S.A. Boothroyd, J. Chrostowski and M.S. O'Sullivan: "Two-wave mixing by phase and absorption gratings in saturable absorbers," *J. Opt. Soc. Am. B*, **6** (1989) 766-771.
  - 8) W.R. Tompkin, M.S. Malcuit and R.W. Boyd: "Enhancement of the nonlinear optical properties of fluorescein doped boric acid glass through cooling," *Appl. Opt.*, **29** (1990) 3921-3926.
  - 9) 藤原裕文, 中川一夫: "有機色素膜を用いた位相共役光学," *光学*, **18** (1989) 122-131; 藤原裕文: "有機色素膜を用いた位相共役光学と自己回折," *応用物理*, **59** (1990) 756-762.
  - 10) 藤原裕文, 武田知明: "色素膜における光非線形性と光情報処理への応用," *光学*, **23** (1994) 479-485.
  - 11) たとえば, Y.R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1984).
  - 12) たとえば, A. Yariv: *Quantum Electronics*, 2nd ed. (John Wiley & Sons, New York, 1975).
  - 13) R.C. Hoffman, K.A. Stetyick, R.S. Potember and D.G. McLean: "Reverse saturable absorbers: indanthrone and its derivatives," *J. Opt. Soc. Am. B*, **6** (1989) 772-777.
  - 14) R. W. Hellwarth: "Generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction," *J. Opt. Soc. Am.*, **67** (1977) 1-3.
  - 15) R.L. Abrams and R.C. Lind: "Degenerate four-wave mixing in absorbing media," *Opt. Lett.*, **2** (1978) 94-96; **3** (1978) 205.
  - 16) P.F. Liao and D.M. Bloom: "Continuous-wave backward-wave generation by degenerate four-wave mixing in ruby," *Opt. Lett.*, **3** (1978) 4-6.
  - 17) G.P. Agrawal: "Phase conjugation and degenerate four-wave mixing in three-level systems," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-17** (1981) 2335-2340.
  - 18) D.G. Steel, R.C. Rand and J. Liu: "Four-wave mixing studies in Cr: YAlO<sub>3</sub> for application to optical phase conjugation," *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 1794-1800.
  - 19) R.C. Lind, D.G. Steel and G.J. Dunning: "Phase conjugation by resonantly enhanced degenerate four-wave mixing," *Opt. Eng.*, **21** (1982) 190-198.
  - 20) V.V. Kabanov and A.S. Rubanov: "Dynamic gratings and four-wave phase conjugation in dye solutions," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-26** (1990) 1990-1998.
  - 21) R.G. Caro and M.C. Gower: "Phase conjugation by degenerate four-wave mixing in absorbing media," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-18** (1982) 1376-1380.
  - 22) W.P. Brown: "Absorption and depletion effects on degenerate four-wave mixing in homogeneously broadened absorbers," *J. Opt. Soc. Am.*, **73** (1983) 629-634.
  - 23) M.T. Gruneisen, A.L. Gaeta and R.W. Boyd: "Exact theory of pump-wave propagation and its effect on degenerate four-wave mixing in saturable-absorbing media," *J. Opt. Soc. Am. B*, **2** (1985) 1117-1121.
  - 24) A.L. Gaeta, M.T. Gruneisen and R.W. Boyd: "Theory of degenerate four-wave mixing in saturable-absorbing media with the inclusion of pump propagation effects," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22** (1986) 1095-1101.
  - 25) P.J. Soan, A.D. Case, M.J. Damzen and M.H.R. Hutchinson: "High-reflectivity four-wave mixing by saturable gain in Rhodamine 6G dye," *Opt. Lett.*, **17** (1992) 781-783.
  - 26) S. Miyanaga, H. Ohtateme, K. Kawano and H. Fujiwara: "Excited-state absorption and pump propagation effects on optical phase conjugation in a saturable absorber," *J. Opt. Soc. Am. B*, **10** (1993) 1069-1076.
  - 27) H. Zhou, X. Mi, Q. Jiang, R. Zhang and P. Ye: "Saturation effect in nondegenerate two-wave mixing," *Opt. Commun.*, **78** (1990) 382-386.
  - 28) H. Fujiwara, K. Shio and S. Miyanaga: "Power transfer by nearly degenerate two-wave mixing in a saturable dye-doped film," *J. Opt. Soc. Am. B*, **8** (1991) 1740-1746.