

# 解説

## 色素膜における光非線形性と光情報処理への応用

藤原 裕文・武田 知明

室蘭工業大学材料物性工学科 〒050 室蘭市水元町 27-1

(1994年3月25日受理)

### Optical Nonlinearity in Dye-Doped Films and Its Applications to Optical Image Processing

Hirofumi FUJIWARA and Tomoaki TAKEDA

Department of Materials Science and Engineering, Muroran Institute of Technology, 27-1, Mizumoto, Muroran 050

#### 1. はじめに

2次元の光信号の入力・出力, 伝送や演算などを空間的な広がりを持たずそのまま実行できるような並列型の光情報処理を実現するには, 光で光を制御できる材料すなわち非線形光学材料の開発が必要である。

弱いレーザー光を物質に照射すると, 電気分極は光の電場に比例するが, 照射光が強くなると, 誘起される電気分極はもはや光電場に比例しない。3次非線形光学では電気分極が電場の3乗に比例する。低い光強度で非線形光学現象を生じさせる材料が望ましい。非線形光学材料にいくつかの光波を入射させると, 材料固有の時間遅れはあるものの分極格子が形成されるので, それを介して光波間でエネルギーや情報のやり取りを生じさせることができる。

色素を高分子やガラスに分散させた膜を用いた非線形光学の研究は, Silberberg らによる色素の飽和吸収を利用した位相共役光の発生<sup>1)</sup>や, Todorov らによる色素の光異性化を利用した実時間ホログラフィ<sup>2)</sup>などの先駆的の仕事に端を発し, 現在に至っている。

代表的色素を取り上げて, 光強度が関係する光非線形性の起源を説明する。飽和吸収<sup>3)</sup>とは強い光が色素(例: キサンテン系色素)にあたると光吸収が減少する現象であり, 光異性化とは強い光が色素(例: アゾ系色素)にあたると色素分子の構造変化により吸収係数や屈折率も変化する現象である。これらの異方性を持つ色素分子をランダムな向きでランダムな位置に固定した色素分散

膜に強い直線偏光を照射すると, 巨視的に光誘起異方性を生じる。

光非線形性を発現する色素は, 光照射を止めればある時定数で元の状態に戻るのが普通であるが, 条件を変えれば光記録できる色素膜もあり, 応用上重要であるので言及する。

ここでは, 連続発振する出力パワーが $\sim 1\text{W}/\text{cm}^2$ 程度のレーザーを使用して, 光非線形性を発現できるような色素膜を並列型の光情報処理へ応用しようとする立場から解説を試みる。

#### 2. 色素膜における光非線形性と記録特性

##### 2.1 飽和吸収

図1に示す3エネルギー準位を持つ色素においては, 入射光(光強度を  $I$ , 周波数を  $\omega$ )が強くなると, 基底状態  $S_0$  にある色素分子は光を吸収して多く励起され  $T_1$  状態に留まるので,  $S_0$  の色素は減少して吸収も減ることになる。これを飽和吸収<sup>3)</sup>という。定常状態での  $S_0$  にある色素数は  $1/(1+I/I_s)$  に比例する。ここで,  $I_s$  は飽和強度と呼ばれ, 光非線形性の目安を与える。 $I_s$  は

$$I_s = \frac{\hbar\omega}{\sigma q T} \quad (1)$$

である。 $\hbar$  はプランク定数,  $\sigma$  は吸収断面積,  $T$  は  $T_1$  状態の寿命,  $q$  は  $S_1$  から  $T_1$  状態へ遷移する割合(三重項収率という)である。 $\sigma q T$  の値が大きいほど,  $I_s$  は低くなり, 低い光強度で光非線形性を生じる。 $\sigma$  は  $\omega$  が  $\omega_0$  ( $S_0$  と  $S_1$  に相当する周波数)から離れると小さ

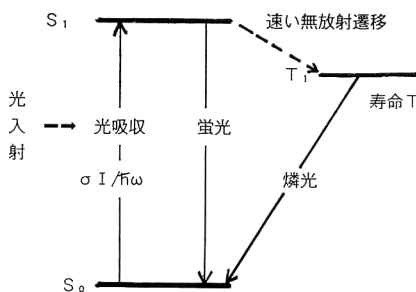


図1 可飽和吸収色素の3単位モデル  
 $S_0S_1$ のエネルギー間隔 $=h\omega_0$ ,  $S_1 \rightarrow T_1$ =速い遷移,  $T_1$ 状態の寿命  $T \gg S_1$ 状態の寿命.

くなる ((3)式参照) ので,  $I_s$  は高くなる. 光非線形性が顕著になるのに要する時間は  $\tau = T/(1+I/I_s)$  であるので, 光強度が高くなると, 応答時間は短くなる.

このような色素の非線形感受率は

$$\chi(\omega) = \frac{\chi_1(\omega)}{1 + I/I_s}$$

であり, 線形の感受率  $\chi_1$  は(2)で与えられる:

$$\chi_1(\omega) = \frac{2anc}{\omega} (i + \delta) \quad (2)$$

ここで, 虚数単位を  $i$ , 真空中の光の速さを  $c$  とする. 分極の緩和時間を  $T_2$  とすると, 離調パラメーター  $\delta$  は  $T_2(\omega_0 - \omega)$  である. また振幅吸収係数  $a$  は

$$a = a_0/(1 + \delta^2) = N\sigma/2 \quad (3)$$

である. ただし  $N$  は色素数密度であり,  $a_0$  は  $\omega_0$  の振幅吸収係数である. 光強度が  $I = 1/2\epsilon_0cn|A|^2$  (真空誘電率を  $\epsilon_0$ , 物質の屈折率を  $n$ , 電場の振幅を  $A$  とする)  $\ll I_s$  であれば, 3次の非線形感受率は

$$\chi_3(\omega) = \frac{-\epsilon_0an^2c^2}{\omega I_s} (i + \delta) \quad (4)$$

多くのキサントゲン系色素, アクリジン系色素, アジン系色素などでは, 光出力パワーが 1 W 程度の連続発振レーザーを使って, 飽和吸収による光非線形性を観察することができる. このような色素では  $|\chi_3| \sim 10^{-9} \sim 10^{-10} \text{ m}^2/\text{V}^2$  の範囲である.

色素が同じでもより剛体マトリックス中に存在する場合やより低温中では, 色素のクエンチ機構が凍結されて  $T$  が永くなり飽和強度も下がる. ポリビニルアルコール (PVA) 中に分散させたフルオレセインでは  $T \sim 0.055 \text{ s}$  で  $I_s \sim 3 \text{ W/cm}^2$  であるのに対して, Boyd らのグループは, ほう酸ガラス中に分散させたフルオレセインでは,  $T \sim 0.1 \text{ s}$  で  $I_s \sim 0.015 \text{ W/cm}^2$  となり<sup>4)</sup>, また 200 K での  $\chi_3$  は常温に比べて約一桁低くなる<sup>5)</sup>ことを示した.

3エネルギー準位の色素モデルを考えてきたが, 実際

には  $T_1$  からの吸収 (T-T 吸収) もある. この確率が大きいと, 照射により  $T_1$  に励起された色素は再び光を吸収して飽和吸収を生じにくくなる<sup>3)</sup>. 3エネルギー準位であれば, 光強度が高くなると透過率は1になるはずであるが実際はそうはならない. T-T 吸収の影響である. この現象や飽和吸収が関与する現象については, 宮永氏の詳細な報告が本号にあるので参照してほしい.

### 2.2 光誘起異方性

色素分子は一般に光学的異方性を持つ. この色素分子の主軸がランダムに配向しランダムな位置に固定して分散している薄膜を考える. 図2に示すように, 色素膜に弱い  $x$  方向に偏った直線偏光 ( $x$  偏光) を照射しても, 光学的性質は等方的である (図2の(a)の状態参照). この等方性色素膜に  $x$  方向の強い直線偏光を入射させ

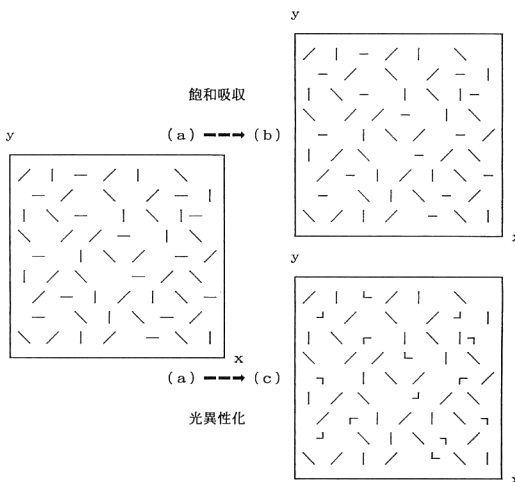


図2 色素膜における光誘起異方性の説明  
 (a): 光学的に等方な色素膜, (a)  $\rightarrow$  (b): 飽和吸収, (a)  $\rightarrow$  (c): 光異性化.

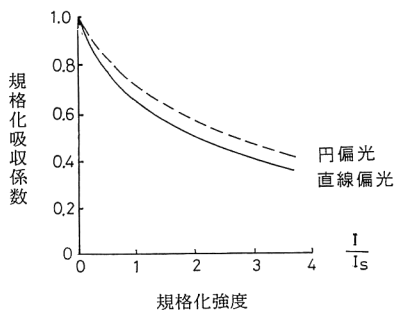


図3 直線偏光と円偏光で励起したときの吸収係数の光強度依存  
 縦軸は線形吸収係数で規格化した吸収係数, 横軸は飽和強度で規格化した光強度を表している.

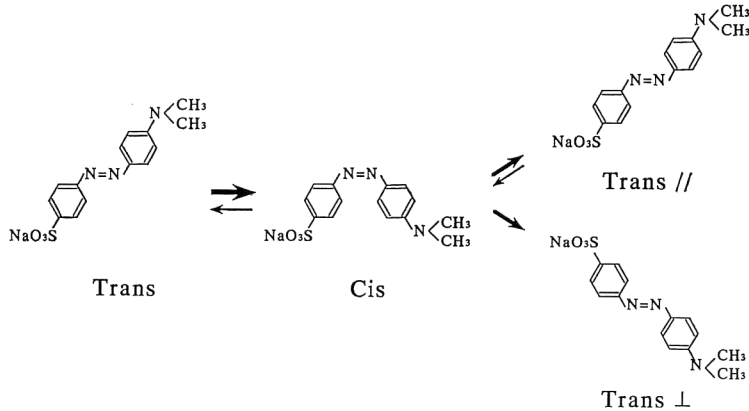


図 4 メチルオレンジの光異性化  
シス→トランスへの変化の時にトランス型には2通りの向き(⊥と//)がある。

るときに、どのようにして光学的な異方性が生じるかを、図2を参照して2種類の色素膜について説明する<sup>6)</sup>。

飽和吸収を示すキサンテン系色素膜などに  $x$  偏光を照射すると、 $x$  方向に主軸を持つ色素分子が励起されて  $x$  方向を向いた基底状態の分子数が減少する。図2(b)では短い横棒線でこれを表している。したがって  $y$  方向よりも  $x$  方向の吸収は減少し、光学的異方性が誘起される。吸収係数ばかりでなく屈折率も  $x$  方向と  $y$  方向で異なる。

光強度が等しくてもその偏光状態が異なれば、非線形感受率の値も異なる。線形光学の範囲ではこのようなことは生じない。図3に円偏光と直線偏光についての吸収係数の光強度依存を示す<sup>7)</sup>。

図4にアゾ系色素の一種であるメチルオレンジの光異性化による構造変化を示す。図2(c)に示すように、 $x$  偏光で励起すると、主に  $x$  方向に主軸を持つ色素はトランス型(棒線で表す)からシス型(かぎ型で表す)へ変わり、 $x$  方向を向いたトランス型の分子数は  $y$  方向を向いたトランス型の分子数より減少し、またシス型の分子数が多くなる。一般にはトランス型とシス型の分子の吸収係数や屈折率の値は異なるので、 $x$  と  $y$  方向では光学的性質が異なって光学的な異方性が誘起される。

メチルオレンジ分散 PVA 膜を波長 515 nm の円偏光で励起してその吸光度を弱い自然偏光で調べた。励起光照射前、10 min、30 min 経過後の分光吸光度を図5に示す<sup>7)</sup>。図の A, B, C を等吸収点という。これらの点の波長ではトランス型の吸収断面積とシス型の吸収断面積が等しいことを意味する。A点より短波長側ではシス型よりはトランス型の色素分子の方が吸収が強いことがわかる。したがって  $x$  偏光アルゴンレーザー光で励起す

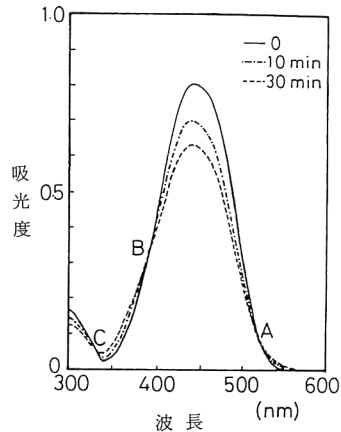


図 5 円偏光励起したときのメチルオレンジ分散 PVA 膜での吸光度スペクトルの時間変化  
励起波長: 515 nm. 30 min 励起すると安定で一定になる。

ると、 $x$  方向の方が  $y$  方向よりも透過率は増加する<sup>8)</sup>。これを利用した空間光変調機能の応用例を述べる。

### 2.3 光記録

非線形光学材料としてばかりでなくホログラム記録材料として使える色素膜を取り上げる。一般に色素に強い光をあてると、非可逆的な化学変化を生じて褪色するので吸収が減少する。これを利用すれば、現像の必要もなく、色素膜にホログラムを記録できる<sup>9)</sup>。すなわち、光の強・弱に応じて褪色も強・弱となるので、干渉縞を記録することができる。エリトロシンB分散 PVA 膜をホログラム記録材料として用いた位相共役干渉の例を後で述べる。

アゾ系の色素は褪色しにくいので、この方法ではホログラム記録はできにくい。強い  $x$  偏光を照射し続ける

と、図4に示すようにトランス→シスになった色素分子は小さい確率であるかもしれないが、再びトランス型に戻る。この時に2通りの向きすなわち元と同じ向きとそれに直交した向きがある<sup>9)</sup>。後者のトランス型の色素はもはや  $x$  方向の直線偏光を吸収しないので、ほぼ安定となる。これにより光誘起異方性を記録することが可能となるので、ホログラム記録もできる<sup>2,10)</sup>。これを利用した反射物体のホログラム記録とそれをティルトさせた物体光との位相共役干渉の例を後で述べる。

### 3. 光位相共役とその応用

#### 3.1 位相共役光の発生原理

ある光波に対して、時間を反転させた光波あるいは波面の形は同じであるが逆に進む光波を、位相共役光という。この光波を発生する素子を位相共役鏡という。最も一般に行われている縮退4波混合に基づく位相共役光の発生方法について述べる。縮退とはすべての光波の周波数が等しいという意味である。

プローブ光（その振幅を  $A_p$ ）と二つのポンプ光（それらの振幅を  $A_1, A_2$ ）を同時に非線形光学物質に入射させる（図6参照）。 $A_p$  と  $A_1$  光により光非線形性を色素膜中に生じ、屈折率や吸収係数の変化する格子が形成されるので、 $A_2$  光が回折される。また  $A_p$  と  $A_2$  光の作る格子により、 $A_1$  が回折される。 $A_1$  と  $A_2$  が対向していれば、2種類の回折光は同じ向きでプローブ光とは逆向きに進み位相共役像を再生する<sup>11)</sup>。3光波中どの光の照射を止めても位相共役像は消滅する。

位相共役光の発生効率を求めておこう。図6において簡単のためにすべての光波は紙面に垂直な直線偏光とする。プローブ光とポンプ光のなす角度は小さいとする。 $|A_{1,2}| \gg |A_p| \gg |A_c|$  とし、ポンプ光の線形吸収以外の減衰を無視し相互作用長を  $L$  とし色素膜中での吸収は  $A_1 A_2 \exp(-aL)$  で近似すると、場所  $z$  での位相共役

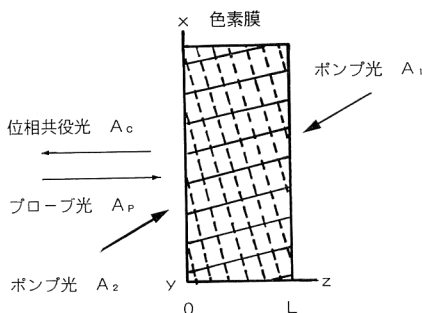


図6 位相共役光発生時のホログラフィモデルによる説明。プローブ光の進行方向 $=+z$ 。

光の振幅は次式に従う：

$$-\frac{dA_c}{dz} + aA_c = \frac{i3\omega}{4cn} \chi_3 A_1 A_2 A_p^* \exp(-aL)$$

ここで\*は複素共役を意味する。 $A_c(L)=0$  であるので、 $a$ が右辺の正味の結合係数より十分に大であれば、位相共役光の振幅は<sup>12)</sup>

$$A_c(0) = \frac{i3\omega}{4cn} \chi_3 A_1 A_2 A_p^* \exp(-aL) L_{\text{eff}} \quad (5)$$

となる。ここで  $L_{\text{eff}}$  は実効的な膜厚であり、

$$L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-aL)]/a \quad (6)$$

である。 $aL$ が小さい値では、実効的膜厚  $L_{\text{eff}}$ の増大と共に発生効率  $R = |A_c(0)/A_p^*(0)|^2$ は高くなる。 $aL$ が大きい値ではポンプ光の吸収により、 $R$ は減少する。

光誘起異方性を示す色素膜では、ポンプ光とプローブ光が互いに直交偏光していても位相共役光を発生する。直交偏光した光波  $A_2$  と  $A_p$  を色素膜に照射すると、強度は一樣であるが、偏光分布は干渉縞の周期と同じ周期を持つ。両光波の位相差が  $\pi$  の整数倍の場所では直線偏光であり、それ以外の場所では円偏光となる。同じ光強度では偏光状態が違えば、非線形光学物質の応答の大きさは違う（飽和吸収では図3参照）ので、周期的な格子が形成される。これに読み出し光  $A_1$  が当たり回折される際に、ブラッグ条件を満たす方向に回折され、プローブ光と同じ偏光を持つ位相共役光が発生する。

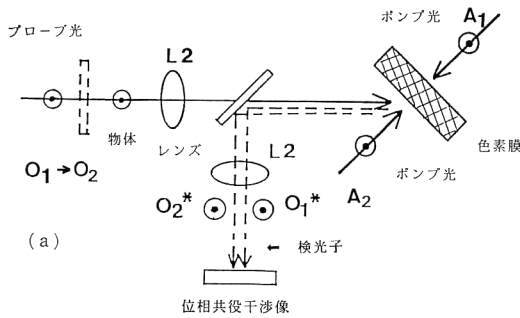
直交偏光配置でメチルオレンジ含有 PVA 膜により、10 min 間位相共役光を発生し続けると、発生効率は 30% にも達する。ここで興味あることは、10 min 円偏光の単光束を照射し続けた後に位相共役光を発生させると、 $\sim 1$ s で発生効率は 30% に達することである<sup>8)</sup>。

#### 3.2 光位相共役の応用例

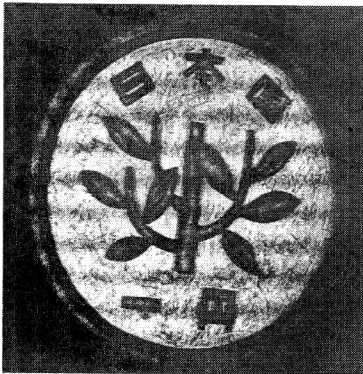
位相共役光の3成分と偏光特性を組み合わせた光情報処理の分野でのいくつかの応用例を紹介する。

図7(a)の4光波混合の配置で、プローブ光とポンプ光  $A_2$  により、変化前の物体（振幅を  $O_1$ ）をホログラムとしてエリトロシンBの褪色性を利用して色素膜に記録する。つぎに、ポンプ光  $A_1, A_2$  と変化する物体光（振幅を  $O_2$ ）を色素膜に当てると、同時に2種類の位相共役光が発生する。変化前の  $O_1$  と変化する  $O_2$  の位相共役光の干渉  $|O_1^* + O_2^*|^2$  が現れる<sup>13)</sup>。両光の強めあう場所では明るく再生され、打ち消しあう場所では暗くなるので、 $O_1$  と  $O_2$  の位相差を知ることができる。

振幅の差を取る方法を説明する。物体  $O_1$  をホログラムとして色素膜に記録する手順は前例と同じである。異なる物体光  $O_2$  の偏光を  $90^\circ$  回転して直交偏光配置と



(a)



(b)

図 7 (a)位相共役干渉による位相差や振幅差の検出光学系, (b)反射物体をティルトした時の位相共役干渉による位相差の観察例. ポンプ光パワー:  $0.3 \text{ W/cm}^2$ .

して  $A_1, A_2$  も照射する. 発生する 2 種類の位相共役光は, 物体光  $O_2$  とそれに直交偏光した物体光  $O_1$  の位相共役光である. 検光子を用いて  $|O_1^* - O_2^*|^2$  を観察することができる<sup>14)</sup>.

フルオレセイン分散ほう酸ガラスを用いて, 液晶空間変調器により交互に表示した 2 画像と同期させてプローブ光の位相を  $\pi$  ずらせながら位相共役画像の差演算を得た報告がある<sup>15)</sup>. メチルオレンジ分散 PVA 膜と 515 nm の波長のアルゴンレーザーの組み合わせにより, 拡散反射物体として円硬貨を用いて, ティルトしたときの位相共役干渉像を得た<sup>16)</sup>. その結果を図 7 (b) に示す.

メチルオレンジとエリトロシン B の吸光度スペクトルの重なった波長域にアルゴンイオンレーザーの波長がある. 両色素を分散させた PVA 膜を位相共役鏡として使うと, 時定数の異なる二つの直交偏光した同じ物体からの位相共役光を発生する. エリトロシン B は, 物体光とポンプ光が平行偏光の時に, 時定数 1 ms の強い位相共役光を発生し, メチルオレンジは, 物体光とポンプ光が直交偏光の時に, 時定数 0.3 s の強い位相共役光を発

生する. そこで, 時間がある程度経過したときには, 二つの直交偏光した位相共役像の明るさは等しくなるように検光子の方位を決めておくと, 入力物体が時間的に変化すると, その差のみが再生される. こうして静止画像を消去して動画のみ検出することができる<sup>17)</sup>. この方法をノベルティ (新奇) フィルタリングという.

## 4. 2 光波混合による自己回折

### 4.1 走行格子による自己回折

干渉する 2 光波を非線形光学物質に交差入射すると, 格子が形成される. 干渉縞と形成された格子の間に横ずれがあれば, 2 光波間に位相差の符号や大きさに依存してエネルギーが流れる. 自ら作った格子により光が回折されるので自己回折という. これはチタン酸バリウムなどの光誘起屈折結晶ではよく知られた現象である.

光誘起屈折結晶以外の一般の物質では, 自発的には格子は横ずれしない. そこで 2 光束の周波数を  $\Omega$  だけずらして干渉縞を移動させると, 物質の有限の応答時間  $\tau$  のために, 干渉縞に遅れて分極格子は形成され走行する. この走行格子により, 自己回折光の増減が可能となる<sup>18)</sup>. ポンプ光  $A_1$  は走行格子により回折される際に, 光路が 1 秒あたり  $\Omega/k$  ( $k$  は波数) だけ長くなるので, 回折光はドプラ効果による周波数変化  $-(\Omega/k)k$  を受ける.  $A_1$  の回折光の周波数は  $\omega_1 - \Omega = \omega$  となり, プロブ光  $A_p$  の周波数に一致する. 干渉縞に比べて, 形成された走行格子の位相遅れは  $\phi = \tan^{-1}(\Omega\tau)$  であり, コントラストは  $\cos \phi$  に比例する<sup>6)</sup>.

光波は紙面に垂直な直線偏光とし, 2 光波の交差角は十分に小さいとする.  $|A_1| \gg |A_p|$  とし, ポンプ光は線形吸収の影響だけを受けると近似する. すなわち表面から  $z$  の場所では  $A_1(z) = A_1(0) \exp(-az)$  から, プロブ光の方程式は

$$\begin{aligned} \frac{dA_p}{dz} + aA_p &= \frac{i3\omega}{8cn} \chi_3 \exp(-i\phi) \cos \phi |A_1(0)|^2 A_p \exp(-2az) \end{aligned}$$

となる. 入射ポンプ光やプローブ光強度を  $I, I_p$  とすれば, 差周波数  $\Omega$  での透過したプローブ光強度は

$$\begin{aligned} I_p(L, \Omega) &= I_p(0) \exp(-2aL) \\ &\times \exp \left[ \frac{3\omega[\Omega\tau\chi_3' - (2 + (\Omega\tau)^2)\chi_3'']IL_{\text{eff}}}{2\epsilon_0 c^2 n [1 + (\Omega\tau)^2]} \right] \end{aligned}$$

またこの関係式は次式で表される:

$$I_p(L, \Omega) = I_p(L, 0) \exp[(G_a + G_s)IL_{\text{eff}}] \quad (7)$$

$G_a$  と  $G_s$  はそれぞれ  $\Omega$  の正・負に対して反対称・対

称であり、単位光強度あたり単位長さあたりの指数利得を表し、次式で与えられる：

$$\left. \begin{aligned} G_a &= \frac{3\omega\Omega\tau\chi_3'}{2\epsilon_0c^2n[1+(\Omega\tau)^2]} \\ G_s &= \frac{3\omega(\Omega\tau)^2\chi_3''}{2\epsilon_0c^2n[1+(\Omega\tau)^2]} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

ここで  $\chi_3 = \chi_3' + i\chi_3''$  である。

4.2 自己回折による非線形感受率の測定

自己回折光の強さは、 $\chi_3''$  が関与する吸収型格子では  $\Omega$  の変化に対して対称であり、 $\chi_3'$  の関係する屈折率型格子では  $\Omega$  の変化に対して反対称である。このことから  $I_p(L, +\Omega)$  と  $I_p(L, -\Omega)$  を測定し、 $G_a$  や  $G_s$  をさらに(8)式から  $\chi_3'$  や  $\chi_3''$  を知ることができる。2光束(波長 488 nm) が平行偏光と直交偏光でのメチルオレンジ分散 PVA 膜における  $G_a I_{L,eff}$  と  $G_s I_{L,eff}$  を図8に示す。平行偏光に比べて直交偏光の  $\chi_3$  が約一桁大きい。直交偏光で  $2aL=2$  の試料では、 $\chi_3' \sim -3.6 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 、 $\chi_3'' \sim -4.1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{V}^2$  であった。この色

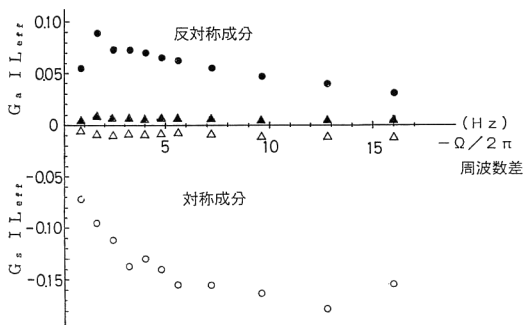


図8 平行偏光(△, ▲)と直交偏光(●, ○)配置における  $G_a I_{L,eff}$ (▲, ●)と  $G_s I_{L,eff}$ (△, ○)の周波数差  $\Omega$  依存性 ( $\Omega < 0$  のみを表示) 試料：メチルオレンジ分散 PVA 膜、波長：488 nm.

素膜による位相共役光の発生効率も、平行偏光よりも直交偏光の方が高い。飽和吸収を示す色素膜による自己回折については文献<sup>19,20)</sup>を挙げておく。

5. 空間光変調機能とその応用例

アゾ系色素膜の光誘起異方性を利用した空間光変調機能について説明する。物体情報を乗せた光の照射された部分にあるアゾ系色素が光異性化を生じ、屈折率や吸収係数に関してこの色素膜では光誘起異方性を示すので、空間光変調器として用いることができる。

照射光の偏光方向とそれに直交した方向では、吸収係数や屈折率も二つの方向で異なった値を持つので、色素膜に  $\lambda/2$  板と等価な異方性を持たせば、透過した読み出し光の偏光方向は  $90^\circ$  回転する。そこで書き込み光に画像情報を載せると、透過した読み出し光の偏光状態は画像の明るさに合わせて変調される。また、書き込み光強度を変えると透過した読み出し光強度も変化するので、連続諧調の画像にもこの演算機能は使える。

ここではインコヒーレント-コヒーレント画像変換について述べる。488 nm の画像書き込み光と 530 nm の読み出し光を使い、書き込み光の偏光を読み出し光の偏光に対して  $45^\circ$  傾けておく。また出力像面に検光子を置く。空間光変調素子として、メチルレッド(アゾ系色素の一種)分散 PVA 膜を使用した。検光子の透過軸を読み出し光の偏光方向に直交させれば、出力像にポジ像を得る。また検光子の透過軸を読み出し光の偏光方向に平行にすれば、出力像にネガ像を得る。実験例を図9に示す<sup>21)</sup>。時間応答が遅いのが難点である。高分子と色素の組み合わせの検討によりこれを改善しようとする試みもある。

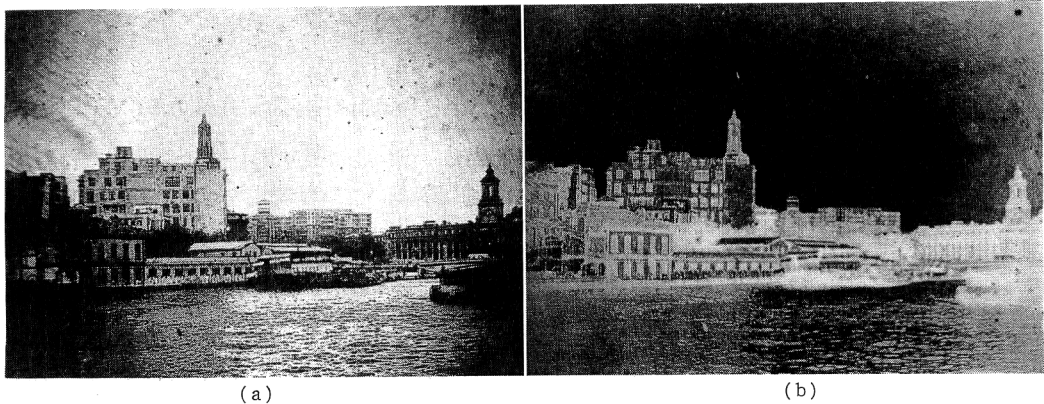


図9 メチルレッド分散 PVA 膜により読み出した(a)ポジ像と(b)ネガ像

位相共役光を利用した空間周波数フィルターなどの研究例<sup>22)</sup>もあることをつけ加えておく。

## 6. おわりに

1989年に著者の一人は本誌に「有機色素膜を用いた位相共役光学」と題した報告<sup>23)</sup>をした。ここでは、主にそれ以後の色素膜を用いた非線形光学といくつかの応用例を紹介してきたが、光誘起屈折効果を利用した応用研究に比べてその数が非常に少ない。この分野の研究が発展することを期待する。

最後に、色素膜の長所をまとめておく：

- (1) 薄い大寸法の膜の容易な作成
- (2) アゾ系色素による直交偏光での大きい光非線形性
- (3) 色素の組み合わせによる新しい機能の付与

## 文 献

- 1) Y. Silberberg and I. Bar-Joseph: "Low power phase conjugation in thin films of saturable absorbers," *Opt. Commun.*, **39** (1978) 265-268.
- 2) T. Todorov, L. Nikolova, N. Tomova and V. Dragostinova: "Photoinduced anisotropy in rigid dye solutions for transient polarization holography," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22** (1986) 1262-1267.
- 3) M. Hercher: "An analysis of saturable adsorbers," *Appl. Opt.*, **6** (1967) 947-954.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 藤原裕文: "情報と光物理—ホログラフィから位相共役光学まで—", 第29回サマーセミナー「情報光学」テキスト (日本光学会, 1992) pp. 1-26.
- 7) C. Egami, K. Nakagawa and H. Fujiwara: "Cross-polarized phase conjugation by using azo dye doped polymer films," *Nonlinear Optics Conf.* (North-Holland, Amsterdam, 1992) pp. 519-524.
- 8) C. Egami, K. Nakagawa and H. Fujiwara: "Phase conjugation in methyl-orange-doped PVA films by photoinduced anisotropy," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29** (1990) L1544-L1546.
- 9) H. Fujiwara and K. Nakagawa: "Phase conjugation in fluorescein film by degenerate four-wave mixing and holographic process," *Opt. Commun.*, **55** (1985) 386-390.
- 10) T. Todorov, L. Nikolova and N. Tomova: "Polarization holography. 1: A new high-efficiency organic material with reversible photoinduced birefringence," *Appl. Opt.*, **23** (1984) 4309-4312.
- 11) A. Yariv: *Quantum Electronics*, 3rd ed. (John Wiley & Sons, New York, 1988) pp. 495-533.
- 12) 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.
- 13) K. Nakagawa and H. Fujiwara: "Real-time and double-exposure phase-conjugate interferometries using eosin-doped gelatin film," *Opt. Commun.*, **70** (1989) 73-76.
- 14) H. Fujiwara, K. Nakagawa and T. Suzuki: "Real-time image subtraction and addition using two cross-polarized phase-conjugate waves," *Opt. Commun.*, **79** (1990) 6-10.
- 15) S.A. Boothroyd, L. Chan, P.H. Beckwith and J. Chrostowski: "Optical image subtraction in fluorescein-doped boric acid glass," *Appl. Opt.*, **31** (1992) 4004-4009.
- 16) H. Fujiwara, T. Takeda and K. Nakagawa: "Organic dye-doped polymer films for optical phase-conjugate processings," *Topical Meeting of ICO on Frontiers in Information Optics*, Kyoto (1994).
- 17) T. Takeda, M. Yamada, K. Nakagawa and H. Fujiwara: "Novelty filtering using phase conjugate wave in organic dye-doped polymer films," *Topical Meeting of ICO on Frontiers in Information Optics*, Kyoto (1994).
- 18) Y. Silberberg and I. Bar-Joseph: "Optical instabilities in a nonlinear Kerr medium," *J. Opt. Soc. Am. B*, **1** (1984) 662-669.
- 19) 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.
- 20) H. Fujiwara, K. Shio and S. Miyana: "Power transfer by nearly degenerate two-wave mixing in a saturable dye-doped film," *J. Opt. Soc. Am. B*, **8** (1991) 1740-1746.
- 21) T. Takeda, K. Nakagawa and H. Fujiwara: "A spatial light modulator using a methyl-red doped polyvinyl alcohol film," *Nonlinear Opt.*, **7** (1994) in press.
- 22) S.V. O'Leary: "Real-time image processing by degenerate four-wave mixing in polarization sensitive dye-impregnated polymer films," *Opt. Commun.*, **104** (1994) 245-250.
- 23) 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.