

可飽和色素分散薄膜における位相共役波反射率の偏光依存特性

佐藤 勉・宮永 滋己*

室蘭工業大学工学部電気電子工学科 〒050-0071 室蘭市水元町 27-1

Polarization Dependence of Phase-Conjugate Reflectivities in Saturable-Dye-Doped Films

Tsutomu SATO and Shigeki MIYANAGA*

Department of Electrical and Electronic Engineering, Muroran Institute of Technology, 27-1, Mizumoto, Muroran 050-0071

The polarization dependence of phase-conjugate (PC) reflectivity by degenerate four-wave mixing in saturable-dye-doped films is theoretically studied by taking account of the direction of the dipole moment induced in each dye molecule. Nonlinear polarization induced in such films, in which the dye molecules are rigidly held and randomly oriented, depends not only on the intensity but also on the polarization state of incident waves because of the anisotropy in the polarizability of each dye molecule. As a result, in such films, PC wave can be generated for both cases in which the polarization direction of a probe wave is either parallel or perpendicular to that of pump waves. The closed-form solution for the PC reflectivity is obtained by ignoring pump absorption effects, and the polarization dependence of the PC reflectivity is investigated. Theoretical results are compared with experimental results obtained in eosin-Y-doped polyvinyl alcohol films with an Ar-ion laser.

1. はじめに

比較的長い燐光寿命をもつ有機色素を高分子などに分散させた薄膜では、比較的弱い光強度で、吸収に関与する電子状態の占有確率が入射光強度に依存して変化する飽和吸収現象¹⁾が観測される。このような有機色素薄膜を用いた縮退四光波混合による位相共役波の発生は、位相整合条件が自動的に満たされ²⁾、比較的低いポンプ光強度で位相共役波を発生させることができるなど応用上非常にすぐれた特性をもっており、その特性の評価や³⁾、実時間画像処理、干渉計測などへの応用が検討されている⁴⁻⁷⁾。

有機色素を高分子中に分散させた薄膜では、色素分子自体がもつ分極率の異方性のため、薄膜全体に誘起される分極は入射光の光強度だけではなく、入射光の偏光状態と色素分子の配向状態にも依存する。したがって有機色素薄膜を用いた位相共役波の発生では、ポンプ光とプローブ光を互いに平行に偏光させた場合のみではなく、直交させた場合にも位相共役波が発生する。このような位相共役波の偏光特性を利用した実時間画像処理などへの応用も検討されており⁸⁾、その特性評価の観点からも位相共役波発生効率の特性を明らかにすることが重要である。

偏光状態に依存した位相共役波の発生効率を求めるためには、飽和吸収特性において色素分子の遷移双極子モーメントの方向を考慮に入れ、分極の配向平均を計算する必要がある⁹⁾。これまで、有機色素薄膜などの飽和吸収媒質における偏光状態に依存した位相共役波の発生効率については、分極に配向効果を取り入れ、色素のエネルギー準位を3準位で近似した解析が行われており^{10,11)}、Tompkinら¹⁰⁾は数値解法に基づいて、あるポンプ光強度でほぼ完全な偏光状態も保存したベクトル的な位相共役波の発生が可能であることを示した。

本論文では、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励起状態の吸収を考慮した4準位で近似し、色素分子に誘起される双極子の配向平均を考慮することにより、ポンプ光とプローブ光の偏光状態に依存した位相共役波の発生効率についての解析を行い、その解析的な解を与える。また位相共役波の発生機構と発生効率における各パラメータの影響について検討し、エオシンY分散ポリビニルアルコール (PVA) 薄膜における実験結果と比較する。

*E-mail: smiya@elec.muroran-it.ac.jp

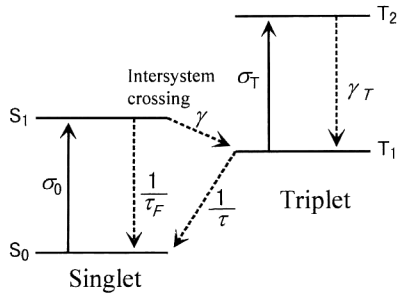


Fig. 1. Energy-level diagram of saturable dyes as a four-level system. σ_0 and σ_T denote the cross sections associated with the absorptions from a ground state and an excited-triplet state, respectively; τ_F and τ are a fluorescent lifetime and a phosphorescent lifetime, respectively; γ is the transition rate of an intersystem crossing; γ_T is the decay rate of level T_2 .

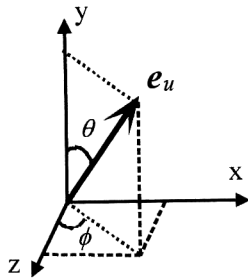


Fig. 2. Direction of transition dipole moment in a laboratory coordinate system. Each dye molecule is assumed to have only one component of transition dipole moments.

2. 有機色素薄膜の非線形分極

2.1 有機色素のエネルギー準位モデル

飽和吸収媒質として有機色素薄膜を考え、有機色素のエネルギー準位を Fig. 1 に示す 4 準位系で近似する¹²⁾。基底 1 重項状態 S_0 にある色素分子は、吸収中心波長付近の光の照射により光を吸収 (吸収断面積 σ_0) して S_1 準位へ遷移した後、一部は寿命 τ_F で S_0 準位へ遷移するが、一部は項間交差により遷移確率 γ で励起 3 重項状態 T_1 へ遷移する。 T_1 準位からは燐光寿命 τ で S_0 準位へ遷移すると同時に吸収断面積 σ_T の励起 3 重項吸収の影響を受ける。 $1/\tau_F$, γ および T_2 準位の減衰率 γ_T は、双極子遷移確率に比べて十分大きいとし¹³⁾, S_1 からの励起 1 重項吸収の影響と励起 3 重項吸収に伴う飽和の影響は無視する。

2.2 偏光に依存した有機色素の非線形分極

色素分子は高分子中でランダムな位置にランダムな方向を向いて固定されているとすると、色素膜全体の分極は各色素分子の方向を考慮した誘起双極子の配向平均によって得られる。色素分子の遷移双極子モーメントにそった単位ベクトル e_u を Fig. 2 のようにとる。Fig. 2 より各軸方向の単位ベクトルを e_x , e_y , e_z とすると

$$e_u = \sin \theta \sin \phi e_x + \cos \theta e_y + \sin \theta \cos \phi e_z \quad (1)$$

であり、配向平均は

$$\langle A \rangle = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi A \sin \theta \, d\theta d\phi \quad (2)$$

と定義する。また、色素分子の遷移双極子モーメントはただ 1 つの方向の成分のみをもつものとし¹⁴⁾, 1 重項吸収と 3 重項吸収の遷移双極子モーメントは平行であると仮定する。

以上のような仮定のもとで、巨視的な分極 P は、分極の緩和時間に比べて十分遅い現象について考える場合には、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で求めることができ、

$$P = N \langle p \rangle \quad (3)$$

$$p = \frac{i\varepsilon_0}{k_0} \left(\sigma_T \Delta_T + \frac{\sigma_0 \Delta_0 - \sigma_T \Delta_T}{1 + |\mathbf{e}_u \cdot \mathbf{E}|^2 / E_s^2} \right) (\mathbf{e}_u \cdot \mathbf{E}) \mathbf{e}_u \quad (4)$$

で与えられる¹²⁾。ただし、

$$\Delta_0 = 1 + i\delta_0, \quad \Delta_T = 1 + i\delta_T \quad (5)$$

であり、 \mathbf{E} は入射光の電場、 N は単位体積当たりの色素分子数、 ε_0 , k_0 はそれぞれ真空中での誘電率、波数である。 δ_0 , δ_T はそれぞれ 1 重項吸収, 3 重項吸収に伴う離調パラメーターであり、入射光の角周波数 ω , 1 重項および 3 重項吸収の吸収中心角周波数 ω_0 , ω_T , 分極の緩和時間 T_0 , T_T を用いて、

$$\delta_0 = (\omega - \omega_0) T_0, \quad \delta_T = (\omega - \omega_T) T_T \quad (6)$$

で定義される。また、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大きいと仮定しているので¹³⁾, E_s^2 は 1 重項吸収によって支配され、

$$E_s^2 = \frac{2\hbar k_0}{\varepsilon_0 \sigma_0 \tau q} \quad (7)$$

で定義される。ただし、

$$q = \frac{\gamma}{1/\tau_F + \gamma} \quad (8)$$

は項間交差の量子収率で 3 重項収率といわれ、 $q\tau \gg (1-q)\tau_F$ と仮定した。

2.3 飽和強度 I_s と小信号吸収係数 α_0 の定義

式(4)は、分母に光電場の 3 乗を含んでおり、各準位の占有確率が光強度によって変化することを反映して媒質の吸収係数が光強度に依存して変化することを示している。また、入射光の波長が吸収中心からずれている場合には屈折率も同時に変化する。式(3), (4)で与えられる分極をもつ媒質の吸収係数は、分極の配向平均を考慮すると、直線偏光に対して

$$\alpha = \sigma_0 N \left\{ \frac{G}{3} + \frac{(1-G)}{X^{3/2}} (\sqrt{X} - \tan^{-1} \sqrt{X}) \right\}, \quad X = \frac{I}{\varepsilon_0 c E_s^2 / 2} \quad (9)$$

となる。ただし、 c は真空中での光速であり、入射光強度を $I = \varepsilon_0 c |\mathbf{E}|^2 / 2$ とした。また、1 重項吸収と 3 重項吸収にお

る吸収断面積の比を $G = \sigma_T / \sigma_0$ とおいた。入射光強度が 0 の極限での吸収係数は小信号吸収係数 α_0 と呼ばれ、式 (9) から $I \rightarrow 0$ として、

$$\alpha_0 = \frac{\sigma_0 N}{3} \quad (10)$$

となる。吸収係数は、入射光が強くなるにつれて励起状態吸収断面積 σ_T の影響が大きくなり、強度無限大の極限では励起状態吸収の効果のみとなって $\alpha_\infty = \sigma_T N / 3$ となるので、光強度の増加とともに、 $G < 1$ の場合には吸収係数が小さくなる飽和吸収現象が、 $G > 1$ の場合には吸収係数が大きくなる逆飽和吸収現象が生じる。また、 $G = 0$ とすると励起状態吸収の効果の考慮しない場合 (3 準位近似) に相当し、 $G = 1$ の場合には占有確率の飽和が起こっても吸収係数の変化は生じない。吸収係数の変化が顕著になる光強度に対する目安として、飽和強度 I_s を、吸収係数が $\alpha = (\alpha_0 + \alpha_\infty) / 2$ となる光強度として定義すると式 (9) より I_s は

$$\frac{1}{X_s^{3/2}} \left(\sqrt{X_s} - \tan^{-1} \sqrt{X_s} \right) = \frac{1}{6}, \quad X_s = \frac{I_s}{\epsilon_0 c E_s^2 / 2} \quad (11)$$

によって決定される。式 (11) を二分法により数値的に解くことにより、飽和強度は

$$I_s = \gamma_s \frac{\epsilon_0 c}{2} E_s^2, \quad \gamma_s = 1.888 \quad (12)$$

と得られる。

3. 位相共役波の発生効率

3.1 結合方程式

Fig. 3 に縮退四光波混合における相互作用系を示す。 A_1, A_2 はそれぞれ前進、後進ポンプ光、 A_3 はプローブ光、そして A_4 は位相共役波の振幅を表し、2つのポンプ光の偏光方向は紙面に垂直であるとする。プローブ光、位相共役波の偏光はポンプ光の偏光に平行な場合 (平行偏光) と垂直な場合 (直交偏光) の2通りとし、飽和吸収媒質の厚さを L とする。縮退四光波混合では、一方のポンプ光とプローブ光の干渉による周期的な光の場の分布が色素膜中に周期的な非線形効果を生じさせ、これが格子として作用し、もう一方のポンプ光を回折することにより位相共役波が発生すると考えることができる。プローブ光とポンプ光が互いに平行に偏光されている場合には両者の干渉によって周期的な強度分布が生じ、直交偏光されている場合には強度は一様であるが周期的な偏光状態の分布が生じる⁴⁾。式 (3), (4) の分極とポンプ光、プローブ光および位相共役波の光電場を Fig. 3 の相互作用系のもとでマクスウェルの方程式に代入し、プローブ光と位相共役波がポンプ光に比べて十分弱いという近似のもとで、物質中に形成される格子間隔で空間平均をとることにより4つの波に対する結

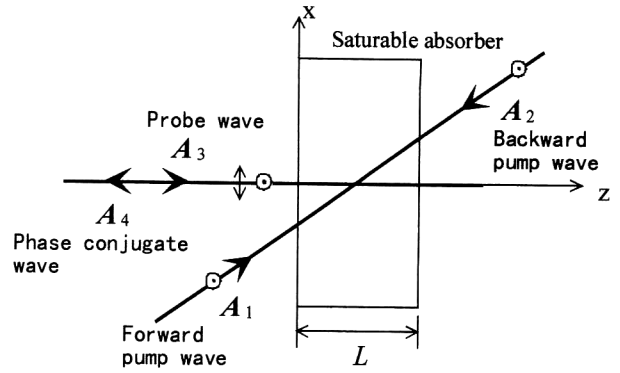


Fig. 3. Geometry of degenerate four-wave mixing. Two counterpropagating pump waves and a probe wave interact in a dye-doped film of thickness L , and a phase-conjugate (PC) wave is generated. The polarization direction of the probe and the PC waves is either parallel (refer to as parallel polarization) or perpendicular (refer to as perpendicular polarization) to that of the pump waves (taken to be the y axis).

合方程式が導かれ、それを解くことにより位相共役波の発生効率を計算することができる¹⁵⁾。式 (3) の分極は配向平均の積分を含むが、2つのポンプ光強度が等しく色素膜中では減衰せず一定であると仮定し、さらに分極の配向が格子間隔内で十分ランダムであると仮定すると、配向平均と空間平均の計算順序を入れ替えることができ、平均の順序を空間平均をとってから配向平均をとることにより平均は解析的に解くことができる。以上の手順に従って計算を行うとプローブ光と位相共役波の結合方程式は

$$\frac{dA_3}{dz} = -\alpha_{p,s} A_3 + \kappa_{p,s}^* A_4^* \quad (13)$$

$$\frac{dA_4^*}{dz} = \alpha_{p,s}^* A_4^* - \kappa_{p,s} A_3 \quad (14)$$

となる。ここで結合係数は

$$\begin{cases} \alpha_p = \frac{3\alpha_0}{2} \left(\frac{G\Delta_T}{3} + \frac{\Delta_0 - G\Delta_T}{8S^{3/2}} f_p \right) \\ \kappa_p^* = \frac{3\alpha_0 \exp(i\phi_p)}{2} \frac{\Delta_0 - G\Delta_T}{8S^{3/2}} g_p \\ \alpha_s = \frac{3\alpha_0}{2} \left(\frac{G\Delta_T}{3} + \frac{1}{4} \frac{\Delta_0 - G\Delta_T}{8S^{3/2}} f_s \right) \\ \kappa_s^* = \frac{3\alpha_0 \exp(i\phi_p)}{2} \frac{\Delta_0 - G\Delta_T}{8S^{3/2}} g_s \end{cases} \quad (15)$$

$$\begin{cases} f_p = \frac{1}{4} \ln(\sqrt{1+4S} + 2\sqrt{S}) + \frac{(4S-1)\sqrt{S}}{2\sqrt{1+4S}} \\ g_p = -\frac{3}{4} \ln(\sqrt{1+4S} + 2\sqrt{S}) + \frac{(4S+3)\sqrt{S}}{2\sqrt{1+4S}} \\ f_s = \left(4S - \frac{1}{2}\right) \ln(\sqrt{1+4S} + 2\sqrt{S}) + \sqrt{S}\sqrt{1+4S} \\ g_s = \frac{1}{4} \left(4S + \frac{3}{2}\right) \ln(\sqrt{1+4S} + 2\sqrt{S}) - \frac{3}{4} \sqrt{S}\sqrt{1+4S} \end{cases} \quad (16)$$

で与えられる。ただし、 ϕ_p はポンプ光の位相の和であり、 S

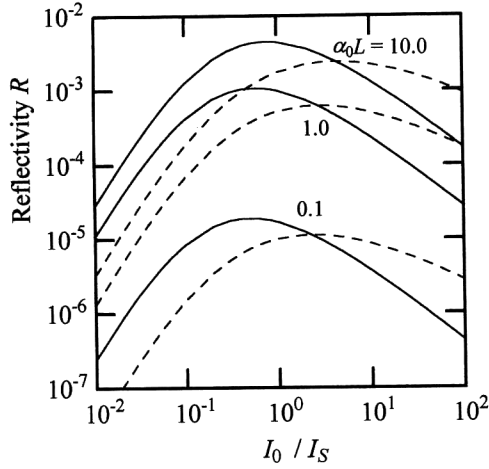


Fig. 4. Reflectivity of PC wave as a function of the normalized pump intensity, which is defined by the ratio of the pump intensity I_0 to the saturation intensity I_S , for the case of the parallel (solid curves) and the perpendicular (broken curves) polarization. With the parameters of $\delta_s = \delta_\tau = 0.0$ and $G = 0.5$, $\alpha_0 L$ is chosen to be 0.1, 1.0 and 10.0.

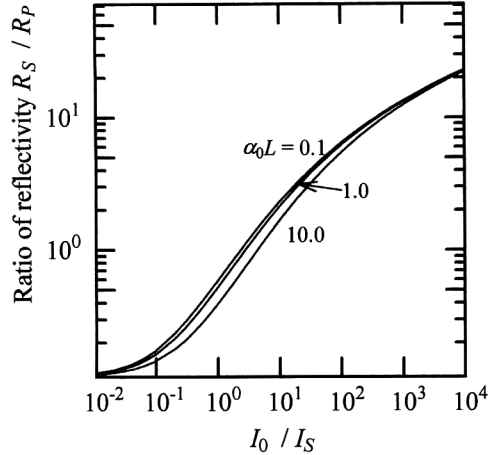


Fig. 5. Ratio of PC reflectivity for the perpendicular polarization to that for the parallel polarization as a function of the normalized pump intensity. With the parameters of $\delta_s = \delta_\tau = 0.0$ and $G = 0.5$, $\alpha_0 L$ is chosen to be 0.1, 1.0 and 10.0.

は入射光強度 I_0 と飽和強度 I_S から $S = \gamma_s I_0 / I_S$ とおいた。また添え字 P, S はそれぞれ平行偏光, 直交偏光を表す。ポンプ光の媒質中での減衰を無視しているので位相共役波反射率 R は式(13), (14)より解析的に求めることができ¹⁵⁾,

$$R_{P,S} = \left| \frac{A_3(0)}{A_4^*(0)} \right|^2 = \begin{cases} \left| \frac{x_{P,S} \sinh(WL)}{W \cosh(WL) + \text{Re}[a_{P,S}] \sinh(WL)} \right|^2, & \text{Re}[a_{P,S}] > |x_{P,S}|, \quad W = \sqrt{\text{Re}[a_{P,S}]^2 - |x_{P,S}|^2} \\ \left| \frac{x_{P,S} \sin(WL)}{W \cos(WL) + \text{Re}[a_{P,S}] \sin(WL)} \right|^2, & \text{Re}[a_{P,S}] < |x_{P,S}|, \quad W = \sqrt{|x_{P,S}|^2 - \text{Re}[a_{P,S}]^2} \\ \left(\frac{\text{Re}[a_{P,S}]L}{1 + \text{Re}[a_{P,S}]L} \right)^2, & \text{Re}[a_{P,S}] = |x_{P,S}| \end{cases} \quad (17)$$

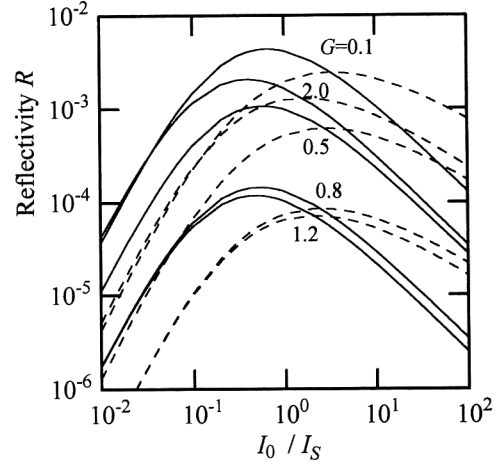


Fig. 6. Reflectivity of PC wave as a function of the normalized pump intensity for the case of the parallel (solid curves) and the perpendicular (broken curves) polarization. With the parameters of $\alpha_0 L = 1.0$ and $\delta_s = \delta_\tau = 0.0$, G is chosen to be 0.1, 0.5, 0.8, 1.2 and 2.0.

となる。ただし、 $\text{Re}[\]$ は実数部をとることを意味する。

3.2 反射率の計算結果

Fig. 4 にいくつかの $\alpha_0 L$ における位相共役波反射率の計算結果を示す。縦軸は反射率、横軸はポンプ光強度を飽和強度で規格化したもの(以下、規格化ポンプ光強度と呼ぶ)をとった。実線は平行偏光 (R_P) を、破線は直交偏光 (R_S) を表し、 $G = 0.5$, $\delta_s = \delta_\tau = 0.0$ とした。両偏光状態とも反射率はあるポンプ光強度でピークをもち、直交偏光のピーク付近で両偏光状態での反射率曲線が交差する。反射率曲線の交差は G , δ_s , δ_τ を変えても現れ、このポンプ光強度ではベクトル的な位相共役波の発生が可能であると考えられる¹⁰⁾。また $\alpha_0 L$ が大きくなるにつれて反射率も全体に増加し、 G の値にもよるが $\alpha_0 L > 10$ では、ほぼ同じ曲線に収束することがわかった。

Fig. 5 に平行偏光と直交偏光の反射率の比を示す。横軸は規格化ポンプ光強度、縦軸は両偏光での反射率の比であり、計算に用いたパラメータは Fig. 4 の場合と同じとした。Fig. 5 から、両偏光の反射率が等しくなるポンプ光強度は $\alpha_0 L$ の増加とともに大きくなっているが、ポンプ光が十分小さい場合と大きい場合には、反射率の比はほぼ一致していることがわかる。

Fig. 6 に G を変化させた場合の反射率曲線を示す。 $\alpha_0 L = 1.0$, $\delta_s = \delta_\tau = 0.0$ とし、 $G = 0.1, 0.5, 0.8, 1.2, 2.0$ とした。Fig. 6 より G が 1 に近づくにつれて反射率は小さくなり、図には示していないが、 $G = 1$ で反射率はゼロとなる。これは $G = 1$ では基底状態と励起状態の吸収断面積が等しいので占有確率の飽和が起こっても吸収係数は変化せず、位相共役波を発生させる格子が形成されないためであ

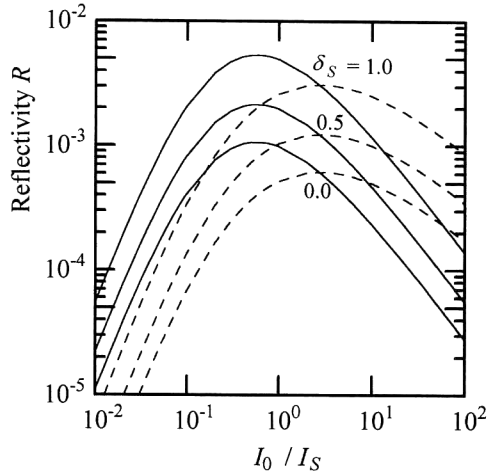


Fig. 7. Reflectivity of PC wave as a function of the normalized pump intensity for the case of the parallel (solid curves) and the perpendicular (broken curves) polarization. With the parameters of $\alpha_0 L = 1.0$, $G = 0.5$ and $\delta_r = 0.0$, δ_s is chosen to be 0.0, 0.5 and 1.0.

る。しかし、 δ_s , δ_r が値をもつ場合には、媒質中に生じた飽和吸収に伴う周期的な屈折率変化が格子として働くため、反射率はゼロとはならない。

Fig. 7 に $\alpha_0 L$, G , δ_r を一定にし、 δ_s を変えた場合の反射率を示す。 $\alpha_0 L = 1.0$, $G = 0.5$, $\delta_r = 0.0$ とし、 $\delta_s = 0.0, 0.5, 1.0$ とした。 δ_s が変化しても、反射率曲線はその形を変えずに全体に上下に移動するだけであることがわかる。これは δ_r を変化させた場合も同様であった。

3.3 双極子の配向を考慮しない反射率特性との比較

有機色素薄膜などの飽和吸収媒質による位相共役波の発生効率について従来行われた多くの計算^{12,15,16)} においては、色素分子の双極子モーメントは等方的であると仮定するか、または光電場の方向と平行であると仮定することにより誘起双極子の配向の効果は考慮されていなかった。これらの計算結果は本論文における平行偏光の場合に相当するが、ここでは誘起双極子配向の効果を検討した場合としない場合との反射率特性の比較を行う。

ポンプ光とプローブ光の偏光方向が互いに平行な場合のみを考え、 $\mathbf{e}_u // \mathbf{E}$ と仮定した場合には、配向平均を計算する必要はなく吸収係数は

$$\alpha' = \left(\sigma_r + \frac{\sigma_0 - \sigma_r}{1 + X} \right) N, \quad X = \frac{I}{\epsilon_0 c E_s^2 / 2} \quad (18)$$

と求められ、小信号吸収係数、飽和強度は、

$$\alpha_0' = \sigma_0 N, \quad I_s' = \frac{\epsilon_0 c}{2} E_s^2 \quad (19)$$

と定義される。また、結合方程式および発生効率は配向平均をとる必要がないので比較的簡単に計算され、結合係数 κ , α の内容は異なるが、式(17)と同じ形で求められる¹⁵⁾。

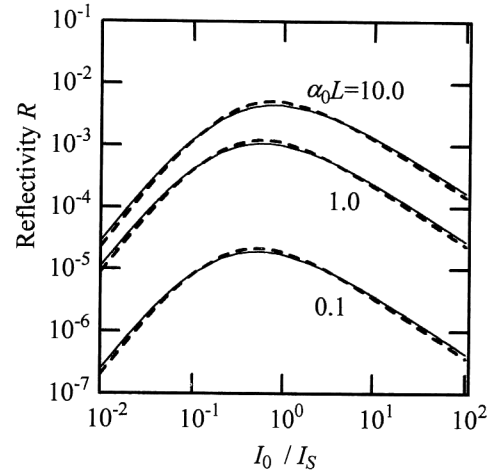


Fig. 8. Reflectivity R of PC wave as a function of the normalized pump intensity with (solid curve) and without (broken curve) taking into account the molecular orientation effect. With the parameters of $\delta_s = \delta_r = 0.0$ and $G = 0.5$, $\alpha_0 L$ is chosen to be 0.1, 1.0 and 10.0.

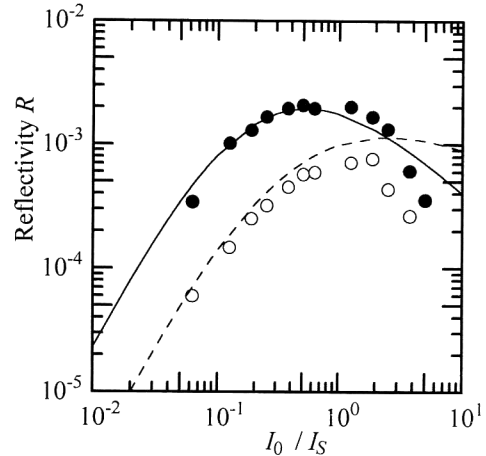


Fig. 9. Experimental results for PC reflectivity R as a function of the normalized pump intensity for the case of the parallel (●) and the perpendicular (○) polarization for $\alpha_0 L = 1.20$. The numerical results obtained by curve fitting are shown as the solid (parallel polarization) and the broken (perpendicular polarization) curve with the fitting parameters of $G = 0.6$, $I_s = 1.6 \text{ W/cm}^2$, $\delta_s = 0.9$ and $\delta_r = 0.4$.

Fig. 8 に双極子配向を考慮した場合（実線）と、しない場合（破線）の反射率のポンプ光強度依存性をいくつかの $\alpha_0 L$ について示す。ただし、 I_s , $\alpha_0 L$ の定義は、平行偏光では式(10), (12)、双極子配向を考慮しない場合では式(19)である。また、その他のパラメータは $G = 0.5$, $\delta_0 = \delta_r = 0.0$ とした。Fig. 8 より、双極子配向を考慮した場合のほうがわずかにピーク反射率が下がり裾も広がっているが、曲線はほぼ一致している。これは、 δ_0 , δ_r , G など他のパラメータを変えた場合にも同様である。このことから、双極子配向の影響を考慮した場合でもしない場合でも、小信

号吸収係数, 飽和強度の定義を式(10), (12)および式(19)に注意して変更することにより, 平行偏光についてはほとんど同じ結果が得られることがわかる。しかし分極の配向を考慮しない場合, 直交偏光の場合に位相共役波が発生することは説明できない。

4. 実験結果との比較

ここでは式(17)から得られる理論特性と実験結果とを比較する。実験は, 飽和吸収媒質として, 有機色素エオシン Y を分散させた PVA 薄膜を用いた。測定には, 一般的な縮退四光波混合系を用い⁴⁾, 光源には波長 514.5 nm の Ar イオンレーザーを使用した。Fig. 9 に測定結果と計算結果を示す。●は平行偏光, ○は直交偏光の測定結果を表し, 実線は平行偏光, 破線は直交偏光の計算結果を表す。計算に必要なパラメーターのうち, $\alpha_0 L$ は分光光度計による測定値から $\alpha_0 L = 1.20$ とし, I_s , δ_s , δ_r および G はフィッティングにより $I_s = 1.6 \text{ W/cm}^2$, $\delta_s = 0.9$, $\delta_r = 0.4$, $G = 0.6$ と決定した。測定値と計算値を比べると, ポンプ光強度が弱いときにはよく一致しているが, 大きくなるにつれて差が現れている。特に直交偏光において計算値と実験値のずれが大きく, 理論曲線では平行偏光と直交偏光が交差するのに対し, 測定結果では直交偏光の反射率の急激な低下のため交差する点が見られない。この原因は現在のところ明らかではないが, 光照射による色素の褪色の影響や, 褪色などにより薄膜中に記録された格子から生じる位相共役波(ホログラフィー成分)^{4,6)}の影響などが考えられる。

5. ま と め

有機色素膜を用いた縮退四光波混合による位相共役波の発生における位相共役波反射率の偏光依存性について, 有機色素の異方性を考慮し, ポンプ光が媒質中で一定であるという近似のもとで結合方程式を解析的に求め, その反射率特性の理論計算を行った。平行偏光と直交偏光の反射率曲線は, ともにポンプ光強度に対してピークをとる特性を示した。また, あるポンプ光強度で両偏光状態における反射率は等しい値をとり, この点ではベクトル的な位相共役波発生¹⁰⁾の可能性があること, そして, このポンプ光強度は $\alpha_0 L$ の増加とともに大きくなることが確かめられた。 $G=1$ の場合, 吸収係数変化が生じないため反射率は低下するが, δ_s , δ_r の値によっては屈折率変化による格子の寄与が加わるため反射率は大きくなり, また δ_s , δ_r の変化は, 反射率曲線の形を変えずに全体に上下に移動させるだけであることがわかった。平行偏光の特性は, 飽和強度, 小信号吸収係数の定義を配向効果を考慮して変更することによ

り, 従来の誘起双極子の配向効果を考慮しない場合の結果とほぼ同じ結果が得られることがわかった。しかし, 測定値との比較では, 特に直交偏光において, ポンプ光強度が大きいところで測定値と計算値に差がみられたが, この原因については現在検討中である。

本研究の一部は文部省科学研究費(基盤研究(C), 課題番号 09650040)の援助を得て行われた。

文 献

- 1) M. Hercher: "An analysis of saturable absorbers," *Appl. Opt.*, **6** (1967) 947-954.
- 2) R. W. Hellwarth: "Generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction," *J. Opt. Soc. Am.*, **67** (1977) 1-3.
- 3) 宮永滋己: "飽和吸収による光波混合特性", *光学*, **23** (1994) 466-472.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) I. Bar-Joseph, A. Hardy, Y. Katzir and Y. Silberberg: "Low-power phase-conjugate interferometry," *Opt. Lett.*, **6** (1981) 414-416.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) W. R. Tompkin, M. S. Malcuit, R. W. Boyd and J. E. Sipe: "Polarization properties of phase conjugation by degenerate four-wave mixing in a medium of rigidly held dye molecules," *J. Opt. Soc. Am. B*, **6** (1989) 757-760.
- 11) S. Miyanaga, K. Nakagawa and H. Fujiwara: "Polarization-dependent phase-conjugate reflectivity in randomly oriented saturable absorbers," *Proc. SPIE*, **1319** (1990) 71-72.
- 12) 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.
- 13) 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.
- 14) G. N. Lewis, D. Lipkin and T. T. Magel: "Reversible photochemical processes in rigid media. A study of phosphorescent state," *J. Am. Chem. Soc.*, **63** (1941) 3005-3018.
- 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) W. P. Brown: "Absorption and depletion effects on degenerate four-wave mixing in homogeneously broadened absorbers," *J. Opt. Soc. Am.*, **73** (1983) 629-634.