

多重散乱光の干渉による光記録効果

栗 田 厚

Optical Memory Effect by Interference of Multiple-Scattered Light

Atusi KURITA

Photoreactive materials combined with strongly scattering host media cause a novel optical memory effect, which is based upon recording of interference patterns of multiple-scattered light in the optically inhomogeneous medium. The effect is observed as holes in the fluorescence excitation spectra; the sample is excited by attenuated laser light, and a parameter such as laser wavelength, incident angle, or polarization direction, is scanned while fluorescence is detected; the same laser beam is used for hole burning with the parameter fixed and without attenuation. Narrow holes are observed when the value of the scanned parameter coincides with that of the burning condition. Here we review several basic properties of this memory effect.

Key words: multiple scattering, random medium, interference, photoreaction, hole burning

光の強散乱媒質に入射した単色光は、媒質内で多重散乱され、さまざまな位相差をもって出会い、干渉することにより、媒質中にランダムな強度パターン—すなわち、スペckルパターン—を形成する。この干渉パターンは、媒質の不規則性を反映してランダムではあるが、入射光の状態(周波数、入射角、偏光など)の記憶は保持している。つまり、散乱媒質が静止している限り、同じ入射光を入れれば同じ干渉パターンがつくられる。逆に、入射光の状態がある程度変われば、干渉パターンは別のものになる。そこで、媒質に光反応物質を混ぜ込んでおき、強い単色光の照射によってつくられる干渉パターンを、光反応物質の吸収強度の空間的变化として書き込むと、入射光の状態が空間的なパターンとして記録されることになる。このような効果を、「多重散乱光の干渉による光記録効果」とよぶ。記録された情報の読み出しには、光反応前の状態が蛍光を発するような光反応物質を用いるのが便利である。読み出し用の弱い光によって励起された光反応物質からの蛍光を検出し、周波数など、読み出し光の状態を掃引した場合の、蛍光強度の変化を測定する。読み出し光の状態が書き込み光の状態と一致すると、両者のつくる干渉パターンも一致するが、媒質中で読み出し光が強くなっている位置では書

き込み光によって光反応物質が反応を起こして蛍光を発しない状態に変化しているため、蛍光強度は弱くなる。したがって、記録された周波数などは、周波数などの関数として測定した蛍光強度に現れる凹み(ホール)の位置から知ることができる¹⁻³⁾。この現象は、見かけは永続的ホールバーニングと似ているが、永続的ホールバーニングが局在中心ごとに異なる電子のエネルギー準位と光の周波数との共鳴に基づくサイト選択分光であるのに対し、媒質自体は特定の周波数に共鳴する性質はもたず、情報が媒質全体に非局所的に記録されるという点で、対照的であり、原理的に異なるものである。また、散乱微粒子を含む系での室温ホールバーニングとしてArnoldらの実験⁴⁾が知られており、微粒子を用いるという点で混同しやすいが、彼らの実験では電子のエネルギー準位のかわりとしてwhispering gallery modeとの共鳴を利用して特定の微小球を選択しており、通常の永続的ホールバーニングのほうに分類されるものである。ただし、媒質が何らかの共鳴構造をもつ場合でも、試料が粉末状態や微粒子の集合体になっていて光を多重散乱する場合は、干渉パターンによる光記録も起こっている可能性はある。しかし、入射角の掃引に対してホールが観測されるのは干渉パターンによる光記録の場合の

みのため、両者は明確に区別できる。本稿では、このような多重散乱光の干渉による光記録効果の基本的な特性について紹介する。

1. ホール形状と相関関数

強い単色光を照射し、それによる干渉パターンが、光反応によって吸収強度の空間的変化として記録される場合を考える。干渉パターンは入射光の周波数、波面(入射角)、入射位置、偏光によって変化するため、その状態を変数 α で表す。まず、状態 α_0 の強い光によって光反応を起こさせたとする。位置 \mathbf{r} における光強度を $I(\mathbf{r}, \alpha_0)$ と書く。光反応の進行が照射光量の指数関数で表されるとすると、照射時間などに比例する係数を ϕ とし、位置 \mathbf{r} における吸収強度は $\exp(-\phi I(\mathbf{r}, \alpha_0))$ に比例する。次に α を掃引しながら発光の励起スペクトルを測定した場合、読み出し光(書き込み光より十分弱いとする)の強度分布は、 $I(\mathbf{r}, \alpha)$ であるので、読み出し光によって励起されて出る蛍光の強度は、吸収強度と、読み出し光の強度分布の積を、光反応材料を含む領域全体で体積積分した値、 $F(\alpha) = \int I(\mathbf{r}, \alpha) \exp(-\phi I(\mathbf{r}, \alpha_0)) d\mathbf{r}$ になる。実験結果と正確に合わせるためには、散乱媒質の内部から発した蛍光が検出器まで到達する確率が発光の出る深さに依存することや^{5,6)}、実際の光反応では反応量が照射光量の指数関数には乗らない場合が多いことを考慮する必要があるが、本質的な点のみに目を向けるために、ここではそれらは論じない。 ϕI が1より十分に小さい場合は、光照射前後の蛍光強度の変化は、 $-\int I(\mathbf{r}, \alpha) I(\mathbf{r}, \alpha_0) d\mathbf{r}$ に比例する。すなわち、ホールの形状は、光強度の相関関数 $\langle I(\alpha) I(\alpha_0) \rangle$ に相当することがわかる。ただし、 $\langle \dots \rangle$ は平均操作(ここでは体積積分)を表す。通常のスペックルの相関測定では、散乱媒質の外部で $I(\mathbf{r}, \alpha)$ と $I(\mathbf{r}, \alpha_0)$ を別々に測定し、計算によって相関関数を求めるが、この光記録効果では、散乱媒質内部の光強度の相関関数を得ることができ、しかもそれが数値計算によらずに現象そのものから得られることに特徴がある。

2. 入射角の関数としてのホールとホール深さ

まず、変数 α を入射角とした場合のホールについて述べる。図1に、少しずつ異なる入射角で順次5つのホールを書き込み、その都度読み出しを行った実験結果を示す。ホールの深さは、ホール数を増やすに従って浅くなるが、挿入図に示すように、ホールの幅は変わっておらず、十分にS/N比のよい測定をすれば、各ホールは区別できる。複数のホールをあけた場合のホール深さの変化は、次のようにして理解できる。

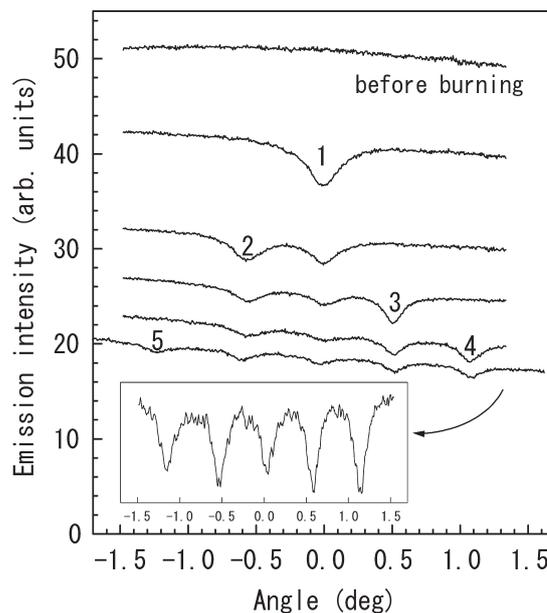


図1 順次5つのホールを異なる入射角であけて、入射角の関数として蛍光強度を測定して得たホール形状。番号はホールをあけた順番を示す。試料は、光反応物質として、フォトクロミズムを示す有機分子フルギドの蛍光性を示す誘導体⁷⁾を使用し、これをポリスチレン粉末に添加したものを用いた。

ホールの形状を与える前章の式 $F(\alpha) = \int I(\mathbf{r}, \alpha) \exp(-I(\mathbf{r}, \alpha_0)) d\mathbf{r}$ (簡単のため $\phi=1$ とした) において、ホール中心では、 $\alpha=\alpha_0$ なので、 $I(\mathbf{r}, \alpha) = I(\mathbf{r}, \alpha_0)$ となる。一方、 α と α_0 が十分に離れている場合は、 $I(\mathbf{r}, \alpha)$ と $I(\mathbf{r}, \alpha_0)$ の空間分布は互いに独立と考えられ、おのおのについての積分を分離することができる。ここで、媒質中での光強度の分布確率はスペックルの分布確率 $P(I) = \exp(-I)$ に従うとすると、体積積分は $P(I)$ で重みづけした I による積分で置き換えられる³⁾。 $\int_0^\infty \dots P(I) dI$ を $\langle \dots \rangle$ と書く。2つのホールをあける場合、それぞれの書き込み時の強度分布を $I_1(\mathbf{r})$, $I_2(\mathbf{r})$ とすると、各ホールの書き込み時の光照射時間を t とし、 $F = \int I(\mathbf{r}, \alpha) \exp(-(I_1(\mathbf{r}) + I_2(\mathbf{r})) \cdot t) d\mathbf{r}$ と書ける。 $I_1(\mathbf{r})$ と $I_2(\mathbf{r})$ は互いに独立であるとする、たとえば1つ目のホール中心では $I_1(\mathbf{r}) = I(\mathbf{r}, \alpha)$ であるので、 α をホール中心に合わせたときの蛍光強度は $F_h(t) = \langle I \cdot e^{-I t} \rangle$ $\langle e^{-I t} \rangle = 1/(1+t)^3$ となる。ただし、ホールをあける前の蛍光強度は1としている。一方、どちらのホールからも離れたフラットな場所では $F_f(t) = \langle I \rangle \langle e^{-I t} \rangle \langle e^{-I t} \rangle = 1/(1+t)^2$ となる。 n 個のホールをあけた場合は、ホールの深さは $F_f(t) - F_h(t) = t/(1+t)^{n+1}$ となり、これは $t=1/n$ のとき最大値をとる。すなわち、 n 個のホールをできるだけ深くあげようと思ったら、1個のホールの深さが最大となる照射時間の $1/n$ の時間で各ホールをあければよい。

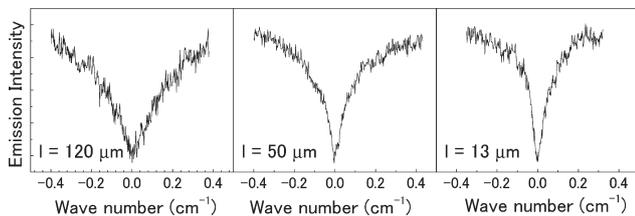


図2 周波数の関数として測定したホールの形状. 試料は、フルギド誘導体と酸化チタン微粒子（直径約200 nm）の散乱体をPMMA（ポリメチルメタクリレート）中に分散したもの. 散乱体の濃度を変えて、試料中の光の平均自由行程 l を変えた場合のホールスペクトルの変化を示す. 平均自由行程は、コヒーレント後方散乱⁸⁾の測定から求めた.

n が十分に大きい場合、こうしてあけたホールの深さは $(en)^{-1}$ になる.

記録の読み出しは、蛍光のかわりに散乱光を検出によって行うことも可能である. 散乱光の場合は、蛍光の場合とは逆に吸収が減少すると強くなるので、ホールは凸型で観測される. したがって、光反応物質としては、必ずしも蛍光を発するものを使う必要はない. ただし、この場合にホール深さなどを定量的に検討しようとしたら、たとえば積分球を用いて吸収された光の量を評価する実験をする必要がある.

3. 周波数の関数としてのホールの幅

図2に、散乱媒質の散乱強度を変えた場合の、周波数の関数としてのホールを示す. ホール幅は非常に狭いので、ホール形状の正確な測定には単一モードレーザーが必要である. 周波数の関数としてのホールの幅は、媒質中における光の滞在時間 τ に反比例する. 散乱媒質中の光の振る舞いが拡散方程式によって記述できるとし、光の拡散定数を D 、平板状の試料の厚さを L とすると、滞在時間は光が試料の裏面まで拡散する時間 $\tau \sim L^2/D$ 程度である. 光の平均自由行程を l とすると、光速を c として $D = cl/3$ であるので、ホール幅は $\Delta\omega \sim 2\pi cl/3L^2$ となる. 実験の結果は、ホール幅はほぼ l に比例、 L^2 には反比例し、予測と一致した. また、 $l = 10 \mu\text{m}$ 、 $L = 1 \text{ mm}$ とすると $\Delta\omega \sim 6.3 \text{ GHz}$ となり、幅の絶対値もほぼ一致する. 周波数の関数としてのホールの形状は、より定量的には媒質内の光強度の時間的減衰特性のフーリエ変換から求める.

4. 偏光特性

媒質中の干渉パターンは入射光の偏光によっても変化する. 図3に、2種類の偏光状態の光を用いて、異なる入射角でホールを書き込んだ後に、それぞれの偏光状態の光の入射角を掃引してホールを読み出した結果を示す. 互いに直交する直線偏光の場合も、右回りと左回りの円偏光の場合も、書き込みと読み出しの偏光状態が一致するホールの

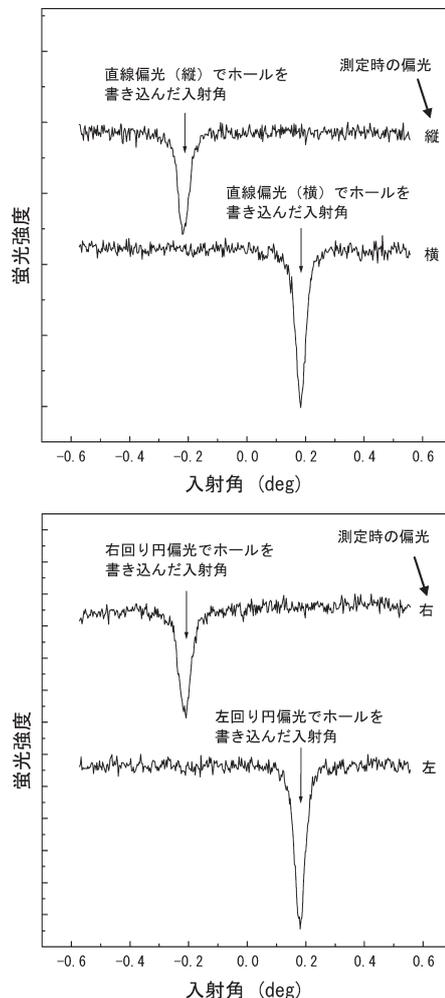


図3 縦横の直線偏光、または、右回りと左回りの円偏光という、互いに直交する2つの偏光状態を用い、それぞれの偏光状態で異なる2つの入射角で2つのホールをあけた後、それぞれの偏光状態でホールを観察した実験の結果.

みが観測され、もう一方の偏光状態で書き込んだホールはまったく観測されない. この結果は、互いに直交する直線偏光の入射光が媒質中につくる電場の空間分布が互いに独立であるとする、理解できる. また、このように直線偏光でも円偏光でも区別できるのは、ランダムな媒質による散乱のために、さまざまな位相差、電場ベクトルのさまざまな成分間の干渉が、媒質内のどこかで必ず起こっているため、と考えることができる.

文 献

- 1) A. Kurita *et al.*: Phys. Rev. Lett., **83** (1999) 1582-1585.
- 2) A. Kurita *et al.*: J. Lumin., **87-89** (2000) 986-988.
- 3) 栗田 厚: 光学, **30** (2001) 117-122.
- 4) S. Arnold *et al.*: Opt. Lett., **16** (1991) 420-422.
- 5) M. Tomita *et al.*: Phys. Rev. B, **64** (2001) 180202.
- 6) M. Tomita *et al.*: Phys. Rev. E, **70** (2004) 046606.
- 7) A. Kurita *et al.*: Mol. Cryst. Liq. Cryst., **344** (2000) 205-210.
- 8) E. Akkermans *et al.*: Phys. Rev. Lett., **56** (1986) 1471-1474.

(2005年7月4日受理)