

## ランダム媒質中の光の多重散乱による光記録効果

### Optical memory effect by multiple scattering of light in random media

代表研究者 関西学院大学 栗田 厚 Kwansei Gakuin University 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 multiply scattered light in the optically inhomogeneous medium. The effect is observed as holes in the fluorescence excitation spectra; the sample is irradiated by attenuated light from a cw dye laser, and a parameter such as laser wavelength, incident angle, incident position, or polarization direction, is scanned while fluorescence is detected; the same laser beam is used for hole burning with the parameter fixed. Narrow holes are observed when the value of the scanned parameter coincides with that of the burning condition.  $\text{TiO}_2$  microparticles embedded in polymethylmethacrylate which dissolves a fluorescent fulgide derivative are used as recording media. Here we report the result of a detailed study on the polarization properties and the correlation between external parameters of this memory effect.

## 1. 研究目的

今まで、高度な機能を持つ光学素子の大多数は、均質な、または精密に制御されたマイクロな構造を持つ光学材料を必要とした。そもそも、光学的に不均質な媒質に光を入射させると、光は何度も散乱(多重散乱)されて四方八方に散らばるだけで、機能や測定の妨げになることはあっても、それが独自の有用な機能や、興味ある現象を生むとは考えにくい。ところが最近、散乱が強くなると、逆に光が媒質中に捕らえられて動けなくなる「光の局在」が起きることがわかってきた。これは、乱れた系での波の干渉による興味深い現象であって、広く乱れた系で起こり、電子の場合はアンダーソン局在として知られている。また、光を強く散乱する媒質にレーザー色素を混ぜ込み、これを光ポンピングすると、線幅の狭い発光線が観測されることが最近発見された。この系にはレーザー共振器は無いのに、線幅の狭い発光線は、レーザー発振のようにポンピング光の強度があるしきい値を超えたときに現われるため、この現象は「ランダムレーザー」と呼ばれて

いる。この現象においても、不規則な媒質による光の多重散乱が本質的な役割を果たしている。一方、このような乱れた媒質に光反応材料を混ぜ込むと、さらにおもしろい現象が起きることを私は見出した。それは、媒質に入射した光の波長や入射角が記録されるという一種の光記録効果で、媒質中で多重散乱された光が作るランダムな干渉パターンが、光反応物質によって記録されることによって生じる。この効果は、記録用の光と参照光との干渉縞を感光剤によって記録するホログラフィーに近いものであるが、不均質な媒質を用いることから生じる、特有のさまざまな性質を持つ。本研究では、この効果の詳細な特性を実験と数値計算によって調べ、強散乱体中に、非線型光学媒質、光反応媒質、増幅媒質などのアクティブな媒質を含む系で生じるさまざまな新しい光機能の可能性を考察することを目的とする。

## 2. 経過

試料は、色素（蛍光性のフルギド誘導体）と酸化チタン微粒子を PMMA(ポリメチルメタクリレート) 中に分散させたものを使用した。フルギドは、500 nm 付近に吸収のピークを持つ赤色の C 体と、紫外域に吸収を持つ透明な E 体の 2 つの異性体を持つ有機分子で、それぞれが吸収する光を照射すると、相互に可逆的に変換される。通常のフルギドは蛍光を出さないが、蛍光性の誘導体も存在し、その場合は C 体のみが蛍光を出す。したがって、C 体から出発すると、光照射によって E 体への変換が起こり、その結果として蛍光強度の減少を起こすことができる。PMMA は、モノマー状態の MMA(メチルメタクリレート) から出発した。精製した MMA に酸化チタン微粒子 (直径 200nm) と色素を混ぜてから重合させ、PMMA にした。固まった試料は、ダイヤモンドカッターでスライスし、円板状の試料を得た。

基本的な測定方法は、次の通りである。まず入射光の波長・入射角・入射位置・偏光方向などのパラメーターを掃引しながら、その関数として試料の蛍光強度の変化を測定する。次に、さきに掃引したパラメーターをある値で止めておいて、測定用の光よりも十分に強い光を一定時間照射し、光反応を起こさせる。その後、再び最初の測定と同じように照射光強度を弱くして蛍光強度を測定し、照射前後の変化分を求める。照射後は、強い光を照射した位置に狭い凹みができている。この凹みのことをホールと呼ぶ。後述するように、このホールの形状は、媒質内での光強度の相関関数の形状をそのまま反映したものとなる。

本研究では、2種類のパラメーターを変化させた場合のそれらの間の相関、および偏光特性を、詳しく調べた。まず、焦点距離 17 mm のレンズで集光した球面波を用い、試料上の位置の関数としてホールを測定した。その結果は、焦点の位置を試料表面からずらして試料表面でのビーム径を大きくした場合でも、ホールの幅は焦点の大きさで決まっており、ビーム径がある値に達するまでは、非常に狭い値を保っていた。これは、光がランダム媒質中で散乱を受けて光路を折り曲げられて長距離を走りながらもコヒーレンスを保っているためで、位置の関数としてのホールの幅を考える場合は、入射面上でのビーム径ではなく、媒質中での走行距離と同じ距離だけ自由空間を進んだとした場合のビーム全体の形状の間の相関が効いていることを示している。次に、入射角を少しずつ変え、入射位置の関数としてのホールの位置の変化を見た。その結果、図 1 に示すように、両者は独立ではなく、入射角の変化に応じてホール位置は変化した。入射角の関数としてのホールの幅は、入射面上でのビーム径が大きいほど狭くなることが知られている。一方、上記の結果のように、ビーム径を大きくしても位置の関数としてのホール幅が広がらないのなら、角度と位置で同時に高い分解能が得られるように思われるが、実際はこの結果のように両者の間に相関が生じるため、両方を同時に利用することはできない。

図 2 に、互いに直交する直線偏光で 2 つのホールをあけたのち、さまざまな偏光方向でそれらを測定した結果を示す。これから、試料内の光は、多重散乱によって無偏光状態になっているにもかかわらず、書きこみ光と  $90^\circ$  異なる偏光で検出するとホール深さはゼロとなり、直交する偏光は完全に区別されていることがわかる。この偏光選択性は、干渉パターンが偏光状態に依存して変化するためである。さらに、図 3 に示すように、直線偏光と同様に、右回り円偏光と左回り円偏光も区別され、直交する直線偏光の強度だけでなく、位相差も記録されていることがわかる。さらに、互いに直交する楕円偏光状態の間でも、同様の結果が得られた。

### 3. 考察

図 4 のように、強散乱媒質中で多重散乱され、さまざまな光路を経て来た光が出会って作る干渉を考える。これは、ランダムな位相を持つ多数の電場の重ね合わせであるので、レーザースペckルのように、明暗が空間的に分布したパターンとなる。強い単色光を照射し、それによる干渉パターンが、光化学反応によって吸収強度の空間的变化として

記録された場合を考える。干渉パターンは入射光の周波数、波面 (入射角)、入射位置、偏光によって異なるため、その状態を変数  $\alpha$  で表わす。まず、状態  $\alpha_0$  の強い光によって光反応を起こさせたとする。位置  $\mathbf{r}$  における光強度は  $I(\mathbf{r}, \alpha_0)$  と書く。光化学反応の進行が照射光量の指数関数で表わされるとすると、照射時間などに比例する係数を  $\phi$  とし、吸収強度は  $\exp(-\phi I(\mathbf{r}, \alpha_0))$  となる。次に  $\alpha$  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、 $I(\mathbf{r}, \alpha)$  があるので、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、試料全体で積分した値、 $\int I(\mathbf{r}, \alpha) \exp(-\phi I(\mathbf{r}, \alpha_0)) d\mathbf{r}$  になる。 $\phi I$  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 (ここでは試料全体での空間積分) を表わす。

互いに直交する直線偏光ではホールが観測されないということは、 $I(//)$  と  $I(\perp)$  を互いに直交する直線偏光の入射光によって作られた媒体内部の光強度とすると、

$$\langle (I(//) - \langle I(//) \rangle) \cdot (I(\perp) - \langle I(\perp) \rangle) \rangle = 0$$

であることを意味する。すなわち、 $I(//)$  と  $I(\perp)$  の分布は独立である。しかし、右回り円偏光と左回り円偏光でそれぞれあけたホールも、逆回りの円偏光では観測されないことを考慮すると、2つの結果は、電場強度の分布が独立

$$\langle E(//) E^*(\perp) \rangle = 0$$

とすると、説明できる。また、このように仮定すると、互いに直交する楕円偏光状態の間でも、直線偏光や円偏光の場合と同じ関係が成り立つという実験結果が理解できる。媒質に異方性がなくても偏光特性を示すことは興味深い、記録光が媒質に異方性を作り、それが読み出しの結果に反映されれば、納得できる。たとえば、単一の微小球による Mie 散乱を考えると、散乱光の強度分布は入射光の偏光に依存するため、多数回の散乱を繰り返すうちに、互いに直交する直線偏光によって作られた電場分布は、互いにランダムとなる。散乱回数が少ないうちは、電場分布は完全に独立な関係にはならず、散乱の弱い試料では偏光の選択性は不完全になると予想されるが、散乱の弱い試料で現在まで測定した範囲内では、その兆候は見えなかった。

図1に示される、入射位置の変化と入射角の変化の相関は、次のように解釈することもできる。試料面上での球面波の電場を  $\exp(ikx^2/2R)$  と書く。入射位置が  $d$  だけシフトすると、これは  $\exp(ik(x-d)^2/2R)$  に変化する。一方、入射角が  $\theta$  だけ変化したとすると、 $\exp(ikx^2/2R + ikx\theta)$  となる。両者を比べると、 $d/2R = \theta$  ならば同等の位相変化を与える。

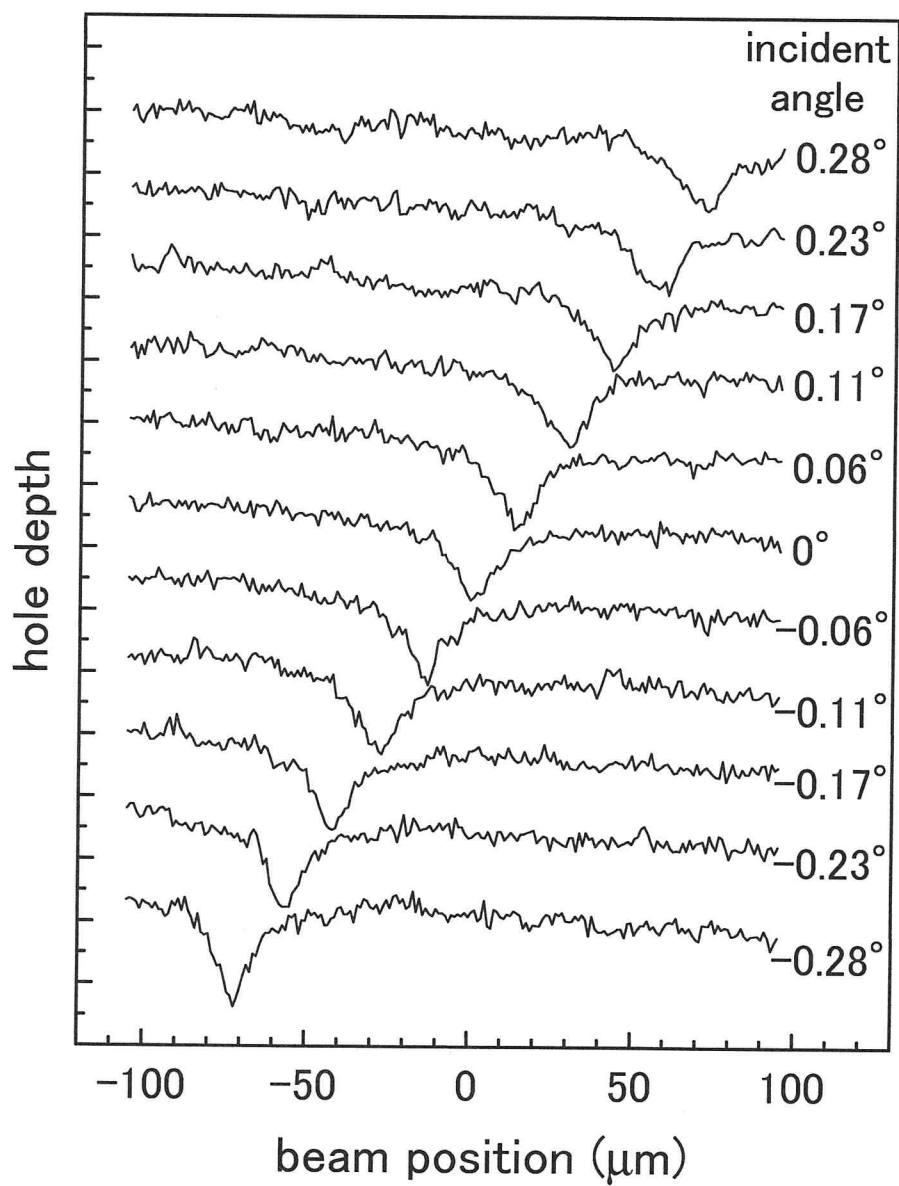


図 1: 入射位置の関数としてのホールと、入射角の関係。入射光はレンズで集光し、試料は焦点の位置からずれたところに置いてある。

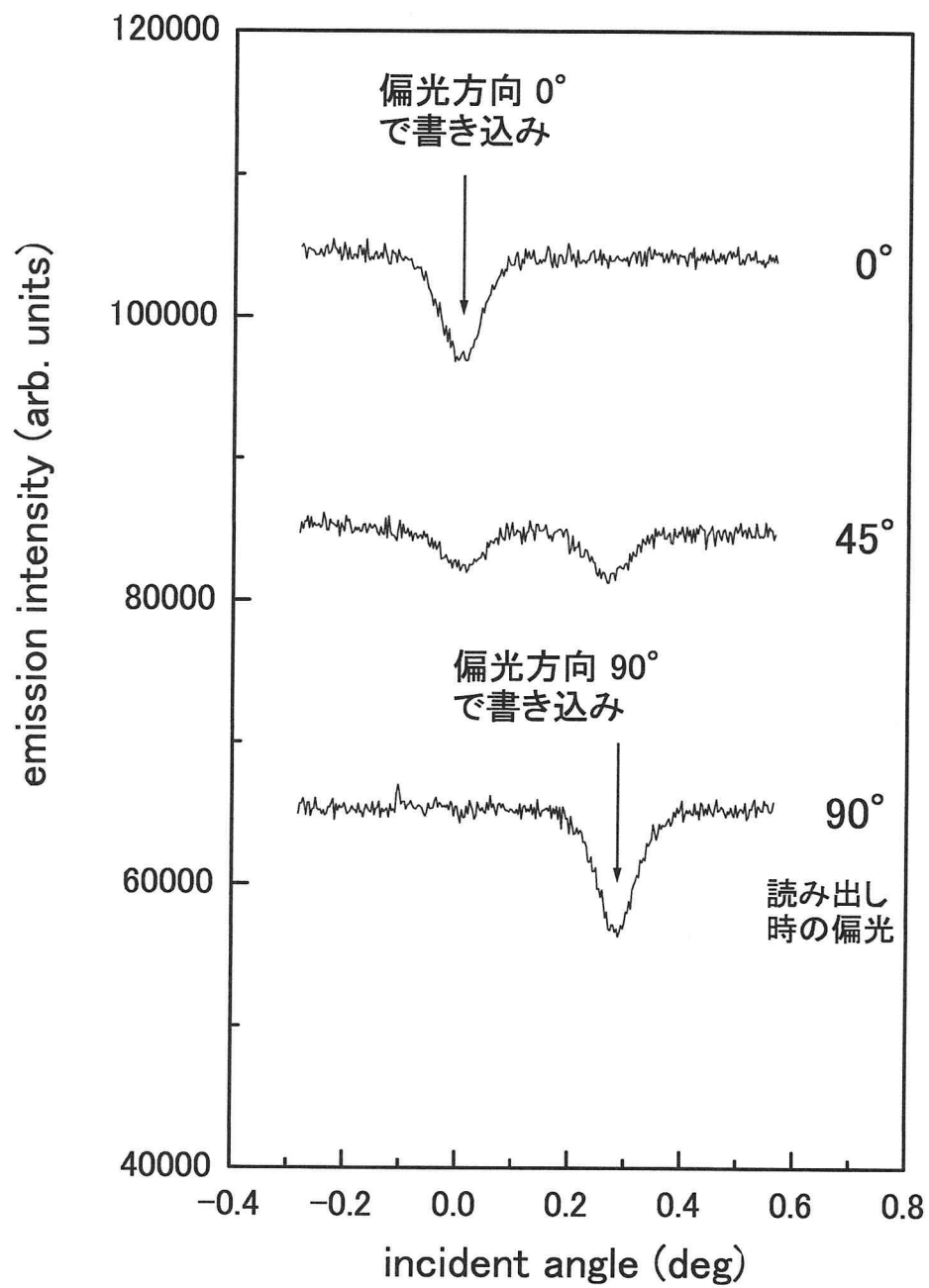


図 2: 互いに直交する直線偏光で、異なる入射角を用いてあけた 2 つのホールのスเปクトル (入射角を掃引して測定)。

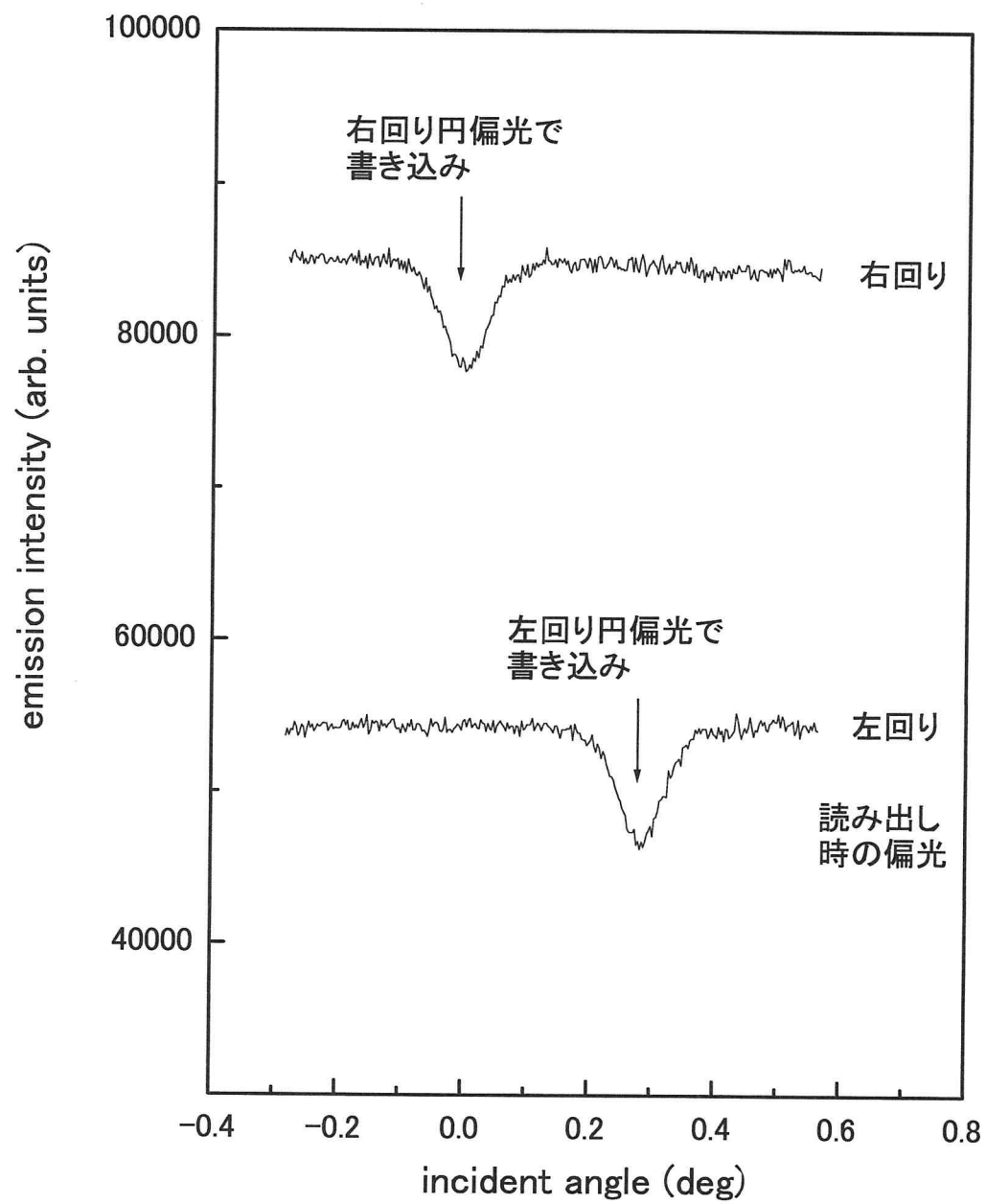


図 3: 2 つの円偏光であけたホールのスペクトル (入射角を掃引して測定)。

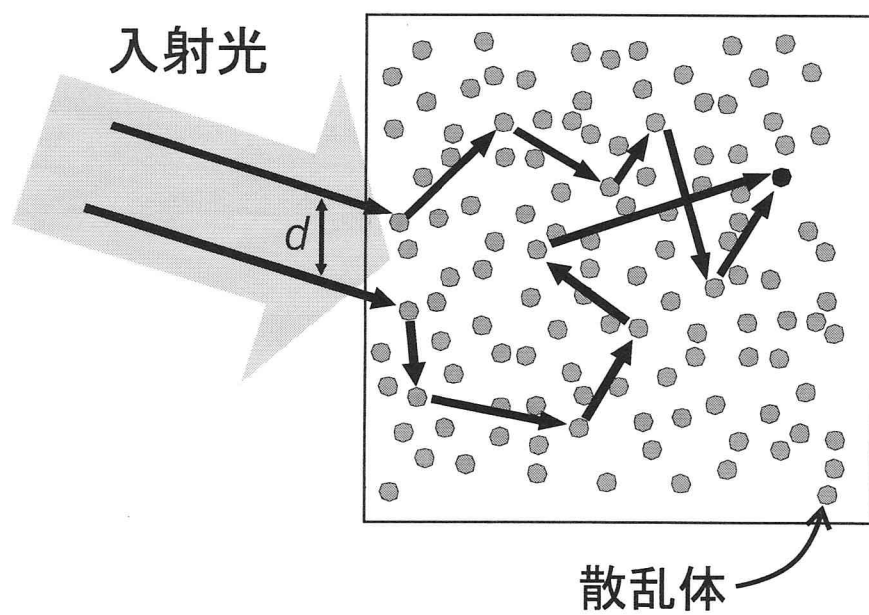


図 4: 多重散乱された光が干渉パターンを作る仕組み。入射光の中の部分波が異なる散乱経路を通り、黒丸の位置で出会っている。