

講 義

光と物質の相互作用—VI

散 乱

石 黒 浩 三

東京理科大学理工学部 〒278 野田市山崎 2641

(1988年2月26日受理)

Interaction of Light with Matter—VI

Scattering

Kozo ISHIGURO

Faculty of Science and Technology, Science University of Tokyo,
2641, Yamazaki, Noda 278

1. はじめに

均質な媒質の中では光波は直進するというのは、相対論的な空間のゆがみが無視できないような場合を除けば、常に成立する非常に信頼度の高い経験則である。ここで均質な媒質と呼んでいるのは、注目している媒質内任意の点で光波の波長程度の広がりをもった領域の中で、その中に含まれている粒子について、何らかの形で光波と相互作用のある物理的な性質すなわち、光学的性質に関する平均値（巨視的平均値）をとった場合常に一定の値がえられるということである。波長に比し十分小さい広がりについての平均値（微視的平均値）にはばらつきがあってもさしつかえない。

2種類の均質な媒質で平均値に差があるときには、それぞれの媒質内を伝播する波の等位相波面の伝播速度に差が生ずる。振動数不変の原理と組み合わせて見れば、波の波長が変化するといってもよい。この場合にはこの二種類の媒質の境界面では反射屈折が生ずる。均質な媒質の中にもう一つの媒質が障害物として存在している場合にもその付近では光の直進が乱される。ただし、その表面上光が入射しているところの一辺の長さが波長に比して十分に長い正方形を描くことのできるような広がりを持った障害物の場合には、そこで生ずる現象は境界面での反射屈折として扱うことができるが、波長程度の広がり以下の場合には特別な取扱いが必要になる。これが散乱である。このような障害物を散乱体と呼ぶこととす

る。散乱体の光学的性質の平均値は、巨視的平均値であっても微視的平均値であってもよいが、注目している媒質が均質とみなせるほど密に分布してはいけないう条件は必要である。ただし、この条件は後述する非弾性散乱の場合には必ずしも必要でなくなるが、それについては後でふれる。

このような散乱の定義には、円板やスリット、また散乱体が規則正しく並んだ平面格子、立体格子などで観測される回折現象もそのなかに含まれているが、通常は散乱というときには散乱体が不規則に分布している場合のみを扱っている。ただし、回折との区別はそれほど明確なものではない。

2. 散乱現象の分類

散乱現象を観測する場合に散乱体を照射する光は歴史的にはすべて自然光であった。精密な観測には単色光や偏光を使用したりするが、これらも定性的には自然光の範囲に分類される。しかし、強力なレーザー光源の出現によって、散乱現象に対する研究者の関心が一変したと言ってもよいくらいにさまざまな新しい散乱現象が注目されるようになった。すなわち、レーザー光による散乱現象は自然光による散乱とは異質の現象であると言っても過言ではない。もちろんさめた表現をするならば、自然光による散乱にも当然含まれている高次過程による現象が、レーザー光による散乱によって顕著に浮びあがり観測しやすくなったということであるが、単に近似が高

まって測定結果が精密になったというのではなく、高次項に特有な現象であるために従来気づかれなかった新しい現象が次々と発見されるようになった、というほうがむしろ適切のように思われるのである。

2.1 弾性散乱

散乱光のエネルギーの総量が入射光から失われたエネルギーの総量と同じで変化をしていない場合、すなわち入射光がエネルギーを散乱体と与えたりあるいは散乱体から貰ったりしない散乱が弾性散乱であって、散乱体が原子あるいは分子程度の大きさの場合をレイリー (Rayleigh) 散乱, 光の波長程度の広がりをもった異質の媒質として扱うことのできる場合をミー (Mie) 効果あるいはミーの散乱と呼んでいる。またミーの散乱が生ずる程度あるいはそれ以上の大きさの散乱体が一つの面上に互いに接する程度に密になっているときに観測される散乱が乱反射である。

このような見方をするとミーの散乱や乱反射は巨視的な通常の光学現象として扱うことのできる現象であるが、レイリー散乱は巨視的光学の適用される現象の世界と、媒質の微視的な光学的性質が直接反映される現象の世界との接点にある現象ということができる。すなわち原子、分子と光波の相互作用をスペクトルの観点からではなく、光の伝播方向の空間分布の観点に重点をおいた取扱いがレイリー散乱である。

2.1.1 レイリー散乱

本講義の I 「光と原子・分子」(今後(講義 I)として引用する)のところで振動する電気双極子 $p = ex = ex_0 \times \exp(-i\omega t)$ から放射される光が古典電磁気学的な扱いと量子論的な微視的取扱いの両サイドから扱われアインシュタインの A, B 係数が与えられている。そこでの結論をわれわれの問題に応用すれば、“散乱体はエネルギー $E_m, E_n (E_m > E_n)$ という二つの状態をとることができる(図 1)。たまたま E_m にあった場合には単位時間間に $m \rightarrow n$ の遷移をして $\hbar\omega_{mn} = E_m - E_n$ で与えられる振動数の光を放射する確率は A 係数で与えられる。この現象を自然放射 (spontaneous emission) といひ、放射された

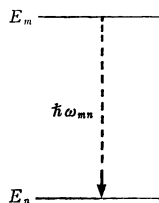


図 1 散乱体のエネルギー準位

光はいわゆる電気的双極子放射として空間に広がっていく。また散乱体がエネルギー密度 $\rho(\omega_{mn})$ の光の中にあるときは、アインシュタインの B 係数と ρ の積で与えられるような遷移確率をもった光放射も生ずる。これを誘導放射 (stimulated emission または induced emission) と称する”、と要約することができよう。また古典的電気的双極子 p は量子力学的には

$$p_{mn} = er_{mn}, \quad r_{mn} = \int \psi_m^* r \psi_n d\tau$$

で置き換えることのできる量であることも講義 I (51)式に記されている。この r は演算子であるが、双極子の正負の電荷間の距離そのものとして扱ってよい量である。 m, n 状態にある散乱体はそれぞれ ●, ○ また光波をジグザグ状の矢印で表示すれば上の遷移は図 2 で示される。レイリー散乱もこのような電気的双極子放射模型に対応する現象であると考えられているのであるが、 n 状態にある散乱体は、そのまま光波だけが散乱されるのであるから、図 2 ではなく図 3 のような過程のどれかであろう。通常は図 3 (a) であるとされているのであるが、その中間の励起状態にある時間が自然放射の寿命よりもはるかに短いならば図 3 (c) のように書くべきであるかもしれない。残念ながら筆者はその区別を本講 IV の

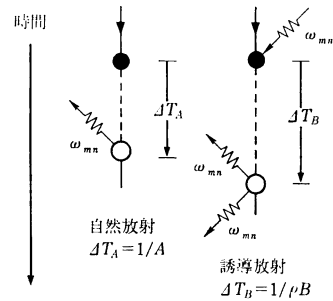


図 2 原子・分子からの光の放射

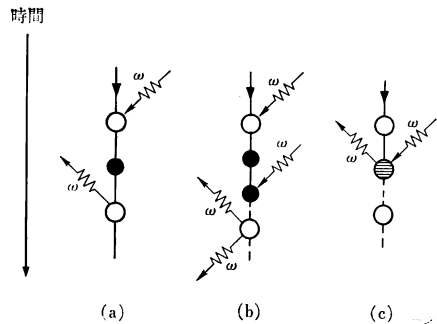


図 3 レイリー散乱 (a), (c) 自然散乱, (b) 誘導散乱

はじめに漠然と記した程度以上に立入って論ずるだけのしっかりした基礎をもっていない. 図 3 (b)は誘導レイリー散乱と呼ばれる現象である.

自然光を利用して通常の二光線の干渉実験を行なうと光学的距離の差 Δl が大きくなると干渉縞はしだいに見にくくなる. 縞の観測できる限界は $\Delta l \leq 30 \sim 100 \text{ cm}$ 程度である. すなわちこの程度の長さの光波の位相は規則的な変化をしているとみなすことができる. 干渉現象を観測することのできるような光, すなわち位相が規則的な変化を保っている光をコヒーレント光と称する.

励起状態にある一つの電気的雙極子からの自然放射光はコヒーレントであるが, 異なった雙極子からの放射光はこれとコヒーレントではないと考えるならば, 励起された発光粒子の平均寿命は $\Delta t \approx \Delta l/c = 10^{-9} \text{ s}$ (ただし $c \approx 3 \times 10^8 \text{ m/s}$), したがってアインシュタインの A 係数 $= 1/\Delta t \approx 10^9 \text{ s}^{-1}$ と見積もることができる.

通常の光源の ρ はあまり大きくないから一般には $B\rho < A$ で, 通常のレイリー散乱には誘導レイリー散乱の影響は小さいと予想される. しかし $\omega \approx \omega_{mn}$ の場合には後に述べるような理由で散乱光は非常に強くなる. これを共鳴散乱と称する. また, レーザー光の場合には $B\rho > A$ となりうるので図 3 (b)のような過程が主役として登場するようになってくる.

散乱体が気体分子であると, その粒子密度 ρ_N は

$$p = \rho_N k T$$

ただし, p =圧力, T =温度

で見積もることができる.

$$p = 1 \text{ 気圧} = 1 \times 10^5 \text{ N/m}^2,$$

$$k = \text{ボルツマン定数} = 1.4 \times 10^{-23} \text{ Nm/K}$$

とすれば,

$$\rho_N = 0.25 \times 10^{30} \text{ m}^{-3}$$

$$\rho_N^{-1/3} = 1.6 \times 10^{-1} \text{ nm}$$

となり, 粒子間の距離は光の波長に比し十分に小さいから, この媒質は均質な媒質とみなすことができ光の散乱は生じない. しかし分子の熱運動のために密度の時間的なゆらぎ $\Delta \rho_N$ があるから, $\Delta \rho_N$ が 0 でない領域が散乱体として作用する.

$\Delta \rho_N$ の 2 乗平均値の平方根 $\langle (\Delta \rho_N)^2 \rangle^{1/2}$ は ρ_N に比例することが気体分子運動論の計算から知られているから, 結局レイリー散乱は気体の粒子密度に比例するのである. これがわれわれに身近な現象として親しいレイリー散乱の正体である. 注目している媒質が液体の場合にも同様な現象が生ずるが, これは通常レイリー散乱とは呼ばず, チンダル現象と呼んでいる. 液体の粒子密度は気体に比し 10^3 程度以上の大きさをもっているが, 散乱光の強さは気体に比し数十倍の程度に止まっているのが通常である. すなわち液体の密度のゆらぎは気体の場合よりも 2 桁くらい小さいと考えられるのである.

2.1.2 Mie 効果 (ミーの散乱)

散乱体を半径 a の球で近似したとき, $a \ll \lambda$ の近似が成立しなくなると, 電気的雙極子とみなすことができなくなり, 球状の境界面における電磁界の境界条件を満足

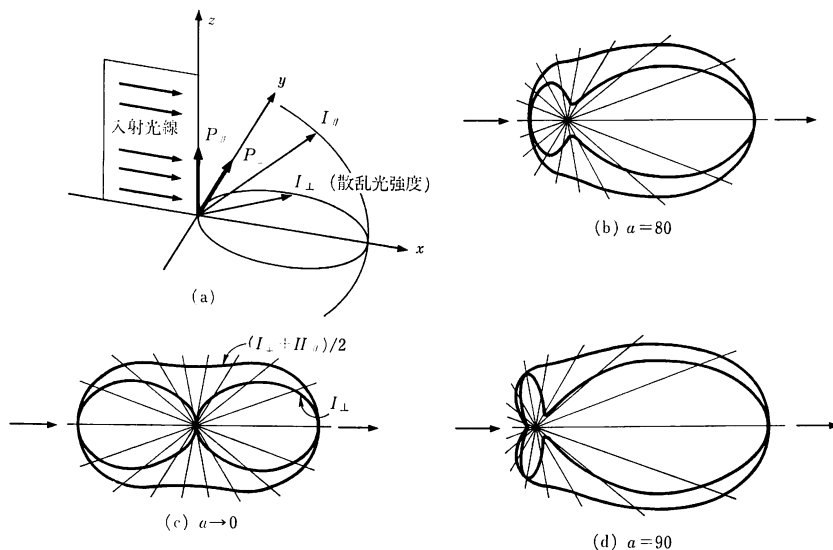


図 4 金粒子によるミーの散乱
 a =金粒子の半径 (nm), 光の波長=550 nm

するような電磁界方程式の解として計算をしたほうが計算しやすくなる。これが昔からよく知られている Mie の理論である。多くのテキストに常に引用される、原点におかれた金粒子に自然光が入射した場合の散乱光の強さの空間分布図をここにのせておく(図4(b)~(d))。波長 $\lambda=550\text{ nm}$ 、複素数屈折率 $=0.57+i2.45$ 、半径 a = 数百 nm の場合の計算値である。ただし、図4(a)において、 x 軸方向に進む光線と z 軸のつくる面に垂直な方向すなわち y 軸方向に電気ベクトルが振動する偏光成分には添字 \perp 、また z 軸方向の偏光成分には添字 \parallel をつけて、図4(b)には xy 平面内の方向での散乱光の強さの分布が I_{\perp} と $(I_{\perp}+I_{\parallel})/2$ について示されている⁶⁾。

2.1.3 乱反射とスペckル

(1) 乱反射

とくに断らないで単に反射といえば、通常はなめらかな境界面での反射のことであるが、乱反射との区別をはっきりさせる必要がある場合には正反射と呼ばれる。乱反射面の中には正反射と乱反射が共存しているような面がある(図5)。すなわち“つや”のある面である。このように乱反射という用語はその用法が必ずしも明確でない場合もあるので、正反射と明確に区別する測光学の用語としては拡散反射という用語が使用される⁴⁾。

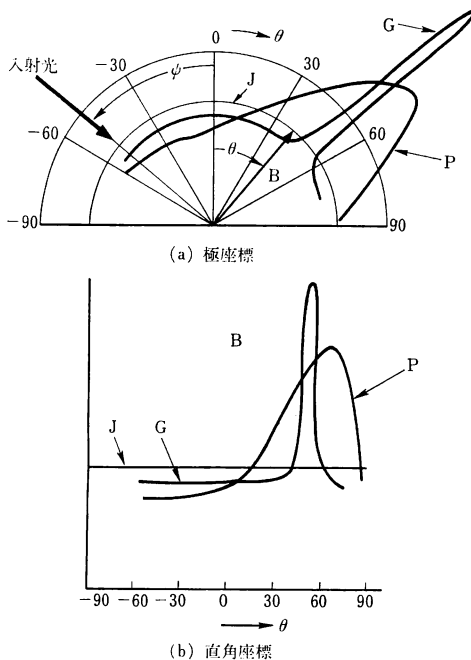


図5 拡散反射面よりの反射光輝度の角度分布⁵⁾
J: 完全拡散面, G: つやのある面, P: つやのない面

(2) スペckル

紙面に垂直な正反射面に平行光線が入射し、ABの幅の部分を一様に照射したとする(図6)。その反射光は正反射面と平行な観測面上A'B'の部分を一様な明るさで照射する。前回のホイヘンス・フレネル・キルヒホフ(H.F.K.)の回折論をもとにすれば、これはAB面上の各点から出発した二次波が重なり合ったものであるから、たとえば Q_1 点に小さな穴をあければそこからの反射光はなくなりその影響がA'B'にあらわれる。これは、穴の後方から入射光と鏡像の関係にありしかも位相が π だけシフトしている光が入射したときの、この穴による回折光を穴のない場合のA'B'面上の照射光に重ね合わせた場合の効果と同じである。このような重ね合わせの原理を利用した考察法を、通常バビネの原理と呼んでいる。 Q_1 のそばにもう一つ同様な穴 Q_2 をあければA'B'面上には複孔の回折縞が観測される。このような考察をさらに一般化すれば、AB面上に正反射条件の成立しないような散乱体がランダムに存在する場合には、A'B'面上には複雑な干渉模様を観測されることが理解されよう。このような起源で観測面上に出現する予期しない不規則な模様をスペckルと称する。この場合光路内のどの辺に散乱体があるかは定性的な考察にはそれほど本質的なことではないから、平行光線がA'B'面に入射するまでの途中にある散乱体はすべてA'B'面上にあらわれるスペckルに影響を与えるのである。

スペckルは1877年頃すでに報告されている現象だそうであるが⁴⁾、通常はたとえば寒い夜に電車の曇っている窓を通して遠くの街灯などの見たときにそのまわりに認められる回折あるいは虹現象として解釈できるような自然現象のほかにはそれほど一般的な注意をひく現象ではなかった。しかし、その本質は回折、干渉現象であるから、レーザー光のように優れたコヒーレント光の出現とともにスペckルとは好むと好まざるとにかかわらず

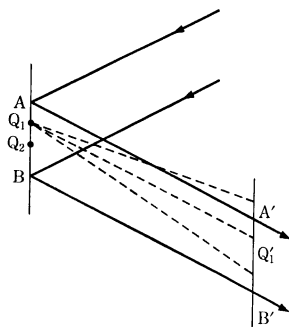


図6 スペckルパターンの発生

つきあわざるをえなくなった。その結果、現在では光学情報論の立場から興味のある散乱現象として活発に研究されるようになった。

2.2 非弾性散乱¹⁻³⁾

2.2.1 音波回折格子とブリュアン (Brillouin) 散乱

溶融石英板に水晶発振器から平面音波を送りこんでやると石英板の中の粒子密度に濃淡が生ずる。平均の粒子密度を N_0 とすれば

$$N(x, t) = N_0 \{1 + \cos(\kappa_A x - \omega_A t)\} \quad (1)$$

ただし、 λ_A = 音波の波長、 $\kappa_A = 2\pi/\lambda_A$ 、 ν_A = 音波の振動数、 $\omega_A = 2\pi\nu_A$ とおくことができる。これに対応して石英板誘電率も通常の値 ϵ から ϵ_B に変化し

$$\epsilon_B = \epsilon + \epsilon_1 \cos(\kappa_A x - \omega_A t)$$

となるとみなしてよい。 ϵ_1/ϵ の比は通常 10^{-4} 以下程度の小さな値であるが、それでも散乱現象を生ずるのには十分である。

石英板内にたとえば、振動数 $\nu_A = 5.5$ GHz の平面音波を送りこんだ場合に音速を $v_A = 6 \times 10^3$ m/s とすれば、波長は $\lambda_A = 1.1$ μ m 程度ではほぼ近赤外線光の波長と同程度となる。しかもその伝播速度は光に比しはるかに遅いから、このような音波を送りこまれている石英板は光に対して定常状態にある回折格子の作用を示すことが予想される。このようなことは Brillouin によって 1921 年に報告されたのが最初なので、格子振動までも含めて広い意味での音波との相互作用による光散乱現象を今日では一般にブリュアン散乱とよんでいる。

現象論的な取扱いとしては、例によりマックスウェルの電磁界の式

$$\begin{aligned} \text{curl } \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \text{curl } \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \\ \text{div } \mathbf{D} &= 0, \quad \mathbf{D} = \epsilon_B \mathbf{E}, \quad \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} \end{aligned} \quad (2)$$

から出発して、 ϵ_B が場所の関数であることを考慮しながら \mathbf{B} , \mathbf{H} を消去して、 \mathbf{E} の満足する微分方程式をつくり解けばよい。

$$\begin{aligned} \frac{\mu_0 \partial^2 (\epsilon_B \mathbf{E})}{\partial t^2} &= -\text{curl } \text{curl } \mathbf{E} \\ &= \nabla^2 \mathbf{E} - \text{grad } \text{div } \mathbf{E} \quad (3) \\ \text{div } \mathbf{D} &= \epsilon_B \text{div } \mathbf{E} + \mathbf{E} \text{ grad } \epsilon_B = 0 \end{aligned}$$

を考慮して変形をすれば

$$\frac{\mu_0 \partial^2 (\epsilon_B \mathbf{E})}{\partial t^2} = \nabla^2 \mathbf{E} + \text{grad}(\mathbf{E} \text{ grad } \log \epsilon_B) \quad (4)$$

となる。これが均質でない誘電率をもつ媒質内での光伝播を扱う場合の基礎となる式である。右辺第 2 項が無視できる場合に石英板の ϵ_B を代入して変形すれば

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{E}_x}{\partial y^2} = \frac{\mu_0 \partial^2 (\epsilon_B \mathbf{E}_x)}{\partial t^2} \quad (5)$$

と書くことができる。 ϵ_B が時間の関数のときのこの式の解法は、たとえば Born・Wolf などを参照していただきたい。

光の散乱というのは見方を変えれば $\hbar\omega$ というエネルギーをもった光子が消滅して $\hbar\omega_s$ という散乱光子が生成される現象であり、 $\hbar\omega = \hbar\omega_s$ の場合がレイリー散乱であり、 $\hbar\omega \neq \hbar\omega_s$ の場合がブリュアン散乱であり、またこの後に扱うラマン散乱である。音波に直角に光波が入射する場合に光子がフォノン 1 個吸収しており、光子の進行方向が θ だけ曲げられたとすればエネルギー保存則より

$$\hbar\omega_s = \hbar(\omega + \Delta\omega), \quad \Delta\omega = 2\pi\nu_A \quad (6)$$

また運動量保存則より図 7 を参照して

$$p_A/p_s = 2 \sin(\theta/2) \quad (7)$$

しかるに、

$$\begin{aligned} p_s &= h/\lambda_s, \quad p_A = h/\lambda_A, \\ p_A/p_s &= \lambda_s/\lambda_A = (c/n\nu)/(v_A/\nu_A), \\ \Delta\nu &= \nu_A, \quad n = \text{屈折率} \end{aligned}$$

等の関係があるから

$$\Delta\nu = (2n\nu_A/c) \sin(\theta/2) \quad (8)$$

により散乱角と振動数の変化との間の関係がえられる。

2.2.2 Raman 散乱 (Raman 効果)

散乱体が分子とみなされる媒質に光が入射したとする。分子内で光との相互作用に直接関係のあるエネルギー単位は電子状態単位 E_e 、振動単位 E_v 、回転単位 E_r から構成されており、分子によって放射あるいは吸収される光の振動数を ν とするとき、 E_e 、 E_v 、 E_r の変化に対応する振動数成分をそれぞれ ν_e 、 ν_v 、 ν_r とすれば $\nu = \nu_e + \nu_v + \nu_r$ と書くことができる。通常は $\nu = \nu_r$ の回転スペクトルは遠赤外、 $\nu = \nu_v + \nu_r$ の振動スペクトルは近赤外、 ν_e すなわち電子状態の変化を含むスペクトルは可視から紫外にある。このような分子が E'' 状態にあるとき、 $E' = E'' + h\nu$ に励起する光が入射して散乱光の

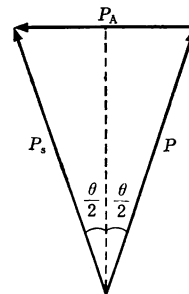


図 7 光子 (p) とフォノン (p_A) の衝突

振動数が $\nu' = \nu_e' + \nu_v' + \nu_r'$ となったとする. 散乱後の分子のエネルギー準位を E_s'' とすれば $E_s'' = E' - h\nu'$ であるが, 通常は $\nu_e' = \nu_e$ である. したがって

$$E_s'' = E'' + (\nu_v' - \nu_v) + (\nu_r' - \nu_r) \neq E''$$

となる. このように図8のような分子の振動, 回転準位の変化に対応して入射光とわずかに波長の異なった光が散乱されるのが Raman 散乱であって, 散乱光は入射光に対してインコヒーレントである. 入射光に比して長波長側にずれているラマン線を Stokes 線, 短波長側にずれている線を反 Stokes 線と称する. 2原子分子で回転準位のみに変化が観測される場合も多い. この場合には

$$\begin{aligned} \nu' &= \nu + \Delta\nu_r \\ \Delta\nu_r &= \nu_r' - \nu_r = F'(J') - F''(J'') \end{aligned} \quad (9)$$

ただし, $F'(J')$, $F''(J'')$ はそれぞれ上下準位の回転状態と書ける. とくに

$J' = J'' + 1$ の場合のスペクトル線の集合を R 分枝
 $J' = J''$ の場合のスペクトル線の集合を Q 分枝
 $J' = J'' - 1$ の場合のスペクトル線の集合を P 分枝と称し,

$$R \text{ 分枝: } \nu' = \nu + F'(J'' + 1) - F''(J'') = R(J'')$$

$$Q \text{ 分枝: } \nu' = \nu + F'(J'') - F''(J'') = Q(J'')$$

$$P \text{ 分枝: } \nu' = \nu + F'(J'' - 1) - F''(J'') = P(J'')$$

と略記される⁵⁾. 遷移規則の詳細には立ち入らない.

3. 散 乱 体

光の散乱は入射光と散乱体の相互作用により生ずると

し, 散乱体の例として媒質の密度のゆらぎや分子そのものを取りあげたが, 今日ではこのほかに, フォノン, マグノン, プラズモン, ポーラロン, エキシトン, ソリトン, ポラリトン等さまざまないわゆる擬粒子といわれる「粒子」が散乱体として登場してくる. このなかのあるものはボソンまた他のものはフェルミオンとしての属性をもっている. 光を扱う場合に個々の粒子の特性の研究はもちろん大切なことではあるが, 少し不謹慎な表現をお許しいただければさまざまなウイルスとともに新しい病気が発見されているようなもので, ウイルス病の場合に各論的な個々のウイルスの研究はさておいてとにかくウイルス全体に対する免疫体質をつくって, まず研究者としての生命を失わない抵抗力をつける努力が必要ないように, われわれもさまざまな散乱体全体に対してビックリしないで食いつける抵抗力のある体質をつくる努力も必要な, 考え方によってはたいへんに張りあいのある時代がきていると現状分析をすることができる.

3.1 擬粒子と場の量子化

古典物理学的な観点から量子論的な観点に移るときにはまず, 粒子のエネルギー状態を記述するハミルトニアン ($H = (p^2 + \omega^2 q^2)/2$) にあらわれる粒子像に対する位置, 運動量に対応する変数 q, p を波動関数に作用する演算子として扱い, 波動場で現象を考察する. また逆に元来が波動場として扱われる現象も適当な処理によって場のエネルギーを粒子の q, p に対応するような変数によるハミルトニアン表示とし, この q, p を改めて演算子と

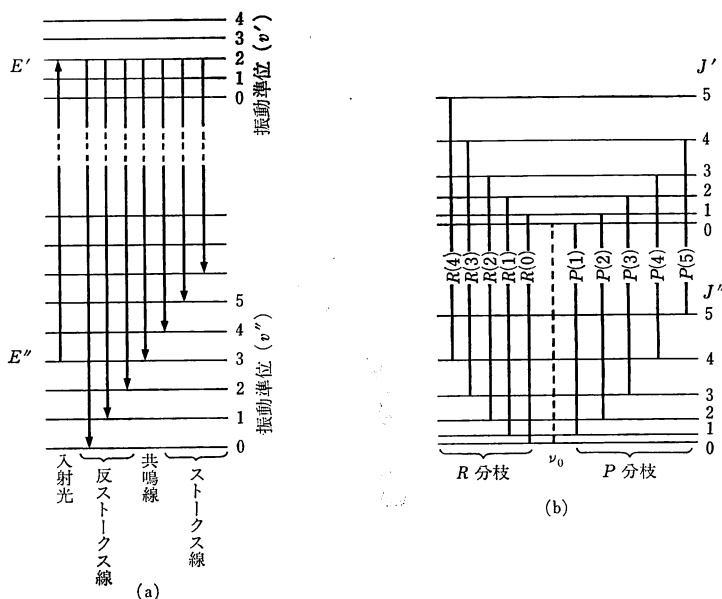


図8 分子の振動準位と電子状態準位との関係(a)および回転準位との関係(b)

みなして量子化する手法がとられる。古くは第2量子化、現在では場の量子化といわれる方法であって、場の概念に伴って運動量 p 、時間とともに変化する位置変数 q で記述されるような粒子像が姿を見せる。これが擬粒子であって、たとえば電磁界における波動現象すなわち光に対応する擬粒子像が光子、振動する格子振動の場に対応する擬粒子像がフォノン、連続媒質とみなした電子ガス内に生ずるプラズマ振動の場に対応する擬粒子像がプラズモン、スピン場に生ずるスピン波に対応する擬粒子像がマグノン等である。また分散性媒質内ではさまざまな位相速度をもつ波の合成によって群速度で伝播するパルス波あるいは孤立波が発生するのに対応して孤立擬粒子像も観測される。ソリトン等がその例である。そしてこれらさまざまな擬粒子と光波との何らかの相互作用によって散乱現象が生ずる。逆に言えばその散乱現象を観測することによって、それぞれの擬粒子の本性を解明する手掛りがえられる。申しわけないが筆者にはとてもつきあいきれない。ここではどのような場合にも必ず問題となる衝突断面積に関する基礎的な考察にふれておくことでお許しをいただくことにしたい。

3.2 衝突断面積

遊園地等でボールを投げて鬼の面の額の中央の丸印の所にうまく命中すると鬼がうなるゲームがある。鬼の面の全面積を S としたとき投げたボールのうち平均 N 個が面にあたり、そのなかの1個が丸印にあたったとする。統計的には1個のボールを投げたときに鬼のうなる確率は $1/N$ で、この現象が生ずるのに有効な鬼の面上の面積は $\sigma = S/N$ で見積もることができる。この σ のことを鬼のうなる現象に対するボールの衝突断面積と称する。面積 S の太きをもつ強さ I の平行光線に照射されている面の上に1個の散乱体が含まれているとき、確率的には τ 時間ごとに必ず光子が1個散乱されるのが観測されたとする。 τ 時間内に照射面に入射する光子数を N とすれば、散乱現象の衝突断面積は $\sigma = S/N$ で与えられる。しかるに、光子のエネルギーを $\hbar\omega$ とすれば $\hbar\omega N = IS\tau$ であるから

$$\sigma = \hbar\omega/I\tau \quad (10)$$

さらに、単位体積当たりの光波のエネルギー密度を ρ 、光速度を c とすれば $I = \rho c$ 、また N は体積 $V = S c \tau$ 内の光子数であるから、

$$\begin{aligned} \rho &= \hbar\omega N/V \\ \sigma &= (V/N)/c\tau \end{aligned} \quad (11)$$

とも書ける。

3.3 電気的雙極子の放射寿命と電気感受率

分子を固有角振動数 ω_0 をもつ電気的雙極子 $p(t) = ex(t)$ で近似できる場合を考える。この雙極子が

$$E = E_0 \exp(-i\omega t)$$

という電界の中で強制振動をしているときに電界からされる仕事の仕事率は $w = ex\dot{E} = \dot{p}E$ であるが、この媒質の分極を P 、電気感受率を χ とすれば

$$\begin{aligned} p(t) &= (V/N)P, \quad P = \epsilon_0(\chi' + i\chi'')E(t) \\ \dot{p}(t) &= -i\omega p(t) \end{aligned}$$

であるから、 ω が0でなく実際に吸収に寄与するためには \dot{p} と E の位相がそろっていることが必要である。これに該当するのは p の中で χ'' に比例する項であるから

$$w = \hbar\omega/\tau = \omega(V/N)\epsilon_0\chi''\langle E^2(t) \rangle \quad (12)$$

また $\langle E^2(t) \rangle = E_0^2/2$ とおいて

$$\begin{aligned} 1/\tau &= (V/N)\epsilon_0\chi'' E_0^2/2\hbar \\ \sigma &= \epsilon_0\chi'' E_0^2/2c\hbar \end{aligned} \quad (13)$$

がえられる。分極 P を電界に関して高次項までも含めて書けば

$$P = \epsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(3)}E^3 + \chi^{(5)}E^5 + \dots) \quad (14)$$

で与えられる。通常は $\chi^{(1)}E$ のみが観測にかかり、 $\chi^{(1)}$ は線形電気感受率と呼ばれている。上の χ'' はこの $\chi^{(1)}$ の虚数部である。分散式は

$$\begin{aligned} \chi' &= \frac{\omega_0^2 F(\omega_0^2 - \omega)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} \\ \chi'' &= \frac{\omega_0^2 F \omega \Gamma}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} \end{aligned} \quad (15)$$

ただし

$$F = f(\omega_0) N e^2 / \epsilon_0 m V \omega_0^2$$

$$\Gamma = e^2 \omega_0^2 / 6\pi \epsilon_0 m c^3$$

= 振動電子の速度に比例する減衰項の係数

V = 注目している媒質の体積

ω = 入射光の角振動数

ω_0 = 雙極子の固有角振動数

$f(\omega_0) = \omega_0$ の固有角振動数に対する振動子強度

等と書くことができることは、多少記号は異なるが講義 I 第7章を参照していただきたい。

$\omega \approx \omega_0$ の場合には

$$\begin{aligned} \chi'' &= \frac{\omega_0^2 F \omega \Gamma}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} \\ &\approx \frac{(N/V) f e^2}{\epsilon_0 m} \frac{\Gamma/4\omega_0}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\Gamma/2)^2} \end{aligned} \quad (16)$$

ここで振動子強度に対して

$$f_{mi}(e^2/m) = 2(\omega_0/\hbar) \langle \phi_m | ex | \phi_i \rangle^2 \quad (17)$$

のような置換えを設定することによって、巨視的な電気感受率に対して量子論的な微視的な解釈を対応させるこ

とができる。このような τ は光の場によって散乱体が励起されるのに要する時間であるが、いま注目している f_{mi} により吸収された光は必ず散乱光になるとすれば、散乱はこの τ によって支配されているといえる。このような τ を放射寿命 (radiative life time) とよんでいる。

3.4 非線形散乱

媒質の特性が外部電界 E の n 乗に比例して変化をする非線形効果に注目する場合、 n が偶数、奇数のときにどのような効果が生ずるかは媒質の対称性によって一様ではない。たとえば電氣的カー効果の場合などを考えてみればよい。非線形光散乱効果は n が奇数でないとき通常は観測されないことも対称性の考察から理解されよう。高次項の効果はたいへんに複雑であるが、最近では強力なレーザー光の出現によってさまざまな非線形現象が観測されているので、ここでは3次効果について簡単にふれておく。

E^3 の成分としては三つの異なった振動数の波が関与することが可能である。すなわち、

$$E(t) = E_1 \{ \exp(-i\omega_1 t) + \exp(i\omega_1 t) \} \\ + E_2 \{ \exp(-i\omega_2 t) + \exp(i\omega_2 t) \} \\ + E_3 \{ \exp(-i\omega_3 t) + \exp(i\omega_3 t) \} \quad (18)$$

と書ける。このような三つの異なった振動数の波を重ね合わせて3次の非線形項をもつ媒質の中に送りこむと、光波の混合 (mixing) が生じて光子に対するエネルギー保存則と運動量保存則を満足するような第4番目の光子が発生する。これがパラメトリック4光波混合と呼ばれる現象である。角振動数、運動量をそれぞれ ω_j , k_j ($j = 1, 2, 3, 4$) とおけば

$$\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3 \quad (19)$$

と書かれるエネルギー保存則および一般に位相整合 (phase matching) と称される運動量保存則

$$\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 \quad (20)$$

が満足されることが要求される。特別な場合として $\omega_1 = \omega_2$ または $\omega_2 = \omega_3$ または $\omega_1 = \omega_3$ のような条件の波の重ね合わせであっても、位相整合条件が成立すれば4光波混合現象は生ずるから、 ω_4 として考えられる組合せには

$\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	$\omega_1 + \omega_2 - \omega_3$	
$\omega_1 - \omega_2 + \omega_3$	$-\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	
$2\omega_1 + \omega_2$	$2\omega_1 + \omega_3$	$3\omega_1$
$2\omega_2 + \omega_1$	$2\omega_2 + \omega_3$	$3\omega_2$
$2\omega_3 + \omega_1$	$2\omega_3 + \omega_2$	$3\omega_3$
$2\omega_1 - \omega_2$	$2\omega_1 - \omega_3$	ω_1
$2\omega_2 - \omega_1$	$2\omega_2 - \omega_3$	ω_2

$$2\omega_3 - \omega_1 \quad 2\omega_3 - \omega_2 \quad \omega_3 \quad (21)$$

という22通りの値がありうる。

このような組合せのなかでも、たとえば $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$ のような場合はすべての光が同じ振動数領域にくりよりに構成できるので、とくにたとえば光ファイバーを利用する光通信の場合などに、ファイバー内の光波の密度が高いことに伴い非線形散乱現象が生じやすいこともあって漏話の原因にもなるので、注目されるようになってきた。 ω_P と ω_3 ($\omega_P \approx \omega_3$ とする) という2光線の場合 ω_P をポンピング光とみなせば $\omega_1 = \omega_2 = \omega_P$ において $2\omega_P = \omega_3 + \omega_4$ を満足するような ω_4 が、位相整合条件 $2\mathbf{k}_P + \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 = 0$ のもとに発生する。ここではファイバー内で見られる代表的な非線形散乱現象としてとくに誘導ブリュアン散乱と誘導ラマン散乱をあげておく。

上に散乱の例として、超音波による音波回折格子をつくるのに超音波発振器を使う例をあげたが、入射光の強さがある程度以上になると、入射光自身によって音波が励起され、この音波により入射光と反対方向に散乱される Stokes 波が生ずる。これが誘導ブリュアン散乱である。条件によってはファイバー内を逆進してファイバーの入射面や光源のデバイスを破損させる場合もあるくらいに強くなることが報告されている。誘導ラマン散乱は入射光により励起された分子から自然放射過程によるのではなく、誘導放射過程によってコヒーレントなラマン光が放射される現象である。その過程は誘導ブリュアン散乱と同様な取扱いで考えることができるが、その効率は誘導ブリュアン散乱より2~3桁小さい。しかし、比較的低い入射光強度で発生し散乱光の周波数幅も広いので漏話現象に対しては無視できない現象である。

4. 終りに

いささか龍頭蛇尾になってしまったが与えられた紙数をすでに越えた。筆者の歩みよりもはるかに早い光研究の進歩を喜びながら、足元の明るいうちに次号にパトタッチするのを許していただきたい。

文 献

- 1) R. London: *The Quantum Theory of Light* (Oxford Univ. Press., 1973).
- 2) D. Cotter: *Opt. Quantum Electr.*, **19** (1987) 1-17.
- 3) 岩波理化学辞典, 第4版 (1987).
- 4) 蓮沼 宏: 光沢 (コロナ社, 東京, 1960).
- 5) G. Herzberg: *Molecular Spectra & Molecular Structure* (Nostrand Press, Toronto/New York/London, 1950).
- 6) G. Mie: *Ann. Phys.* (4), **25** (1908) 429.