

ランダム媒質による光多重散乱とスペクトル変化

白井智宏

光散乱現象に関する理論的研究には長い歴史がある¹⁾。特に、散乱光のスペクトルが変化する現象については、各種分光計測の基本原則として広く研究されているため、一見するとそれらの理論から未知の現象が出現する余地はないと思われるかもしれない。しかし最近になって、ランダム媒質からの光散乱現象においては、これまでには認識されていない新しいメカニズムによっても散乱された光波のスペクトルが偏移し得ることが明らかとなり、新しい可能性を拓く現象の発見として注目を集めている²⁾。

一方、ランダム媒質からの光散乱現象は、大気・海洋や材料表面、そして生体組織等を対象とする広範な計測分野の基礎となるため、現在でもなお精力的な研究が続けられている³⁾。特に、これらの分野では、実際問題として避けることのできないランダム媒質中での光多重散乱現象の解明が重要な研究課題のひとつとなっている。ここで、ランダム媒質により多重散乱された光波の挙動を厳密に評価するためには、一般に計算機を利用した膨大な数値計算が必要となる。しかし、現象に対する直感的な洞察や理解を得るためには、指定したパラメータに対する数値解しか得られない計算機による解析よりも、ある程度の近似を導入しても解析的な表現式を導出するほうが有効であることが多い。そこで、一連の研究では、適当な解析モデルと近似手法を導入することによって、ランダム媒質によって多重散乱された光波の挙動が解析的に評価できることを明らかにし、さらにそれに基づき、この新しいメカニズムによる散乱光スペクトルの変化現象を理論的に研究した⁴⁻⁸⁾。

以下では、まず光散乱に伴うこの新しいスペクトル変化現象について、研究の背景および現象の物理を明らかにし、次にランダム媒質による光多重散乱およびそれに伴うスペクトル変化現象について、それを解析的表現式に基づき解明する最近の研究を概説する。また、最新の話題として、関連する研究の新しい展開をいくつか紹介する。

1. 研究の背景

一般に、光源からの放射現象と媒質による光散乱現象には密接な関係がある⁹⁾。特に、空間的ランダム媒質からの光散乱現象は、単一散乱現象のみが重要となる条件下（後述の第 1 次 Born 近似）では、部分的コヒーレント光源からの放射・伝搬現象を記述する光のコヒーレンス理論に基づいて理論的に解析される¹⁰⁾。その結果、コヒーレンス理論によって記述される部分的コヒーレント光に関係する現象が、ランダム媒質からの光散乱においてもその類似現象として出現することが予測される。

実際、本稿で議論する現象は、コヒーレンス理論における最近の発見である Wolf 効果に対応する現象として位置づけることができる。ここで Wolf 効果とは、光源から放射された光波のスペクトルが、光源のスペクトルばかりではなく、その空間的コヒーレンスに起因して変化する現象である¹¹⁻¹³⁾。光計測の分野では、光源のスペクトルが時間的に変化しない限り自由空間を伝搬する光波のスペクトルは変化しないことを前提条件としているが、この現象はその認識を覆す重要な発見として多くの研究者の注目を集めている。したがって、これに対応する光散乱に伴う現象とは、媒質の誘電分極率の空間的相関に起因して、散乱光のスペクトルが入射光のスペクトルとは異なり変化する現象として解釈される²⁾。

しかし、実際のランダム媒質を考えると、単一散乱しか

機械技術研究所物理情報部 (〒305-8564 つくば市並木 1-2)
E-mail: shirai@mel.go.jp

*平成 8 年度光学論文賞受賞記念解説は、慣例では「光学」第 26 巻第 8 号に掲載されることになっておりました。記事の掲載が大幅に遅れたことをお詫びいたします。(「光学」編集委員長 伊東一良)

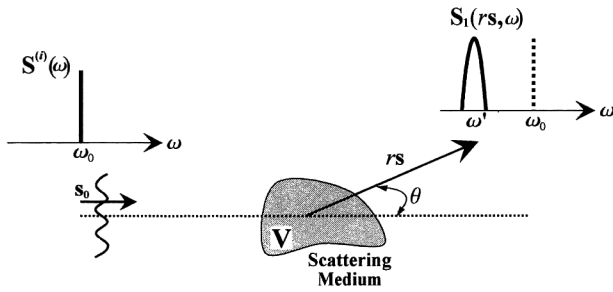


図1 光散乱現象の模式図。

起こらない状況はきわめて限られており、多くの場合には媒質内部での光多重散乱の効果を見捨てることはできない^{*1}。また、大気擾乱媒質や微粒子懸濁液のように散乱媒質の時間的ゆらぎの効果を見捨てることもできない状況も多い。そのため、コヒーレンス理論との対応から解析される光散乱現象を実際の問題として捉えるためには、その取り扱いに対するある種の理論的拡張が必要となる。このような背景から、本稿で概説する一連の研究では、時空間のゆらぎをもつランダム媒質における光多重散乱現象を対象に、そこで生じるスペクトル変化の現象を Wolf 効果との関連から理論的に解析している。

2. 現象の基礎

本節では、まず現象の基礎を理解するために、単一散乱に伴うスペクトル変化現象とその物理的解釈について議論する。

2.1 単一散乱現象の定式化^{7,14)}

時空間のゆらぎをもつランダム媒質に、直線偏光した多色平面波を入射させた場合の光散乱現象を考える。ここで、時空間のゆらぎをもつランダム媒質とは、媒質の応答を記述する誘電分極率 $\hat{\eta}(\mathbf{r}, t; \omega)$ が位置 \mathbf{r} と時間 t に関するランダム関数となる媒質を意味する (文献 10), 7.5 節)。一般に、この場合の現象は、入射光 $U^{(i)}$ と散乱光 $U^{(s)}$ の和である全波動場 $U \equiv U^{(i)} + U^{(s)}$ に関する波動方程式

$$(\nabla^2 + k^2)U(\mathbf{r}, \omega) = -4\pi k^2 Q(\mathbf{r}, \omega) \quad (1)$$

を解くことにより評価される。ここで、誘起分極 $Q(\mathbf{r}, \omega)$ は

$$Q(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{\eta}(\mathbf{r}, t; \omega') U(\mathbf{r}, \omega') \times \exp[i(\omega - \omega')t] dt d\omega' \quad (2)$$

*1 直感的には、単一散乱とは、入射光が散乱媒質と1回だけ相互作用して散乱光が発生する現象を、多重散乱とは、散乱光が再び媒質と相互作用して新たな散乱光が発生する過程を繰り返す現象を意味する。詳細は後述。

で与えられ、 $k = \omega/c$ は波数である (ただし、 ω : 角周波数、 c : 真空中での光速)。式(1)より、散乱光 $U^{(s)}$ に対する積分方程式

$$U^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) = k^2 \iiint_V \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} Q(\mathbf{r}', \omega) d^3 r' \quad (3)$$

が導出されるが、その解析は一般に容易ではない。しかし、散乱媒質のゆらぎがきわめて小さく、そのため散乱光の強度が入射光の強度に比較して十分に小さくなる場合には、式(3)に含まれる誘起分極 Q の起源となる全波動場 U (式(2)参照) をよい近似で入射光 $U^{(i)}$ に置き換えることが可能となり、式(3)は単なる積分へと変換される (第1次 Born 近似)。これは物理的には、入射光の作用によって媒質に誘起される分極からの放射を散乱光として捉え、その散乱光が再び分極を誘起する効果 (多重散乱効果) を無視しているため、単一散乱現象のみを記述する近似法といえる。この場合の解を $U_1^{(s)}$ と書くと、実際に観測される平均化された散乱光のスペクトルは

$$S_1(\mathbf{r}, \omega) = \langle U_1^{(s)*}(\mathbf{r}, \omega) U_1^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) \rangle_m \quad (4)$$

として与えられる。ここで、 $*$ は複素共役、 $\langle \dots \rangle_m$ は波動場自身に対する統計平均、 $\langle \dots \rangle_m$ は散乱媒質に対する統計平均を表している。

以上の議論に基づき、散乱媒質から十分に離れた遠方界 ($kr \rightarrow \infty$) に形成される散乱光のスペクトルを解析すると

$$S_1(\mathbf{r}\mathbf{s}, \omega) = \frac{(2\pi)^3 V k^4}{r^2} \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{c}\mathbf{s} - \frac{\omega'}{c}\mathbf{s}_0, \omega - \omega'; \omega'\right) \times S^{(i)}(\omega') d\omega' \quad (5)$$

を得る。ただし、散乱媒質の体積 V はその相関間隔に比べて十分に大きく、さらに入射光の偏光方向と観測方向 \mathbf{s} は常に垂直であると仮定した。また、 \mathbf{s}_0 は入射光の方向、 r は媒質から観測位置までの距離を表す (図1参照)。ここで、 $S^{(i)}$ は入射光のスペクトルであり、 \mathcal{E} は

$$\mathcal{E}(\mathbf{K}, \Omega; \omega') \equiv \frac{1}{(2\pi)^4} \iiint_{2\nu} d^3 R \int_{-\infty}^{\infty} G(\mathbf{R}, T; \omega') \times \exp[-i(\mathbf{K} \cdot \mathbf{R} - \Omega T)] dT \quad (6)$$

で定義される一般化構造関数である。また、 G は媒質の誘電分極率 $\hat{\eta}$ の時空間相関関数であり、

$$G(\mathbf{R}, T; \omega) \equiv \langle \hat{\eta}^*(\mathbf{r}, t; \omega) \hat{\eta}(\mathbf{r} + \mathbf{R}, t + T; \omega) \rangle_m \quad (7)$$

で定義される。式(5)~(7)より、一般に、散乱光のスペクトル S_1 は入射光のスペクトル $S^{(i)}$ とは異なり、媒質の相関 G に依存して変化することが明らかである。

2.2 スペクトル変化の物理

ここで簡単のために、入射光を単色平面波とし、媒質の時空間相関関数はそれぞれガウス型の時間および空間相関

関数の積で与えられると仮定すると、式(5)で与えられる散乱光のスペクトルは解析的に評価される^{2,6)}。図1には、数値例の一例が模式的に描かれており、観測される散乱光のスペクトルはやや広がるものの、そのピーク周波数は入射光の周波数に比べて低周波側に偏移する様子が示されている(実際の数値例については後述の図3参照)。これは、入射光源と散乱媒質が観測者に対して相対的に静止しているにもかかわらず、ドップラー偏移によく似たタイプの現象となっている。

この現象の物理的起源は、媒質の時間的ゆらぎ(動的作用)と空間的ゆらぎ(空間的作用)の相乗効果によるものであり、直感的には以下のように説明される^{2,6)}。すなわち、まず最初に単色の入射光は、媒質の動的作用によりそのスペクトル幅の広がった多色光へと変換される。これは、媒質中の微視的な散乱要素の相対的運動によるドップラー広がりとして解釈されるが、媒質は巨視的には静止しているため、この広がったスペクトルのピーク周波数は入射光の周波数に一致する。次に、この広がったスペクトルをもつ多色光が、媒質の空間的作用により、周波数(波長)に応じて異なる空間的分布(広がり角)をもって散乱される。これは、本質的にはスペクトルに歪みを生み出す効果と等価となるため、観測される散乱光のピーク周波数は、一般には入射光のピーク周波数とは異なり変化することになる。ここで、このスペクトル歪みの原因となる散乱光の空間的分布の周波数依存性は、部分的コヒーレント光の回折現象に類似して媒質の空間的相関特性によって完全に記述される。その結果、観測される散乱光のスペクトルはある程度の広がりをもつものの、媒質の空間的相関特性と散乱角に依存して、そのピーク周波数が偏移することになる。

以上の議論から、媒質に動的ゆらぎがない場合でも、入射光として多色光を考えると、媒質の空間的相関に起因してピーク周波数の偏移した散乱光スペクトルが観測されることが明らかとなる。実際、この場合の現象が、コヒーレンス理論におけるWolf効果に直接対応する現象として理解される。

3. 多重散乱現象の解明に向けて

ランダム媒質における複雑な多重散乱現象の解明を目指す試みとして、本節ではBorn近似およびRytov近似に基づく最近の研究⁴⁻⁸⁾を概説する。

3.1 Born近似とRytov近似

議論を簡単にするために、誘電分極率 $\hat{\eta}(\mathbf{r}, \omega)$ が位置 \mathbf{r} のみのランダム関数となる空間的ランダム媒質を考える。この場合の光散乱現象は、式(1)および(2)から導出

される波動方程式

$$(\nabla^2 + k^2)U(\mathbf{r}, \omega) = -4\pi k^2 \hat{\eta}(\mathbf{r}, \omega)U(\mathbf{r}, \omega) \quad (8)$$

によって評価される。この方程式を厳密に解析すると、多重散乱された光波の挙動を正確に記述することができるが、それは一般に容易ではない。そこで導入される代表的な近似法が、Born近似およびRytov近似である。

Born近似に基づく解析では、前節と同様に、全波動場 U を入射光 $U^{(i)}$ と散乱光 $U^{(s)}$ の和と考え、式(8)から導出される積分方程式を出発点とする。第1次のBorn近似は、入射光の作用によって直接媒質に誘起される分極を散乱光の波源として捉える意味で単一散乱現象を表し、その振幅は

$$U_1^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) = k^2 \iiint_V \frac{\exp(ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \times \hat{\eta}(\mathbf{r}', \omega)U^{(i)}(\mathbf{r}', \omega)d^3r' \quad (9)$$

によって与えられる。一方、第2次のBorn近似では、式(9)で与えられる単一散乱光 $U_1^{(s)}$ の作用により媒質に誘起される分極からの放射を散乱光として捉えるため、その振幅は

$$U_2^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) = k^2 \iiint_V \frac{\exp(ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \times \hat{\eta}(\mathbf{r}', \omega)U_1^{(s)}(\mathbf{r}', \omega)d^3r' \quad (10)$$

となる。これは、散乱光の作用によって誘起される分極からの放射という意味で多重散乱光の一部を表している。そのため、一般には2次以上のBorn近似が多重散乱現象を記述する近似法となる。このように高次Born近似では、多重散乱現象を連鎖的に誘起される分極からの放射現象として捉えている。

次に、Rytov近似に基づく解析では、式(8)に含まれる全波動場 U を入射光 $U^{(i)}$ と複素位相関数 φ を用いて

$$U(\mathbf{r}, \omega) = U^{(i)}(\mathbf{r}, \omega)\exp[\varphi(\mathbf{r}, \omega)] \quad (11)$$

と表現する(文献3, 17.2.2節)。式(11)を式(8)に代入し整理すると、複素位相関数 φ に関する波動方程式が導かれ、その1次近似解として φ_1 を得る。この解を式(11)に代入すると、入射光 $U^{(i)}$ と散乱光 $U^{(s)}$ の両方を含む全波動の振幅

$$U_R(\mathbf{r}, \omega) = U^{(i)}(\mathbf{r}, \omega)\exp[\varphi_1(\mathbf{r}, \omega)] \quad (12)$$

が導出される。この近似法は、散乱光強度が入射光強度に比べてあまり大きくならない弱散乱媒質を対象とするものであり、大気擾乱媒質中を伝搬するレーザー光の挙動を評価する際に有効であることが示されている¹⁵⁾。なお、Rytov近似における多重散乱の物理は次節で議論する。

以下では、両近似法が適用可能な弱散乱媒質を対象に、媒質の境界の効果が無視できる準均一媒質近似を満たす条

件下に限定した議論を行う。また、散乱光は、媒質から十分に離れた遠方界で観測するものとする。

3.2 空間的ランダム媒質による光散乱

まず最初に、Born 近似に基づき、空間的ランダム媒質による光散乱現象を解析する⁴⁾。一般には、より高次の近似を導入するほど厳密解に近づくことが予想されるが、ここでは簡単化のために 2 次の近似に基づく解析を行う。ここで 2 次の近似とは、多重散乱光のスペクトルとして、第 2 次 Born 近似解 $U_2^{(s)}$ の積で与えられるスペクトル $\langle U_2^{(s)*} U_2^{(s)} \rangle$ と同等か、もしくはそれ以上の強度をもつスペクトル要素のみを考慮する近似であり、数学的には

$$S_B(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{\substack{i,j \geq 0 \\ 1 \leq i+j \leq 4}} \langle U_i^{(s)*}(\mathbf{r}, \omega) U_j^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) \rangle_m \quad (13)$$

を評価することになる。ただし、式(13)に含まれる $U_0^{(s)}$ は入射光 $U^{(i)}$ を表す。ここで、誘電分極率 $\hat{\eta}$ のランダム性がゼロ平均のガウス統計に従うと仮定し、さらに散乱光の測定法に関する実際を考慮すると、式(13)を構成する 14 項のうち 12 項分は合理的に無視することができる。その結果、式(13)は

$$S_B(\mathbf{r}, \omega) = \langle U_1^{(s)*}(\mathbf{r}, \omega) U_1^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) \rangle_m + \langle U_2^{(s)*}(\mathbf{r}, \omega) U_2^{(s)}(\mathbf{r}, \omega) \rangle_m \quad (14)$$

となる。これは、2 次の Born 近似に基づく散乱光スペクトルは、単一散乱光のスペクトル $\langle U_1^{(s)*} U_1^{(s)} \rangle_m$ (S_{B1} とおく) と多重散乱光のスペクトル $\langle U_2^{(s)*} U_2^{(s)} \rangle_m$ (S_{B2} とおく) の和として与えられることを表している。式(14)を評価するために、媒質への入射光を多色平面波 (スペクトル $S^{(i)}$) とし、さらに $\hat{\eta}$ に関する 2 次の空間的相関関数をガウス型 (幅 σ) であると仮定すると、 S_{B1} 、 S_{B2} に関する解析的表現式

$$S_{B1}(r\mathbf{s}, \omega) = A_1 \cdot \omega^4 \exp\left[-2\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \sigma^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)\right] \cdot S^{(i)}(\omega) \quad (15)$$

および

$$S_{B2}(r\mathbf{s}, \omega) = A_2 \cdot \omega^6 \left\{ \exp\left[-4\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \sigma^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{4}\right)\right] - \exp\left[-4\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \sigma^2 \cos^2\left(\frac{\theta}{4}\right)\right] \right\} \cdot S^{(i)}(\omega) \quad (16)$$

が導出される^{*2)}。ここで、 A_1 および A_2 は、実際には相関間隔 σ や散乱角 θ 等の関数となるが、これらはそのスペクトル形状には寄与しないため定数とおいた。

次に、同様の現象を Rytov 近似に基づき解析する⁵⁾。Rytov 近似によって導出される振幅 (式(12)) には入射光と散乱光の効果が含まれているため、散乱光のみのスペクトルとして

$$S_R(\mathbf{r}, \omega) = \langle U_R^*(\mathbf{r}, \omega) U_R(\mathbf{r}, \omega) \rangle_m - S^{(i)}(\omega) \quad (17)$$

を評価する。ここで、前述の議論と同様の仮定を導入すると、散乱光スペクトルの表現式として

$$S_R(r\mathbf{s}, \omega) = B \cdot \left[\exp\left\{q\left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^4 \exp\left[-2\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \sigma^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)\right]\right\} - 1 \right] \cdot S^{(i)}(\omega) \quad (18)$$

を得る。ただし、 B は単純な係数であり、 q は散乱媒質の体積 V に比例した定数である。

Rytov 近似の物理的意義については、式(18)に含まれるパラメータ q がゼロに近づく極限を考えると理解される。この場合、指数関数の級数展開を利用すると、式(18)は単一散乱光のスペクトルである式(15)に一致することが示される。これは、Rytov 近似は $q \rightarrow 0$ の極限においては単一散乱現象を記述し、 q 値の増大に伴い多重散乱現象を記述することを意味する。物理的には、 q 値が散乱媒質の体積 V に比例することから、Rytov 近似は散乱媒質の大きさに誘発される多重散乱効果を記述するものといえる。

以上の結果に基づき、Wolf 効果に対応する散乱光のスペクトル変化現象を解析する。2.2 節では、この現象のメカニズムを媒質の空間的ゆらぎに起因する多色スペクトルの歪みとして理解する見解を述べたが、その説明が多重散乱によって引き起こされる現象についてもそのまま適用できることが導出された表現式から明らかとなっている。つまり、導出された多重散乱光のスペクトルは、いずれも媒質の相関 σ および散乱角 θ を含む関数 (便宜上 F とおく) と入射スペクトルの積として与えられることから、その関数 F がある種のフィルターとして作用し入射多色光に歪みを与えるメカニズムが理解される。そのため、一般には、観測される散乱光スペクトルのピーク周波数 ω' は入射光のピーク周波数 ω_0 とは異なり、媒質の相関 σ および散乱角 θ に依存して偏移することになる。

この現象の定量的評価の一例として、ピーク周波数の相対偏移量 $z = (\omega_0 - \omega') / \omega'$ の散乱角依存性を図 2 に示す。ここで、図 2(a) に記述されているパラメータ α は、高次 Born 近似で評価される散乱光スペクトルにおける単一散乱光成分 S_{B1} に対する多重散乱光成分 S_{B2} の含有率を表している^{*3)}。図より、多重散乱に起因する重要な現象のひとつとして、多重散乱効果の増大に伴い (高次 Born 近似で

*2) 式(16)の評価には、誘電分極率のランダム性がゼロ平均のガウス統計に従うことと、媒質に誘起される分極からの放射球面波が媒質内部において局所的に平面波と見なすことができる性質を利用する。詳細は文献 4) 参照。

は α , Rytov 近似では q の増加に伴い), 多重散乱光のピーク周波数が単一散乱光のピーク周波数に比較してより高周波側に偏移する現象が確認される. 特に, このスペクトル偏移量の強調現象は, 高次 Born 近似では散乱角の大きな部分で, 逆に Rytov 近似では前方散乱方向付近で顕著に現れている. この傾向は, それぞれの近似法のもつ多重散乱の物理的解釈に基づいて直感的に説明することが可能となっている^{6,8)}.

3.3 時空間のゆらぎをもつランダム媒質による光散乱

時空間のゆらぎをもつランダム媒質による光散乱現象は, 式(1)および(2)で与えられる波動方程式に基づき解析される. 以下では, この場合の解析にもその適用が直接可能となる高次 Born 近似に限定した議論を行う⁷⁾.

前節の議論と同様に, 2 次の Born 近似に基づき散乱光のスペクトルを解析する. このとき, 前節と同様の諸仮定を導入することにより, 最終的に得られる散乱光スペクトルは, 単一散乱光のスペクトル $\langle U_1^{(s)*} U_1^{(s)} \rangle_m \equiv S_{DB1}$ と多重散乱光のスペクトル $\langle U_2^{(s)*} U_2^{(s)} \rangle_m \equiv S_{DB2}$ の和として与えられることが示されている. さらに, 入射光として単色平面波 (周波数 ω_0) を考え, 媒質の時空間相関関数がそれぞれガウス型の時間相関関数 (幅 τ) と空間相関関数 (幅 σ) の積として与えられると仮定すると, S_{DB1} と S_{DB2} はそれぞれ解析的に

$$S_{DB1}(\mathbf{r}\mathbf{s}, \omega) = C_1 \cdot \exp\left[-\frac{\{\omega - (|q|/p)\omega_0\}^2}{2(1/\sqrt{p})^2}\right] \quad (19)$$

および

$$S_{DB2}(\mathbf{r}\mathbf{s}, \omega) = C_2 \cdot \exp\left[-\frac{\{\omega - (|q|/p)\omega_0\}^2}{4(1/\sqrt{p})^2}\right] \\ \times \left\{ C_3 \cdot \exp\left[-\frac{1}{4}\left(\frac{\sigma^2 \tau^2}{\sigma^2 + c^2 \tau^2}\right)(\omega + \omega_0 - |\omega\mathbf{s} + \omega_0\mathbf{s}_0|)^2\right] \right. \\ \left. - C_4 \cdot \exp\left[-\frac{1}{4}\left(\frac{\sigma^2 \tau^2}{\sigma^2 + c^2 \tau^2}\right)(\omega + \omega_0 + |\omega\mathbf{s} + \omega_0\mathbf{s}_0|)^2\right] \right\} \quad (20)$$

と記述される. ここで, p と q は

$$p = \left(\frac{\sigma}{c}\right)^2 + \tau^2, \quad q = \left(\frac{\sigma}{c}\right)^2 \cos\theta + \tau^2 \quad (21)$$

で定義され, 入射方向ベクトル \mathbf{s}_0 と散乱方向ベクトル \mathbf{s} は関係式 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{s}_0 = \cos\theta$ を満たしている. ただし, 上式中の $C_1 \sim C_4$ は, 実際には一部に周波数 ω を含む複雑な関数となるが, それらは全体のスペクトル形状にあまり影響を与えないため, ここでは定数とおいた. なお, ここで導出さ

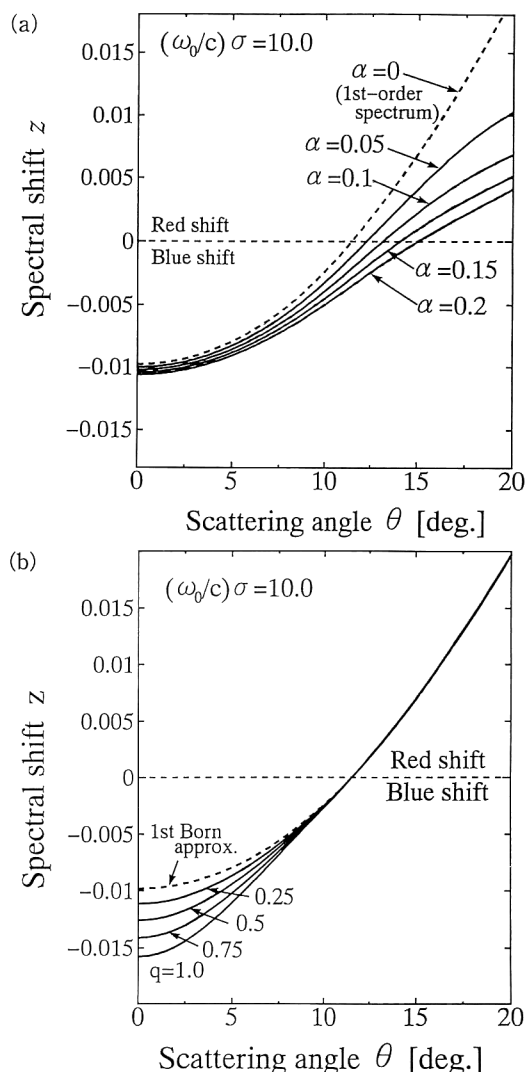


図2 (a) 高次 Born 近似, および (b) Rytov 近似に基づくスペクトル偏移量 z の散乱角依存性^{4,5)}. ただし, 入射光のスペクトルはその実効幅が $I_0 = 0.05\omega_0$ で与えられるガウス型とし, 媒質の相関間隔は $\sigma = 10 \cdot (c/\omega_0)$ とした.

れた式(19)および式(20)について, 媒質の動的ゆらぎが十分に遅くなる極限 ($\tau \rightarrow \infty$) を考えると, 前節の結果である式(15)および式(16)にそれぞれ一致することが示されている (文献7), Appendix D).

導出された表現式に基づくスペクトル変化現象の解析事例として, 媒質の相関間隔 σ と相関時間 τ の代表的値に対する単一散乱光スペクトル S_{DB1} (実線) と多重散乱光スペクトル S_{DB2} (破線) の形状を図3に示す. 図は, 単一散乱光と多重散乱光は, 共に, 入射光が単色光であるにもかかわらず, そのスペクトル幅に若干の広がりを持ち, かつそれぞれのピーク周波数が入射光の周波数に比較して低周波側に偏移する様子を示しており, 2.2 節で議論したドップラー偏移によく似たタイプのスペクトル変化現象の典型例となっている⁴⁾. この偏移量は, 媒質の相関間隔 σ が大

*3 このパラメーター α (定義の詳細は文献4) 参照) は, 散乱媒質の種類や状態に応じて固有の値をもつため, その実際の値は実験的に評価する必要がある. しかし, ここでは現象の一般的理解を目的として, 与えられた α の値にのみ着目した議論を行う.

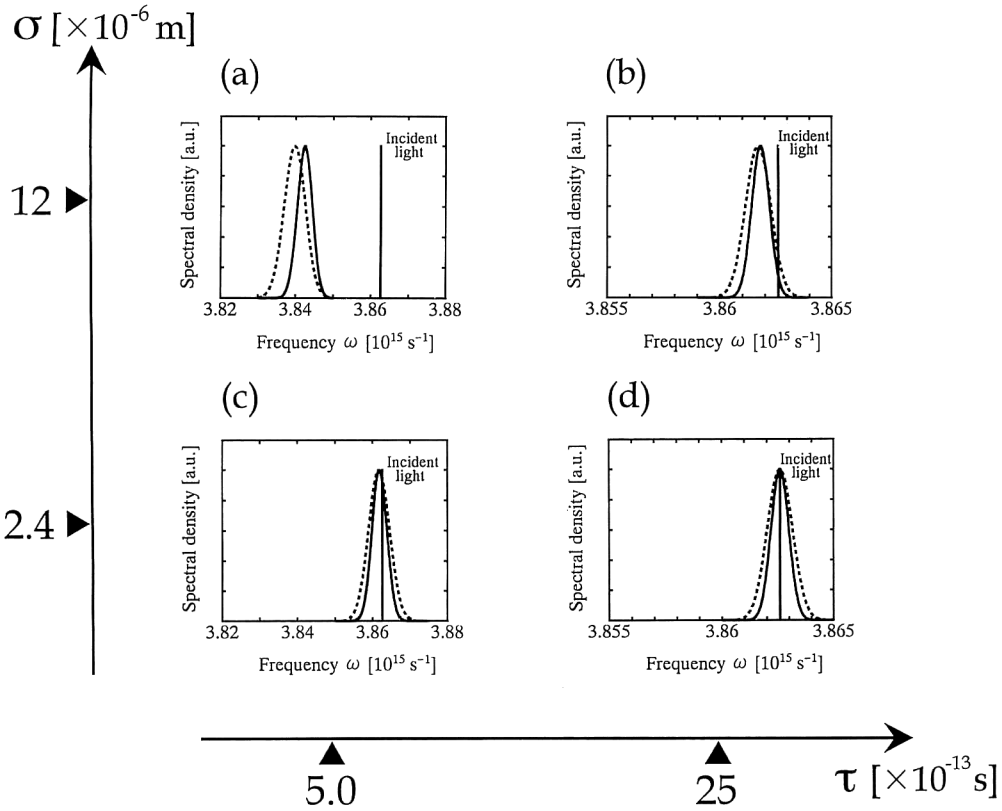


図3 単一散乱光スペクトル S_{DB1} (実線) と多重散乱光スペクトル S_{DB2} (破線)⁷⁾. 媒質の相関間隔 σ と相関時間 τ は, (a) $\sigma=1.2 \times 10^{-5}$ m, $\tau=5.0 \times 10^{-13}$ s, (b) $\sigma=1.2 \times 10^{-5}$ m, $\tau=2.5 \times 10^{-12}$ s, (c) $\sigma=2.4 \times 10^{-6}$ m, $\tau=5.0 \times 10^{-13}$ s, (d) $\sigma=2.4 \times 10^{-6}$ m, $\tau=2.5 \times 10^{-12}$ s である. ただし, 入射光の周波数は $\omega_0=3.8626 \times 10^{15}$ s⁻¹ (波長 $\lambda_0=488$ nm に対応), 散乱角は $\theta=80^\circ$ とした.

きいほど, またその相関時間 τ が小さいほど (つまり, 媒質の動的ゆらぎがすばやいほど) 大きくなる傾向を示している. さらに, 多重散乱光は単一散乱光に比較してそのピーク周波数の偏移量が大きく, かつその幅の広がりも単一散乱光スペクトルの広がりには比べや大きくなることから, 散乱光スペクトルの偏移および広がりに関するこれらの傾向は, 前述の議論により導出された解析的表現式 S_{DB1} , S_{DB2} から直接理解することができる.

しかし, 実際には, 単一散乱光成分と多重散乱光成分を分離することは多くの場合には困難であり, 前節での議論と同様に, 観測される散乱光は適当に重みづけされた両成分の和となることに注意する必要がある. この場合, 多重散乱の効果は散乱光スペクトルの歪みとして観測されることになり, 多重散乱効果の増大に伴い観測されるスペクトルの歪みが顕著となることが予想される. このようなスペクトルの歪み現象は, 光散乱実験で広く計測される散乱光の時間相関関数に大きな影響を与えることになる⁶⁾.

*4 複数のスペクトル線をもつ入射光の場合には, 散乱に伴い, すべてのスペクトル線がほぼ等しい周波数の偏移を受ける. そのため, このスペクトル偏移現象は, スペクトル幅に広がりをもつ点を除き, 媒質と観測者間の巨視的な相対運動に起因するドップラ偏移と区別することが困難となる.

4. 新しい展開

前節で導入した高次 Born 近似および Rytov 近似は, 単一散乱に比べて多重散乱の効果がそれほど顕著ではない弱散乱媒質を対象とする解析手法である. そのため, 例えば生体組織のような強散乱媒質からの光多重散乱現象を解析するためには, それらの近似法を超えた異なる取り扱いが必要となってくる.

強散乱媒質における重要な現象のひとつに後方散乱光エンハンスメントがあるが¹⁶⁾, この場合に観測される強度ピーク付近の多重散乱光においても, 本稿で議論したメカニズムで説明されるスペクトルの変化現象が起こり得ることが示されている^{17,18)}. また, その表面がランダムな薄膜からの光多重散乱現象においては, 後方散乱方向に加えてその近傍にも強度ピークが現れるが¹⁹⁾, この場合にも同様のスペクトル変化現象が生じることが明らかにされている²⁰⁾. 前節までの議論とともにこれら最近の研究によって得られた知見は, スペクトル変化現象を利用した新しい光散乱計測原理の基礎として, 重要な役割を果たすものと期待される.

一方, 関連する研究の興味深い展開として, この光散乱に伴うスペクトル変化現象の理論と X 線回折実験との密接な関連が指摘されている²¹⁾. 実際, 結晶構造を解析する

ための X 線回折理論を、本稿で議論したスペクトル変化現象の理論に基づき再構築すると、実験的に観測されその解釈が問題となってきた X 線回折像における強度ピーク的位置ずれ現象²²⁾をうまく説明できることが、最近の研究によって明らかにされている²³⁾。

コヒーレンス理論における Wolf 効果は、その発見から 10 年以上が経過しており、最近ではこの効果を積極的に利用する応用分野の研究が活発に行われている^{24,25)}。しかし、本稿で議論した光散乱に伴うスペクトル変化現象は、この Wolf 効果との対応から予測された現象であるにもかかわらず、光散乱現象自身の本質的複雑さのために、まだその現象の物理が十分に解明されたとは言いがたい。現象に対するより深い理解と併せて、得られた知見に基づく応用分野の探索等、今後の展開によりさらに新しい可能性が拓かれることを期待したい。

最後に、本研究を行うにあたり直接ご指導をいただきました北海道大学電子科学研究所朝倉利光教授（当時、現北海学園大）、および有益なご助言をいただきました機械技術研究所松田浄史部長（当時、現シドニー大・JST 海外派遣研究員）に深く感謝いたします。

また、本稿は筆者がオークランド大学（ニュージーランド）招聘の客員研究員として同大学に滞在中に準備されました。本稿の執筆にご理解とご支援をいただきました同大学 T. H. Barnes 教授に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 例えば, M. Kerker: *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation* (Academic Press, New York, 1969).
- 2) 白井智宏, 朝倉利光: “光散乱に伴うスペクトル変化現象”, *光学*, **24** (1995) 134-140.
- 3) 例えば, A. Ishimaru: *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (Academic Press, New York, 1978).
- 4) T. Shirai and T. Asakura: “Multiple light scattering from spatially random media under the second-order Born approximation,” *Opt. Commun.*, **123** (1996) 234-249.
- 5) T. Shirai and T. Asakura: “Spectral changes of light induced by scattering from spatially random media under the Rytov approximation,” *J. Opt. Soc. Am. A*, **12** (1995) 1354-1363.
- 6) T. Shirai and T. Asakura: “Spectral changes of light and scattering phenomena,” *Opt. Rev.*, **3** (1996) 1-10.
- 7) T. Shirai and T. Asakura: “Spectral changes of light produced by multiple scattering from space-time fluctuating random media under the Born approximation,” *Opt. Rev.*, **3** (1996) 324-334.
- 8) 白井智宏: “不規則媒質による光多重散乱現象の解析的近似解法”, *機械技術研究所所報*, **50** (1996) 15-21.
- 9) M. Nieto-Vesperinas: *Scattering and Diffraction in Physical Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1991).
- 10) L. Mandel and E. Wolf: *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995), Sect. 7. 6.
- 11) 教科書として, 文献 10) の 5. 8 節.
- 12) 最近の解説論文として, E. Wolf and D. F. V. James: “Correlation-induced spectral changes,” *Rep. Prog. Phys.*, **59** (1996) 771-818.
- 13) 邦文の解説として, 白井智宏, 朝倉利光: “コヒーレンスと放射測光学”, 第 21 回冬期講習会「コヒーレンスの不思議」(日本光学会, 1995) pp. 129-146.
- 14) E. Wolf and J. T. Foley: “Scattering of electromagnetic fields of any state of coherence from space-time fluctuations,” *Phys. Rev. A*, **40** (1989) 579-587.
- 15) J. W. Strohbehn (ed.): *Laser Beam Propagation in the Atmosphere* (Springer-Verlag, Berlin, 1978).
- 16) J. C. Dainty: “The opposition effect in volume and surface scattering,” *International Trends in Optics*, ed. J. W. Goodman (Academic Press, New York, 1991) pp. 207-219.
- 17) A. Lagendijk: “Terrestrial redshifts from a diffuse light source,” *Phys. Lett. A*, **147** (1990) 389-392.
- 18) A. Lagendijk: “Comment on “Invariance of the spectrum of light on propagation”,” *Phys. Rev. Lett.*, **65** (1990) 2082.
- 19) V. Freilikher, M. Pustilnik and I. Yurkevich: “Wave scattering from a bounded medium with disorder,” *Phys. Lett. A*, **193** (1994) 467-470.
- 20) T. A. Leskova, A. A. Maradudin, A. V. Shchegrov and E. R. Méndez: “Spectral changes of light scattered from a bounded medium with a random surface,” *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997) 1010-1013.
- 21) 米ロチェスター大学 E. Wolf 教授からの私信.
- 22) M. Černňanský: “Broadening and shift of diffraction lines due to partial coherence of X-rays,” *Phys. Status Solidi B*, **114** (1982) 365-372.
- 23) M. Dušek: “Diffraction of partially coherent beams on three-dimensional periodic structures and the angular shifts of the diffraction maxima,” *Phys. Rev. E*, **52** (1995) 6833-6840.
- 24) E. Wolf, T. Shirai, H. Chen and W. Wang: “Coherence filters and their uses I: Basic theory and examples,” *J. Mod. Opt.*, **44** (1997) 1345-1353.
- 25) T. Shirai, E. Wolf, H. Chen and W. Wang: “Coherence filters and their uses II. One-dimensional realizations,” *J. Mod. Opt.*, **45** (1998) 799-816.

(1998 年 4 月 20 日受理)