

光散乱に現れるゆらぎの量子性と古典性
Quantum and classical behaviors of fluctuations in light scattering

渡辺純二

大阪大学 生命機能研究科・理学研究科

Junji Watanabe Department of Physics, Osaka University

光散乱は物質中のゆらぎを調べるための観測手段として広く用いられている。また、ゆらぎに関与する緩和現象が光散乱において重要な役割を果たすことも明らかとなってきた。例えば、二次光学過程の中で共鳴光散乱と発光の違いはどのように生じるか、また、光散乱スペクトルの解析に用いられる揺動散逸定理の適用性の限界、などの問題にも緩和現象が密接に関係している。今回のセミナーでは、光散乱における緩和現象の役割を調べた研究の一例として、ラマン散乱スペクトルにおけるストークス散乱（入射光子から物質中のゆらぎにエネルギーを与える過程）とその逆過程である反ストークス散乱との強度比 I_S/I_{AS} に関する研究を主に紹介したい。

強度比 I_S/I_{AS} がボルツマン因子をとることはよく知られており、これら二つの過程が時間反転対称性をもち、また系のカノニカル分布が成り立つとき、一般的に満足されると期待されている（光散乱における詳細つり合いの原理）。実際多くの系のラマンスペクトルで成立することが示されており、この強度比は試料温度の決定に用いられることも多い。ここで以下のような疑問が生じる。ゆらぎに緩和過程が伴う場合には時間反転対称性は成立しなくなると思われるが、このような場合にも、すなわち、ラマン散乱スペクトルのピークが位相緩和などの緩和過程により広がりをもつ場合にも、スペクトルの各エネルギーにおける強度比 I_S/I_{AS} はそのエネルギーのボルツマン因子となるのだろうか？ 光散乱の量子論的理論はボルツマン因子となることを予測しているが、これまで実験的に確認されることはなかった。実験では通常、強度比 I_S/I_{AS} はラマンピークの中心強度や積分強度のみが評価されている。

このような観点から我々は実験を行い、強誘電性結晶 KH_2PO_4 (KDP) の原点を中心として広がる（分極）緩和モードのラマンスペクトルにおいて、その強度比 I_S/I_{AS} がボルツマン因子の関係を満たさず、古典極限の値である 1 に近い値をとることを見出した。また、酸化チタン結晶のフォノンモードに対して、その半値幅程度の範囲内で強度比 I_S/I_{AS} が中心エネルギーのボルツマン因子で決まる一定値をとり、各エネルギーのボルツマン因子の値を取らないことを見出した。

緩和モードやフォノンモードのスペクトル広がりにおいてボルツマン因子からのずれが観測されたが、そのずれ方は、古典的ゆらぎのスペクトル広がりを考えた場合に期待されるものであった。この結果は何を意味するのだろうか。われわれは、光散乱の量子論的理論において、通常、近似として現象論的に取り入れられる不可逆な緩和過程が、スペクトル広がりを説明する上では本質的に重要であることを示唆している、と考えている。これらのスペクトルと揺動散逸定理との関連についても議論したい。