

ガラス中の光散乱 —光散乱の起因—

豊田工業大学

齋藤 和也

Light Scattering in glasses – Origin of the Rayleigh scattering –

Kazuya Saito

Toyota Technological Institute

いまさら聞けないガラス講座ということで、ガラス中の光散乱についての解説を書くことになったが、「いまさら聞けない」とはどこから説明したらよいのか。そもそも技術課題にぶつかったときには必ず原理原則に戻って考える必要があることを考えれば、「いまさら聞けない」ことなどなくて何度も基礎に戻って考えることは重要だと思うのだけど。まあ、こんな御託を並べては何も書けないので、とりあえず、物質中に光が通過するとはどういうことか、そこで光散乱とはどのような“役割”を担っているのかということから話を初めて、ガラス中の光散乱についての話につなげることにする。

1. 物質中を光が透過するというとはどういうことか？

透明な物質（吸収がない波長領域）では、光はただ物質中をすり抜けてしまうだけなのだろうか？もし、そうだとすると、物質中の光の位相速度 V_p が

$$V_p = c/n \quad (\text{ここで, } c \text{ は真空中の光速, } n \text{ は物質の屈折率}) \quad (1)$$

となることを説明できない。いったい光が物質を透過するとき何が起きているのであろうか。順を追って説明しよう。

①図1に示すように、光は伝搬方向に垂直な面内で電場と磁場が振動する電磁波である。したがって、光が物質に入ると物質に振動する電場がかかることになる（もちろん、電場の方向に垂直に磁場もかかることになるが、磁場が物質に及ぼす効果は通常電場よりも3桁ほど小さいので通常は無視できる）。さて、今後の議論には電場の振動方向が重要であるが、ここでは、振動方向が図1のようにある面で固定されて変化する場合（直線偏光）を考えることにする。

②物質に電場がかかることによって物質中には分極（電気双極子）が誘起される。これは、原子の中の正の電荷の重心と負の電荷の重心がずれることや、正イオンと負イオンの位置が平衡点からずれることに起因する。すなわち、物質は振動電場に対する応答の点では、いろいろな固有振動数をもつ電気双極子の集まりとみなすことができる。光により誘起された振動する電気双極子からは、新しい光（2次光）が四方八方に放出される。このような現象は“光吸収”と“光放出”がそれぞれ単独では意味をもたないほど同時に起こることを意味しており、“光散乱”と呼ばれる（量

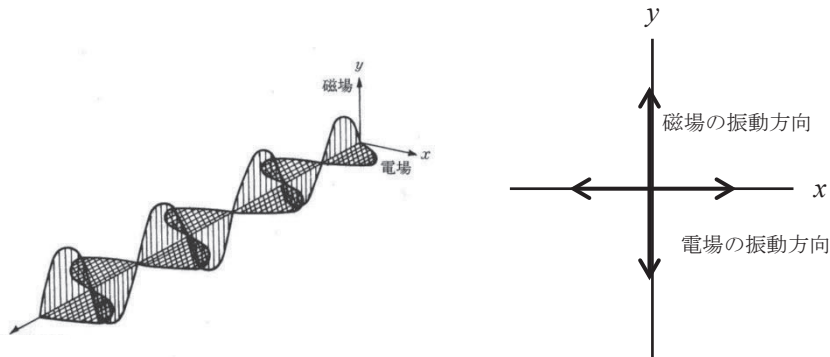


図1 電磁波

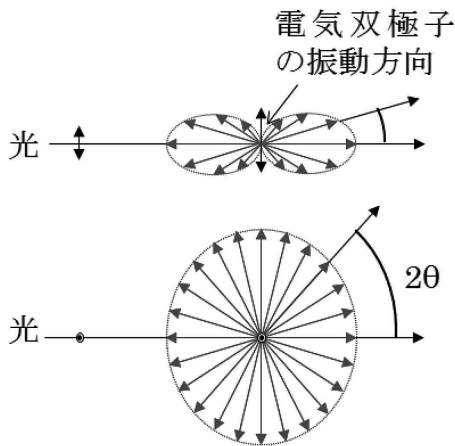


図2 振動する電気双極子から放出される2次波の強度分布

量子力学では、時間とエネルギーの不確定性関係からこのような現象を説明できる)。図2は放出される2次光の強度の方向分布を表す。電気双極子の振動方向に対して垂直な方向には等強度であるが、振動方向を含む面内では8の字型の分布になる。また、物質に異方性がなければ、電気双極子の振動方向は、入射した光の直線偏光の向きに一致する。

- ③振動する電気双極子（すなわち散乱体）から放出された2次光がどのように観察されるかは、2次波どうしの干渉または2次波と入射光との干渉により決まる。例えば、散乱体がまばらに、しかもランダムに分布している場合、2次光同士の干渉は起きず、四方八方に放出された2次光の和がそのまま観察される

ことになる（図3）。このような現象はRayleigh 散乱と呼ばれ、空が青く見えるのもこのせいである（波長が短い光、すなわち赤より青の方が散乱強度が大きいために青色に見える）。散乱体に異方性がない場合のRayleigh 散乱光は、各散乱体からの2次波の方向依存性（図2）をそのまま反映することになり、散乱強度は図3の下図のような散乱角依存性をもつことになる。

これに対して散乱体（原子やイオン）が密に凝集しており、その密度が一様であるときには、各原子からの2次波はお互いに干渉する。この結果、散乱体の数が N 倍になっても、散乱強度は一般には N 倍にはならない。散乱ベクトル Q の方向の1個の散乱体からの散乱強度を $I_0(Q)$ とすると、 N 個の散乱体からの散乱強度 $I(Q)$ は次のように表される。

$$I(Q) = \frac{|f(Q)|^2}{N} I_0(Q) \quad (1)$$

ここで $f(Q)$ は構造因子と呼ばれ、次の式で表される。

$$f(Q) = \int \rho(r) \exp(iQ \cdot r) dr \quad (2)$$

$\rho(r)$ は数密度を、 $Q \cdot r$ は互いの散乱体からの光の位相差を表している。 $Q=0$ のとき（すなわち前方散乱のとき）は $f(Q)=N$ になり $I(Q)=NI_0(Q)$ となる。

散乱体が球形に均一に分布しているとして、

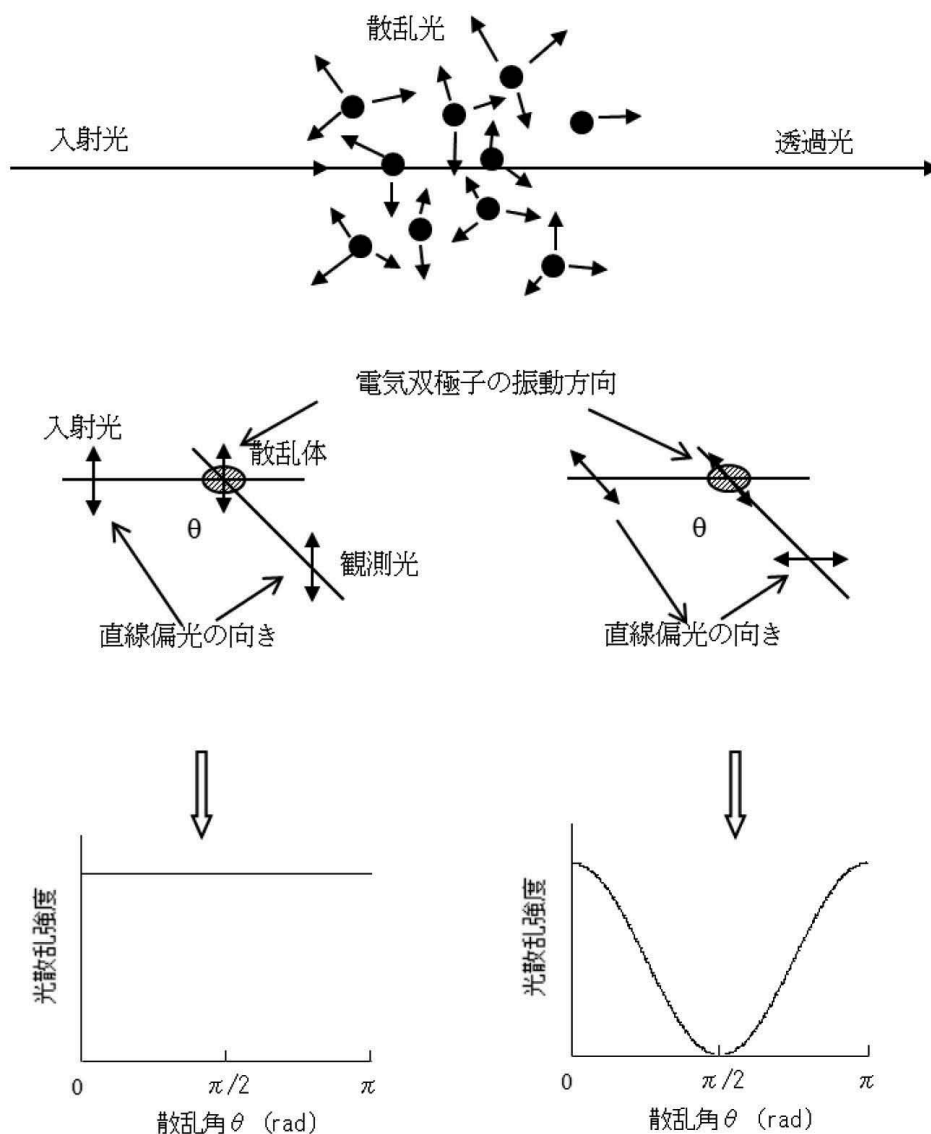


図3 まばらでランダムな散乱体からの散乱光

球の大きさを変えた4つの場合で構造因子を計算してみると図4のようになる。光の波長より十分小さなサイズでは干渉は起きずに2次波は四方八方に放出されるが、だんだん大きくなると前方散乱のみ残り、他の方向では干渉の結果消えてしまうことがわかる。これは、図5のようなことを考えれば納得できる。

つまり、凝集体のサイズが波長に比べて大き

いと、干渉の結果前方以外の散乱は消えてしまい物質は透明になることになる。しかし透過光は入射光がそのまま抜けてきたわけではなく、2次光と混ざりあっている点が重要である。このように考えると、物質中の位相速度が変わる理由も理解することができる。ここでは詳しく説明するスペースがないが、散乱体からの2次波は入射波と位相が異なる成分があり、

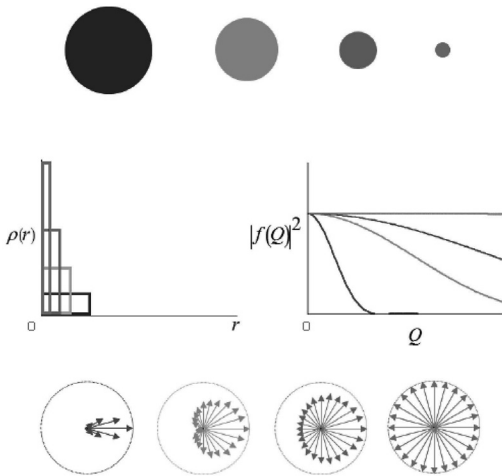


図4 散乱体が球形に均一分布した場合の構造因子と、散乱光の様子

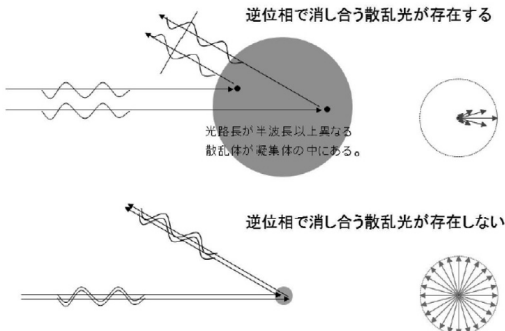


図5 散乱体が凝集したサイズで、干渉の様子が異なる理由

その成分の結果、物質中の光の波長が変わることになる[1]。

2. ガラス中の光散乱

ここに同じ形状のシリカガラスと水晶（シリカの結晶）があるでしょう。さて、二つを選別するにはどうすればいいだろうか。「偏光顕微鏡観察やX線回折測定を行う」という回答が多く返ってきそうだが、強い光（レーザー）を試料に入射してみれば一目瞭然である（図6）。シリカガラスの光散乱強度は、水晶の30倍以上も大きいからである。もちろん両者とも同じSiO₂四面体で形成されている。異なる点は、水晶では周期的に規則性をもって四面体が並ん

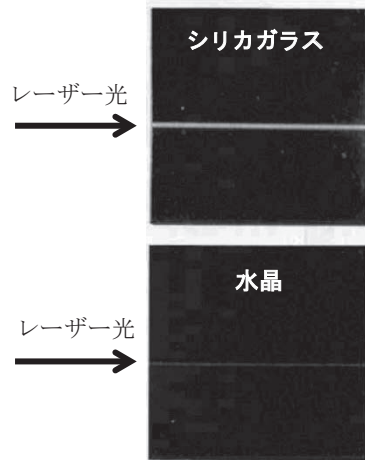


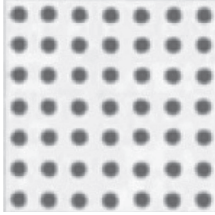
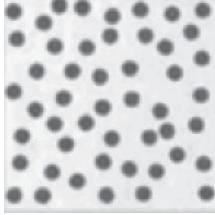
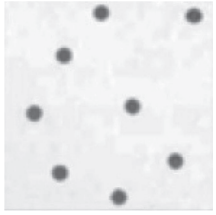
図6 光散乱強度の比較によるシリカガラスと水晶の区別

でいるのに対して、シリカガラスではランダムに四面体の頂点がつながったような網目構造をしている。どこから、このような光散乱強度の大きな違いが出てくるのであろうか。先に説明したことから、この原因を考えてみよう。

完全に均一な固体（理想結晶）では、各散乱要素からの散乱光は完全に干渉しあい、全散乱強度はゼロになる。一方、液体の場合はどうであろうか？散乱体が完全にランダムに分布しているわけであるから、ある散乱要素からの散乱光には、これを干渉により打ち消すような散乱光が必ず存在し、結局、全散乱光は理想結晶と同じようになると思われるかもしれないが、実はそうはならない。密度の統計的なゆらぎがあるからである（表1）。この密度の空間的な揺らぎは散乱光に非干渉成分を生じさせ、その総和が観測にかかることになる（液体の光散乱強度は熱エネルギーと等温圧縮率で決定される密度揺らぎの平均2乗という値に比例することになる）。

ガラスは、凍結した液体状態と考えることができるが、ガラスの実温度を入れて光散乱強度を計算しても実測値と全く合わず、実測値のほうが一桁以上大きくなってしまふ。ガラスは、高温の液体状態が凍結した状態にあることを考

表 1 散乱体の凝集状態による光散乱の違い

散乱体の凝集状態	理想結晶	液体・ガラス	理想気体
			
各散乱体からの散乱光	位相相関をもつ (過干渉)	平均：位相相関をもつ ゆらぎ：位相相関をもたない	位相相関をまったくもたない (非干渉)
散乱強度	干渉により、前方散乱 (透過光) および後方散乱 (反射光) 以外の 散乱はゼロ	局所的な密度揺らぎが散乱に 寄与。	独立した各散乱要素からの散 乱光の和

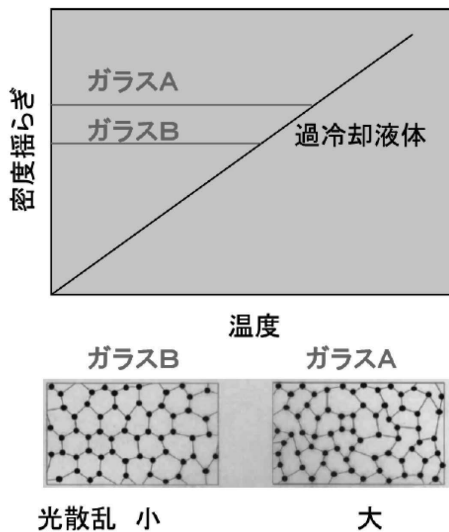


図 7

慮しなければならない。そこで、便利な指標として仮想温度という値がよく用いられる。仮想温度とは大まかに説明すれば、何度の液体の構造が凍結しているのかを表す温度ということに

なる。シリカガラスの仮想温度を変えて光散乱強度を測定してみると、みごとに比例関係にあることがわかる[2]。この結果、なるべく低い仮想温度をもつシリカガラスで光ファイバを作れば(図7)光散乱損失の小さなファイバができることになる[3]。

紙面の関係で、ガラス中の濃度揺らぎによるレーリー散乱や、熱振動による光散乱(ブリルアン散乱やラマン散乱)を説明することができなかったが、これらの散乱も「2次光の干渉で消え切らない成分が四方八方に放出される光散乱として観測される」ということは変わらない(熱振動に由来する場合は、ドップラーシフトを伴うので2次光の振動数が変わることには注意が必要である)。

参考文献

- [1] 櫛田孝司 「光物性物理学」朝倉書店
- [2] K. Saito, et al., Appl. Phys. Lett. 83(2003)5175.
- [3] K. Saito, et al., J. Am. Ceram. Soc. 89(2006)65.