レーザー解説

誘導ラマン散乱の理論的取扱

上原 洋一*・佐々木 亘*

(1980年7月24日 受理)

Theoretical treatments of Stimulated Raman Scattering

Youichi UEHARA and Wataru SASAKI

(Received July 24, 1981)

1. はじめに

誘導ラマン散乱 (Stimulated Raman Scattering, 以下“SRS”と略す) は, 強い単色光 (レーザー光) を物質にあてて散乱させるとき, 散乱された単色光のうちにその物質に特有な量だけ波長がずれたコヒーレントな光 (ストークス光) が混ってでてくる現象である。

SRSは, WoodburgとNeにより, ニトロベンゼンを用いてのカー効果の研究中に偶然見つめられた。この発見に引きつづいて, 多くの物質 (気体, 液体, 固体) においてSRSが観測された。

一方, 実験と平行して, 理論面の研究も多くの研究者によりなされた。その結果, SRSは, 定性的には入射レーザー光が, 物質内で, 自然放出により生成されたストークス光と, 物質の光学的非線形性 $\chi^{(3)}$ を通して相互作用することにより, レーザー光のエネルギーがストークス光に移される現象であると理解された。

SRS研究の初期の頃は, SRS現象そのものが主な研究対象で, 応用面に関しては非線形感受率 $\chi^{(3)}$ の測定など³⁾ごく小数の研究がなされ

ていたにすぎないが, 近年レーザー誘起プラズマからの誘導ラマン散乱および誘導ブリルアン散乱の観測,^{4),5)} 実験プラズマからの誘導ラマン散乱および誘導ブリルアン散乱の観測,^{6),7)} 後方誘導ラマン散乱を用いたレーザー核融合用ラマン増幅器の提案,^{8),9)} など応用的見地からも非常に興味深い研究が報告され, 再びSRSに関する研究が盛んになっている。

筆者らは, 筆者らのプラズマ診断への応用に興味をもち, その可能性を調べる目的でSRSの理論的研究を行っているが, 現在までに報告されているSRS理論を詳しく調べ整理したのでここに紹介させていただく。

現在まで, SRSの実験は, 発振時間の非常に短い高出力パルスレーザーを用いて行なわれている (モード同期によるピコ秒パルスレーザーが, しばしば用いられる) ことを考え, 超短パルスレーザーに対するSRS理論 (以下“TSRS理論”と略す) に限り述べる。また, この種の実験では, ほとんどラマン媒質として気体あるいは液体が用いられているので, 以下の議論では, ラマン媒質は, 気体もしくは液体とした。

* 大阪府立大学工学部電子工学教室 (〒591 堺市百舌鳥梅町4-804)

Department of Electronics, College of Engineering University of Osaka Prefecture (Mozu-umemachi, Sakai, Osaka 591)

2. 誘導ラマン散乱の基礎方程式の導出

先に述べたように、SRSは、レーザー光とストークス光が、ラマン媒質の非線形性を通して相互作用することにより生じる。

以下において、ラマン媒質は、気体もしくは液体であるとする。

このとき、SRSの基礎方程式は、マックスウェルの方程式とシュレディンガー方程式の連立方程式として求まる。

方程式の導出の簡単化のため、次の仮定をおく。

- (1) 誘導ラマン散乱過程において、1次のストークス光と反ストークス光しか生じないとする。
- (2) レーザー光、ストークス光、反ストークス光は、伝播面上で均一な大きさを持ち、無限に広がっているものとする（平面波近似）。
- (3) ラマン媒質は、Fig. 1のように x - y 平面に沿って均一、無限に広がっているとする。
- (4) ラマン媒質は、1種類の静止分子から成っており、個々の分子は独立した分子として扱う。
- (5) 分子のエネルギー準位で、SRS過程に関与するのは、Fig. 2のように3準位のみであるとする。ここで、 $\Delta_L \equiv |\omega_{21} - \omega_L|$ 、 $\Delta_S \equiv |\omega_{32} - \omega_S - \Delta_L|$ とすると、 $\omega_{21} \gg \Delta_L \gg \Gamma_1$ 、 $\omega_{32} \gg \Delta_S$ 、 $\omega_a = 2\omega_L - \omega_S$ という条件が満たれるとする。ただし、 ω_L は、準位 $-i$ と、準位 $-j$ の間の振動数、 Γ_i は、準位 $-i$ の緩和定数、 ω_L 、 ω_S 、 ω_a はそれぞれレーザー光、ストークス光、反ストークス光の搬送周波数である。

仮定(2)、(3)より、レーザー光、ストークス光、反ストークス光は、座標 z と時間 t にのみ依存し、座標 x 、 y には依存しなくなる。

式の導出は、Raymerらによる方法¹¹⁾を簡略化したものである。簡単のため、レーザー光の減衰はないものとし、レーザー光に対する方程式は導出しなかった。よって、導出された方

Fig. 1. Idealized geometry of Raman cell.

Fig. 2. Three-level molecules interacting with a pump laser with frequency ω_L and Stokes laser with frequency ω_S . (after Raymer et. al. (15))

式を議論するときには、レーザー光は一定値をとるものとする。

レーザー光 E_L 、ストークス光 E_S 、反ストークス光 E_a が、Fig. 2の系に作用しているとする。このとき、

$$E_L = \tilde{\epsilon}_L x_L \exp\{i(\omega_L t - k_L \cdot r)\} + (\text{c.c.})$$

$$\tilde{\epsilon}_L = \epsilon_L \exp(i\phi_L) \quad (1)$$

$$E_S = \tilde{\epsilon}_S x_S \exp\{i(\omega_S t - k_S \cdot r)\} + (\text{c.c.})$$

$$\tilde{\epsilon}_S = \epsilon_S \exp(i\phi_S) \quad (2)$$

$$E_a = \tilde{\epsilon}_a x_a \exp\{i(\omega_a t - k_a \cdot r)\} + (\text{c.c.})$$

$$\tilde{\epsilon}_a = \epsilon_a \exp(i\phi_a) \quad (3)$$

ここで、 $\epsilon_{L,S,a}$ 、 $k_{L,S,a}$ 、 $x_{L,S,a}$ 、 $\omega_{L,S,a}$ 、 $\phi_{L,S,a}$ は、レーザー光、ストークス光、反ストークス光の実振幅、波動ベクトル、偏向ベクトル、搬送周波数および位相成分である。また r は、位置ベクトルである。

まずラマン媒質の方程式について述べる。分子の非振動ハミルトニアンを $\hat{H}_0$ とすると、振動下のハミルトニアン $\hat{H}$ は、 $\hat{d}$ を双極子遷移演算子として、

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \hat{d}_0 \cdot (\mathbf{E}_L + \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_a) \quad (4)$$

となる。分子の状態は、

$$\begin{aligned} \phi = & a_1 \exp(-i\omega_1 t) \phi_1 + a_2 \exp(-i\omega_2 t) \phi_2 \\ & + a_3 \exp(-i\omega_3 t) \end{aligned} \quad (5)$$

と書ける。ここで ϕ_i は、エネルギー $\hbar\omega_i$ をもつ分子の固有関数である。 $t = -\infty$ (無摂動状態) において分子は基底状態にあるとする ($a_1 = 1$, $a_2 = a_3 = 0$)。 $t > -\infty$ で a_i は、次の方程式に従う。

$$i\hbar \dot{a}_1 = -\mathbf{d}_{12} \cdot (\mathbf{E}_L + \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_a) a_2 \exp(-i(\omega_2 - \omega_1)t) \quad (6)$$

$$i\hbar \dot{a}_2 = -\mathbf{d}_{21} \cdot (\mathbf{E}_L + \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_a) a_1 \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) - \mathbf{d}_{23} \cdot (\mathbf{E}_L + \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_a) a_3 \quad (7)$$

$$\times \exp(-i(\omega_3 - \omega_2)t) - i\hbar a_2 \Gamma_2 \quad (7)$$

$$i\hbar \dot{a}_3 = -\mathbf{d}_{32} \cdot (\mathbf{E}_L + \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_a) \cdot a_2 \cdot \exp(-i(\omega_2 - \omega_3)t) - i\hbar a_3 \Gamma_3 \quad (8)$$

ここで、現象論的に緩和項 $i\hbar a_i \Gamma_i$ ($i = 2, 3$) を導入した。また $\mathbf{d}_{ij} \equiv \langle \phi_i | \mathbf{d} | \phi_j \rangle$ である。

(6), (7), (8) を摂動法を用いて計算すると次のようになる。

$$a_1 = 1 \quad (9)$$

$$a_2 = \hbar^{-1} \{ \tilde{\epsilon}_L \exp(i\{(\omega_2 - \omega_1 + \omega_L)t - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\}) \cdot (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1} \cdot \mathbf{d}_{12L}$$

$$+ \tilde{\epsilon}_L^* \exp(i\{(\omega_2 - \omega_1 - \omega_L)t + \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\})$$

$$(\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} \mathbf{d}_{12L}$$

$$+ \tilde{\epsilon}_s \exp(i\{\omega_2 - \omega_1 + \omega_s)t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}\}) (\omega_2$$

$$- \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_s)^{-1} \mathbf{d}_{12s}$$

$$+ \tilde{\epsilon}_s^* \exp(i\{\omega_2 - \omega_1 - \omega_s)t + \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}\}) (\omega_2$$

$$- \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_s)^{-1} \mathbf{d}_{12s}$$

$$+ \tilde{\epsilon}_a \exp(i\{\omega_2 - \omega_1 + \omega_a)t - \mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}\}) (\omega_2$$

$$- \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_a)^{-1} \mathbf{d}_{12a}$$

$$+ \tilde{\epsilon}_a^* \exp(i\{\omega_2 - \omega_1 - \omega_a)t + \mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}\}) (\omega_2$$

$$- \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_a)^{-1} \mathbf{d}_{12a} \quad (10)$$

$$i\hbar \dot{a}_3 = -\hbar^{-1} \{ [d_{32L} \cdot \mathbf{d}_{12a} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_a)^{-1}$$

$$+ d_{32a} \mathbf{d}_{12L} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1}]$$

$$\times \tilde{\epsilon}_a^* \tilde{\epsilon}_L \exp(i\{(\omega_L - \omega_a)t + \mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}$$

$$- \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\}) + [d_{32L} \cdot \mathbf{d}_{12s} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_s)^{-1}$$

$$+ \omega_s)^{-1} + d_{32s} \mathbf{d}_{21L} \cdot (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2$$

$$\begin{aligned} & \omega_L)^{-1}] \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s \exp(i\{(\omega_s - \omega_L)t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r} \\ & + \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\}) \} \times \exp(i(\omega_3 - \omega_1)t - i\hbar a_3 \Gamma_3) \end{aligned} \quad (11)$$

a_i が求まったので、 N を単位体積当りの分子密度として $N \langle \phi | \mathbf{d} | \phi \rangle$ を計算することで分極率 $\mathbf{P}$ が、次式のように求まる。

$$\mathbf{P} = N \mathbf{d}_{12} a_2 (\exp(i\{\omega_2 - \omega_1\}t) + N \mathbf{d}_{23} a_3^* a_3 \quad (12)$$

(12式の右辺第1項は、線形分極 $\mathbf{P}_L$ であり、第2項は、非線形分極 $\mathbf{P}_{NL}$ である。

次に電場の方程式について述べる。気体などの等方性媒質について波動方程式は次のようになる。

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (13)$$

ここで、 c は光速である。(12式で求まった $\mathbf{P}$ を(13式に代入して、両辺で搬送周波数が一致するものについて考えると、次式が得られる。

$$\begin{aligned} & (\nabla^2 - \frac{n_s^2}{c^2} \cdot \frac{\partial^2}{\partial t^2}) \cdot (\tilde{\epsilon}_s \exp(i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}))) \\ & = \frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{ N d_{32s} d_{21L} \tilde{\epsilon}_L \exp(i\{(\omega_L - \omega_3 + \\ & + \omega_1)t - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\}) \times (\omega_2 - \omega_1 + i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} \\ & \cdot a_3^* \} \end{aligned} \quad (14)$$

$$\begin{aligned} & (\nabla^2 - \frac{n_a^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) (\tilde{\epsilon}_a \exp(i(\omega_a t - \mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}))) \\ & = \frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{ N d_{23a} \cdot d_{12s} \tilde{\epsilon}_L \exp(i\{(\omega_L + \omega_3 \\ & - \omega_1)t - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}\}) \times (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1} a_3 \} \end{aligned} \quad (15)$$

ここで、 $\mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}_L = n^2 \mathbf{E}$ を用いた。 $*$ ただし、 n は、媒質の屈折率である。さらに、 $\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{e}_s \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_s \gg \frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\epsilon}_s$, $\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{e}_a \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_a \gg \frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\epsilon}_a$ の近似を用いると、** (14), (15) 式は、次のようになる。

$$\begin{aligned} & -i \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{e}_s \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_s - i \omega_s \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_s = -\frac{2\pi}{c^2} N d_{32s} d_{21L} \\ & \times \tilde{\epsilon}_L a_3^* \exp(i\{(\omega_L - \omega_s + \omega_1 - \omega_s)t \end{aligned}$$

* 一般に、 $\mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}_L = \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}$ となり、 $\mathbf{e}$ はテンソルとなる。等方媒質では、 $\mathbf{e}$ はスカラー $\mathbf{e} (=n^2)$ となる。ここでは簡略化した分子 (Fig. 2 を用いた) で、このことを陽に計算で示すことはできない。

** この近似の詳細については、例えば文献16)を参照。

$$-k_L \cdot r + k_s \cdot r\} \times (\omega_2 - \omega_1 + i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} \cdot (\omega_L - \omega_3 + \omega_1)^2 \quad (16)$$

$$-ik_a \cdot e_z \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_a - i\omega_a \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_a = -\frac{2\pi}{c^2} Nd_{12L} d_{23a} \times \tilde{\epsilon}_L a_s \exp\{i[(\omega_L + \omega_s - \omega_1 - \omega_a)t - k_L \cdot r + k_a \cdot r]\} \times (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1} \cdot (\omega_L + \omega_3 - \omega_1)^2 \quad (17)$$

a_s の方程式(1)と、 $\tilde{\epsilon}_s$ の方程式(16)、 $\tilde{\epsilon}_a$ の方程式(17)は、閉じた方程式系を構成しており、これがSRSの方程式となる。

多くの文献で用いられている記号と合せるために、記号“ Q ”を導入する。 Q は、従来フォノン振幅として意味づけられていたが、ここでは単に単位-3の波動振幅 a_s に比例するものとなる。

$$Q \equiv a_s \exp\{i(k_s - k_L) \cdot r\} \quad (18)$$

Q を用いてSRSの方程式を書くと、次のようになる。

$$k_s \cdot e_z \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_s + \omega_s \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_s = -i \frac{2\pi}{c^2} Nd_{32s} d_{21L} \times \tilde{\epsilon}_L Q \exp\{i[(\omega_L - \omega_3 + \omega_1 - \omega_s)t - (\omega_2 - \omega_1 + i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} \cdot (\omega_L + \omega_1 - \omega_3)^2] \quad (19)$$

$$k_a \cdot e_z \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_a + \omega_a \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_a = -i \frac{2\pi}{c^2} \cdot N \cdot d_{12L} d_{32a} \times \tilde{\epsilon}_L Q^* \exp\{i[(\omega_L - \omega_3 - \omega_1 - \omega_a)t - (2k_L - k_s + k_a) \cdot r] \cdot (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1} \cdot (\omega_L + \omega_3 - \omega_1)^2 \quad (20)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} Q + \Gamma_3 Q = i\hbar^{-2} \{d_{32L} d_{21a} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_a)^{-1} + d_{32a} d_{21L} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_L)^{-1}\} \times \tilde{\epsilon}_a^* \tilde{\epsilon}_L \exp\{i(\omega_L - \omega_a)t + (k_s + k_a - 2k) \cdot r\} + (d_{32L} d_{21s} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_s)^{-1} + d_{32s} d_{21L} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1}) \times \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s \exp\{i(\omega_s - \omega_L)t\} \exp\{i(\omega_3 - \omega_1)t\} \quad (21)$$

(19), (20), (21)式から分かるように、SRS過程は、レーザー光とストークス光、反ストークス光が、相互作用をして Q をつくり、その Q とレーザー光が、相互作用をしてストークス光、反ストークス光を生成する過程である。

3. 方程式とその性質

TSRSの理論的解析は、多くの研究者によりなされている^{12), 13), 14), 17)}。ここでは、Carmanら^{13), 18)}に従って方程式(19), (20), (21)を解き、TSRSの基本的性質を述べる。

方程式を解くにあたり次の仮定をおく。

- [1] レーザー光の振幅は一定である。
- [2] 反ストークス光 E_a は存在しない。
- [3] $\omega_2 - \omega_1 - \omega_L + \omega_s = 0$ の関係が成立する。
- [4] 線形分散がない。すなわち、レーザー光、ストークス光のそれぞれのパルスの群速度を v_L , v_s とするとき、 $v_L = v_s \equiv v$ となる。

- [5] (1), (2)式で ϕ_L と ϕ_s は定数である (このとき、位相変動がないといわれる)。

- [6] k_L と k_s はともに z 軸と平行である。

これらの仮定より、解くべき方程式は、

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_s + \frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_s = -i \frac{2\pi}{c^2} Nd_{23s} d_{12L} \frac{\omega_s}{v} (\omega_2 - \omega_L + i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} \tilde{\epsilon}_L Q \quad (22)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} Q + \Gamma_3 Q = i\hbar^{-2} \{d_{32s} d_{21L} (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 - \omega_L)^{-1} + d_{32L} d_{12s} \times (\omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_2 + \omega_s)^{-1}\} \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s \quad (23)$$

となる。ここで簡単のために、(22)式の右辺の $\tilde{\epsilon}_L Q^*$ の係数を $-ia$ 、(23)式の右辺の $\tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s$ の係数を ib とおく。さらに変数 t , z に代つて、変数 $t' \equiv t - \frac{z}{v}$, $z' = z$ を導入すると、(22), (23)式は次のようになる。

$$\frac{\partial}{\partial z'} \tilde{\epsilon}_s = -ia \tilde{\epsilon}_L Q \quad (24)$$

$$\frac{\partial}{\partial t'} Q + \Gamma_3 Q = ib \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s \quad (25)$$

(26), (27)式から、 ϵ_s あるいは Q の方程式を導出すると、次のようになる。

$$\frac{\partial^2}{\partial t' \partial z'} U - ab |\tilde{\epsilon}_L|^2 U = 0 \quad (26)$$

ここで、 $U = F e^{i\tau}$ で、 F は $\tilde{\epsilon}_s / \tilde{\epsilon}_L$ あるいは Q である。

$$\tau(t') \equiv \int_{-\infty}^{t'} |\tilde{\epsilon}_L|^2 dt'' \quad (27)$$

で $\tau(t')$ を定義し、(26)で t' の代わりに τ を用いると、

$$\frac{\partial^2}{\partial \tau \partial z'} U - abU = 0 \quad (28)$$

となる。(28)の解は、リーマン法¹³⁾により求まる。初期条件を、 $t \rightarrow -\infty$ で $Q=0$ 、 $z=0$ で $\tilde{\epsilon}_s = \tilde{\epsilon}_{s0}$ にとると、 $\tilde{\epsilon}_s$ 、 Q は次のようになる。

$$\begin{aligned} \tilde{\epsilon}_s &= \tilde{\epsilon}_{s0} + (abz)^{1/2} \tilde{\epsilon}_L \int_{-\infty}^{t'} \exp(-\Gamma_3(t' - t'')) \\ &\quad \times (\tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_{s0} [\tau(t') - \tau(t'')])^{-1/2} \\ &\quad \times I_1[2\{abz'[\tau(t') - \tau(t'')]^{1/2}\}] dt'' \quad (29) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} Q &= ib \int_{-\infty}^{t'} \exp(-\Gamma_3(t' - t'')) (\tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_{s0} \\ &\quad \times I_0[2\{abz'[\tau(t') - \tau(t'')]^{1/2}\}] dt'' \quad (30) \end{aligned}$$

ここで、 $I_i (i=0, 1)$ は変形ベッセル関数である。

変形ベッセル関数 $I_i(x)$ は、 x が大きくなると、 $I_i \sim (2\pi x)^{-1/2} e^x$ という漸近特性をもつ¹⁹⁾ことを考慮すると、(29)式の引数が大きくなる大振幅極限で、

$$\begin{aligned} \tilde{\epsilon}_s &\propto \tilde{\epsilon}_L \int_{-\infty}^{t'} \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_{s0} [\tau(t') - \tau(t'')]^{-1} \\ &\quad \times \exp\{-\Gamma_3(t' - t'') + 2[ab(\tau(t') - \\ &\quad - \tau(t''))z']^{1/2}\} \quad (31) \end{aligned}$$

となる。

ここで、 $t=0$ で立ち上がるステップ状パルスレーザー光に対して、 $t > abz\Gamma_3^{-1} |\tilde{\epsilon}_L|^2$ のとき、(32)式の右辺は、定常状態ラマンゲインをもつ。したがって、 $T_p > abz\Gamma_3^{-1} |\tilde{\epsilon}_L|^2$ となるパルス長さ T_p をもつレーザー光に対しては、定常状態理論が適用されう。

次にレーザー光のパルス長さ T_p が、緩和時間 Γ_3^{-1} より短いようなTSRSについて述べる。このとき、(29)式中の $\exp[-\Gamma_3(t' - t'')]$ は1とあける。(29)からストークス光は、レーザーパルスの先端ではあまり大きくなり、レーザー電場が大きくなるにつれ被積分関数中の I_1 のために急激に大きくなり、レーザー光が0になると積分にかかっている $\tilde{\epsilon}_L$ のために0になる。このことより、ストークス光のピークは、レーザー光

のピークより遅れて現れ、またストークス光のパルス幅は、レーザー光のパルス幅より狭くなる。 Q は、 $\tilde{\epsilon}_L=0$ となった後には時定数 Γ_3^{-1} で減衰するほかは、 $\tilde{\epsilon}_s$ と同様にふるまう。

(29)の I_1 をその漸近関数でおきかえるような大振幅極限でのストークスパルスの最大値は、

$$(\tilde{\epsilon}_s)_{\max} \propto \exp(G_T/2) \quad (32)$$

となる。ここでトランジント利得 G_T は、

$$G_T = 4[ab < |\tilde{\epsilon}_L|^2 > T_p z']^{1/2} \quad (33)$$

$$< |\tilde{\epsilon}_L|^2 > T_p = \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{\epsilon}_L|^2 dt' \quad (34)$$

となる。

(32)式より、TSRSにおいて、利得 G_T は、

1. 距離 z の平方根に比例する。
2. ラマン媒質の緩和定数に依存しない。
3. レーザー光のパルスの形に依存しない。

などの特性をもつ。比較のために定常状態SRSにおける利得 G_{ss} の特性をあげると、

1. 距離 z に比例する
2. ラマン媒質の緩和定数の逆数に比例するとなる。

Carmanら¹³⁾は、いろいろなパルスの形($I_L = I_{\max} \exp(-|t'|/\Gamma)^n$)およびガウス形(G)、ローレンツ形(L)で表わされるパルス)をもつレーザー光について(29)式の計算を行い、上記のトランジエント利得特性を確めた。すなわちFig. 3に示したように、 G_T はレーザー光のパルス形にほとんど依存せず、またFig. 4に示したように G_T は高利得のところ($\Gamma t_p = 0.01$ で $G_T > 10$ のところ。)で、 $z^{1/2}$ に比例している。ここで図中の Γ 、 t_p は、本文中の Γ_3 、 T_p と同じである。

4. TSRS理論の拡張

3で行なったSRS方程式の解の導出に際し、種々の仮定がなされた([1]～[6])。このうちのいくつかの仮定については、それをはずした場合へのTSRS理論の拡張が試みられている。これについては以下で述べる。

Fig. 3. The transient Raman gain coefficient G_T as a function of the steady-state gain G_{SS} , which would be obtained for a constant laser intensity equal to the maximum pulse intensity. The pulses of different shapes are normalized to the same total laser energy and same pulse width at half-maximum amplitude $t_p = 0.1 \Gamma^{-1}$. (after Carman et al. (13))

Fig. 4. The transient Raman gain coefficient for Gaussian laser input pulses with the same total energy, but different pulsewidths. The steady-state gain coefficient G_{SS} corresponds to a constant-intensity laser output equal to the maximum laser-pulse intensity. (after Carman et al. (13))

Fig. 5. An envelope of light pulse.

4.4.1 位相変動がある場合

4で考えたレーザー光とストークス光は, Fig. 5に示すようなパルスが $\exp(i(\omega_L t - \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}))$, $\exp(i(\omega_S t - \mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}))$ で変調を受けたようなものである。

一方例えばSRSの実験に用いられるモード同期レーザー光は, ランダムな位相変動をすることが報告されている²⁰⁾ すなわち, 位相 ϕ_L が変動する場合を考える必要がある。

Carmanら¹³⁾は, (1)式で $\phi_L(t')$ のような位相項をもつ入射レーザー光に対し,

$$\tilde{\epsilon}_S = \epsilon_S \exp(i\phi_S = \epsilon_S \exp(i(\phi_L(t') + \phi_0))) \quad (35)$$

$$Q = |Q| \exp(i(-\frac{\pi}{2} - \phi_0)) \quad (36)$$

となる場合, ϵ_S , $|Q|$ に対し, (24), (25)式が成り立つことを指摘した。すなわちこの場合, ϵ_S , $|Q|$ に対して, 3で述べた性質が成り立つ。

またCarmanら¹³⁾は, $\phi_L(t') = \frac{1}{2} K t'^2$ (K は定数) の場合について, 入力ストークス光の ϕ_S が定数であるときの利得, ストークス光のパルスの形, および ϕ_S を数値計算により求めた。そしてこの場合, 高利得のときには, ストークス光のパルスの形は ϕ_L が定数のときのパルスの形とほとんど変わらないことおよび ϕ_S は $\phi_L(t')$ に従うことを指摘した。

一般の $\phi_L(t')$ について, ストークス光がどのようなになるかは, また調べられていないようである。

4.2 分散がある場合

通常実験で用いられるラマン媒質は, 線形分散をもっており, $v_L = v_S$ とおくことは適当でない。以下でCarmanら¹³⁾の報告にもとづいて線形分散がSRS過程に対してどのような影響を及ぼすかを定性的に議論する。

線形分散は次の2点でSRSに影響を与える。

1. レーザー光が位相変動をもつとき, 非分散の場合のように $\tilde{\epsilon}_S$ の位相をうまくとってその影響を消すことができない。
2. レーザー光パルスとストークス光パルスの群速度が異なるため, 両パルスが時間の経

過とともに分離する。

まず1については、レーザー光が位相変動をもつとき、ストークス光の位相変動を、非分散の場合のように、 $\phi_s = \phi_L(t) + (\text{定数})$ とできない。したがって、(25)式の Q の駆動項 $\tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s$ は符号の変化を伴うことになり、利得は、分散のないときに比べて低下する。

次に2について述べる。レーザー光のパルスの持続時間を T_P とすると、 $T_P < \Gamma_3^{-1}$ のときには、正常分散($v_L > v_s$)か異常分散($v_L < v_s$)かにより結果が異なる。前者の場合、レーザー光がストークス光をおいぬいた時点で、SRSによるストークス光の増幅過程は終了する。すなわち分散のために、利得は飽和する。後者の場合、レーザー光はストークス光に対して遅れですが、ストークス光が通過したすぐ後、すなわち Q の緩和時間 Γ_3^{-1} より短い時間内では、まだ Q が大きく励起されたままである。3で述べたように、この Q とレーザー光の相互作用によりストークス光が生成される。この過程が繰返されて大きなゲインをもったSRS過程が生じる。

$T_P > \Gamma_3^{-1}$ のときには、レーザー光パルスとストークス光パルスが分離した時点でSRS過程は終了する。すなわち分散のために利得は飽和する。

Carmanら¹³⁾は、上で述べた諸過程が利得に及ぼす影響を半定量的に算出している。またA Akamanovら¹⁴⁾とHermann²¹⁾は、レーザー光を方形波パルスで近似して、分散のある場合のSRS過程の計算を行い、上述の定性的予想を確めた。

4.3 反ストークス光が存在する場合

誘導ラマン散乱の実験において、ストークス光とともにかなり強い反ストークス光も生成されていることが知られている²²⁾

反ストークス光も含めたSRS過程の研究は、定常性を仮定した場合について、Shenら¹⁰⁾やTangら¹¹⁾によりなされた。この結果、Fig. 6, Fig. 7に示すようにストークス光、反ストーク

Fig. 6. The stokes power gain as a function of the normalized linear momentum mismatch $\Delta k/G_R$ in the z direction. (after Kaiser and Maier (35))

Fig. 7. Anti-stokes intensity versus the linear momentum mismatch Δk (normalized by the stokes power gain G_R). (after Kaiser and Maier (35))

ス光は、 $\Delta k \equiv \mathbf{e}_z \cdot (\mathbf{k}_s + \mathbf{k}_a - 2\mathbf{k}_L)$ に依存することがわかった。すなわち $\mathbf{k}_L$ に対して、 $\mathbf{k}_s$ 、 $\mathbf{k}_a$ がある最適な角度をもつとき、ストークス光、反ストークス光は、最大ゲインをもつ（位相整合条件）。このことは、SRS過程の実験で観測されるリング状散乱を説明するものとされている*。

トランジェント状態 ($T_p < \Gamma_s^{-1}$) における反ストークス光も含めたSRS過程の研究は、Hermannにより、(19), (20), (21)を漸近近似法で解くことによりなされた。その解は、

$$\tilde{\epsilon}_a = c_a e^u \exp[i\phi_L - i\Delta k z'/2] \quad (37)$$

$$\tilde{\epsilon}_s = c_s e^u \exp[i\phi_L - i\Delta k z'/2] \quad (38)$$

の形で与えられている。²¹⁾ ここで ϕ_L は、レーザー光の位相で定数にとられている。

Fig. 8. Dependence of the gain factor for coupled stokes and anti-stokes waves on the phase mismatch $k(x = \Delta k/g_s)$. (after Hermann (21))

Fig. 9. Dependence of the intensity of the anti-stokes radiation on the phase mismatch Δk at $g_s = 10$. (after Hermann (21))

* セルフフォーカシングが生じているときには、ここで予想されるよりも大きな散乱角で反ストークス光が生じている。³²⁾

ストークス光の利得 u は、 Δk の関数として得られ、Fig. 8 のようになる。また反ストークス光の強度は、Fig. 9 のようになる。

Fig. 8, Fig. 9 より、TSRSにおいても、定常SRSと同様位相整合条件をもつことがわかる。

4.4 レーザー光の減衰がある場合

誘導ストークス光が大きくなり、その大きさが、入射レーザー光の強度と同程度になると、レーザー光の減衰は、顕著なものとなる。SRSの実験は、このようなレーザー光の減衰が顕著になるいわゆる飽和領域においてもなされているので、レーザー光の強度が一定であるとした前述の理論には、適用限界がある。

レーザー光も含めたSRS方程式は、2の計算を少し拡張することにより、以下のようになる。ただしここで、 $E_a = 0$ とした。

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_L + \frac{1}{v_L} \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_L = i a \tilde{\epsilon}_s Q^* \quad (39)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\epsilon}_s + \frac{1}{v_s} \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\epsilon}_s = i b \tilde{\epsilon}_L Q \quad (40)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} Q + \Gamma_s Q = -i c \tilde{\epsilon}_L^* \tilde{\epsilon}_s \quad (41)$$

ここで、 a, b, c は定数である。

この方程式は現在のところ、 $\tilde{\epsilon}_L, \tilde{\epsilon}_s$ の変化が十分おそく、(41)で $\partial Q / \partial t$ が $\Gamma_s Q$ に対して無視でき、かつ非分散である場合のみ議論されている。¹⁸⁾ ところで通常、 $\tilde{\epsilon}_s$ は、 $z=0$ すなわちラマンセル端面では、自然放光である。自然放光ストークス光は、 Γ_s^{-1} 程度の持続時間しかないと考えられるから、 $\tilde{\epsilon}_L$ の変化が十分ゆっくりでも上述の近似を用いることはできない。

このような場合をBetinら²³⁾ は次のように扱った。すなわち、 $\tilde{\epsilon}_L$ の減衰は、 $\tilde{\epsilon}_L \sim \tilde{\epsilon}_s$ となったときに顕著になることを考えて、 $\tilde{\epsilon}_s$ が、 $\tilde{\epsilon}_s = a \tilde{\epsilon}_L$ ($a < 1$) となるまでは、レーザー光の減衰を無視した3の方法でストークス光を算出する。ところでこの時点での $\tilde{\epsilon}_s$ は、 $\tilde{\epsilon}_L$ と同程度の持続時間をもっている。したがってこの $\tilde{\epsilon}_s$ を初期値にとり、(39), (40), (41)を上述の近似のもとに計算する。

レーザー光のパルス幅 Γ_p が Γ_3 以下のような場合には, (39), (40), (41)は, また解析されていないようである。

5. ブロードバンドレーザー光によるSRS

位相変動をもつようなパルス光は, ϕ_L のために, パルスの持続時間を T_p とすると, $1/T_p$ よりもずっと広いスペクトル幅をもつことができる。このように $1/T_p$ により広いスペクトル幅をもつレーザー光が, 存在する(以下では, このようなレーザー光を“ブロードバンドレーザー光”とよぶ)。このような“ブロードバンドレーザー光”によるSRSの研究は, いくつか発表されている。^{15), 25), 26), 34)}ここでは, Raymerら¹⁵⁾のランダムな位相変動モデルに基づく議論とTrutnaら²⁶⁾の結合モード方程式に基づく議論について述べる。

5.1 ランダムな位相変動モデルに基づく議論

レーザー光の位相 ϕ_L のランダムなゆらぎにより, “ブロードバンドレーザー光”をモデル化し, “ブロードバンドレーザー光”によるSRS過程を議論しようとするのが, Raymerら¹⁵⁾のランダムな位相変動モデルである。

$$\left. \begin{aligned} \tilde{\varepsilon}_L &= \varepsilon_L \exp(i\phi_L) & \varepsilon_L &= \varepsilon_{L0} \quad (t' > 0) \\ & & \varepsilon_L &= 0 \quad (t' < 0) \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

のようなステップ関数状のレーザー光により生成されるストークス光は, (29)より

$$\begin{aligned} \tilde{\varepsilon}_s &= \tilde{\varepsilon}_{s0} + (abz)^{1/2} \tilde{\varepsilon}_L \int_0^{t'} \exp(-\Gamma_3(t' - t'')) \\ &\times (\tilde{\varepsilon}_L^* \tilde{\varepsilon}_{s0} [\tau(t') - \tau(t'')]^{-1/2} \times T_1[2] \\ &\times I_1[2] abz' [\tau(t') - \tau(t'')]^{1/2}] dt'' \quad (43) \end{aligned}$$

となる。

(42)式のような電場で, ϕ_L がランダム変数であり, $\tilde{\varepsilon}_L$ の自己相関は, Γ_L^{-1} 時間程度であるとする。すなわち $\langle \tilde{\varepsilon}_L(t' + \delta') \cdot \tilde{\varepsilon}_L(t') \rangle = \varepsilon_{L0}^2 \exp(-\Gamma_L |\delta'|)$ であるとする。ここで $\langle \rangle$ は, 平均を表わす。

このような電場のパワースペクトル $P_L(\omega)$ を求めると次のようになる。

$$\begin{aligned} P_L(\omega) &= \frac{1}{2\pi} \int e^{-i\omega s} \langle \tilde{\varepsilon}_L(\tau) \tilde{\varepsilon}_L^*(\tau + s) \rangle ds \\ &= \frac{\Gamma_L / \pi}{\omega^2 + \Gamma_L^2} \varepsilon_{L0}^2 \quad (44) \end{aligned}$$

これは, スペクトル幅 Γ_L のローレンツ広がりをもつ“ブロードバンドレーザー光”のスペクトルと同じである。このことより, “ブロードバンドレーザー光”によつて生ずるストークス光のスペクトル広がりをもつ

$$P_s(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int \langle \tilde{\varepsilon}_s(z, t') \cdot \tilde{\varepsilon}_s^*(z', t' + s) \rangle e^{-i\omega s} ds \quad (45)$$

で, また利得を

$$\langle \tilde{\varepsilon}_s^2 \rangle \quad (46)$$

で算出しようとするのが, ランダムな位相変動モデルである。

ストークス光のラマンセル壁面でのスペクトルル広がりをもつ Γ_3 とすると,

$$\langle \tilde{\varepsilon}_s(0, t') \tilde{\varepsilon}_s^*(0, t' + \delta) \rangle = \varepsilon_{s0}^2 \exp(-\Gamma_3 |\delta|) \quad (47)$$

となる。

このとき(45)を, 1) $\Gamma_L = 0$ で $\Gamma_s = 0$ すなわち, レーザー光, 入力ストークス光がともに単色であるとき, 2) $\Gamma_L = 0$ で $\Gamma_s \gg \Gamma_3$ すなわち, レーザー光は単色であるが, 入力ストークス光はラマン媒質の緩和定数 Γ_3 より広いスペクトル広がりをもつとき, 3) $\Gamma_L \gg \Gamma_3$ すなわち, レーザー光はラマン媒質の緩和定数 Γ_3 より広いスペクトル広がりをもつとき, の各場合について求めると次のようになる。

$$\begin{aligned} 1) \quad P_s(\omega) &= \delta(\omega) \varepsilon_{s0}^2 \exp(gz) \\ 2) \quad P_s(\omega) &= \frac{\Gamma_s^2}{\omega^2 + \Gamma_s^2} \left(\frac{gz}{\pi \Gamma_s^2} \right)^{1/2} \exp\left(-gz \frac{\omega^2}{\omega^2 + \Gamma_s^2}\right) \\ &\times \varepsilon_{s0}^2 \left(2 \exp\left(\frac{g_{BB} z}{2}\right) - 1 \right) \\ 3) \quad P_s(\omega) &= \frac{\Gamma_L / \pi}{\omega^2 + \Gamma_L^2} \exp\left(-gz \frac{\omega^2}{\omega^2 + \Gamma_s^2}\right) \varepsilon_{s0}^2 \\ &\left(2 \exp\left(\frac{g_{BB} z}{2}\right) - 1 \right) \end{aligned}$$

ここで, $g = \alpha/2\Gamma_3$ であり, $\alpha = 4ab\epsilon_{Lo}^2$, $g_{BB} = \alpha/2 \cdot (\Gamma_3 + \Gamma_L + \Gamma_s)$ である。

1) からわかるように, レーザー光, 入力ストークス光が単色ならば, 誘導ストークス光も単色となる。また 2) から, レーザー光が単色でストークス光のスペクトルが Γ_3 より広がっているときには, 誘導ストークス光は, 指数関数中の $\omega^2/(\omega^2 + \Gamma_3^2)$ のために, 入力スペクトルより狭いスペクトルをもつことがわかる。3) からわかるように, レーザー光のスペクトルが Γ_3 より広いときには, 誘導ストークス光のスペクトルは, 入力ストークス光のスペクトルに関係なく決定される。

ストークス光の利得を(46)より, 1) $t \ll \Gamma_3^{-1}$, 2) $t \gg \Gamma_3^{-1}$ の2つの時間領域の場合について求めると次のようになる。

$$1) \langle \epsilon_s^2 \rangle = \frac{\epsilon_{s0}^2}{2\pi} \cdot \frac{\exp(2(\alpha z t')^{1/2})}{2(\Gamma_L + \Gamma_s)} \quad (\text{高利得})$$

$$2) \langle \epsilon_s^2 \rangle = \epsilon_{s0}^2 \frac{\Gamma_3}{\Gamma_L + \Gamma_s} \cdot \frac{e^{gz}}{(\pi g z)^{1/2}} \quad (\text{高利得})$$

いずれも高利得極限の場合について書いた。ここで高利得極限とは, (46)の計算に際して, 変形ベッセル関数 I_1 をその漸近式でおきかえられる場合を意味する。

1) から, ブロードバンドTSRSの場合は, ブロードバンドでない場合の(32)式と一致する。また 2) より, 定常状態の場合にも, ブロードバンドでない場合の定常状態利得とほぼ一致する利得をもつ。相違点は, 分母の $(gz)^{1/2}$ であり, これらは今の場合高利得極限を考えているのであるから重要でない。

5.2 結合モード方程式に基づく議論

Trutna ら²⁶⁾ によるこのモデルでは, “ブロードバンドレーザー光” を単色光の集りとして次のように表わす。

$$E_L = \sum_n \left\{ \frac{1}{2} \tilde{\epsilon}_{Ln}(z, t) \exp(ik_{Ln}z - i\omega_{Ln}t) + (\text{c. c.}) \right\} \quad (48)$$

そして増幅されるストークス光を

$$E_s = \sum_n \left\{ \frac{1}{2} \tilde{\epsilon}_{sn}(z, t) \exp(ik_{sn}z - i\omega_{sn}t) + (\text{c. c.}) \right\} \quad (49)$$

で表わし, $\omega_{Ln} - \omega_{sn} = \omega_v$ の関係があるものとする。ここで ω_v は, 分子の振動周波数である。

レーザー光の減衰はないものとして, (48)式と(49)式を, (19), (21)に代入すると結合方程式が得られる。さらに, $\frac{\partial Q}{\partial t} = 0$ という定常状態近似を用いると最終的に次のようになる。

$$\frac{d}{dz} \tilde{\epsilon}_{sq} = 2c \frac{ab}{\Gamma_3} \epsilon_{Lq} \sum \tilde{\epsilon}_{Ln}^* \tilde{\epsilon}_{sn} \exp(-i\Delta k_m z) \quad (50)$$

ここで, $\Delta k_n = k_{Ln} - k_{sn} - k_v$, $k_v = k_{Lo} - k_{so}$ であり, k_{Lo} , k_{so} はそれぞれ “ブロードバンドレーザー光” とストークス光の中心周波数 ω_{Lo} , ω_{so} での波数である。

E_L と E_s が, 周波数幅 σ_L と σ_s のガウス形の広がりをもつ場合, すなわち,

$$|\tilde{\epsilon}_{Lm}| = |\tilde{\epsilon}_{Lo}| \exp\left(-\left(\frac{n\Delta\omega}{\sigma_L}\right)^2\right) \quad (51)$$

$$|\tilde{\epsilon}_{sn}| = |\tilde{\epsilon}_{so}| \exp\left(-\left(\frac{n\Delta\omega}{\sigma_s}\right)^2\right) \quad (52)$$

のとき, ストークス光パワー $I_s \equiv \sum |\tilde{\epsilon}_{sq}|^2$ に対する利得を(50)を用いて求めると以下のようなになる。まず非分散の場合すなわち(50)式で $\Delta k_n = 0$ のとき, 利得は, $g_s \frac{2\sigma_L\sigma_s}{\sigma_L^2 + \sigma_s^2}$ となる。ここで g_s は, (ブロードバンドでないときの) 定常ストークス光利得である。次に分散があるときには, ストークス光強度 I_s は,

$$I_s(z) = I_s(0) \exp\left(\int_0^z g_s \exp\left[-\left(\frac{\sigma\Delta k}{2\Delta\omega}\right)^2 z^2\right] dz\right)$$

となる。ここで, $\sigma_L = \sigma_s = \sigma$ とした。 $z \rightarrow \infty$ でゲインは, $g_s \left(\frac{\sqrt{\pi}\Delta\omega}{\sigma\Delta k}\right)$ となる。すなわち, “ブロードバンドレーザー光” によるストークス光ゲインは, 分散があるときには, 4.2で予想したように飽和することがわかる。

6. あとがき

3節, 4節でみたように, TSRSの理論は, レーザー光の減衰を考慮しない場合には, 必ずしも完全とはいえないが, 種々の条件のもとに解析されている。しかしレーザー光が, 顕著に

減衰するような場合については、ほとんど解析されていない。ところで実験は、入射レーザー光の減衰が無視できないような条件のもとで行なわれることが多いので、今後の重要な問題と思われる。またセルフフォーカシングがあるような場合におけるTSRSもほとんど解析されていない。

さらに、ここで述べたのは主として前方ラマン散乱についてである。しかし誘導ラマン散乱には、前方ラマン散乱のほかに、後方ラマン散乱があり、Maierら²⁷⁾により理論的に扱われた。最近後方ラマン散乱は、レーザー核融合と関連して、レーザーパルスの長さを縮める。いわゆるパルスコンプレッサーの手段として注目されている。

また、ここでの扱いは、電磁場を古典的に扱う準古典的扱いに限った。しかし電磁場を量子化すると、入射レーザー光が微弱である領域におけるラマン散乱、いわゆる自然放出ラマン散乱も含めた統一的なラマン散乱の扱いができる。^{29), 30), 31), 32)}

最後に、理論的な面に比重がかかりすぎ、応用面についてふれることができなかったことをお詫びしたい。さらに、重要な文献で欠落しているものがあれば、筆者らの力不足によるものであります。

参 考 文 献

- 1) E. J. Woodbury, W. K. Ng: Proc. IRE **50** (1962) 2374.
- 2) 例えば, Y. R. Shen, N. Bloembergen: Phys. Rev. **137** (1965) A 1786.
- 3) M. D. Leveson: IEEE J. Quan. Electron. QE-10 (1974) 110.
- 4) D. W. Forslund, J. M. Kindel, E. L. Lindman: Phys. Rev. Lett. **29** (1972) 249.
- 5) D. W. Forslund, J. M. Kindel, E. L. Lindman: Phys. Rev. Lett. **30** (1973) 739.
- 6) R. W. Hellwarth: App. Phys. **11** (1976) 147.
- 7) C. S. Liu, M. N. Rosenbluth, R. B. White: Phys. Fluids **17** (1974) 1212.
- 8) J. R. Murry, J. Goldhar, D. Eimel, A. Szöke: IEEE J. Quan. Electron. QE-15 (1979) 342.
- 9) J. Card: IEEE J. Quan. Electron. QE-16 (1980) 489.
- 10) Y. R. Shen, N. Bloembergen: Phys. Rev. **137** (1965) A 1786.
- 11) C. L. Tang: Phys. Rev. **134** (1964) A 1166.
- 12) C. S. Wang: Phys. Rev. **182** (1969)
- 13) R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang, N. Bloembergen: Phys. Rev. A. **2** (1970) 60.
- 14) S. A. Akmanov, K. N. Drabovich, A. P. Sukhoru Sukhorukov, A. S. Chirkin: Sov. Phys. JETP **32** (1971) 266.
- 15) M. G. Raymer, J. Mostowsky, J. L. Carlston: Phys. Rev. A **19** (1979) 2304
- 16) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan: Phys. Rev. **127** (1962) 198.
- 17) N. M. Kroll, P. L. Kelley: Phys. Rev. A **4** (1971) 763.
- 18) Y. R. Shen: *In Light Scattering in Solids*, ed. by M. Cardona Springer-Verlag (1975) 275.
- 19) Ed. by Abramowitz, I. A. Stegun: *Handbook of Mathematical Functions* Dover (1970)
- 20) R. A. Fisher, J. A. Fleck: App. Phys. Lett. **15** (1969) 287.
- 21) J. Hermann: Sov. J. Quan. Electron **7** (1977) 1009.
- 22) A. Yariv: *Quantum Electronics* John Wiley & Sons (1975)
- 23) A. A. Betin, G. A. Pasmanik, L. V. Piskunova: Sov. J. Quan. Electron. **5** (1976) 1309.
- 24) N. Bloembergen: *Nonlinear Optics* Benjamin (1965)
- 25) W. R. Trutna, Y. K. Park, R. L. Byer: IEEE Quan. Electron. QE-15 (1979) 648.
- 26) G. P. Dzhotyan, Yu. E. D'yakov, I. G. Zubarev, A. B. Mirnov, S. I. Mikhaïlov: Sov. J. Quan. Electron. **7** (1977) 783.
- 27) M. Maier, W. Kaiser, J. A. Giordmaine: Phys. Rev. **177** (1969) 580.
- 28) D. F. Walls: Z. Phys. **238** (1970) 224.
- 29) D. F. Walls: Z. Phys. **244** (1971) 117.
- 30) T. M. Makhviladze, L. A. Shelepin: Phys. Rev. Lett. **39A** (1972) 409.
- 31) M. Kusunoki: Prog. Theor. Phys. **60** (1978) 71.
- 32) D. Eimel: Phys. Rev. A **20** (1979) 369.
- 33) 例えば, E. Garmire: Phys. Lett. **17** (1965) 251.
- 34) S. A. Akmanov, Yu. E. D'yakov, L. I. Pavlov: Sov. Phys. JETP **39** (1974) 249.
- 35) W. Kaiser, M. Maier: *In Laser Handbook*, ed. by F. T. Arecchi and E. O. Schulz-DuBois North-Holland (1972)