透明球形粒子によって散乱された光強度

川崎医科大学　物理学教室
高田　和郎・国末　　浩
（昭和51年9月30日受理）

Scattering Intensity of Light by a Spherical Particle

Kazuo TAKATA and Hiroshi KUNISUE
Department of physics, Kawasaki Medical School Kurashiki 701-01, Japan
(*Received on Sept. 30, 1976*)

概　　要

透明球形粒子による横方向の光散乱を明らかにする目的で Mie の式を用いて三種の屈折率1.13, 1.33, 1.50 について無次元粒径 αが0.1から210.0にわたって0.1間隔での散乱光強度関数の数値計算を行った。また α に ついて平滑化した幾何光学による散乱光強度関数と Mie の式によるそれとを比較することにより，幾何光学の式の近似度が屈折率や偏光方向によってどのように変化するかを図示した。

abstract

Mie intensity functions of light scattered laterally by a transparent spherical particle was numerically computed in three cases of refractive indicies n with respect to the surrounding medium (n=1.13, 1.33 and 1.50).

In each case in n, the size parameter α was varied from 0.1 to 210.0 in step of 0.1.

In order to compare the average functions of ray optics with the average exact Mie functions, the smooth intenslty function curves of the size parameter are shown in several graphic forms with those derived from ray optics.

The effects of α, n and polarized direction are illustrated.

§1. 緒　　言

比較的大きさのそろった微粒子が気体中に多数浮遊している場合，この粒子群の平均的な大

きさを測定するには，これを光で照射して回折環を生ぜしめ，この暗環の大きさから粒径を知る方法がある。しかし，この方法では測定できる粒径の範囲が波長の数十倍程度と限定されており，しかも，急速に粒径が変化する場合の計測には超高速カメラでの撮影が必要になり，そのための光源の強度，フィルムの感光度，あるいは回折像の光強度変化対策など，解決せねばならない困難さが大きい。これに対して，やはり，無接触計測の一つとして，これらの粒子群に光をあて，これらからの散乱光強度を光電計測することによって粒子の大きさを知ろうとする方法が考えられる。この方法を採用する場合には当然，散乱光強度と粒径との間の関係が明らかにされていなければならない。この場合の散乱光強度は粒の大きさだけに依存するのではなく，入射光強度，入射光の波長，散乱方向に対してはもちろん，粒子の数密度，粒子の形，粒子の向き，その他粒子を構成している物質の光学的性質によっも変化をうける。

上記の条件として特に，粒子が透明であり，しかも一様で，等方的物質によって構成されていて，球形であり，数密度も一定で，しかも多重散乱の影響が無視できるという条件のもとでは理論的な解析が可能となる。すなわち，単一球形粒子による散乱電磁波強度に関する Mie の理論を利用して数値計算を行なえば，原則的には散乱光強度と粒径との間の関係を明らかにすることができる。実際に，球形粒子による散乱模様を数量的に明らかにして実用に供する目的で，多くの研究者がこの理論式を用いて数値計算を行なっている[1),2),3)]。しかし，PENNDORF が指摘しているように[4)]，この数値計算には粒径の増大に伴って計算量の激増をよぎなくされる。それゆえ，サイズパラメーター α が30より大きい場合といった比較的大きな粒子による散乱強度計算ははなはだ少ない[5)]。したがって α が 30 より大きい領域での散乱模様は明らかにされていない現状である。ここで α は粒子半径 a と真空中での光の波長 λ を用いて $2\pi a/\lambda$ で定義されている無次元化された粒径である。

一方，虹の出来る散乱角などのような特殊な散乱角の場合を除けば，粒径が十分大きい場合には，いわゆる位相を考慮した幾何光学による光強度計算が精度よく成立することは明らかであるから[6)]，これを用いて散乱光強度と粒径との間の関係を求めることができる。しかし，α がどの程度の大きさになれば幾何光学による値の精度がよくなるのかは Mie の式の数値結果と比較して判定しなければならない。

著者らは上記の点を明らかにする目的と，それとは別に（Rayleigh 散乱領域から幾何光学の適用が可能と思われる領域に致るまでの）広範囲な粒径にわたっての透明な単一球形粒子による散乱模様を明らかにする目的で，つぎの二種の散乱に関する理論式のフォートランによるプログラム化を行った。

（1） 無次元粒径 α，散乱角 θ および粒子の周囲媒質に対する相対屈折率 n がすべて可変な形での Mie の散乱強度関数のプログラム化

（2） 上と同じ状態での，位相を考慮した幾何光学による散乱光強度関数の式のプログラム化

これらのプログラムの完成後，(1)のプログラムについては θ が90°の場合で，しかも，屈折

率が 1.13, 1.33, 1.50 のそれぞれの場合の散乱強度関数を α が 0.1 から 210.0 までにわたって 0.1 間隔での数値計算を実行した。(2)のプログラムについては同様に，θ が 90° の場合でしかも屈折率も同じ三種のそれぞれについて種々の内部通路を通って θ が 90° に達した光の和の形として散乱強度関数を α のみの関係の形で求めた。

本報告では，これらのプログラムの要点，実行結果，数値結果に対する処理，および検討結果について述べる。

§2 Mie の式の提示とプログラムの要点

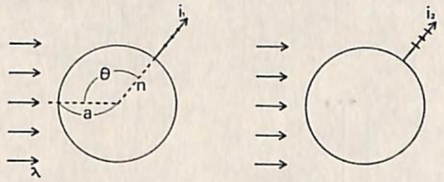

図 1.

まず，Mie の散乱電磁波強度に関する理論式を以下に示す。図 1 のように透明で，周囲に対する相対屈折率 n の一様な物質によって構成された半径 a の一個の球形粒子が存在し，この粒子が透明で，等方的で，かつ一様な媒質中に浮遊していて，周囲媒質での波長が λ である平面電磁波で照射されている。この粒子のために入射光のくる方向から測って θ の角をなす方向へ散乱される電磁波強度 I は θ 方向の単位立体角中に単位時間ごとに放射されるエネルギーとして定義され，

$$\mathrm{I}=\frac{\mathrm{I}_0\lambda^2}{8\pi^2}i_S\left(\alpha,\ \mathrm{n},\ \theta\right)=\frac{\mathrm{I}_0\lambda^2}{8\pi^2}\left\{i_1(\alpha,\ \mathrm{n},\theta)+i_2(\alpha,\mathrm{n},\theta)\right\} \tag{1}$$

で表わされる。ここで，I_0 は入射平面電磁波の強度であり，入射方向に垂直な単位面積，単位時間当りの入射エネルギーと定義されている。

また，π は円周率，i_S，i_1 および i_2 は散乱強度関数と呼ばれる無次元量で，i_S は i_1 と i_2 の和である。そして i_1 と i_2 は共に散乱波の偏光成分で，それぞれ観測面に対して散乱波の電気ベクトルが垂直な成分を i_1，平行な成分を i_2 とし，次のように与えられている。

$$i_1=\left|\sum_{m=1}^{\infty}\frac{2m+1}{m(m+1)}(a_m\pi_m+b_m\tau_m)\right|^2 \tag{2}$$

$$i_2=\left|\sum_{m=1}^{\infty}\frac{2m+1}{m(m+1)}(a_m\tau_m+b_m\pi_m)\right|^2 \tag{3}$$

$$a_m\ (\alpha,\mathrm{n})=(-1)^{m+\frac{1}{2}}\ \frac{S_m'(\beta)\cdot S_m(\alpha)-\mathrm{n}\cdot S_m'(\alpha)\cdot S_m(\beta)}{S_m'(\beta)\cdot\phi_m(\alpha)-\mathrm{n}\cdot\phi_m'(\alpha)\cdot S_m(\beta)} \tag{4}$$

$$b_m\ (\alpha, \mathrm{n}) = (-1)^{m+\frac{3}{2}}\ \frac{\mathrm{n}\cdot S_m'(\beta)\cdot S_m(\alpha) - S_m'(\alpha)\cdot S_m(\beta)}{\mathrm{n}\cdot S_m'(\beta)\cdot \phi_m(\alpha) - \phi_m'(\alpha)\cdot S_m(\beta)} \tag{5}$$

$$S_m\ (z) = \left(\frac{\pi z}{2}\right)^{\frac{1}{2}}\ J_{m+\frac{1}{2}}(z) \tag{6}$$

$$C_m(z) = (-1)^m \left(\frac{\pi z}{2}\right)^{\frac{1}{2}} J_{-m-\frac{1}{2}}(z) \tag{7}$$

$$S_m'(z) = \frac{\partial S_m(z)}{\partial z} \tag{8}$$

$$C_m'(z) = \frac{\partial C_m(z)}{\partial z} \tag{9}$$

$$\phi_m(z) = S_m(z) + i\cdot C_m(z) \qquad \left(i = \sqrt{-1}\right) \tag{10}$$

$$\phi_m'(z) = \frac{\partial \phi_m(z)}{\partial z} \tag{11}$$

$$\alpha = 2\pi a/\lambda \tag{12}$$

$$\beta = \mathrm{n}\alpha \tag{13}$$

$$\pi'_m = \frac{dP_m(x)}{dx} \tag{14}$$

$$\tau_m = \pi_m x - \ (1 - x^2)\ \pi_m' \tag{15}$$

$$\pi_m' = \frac{d^2 P_m}{dx^2} \tag{16}$$

$$x = cos\ \theta \tag{17}$$

ここに $J_{m+\frac{1}{2}}(z)$，$J_{-m-\frac{1}{2}}(z)$ は正および負の半奇数の Bessel 関数であり，$P_m(x)$ は m 次の

Legendre 多項式である。以上が Mie の理論式で，Maxwell の波動方程式を与えられた境界条件のもとで解いて得たものである。つぎにこの式をプログラム化するに際しての要点を列記する。まず式中，Bessel や Legendre 関数値の計算プログラムには通例の方法に従って漸化式を用いた。ただ，$\theta=90^\circ$ 固定の場合のプログラムでは(17)式の x が零となり，(2)，(3)式中の一部分を

$$\overline{\pi_m}=\frac{2m+1}{m(m+1)}$$

$$\overline{\tau_m}=\frac{2m+1}{m(m+1)}\tau_m$$

とおくと

$$\overline{\pi_m}=\begin{cases}\dfrac{(-1)^{\frac{m-1}{2}}(m-1)!\,(2m+1)}{2^m\left(\dfrac{m+1}{2}\right)!\left(\dfrac{m-1}{2}\right)!} & \cdots\cdots \quad m=odd\\[2ex] 0 & \cdots\cdots \quad m=even\end{cases}$$

$$\overline{\tau_m}=\begin{cases}0 & \cdots\cdots \quad m=odd\\[2ex] \dfrac{(-1)^{\frac{m}{2}}m!\,(2m+1)}{2^m\left(\dfrac{m}{2}\right)!\left(\dfrac{m}{2}\right)!} & \cdots\cdots \quad m=even\end{cases}$$

と簡単にあらわせることがわかったので，演算の高速化の目的でこれを用いた。第二の問題点としては i_1，i_2 の計算が(2)，(3)式のように無限級数で表わされているので，数値計算に当っては第何項で加算を打ち切るかが問題となる。この級数の収斂には PENNDROF の与えた α による収斂の式 $M_{max}=1.2\alpha+7$ があるが[4)]，実際に α を30間隔で増加して $\alpha=210.0$ までの収斂テストを行ってみると n がいずれの場合にも $1.07\alpha+5$ 頃付近から急速に収斂が早くなるので $1.2\alpha+7$ を用れば十分であることがわかった。

第三の要点は16桁精度の演算を行ったことである。計算は始め 7 桁で行ったが，その場合には無視出来ない程度の計算誤差が生ずることが判明したため，すべて 2 倍精度演算で実行した。

最後に Bessel や Legendre 関数のプログラムの正否は結果を数表とつき合わせることによって行い，最終プログラムの正否判定にはこの計算結果の一部が他の二，三の報告者の値と一致しているかどうかで行った。

§3. 位相を考慮した幾何光学を用いる散乱光強度関数

幾何光学で特定方向の散乱光となる光束の強度を求める場合には，この方向の光束は粒子の外面で反射した光だけでなく，粒子内に入り込み，内壁で数回以上反射したのち出てきた光が多数存在すると考える。そして，この場合の散乱光強度はこれら入射角の異なる光束を強度と位相を考慮して加え合わせたものとして求める。この場合，強度では反射や屈折に関するFresnel の反射係数 r_p を用い，また散乱光線の発散の程度を表わす無次元量 D_p を光線追跡によって求めたものを用いており，位相では光路長差に基づく位相差 δ_p，反射の際の位相変化，焦線を通ることによる位相変化を考慮している。この理論式の導出の詳細については他に譲る[7)]が式は次のようにあらわされる。

$$I' = \frac{I_0 \lambda^2}{8\pi^2}\left\{ i_1'(n,\theta,\alpha) + i_2'(n,\theta,\alpha) \right\} \tag{18}$$

$$i'_1 = \left| S_1(n,\theta,\alpha) \right|^2 = \left| \alpha \sum_{p=0}^{\infty} \varepsilon_{1p} \sqrt{D_p}\ exp(\delta_p + \beta_{1p}) \right|^2 \tag{19}$$

$$i_2' = \left| S_2(n,\theta,\alpha) \right|^2 = \left| \alpha \sum_{p=0}^{\infty} \varepsilon_{2p} \sqrt{D_p}\ exp(\delta_p + \beta_{2p}) \right|^2 \tag{20}$$

$$\varepsilon_{1p} = \begin{cases} r_{1p} & (p=0) \\ (1-r_{1p}^2)(-r_{1p})^{p-1} & (p \geqq 1) \end{cases} \tag{21}$$

$$\varepsilon_{2p} = \begin{cases} r_{2p} & (p=0) \\ (1-r_{2p}^2)(-r_{2p})^{p-1} & (p \geqq 1) \end{cases} \tag{22}$$

$$r_{1p} = \frac{sin\ \tau_p - n\ sin\ \tau_p'}{sin\ \tau_p + n\ sin\ \tau_p'} \tag{23}$$

$$r_{2p} = \frac{n\ sin\ \tau_p - sin\ \tau_p'}{n\ sin\ \tau_p - sin\ \tau_p'} \tag{24}$$

$$D_p = \frac{sin\ \tau_p \cdot cos\ \tau_p}{sin\ \theta \cdot (d\theta/d\tau_p)} \tag{25}$$

$$\delta_p = 2\alpha\,(sin\ \tau_p - \mathrm{n}p\ sin\ \tau_p') \tag{26}$$

$$\alpha = 2\pi a/\lambda \tag{27}$$

$$\theta = 2\tau_p - 2p\ cos^{-1}\left(\frac{1}{n}\ cos\ \tau_p\right) \tag{28}$$

ここで a, λ, α, n, θ, I_0 は Mie の式の場合と同じものであり，I′, i_1', i_2' は Mie の式の I, i_1, i_2 に対応する量で I′ は散乱光強度，i_1' と i_2' は観測面に垂直な方向，および平行な方向に偏光した散乱光強度関数である。また τ, τ' は粒子への入射角の余角，および屈折角の余角を意味し，p は粒子内の内部直線光路の数である。

この式の (19) と (20) 式は

$$i_1' = \left\{\sum_{p=1}^{\infty} \varepsilon_{1p}{}^2\ D_p + 2\sum_{p,q}^{\infty} \varepsilon_{1p}\,\varepsilon_{1q}\sqrt{D_p}\sqrt{D_q}\ cos\left(\delta_p - \delta_q + \beta_{1p} - \beta_{1q}\right)\right\}\alpha^2$$

$$i_2' = \left\{\sum_{p=1}^{\infty} \varepsilon_{2p}{}^2\ D_p + 2\sum_{p,q}^{\infty} \varepsilon_{2p}\cdot\varepsilon_{2q}\sqrt{D_p}\sqrt{D_q}\ cos\left(\delta_p - \delta_q + \beta_{2p} - \beta_{2q}\right)\right\}\alpha^2$$

と変形できる。この式は δ_p や δ_q が α の一次式なので，α の増加に伴って，i_1' などは極大から極小へと急激にほぼ周期的に変化しながら漸増する。そこで，i_1' などを α について平均化したものを $\overline{i_1'}$ などと書くとこの場合には右辺の｛　｝中の第２項は零としてよいので

$$\overline{i_1'} = \left(\sum_{p=0}^{\infty} \varepsilon_{1p}{}^2\ D_p\right)\alpha^2$$

$$\overline{i_2'} = \left(\sum_{p=0}^{\infty} \varepsilon_{2p}{}^2\ D_p\right)\alpha^2$$

の形となる。この式で $\theta=90°$，n=1.13，1.33，1.50 について係数を計算し，平均化散乱強度関数式として，$p=20$ までにわたって

$$\overline{i_1'} = 0.003019\ \alpha^2 \qquad (\mathrm{n}=1.13)$$

$$\overline{i_2'} = 0.00003711\,\alpha^2 \qquad (\mathrm{n}=1.13)$$

$$\overline{i_1'} = 0.01344\ \alpha^2 \qquad (\mathrm{n}=1.33)$$

$$\overline{i_2'} = 0.0006954\ \alpha^2 \qquad (\mathrm{n}=1.33)$$

$$\overline{i_1'} = 0.05616 \quad \alpha^2 \quad (n=1.50)$$

$$\overline{i_2'} = 0.01003 \quad \alpha^2 \quad (n=1.50)$$

を得た。

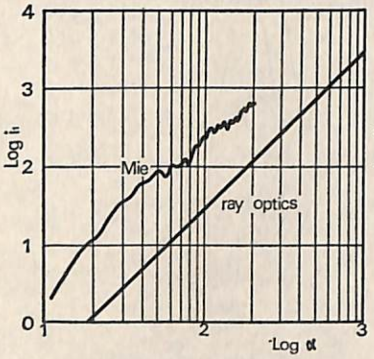

図2の(a)　n=1.13

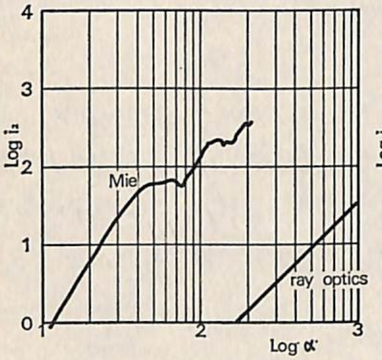

図2の(b)　n=1.13

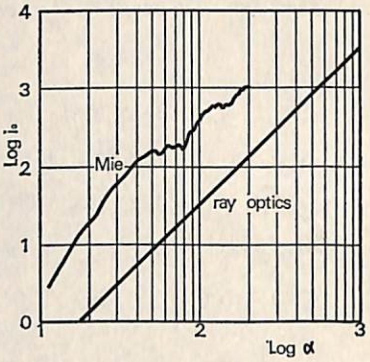

図2の(c)　n=1.13

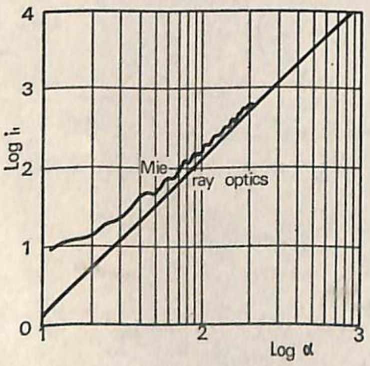

図2の(d)　n=1.33

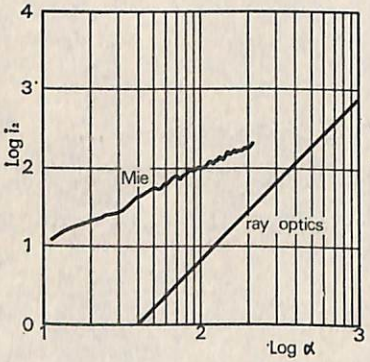

図2の(e)　n=1.33

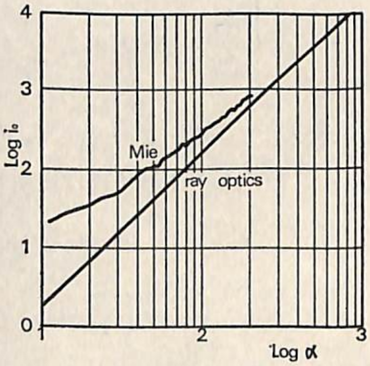

図2の(f)　n=1.33

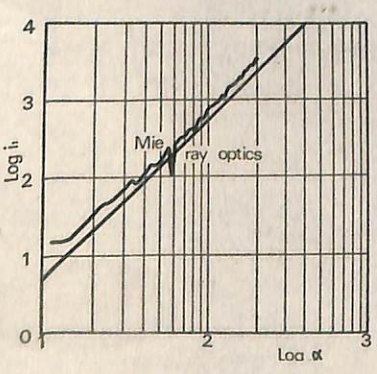

図2の(g)　n=1.50

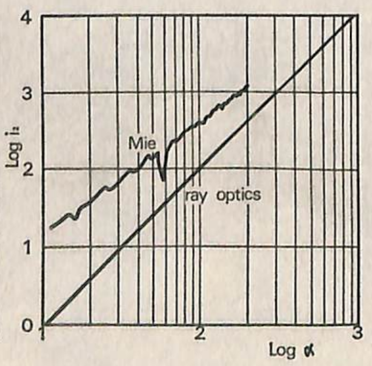

図2の(h)　n=1.50

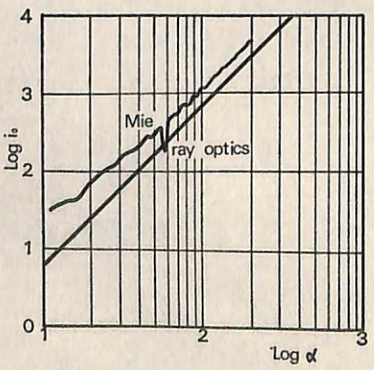

図2の(i)　n=1.50

§4.　Mie の式の数値計算結果，その処理，検討

§2. で述べた Mie の式のプログラムを用いて，$\theta=90°$，n=1.13，1.33，1.50 の三種について α が 0.1 から 210.0 まで 0.1 間隔で強度関数の数値を計算した。これらの計算結果の一部を表 1 に示す。

表　1

α	Real (i_1) ×10	Imag (i_1) ×10^2	Real (i_2) ×10	Imag (i_2) ×10^2	i_1 ×10^3	i_2 ×10^3	i_0 ×10^3
209.8	−0.7	−0.2	0.6	−0.1	0.508027	0.238311	0.746338
209.9	−0.6	−0.2	0.4	−0.1	0.483753	0.242900	0,726653
210.0	−0.2	−0	0.3	−0.1	0.342812	0.231640	0.574453

横軸を α としてこれらの結果である i_1 や i_2 を描くと i_1 や i_2 が α の増大につれて極大や極小を多数伴う大きな変動を示しつつ平均的には漸増しているグラフを得た。これらのうち大きな変動を把握するために隣接する α の 17 個に対する i_1 や i_2 の平均値と，それらの和 i_0 を求めその値を対数グラフに描いたものが図 2 の(a)から(i)の中の曲線である。これらの中には前述の幾何光学による平均化散乱光強度関数が直線で記入されている。

これらのグラフから 90° 方向の散乱強度として正確な Mie の式を用いる代わりに幾何光学の式を用いる場合の近似度は屈折率が大きいほどよく，観測面に垂直に偏光した光の方がよいことが量的にも明らかにされている。

§5.　結　　　言

(1)　単一の透明球形粒子による光の散乱強度関数を数値計算するためのプログラムを Mie の理論によるものと幾何光学を用いるものについて作成した。

(2)　また具体的には Mie の式で散乱角が 90°，屈折率が 1.13，1.33，1.50 の三種について，無次元粒径 α が 0.1 から 210.0 にわたって散乱光強度関数 i_1 i_2 の計算を実行することにより，Rayleigh 散乱領域から幾何光学領域への移行領域での散乱強度と粒径との関係を明らかにした。

(3)　つぎに位相を考慮した幾何光学の式による数値結果と，Mie の式によるそれを，共に粒径に関して滑らかになるように平均化し，その両者を比較することにより，屈折率については大きいほど，また，偏光については観測面に垂直な光の方が平行なものよりも，小さな粒径で両者の一致が起こることを数量的に図示した。

文　献

1) A. N. Lown; "Tables of Scattering Fuctions for Spherical Particles." Natl. Bur. Standards. (U S) Appl. Math. Series. 4, (1948)
2) W. Heller et al.; "Theoretical Investigation on the Light Scattering of colloidal Spheres. I~VI" J. Chem. Phys. Vol. 30, No. 3, p783. (1959)
3) H. Wakeshima, K. Takata; "A New Table of Mie Intensity Functions of Light Scattered Side-ward by a Water Droplets." Rev. Kobe Univ. Mercantile Marine Part II, 10, 81(1963)
4) R. B. Penndorf; "New Tables of Mie Scattering Functons for Spherical Particles." Geophysical Research Papers No. 45
5) R. O. Gumprecht, C. M. Sliepcevich. "Scattering of Light by Large Sphericoal particles." J. Phys. Chem. Jan., (1958)
6) Van De Hulst; "Light Scattering by Small Particles.", (1957)
7) 高田和郎；"ベンゼンの球型液滴による90°方向散乱光強度関数の近似式" 福井大学工学部研究報告, 第13巻, 第2号, p. 343, (1965)