

# 解説

## レーザー散乱による非球形粒子の計測

末元 好郎

鹿児島大学工学部工業物理講座 〒890 鹿児島市郡元 1-21-40

(1991年4月26日受理)

### Laser Scattering Measurements of Nonspherical Particles

Yoshiro SUEMOTO

Applied Science Course, Faculty of Engineering, Kagoshima University,  
1-21-40, Korimoto, Kagoshima 890

#### 1. ま え が き

レーザー光の指向性の良さは多くの新しい計測分野を生み出してきた。レーザー散乱計測もその一つの重要な分野であり、それは計測対象に従って多くの分野に分れている。そのなかに大気中のエアロゾルの寸法や形状の遠隔測定を行うレーザーレーダーの分野や化学工学における混相流中の粒子の寸法や形状の計測分野がある。

エアロゾルや種類の粒子は一般には非球形である。非球形粒子においては、その寸法はともかく形状となると無限に多くのものであり整理がつかない。従って理論的あるいは実験的研究において、非球形といってもなんらかの対称性をもつ粒子を対象として行われている場合が多い。理論的研究においては、超高速大容量の大型計算機の発展により研究が可能になってきている。実験的研究においては既知の形状のものに対して行われており、実験によって形状を知るという逆の問題はまだ進んでいない。今後理論的研究と相まって発展し応用されることが期待できる。

以下散乱による粒子計測の基本的事項について先ず述べ、次いで非球形粒子の散乱理論と散乱実験とについて述べる。

#### 2. 散乱による粒子計測の基本的事項

一般にすべての粒子は非球形であるという観点に立って、散乱による粒子計測の基本的な事柄を以下に掲げる。

##### (1) 粒子の方位 (orientation)

入射光に対する粒子の方位により散乱の様子は異なってくるので、一定の方位というのはあまり意味がない。従って大抵の場合、あらゆる方位をもつ粒子よりの散乱強度の平均値をとる。これを粒子のランダム方位 (random orientation) の平均値とも言う。

##### (2) 粒子の寸法

散乱光量は入射光のうち粒子に遮られる量にほぼ比例するから、ランダム方位の粒子の平均投影面積と等価な面積をもつ円の直径いわゆる projected area diameter<sup>1)</sup> をその粒子の寸法とするのが妥当である。しかし等価体積球直径を粒子寸法にとる場合が多い。いずれにせよ散乱光強度は粒子寸法の2乗に比例する(寸法が光の波長より大きい場合)という目安がつく。なお、寸法が波長より小さい場合は寸法の6乗に比例する(レーリー散乱)。

粒子の寸法が分布する場合 (polydisperse system), 分布関数を考慮して寸法をその平均値として取り扱うのが普通である。

##### (3) 散乱角度分布

入射光方向と散乱光の観測方向とのなす角を散乱角と呼び0~180°の範囲をとる。その方向への散乱光強度分布は散乱角度分布と呼ばれ、粒子の形状や粒子物質の複素屈折率と関係があるので最もよく取り上げられる量である。

前方散乱(散乱角0°近傍)が最も散乱光強度が高く、散乱角が大きくなるとかなり弱くなり散乱角90°~120°

で前方散乱強度より 2~3 桁弱くなる。レーザーレーダーなどで重要な後方散乱 (散乱角 180° 近傍) ではまた少し強くなる。

(4) 散乱光の偏光状態

すべての散乱現象は偏光状態を変換する現象であり<sup>2)</sup>、たとえば散乱角度分布は偏光の変換の角度分布を意味することが多い。従ってミューラマトリクスがよく取り扱われる。

(5) 粒子散乱計測の目標

入射光の波長と偏光状態、粒子の寸法・形状、粒子物質の複素屈折率を定めれば散乱光強度、散乱角度分布、散乱光の偏光状態あるいは散乱による偏光状態の変換が決定される。この逆の問題すなわち散乱光強度などを測定して粒子の寸法・形状などの知見を得るのが粒子散乱計測の目標である。

3. 非球形粒子の散乱理論

非球形粒子の散乱理論に関する研究には大きく分けて二つの立場があり、一つはある特定の形状の粒子を取り扱うもので<sup>3,4)</sup>、他は一般的な非球形粒子の散乱を論ずるもの<sup>5-7)</sup>である。前者の例として円板形粒子を、後者の例としてチェビシェフ粒子を取り扱ったものについて述べる。

3.1 円板形粒子

大気圏中の水と氷の混相雲が希薄であり粒子間の相互散乱のないとき、レーザーレーダーでこの雲の透過や散乱を研究する目的で円板形粒子の散乱計算を行った<sup>4)</sup>。レーザーレーダーの場合だから後方散乱だけを取り扱う。粒子の方位に関しては入射光と円板の法線とのなす角  $\theta_0$  により一義的に決めてしまうので、前節で述べたランダム方位を考慮に入れる立場とは異なる例である。粒子の寸法・形状に関しては、波数  $k=2\pi/\lambda$  ( $\lambda$  は入射光の波長) と円板の半径  $a$ 、円板の厚さ  $t$  との積、すなわち  $ka$  と  $kt$  をパラメータにとる。

理論は入射電磁波により、複素屈折率  $n$  の粒子に誘起される電流密度より散乱を計算するものであるが、コンピューターコードは以前 Weil と Chu により開発されたものに改良を加えて用いた。ミューラマトリクスで定義した後方散乱断面積  $\sigma$  を計算するものであるが、ここで注意すべきことはこの数値計算法で行い得る寸法範囲である。すなわち  $0 \leq ka \leq 12$ ,  $0 < kt < 0.5$  であり、寸法がこれ以上大きくなると計算できない。このように波長の数倍程度以下の寸法の粒子についてのみ数値計算可能なのは、他の例もそうであるが一般に非球形粒子の特

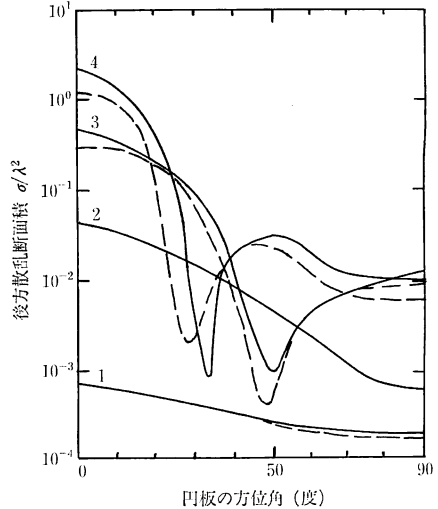


図 1 円板形粒子の後方散乱断面積と円板の方位角 (入射光と円板法線のなす角) の関係。実線：理論値、点線：測定値。

粒子番号	1	2	3	4
$ka$	0.762	1.523	2.283	3.042
$kt$	0.162	0.305	0.460	0.614

徴といえる。それだけ粒子表面の起伏などが数値計算の収斂性やコンピューターの容量に及ぼす影響が大きいといえる。

種種の寸法の円板形粒子の後方散乱断面積を円板の方位角  $\theta_0$  の関数として計算した一例を図 1 に示す。複素屈折率  $n$  は  $n^2=3.1-i0.04$  をとっている。これは周波数 2.861 GHz のマイクロ波に対する  $TiO_2$  の値である。ポリエステル中の円板状  $TiO_2$  粒子のマイクロ波散乱の測定値と比較するため、 $TiO_2$  が氷粒子をシミュレートしていると考えており図中にそれら測定値を示す。粒子寸法は 4 種類あるが円板の面が入射光に面する方位のとき (方位角  $\theta_0=0^\circ$ ) 散乱断面積は寸法の 6 乗に比例する (レーリー散乱) よりもっと大きく変化していること、寸法が大きくなるとある方位角で最小の散乱を示すことがわかる。また理論値は測定値と比較的よく一致していて、理論の有意義であることを示している。

3.2 チェビシェフ粒子<sup>5,6)</sup>

この粒子は非球形粒子の一般論に適用するように考えられた粒子で、パラメータによって種種の形状がとれる。図 2 に示すように動径  $r$  が  $r=r_0[1+\epsilon T_n(\cos \theta)]$  で与えられる図形を回転して得られる形状の粒子で、 $T_n$  は

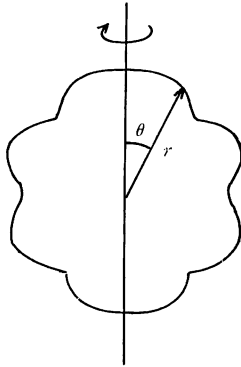


図2 チェビシェフ粒子. 動径  $r=r_0[1+\varepsilon T_n(\cos \theta)]$  で与えられる図形を回転して得られる形状の粒子.

$n$  次のチェビシェフ多項式.  $\theta$  は動径が回転軸となす角である.  $\varepsilon$  は変形パラメータと呼ばれ, これにより粒子表面の凹凸の深さが変わり, 整数  $n$  は波打ちパラメータと呼ばれ, これにより粒子表面の波打ちの回数が変わる.

理論は Waterman らにより開発された Extended Boundary Condition Method を改良したもので, 球調和関数の展開項を粒子表面にわたって積分し数値計算を行うものである. 寸法範囲は等価体積球直径  $d$  を用いた寸法パラメータ  $x=kd/2$  が  $1 \leq x \leq 20$  の範囲で, 屈折率は典型的なエアロゾルの値  $1.50-0.02i$  を用いた. 変形パラメータは  $0.05 < |\varepsilon| < 0.20$ , 波打ちパラメータは  $2 \leq n \leq 20$  の範囲に変えた. これらパラメータの1組について 250 のランダム方位の粒子の散乱の平均値を計算するのでクレイ・コンピュータで 10 時間程度の計算時間を必要とする.

非球形粒子の散乱計測の場合, 粒子の寸法は分布し (polydisperse system) その形状は種種のものを含む系を対象とするのが一般性が高い. このような見地から, チェビシェフ粒子の散乱計算においても寸法パラメータ  $x$  に関しても  $x=12, 14, 15, 16$  の polydisperse system を考え, 形状パラメータに関しては,  $\varepsilon$  は上記全範囲内の適宜の離散値をとり,  $n$  は凸形粒子と凹形粒子に対応する値をとり散乱を計算し, これらの全平均値を求めてある. 図3に凸形と凹形のチェビシェフ粒子による散乱平面 (入射光と散乱光を含む平面) に平行な偏光の散乱強度の散乱角依存性の理論値を示す. 比較のため球形粒子の散乱の理論値も示す. 球形粒子もチェビシェフ粒子と同様に, 寸法パラメータ  $x=12, 14, 15, 16$

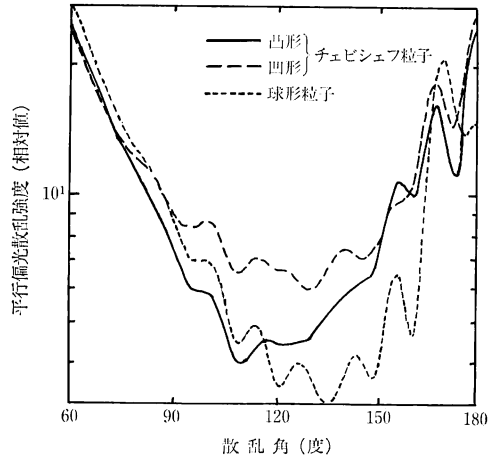


図3 凸形と凹形のチェビシェフ粒子による散乱における, 平行偏光散乱強度の散乱角依存性の理論値 (寸法パラメータ  $x=12 \sim 16$  の平均値をとっている). 比較のため, 球形粒子のものも示す<sup>6)</sup>.

の粒子による散乱の平均値をとってある. 散乱角のあまり大きくない範囲ではチェビシェフ粒子による散乱は凸形も凹形も球形粒子との相違は少ないが, 散乱角が大きくなるに従って散乱が大きくなり, その程度は凹形粒子の方が顕著である. さらに散乱角が大きくなり後方散乱においてもチェビシェフ粒子の方が球形粒子より散乱がやや大きいことがわかる. 図には示していないが, 垂直偏光散乱強度についても同様のことが言える.

さらに寸法パラメータの種類のグループについて計算したもの, 凹凸混合粒子について計算したもの, 波打ちパラメータ  $\varepsilon$  を変えたものに対する結果を総合すると Zerull の実験結果<sup>12)</sup> と同じ傾向にあることが指摘できる (この実験は 35 GHz のマイクロ波散乱実験であるが, 凹凸粒子を含む種種の形状の粒子について散乱角度分布を測定し, 等価体積球による Mie 散乱の計算値と比較したものである). そして一般論として非球形粒子散乱の球形粒子散乱との相違を以下の事項にまとめることができる.

- (1) 前方散乱 (散乱角  $5 \sim 50^\circ$ ) では相違は少なく, 非球形散乱の方がやや小さい程度である.
- (2) 横方向への散乱 (side scattering, 散乱角  $60 \sim 120^\circ$ ) では非球形散乱は球形散乱より1桁くらい大きくなる.
- (3) 後方散乱 (散乱角  $180^\circ$  付近) では寸法パラメータ  $x \leq 10$  では球形散乱より弱いが,  $x > 10$  では非球形の方が強くなる.

- (4) 散乱角の変化に伴い散乱強度は波打つが、非球形散乱の場合波打ちの程度が弱められる。
- (5) 散乱角のほとんど全範囲で、凹形粒子の散乱は凸形粒子のそれより強い。
- (6) 寸法パラメータ  $x=3\sim5$  の間では、相違はほとんどないが、 $x$ が大きくなるに従い相違がでてきて形状にもよるが非球形散乱の方が球形散乱より10%程度大きい。

#### 4. 非球形粒子の散乱実験

非球形粒子の散乱に関する実験的研究は理論的研究に比べて、はるかに多くまた比較的早くから行われている。これは、どのような形状の粒子でも散乱実験が行えるからである。光源としては指向性がよいレーザーが野外での応用など最も実用的であるが、実験室的には普通の光源を用いたり、さらに寸法パラメータを同じにして実寸法を大きくとれる長所のあるマイクロ波を用いた実験も多く、光散乱をシミュレートするものとして種類の知見を与えてくれる。

以下、散乱実験に関するものとして、粒子のランダム方位、散乱のミューラマトリクス、散乱角度分布、寸法パラメータについて述べる。

##### 4.1 粒子のランダム方位

無機・有機の種類の物質の溶液を乾燥した  $N_2$  ガス流などに噴霧すると、その物質の微粒子で寸法が  $1\mu m$  前後1桁程度エアロゾルができる<sup>8-10)</sup>。なお、このようにかんがりの速度で運動している微粒子の計測が可能なのは光散乱計測の特長である。さて、この場合自然に粒子はランダム方位となり、かつ polydisperse system となる。また大気圏のエアロゾルの場合<sup>11)</sup>も同じといえる。このような微粒子の寸法分布や形状は、回収した粒子の電子顕微鏡写真から求めるのが普通である。

一方マイクロ波での散乱実験では粒子の寸法を波長(10 GHz で約 3 cm)程度にとれるので、これをナイロンの糸(マイクロ波域では測定に影響はない)で天井と

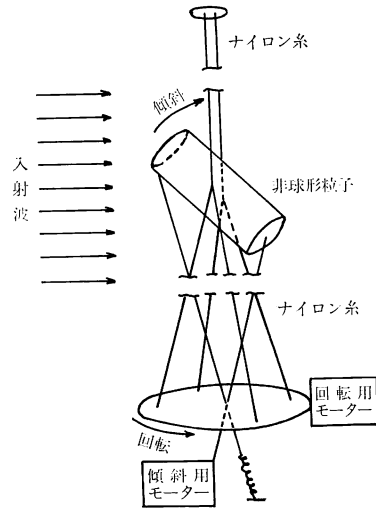


図4 非球形粒子をナイロンの糸で吊し支持しモーターで傾きや回転を変える<sup>13)</sup>。

床に取り付けたステップモーターで回転して粒子をランダム方位に向ける<sup>12)</sup>。図4に粒子にほぼ完全なランダム方位を与える一つの方法<sup>13)</sup>を示す。これによる散乱実験により単一粒子系(monodisperse system)に対する散乱測定ができる。なお、光散乱実験でも溶液を噴霧する際、細管の先を一定の粒子径と共振する周波数で振動させると粒子径  $1\mu m$  程度で標準偏差1%程度の非球形微粒子の単一粒子系を得ることができる<sup>9)</sup>。

##### 4.2 散乱マトリクス

入射光の偏光状態を散乱光の偏光状態に変換するミューラマトリクスを特に散乱マトリクスと呼ぶこともある。粒子のランダム方位を考慮すると散乱マトリクスの要素はかなり少なくなる<sup>2)</sup>。すなわち

$$\begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & 0 & 0 \\ S_{21} & S_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & S_{33} & S_{34} \\ 0 & 0 & -S_{34} & S_{44} \end{bmatrix}$$

なおマトリクス要素は散乱角の関数である。これらマト

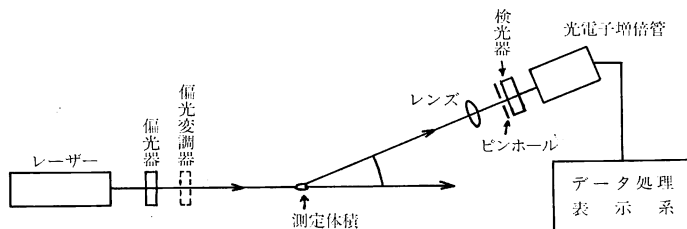


図5 散乱マトリクスの測定装置。測定体積の中の粒子の散乱が測定される。

リクス要素の測定装置を図5に示す。レーザーは He-Ne レーザー, Ar イオンレーザー, HeCd レーザーなどが用いられるが, その偏光状態はその前に配置する偏光器あるいは偏光変換器で適宜変える必要がある。測定体積への入射光の偏光状態は,  $S_{11}$ ,  $S_{12}$ ,  $S_{22}$  を測定するには散乱平面(入射光と散乱光を含む平面)に平行か垂直の直線偏光に,  $S_{33}$ ,  $S_{34}$ ,  $S_{44}$  も測定したい場合は偏光変換器を用いて円偏光にしておく。測定体積内の粒子による散乱角  $\theta$  方向の散乱光は, レンズでピンホールに集光され(これにより測定体積が定まる)光電子増倍管の直前に置かれた検光器で解析される<sup>10)</sup>。データ処理系では入射光を変調しておきロックインアンプを用いるなど微弱光を測定できるようにしておく。

#### 4.3 散乱角度分布

NaCl 水溶液を乾燥気体中に噴霧して得られるエアロゾルを図5の測定装置で  $S_{11}$  の散乱角依存性を測定した結果<sup>10)</sup>を図6に示す。このエアロゾルの走査型電子顕微鏡写真を見ると立方体に似た形をしており, 寸法分布は平均値  $1.2 \mu\text{m}$ , 標準偏差  $0.4 \mu\text{m}$  の分布をしている。これと等価な体積の球形粒子の  $S_{11}$  の計算値(屈折率は  $1.54 \pm i0$ )も図に示すが, これと比較すると散乱角が  $90^\circ$  あたりまでは NaCl 粒子の  $S_{11}$  は球形粒子のそれより小さいが,  $90^\circ \sim 150^\circ$  あたりのいわゆる side scattering は NaCl 粒子の方が大きく, 後方散乱にかけて比較的平らな変化を示すことがわかる。同じ方法で  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  水溶液から作ったエアロゾルは球形に似た形状をしているが, この場合  $S_{11}$  の散乱角度分布は, それに対応する球形粒子の計算値と一致する。また二つのマトリクス要素の比  $S_{12}/S_{11}$  の角度分布においても NaCl の球形との差異は顕著に出て,  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  の場合は差異はほとんどない。このようにマトリクス要素の散乱角度分布は粒子

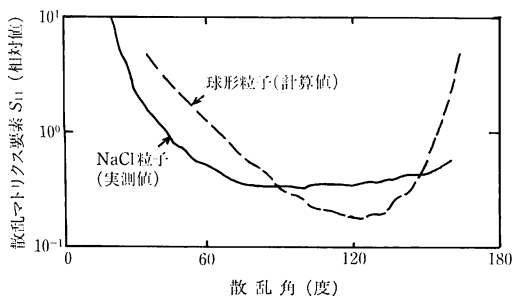


図6 NaCl 粒子(立方体に似た形状; 寸法  $1.2 \pm 0.4 \mu\text{m}$  の分布)の散乱マトリクス要素  $S_{11}$  の散乱角依存性。等価体積球形粒子の計算値も示す<sup>10)</sup>。

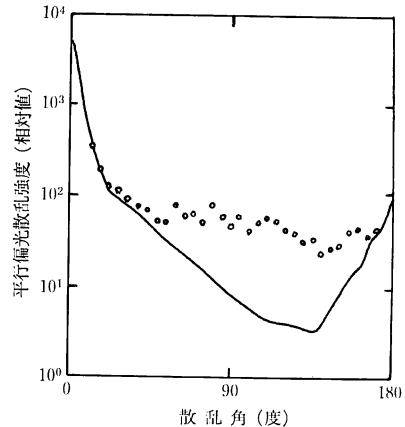


図7 立方体(寸法パラメータ  $x=6 \sim 18$  に分布; 周波数  $35 \text{ GHz}$  で屈折率  $1.57 - 0.006i$ )のマイクロ波散乱での平行偏光散乱強度の散乱角依存性。等価体積球の散乱の計算値も示す<sup>12)</sup>。

の形状をよく反映していることが実験的に示される。

立方体粒子の散乱をマイクロ波散乱でシミュレート実験を行った例<sup>12)</sup>を図7に示す。 $35 \text{ GHz}$  のマイクロ波で寸法パラメータ  $x=6 \sim 18$  内に離散的に分布した6個の立方体を連続的にランダム方位に配置して測定平均した平行偏光散乱強度の散乱角度分布を示してある。このマイクロ波周波数で  $1.57 - 0.006i$  の屈折率の物質を用いて等価体積球の散乱を計算した値も図中に示す。これによると散乱角  $30^\circ$  あたりから立方体粒子の散乱は球形粒子のそれより強くなり, 後方散乱にかけて平らな変化を示す。ここには示していないが垂直偏光散乱強度も全く同じ傾向を示す。散乱角度分布パターンは前述の NaCl エアロゾルのレーザー散乱の場合と同じであること, また前節の理論で述べた非球形粒子の散乱の特徴(2) side scattering は, 非球形粒子散乱では球形粒子散乱より1桁くらい大きくなるという一般論の示す傾向をもっていることがわかる。

#### 4.4 寸法パラメータ

散乱角度分布パターンのもつ傾向は, 寸法パラメータ  $x=ka$  ( $k=2\pi/\lambda$ ,  $a$ : 等価球の半径)によって異なってくる。上述の NaCl の場合は  $x=5 \sim 20$  の範囲で一般論に従ったパターンをとるが,  $x=3$  では等価球形粒子との相違がなくなるという実験結果<sup>10)</sup>が得られている。一方, 立方体のマイクロ波散乱実験では  $x=6 \sim 18$  の範囲で一般論に従ったパターンをとるが  $x=2 \sim 6$  では等価球形のものとの相違がない。これらの実験結果は, 前節の理論で述べた非球形粒子散乱の特徴(6)寸法パラメータ

$x=3\sim 5$ の間では球形粒子の散乱との相違がほとんどないという項目とよく一致している。

さて、寸法パラメータ  $x > 20$  の場合はどうなるのかという問題が起ってくる。このように大きな非球形粒子に関するデータはほとんど見当たらないが、side scattering が強くなるという点一般論に従う実験結果が得られている<sup>11)</sup>。

## 5. む す び

非球形粒子の散乱に関する研究についてその大要を述べた。球形粒子散乱との差異についての概念というものが主なものとなっている。一方、応用という点では広く行われている球形粒子散乱計測における場合と類似である。しかし、どのような粒子も一般的には非球形であるということ、そしてこの場合どのような点で球形の場合と異なっているかということ念頭においておく必要がある。

## 文 献

- 1) T. Allen: *Particle Size Measurement* (Chapman and Hall, London, 1981) pp. 103-106.
- 2) H. C. van de Hulst: *Light Scattering by Small Particles* (Dover Publ., New York, 1981) pp. 40-59.
- 3) G. W. Kattawar, C-R. Hu, M. E. Parkin and P. Herb: "Mueller matrix calculations for dielectric cubes: comparison with experiments," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 4174-4180.
- 4) T. M. Willis and H. Weil: "Disk scattering and absorption by an improved computational method," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 3987-3995.
- 5) A. Mugnai and W. J. Wiscombe: "Scattering from nonspherical Chebyshev particles. 1: Cross sections, single-scattering albedo, asymmetry factor, and backscattered fraction," *Appl. Opt.*, **25** (1986) 1235-1244.
- 6) W. J. Wiscombe and A. Mugnai: "Scattering from nonspherical Chebyshev particles. 2: Means of angular scattering patterns," *Appl. Opt.*, **27** (1988) 2405-2421.
- 7) C-R. Hu, G. W. Kattawar, M. E. Parkin and P. Herb: "Symmetry theorems on the forward and backward scattering Mueller matrices for light scattering from a nonspherical dielectric scatterer," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 4159-4173.
- 8) A. C. Holland and G. Gagne: "The scattering of polarized light by polydisperse systems of irregular particles," *Appl. Opt.*, **9** (1970) 1113-1121.
- 9) R. G. Pinnick, D. E. Carroll and D. J. Hofmann: "Polarized light scattered from monodisperse randomly oriented nonspherical aerosol particles: measurements," *Appl. Opt.*, **15** (1976) 384-393.
- 10) R. J. Perry, A. J. Hunt and D. R. Huffman: "Experimental determinations of Mueller scattering matrices for nonspherical particles," *Appl. Opt.*, **17** (1978) 2700-2710.
- 11) P. Koepke and M. Hess: "Scattering functions of tropospheric aerosols: the effects of nonspherical particles," *Appl. Opt.*, **27** (1988) 2422-2430.
- 12) R. Zerull: "Scattering measurements of dielectric and absorbing nonspherical particles," *Beitr. Phys. Atmos.*, **49** (1976) 168-188.
- 13) D. W. Schuerman, R. T. Wang, B. A. S. Gustafson and R. W. Schaefer: "Systematic studies of light scattering. 1: Particle shape," *Appl. Opt.*, **20** (1981) 4039-4050.