粒子分散型光学材料における多重散乱の解析

森 太 省

Multiple Scattering by Particle Dispersed Composite Material

Taisei MORI

In optical elements made by particle-distributed materials, light scattering may become an issue. I have derived an analytical solution to describe multiple light scattering by small dielectric spheres, and verified its validity by comparing with the extreme case of T-matrix method. Then, I show that the analytical solution is applicable to the analyses of large-sized optical elements.

Key words: particle, T-matrix, multiple scattering, GI, Gradient Index

粒子分散型光学材料は,通常の硝材では実現できない新 たな特性をもたせることができるため注目されている.し かし,分散させた粒子によって光が散乱してしまう.その 結果,例えば粒子分散型光学材料を撮像光学系に組み込ん だ場合に,その散乱光がフレアとなって画質が劣化すると いう問題が生じる.このため,粒子分散型光学材料を光学 素子に適用するには,粒子による光の散乱を制御する技術 が必要となる.よって粒子による光の多重散乱を見積もる ための手法が必要となる.

従来,粒子による光の多重散乱計算に用いられていた T-matrix法¹⁾では,計算コストの制限から小さい領域でし か計算を行えない.また,粒子配置変更によるアンサンブ ル平均も数値的に繰り返し計算をする必要があるため,限 られた粒子配置変更回数でしか計算を行えない.その結 果,粒子分散型光学材料を想定した大きな領域に分散され た多数の粒子による光の多重散乱の計算ができない.これ により散乱角度分布を精度よく計算できないという課題が あった.この課題を解決するために,粒子が散布されてい る領域を進行する有効場をT-matrix法に導入することによ り解析解を導出した.有効場を導入することで粒子間の光 の多重散乱を平均値として考慮することができる²⁾.本解 説では,解析解の各項のもつ意味を定性的・定量的に把握 する.また,計算結果をT-matrix法と比較してその差異の 物理的意味を明らかにする.これにより解析解の正当性を 確認し,粒子分散型光学材料を想定した大きな領域に分散 された多数の粒子による光の散乱解析に解析解を適用でき ることを検証する.

1. 解析モデルの前提条件

以下に挙げる前提条件の下で解析モデルを設定し(図 1),解析解を導出した.

- ・球形粒子はランダムに分散されていて、変形や凝集な どは起こらない.
- 入射波 E_{inc} は z 方向に伝搬する振幅1の直線偏光平面 波とする。
- ・簡単のため粒子分散型材料は入射波の進行方向(z方 向)に高さをもった円柱であるとし,円柱の高さを粒 子分散型材料の媒質厚1,円柱の直径を粒子分散型材 料の媒質幅dとする。
- ・簡単のため粒子分散型材料の母材と外界の屈折率は等 しいとし、両者の界面での散乱波の屈折を考慮しない.
- ・簡単のため散乱波は無限遠方での振る舞いを扱う.

2. 解析解の導出

粒子分散型光学材料内のすべての粒子からの散乱波は粒 子数*N*を用いて $\mathbf{E}^{r}(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{N} \mathbf{E}_{i}^{r}(\mathbf{r})$ で表される.ここで,**r**は 位置ベクトル ($\mathbf{r} = |\mathbf{r}|$), \mathbf{E}_{i}^{r} は τ 番目の粒子配置における

キヤノン(株) (〒146-8501 東京都大田区下丸子 3-30-2) E-mail: mori.taisei@canon.co.jp



図1 粒子散乱解析モデル.

*i*番目の粒子の単粒子による散乱波,*N*は粒子数を表す. このとき,微分散乱断面積 *I*_s(**r**)と散乱断面積 *P*_sを次式で 定義する.

$$I_{\rm s}(\mathbf{r}) = \frac{r^2}{S} \frac{1}{N_{\rm r}} \sum_{\tau=1}^{N_{\rm r}} \left| \mathbf{E}^{\tau}(\mathbf{r}) \right|^2 \tag{1}$$

$$P_{\rm s} = \int_{4\pi} \mathrm{d}\Omega I_{\rm s}(\mathbf{r}) \qquad (2)$$

ここで $S(=\pi (d/2)^2)$ は入射波が入射する粒子分散型光学 材料の面の面積である. N_r は粒子配置変更回数 $(N_r \gg 1)$ で あり,例えば粒子分散型光学材料の生産個体数だと考える ことができる. つまり,粒子配置変更による平均値 (ア >サンブル平均)を取ることにより個体によるばらつき (特 定の粒子配置に依存する散乱) は対象としない. d Ω は微 小立体角である.

T-matrix 法によれば, 球ベクトル関数を用いることにより, 入射波 E_{inc}(r), 単粒子による散乱波 E(r) をそれぞれ式(3),式(4) で表すことができる.

$$\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_{0} e^{in_{c}kz}$$
$$= \sum_{m,n} \left[a_{mn}^{inc(M)} Rg \mathbf{M}_{mn}(n_{c}k\mathbf{r}) + a_{mn}^{inc(N)} Rg \mathbf{N}_{mn}(n_{c}k\mathbf{r}) \right]$$
(3)

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_{m,n} \left[a_{mn}^{(M)} \mathbf{M}_{mn}(n_{e}k\mathbf{r}) + a_{mn}^{(N)} \mathbf{N}_{mn}(n_{e}k\mathbf{r}) \right]$$
$$\approx \frac{e^{in_{e}kr}}{n_{e}kr} \sum_{m,n} \gamma_{n,m} \left[\mathbf{i}^{-n-1} a_{mn}^{(M)} \mathbf{C}_{mn}(\theta, \phi) + \mathbf{i}^{-n} a_{mn}^{(N)} \mathbf{B}_{mn}(\theta, \phi) \right]$$
$$= \frac{e^{in_{e}kr}}{n_{e}kr} \mathbf{A}(\theta, \phi) \qquad (4)$$

ここで、 \mathbf{E}_0 は入射波の振幅ベクトル ($|\mathbf{E}_0| = 1$), n_e は母材 の屈折率、kは真空中での波数、(θ , ϕ) は散乱角 (それぞ れ \mathbf{r} の極角と方位角) である。また、 RgM_{mn} , RgN_{mn} , M_{mn} , N_{mn} は球ベクトル関数であり、 \mathbf{C}_{mn} , \mathbf{B}_{mn} はそれぞれ \mathbf{M}_{mn} , \mathbf{N}_{mn} の無限遠方極限での角度依存成分である。m, n は球ベ クトル関数の展開項数であり、係数 $\gamma_{n,m}$ はそれらに依存する. 一般に、T-matrix 法によると入射波と散乱波の球ベクトル関数による展開係数を並べた列ベクトル \mathbf{a}_{inc} と \mathbf{a} には式(5)の関係がある.

$$\mathbf{a} = T\mathbf{a}_{\rm inc} \tag{5}$$

ここで、TはT-matrix で粒子半径a、粒子の屈折率 n_s 、母材の屈折率 n_e 、波長 λ (= $2\pi/k$)に依存する。次に粒子が散布されている領域(以下媒質とよぶ)を入射波と同方向に伝搬する平面波を有効場として式(6)で定義する。

$$\mathbf{E}_{\text{eff}} = \frac{2n_{\text{e}}}{n_{\text{e}} + n_{\text{eff}}} \mathbf{E}_{0} e^{in_{\text{eff}}kz}$$
(6)

ここで、 n_{eff} は媒質の有効屈折率であり、式(7)で表される.これは QCA (quasi-crystalline approximation)³⁾等により導出される.また、後方に伝搬する有効場は前方に伝搬するものと比べて小さいので無視する.

$$n_{\rm eff} = \sqrt{\frac{1+2fy}{1-fy} + i2(ka)^3 y^2 \frac{f(1-f)^4}{(1-fy)^2(1+2f)^2}} \qquad (7)$$

$$y = \frac{n_{\rm s}^2 - n_{\rm e}^2}{n_{\rm s}^2 + 2n_{\rm e}^2} \tag{8}$$

$$\frac{4\pi a^3 N}{3V} = f \tag{9}$$

ここで、粒子体積濃度 f は媒質に対する粒子が占める体積 分率, V(= Sl) は媒質の体積である。各粒子は式(6)で 表される励起波を受けて散乱波を生じる。式(1)に基づ いて散乱角 (θ, φ) 方向の微分散乱断面積を導出すると(10-1) 式が得られる. 式 (10-1) から式 (10-2) への式変形は 媒質幅 d が波長に比べて十分に大きいときに成り立つ近似 である。粒子分散型光学材料では媒質幅 d が数 mm ~数 cmの大きさのものを対象にしている。これは可視光の波 長(≈数百 nm)と比べて十分に大きいため、精度よく成 り立つ近似である.式(10-1)の4項のうち式(10-2)に 残った第1項と第2項の和は散乱のインコヒーレント成分 であり、無視された第3項と第4項は散乱のコヒーレント 成分である. また, 式 (10-2) から式 (10-3) への式変形 は粒子径が波長に比べて十分に小さいとき (レイリー散 乱)に成り立つ近似である.(式(10)は次頁参照) ここで、 $\xi_s = k |\operatorname{Re}(n_{\text{eff}})\hat{z} - n_e\hat{r}|, \hat{z} は z 方向の単位ベクト$ ル, r はr 方向の単位ベクトル, H(p) は粒子対確率密度分 布関数の三次元フーリエ変換であり、粒子半径 a と粒子体 積濃度fに依存する.本解析では粒子対確率密度分布関数 に Percus-Yevick 関数⁴⁾を用いた。式(10-3)により粒子 半径 a が波長より十分に小さいときには微分散乱断面積は 媒質厚1に比例し、増えた粒子数に比例して微分散乱断面 積も大きくなることがわかる.

$$I_{s}(\theta,\phi) = \left| \frac{2\mathbf{A}(\theta,\phi)}{(n_{e}+n_{eff})k} \right|^{2} \left[\frac{1-\exp\{-2\mathrm{Im}(n_{eff})kl\}}{2\mathrm{Im}(n_{eff})k} \left\{ \frac{3f}{4\pi a^{3}} + (2\pi)^{3} \left(\frac{3f}{4\pi a^{3}} \right)^{2} H(\xi_{s}) \right\} + 4\pi \left(\frac{3f}{4\pi a^{3}} \right)^{2} \left| \frac{\exp\{i(n_{eff}-n_{e}\cos\theta)kl\}-1}{i(n_{eff}-n_{e}\cos\theta)k} \frac{J_{1}(n_{e}kd/2\sin\theta)}{n_{e}k\sin\theta} \right|^{2}$$
(10-1)
$$-\frac{4}{l} \frac{3f}{4\pi a^{3}} \left| \frac{\exp\{i(n_{eff}-n_{e}\cos\theta)kl\}-1}{i(n_{eff}-n_{e}\cos\theta)k} \frac{J_{1}(n_{e}kd/2\sin\theta)}{n_{e}kd/2\sin\theta} \right|^{2} \right]$$
$$\underset{a \approx 1}{\approx} \left| \frac{2\mathbf{A}(\theta,\phi)}{(n_{e}+n_{eff})k} \right|^{2} \frac{1-\exp\{-2\mathrm{Im}(n_{eff})kl\}}{2\mathrm{Im}(n_{eff})k} \left\{ \frac{3f}{4\pi a^{3}} + (2\pi)^{3} \left(\frac{3f}{4\pi a^{3}} \right)^{2} H(\xi_{s}) \right\}$$
(10-2)
$$\underset{a \approx 1}{\approx} \left| \frac{2\mathbf{A}(\theta,\phi)}{(n_{e}+n_{eff})k} \right|^{2} \frac{3}{4\pi a^{3}} \frac{f(1-f)^{4}}{(1+2f)^{2}} l$$
(10-3)



2.1 解析解の物理的解釈

式(10-1)を第1項~第4項に分け,各項の物理的意味 を考察する.

・第1項

1粒子による散乱(以下独立散乱とよぶ)を粒子数分足 し合わせた項である。図2に1粒子による独立散乱の様子 を示す。この場合,N個の粒子から1個を選び出す場合の 数はN通りであるからNに比例する。そして式(9)を 用いるとfに比例することがわかる。この項はランベルト ベールの法則と本質的に同一である。

第2項

同一粒子配置内の2粒子によって干渉した散乱(以下干 渉散乱とよぶ)を2粒子の組み合わせ数分足し合わせた項 である.図3に2粒子による干渉散乱の様子を示す.H(p)を導入することにより2粒子の間隔は確率的に決まり,干 渉散乱は統計値として計算される.H(p)として Percus-Yevick 関数を採用すると2粒子が非常に近い距離(粒子径 の5倍程度)にあるペアによる干渉散乱が支配的となり, 遠い距離にあるペアによる干渉散乱が支配的となり, 遠い距離にあるペアによる干渉散乱はコヒーレント成分と して第4項に現れている.この場合,N個の粒子から順序 を区別して2個を選び出す場合の数は $N(N-1) \gtrsim N^2$ であ るから,式(9)を用いると f^2 が乗じられることとなる.





異なる粒子配置内の2粒子による干渉散乱を2粒子の組 み合わせ数分足し合わせた項である.2粒子は同一粒子配 置内に存在しないため、2粒子の位置関係に制限はなく媒 質中のどこでも等確率で存在するためH(p)は現れない. この場合、ある粒子配置にあるN個の粒子から1個を選び 出し、それとは異なる粒子配置にあるN個の粒子から1個 を選び出す場合の数は $N \times N = N^2$ であるから N^2 に比例す る.そして式(9)を用いると f^2 に比例することがわか る.これは散乱のコヒーレント成分を表す項である.図4 に2粒子の位置と光路差の関係を示す.

2 粒子による光の散乱波の光路差は粒子間の媒質幅方向 の距離 d_w と媒質厚方向の距離 d_z を用いて $\varphi = n_e d_w \sin\theta + (n_{eff} - n_e \cos\theta) d_z$ で表され、 $\theta \neq 0$ のときには干渉散乱波の 強め合いや弱め合いが起こる。アンサンブル平均を取る際 に媒質幅 d が波長と比べて十分に大きい場合には、媒質幅 方向にあらゆる距離で存在する 2 粒子の組み合わせを取れ ばよい。これは粒子間隔の媒質幅方向成分 d_w のあらゆる 値について足し合わせることになる。これによって、干渉



図5 粒子体積濃度を変化させたときの全散乱,独立 散乱,干渉散乱の散乱断面積変化.

散乱波はゼロとみなすことができる.これに対して、 $\theta = 0$ のときには光路差は $\varphi \approx 0$ となり(粒子体積濃度が小さ く $n_{\text{eff}} \approx n_e$ とみなせる場合)2粒子間の間隔によらずいつ も散乱波は強め合うため干渉散乱は正の値を取る.しか し、 $\theta = 0$ は透過光の進行方向であり、粒子分散型光学材料では透過光のエネルギーは干渉散乱のエネルギーよりも 非常に大きい条件で使用するため無視することができる.

第4項

第3項と同様に2粒子の位置関係に制限のないペアによる干渉散乱である.第2項で無視した-Nから発生する項であるため負の値を取る.この項は第3項と似た振る舞いをするが2粒子の組み合わせ数には比例せず粒子数Nに比例するため,式(9)を用いてfに比例する.媒質厚1や媒質幅dが波長よりも十分に大きくなるとこの項の寄与は無視できる.

表1の計算パラメーターの値を用いて散乱断面積の独立 散乱寄与(式(10-2)第1項)と干渉散乱寄与(式(10-2) 第2項)の粒子体積濃度依存性を図5に示した。

図5により,微分散乱断面積の独立散乱による寄与が常 に正の値を取るのに対して,干渉散乱による寄与は負の値 を取り,干渉散乱が独立散乱を打ち消すように働いている ことがわかる.これは次のように説明することができる. 2粒子による干渉は式 (10-1)第3項についての説明で論じ たように,微粒子分散媒質が非常に大きい場合には媒質内 のあらゆる2粒子間隔について和を取ることで強め合い弱 め合いが均等に起こり, $\theta \neq 0$ ではゼロであると見なすこ とができる.しかしながら,2粒子は重なって存在するこ とはできないので2粒子の間隔は2*a*より小さくなれな



図6 2粒子が重なって存在する領域.

い. つまり, 2 粒子が重なって存在した場合の干渉散乱に よる寄与を全体から引いておく必要があるため干渉散乱は 負の値を取り,独立散乱を打ち消すように働く. 図 6 に示 すようにある粒子に注目して,他の粒子が注目する粒子か ら 2a より近くに存在する確率は,注目する粒子から半径 2a の球体内に他の粒子 (N-1 個の粒子から 1 個を選び出 す)が存在する確率であるから $4\pi (2a)^3/3V \times (N-1) \approx 8f c$ なる.式 (10-3)の f に依存する部分を f の多項式で展開す ると $f(1-f)^4(1+2f)^{-2} = f-8f^2+\cdots$ となっており,干渉 散乱の寄与の最低次項が $-8f^2$ となっているのはこのため である.

粒子体積濃度がきわめて低い場合には全散乱を独立散乱 だけで近似できることはよく知られている。粒子体積濃度 が低いときには独立散乱に対する干渉散乱の微分散乱断面 積の大きさの割合は $8f^2/f = 8f$ となる。例えば、この値が 1.0×10^{-3} 以下になるときに干渉散乱を無視できるとすれ ば $f \le 1.25 \times 10^{-4}$ となり、およそ粒子体積濃度が 1.0×10^{-4} 程度のときに独立散乱だけで近似できることになる。

3. 解析解の正当性検証

解析解とT-matrix法を用いた数値計算の計算結果を比較 し、その差異の物理的意味を考察し、解析解の正当性を検 証する.T-matrix法では微分散乱断面積を式(11)で定義 する.

$$I_{\rm s}(\mathbf{r}) = \frac{r^2}{S} \left[\frac{1}{N_{\rm r}} \sum_{\tau=1}^{N_{\rm r}} \left| \mathbf{E}^{\tau}(\mathbf{r}) \right|^2 - \left| \frac{1}{N_{\rm r}} \sum_{\tau=1}^{N_{\rm r}} \mathbf{E}^{\tau}(\mathbf{r}) \right|^2 \right]$$
(11)

式(11)の第2項は式(10-1)の第3項に現れるコヒーレン ト成分である.つまり式(11)はコヒーレント成分を除い た形となっているが,これは粒子分散型材料の媒質幅をき わめて小さく設定しても式(10-1)の第3項に相当するコ ヒーレント成分がゼロになるようにしている.

計算パラメーターは表1の値を用いたが、媒質幅と粒子 配置変更回数に関してはT-matrix 法にのみ用いる値であ り、表2の値を用いた.T-matrix 法においては計算機コス トの制限により媒質幅を実際の粒子分散型材料の媒質幅 よりきわめて小さい値に設定する必要がある.また、Tmatrix 法では、粒子配置変更によるアンサンブル平均を数



図8 媒質幅を変化させたときの総散乱量変化.

値的に計算する.

粒子体積濃度を変化させたときの散乱断面積の変化を図 7 に示した. T-matrix 法の計算結果に示したエラーバーは アンサンブル平均を取ったときの標準偏差を表している. これにより, T-matrix 法の計算結果は常に解析解よりも低 い値となっていることがわかる.

T-matrix 法による散乱断面積の計算結果が解析解の計算 結果を下回っている理由について次に考察する. 粒子体積 濃度を0.01として, 媒質幅を変化させたときの散乱断面積 の変化を図8に示した. T-matrix 法において媒質幅を大き くして解析解の媒質幅無限大という条件に近づけると, 総 散乱量の小さい値から増加して, 解析解の計算値に近づい ているのがわかる.

この現象を詳しくみるために微分散乱断面積の角度分布 の計算結果を解析解と T-matrix 法で比較する.図9はx 偏 光の入射波に対して,散乱角の極角 θ を0~180°で変化 させ,方位角 ϕ を0°に固定したときの微分散乱断面積を 解析解と T-matrix 法で比較した結果を示している.Tmatrix 法による微分散乱断面積の計算結果は低散乱角で解 析解を大きく下回っている.T-matrix 法による計算結果が 解析解の計算結果から乖離して落ち込みが起こるおおよそ



図9 媒質幅を変化させたときの微分散乱断面積角 度分布変化の比較.



図10 媒質幅を変化させたときの式(10-1)第4項変化の比較.

の散乱角を,図9中に○で示した.落ち込みが起こる散乱 角は媒質幅によって変化し,媒質幅が大きくなるほど小さ くなっているのがわかる.

T-matrix 法による微分散乱断面積が低散乱角で落ち込む 理由を次に考察する. T-matrix 法の計算においては計算コ ストの理由から媒質幅や媒質厚を波長と同程度の値を用い て計算しているため,解析解の式中の式(10-1)第4項が 無視できない. この項は負の値を取るため低散乱角で微分 散乱断面積を打ち消すように働いている. 図 10 に媒質幅 を変化させたときの式(10-1)第4項の変化を示す.

式 (10-1) 第4項はベッセル関数 $J_1(x)$ を含むため、 $x \le$ 3.832 で小さくなる. $1/2n_ekd \sin \theta = 3.832$ となる θ を計算 するとd = 1999 nm のときに $\theta = 15.6^\circ$, d = 992 nm のと きに $\theta = 32.8^\circ$ であり, 図9中の○で示した位置とよく一致 する. また、d = 278 nm のときには $1/2n_ekd \sin \theta = 3.832$ となる θ は存在しないため $A(\pi/2, \phi) = 0$ となる $\theta = 90^\circ$ で式 (10-1) 第4項は0となり, 図9中でd = 278 nm のと きには前方散乱全域 ($0 \le \theta \le 90^\circ$)にわたって落ち込みが 起こっているのがわかる. さらに後方散乱 ($90^\circ \le \theta \le$ 180°)では媒質幅が大きいほど微分散乱断面積の値が波 打っているが、これはベッセル関数のフリンジが見えてい るためである.

T-matrix 法を用いた計算では計算機の制限等により媒質 幅を数百~数千 nm までしか確保できない. これにより低 散乱角での散乱強度の落ち込みが起こってしまう.これに 対して解析解では、媒質幅を任意の値に設定できるため 大きくとることで低散乱角での微分散乱断面積の落ち込 みは起こらない.実際に用いる粒子分散型光学材料の媒質 幅は数 mm ~ 数 cm の大きさであるから、d = 5 mm とし て $1/2n_ckd\sin\theta = 3.832$ となる θ を計算すると $\theta = 6.2 \times$ 10^{-3} となる.つまり微分散乱断面積の落ち込みが起こる 範囲は非常に狭くなる.このとき、粒子分散型光学材料か ら光学系の像面までの距離を5 mm とすると、像面上での 微分散乱断面積の落ち込みが起こる範囲はおよそ1 μ m で あり、一般的な電子撮像素子の画素サイズよりも小さいた め透過光に埋もれてしまう.したがって、式(10-1)を式 (10-2) で近似することは問題がない.

粒子による光の多重散乱を見積もるために解析解を導出 し、定量化できることを示した.そして、解析解の各項の もつ意味を定性的・定量的に把握し、解析解の正当性を確 かめた.また、解析解による計算結果とT-matrix法による 数値計算結果を比較してそれらの差異の物理的意味を明ら かにすることにより,解析解がT-matrix法の極限として振 る舞っていることを確認した.以上により,粒子分散型光 学材料を想定した大きな領域に分散された多数の粒子によ る光の多重散乱解析に導出した解析解が適用可能であるこ とを検証した.特に実際の系では式(10-2)で記述できる ことを示した.

文 献

- P. C. Waterman: "Matrix formulation of electromagnetic scattering," Proc. IEEE, 53 (1965) 805–811.
- L. Tsang, J. A. Kong, K.-H. Ding and C. O. Ao: Scattering of Electromagnetic Waves: Numerical Simulations (Wiley, New York, 2001) pp. 533–547.
- L. Tsang, J. A. Kong, K.-H. Ding and C. O. Ao: Scattering of Electromagnetic Waves: Advanced Topics (Wiley, New York, 2001) pp. 207–213.
- 4) M. S. Wertheim: "Exact solution of the Percus-Yevick integral equation for hard spheres," Phys. Rev. Lett., **20** (1963) 321–323.

(2014年6月11日受理)