



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	フラクタル凝集媒質における光散乱
Author(s)	魚住, 純
Citation	電子科学研究, 2, 94-97
Issue Date	1995-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/24318
Type	departmental bulletin paper
File Information	2_P94-97.pdf



フラクタル凝集媒質における光散乱

光システム計測研究分野 魚住 純

フラクタル凝集体は、代表的な質量フラクタルである。質量フラクタルからの光散乱では、単散乱近似における前方小角散乱強度が散乱ベクトルの大きさ q に対して q^{-D} に依存して変化する (D はフラクタル次元) ことが知られている。しかし、散乱場における媒質のフラクタル性の現れ方は多様であり、この関係以外にも興味ある現象が観測される。ここでは、前方散乱と後方散乱という異なる状況において現れる2つの現象について考える。前方散乱については、バリスティックな透過光強度が凝集体の巨視的な粒子密度に対して D に依存して変化する現象について、また後方散乱については、光子の弱局在に起因する後方散乱ピークの形状が媒質のフラクタル性を反映する現象について述べる。

1. はじめに

液体や気体中の拡散運動下の微粒子が互いに凝集してできる構造体は、ススやヨーグルトなどのように、身近にもよく見られる構造の1つである。このような凝集体は、質量フラクタルと呼ばれる最も典型的なフラクタル構造を持つことが知られている。フラクタル凝集体は物理的に脆弱なものが多く、その構造を調べようとする場合、非接触・非破壊的な特性を持つ光などの散乱現象の利用が特に有効である。このような観点から、フラクタル構造による光の回折や散乱の研究に近年興味が持たれている^[1,2]。

さて、質量フラクタルには、その質量の空間分布の相関関数が

$$C(r) \propto r^{D-d} \quad (1)$$

のべき法則に従うという性質がある。ここで、 D はフラクタル次元、 d はフラクタル構造が存在するユークリッド空間の次元である。このような散乱媒質からの光散乱を考える。最も簡単な場合として、個々の構成粒子からの単散乱が支配的に散乱場に寄与する場合には、前方小角散乱の散乱強度は上に述べた相関関数 $C(r)$ のフーリエ変換で与えられ、

$$I(q) \propto q^{-D} \quad (2)$$

となる^[3]。ただし、 $q = (2\pi/\lambda)\sin(\theta/2)$ は散乱ベクトルの大きさで、 λ は光の波長、 θ は散乱角である。実際のフラクタル凝集体では、相関関数にべき法則が成り立つ r の範囲は有限である。つまり、フラクタル構造の構成単位の大きさ a とフラクタル的相関の上限 (フラクタルクラスタの大きさ) R の間のスケール $a < r < R$ においてのみフラクタル性が現れ、その結果、式(2)の有効範囲も $1/R < q < 1/a$ に限られる。光散乱では、このうち R の影響が重要となることが多い。クラスタサイズ R の影響を含めた前方小角散乱強度は、

$$I(q) \propto \left[1 + \frac{2(qR)^2}{3D} \right]^{-\frac{D}{2}} \quad (3)$$

でよく近似される^[4,5]。

式(2)や(3)の関係は、質量フラクタルのフラクタル次元 D やフラクタルスケールの上限 R を求める実験的方法としてよく使われている。しかし、散乱場に対するフラクタル性の影響は、この関係式以外にも様々な形で現れる。たとえば、前方散乱の $q < 1/R$ の領域に現れるバリスティックな透過光強度が凝集体の巨視的な粒子密度に対して D に依存して変化する現象がある^[6]。また、散乱場に対する多重散乱の影響が強くなってくると、単散乱過程における式(2)の特性が多重散乱によって乱されることになるが、そのような状況においても、後方散乱光中に現れる光の弱局在に起因する

コヒーレントな散乱ピークの形状が媒質のフラクタル性を反映する^[7,8]。本報告では、この2つの現象についてのこれまでの研究を概説する。

2. バリスティックな透過光

半径 R のフラクタル凝集クラスタが一様に集合した系からの散乱を考える。粒子径 a が光の波長 λ より大きい場合、粒子による散乱を幾何光学的に扱うことができるが、その扱いは D が2を越えるか否かによって異なる。 $D < 2$ の場合、フラクタルクラスタは透過性が高い。したがって、1つのクラスタの散乱断面積 σ_{cl} は1粒子の散乱断面積 σ_s を用いて $\sigma_{cl} = N\sigma_s$ で近似できる。一方、 $D > 2$ においては、クラスタは不透明となり、 $\sigma_{cl} = 2\pi R^2$ で表されると考えられる。

さて、1つのクラスタに含まれる粒子の数は $N = (R/a)^D$ であり、したがって、1クラスタの平均粒子密度は $\Phi_a = a^{-3}(R/a)^{D-3}$ で与えられる。クラスタが一様に集合した系では、この粒子密度 Φ_a が系全体の粒子密度 Φ に等しい。このような考えに基づいて、クラスタを1つの粒子とみなしたときの散乱平均自由行程 l_{cl} の Φ に対する依存性として、

$$l_{cl} \propto \begin{cases} \Phi^{-1} & D < 2 \\ \Phi^{1/(D-3)} & D > 2 \end{cases} \quad (4)$$

が導かれる。

長さ L のこのような媒質中を散乱されずにバリスティックに透過する光強度は、吸収がないものとして、 $T(L) \propto \exp(-L/l_{cl})$ で表される。したがって、 L に対する $T(L)$ の変化から l_{cl} を実験的に測定し、 Φ に対するその依存性を調べることにより、 $D > 2$ であるときには、式(4)からフラクタル次元 D が求められるものと予想される。

このことを確かめるため、スキムミルクによるフラクタルゲルを用いて実験を行った。スキムミルクの水溶液を酸性化させると、カゼインの凝集によってフラクタルゲルが生じる。図1はこの媒質に対する前方小角散乱実験の結果で、式(2)または(3)のべき法則が確認できる。特に、式(3)に対するフィッティングよりフラクタル次元 D と平均クラスタ径 R が求められる。スキムミルクの初期濃度 c を変えて測定を繰り返した結果が図1の挿入図で、フラクタル次元が c には依存せず、 $D = 2.18 \pm 0.12$ の値を示すことが分かる。

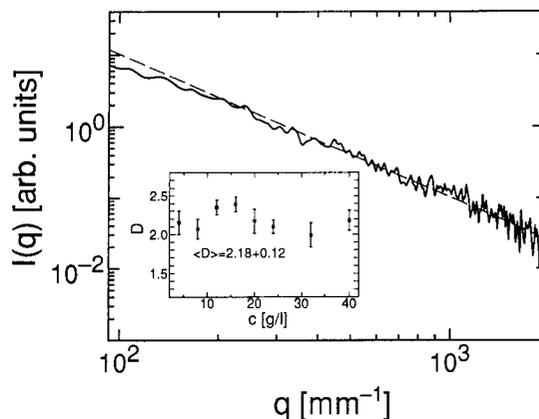


図1 散乱ベクトルの大きさ q に対するスキムミルクの凝集ゲルからの前方小角散乱強度 $I(q)$ の変化。挿入図は、スキムミルクの初期濃度 c に対するフラクタル次元 D の変化。

次に、ウェッジ状のセル内にゲルを生成し、セル長 L を変えながらバリスティックに伝搬する透過光を検出した。 L に対する透過光強度の変化から l_{cl} を求め、その値をスキムミルクの初期濃度 c に対してプロットした結果が図2である。図2には、凝集前の試料に対する結果（一様な粒子系の散乱平均自由行程 l_s ）も合わせて示してある。凝集前の試料では、 l_s は明らかに c に逆比例している。これに対して、凝集ゲルではそれとは異なる依存性を示しており、最小自乗フィッティングにより $l_{cl} \propto c^{-1.34}$ なる関係が得られる。この関係を、式(4)に当てはめることにより、フラクタル次元として $D = 2.25$ を得るが、この値は小角散乱による結果とよく一致している。このことは、式(4)の妥当

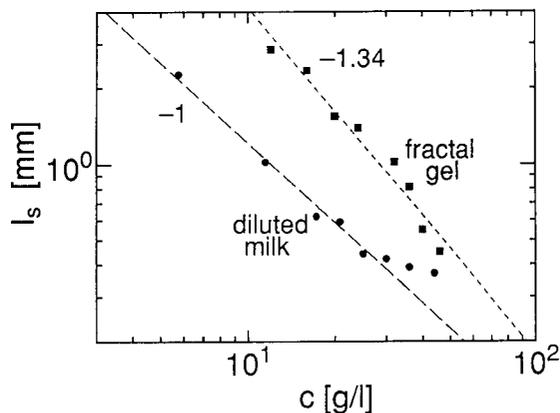


図2 スキムミルク水溶液およびその凝集ゲルの散乱平均自由行程の初期濃度依存性。

性を示しているといえる。このように、前方小角散乱光のみならず、直進成分であるバリスティックな光からもフラクタル次元の推定が可能である。

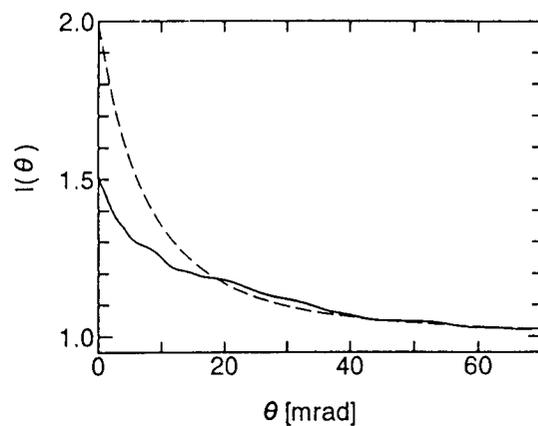
3. 後方散乱エンハンスメント

前方散乱光が測定できないような状況でも、後方散乱光から物体のフラクタル性の情報を得ることができる。ランダム媒質中の多重散乱を伴う後方散乱現象のなかで、近年特に注目されているものに、後方散乱エンハンスメント現象がある。これは、媒質への入射方向と正反対方向の散乱光に、多重散乱中のコヒーレントな干渉効果による強度ピークが現れる現象で、媒質中の光子の弱局在に起因するものとされている^[9]。

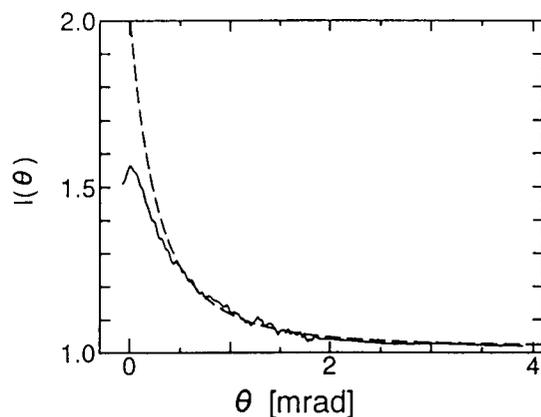
我々は、直径 $0.4 \mu\text{m}$ のアクリル (PMMA) 球を懸濁させた水に凝集誘発物質である食塩を添加して生成したフラクタル凝集体を試料として、後方散乱エンハンスメントの実験を行った^[7,8]。生成した凝集クラスタの一部を取り出して前方小角散乱強度を測定し、その結果に式(3)をフィットさせることにより、そのフラクタル次元は食塩濃度にはほとんど依存せず $D \approx 1.5$ であること、および平均クラスタ径 R は食塩濃度への依存性を示すことを確認した。

このような試料からの後方散乱ピークの強度分布を、逆反射方向を基準とした散乱角の関数としてプロットしたものを図3(a)に示す。図中の破線は、一様な散乱媒質を仮定した光の拡散モデルに基づく理論曲線であるが、実験結果はこの曲線から大きく逸脱している。比較のため、フラクタル凝集試料とほぼ同じ平均粒子密度を持つラテックス球の懸濁液、およびアクリル球のコンパクトな粉体層からの後方散乱ピークを測定した結果を図3(b), (c)にそれぞれ示す。図3(a)の曲線は、 θ が小さい領域では一様懸濁液によるピークに似た立ち上がりを示しつつ、ピーク幅などの全体としての振る舞いは、粉体層からのピークに近いことが分かる。このことは、図3(a)のピーク形状が、密度の高い領域から大きな空隙までを含むというフラクタル特有の構造を反映していることを意味している。

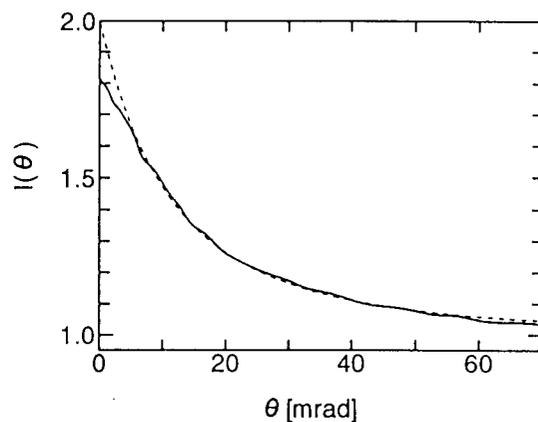
ピーク幅が同程度の図3(a)と(c)を両対数プロットしたものが図4である。一様媒質によるピークには、 θ の小さな領域と大きな領域において、それぞれ、 θ^{-1} および θ^{-2} の依存性が現れるのに対して、フラクタル媒質



(a)



(b)



(c)

図3 (a) $0.4 \mu\text{m}$ 径の PMMA 微粒子からなる平均粒子濃度 2% のフラクタル凝集体, (b) $0.46 \mu\text{m}$ のポリスチレン球からなる平均粒子濃度 2% の一様懸濁液, および (c) $0.4 \mu\text{m}$ 径の PMMA 微粒子の一様粉体層の 3 種類の試料からの後方散乱エンハンスメント現象のピーク形状。破線は拡散理論に基づく理論曲線。

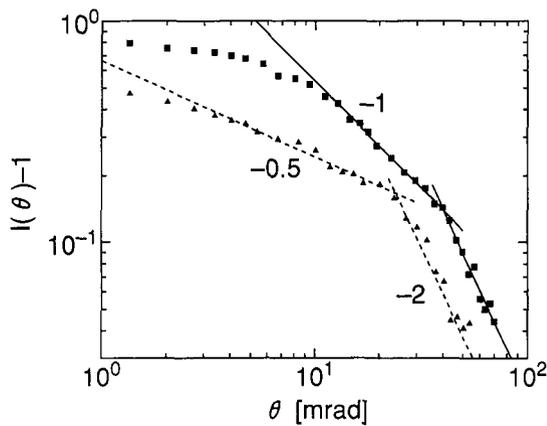


図4 図3(a), (c)の曲線の両対数表示。▲がフラクタル凝集体，■が一様粉体層によるもの。

の場合には、 θ が小さい領域に $\theta^{-0.5}$ という非整数指数のべき法則が現れる。後方散乱ピークの θ が小さい領域での振る舞いは、媒質の表面付近の散乱経路を経た光が支配的に寄与していると考えられており、したがって、その振る舞いには媒質の表面の次元の影響が強く現れるものと推測される。一様媒質と凝集媒質の表面のフラクタル次元が各々 2 および 1.5 であること

を考えると、図4は θ^{-D} なる依存性を示唆している。

また、後方散乱ピークの高さ（エンハンスメント係数）を調べた結果、それがフラクタルクラスタの大きさ R に依存するという実験結果が得られている^[8]。したがって、後方散乱ピークの振る舞いから、次元 D とクラスタ径 R というフラクタル凝集体の2つの主要なパラメータを決定できる可能性がある。

4. おわりに

フラクタル媒質からの散乱場にはそのフラクタル性が多様な形で現れていることが明らかとなった。このことは、様々な異なる条件下で、媒質のフラクタル的特性を非接触・非破壊的に評価できることを意味している。特に、前方小角散乱と後方散乱エンハンスメントは検出方向が互いに逆であり、その相補的性格は応用上意味が大きい。フラクタル媒質からの後方散乱エンハンスメント現象は、エンハンスメント現象自体の解明という観点からも意義が大きい。散乱ピーク形状のフラクタル次元依存性をさらに詳しく調べるため、現在計算機シミュレーションによる解析を行っているが、実験データの集積も今後必要である。

【文 献】

- [1] 魚住純, 朝倉利光: 光学, **22**, 8 (1993).
- [2] J. Uozumi and T. Asakura: *Current Trends in Optics*, ed. J. C. Dainty (Academic Press, London, 1994), p.83.
- [3] T. Vicsek: *Fractal Growth Phenomena* (World Scientific, Singapore, 1992).
- [4] M. E. Fisher and R. J. Burford: *Phys. Rev.*, **156**, 583 (1967).
- [5] G. Dietler, C. Aubert, D. S. Cannell and P. Wiltzius: *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 3117 (1986).
- [6] A. Dogariu, J. Uozumi and T. Asakura: *Waves in Random Media*, **4**, 1 (1994).
- [7] A. Dogariu, J. Uozumi and T. Asakura: *Waves in Random Media*, **2**, 259 (1992).
- [8] A. Dogariu, J. Uozumi and T. Asakura: (submitted for publication).
- [9] P. Sheng: *Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media* (World Scientific, Singapore, 1990).