



Title	光波多重散乱で生じる拡散場の時空間特性
Author(s)	岩井, 俊昭
Citation	電子科学研究, 2, 133-136
Issue Date	1995-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/24330
Type	departmental bulletin paper
File Information	2_P133-136.pdf



光波多重散乱で生じる拡散場の時空間特性

附属電子計測開発施設 岩井俊昭

コヒーレント後方散乱光の時空間における統計的な特性は、散乱媒質を構成する散乱粒子の非等方性、すなわち粒子径に強く依存している。モンテカルロシミュレーションを用いた多重散乱現象の解析において Rayleigh-Debye 散乱を仮定すると、散乱粒子の非等方性の影響を数値解析することが可能になる。後方多重散乱光のコヒーレント・ピーク強度分布においては、その強度が増加し、散乱角幅が広がる。これは、散乱回数頻度分布と光路長分布とが、粒子の数密度と Rayleigh-Debye 位相関数から得られる平均光路長で関係づけられていることによる。一方、時間相関関数は、緩和時間が増加する。これは、平均光路長と輸送平均光路長が Rayleigh-Debye 位相関数による散乱角の平均で関係付けられ、さらにその粒径における単一散乱の緩和時間が粒径に依存することによる。

1. はじめに

高濃度溶液からのコヒーレント後方散乱現象は、多重散乱の影響で次のような様相を示す。空間的には、①逆反射方向に鋭い強度ピークキング現象を生じる^[1,2]、②このピーク強度は直交偏光成分より平行偏光成分が顕著である^[3,4]、③粒径の小さい粒子からのピーク強度分布は空間的に非対称である^[5]、④粒径が小さくなるとピーク強度も減少する^[6]。これら空間的な特徴は、粒子濃度が大きいと必ず経路が完全に一致するが方向が逆の対の光波が干渉し、強め合うために生じる。この現象は、光の弱局在と呼ばれている。一方、時間的には、⑤時間相関関数は単一の指数関数では表せない^[7]、⑥粒径が小さくなると相関時間も減少する^[8]、⑦相関特性は散乱角に依存する^[9,10]。このような時間的な変動は、波長より小さいオーダの散乱体の運動変位の検出に応用する研究として現在進んでいる。

多重散乱現象はランダムな過程であるので、上述の諸現象はモンテカルロシミュレーションを用いて波動光学的に解析が可能である。特に解析的には実現が不可能な散乱体形状についての解析に有効であると考えられる。これまでの研究では、各散乱事象においては等方的な散乱か Rayleigh 散乱を仮定していたため、

粒径依存性についての解析が不十分であった。本報告では、各散乱事象において Rayleigh-Debye 散乱を仮定して、モンテカルロシミュレーションによるコヒーレント後方散乱光の時空間特性の粒径依存性を調べた。

2. シミュレーションのアルゴリズム

Fig.1 に、シミュレーションで用いる絶対座標系と散乱座標系を示す。絶対座標系 (X, Y, Z) においては、光の入射点を原点を定め、 $Z > 0$ の半空間が散乱媒質とする。座標原点から媒質に垂直に入射した光は最初 Z 軸に沿って進み、第一回目の散乱点に到達し、散乱される。その後、光波が媒質内で多数回散乱され

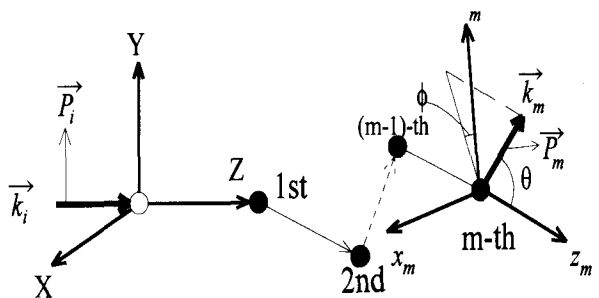


Fig.1 Absolute and scattering coordinate systems.

出射するまでのそれぞれの散乱過程は、散乱粒子を座標原点とする散乱座標系を用いて追跡する。

粒子に散乱された光波の伝播は、各散乱座標系において定義される天頂角 θ 、方位角 ϕ および伝播距離を用いて決定される。天頂角 θ は、 $(0, \pi)$ の範囲で変化し、Rayleigh-Debye 散乱の位相関数^[11]

$$P(\theta) = \frac{(\epsilon_r - 1)^2}{16\pi^2} |\vec{P}_m|^2 V^2 F^2(\theta_m) \quad (1)$$

を発生確率密度関数とする乱数から決定される。ここで、 ϵ_r と V はそれぞれ比誘電率と粒子の体積を表す。 $F(\theta)$ は形状影響要素関数であり、散乱体が半径 a の球であるときには次式で与えられる。

$$F(\theta) = \frac{3}{k_s^3 a^3} (\text{sinc} k_s a - k_s a \cos k_s a) \quad (2)$$

ここで、 k を波数とし、 $k_s = 2k \sin(\theta/2)$ である。方位角 ϕ は、 $(0, 2\pi)$ の範囲で変化する一様乱数から決定される。伝播距離は散乱光が直進する距離 R_m で表し、 $P(R_m) = \exp(-R_m/l)/l$ を確率密度関数とする乱数で与える。ここで、 l は平均自由行程を表す。

Rayleigh-Debye 散乱の散乱光の偏光は

$$\begin{aligned} \vec{P}_m &= -\vec{k}_m \times (\vec{k}_m \times \vec{P}_{m-1}) \\ &= S(\vec{k}_m) \vec{P}_{m-1} \end{aligned} \quad (3)$$

で決定されるので、媒質内を n 回多重散乱した光波の偏光 \vec{P}_f とその逆方向散乱過程の \vec{P}_r はそれぞれ次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} P_f &= \prod_{m=1}^n S(\vec{k}_m) \vec{P}_i = S_f \vec{P}_i \\ \vec{P}_r &= \prod_{m=1}^n S(-\vec{k}_m) \vec{P}_i = S_r \vec{P}_i \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

このとき、 $S_f = S_r^T$ が成り立つ。たとえば、絶対座標系の X 方向に直線偏光した光波が入射するとき、出射光の偏光は、 $\vec{P}_f = (S_{xx}, S_{yx}, 0)$ と $\vec{P}_r = (S_{xx}, S_{xy}, 0)$ になる。ここで、 S_{ij} は j 方向の偏光成分が i 方向の偏光成分に変化したときの電場の複素振幅を表す。

3. コヒーレント後方散乱光強度分布

コヒーレント後方散乱ピークは、 \vec{P}_f と \vec{P}_r の干渉の結果生じるため、すべての散乱次数の散乱光のコヒーレント和として表わされる。よって、平行偏光成分と垂直偏光成分の平均強度は、それぞれ次式で与えら

る^[12]。

$$\langle I_{XX} \rangle = \frac{p(1) + 2 \sum_{n=2}^{\infty} p(n) F_{nX} (1 + \cos \Phi_{nX})}{p(1) + \sum_{n=2}^{\infty} p(n) F_{nX}} \quad (5)$$

$$\langle I_{YX} \rangle = \frac{\sum_{n=2}^{\infty} p(n) F_{nY} (1 + \Gamma_{nY} \langle \cos \Phi_{nX} \rangle)}{\sum_{n=2}^{\infty} p(n) F_{nY}} \quad (6)$$

ここで、 $P(n)$ は n 回の散乱を経て媒質から光波が出射する確率であり、 Φ_{nX} は媒質境界面での光波の出射点の位置 (X_n, Y_n) で決まる位相差 $\Phi_{nX} \approx k\theta_n(X_n - X_1)$ を表す。 F_{nX} と F_{nY} はそれぞれ入射エネルギーに対する平行偏光成分および垂直偏光成分の割合を示し、次式で定義される。

$$F_{nX} = \frac{2\langle |S_{nXX}|^2 \rangle}{2\langle |S_{nXX}|^2 \rangle + \langle |S_{nXY}|^2 \rangle + \langle |S_{nYX}|^2 \rangle} \quad (7)$$

$$F_{nY} = \frac{\langle |S_{nXY}|^2 \rangle + \langle |S_{nYX}|^2 \rangle}{2\langle |S_{nXY}|^2 \rangle + \langle |S_{nXY}|^2 \rangle + \langle |S_{nYX}|^2 \rangle} \quad (8)$$

さらに、 Γ_{nY} は平行偏光成分と垂直偏光成分のコヒーレンス係数を表し、次式で定義される。

$$\Gamma_{nY} = \frac{2\langle S_{nXY} S_{nYX}^* \rangle}{\langle |S_{nXY}|^2 \rangle + \langle |S_{nYX}|^2 \rangle} \quad (9)$$

4. 時間相関関数

散乱粒子がブラウン運動するとき、その粒子群からの散乱場は時間的にも空間的にも定常的である。したがって、光波が空間的に位置が固定された粒子を伝播するモンテカルロシミュレーションから得た散乱回数の頻度分布 $P(n)$ 、すなわち光路長分布 $p(s) = p(nl)$ (l : 平均自由行程) は、散乱体が運動変位するごとに測定することができるであろう光路長分布の集合平均に等しい。したがって、多重散乱光の強度ゆらぎ相関関数は、重み関数 $p(s)$ と単一散乱相関関数との積の総和になることが類推できる。

光波の統計が複素ガウス過程に従うとき、拡散理論は次式の関係を与える。

$$\begin{aligned} \gamma_{\Delta t}(\tau) &= \left| \frac{\langle E(t) E^*(t + \tau) \rangle}{\langle |E(t)|^2 \rangle} \right|^2 \\ &= \left| \int_0^{\infty} p_N(s) e^{-s\tau} ds \right|^2 \end{aligned} \quad (10)$$

ここで、 $s = s/4l^*\tau_0$ であり、 l^* は輸送平均自由行程、 τ_0 は単一散乱光の緩和時間である。また、 $P_N(s)$ は規格化された光路長密度関数を表し次式で定義され

る。

$$P_N(s) = \frac{p(4l^* \tau_0 s)}{\int_0^\infty p(4l^* \tau_0 s) ds} \quad (11)$$

5. シミュレーション結果

Fig.2 と Fig.3 は、溶液の体積濃度を 10% に固定したとき、粒子径 $0.07 \mu\text{m}$, $0.23 \mu\text{m}$, $0.35 \mu\text{m}$ に対して、式(5)から算出したコヒーレント後方散乱ピークと、式(10)から算出した時間相関関数を示す。Fig.2 は、平行偏光成分において散乱粒子径が増加するとピークは増加し、かつその幅が広がることを示す。このピーク強度の散乱角幅の変化は、 $\Delta\theta \approx \lambda/l^*$ にしたがって変化しており、Rayleigh-Debye 散乱理論を用いた粒子径依

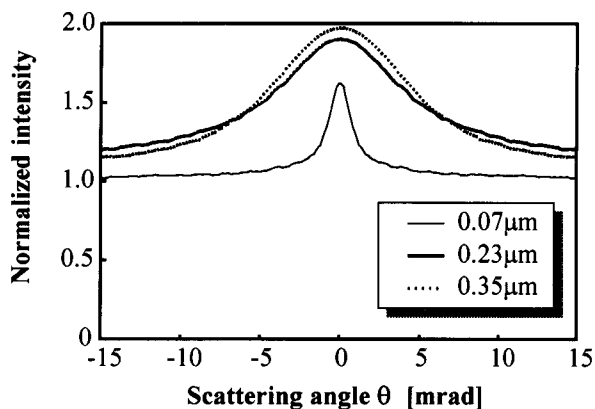


Fig.2 Co-polarized intensity.

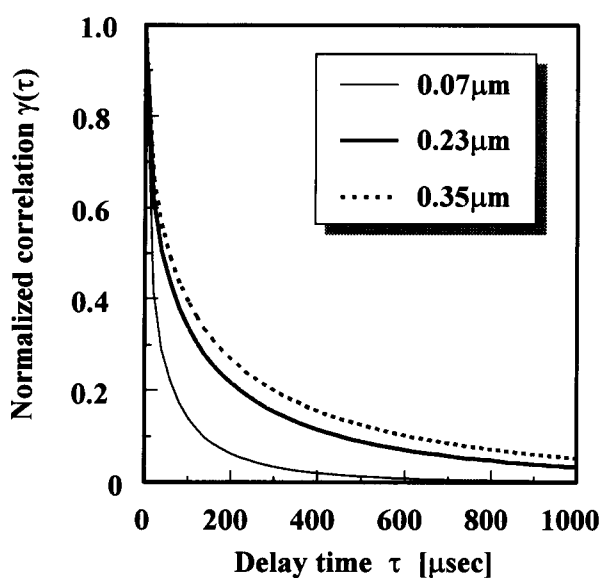


Fig.3 Temporal correlation function.

存性の解析が正しいことを示している。Fig.3 は、粒子径が増加すると時間相関関数の緩和時間が増加することを示す。これは粒子径の増加とともに、粒子の拡散定数が減少し、運動速度が低下する^[13] ことに対応している。

Fig.2 と Fig.3 の時空間特性を光路長分布から解釈するために、各粒子径に対する光路長分布 Fig.4 に示す。図より、平均自由行程は、粒子径が増加するほど、平均自由行程は減少するため、短光路長に集中するようになる。散乱光の光路長が短いほど、散乱溶液からの出射位置が光子の入射位置に近くなるため、Far-field 領域の後方散乱ピーク強度分布は広がる。また、コヒーレンスの低下も小さいため、ピーク強度が増加するとともに、時間相関関数の緩和時間も増加する。したがって、Fig.2 と Fig.3 に示すコヒーレント後方散乱光の時空間特性は、光波が辿る光路長分布の挙動によって決定される。

6. 結論

Rayleigh-Debye 散乱理論をコヒーレント後方散乱光のモンテカルロシミュレーションに適用することにより、時空間特性の粒子径依存性を解析できることを示した。さらに、後方多重散乱光の時空間特性は、光波が辿る光路長分布で決定されることを示した。

本シミュレーションは、光波の多重散乱現象を忠実に再現するものであり、散乱光の波動的性質をすべて

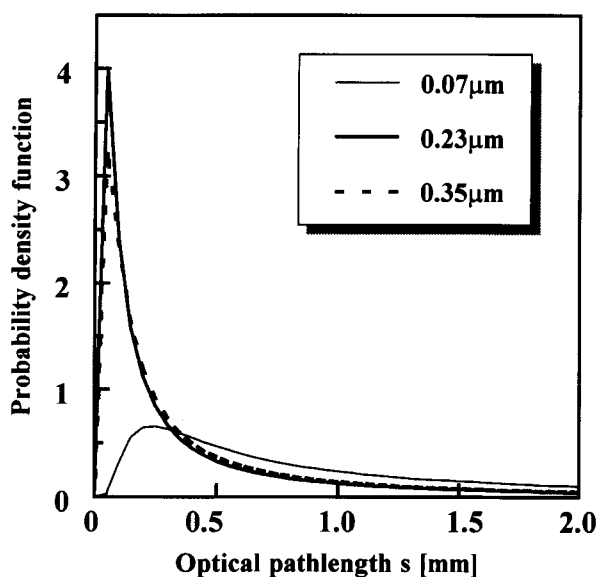


Fig.4 Pathlength distribution function.

有している。さらに、対象とする散乱物体に対する制約もほとんどなく、主にシミュレーションでしか実現

が困難なフラクタル物体などからの散乱光の時空間特性の解析にも有効と考える。

【参考文献】

- [1] Y. Kuga and A. Ishimaru, *J. Opt. Soc. Am.*, **1**, 831 (1984).
- [2] P. -E. Wolf and G. Maret, *Phys. Rev.* **55**, 2696 (1985).
- [3] S. Etemad, R. Thompson, and H. J. Andrejco, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 575 (1986).
- [4] M. P. van Albada M. B. van der Mark, and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 361 (1987).
- [5] M. P. van Albada and A. Lagendijk, *Phys. Rev. B*, **36**, 2353 (1987).
- [6] P. -E. Wolf, G. Maret, E. Akkermans and R. Maynard, *J. Phys., France*, **49**, 63 (1988).
- [7] D. J. Pine, D. A. Weitz, J. X. Zhu and E. Herbolzheimer, *J. Phys. France*, **51**, 2101 (1990).
- [8] 岩井俊昭, 静岡大学工学部研究報告, **42**, 31 (1991).
- [9] D. N. Qu and J. C. Dainty, *Opt. Lett.*, **13**, 1066 (1988).
- [10] T. Iwai and J. C. Dainty, *OSA Tech. Digest* **20**, 50 (1992).
- [11] A. Ishimaru, *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (Academic Press, New York, 1978).
- [12] T. Iwai, H. Furukawa, T. Asakura, *Proc. of MUSCLE7*, 94- (1994).
- [13] B. J. Berne and R. Pecora, *Dynamic Light Scattering with Applications to Chemistry, Biology and Physics* (John Wiley & sons. Inc., New York, 1976).