高濃度単分散エアロゾル粒子の多重光散乱特性[†]

奥田 聡・高野 頌・山村 直*

同志社大学工学部 化学工学科^{††}

高濃度単分散エアロゾル粒子の多重光散乱特性が、粒子径と粒子個数濃度を因子として数値的かつ実験的に研究された。数値解析結果から、多重光散乱次数の増加とともに散乱光強度の角度分布関数が単調となり、やがて散乱角度に依存しなくなることがわかった。また、散乱光強度の検出集光角度が $0 \sim \pi \text{rad}$ という広い範囲の値である場合には、それぞれの粒子径に対する散乱光強度と粒子個数濃度との関係は多重光散乱因子を導入することによって簡単な表現にまとめられた。ここでこの因子は、粒子1個あたりの多重光散乱光強度と単一散乱光強度の比として定義された。単分散ポリスチレンラテックスを使用し、強い共振レーザービーム中での散乱光強度の実験結果から、たとえ低い粒子個数濃度であっても多重光散乱が起こることが示された。さらに、散乱光強度から得られた多重光散乱因子の測定データが数値解析結果と定量的に良く一致することが確かめられた。

緒 言

エアロゾル中の粒子濃度が低く、散乱体積中に個々の粒子が近似的に1個だけ存在するという単一光散乱の場合には、粒子の散乱光強度は一般にLorenz-Mieの理論を用いることにより求められる^{6,8)}。しかしながら、種々のエアロゾル粒子発生源で観察されるように粒子濃度が高い場合には、粒子相互の光学的な干渉が起こり光散乱現象は多重光散乱へと移行する。

多重光散乱に関する研究の多くは、主として液相中に分散する微粒子を対象とする実験的研究として行われたが、理論的研究はほとんどなかった。そしてこの問題を初めて理論的に定式化したのは、透過光の減衰に関するHartelの研究³⁾であった。しかし、散乱光強度の角度分布関数の数値解析が困難であったために研究の進展はなかったが、その後Chu-Churchill¹⁾とClarkら²⁾がこの角度分布関数を理論的に展開し、水滴の光散乱に対する数値解析に適用した。また、Tamoto-Yotabun⁹⁾は解析結果をもとに、 $1.0 \mu\text{m}$ までの液相中の粒子に対して単一光散乱から多重光散乱への移行過程を数値的に明らかにした。一方、多重光散乱次数の増加とともに多大な計算時間が必要となることから、数値解析法に関する研究の主力はKattawar⁵⁾の研究のように、Henyeg-Greenstein

近似¹⁰⁾による低次の多重光散乱強度に対する角度分布関数を求めることに注がれてきた。他方、Hartelの理論の妥当性を確かめるための実験的研究はWoodward¹²⁾による液相中に分散した微粒子による透過光強度の減衰に関して検討された程度であり、十分になされていない。

そこで本報では、高濃度エアロゾル粒子の光散乱現象を明らかにするために、まずHartelの多重光散乱理論を用いて散乱角度、粒子径ならびに粒子個数濃度に対する散乱光強度の数値解析を行った。ここでは、従来ほとんど計算されていなかった散乱パラメータが大きい場合、つまり粒子径が大きくかつ散乱次数も高いという条件にまで計算領域を拡張した。さらに、エアロゾル粒子を測定対象とした実験的研究がほとんどないので、試作したレーザー共振光源と放物凹面鏡とにより構成される全散乱光集光型測定装置を用いて高濃度の単分散エアロゾル粒子の散乱光強度の測定を行った。そしてこれらの実験結果と数値解析結果との比較検討から、多重光散乱現象を解析的に取り扱うためのいくつかの知見が得られたので以下に報告する。

1. 多重光散乱特性の数値解析

1.1 Hartelの理論と測定系光学条件

エアロゾル粒子による多重光散乱強度は、Hartelによって求められた理論式³⁾を用いて、光の入射方向からの偏角として定義される散乱角度 θ に対し次式のように仮定される。

[†] 1986年11月25日受理；第2回エアロゾル科学・技術研究討論会（京都、1984年8月）にて発表

^{††} 〒602 京都市上京区烏丸今出川

* 大日本製薬（株）製品研究所 製剤研究部

$$I_t(\theta) = \sum_{k=1}^{\infty} Q_k f_k(\theta) \quad (1)$$

ここで、 Q_k は k 次散乱の光強度分布関数で k 次散乱する粒子の存在確率を表し、実験結果⁷⁾よりPoisson分布が用いられ、散乱体積 V と粒子個数濃度 N との関数として、次式で示される。

$$Q_k = \frac{\exp(-NV)}{k!} (NV)^k \quad (2)$$

また、 f_k は散乱角度 θ における散乱光強度の角度分布関数で、粒子径、入射光の波長、粒子の屈折率などの物理的物性に関与する因子であり、次式で示される^{1,2)}。

$$f_k(\theta) = \frac{1}{4\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{a_n^k}{(2n+1)^{k-1}} P_n(\cos \theta) \quad (3)$$

ここで、 a_n は角度分布係数、 P_n は Legendre の多項式であり、 a_n は次のように表される。

$$a_n = \frac{2(-1)^n}{\alpha^2 K_{sca}} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^i \left(\frac{2}{1+\sigma_{ij}} \right) \left\{ (2n+1) \left[\frac{i(i+1)+j(j+1)}{2} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{n(n+1)}{2} \right] w_{ijn} W_{ij} + v_{ijn} V_{ij} \right\} \quad (4)$$

ここで、 α は散乱パラメータであり、次式で定義される。

$$\alpha = \pi D_p / \lambda \quad (5)$$

また、 σ_{ij} は $i=j$ のとき 1 で、それ以外では 0 となる。Eq.(4)におけるいくつかの変数の詳細は Appendix に示した。さらに、 Q_k 、 f_k はそれぞれ 0 次から無限次散乱までの総和ならびに全立体角度に対して 1 となる。

一方、角度分布関数 f_k の収束性を調べるために、ここで Eq.(3) における k 次散乱の係数を $C_n^{(k)}$ として、次のように定義した。

$$C_n^{(k)} = \frac{a_n^k}{(2n+1)^{k-1}} \quad (6)$$

さて、 K_{sca} を散乱係数とすると、測定系の中心から距離 r での散乱角度 θ における散乱光強度 I は次式で定式化される。

$$I(\theta) = \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} \left\{ 2\pi \alpha^2 K_{sca} I_t(\theta) \right\} \quad (7)$$

一方、実際に測定される散乱光強度との対比のための数値解析は、測定系の光学的条件から次のように行われる。まず用いる光源が Fig. 1(a) に示すように共振光であり、また集光面が放物凹面であることから、集光面積の幾何学的割合は $2\pi \sin \theta$ となり⁴⁾、電磁波におけるポテンシャルの加算性が成り立つものとして散乱光強度は $\pi/2$ rad を中心として折り返し積分される。つまり、任意の散乱角度 β から γ までの立体角度で測定される散乱光強度 I_p はレンズ系の透過度などの光学定数 D を用いて次式で示される。

$$I_p = \frac{D}{2} \left\{ \int_{\beta}^{\gamma} 2\pi \sin \theta \cdot I(\theta) d\theta + \int_{\pi-\gamma}^{\pi-\beta} 2\pi \sin \theta \cdot I(\theta) d\theta \right\} \quad (8)$$

以上のような定式化を用いて実験に使用した光学系に対応した多重光散乱強度が数値解析され、測定結果との比較検討がなされた。

1.2 数値解析法

数値解析を行うための計算プログラムは、光学条件と粒子物性の設定、角度分布係数、角度分布関数および多重光散乱強度の計算部分より構成される。ここで計算に必要な因子は、光波長 λ 、粒子径 D_p 、粒子個数濃度 N 、粒子屈折率 m 、散乱角度範囲 $\beta \sim \gamma$ 、散乱体積 V であり、これらはあらかじめ初期条件として与えておいた。

まず、Appendix に示したように角度分布係数 a_n は散乱係数 K_{sca} 、係数 W_{ij} 、 V_{ij} 、 w_{ijn} 、 v_{ijn} によって計算される。ここで K_{sca} は球 Bessel 関数の漸化式¹¹⁾から、また W_{ij} 、 V_{ij} は Mie 散乱振幅関数の i, j 番目の実数部、虚数部から求められた。次に、 w_{ijn} 、 v_{ijn} は定義式を直接解くのではなく漸化式を用いて計算した。 a_n を求めるのに必要とされる i, j, n の頂数は散乱パラメータが 25 でそれぞれ 60 項、50 で 120 項となり、計算に莫大な時間を必要とするため、ここでは散乱パラメータが 35 までの計算が可能であるように 90 項までの値を計算領域内に収納した。光波長が 632.8 nm の場合、散乱パラメータが 35 では粒子直径は $7 \mu\text{m}$ となり、このように大きな散乱パラメータに対する計算はいまだなされていなかった。なお、 W_{ij} 、 V_{ij} および a_n はすべて倍精度計算で求め、 10^{-8} の誤差で計算を打ち切った。

次に、 a_n の値と Legendre の多項式を用いて得られる角度分布関数 f_k を求め、粒子個数濃度から決定される Q_k とによって Eq.(1) より I_t が計算され、さらに Eqs.(7),(8) より測定値との比較が可能な散乱光強度 I_p が数値計算された。なお収束判定は、 Q_k の Simpson 法による積分値が 10^{-8} の打ち切り誤差で 1 となる点で行った。小さな散乱パラメータの範囲で、ここで求められた a_n および f_k の計算が Woodward の計算結果¹²⁾と一致することから、本報における計算精度が十分であることが確かめられた。

2. 実験装置および方法

2.1 散乱光強度の測定系

測定部本体の断面図を Fig. 1(b) に示した。単波長の光源として、波長 632.8 nm の He-Ne ガスレーザー（東芝 LAG 20 型、定格出力 20 mW、TEM₀₀ モード）を使用した。レーザー光線には、出力側に透過率 $0.1 \pm 0.1\%$ の全反射ミラーを測定器本体にはさむように設置することにより、直径が約 2.5 mm の強い光強度の共振ビーム光を得た。また、測定部本体はこの共振条件を崩さないようにブリュスター窓を用いて気密性を保った。

エアロゾル粒子は測定部上部から入り、放物凹面鏡の

Fig. 1 Optical arrangement of the measuring device

焦点を通過する。ここでレーザー光ビームの半径方向の入射光強度分布による散乱光強度の分布をできるだけ狭くするためには、エアロゾル流束をできるだけ絞ることが望ましい。しかし一方で、ノズル径を小さくすると、散乱体積中に存在する粒子数が減少してしまうので、本実験ではノズル径はビーム径の1/3以下の0.8mmとした。そして散乱体積は $1.26 \times 10^{-3} \text{ cm}^3$ であった。流れ中のエアロゾル粒子はレーザー光線と交わって放物凹面鏡の焦点の位置する散乱体積から散乱光を放射した。この散乱光は放物凹面鏡で反射して平行光線となりレンズ系へと導かれ、さらに直径2mmの光ファイバコリメータ（日本板硝子、OPCL）に集光され、光検出器により電圧に変換された。ここでは、光学系の幾可学的形状から $\beta=0 \text{ rad}$ 、および $\gamma=\pi \text{ rad}$ の集光角度に対応する散乱光強度が測定された。

2.2 信号処理システムの構成と処理法

多重光散乱信号の電圧波形を正確に測定するために、本実験では時間応答性が速く、かつ多量のデータを処理するために、Fig. 2に示す信号処理システムを構成した。

光ファイバに導かれた散乱光はまず高速光電子増幅器（栄光電機、PEA-HC2）に送られ、ここでサイドオン型光電子増倍管（浜松ホトニクス、R928）によって電流に変換され、さらに高速度の電流-電圧変換および増幅（周波数応答特性：0~2.3MHz（-3dB以上）、波形特性：スルーレート126 $\mu\text{A}/\mu\text{s}$ （1MHz））が行われた。そして、この散乱光信号は、レーザー光源の出力変動を補償するために設けられたフォトダイオード（シャープ、PD-80PI、周波数応答特性5MHz）からの参照光信号により相対化されて、入射光強度に依存しないアナログ信号となった。

増幅されたパルス状のアナログ信号は、つぎにA/D変換ユニット（日本科学工業、1412、最大入力レンジ±10V、変換ビット12bit/1word、最小サンプリング時間5 μs ）によってデジタル化され、大容量データメモリー（日本科学工業、5211、256KB）に入力された。蓄えられたデジタル信号は16bitマイクロコンピュータ（日本科学工業、REALEX-16）のCRUバスに直接接続され、コントロールモードで取り出すことができた。

Fig. 2 Diagram of the hardware set-up for signal analysis

以上述べた計測システム構成とその特性から、本実験で用いた信号処理システムは、半値幅が $100\mu\text{s}$ 程度以上の散乱光強度のパルス信号を十分な精度で検知し、また測定データを正確に記録できるものと判断された。さらに、エアロゾル粒子の個数濃度が高い場合には、多重散乱光パルスは重畳する Lorentz 関数に最小二乗近似でき、したがって粒子個々に対するパルスの波高値が多重パルスから解析的に求められた。

2.3 エアロゾル粒子の発生法

粒子発生における流れ系の概略を Fig. 3 に示した。実験用試料として、単分散の白色ポリスチレンラテックス粒子 (PSL, Dow Chemical) で粒子径が $0.497\mu\text{m}$, $0.804\mu\text{m}$, $0.913\mu\text{m}$ のものを使用した。なお、光波長 632.8 nm に対する試料粒子の屈折率はいずれも 1.595 とした。

試料は蒸留水 (大塚製薬) を用いて希釈し、ネビュライザーによって噴霧させた。噴霧用空気はコンプレッサーのレシーバタンクからフィルターを通してゲージ圧力が 0.3 kg/cm^2 一定で供給された。なお実験では $0.05\mu\text{m}$ カットのメンブランフィルター (野村マイクロサイエンス, 直径 47 mm) を使用した。噴霧された試料はドラインチャンバーに送られて粒子表面の水分が蒸発され、さらにこの水蒸気は拡散ドライヤーによって吸着除去された。なお、発生したエアロゾル粒子の凝集の程度は、 $0.497\mu\text{m}$ と $0.913\mu\text{m}$ の場合、2 個以上の凝集粒子は個数比でそれぞれ 1.3% , 0.9% 以下であった。

拡散ドライヤーでのエアロゾル流量は $16.7\text{ cm}^3/\text{s}$ 一定とし、また測定部に導入されるエアロゾル流量は 667 cm^3

Fig. 3 Diagram of aerosol flow

/s となるように調整された。なお、流量は液膜法により検定された。

3. 結果および考察

3.1 数値計算による角度分布関数の検討

エアロゾル粒子の多重散乱特性を解析する上で、散乱光強度の角度分布は粒子径に対する応答特性とともに重要な因子である。とくに高次散乱における角度特性は高濃度エアロゾル粒子の光散乱現象を特徴づける。

k 次散乱における散乱光強度の角度分布関数 f_k は Eq. (3) で示したように Legendre の多項式と、角度に依存しない角度分布係数 a_n とを乗算した形で表現できる。しかしここでは、 a_n は散乱パラメータが大きくなるにつれて収束性が悪くなり、また規則性も少なくなることがわかっている⁹⁾、 k 次散乱の a_n を含む収束性の良い $C_n^{(k)}$ を Eq. (6) で定義し、その特性を調べた。たとえば、散乱パラメータが 10.0 の場合、 $C_n^{(k)}$ は Fig. 4 に数値計算結果として示したように、散乱次数 k が高次になるほど項数 n の増加とともに急速に小さくなり、したがって全散乱次数に対する $C_n^{(k)}$ の総和は速やかに収束した。一方、散乱パラメータが大きくなるほど高次の散乱の寄与率が高くなることにより、 10^{-8} の打ち切り誤差に対する収束は悪くなった。

次に、実験に用いた試料のうち、光源の波長が 632.8 nm の場合で $0.497\mu\text{m}$ および $2.02\mu\text{m}$ の粒子径に対応する散乱パラメータ 2.46 と 10.0 の角度分布関数 f_k の計算結果をそれぞれ Fig. 5(a) および Fig. 5(b) に示した。いずれの場合にも、1 次散乱の角度特性は散乱パラメータによって特徴づけられ、さらに極大値が π/α の周期で現れること、前方散乱の寄与率が高くなること、また 2 次以上の散乱に対しては角度分布が単調となり 20 次散乱では散乱角度に依存せずほぼ一定の値を示すことが明らかとなった。

以上のように、高濃度エアロゾルに対する角度分布特性は係数 $C_n^{(k)}$ の収束性によって決定され、散乱パラメー

Fig. 4 Typical calculated result on the converted coefficient of angular distribution

タが大きいはど高次散乱への依存度が強くなった。つまり、光波長が一定の場合、粒子径が大きいはど多重光散乱の影響が強く現れることが明らかとなった。

3・2 粒子個数濃度の影響

多重光散乱強度は、Eq.(1)に示したように粒子径の関数である f_k と粒子個数濃度によって決定される光強度分布関数 Q_k とによって表される。ここで Q_k はまた測定器の幾何光学的条件、つまりエアロゾル粒子束と入射光線とが交わる散乱体積によって決定される。すなわち、散乱体積と粒子個数濃度から散乱体積中で k 次散乱する粒子の光強度分布関数が求められ、したがって多重光散乱に対する粒子個数濃度の影響が検討できる。

Fig. 6 に粒子個数濃度が 5×10^4 個/cm³ から 10^4 個/cm³ における Q_k の計算値を示した。低い粒子個数濃度では1次散乱の比率が大きいが、たとえば 10^3 個/cm³ 以上の高い粒子個数濃度になると高次散乱の寄与が明らかに強くなることがわかった。また、たとえ 5×10^2 個/cm³ 程度の低い個数濃度のときでさえ、散乱光の相互干渉が現れることが示された。さらにFig.7には粒子個数濃度が10個/cm³ から 10^4 個/cm³ の範囲において、 k 次散乱する粒子の角度分布を考慮して計算された全散乱集光の散乱光強度が示された。ここで、散乱光強度は粒子径に対して良い応答関係を示し、また粒子個数濃度に対しては散乱体積中の粒子個数の増大に伴ってその散乱体積全体から放射される散乱光強度が強くなることが明らかとなった。

以上に述べてきた多重光散乱特性を確かめるために、単分散標準エアロゾル粒子を用い、粒子個数濃度が $10^2 \sim 6 \times 10^3$ 個/cm³ の実験範囲で散乱光強度の全散乱角度

(a) In the case where the scattering parameter is 2.46 (Particle diameter: $0.497 \mu\text{m}$)

(b) In the case where the scattering parameter is 10.0 (Particle diameter: $2.02 \mu\text{m}$)

Fig. 5 Numerical analyses on the angular distribution function related to the order of multiple scattering

集光測定を行った。Fig. 8 に、エアロゾル粒子径をパラメータとして粒子個数濃度と散乱光強度との関係について、数値解析値と実験値との比較を行い、それぞれを実線とプロットとで示した。この結果から明らかのように、粒子個数濃度に対する実験値は解析値と同様の傾向を示し、 2×10^3 個/cm³ 付近から強い相互干渉により粒子1個当たりの散乱光強度が高い粒子個数濃度の領域で一定の値を示すことが実験により明らかとなった。次に、散乱光強度に対する粒子径の影響を考えてみると、数値解

Fig. 6 Properties of light quantities for several particle number concentrations

Fig. 7 Response curves as a function of particle number concentration

析結果からもわかるように散乱光強度は粒子径の応答特性に対応する値を示し、またこの場合には粒子径に対して相似的な関係を示すことが実験的に明らかとなった。

3.3 多重光散乱因子による多重度の評価

高い粒子個数濃度における多重光散乱特性を評価するために、ここでは多重光散乱因子 C を定義し、この因子を導入して光散乱特性を考察した。ここで、十分に低い粒子個数濃度で散乱体積中にエアロゾル粒子がただ 1 個だけ存在するときの散乱光強度を単一散乱光強度とすると、多重光散乱因子 C はこの単一散乱光強度に対する粒子 1 個あたりの多重散乱光強度の比として定義された。

Fig. 8 Comparison between numerical analysis and experimental data on the multiple scattering intensity for some particle diameters

Fig. 9 Effect of the particle diameter on the multiple scattering intensity for a single particle

すなわち、この定義から因子 C は粒子同志の光学的な相互作用によって起こる多重光散乱の程度を示す尺度という物理的意味をもつ。一方、Fig. 9 に数値解析結果として示すように、粒子個数濃度の増加とともに粒子 1 個あたりの多重散乱強度は減少するので、因子 C が単一光散乱では 1 で、多重光散乱に移行していくにつれて指数

Fig.10 Numerical and experimental results on the multiple scattering factor in the case where the collecting angle for detecting scattered light is $0-\pi$ rad

的に減少することが示唆された。

この因子 C の特性を明らかにするため、Fig.10 に粒子個数濃度に対する因子 C の実験値と数値解析値との比較を示した。粒子個数濃度が 10^2 個/ cm^3 まではほぼ $C=1$ となり、特定の散乱体積から発せられる散乱光強度は単一光散乱の重ね合わせとして測定され、一方、高い粒子個数濃度領域において、濃度の増加とともに因子 C は指数的に減少し、多重光散乱へと移行することがわかった。そしてこれはまた前述したように、粒子個数濃度が高いほど散乱体積中に存在する粒子 1 個あたりの散乱光強度が低下することを意味する。また Fig.10 に実線で表した数値解析結果は、実験結果と非常に良い一致を示すとともに、いくつかの粒子径に対する結果を統合的に簡単な関係で表現できることがわかった。

以上のように、多重光散乱因子 C を用いることにより粒子個数濃度に直接に起因する多重光散乱効果を知ることができた。全散乱角度集光型の光学系では多重光散乱因子 C は粒子径に依存せず、また粒子個数濃度に強く影響されることが明らかとなった。このことは、Fig.5 に示したように、角度分布関数は本来散乱パラメータによって変化するはずであるが、全散乱角度集光型の場合にはこの角度分布がすべての散乱角度で積分され平均化されてしまうという点から理解できる。

結 言

Hartel の理論式を用いて、単分散エアロゾル粒子の多重光散乱特性を数値解析した結果、高い粒子個数濃度において角度分布特性は単調となること、さらに高次散乱では角度依存性が薄れて一定値を示すことがわかった。また散乱パラメータが大きいほど散乱次数に対する角度

分布係数の収束性が悪くなり、高次散乱の寄与が高くなることも明らかにされた。一方、試作した多重光散乱測定装置を用いた実験結果から、全散乱角度集光型の光学系では粒子個数濃度の増加とともに散乱体積中の多数個粒子から集光された散乱光強度は一定値に収束し、したがって逆に粒子 1 個あたりの散乱光強度が指数的に減少することがわかり、またこのことは多重光散乱因子を導入することにより簡単な関係としてまとめることができた。さらに、粒子径や粒子個数濃度に対する散乱光強度の実験結果が数値解析結果と極めて良く一致することが確かめられ、したがって高い粒子個数濃度における単分散エアロゾル粒子の多重光散乱現象が解析的に取り扱えるものと結論づけられた。

Appendix 角度分布係数の計算

角度分布係数 a_n は次式で与えられる¹⁾。(Eq.(4) 参照)

$$a_n = \frac{2(-1)^n}{\alpha^2 K_{sca}} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^i \left(\frac{2}{1+\sigma_{ij}} \right) \left\{ (2n+1) \left[\frac{i(i+1)+j}{2} \right. \right. \\ \left. \left. \frac{(j+1)-n(n+1)}{2} \right] w_{ijn} w_{ij} + v_{ijn} v_{ij} \right\}$$

ここで、 α は散乱パラメータ、 σ_{ij} は $i=j$ のとき 1 でそれ以外では 0 である。

$$W_{ij} = \text{Re}(A_i) \text{Re}(A_j) + \text{Im}(A_i) \text{Im}(A_j) + \text{Re}(B_i) \text{Re}(B_j) \\ + \text{Im}(B_i) \text{Im}(B_j)$$

$$V_{ij} = \text{Re}(A_i) \text{Re}(B_j) + \text{Im}(A_i) \text{Im}(B_j) + \text{Re}(B_i) \text{Re}(A_j) \\ + \text{Im}(B_i) \text{Im}(A_j)$$

ここで、 Re は実数部、 Im は虚数部を示す。 A_i, A_j, B_i, B_j は次式で示される Mie 理論の散乱振幅関数の i, j 番目である⁶⁾。

$$A_n = \frac{(-1)^{n+\frac{1}{2}} (2n+1)}{n(n+1)} \cdot \frac{S'_n(\beta) S_n(\alpha) - m S'_n(\alpha) S_n(\beta)}{S'_n(\beta) \phi_n(\alpha) - m \phi'_n(\alpha) S_n(\beta)}$$

$$B_n = \frac{(-1)^{n+\frac{3}{2}} (2n+1)}{n(n+1)} \cdot \frac{m S'_n(\beta) S_n(\alpha) - S'_n(\alpha) S_n(\beta)}{m S'_n(\beta) \phi_n(\alpha) - \phi'_n(\alpha) S_n(\beta)}$$

ここで、 m は屈折率、 $\beta = m\alpha$ である。また、 $S_n(\alpha)$ 、 $\phi_n(\alpha)$ はそれぞれ Ricatti-Bessel 関数、Ricatti-Hankel 関数であり、Bessel 関数とは次の関係がある¹¹⁾。

$$S_n(\alpha) = \sqrt{\pi\alpha/2} J_{n+\frac{1}{2}}(\alpha)$$

$$\phi_n(\alpha) = S_n(\alpha) + i C_n(\alpha)$$

また、

$$C_n(\alpha) = (-1)^n \sqrt{\pi\alpha/2} J_{-(n+\frac{1}{2})}(\alpha)$$

さらに、散乱係数 K_{sca} は次式で与えられる。

$$K_{sca} = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n^2(n+1)^2}{(2n+1)} (|A_n|^2 + |B_n|^2)$$

次に、 w_{ijn}, v_{ijn} は次式で定義される¹⁾。

$$w_{ijn} = 0, \text{ if } i+j-n \neq 2r, r=0, 1, 2, \dots, k$$

$$w_{ijn} = \frac{(\angle i+n-j)(\angle j+n-i)(\angle i-j+n)(\angle \frac{i+j+n}{2})^2}{(\angle i+j+n+1) \left[(\angle \frac{i+n-j}{2})(\angle \frac{j+n-i}{2})(\angle \frac{i+j-n}{2}) \right]^2} \\ \text{if } i+j-n = 2r, r=0, 1, 2, \dots, k$$

$$v_{ijn} = 0, \text{ if } i+j-n \neq 2r+1, r=0, 1, 2, \dots, k$$

$$v_{ijn} = \frac{(2n+1)(i+j-n)(i+n-j+1)(j+n-i+1)(\angle i+n-j+1)}{4(\angle i+j+n+1) \left[(\angle \frac{i+n-j+1}{2})(\angle \frac{j+n-i+1}{2}) \right]^2}$$

$$\frac{(\angle j+n-i+1)(\angle i+j-n+1)\left(\angle \frac{i+j+n+1}{2}\right)^2}{\left(\angle \frac{i+j-n-1}{2}\right)^2}$$

if $i+j-n=2r+1$, $r=0, 1, 2, \dots, k$

なお、 $\angle$ は階乗を示す。数値解析では、 w_{ijn} , v_{ijn} に対して漸化式²⁾が用いられた。

〔謝 辞〕 本研究を行うにあたり、実験装置の試作に協力されました当時学部生、広瀬潤氏、清水浩氏に心より感謝いたします。また、数値計算には東京大学大型計算機センター・HITAC S-810および京都大学大型計算機センター・FACOM M-382を使用いたしました。

Nomenclature

a_n	= angular distribution coefficient	[-]
C	= multiple light scattering factor	[-]
$C_n^{(k)}$	= coefficient defined by Eq.(6)	[-]
D	= corrective value for optical condition	[l/W]
D_p	= particle diameter	[m]
f_k	= angular distribution function	[-]
I	= intensity of scattered light	[W/m ²]
I_p	= apparent value of scattering intensity	[relative]
I_t	= theoretical value of multiple light scattering intensity	[-]
K_{sca}	= scattering coefficient	[-]
k	= order of multiple light scattering	[-]
N	= particle number concentration	[No./m ³]
P_n	= Legendre polynomials	[-]
Q_k	= function of intensity quantities	[-]
r	= distance from the center of scattering	

volume	[m]
V	= scattering volume [m ³]
V_{ij} , v_{ijn} , W_{ij} , w_{ijn}	= coefficients in Eq.(4) [-]

α	= scattering parameter [-]
β, γ	= collecting angles of scattered light [rad]
θ	= scattering angle measured from the direction of incident light [rad]
λ	= wave length of laser beam [m]

Literature cited

- 1) Chu, C.M. and S.W.Churchill : *J. Opt. Soc. Amer.*, **45**, 958 (1955)
- 2) Clark, G.C., C.M. Chu and S.W.Churchill : *ibid.*, **47**, 81 (1957)
- 3) Hartel, W. : *Das Licht*, **10**, 141 (1940)
- 4) Hodgkinson, J.R. : *Appl. Opt.*, **4**, 1463 (1965)
- 5) Kattawar, G.W. : *J. Quant. Spectr. Rad. Trans.*, **15**, 839 (1975)
- 6) Kerker, M. : "The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation", Chap. 3, Acad. Press (1969)
- 7) Okuda, S., H.Takano and K.Sato : Preprints of the 51th Annual Meeting of The Soc. of Chem. Engrs., Japan, C-105, Osaka (1986)
- 8) Takahashi, K. : "Kiso Aerosol Kougaku", p.145, Yokendo (1982)
- 9) Tamoto, U. and A.Yotabun : *Ohyo Butsuri*, **45**, 1127 (1976)
- 10) van de Hulst, H.C. : "Multiple Light Scattering, 2", Chap. 10, Acad. Press (1980)
- 11) Wickramasinghe, N.C. : "Light Scattering Function for Small Particles", pp.25, 41, Adam Hilger (1973)
- 12) Woodward, D.H. : *J. Opt. Soc. Amer.*, **54**, 1325 (1964)

Characteristics of Multiple Light Scattering on Highly Concentrated Mono-Dispersed Aerosol Particles

Satoshi Okuda, Hiroshi Takano and Tadashi Yamamura *

Dept. of Chem. Eng., Doshisha Univ., Kyoto 602

Key Words : Aerosol, Light Scattering, Environment, Optical Measurement, High Concentration

The properties of multiple light scattering of highly concentrated mono-dispersed aerosol particles are numerically and experimentally investigated in terms of particle size and number concentration. The numerical results show that by increasing the

order of multiple scattering, the angular distribution function of scattering intensity becomes simple and is finally independent of the scattering angle. In the case where the collection angle for detecting the scattered light is in a wide range of $0-\pi$ radian, the relationship between the scattering intensity and the particle number concentration for each particle size is consolidated into a simple expression by introducing the multiple scattering factor, defined as the ratio of the multiple/singular scattering intensities for a single particle. Results of experiments performed in a highly resonanced laser beam using mono-dispersed polystyrene latex, indicate that multiple light scattering occurs even at relatively low particle number concentration. It is also confirmed that the measuring data on the multiple scattering factor obtained from the scattering intensity are quantitatively in good agreement with the numerical results.

* Dainihon Seiyaku Co. Ltd.