導電性ナノ粒子分散体による光吸収の Mie-integration 解析

Mie-integration analysis of optical absorption by conductive nanoparticulate dispersions

住友金属鉱山株式会社　市川研究センター[1]
○町田 佳輔 [1], 足立 健治 [1]
Ichikawa Research Center, Sumitomo Metal Mining Co., Ltd. [1], ○Keisuke Machida[1], Kenji Adachi[1]
E-mail: Keisuke_Machida@ni.smm.co.jp

金属や導電性酸化物など導電体のナノ微粒子は、自由電子の局在表面プラズモンにより紫外～可視～近赤外の波長領域に強力な光吸収を示す。一般に貴金属微粒子が示す光学吸収は、入射光の電磁場に関するマクスウェル方程式の厳密解を得る Mie の理論とバルク誘電関数を用いた解析（Mie 解析）により、ほぼ正確に予測されてきた。しかし粗大粒子のブレイクダウン法により製造されたナノ微粒子分散体のように、Mie 解析値と実測値に大きな不一致が見られる場合がある。例えば日射遮蔽材料として用いられる $Cs_{0.32}WO_{3-y}$ 微粒子では、バルク誘電関数を用いた Mie 解析は実測される光吸収を十分に再現できない（Fig. 1）。粒径、粒形状、粒子間相互作用など種々の要因を検討した結果、表面の Cs 脱離や酸素欠損濃度の変化が微粒子自体の誘電関数をバルク値から変化させ、かつ粒子間でばらついていることが主要因であると判明した。同様に LaB_6 ナノ微粒子では、加工に伴う誘電関数変化に加えて、粒子の球形状からの大きなズレが集団不均一性の主原因となることが分かった。

本発表では、微粒子集団内の不均一性を考慮するために開発した新しい方法（Mie-integration 法）について報告する。これは各微粒子の特徴を記述する変数を乱数でばらつかせ、個々の粒子の Mie 散乱を異なる変数値でそれぞれ計算したのち統合する手法である。誘電関数の粒子間ばらつきを考慮することで、$Cs_{0.32}WO_{3-y}$ ナノ粒子集団の示す光学吸収プロファイルはほぼ完全に再現できた（Fig. 2）。またこの解析から、粉砕されたナノ粒子ではバルクに比べてプラズマ周波数が顕著に減少し、バンドギャップが増加して誘電関数が変化することが見出された。

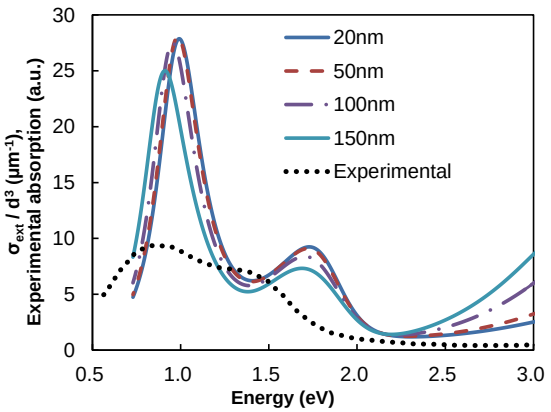

Fig. 1 Calculated extinction profiles of single spherical particles with various diameters using bulk dielectric functions, in comparison with the experimental profile.

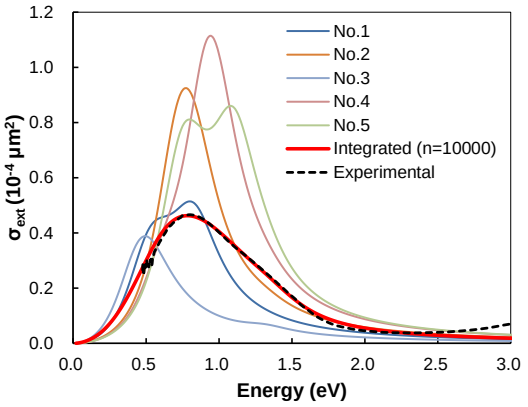

Fig. 2 Calculated extinctions of five kinds of single virtual particles and an integrated extinction over 10,000 particles fitted to the experimental extinction.