

学位論文題名

Study on Static and Dynamic Light Scatterings and
Their Applications to Optical Particle Sizing

(静的・動的散乱と光学的粒子計測への応用に関する研究)

学位論文内容の要旨

光散乱現象は、散乱媒質の特性(サイズ、運動形態、構造、構成する分子間の相互作用)と媒質に入射する光の特性(波長、偏光)に依存する。この事実を反映して、光散乱現象は散乱媒質の特性を推定する逆問題としての応用研究が強力に進められてきた。特に、レーザの出現とそれに伴う光混合分光法の確立を経て、散乱光のゆらぎから媒質の運動形態や構造を推定する動的散乱法、粒子の局所的な運動をその散乱光のドップラ周波数偏移として計測するドップラ速度計、さらにはその信号の位相から粒子サイズをも決定する位相ドップラ粒子計測法などが開発され、光による非接触・非破壊測定という利点を生かして、コロイド、高分子溶液、燃料噴霧など様々な微粒子系の測定に適用されつつある。一方、高度にエネルギーを局所的空間に収束することが可能なレーザ光の使用により、散乱現象を通して生ずる光の運動量変化が散乱微粒子に作用する放射圧という形で現れるという事実が明らかになった。これはレーザ光の微小物体の非接触なピンセットとしての新たな利用法の展開を導いているが、一方ではこれまでに開発された光散乱による微粒子計測法の無侵襲性の特徴に疑問を投げかけるものにもなっている。また、上述の光学的粒子測定法は、その粒子測定に際して散乱粒子の屈折率が予め既知である必要があること、原理的に点検出であるために散乱微粒子の時空間的な変化を連続的に測定することが不可能であるなどの問題点が実用上から指摘されている。

本研究は、微粒子による光散乱現象を詳細に検討し、その新たな側面を探究するとともに、それに基づく新しい光学的微粒子計測法を開発することを目的としている。

第1章は序論であり、光散乱現象研究の歴史的発展と応用技術としての光学的微粒子計測法の展開と現状を概説し、本論文の目的と各章の概要を説明している。

第2章では、本研究の基礎となる光散乱理論を、主として光散乱現象を微粒子計測に応用する立場からまとめている。具体的には、ミーの散乱理論とその特殊な条件下での近似理論をまとめ、従来の微粒子測定に利用されてきた散乱光の特性について評価するとともに、そこに内在する問題点を明らかにしている。また、本研究の主題の一つである散乱に伴う光放射圧の理論的解釈を与えている。

第3章では、幾何光学に基づく光散乱理論を再検討し、光散乱が粒子によって反射および屈折された2本の光線の干渉現象で表現できることを理論的に示すとともに、粒径と屈折率を干渉縞の周期とコントラストから同時に簡単に決定できることを明らかにし、その有効性を実験により実証した。また、提案した方法の適用範囲(粒径・屈折率)につ

いて二光束干渉による記述の有効性の観点から検討している。

第4章では、散乱光強度分布の測定に二次元固体撮像素子とフレームメモリによる固体撮像システムを適用することを想定し、その時空間撮像特性と微粒子運動の連続測定の可能性を検討している。システムのモデル化と理論解析およびそのコンピュータシミュレーションによって、固体撮像システムに特有な時空間サンプリングによる画像の劣化があることを始めて示した。また、検出する画像を線状の像とし、固体撮像素子にX-Yアドレス型の走査検出素子を用いることによって、像の運動履歴を垂直走査方向を時間軸とし水平走査方向を変位軸とした1フレームの画像として記録・表示できることを明らかにした。この方法によれば、通常のTVカメラを使用するにも関わらず、フレーム周期を越えた高い時間分解能で物体の移動を連続的に記録することができる。

第5,6章では、第3章で提案した粒子径測定法と第4章で理論的に明らかにした固体撮像素子の時間分解検出機能とを結合して、微粒子の変位と粒径変化とを同時にかつ連続的に記録し解析する方法を提案している。第5章では、具体的な測定システムを提案し、その有効性を実験により明らかにした。光学系にはアナモルフィックな結像系を用い、散乱光の干渉縞分布をその広がり方向に有する粒子線像を実現して、粒径情報の時間分解記録と抽出を可能としている。一方、第6章では、第5章で提案した方法をさらに2次元変位の連続測定法へと拡張している。散乱光強度の干渉縞特性において、周期に加えて縞の位相情報を解析に導入することによって粒子の位置変化の可測次元を向上している。さらに測定可能な空間および時間範囲に制限を与える因子を、干渉縞の解析に基づいて検討した。本方法は、機械的可動部を持たないため、微粒子の2次元的位置および粒径の変化を安定にかつ高い時空間分解能で連続的に測定できる利点を有する。

第7,8章では、レーザの出現により始めて衆目のものとなった光圧力、すなわち光放射圧の特性と動的散乱法による粒子計測に及ぼす影響を検討している。動的散乱法では、測定対象の微粒子分散系の運動にブラウン運動を想定し、それによる散乱光のスペクトル広がりから粒子の拡散定数とサイズを導出する。微粒子運動形態が光放射圧により変化するのであれば、それが粒径測定の結果にどのように現れるか実験的に検討した研究が第7章で行われている。測定された微粒子の粒径は、数十ミリワット程度の照射パワーでも放射圧によって常に真値より大きな値を与えることがわかった。さらに真値からの差は粒子サイズに依存し、粒径が大きいほど大きいことが明らかとなった。これは、放射圧によって微粒子のブラウン運動が粒径依存性をもって抑制されることを意味している。この事実は、レーザドップラ速度計を用いたレーザ光の伝搬方向への微粒子泳動現象の検出によっても保証された。この泳動速度の粒径依存性をもとに、これを指標とする粒径測定法を示唆している。このような放射圧による微粒子の運動形態変化を理論的に検討する上で、ビーム照射下の一粒子に作用する放射圧を見積もる簡単な計算式は必要不可欠となる。第8章では、レーリーの散乱理論の近似の範囲で、ビーム照明下の一粒子に作用する放射圧の計算式を再検討し、従来の定性的な式に代わって定量的な見積もりが可能な計算式を導出している。その妥当性をビーム照明での光散乱理論の結果と比較することにより明白にするとともに、従来の一ビームレーザトラップの安定条件式が捕捉可能な粒径値を過大評価していることが明らかにした。さらに、レーリー散乱の粒径条件を越えても導出した式の適用が可能であることが示され、その解析的な表現からも多粒子系での微粒子運動形態変化の理論的解析に有効であることが示されている。

最後に、第9章では、本研究で得られた結果を総括している。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 朝 倉 利 光
副 査 教 授 伊 藤 精 彦
副 査 教 授 小 柴 正 則
副 査 教 授 大 塚 喜 弘
副 査 教 授 清 水 孝 一

学 位 論 文 題 名

Study on Static and Dynamic Light Scatterings and Their Applications to Optical Particle Sizing

(静的・動的散乱と光学的粒子計測への応用に関する研究)

生体高分子、コロイド溶液、エアロゾル、燃料噴霧など、ミクロンおよびサブミクロン程度の微粒子が重要な役割を果たす系が数多く存在する。これら微粒子の幾何形状・物性・動的挙動などの物理的特性を非破壊・非接触に測定することは、各々の系の個々の特性を調べる上で必要不可欠である。この目的において、レーザ光の散乱現象を利用した光学的手法が有効であるが、微粒子の物理的特性の総合的な測定の実現や、光の力学的作用である放射圧が計測結果に及ぼす影響の解明など、解決すべき問題は少なくない。

本論文は、微粒子による静的および動的散乱現象の特性解析による新側面の探究とその高機能・高精度粒子計測法への応用に関する研究の成果をまとめたものである。

第1章では、光散乱現象研究の歴史的発展と応用技術としての光学的微粒子計測法の展開と現状を概説し、本論文の目的と各章の概要を説明している。

第2章では、本研究の基礎となる光散乱の理論を、主として光散乱現象を微粒子計測に応用する立場からまとめている。具体的には、ミーの散乱理論とその特殊な条件下での近似理論をまとめ、従来の微粒子測定に利用されてきた散乱光の特性について評価するとともに、そこに内在する問題点を明らかにしている。また、本研究の主題の一つである散乱に伴う光放射圧の理論的解釈を与えている。

第3章では、幾何光学に基づく光散乱理論を再検討し、光散乱が粒子によって反射および屈折された二光線の干渉現象で表現できることを理論的に示すとともに、粒径と屈折率を干渉縞の周期とコントラストから同時にかつ簡単に決定できることを明らかにし、その有効性を実験により実証している。さらに、提案した測定法の適用範囲（粒径・屈折率）について二光束干渉による記述の有効性の観点から検討している。

第4章では、散乱光強度分布の測定に二次元固体イメージセンサとフレームメモリによって構成される固体撮像システムを適用することを想定し、その時空間撮像特性と微粒子運動の連続測定

の可能性を検討している。イメージセンサでは二次元画像データの伝送の観点から画像の走査検出が不可避である。この画像取得動作に対する数学的モデルを提案し、理論解析およびコンピュータシミュレーションによって、散乱光強度の時空間変化を1フレームの画像としてフレーム期間を越えた高い時空間分解能で連続的に記録できることを明らかにしている。さらに、固体撮像システムに特有な時空間三次元サンプリングによる画像劣化の存在とその理論的な解釈を始めて示している。

第5,6章では、第3章で提案した粒子径測定法と第4章で明らかにした固体イメージセンサの時間分解画像検出機能とを結合して、微粒子の一次元および二次元変位と粒径変化とを同時にかつ連続的に記録し解析する方法を提案している。第5章では、一次元変位測定のための具体的システムを提案・構築し、その有効性を実験により明らかにしている。このシステムでは、光学系にアナモルフィックな結像系を用い、散乱光の干渉縞分布をその広がり方向に有する粒子線像を実現して粒径情報の時間分解記録と抽出を可能としている。第6章では、第5章で提案した方法をさらに二次元変位の連続測定法へと拡張している。散乱光の検出によって得られた画像の解析に縞位相解析の手法を取り入れることにより、新たな光学・電子的な素子を追加することなく微粒子の二次元的変位および粒径変化の連続測定が可能であることを示している。このシステムは、従来の光学的方法では不可能であった微粒子の物理的特性の変化を連続的に高い時間分解能で計測できることや、機械的可動部を持たないという利点をもっている。

第7章では、レーザの出現により始めて認識・注目されるようになった光圧力（光放射圧）が、ランダムなブラウン運動を行う微粒子分散系を測定対象とする動的散乱法において及ぼす影響を実験的に明らかにしている。ここでは、粒径測定値は数十ミリワット程度の照射光パワーでも放射圧により微粒子のブラウン運動が抑制され常に真値より大きな値として得られること、真値からの差は粒子径に依存して粒径が大きいほど大きいことを明らかにしている。この結果から、光放射圧によって誘起される微粒子の運動形態変化とそれに伴う散乱光の統計特性変化を利用する能動的な光学的微粒子計測法の可能性を示している。

第8章では、前章の実験結果を理論的に解析するための要素理論として、従来の定性的な放射圧の表現式に代わる厳密で解析的な放射圧の計算式を導出している。導出した式は、微粒子を局在電気双極子とみなすレーリー散乱理論の近似内で導出されているが、厳密な電磁波理論による結果との比較からその正当性が示されているだけでなく、レーザ光横断面成分はレーリー散乱の近似の範囲を越える大きな微粒子に対しても適用可能であることとその要因について詳細に論じている。また、その解析的な表現からも多粒子系での微粒子運動形態変化の理論的解析に有効であることが示されている。

第9章では、本研究で得られた結果を総括し、結論を述べている。

これを要するに、著者は、従来の光学的粒子計測法にない計測機能を有する新しい方法を提案・実現するとともに、光の力学的な側面をも取り込んだ新たな粒子計測法の可能性を明らかにしており、光計測工学および光物理学の分野に貢献するところ大なるものがある。

よって、著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格があるものと認める。