

## 学位論文題名

## Low-Coherence Dynamic Light Scattering from Dense Media

(濃厚媒質からの低コヒーレンス動的散乱法に関する研究)

## 学位論文内容の要旨

生体組織や高分子材料などの濃厚媒質の形態、動態、機能を非侵襲・非破壊で計測する新しい手法のニーズがある。極端に希釈された溶液性媒質からの動的な散乱光の現象解析は、粒子にただ一回だけ散乱された光波を扱う単散乱理論が確立されており、粒質キャラクリゼーションの標準的な計測法として広く普及している。この単散乱理論を基礎にした動的散乱法は、数ナノメートルから数百マイクロメートルにわたる広い測定レンジで粒径分布計測が可能である。しかしながら、測定試料の濃度が増加すると、光波が多数の粒子によって連続的に散乱され、光の多重散乱現象を発現する。このような多重散乱現象を発生させるような測定対象が一般的であるにもかかわらず、有効な粒質キャラクリゼーション法が存在しないのが現状である。

本論文では、このような濃厚媒質の動特性を解析するため、眼底の3次元断層撮像法の基礎になっている低コヒーレンス光源を利用したヘテロダイナミクス計測法と動的な多重散乱光に対する光子相関法とを結合させ、濃厚媒質の粒質キャラクリゼーションを可能とする新しい低コヒーレンス動的散乱法を提案した。本手法においては、①位相変調を行うことでヘテロダイナミクス振幅パワースペクトルとホモダイナミクススペクトルを完全に分離できること、②溶液内の検出領域すなわち散乱領域を限定しかつ検出深度を制御できること、③多重散乱光の光路長を分解して検出できることが主要な特徴である。本論文は、低コヒーレンス動的散乱法の特徴を有効に利用し、濃厚媒質からの動的な散乱光の現象解析を行い、新しい粒質キャラクリゼーション法を確立することを目的とする。

本論文は、8章から構成されている。第1章は序論であり、動的散乱法の研究背景を概説し、それを基に研究目的を述べた。第2章では、現在利用されている単散乱理論を基礎とした動的散乱法、多重散乱の現象解析の基礎となる光子輸送理論、動的な多重散乱光を利用して粒質計測法として初めて提案された拡散波分光理論、ならびに本論文で提案した低コヒーレンス動的散乱法について詳細に説明し3章以降の基礎を確立した。特に、低コヒーレンス動的散乱法の特徴①と②の理論的基礎を構築し、かつ実験で実証した。

第3章では、低コヒーレンス動的散乱法の特徴③、すなわち多重散乱光を光路長に分解して計測が可能かどうかについて、実際に使用する光学系を想定したモンテカルロシミュレーション実験を行った。その結果、提案した手法によって動的な多重散乱光の光路長分解測定が可能であることが実証された。特に、提案手法を用いると、従来の動的散乱法で解析が可能であった単散乱領域と拡散波分光法で解析が可能であった十分な多重散乱領域はもとより、それらのギャップを埋める低次散乱領域も含めた全散乱領域の解析が可能であることを示した。

第3章で示した低コヒーレンス動的散乱法による多重散乱光の光路長分解分光の特

徴を利用して、第4章では散乱媒質の一平均自由行程距離だけ伝搬する散乱光を抽出可能であることを実証した。このことにより、濃厚媒質から単散乱光のみが検出可能となり、単散乱光の振幅パワースペクトルならびに振幅時間相関関数を計測できることを実験的に示した。この時間相関関数を従来の動的光散乱法の粒質キャラクタリゼーションに汎用的に用いられている CONTIN 法に適用し、体積濃度1%から10%までのポリスチレン球懸濁液の粒径分布計測に世界で初めて成功した。さらに、応用の一例として、牛乳中の乳脂肪の変質の経時変化モニタリングの例を示した。

第5章では、体積濃度が10%を超える超濃厚媒質の微粒子の動特性と発生する多重散乱現象との関係を解析した。このような濃度の懸濁液中ではそれぞれの粒子は独立ではありえず、粒子間相互作用と粒子と溶液の粘性との相互作用を受け、ブラウン運動の速度が低下する。評価量としては、低コヒーレンス干渉法で測定した拡散係数について、両相互作用の影響を実験的に解析した。その結果、体積濃度が1%から20%までの粒径が150 nm以上では、粒子と溶液の粘性の相互作用、すなわち流体力学的相互作用のみ考慮してよいという結論を得た。さらに、本章の結果から、体積濃度20%までの濃厚媒質の粒径計測において、流体力学的相互作用の補正を行うことにより、正確な粒径計測が可能であることを示した。

第6章では、低コヒーレンス動的光散乱法の特徴③媒質内の検出領域を限定し位置の制御ができることを利用して、固液境界面の近傍における濃厚媒質中のブラウン粒子の動態解析を行った。固液境界面の近傍では、ブラウン粒子の運動に抵抗として作用する溶媒の粘性抵抗が、壁面の存在の影響、すなわち Wall-Drag 効果を受け、境界のない領域における自由拡散ブラウン運動と動態特性が異なることを解析した。本論文で用いた実験系では、ブラウン運動の固液境界面に対して垂直な方向成分のみしか検出できないため、境界に垂直な方向の拡散係数の評価を行った。実験では有限なコヒーレンス長をもつ光源を用いているため、このコヒーレンスゲート内の平均化の補正を理論に適用し、実験と比較した。その結果、理論と実験は一致し、提案手法が固液界面の微粒子の動態解析に有効であることを実証した。

第7章では、低コヒーレンス動的光散乱法の光路長分解計測の応用として、濃厚媒質からの散乱光の光路長分布関数の計測を行い、媒質の吸収計測を行った。平均自由行程の10倍以下の領域において、光路長分布関数は媒質の吸収に依存して指数関数的に減衰することを示した。このような濃厚媒質の吸収率を評価するために、修正ランバート・ベール則を用いて、媒質の吸収係数を求めた。一方、提案手法では粒径計測が可能であるため、吸収率の計測と同時に散乱係数の計測も行うことが可能である。また、測定された散乱係数と吸収係数は、散乱粒子の濃度に依存せず一定の値として計測が可能であることを示し、吸収と散乱の同時計測法の可能性を示した。

第8章では、本論文の総括を行い、提案した低コヒーレンス動的光散乱法が体積濃度10%を超える超濃厚媒質の粒質キャラクタリゼーション法として実用的であることを示した。現時点の光学系を用いると、体積濃度1%から20%、粒径は約100 nmから3  $\mu$ mまでの粒径分布計測が可能である。さらに、光源の輝度の向上や検出系の感度の向上により高濃度でシングルナノ粒子の濃厚懸濁液の計測も可能となること、光源のコヒーレンス長を狭細化することによって理想的な単散乱光の検出が可能になること、および固液界面における Wall-Drag 効果や粒子の非拡散ブラウン運動の直接計測が可能になることを示した。

# 学位論文審査の要旨

主 査 助 教 授 岩 井 俊 昭  
副 査 教 授 栗 城 眞 也  
副 査 教 授 笹 木 敬 司  
副 査 教 授 清 水 孝 一

学 位 論 文 題 名

## Low-Coherence Dynamic Light Scattering from Dense Media

(濃厚媒質からの低コヒーレンス動的散乱法に関する研究)

生体組織や高分子材料などの濃厚媒質の形態、動態、機能を非侵襲・非破壊で計測する新しい手法のニーズがある。極端に希釈された溶液性媒質からの単散乱現象を扱う理論を基礎にした動的散乱法は、数ナノメートルから数百マイクロメートルにわたる広い測定レンジで粒径分布計測が可能である。しかしながら、測定試料の濃度が増加すると、光波が多数の粒子によって連続的に散乱され、光の多重散乱現象を発現する。このような濃厚な溶液性媒質が測定対象として一般的であるにもかかわらず、有効な粒質キャラクタリゼーション法が存在しないのが現状である。

本論文は8章から構成されており、多重散乱現象を発現する濃厚媒質の動特性を解析するため、眼底の3次元断層撮像法の基礎になっている低コヒーレンス光源を用いたヘテロダイン計測法と光子相関法とを結合させ、濃厚媒質の粒質キャラクタリゼーションを可能とする新しい低コヒーレンス動的散乱法を提案している。

第1章は序論であり、動的散乱法の研究背景を概説し、研究目的を述べている。

第2章では、単散乱理論を基礎とした動的散乱法、多重散乱現象解析の基礎となる光子輸送理論、および濃厚媒質の粒質計測法として提案されている拡散波分光理論を概説し、低コヒーレンス動的散乱法の研究の位置づけと新しい粒質計測法としての提案を行っている。

第3章では、低コヒーレンス動的散乱法の特徴である「多重散乱光を光路長に分解して計測可能であること」について、実際に使用する光学系を想定したモンテカルロシミュレーション実験をおこない、提案した手法によって動的な多重散乱光の光路長分解測定が可能であることを実証している。特に、提案手法を用いると、単散乱領域から多重散乱領域までの全散乱領域の現象解析が可能であることを示している。

第4章では、低コヒーレンス動的散乱法を用いると散乱媒質の一平均自由行程距離だけ伝搬する散乱光を選択的に検出できることを実証している。その結果、測定された

単散乱光の振幅パワースペクトルならびに振幅時間相関関数を CONTIN 法に適用し、体積濃度 1 % から 10 % までのポリスチレン球懸濁液の粒径分布計測に世界で初めて成功している。

第 5 章では、体積濃度が 10 % を超える濃厚媒質中のブラウン粒子の動態特性を解析している。このような濃度の懸濁液中ではそれぞれの粒子は独立ではありえず、粒子間相互作用と流体力学的相互作用を受け、ブラウン運動の速度が低下する。実験検証の結果、体積濃度が 1 % から 20 % までの粒径が 150 nm 以上の媒質に対しては、粒子と溶液の粘性の相互作用、すなわち流体力学的相互作用が支配的であると結論づけている。本章の結果は、体積濃度 20 % までの濃厚媒質の粒径計測において、流体力学的相互作用の補正を行うことにより粒径計測が可能であることを示している。

第 6 章では、低コヒーレンス動的散乱法の特徴である「媒質内の検出領域を限定し位置制御が可能であること」を利用して、固液境界面の近傍における濃厚媒質中のブラウン粒子の動態解析を行っている。固液境界面の近傍では、ブラウン粒子は壁面の存在の影響で抵抗を受け、自由拡散ブラウン粒子の動態特性と著しい差異を生じる。本論文の実験系では、ブラウン運動の固液境界面に対して垂直な方向成分のみ検出が可能であるため境界に垂直な方向の拡散係数の評価を行っている。実験結果は光源のコヒーレンスゲートの存在を考慮した数値計算の結果と比較し、本手法による固液境界面近傍におけるブラウン粒子の直接観測の可能性と提案手法の有効性を実証している。

第 7 章では、低コヒーレンス動的散乱法を用いて、濃厚媒質の散乱係数と吸収係数の同時計測を試みている。濃厚媒質からの多重散乱光の光路長分布関数の計測を行い、光路長分布関数が媒質の吸収に依存して指数関数的に減衰することを示し、修正ランパート・ベール則を用いて媒質の吸収係数を決定している。さらに、提案手法では粒径計測が可能であるため、吸収係数と散乱係数の同時計測が可能であることを示し、かつ測定された各係数は散乱粒子の濃度に依存しないことを実証している。

第 8 章は本論文の結論であり、提案した低コヒーレンス動的散乱法においては、①位相変調を行うことでヘテロダイナミック振幅パワースペクトルとホモダイナミックスペクトルを完全に分離できること、②溶液内の検出領域すなわち散乱領域を限定しかつ検出深度を制御できること、③多重散乱光の光路長を分解して検出できること、およびその結果として④濃厚媒質の粒径分布計測が可能であることを総括している。

これを要するに、著者は、新しい低コヒーレンス動的散乱法を提案し、その特徴を有効に利用することによって濃厚媒質からの動的な光散乱現象解析を行い、新しい粒質キャラクタリゼーション法を確立しており、光応用計測工学ならびに光物理工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。