

(様式5)

指導教員 承認印	主	副	副
			印

学位（博士）論文要旨

論文提出者	生物システム応用科学府 生物システム応用科学専攻 博士後期課程 <u>生体機構情報システム学</u> 専修 平成 <u>23</u> 年度入学 氏名 <u>渡會 俊晴</u>				
	主指導教員 氏 名	岩井 俊昭	副指導教員 氏 名	西館 泉	副指導教員 氏 名
	論文題目	Analysis on particle dynamics in the vicinity of the interface by a low-coherence dynamic light scattering technique (干渉動的光散乱法による異相界面近傍における微粒子動態計測に関する研究)			

論文要旨 (2,000字程度)

球状粒子の拡散係数は、液体のバルク領域において Stokes-Einstein 関係式に従う。しかし、粒子が固液境界や気液境界のような異相界面の近傍領域をブラウン運動するとき、固体または気体と液体の流体力学的相互作用が粒子の運動に影響を与える。本研究では、干渉動的光散乱法を用いて異相界面近傍において抑制される微粒子の動態を観測する。干渉動的光散乱法とは、時間領域低コヒーレンス動的光散乱法とスペクトル領域低コヒーレンス動的光散乱法、及び極短時間コヒーレンス動的光散乱法の総称である。

第1章では、光散乱と光応用計測の歴史、及び本研究の背景と目的を述べた。

第2章では、本研究において用いられる動的光散乱法の基礎理論と微粒子の拡散運動について流体力学理論を定式化した。

第3章では、干渉動的光散乱法の計測原理について、時間領域低コヒーレンス動的光散乱法を基に概説した。さらに、スペクトル領域低コヒーレンス動的光散乱法について、理論的に詳細に説明した。低コヒーレンス干渉法の特徴である光路長分割計測を用いて、散乱体積の中心位置を選択的に変化させることができる。この特徴を利用することにより、固体と液体や気体と液体という異相の界面から十分離れた自由拡散領域から異相界面効果に起因する抑制拡散領域におけるブラウン粒子の拡散係数をシームレスに計測することが可能であることを説明した。

第4章では、時間領域低コヒーレンス動的光散乱法を用いた固液界面効果の実験結果を示した。本光学系では、参照平面鏡からの反射光と試料からの後方散乱光との光路長差が光源のコヒーレンス長以下のとき、干渉信号が検出される。参照光はピエゾ素子を正弦振動させることにより位相変調される。位相変調信号をロックイン検出することで、変調周波数周りの散乱光のパワースペクトルを選択的、かつ高感度に抽出する。散乱体積の中心位置を変化させながら、異相界面からの光路長毎の拡散係数を計測することで固液界面効果を実証する。試料は半径 1.5, 2.5, 5.0 μm の球状粒子を体積濃度 10% で懸濁させたポリスチレン溶液を用いた。実験において、計測された拡散係数は異相界面近傍で大幅に減少し、界面から遠く離れるに従って最大値 1.0 に漸近する傾向が得られた。また、半径が小さい粒子ほど、界面近傍領

域における拡散係数の変動が大きいという結果を得た。これらの結果は、Brenner による wall-drag 効果理論とよい一致を得た。さらに、粒子径が減少すると、低コヒーレンス光源のコヒーレンス関数の有限な広がりの影響が発現することを示した。本研究は、自由拡散から拘束拡散現象をシームレスに直接観測した初めての結果であり、固液界面効果を実証し、かつ低コヒーレンス動的光散乱法の計測法としての有効性を示した。

第5章では、前章で示された有限な広がりを有する光源のコヒーレンス関数の影響を抑制し、極短時間コヒーレンス関数を有する光源を用いることによって直接計測を行える可能性を示した。サブミクロン粒子の固液界面効果は壁面から数 μm の距離で顕著に現れるため、より高分解能な計測が必要となる。そこで極短時間コヒーレンス光源であるファイバーレーザを用いた時間領域低コヒーレンス動的光散乱法を用いて、光軸方向分解能の向上した光路長分割計測を行った。ファイバーレーザは可視領域において非常に広いスペクトルを有するが、ファイバカプラ内の伝搬においてその屈折率の分散特性から 400 から 550nm にかける短波長領域においての著しい吸収を生じる。そのため、新たに空間伝搬型マイケルソン干渉計を構築し、時間領域低コヒーレンス動的光散乱法によりサブミクロン粒子の固液界面効果を実証した。試料は半径 0.23, 0.40, 0.55 μm の球状粒子を体積濃度 10% で懸濁させたポリスチレン溶液を用いた。上記の実験と合わせ、本実験によりサブミクロン及びシングルミクロン粒子の固液界面効果を直接観測し、Brenner 理論とよい一致を得た。

第6章では、構築した低コヒーレンス動的光散乱法を時間領域計測からスペクトル領域計測へと展開させた。スペクトル領域計測においては、検出器として分光器を使用することによって、壁面から粒子までの深さ情報を光源の波長分散性を用いることで深さ方向の走査が不要となる。使用する分光器は粒子のブラウン運動に対応できる応答速度が必要であるため、回折格子とラインセンサから構成され、任意の波長範囲を高速に走査できる分光部を独自に構築した。本法を用いることにより、計測時間の大幅な短縮を図り、より実用的な計測技術として干渉動的光散乱法を確立した。

第7章では、スペクトル領域低コヒーレンス動的光散乱法を用いて、気液界面近傍における微粒子拡散運動の抑制現象を実験的に実証した。気液界面では、固液界面と異なり絶えず液面の蒸発が存在し、その位置が時々刻々と変化する。そのため、時間領域低コヒーレンス動的光散乱法では計測が不可能であった。スペクトル領域低コヒーレンス干渉法では深さ方向の計測がワンショットで計測できるため、気液界面効果近傍における微粒子の抑制効果を初めて観測することを可能にした。1.5 μm 以上のシングルミクロン粒子に関しては、沈降の影響により気液界面効果の観測は達成できなかったが、半径 0.23, 0.40, 0.55 μm のサブミクロン粒子に対する気液界面近傍での拡散運動の抑制効果を実証した。

第8章では本研究論文を総括する。本論文の成果として、異相界面近傍における微粒子の拡散運動の変化を実証することによって、干渉動的光散乱法の確立を行った。