

ナノ精度の非接触粒径測定法の開発

木村正廣* 松村尚哉** 正木俊覚***

* 高知工科大学工学部
〒 782-8502 高知県香美郡土佐山田町宮ノ口 185

** ガイオ・テクノロジー株式会社

*** 四国計測工業株式会社

E-mail : *kimura.masahiro@kochi-tech.ac.jp

要約：微小液滴のサイズを精密に測定する手法を開発した。イオントラップ内に捕捉されたミクロンサイズの帯電した液滴にレーザー光を照射し、散乱光の角度分布を測定した。この分布と Mie 理論から求めた散乱角度分布とを比較することにより、液滴半径を 1 ナノメートルの高精度で決定することができた。

Abstract : We have developed a technique determining very precisely the size of micron-sized droplets. A single droplet was irradiated with a laser beam and the angular distributions of scattered light were measured. The distributions were then compared to the angular profiles computed with Mie theory to determine the radius of the droplet with the precision of one nanometer.

1. はじめに

微粒子は自然界に広く分布している。霧、雲、雨、大気汚染物質、塵、化粧品、触媒、インクジェットプリンターのインク滴、などなどであって、我々の生活と深く関わっている。

微粒子はその物性において表面・界面の寄与が非常に大きいという特徴を持つため、まったく新しい特性を示すことが期待される。

また液体微粒子、いわゆる微小液滴は表面張力のため自然にほぼ真球の形状をとるため、そ

の内部で全反射する光にとって極めて閉じ込め効率の高い (Q 値の高い) 光共振器ともなる。我々は、このような光共振器としての性質を利用して、マイクロメートルサイズの微粒子によるレーザー発振作用の研究を行ってきた¹⁻³⁾。

微粒子の物性にはサイズ依存性が強く現れるため、サイズの精密測定は微粒子の物性研究にとって最も重要なことのひとつである。しかし、微粒子の集団を対象にしたのではその平均値しか得られない。したがって、本研究ではイオン

トラップ中に捕捉した単一の微小液滴を対象とした。この液滴に照射したレーザー光の散乱角度分布を Mie 散乱の理論で解析することによって液滴半径の測定を行った。この測定精度は、1 nm にも達することが分かった。

2. Mie 散乱理論

Rayleigh 散乱は光の波長よりはるかに小さい粒子による散乱をいうのに対して、Mie 散乱とは光がその波長と同じ程度かそれより大きな球形粒子に当たったときに起きる散乱をいう。Gustav Mie は、1903 年に Maxwell の方程式を球形微粒子の境界値条件を満足するように厳密に解いて散乱公式を導いた⁴⁾。Mie の散乱式を使うと、任意の偏光状態の入射光に対する任意の角度への散乱振幅が求まる。ここで微粒子の半径を a 、屈折率を n 、波長を λ として、サイズパラメータ x を次のように定義すると、散乱パターンはこのサイズパラメータだけで決まることになる。

$$x = \frac{2\pi na}{\lambda}$$

ここで散乱角度の定義を図 1 のようにしておく。

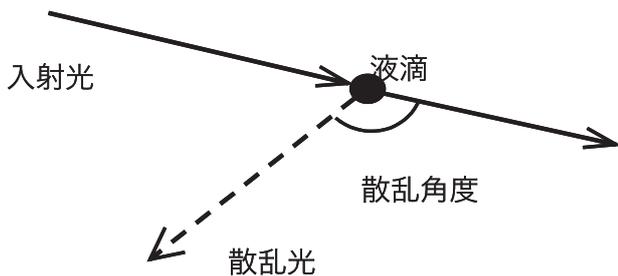


図 1 散乱角度の定義

半径が $1 \mu\text{m}$ と $10 \mu\text{m}$ の水滴による $\lambda = 633 \text{ nm}$ の光の散乱パターンを計算してみたのが図 2(a) と (b) である。サイズパラメータはそれぞれ、 $x = 13.23$ と 132.3 に相当する。この図での強度は対数目盛で表してある。サイズパラメータが

大きくなると前方散乱が後方散乱に比べて相対的に強くなると共に、より複雑なパターンを示すことがわかる。

$10 \mu\text{m}$ の水滴による散乱では、角度 138 度と 222 度での散乱強度がその付近の強度に比べて顕著に強くなっている。これが虹散乱に対応するもので、波長によってこの角度がわずかに違うために虹色として観測されることになる。虹が見られるためにはこれらの角度での散乱強度がその付近での強度に比べて顕著に強くなければならず、いろいろなサイズの水滴で計算してみると半径で数ミクロン以上の水滴でないとこの現象は現れないことがわかる。

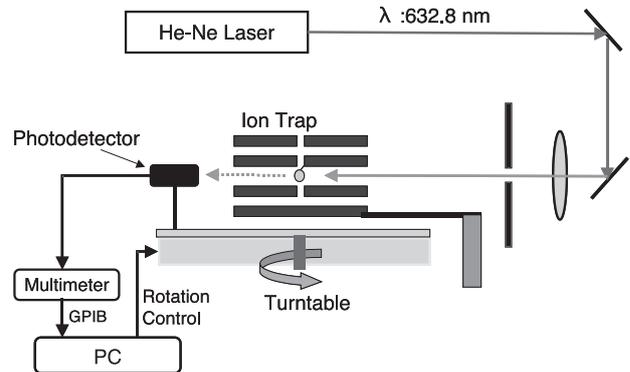


図 3 測定装置の概略図

3. 光散乱の測定装置

光散乱の角度分布測定に長時間を必要とするときには、微粒子を静止させておく必要がある。微粒子を帯電させてイオントラップ中に捕捉すると、微粒子を孤立した状態で静止させておくことができ、長時間の観測に適している。

本研究で用いた装置の模式図を図 3 に示す。ここで使用したイオントラップは 4 枚の平行平板電極から成るもので、詳細は文献 5) にある⁵⁾。トラップされる粒子の質量と電荷の比に応じてトラップ条件を調整する必要がある。今回の実験で使用した半径約 $10 \mu\text{m}$ のグリセリン液滴の場合は、中央の 2 枚の電極に周波数 400Hz で約 1kVP-P の交流電圧を印加した。ま

た、一番上の電極はグラウンド電位とし、一番下の電極には正の直流電圧を加え、それらがトラップ中心に作る垂直上向きの直流電場によって液滴の重力を打ち消すようにした。

光検出器が乗っているターンテーブルはマ

イコン制御によってステップ角 0.055 度で回転できるようになっている。イオントラップの垂直軸とターンテーブルの回転軸は一致させてある。

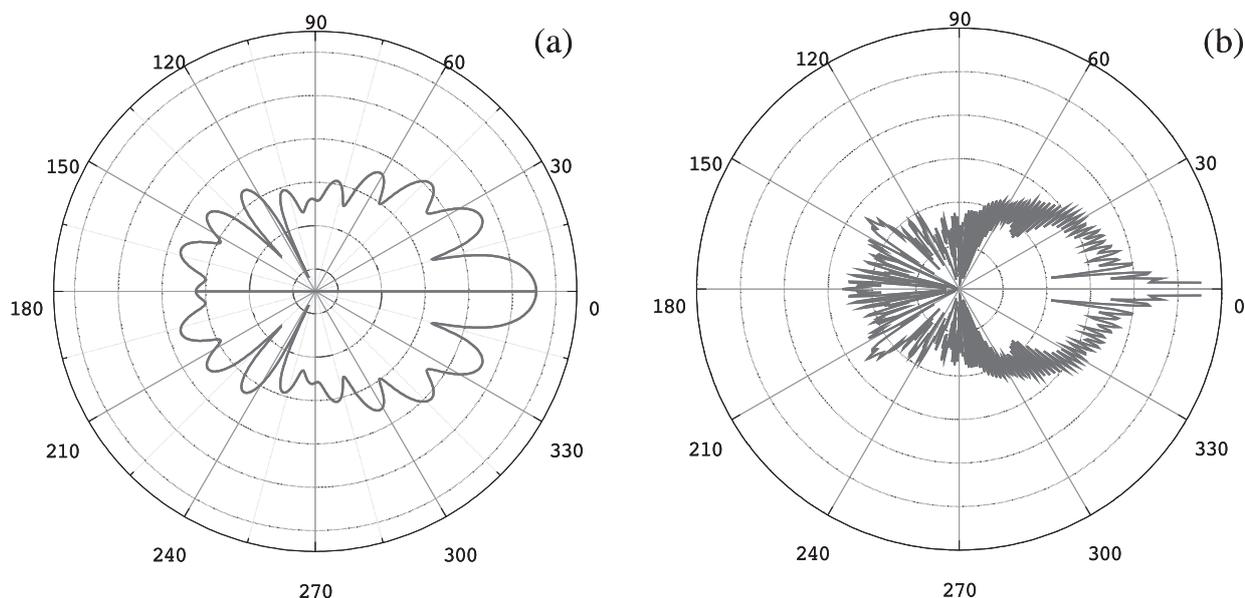


図2 半径が、(a) 1 μm と (b) 10 μm の水滴による光散乱の角度分布。
入射光は紙面左から右に向かうものとし、波長を 633nm とした。
また偏光状態は紙面に垂直な直線偏光とした。

光検出器にはシリコンフォトダイオードを使用していて、オペアンプによって増幅されたシグナルをマルチメータで測定し、そのデータを GPIB 経由でパーソナルコンピュータに取り込むようになっている。

光源には He-Ne レーザーを使った。このレーザーの波長は 632.8 nm、出力は 17 mW であった。

マイクロ液滴の生成には、エレクトロスプレーイオン化 (ESI) 法を使った。内径 100 μm の注射針に 2 kV の直流電圧を加えて対向電極との間に強い電場を作ると注射針の中のグリセリン液が帯電し、電場によって引き出され、帯電した液滴となって飛び出す。それをイオントラップに捕捉した。

空気の流動の影響を少なくするために、トラップは内側をアクアダックで塗装したステン

レス容器の中に入れ、さらに周りの明かりから来るバックグラウンドを減らすために装置全体を暗幕で覆った。

4. 液滴サイズの決定

トラップされた単一液滴によるレーザー光の散乱パターンを、散乱角度が 60 度から 90 度の範囲で見たものを図 4 に示す。約 1.8 度の周期で振動するパターンに不規則なパターンが加わったものとなっている。液滴サイズが大きくなると共に振動周期はこの 1.8 度より小さくなっていく。

一方、いくつかのサイズパラメータについて Mie の公式を使って計算したパターンと測定データとを比較し、最もよく適合するものを選ぶと、半径 $a = 10.871 \mu\text{m}$ であった。ちなみに

この半径から $\pm 0.01 \mu\text{m}$ だけ大きさの異なる液滴について計算したのも図4の下部に示す。

これら二つのカーブは $10.871 \mu\text{m}$ のパターンとは明らかに違ったものになっているし、

$0.001 \mu\text{m}$ 、すなわち 1 nm の違いでも区別がつくことからこの液滴の半径は $10.871 \mu\text{m}$ と、 1 nm の精度で決定できたことになる。

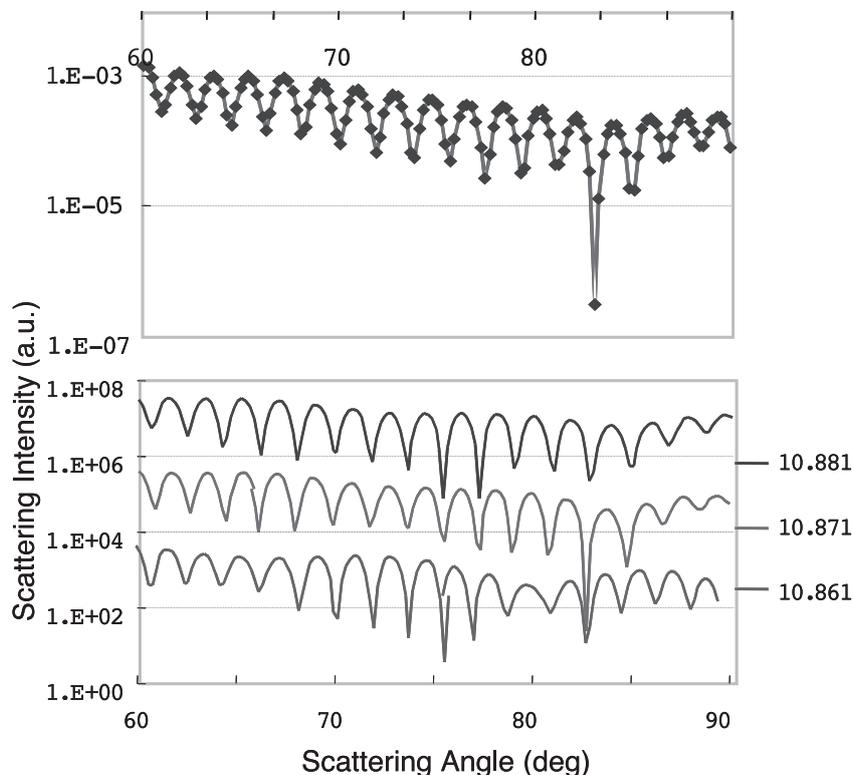


図4 グリセリン液滴によるレーザー光 ($\lambda = 632.8 \text{ nm}$) の散乱角度分布。
 上のグラフは測定データ、下のグラフは3種類の液滴半径について理論的に求めた散乱角度分布。
 右端の数字は半径 (単位は μm) を表わす。

5. おわりに

光散乱の角度分布の測定から、ミクロンサイズの液滴の半径を非接触に決定できることを示した。Mie 散乱公式による散乱パターンと測定データとの比較から、液滴半径を 1 nm というきわめて高い精度で決定することができた。

文献

- (1) M.Tona and M.Kimura, "Novel Lasing Modes Observed in a Levitated Single Dye-Doped Microdroplet," J. Phys. Soc. Jpn., 69, No.11, pp. 3533-3535 (2000).
- (2) M.Tona and M.Kimura, "Polarization Effects Both in Emission Spectra and in

Microscopic Images of Lasing Microdroplets Levitated in an Ion Trap," J. Phys. Soc. Jpn., 71, No.2, pp.425-428 (2002).

(3) M.Tona and M.Kimura, "Dependence of Lasing Modes of Microdroplets on Dye Concentration," J. Phys. Soc. Jpn., 72, No.5, pp.1238-1243 (2003).

(4) H.C. van de Hulst, Light Scattering by Small Particles, Dover Publ., 1981.

(5) M.Tona and M.Kimura, "Parallel-plate ion trap useful for optical studies of microparticles," Rev. Sci. Instrum., 75, No.7, pp.2276-2279 (2004).