

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06109

研究課題名(和文) デジタルホログラフィック乾燥・硬化アナライザの開発

研究課題名(英文) Development of digital holographic analysing system for drying and hardening processes

研究代表者

横田 正幸 (Yokota, Masayuki)

島根大学・総合理工学研究科・教授

研究者番号：80323335

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：塗膜の乾燥や硬化過程の解析を高度化するために、DH顕微鏡や塗膜透過光の偏光状態の解析、更に塗膜の変形や形状計測を行う実験系を構築し、それぞれにおいて研究を進めた。形状計測では、二波長を用いた塗膜の形状計測を行ったが、十分な透過光強度が得られず正確な塗膜形状の検出ができなかった。しかし、透過光の偏光状態を記録する方法においては、その偏光状態を記録、解析することができた。また、DH顕微鏡においては、微小インクドットの乾燥過程の解析が実現でき、その変形が5万秒以上継続することが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：To further investigate the drying and hardening process of paint films, we have constructed and studied both a digital holographic microscope and analyzing system for polarization state of transmitted light wave from the paint film. In the profile measurement of paint film using two wavelength method in digital holograph, it has been difficult to accurately measure the profile of paint films due to the shortage of intensity of transmitted light. However, it has been successfully conducted to analyze the polarization state of the light from paint film. In addition, in digital holographic microscope, it was possible to follow the drying state of tiny ink dot having a diameter of a few hundred micrometer upto 50000 sec by using the deformation measurement.

研究分野：光計測，計測工学

キーワード：デジタルホログラフィ 偏光解析 乾燥過程 顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

現在、塗料やインクの乾燥評価は針を用いる触診法、塗膜の重量変化や赤外吸収分光を用いた方法が主に用いられている。しかし、現状では塗膜変化や乾燥に対して得られる情報が少なく、定量的な乾燥評価は困難である。このため多くの塗料メーカーでは、開発において乾燥を含む塗膜性能を左右する成分比は技術者の経験則に頼るのが実情である。加えて乾燥に対する定量的定義が未確立である。

しかし、インク・塗料や接着剤の開発、車体塗装工程の条件出しには、乾燥・硬化特性の数値化やデータベース化は必須である。さらに、近年ではインクジェットプリンタで描画する半導体製造技術の研究開発が活発である。この場合も高密度化には機能性インクの乾燥過程解析が不可欠である。以上から塗料、インク等の乾燥を数値化することは、塗料・自動車・印刷業界以外にも塗布型有機太陽電池、新型半導体開発等、幅広い分野に革新的な発展をもたらす可能性が高い。

上記の要求に対し、非接触・定量的な乾燥評価法として、塗膜からのレーザ反射光中に生じるスペックル(ランダムな干渉により生じる不規則なパターン)の動的変化を用いる方法が実用化されている。しかし、この方法では乾燥分布の局所的解析や可視化、透明(クリア)試料への適用が不可能であり、高機能塗料や車体塗装工程への応用は困難である。従って、現在の状況では上記の塗料、インク開発の要求を満たす評価方法は存在しないと云える。

2. 研究の目的

我々は乾燥を可視化できる非接触・定量的な測定技術としてデジタルホログラフィによる乾燥・硬化評価法の研究を行ってきた。提案手法では、塗装面からの反射光を物体光として参照光と干渉させて生じる干渉縞(ホログラム)を CCD で記録する。ホログラムを一定時間間隔で逐次記録し、パソコンで数値計算して得られるホログラム再生像の時系列的位相変化から乾燥分布の可視化、乾燥の定量的な解析を実施する。

この研究をさらに発展させ、2波長による1ショット形状計測と逐次記録による塗膜の変形計測を同時に行う方法を開発し、重量法と合わせた総合的な塗料、インク、接着剤、射出成型の乾燥・硬化解析法の実現を目指す。また、顕微鏡光学系を導入し、10 μ m 程度のインクドットの乾燥過程や、特殊機能性インクによる回路配線パターン形成時の硬化過程の解析を目指す。

3. 研究の方法

二波長1ショット計測による塗膜評価

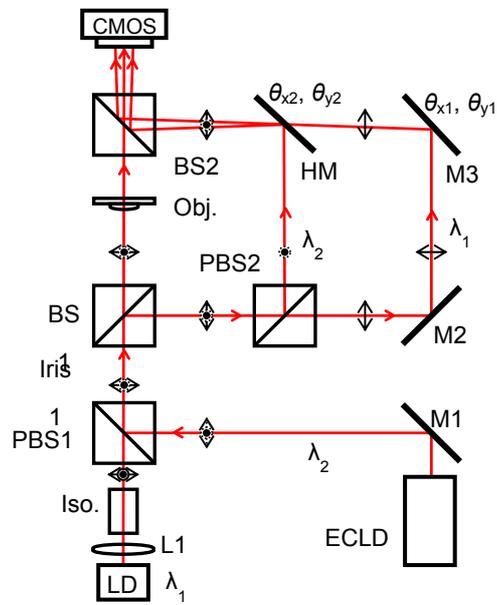


図1 二波長1ショット記録実験

二波長に対するホログラムを軸外し多重記録する実験系を図1のように作成した。光源は波長780nmの半導体レーザ(LD)と外部共振器型LD(ECLD)である。光路を分離するためにその偏光状態を直交偏光とした。LDの出射光(波長 λ_1)に対しては、水平方向の直線偏光とし、M3を傾けて軸外し記録し、ECLDの出射光(波長 λ_2)に対しては、HMを傾けて記録した。対象は透明なクリア塗料(模型用)とした。

DH顕微鏡による微小インクドット解析
DH顕微鏡とタック力測定によるインクドット乾燥評価を行う実験系を図2に示す。光源は波長 $\lambda = 657.8 \text{ nm}$ の半導体レーザ(LD)を使用しホログラムは軸外し記録した。

測定時間は20000秒とし、0-2000秒間は0.25秒間隔、2000-5000秒間は0.5秒間隔、5000秒以降は1.0秒間隔で記録した。タック力は計測プローブにより0-15000秒間は5分間隔、15000秒以降は10分間隔で測定した。試料は市販の水性顔料インク(マゼンタ)を使用し、インク射出装置でガラス板上に2つのドットを吐出し、一つはホログラム解析、もう一つはタック力測定に用いた。

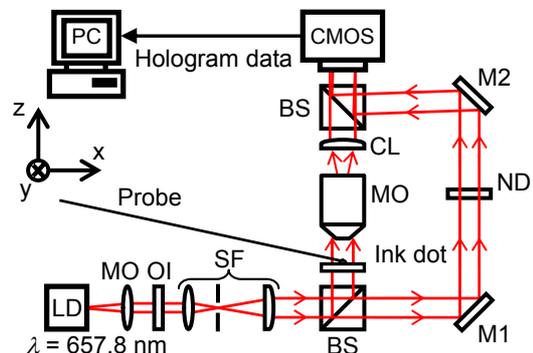


図2 DH顕微鏡光学系

偏光 1 ショット記録と形状計測
 偏光及び形状を記録可能な DH 顕微鏡の実験光学系を図 3 に示す。光源には、発振波長 $\lambda = 657.8 \text{ nm}$ の半導体レーザを用いた。また、物体は水性顔料インクを用い、軸外し配置によりホログラム記録を行った。今回、測定時間は 1 万秒であるが、得られるホログラム再生像から、時間経過によって、波面の傾きが見られた。再生像の中心から離れるほど、傾いた分の位相が物体の位相に重畳し、正味の位相差が求まらないため解析時間を 400 秒とした。

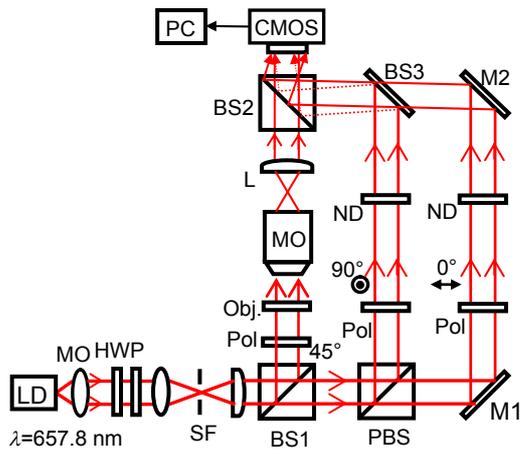


図 3 偏光解析と形状計測を同時に行う実験系

4. 研究成果

二波長 1 ショット計測による塗膜評価
 半導体レーザの波長 $\lambda_1 = 783.114 \text{ nm}$, ECLD の波長 $\lambda_2 = 771.480 \text{ nm}$ として実験を行った。この場合の合成波長は $\Lambda = 0.052 \text{ mm}$ となる。物体としては、透明なエナメル系クリア塗料をスライドガラス上に針先で塗布したものを使用した。また、塗布後 20 秒後から測定を開始した。図 4 は λ_1 に対する再生像の強度と位相を示している。特に位相画像は平坦ではなく、かなり起伏が大きいことが分かる。また、試料は透明であるが、形状には起伏があるため、レンズ効果により透過光がカメラから外れてしまうことが生じた。そのため、透過光強度が弱く、位相画像に信頼性が乏しい結果となっている。

次に、各時間帯において得られた二波長の再生像の位相差（塗膜形状）を図 5 に示す。これを見ても、形状に起伏が多く、また、位相の信頼性が低いため形状計測が難しいことが分かる。コーターを使って塗布面をなるべく平坦にして、同様な実験を多数回行ったが、やはりレンズ効果による問題や透過光強度の低さによる形状の信頼性が乏しいという結果に終わった。さらに、今回は二波長を

直交偏光としているが、これは複屈折を持つ資料に対しては、二波長間に屈折率差により重畳される位相差を付与することになるため、光学系の根本的な見直しが必要となった。そこで、まず一波長の構成で DH 顕微鏡を構築し、微小インクドットに対する乾燥硬化解析を行うことにした。

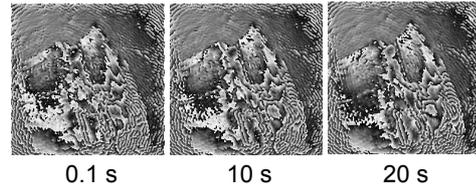


図 4 再生像 (LD): 位相

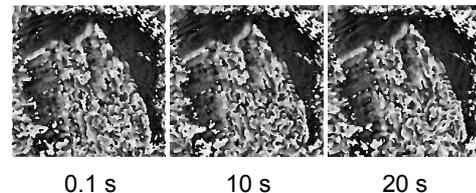


図 5 位相差画像

DH 顕微鏡による微小インクドット解析
 インクドットに生じた変位・変形を調べるため、各時間帯において再生した再生像の位相差を求める時間間隔 Δt を、 $\Delta t = 10 \text{ 秒}$, 200 秒 とした時の位相差画像をそれぞれ図 6 に示す。なお位相差画像はホログラムにアポダイゼーションフィルタを掛け、複素振幅積に窓サイズ 3×3 ピクセルの移動平均処理を 2 回施して求めた。また、ドット内で求めた $\Delta t = 200 \text{ 秒}$ で求めた位相差の標準偏差の時間変化を図 7 に示す。

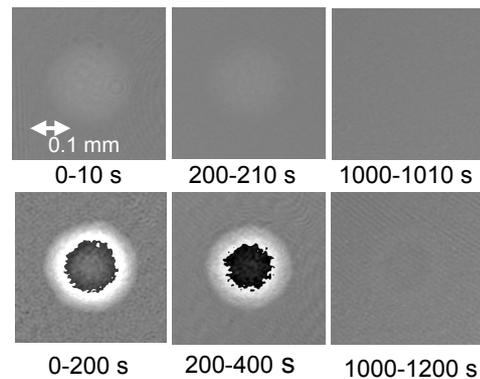


図 6 ドット再生像の位相差：上；10 秒，下；200 秒

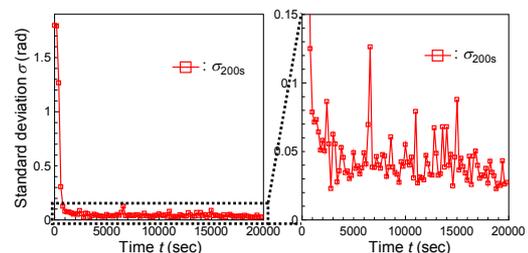


図 7 ドット内の位相差の標準偏

図6では1000秒程度までの乾燥初期では変化が確認できるが、それ以降は変化が見られない。そこで、時間間隔200秒の場合に対して、インクドット範囲内で位相差の標準偏差を計算した所、図7のように20000秒程度までは位相差に変化があることが分かった。このグラフを同時に測定した、タック力(インクのベタツキ具合)と比較した。

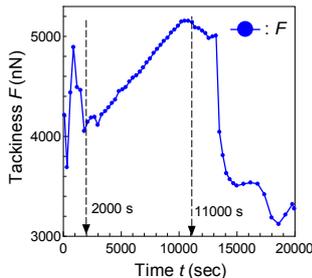


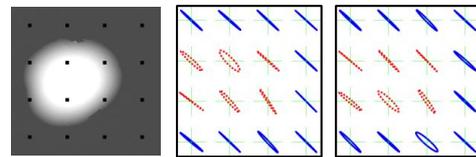
図8 タック力の時間変化

図8を見るとタック力の変化は10000秒程度まで上昇し、その後急激に減少している。上昇期間はゲル化に相当し、下降期間は固化に相当する。また、その変化は20000秒程度まで続いており、DH顕微鏡で検出されるインクドットの変化の継続時間と同様の傾向を示すことが分かった。また、その他の実験ではインクの形状の変化は、5万秒以上継続していることも確認できた。

偏光1ショット記録と形状計測記録したホログラムを再生計算し、インクドットおよび光学基板を透過する光の偏光方位を求めた結果を図9に示す。図9(b)と9(c)において破線は試料、実線は基板のエリアを表している。塗布後0sと400sを比較すると試料範囲外の基板でも位相差が変化している。そこで、試料と基板のエリアで位相差 $\Delta\phi_{sp}$ の変化が大きい点と小さい点の時間変化を調べた。その結果を図10に示す。またこのグラフの平均値と標準偏差を表1に示す。

表1から、基板のエリアの方が、試料のエリアよりも、位相差の時間変化が大きくなっている。この原因は、実験系に顕微鏡を用いることで、物体を拡大し高感度に位相変化を検出できるためノイズの影響を受けやすいことにある。この結果を受けて、現状では、図3の実験系では位相安定性が悪く、偏光解析が困難と判断し、拡大顕微鏡を取り外して偏光解析の基礎実験を行った。

基礎実験では、リタレーションが $\lambda/4$ である、厚さ75 μm の位相差フィルムを用いた。このフィルムの速軸と遅軸は、フィルムの縁に垂直、平行になるよう設計されている。このフィルムをオプティカルフラット上に置き、方位を反時計回りに変



(a) 解析点 (b) 0 s (c) 400 s
図9 偏光方位

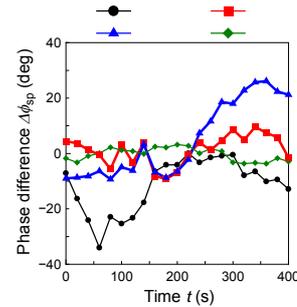


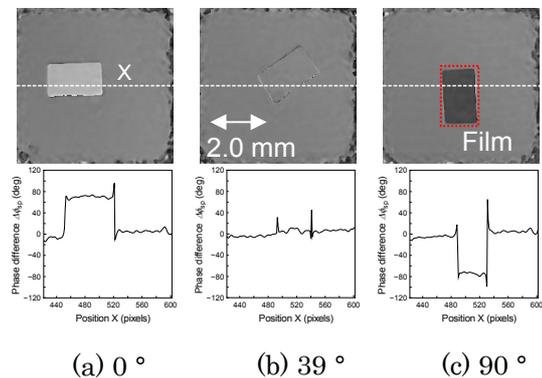
図10 位相差の時間変化

えながら、その都度ホログラム記録した。これらのホログラムからS偏光側の位相 ϕ_s とP偏光側の位相 ϕ_p を計算した。

表1 位相差時間変化

番号	偏光の変化	位相差の時間変化
	大	$-11.3 \pm 9.8^\circ$
	小	$1.3 \pm 5.4^\circ$
	大	$4.8 \pm 13.8^\circ$
	小	$-0.3 \pm 2.4^\circ$

フィルムの方位による位相差 $\Delta\phi_{sp}$ の変化を確認するため、 $\Delta\phi_{sp} = \phi_s - \phi_p$ によって導出した。このときの位相差画像とその断面の値を以下に示す。なお、フィルムの方位は再生像から見積もった値を用いた。



(a) 0° (b) 39° (c) 90°
図11 位相差画像とその断面

図11から、位相差フィルムの方位が0°と90°のときは光学基板に比べて $\pm 70^\circ$ 程度の値となっている。物体光路には -45° の直

線偏光を入射させているため、理論上では位相差 $\pm 90^\circ$ の円偏光が得られる。よって、実験結果とは 20° 程度のずれが見られる。位相差フィルムの適応レンジ内の波長で LD を発振させているため、このずれは、フィルムのリターダンス精度が原因と考えられる。フィルムの方位が 45° に近い 39° のときには、位相差が 6° 程度となっている。

次に、得られた振幅と位相・位相差から、主軸方位角、振幅比角、楕円率角を計算した。これらの値から偏光方位を描いた。この図を図 1 2 に示す。ただし、オプティカルフラットのエリアの振幅が等しくなるように、P 偏光側の振幅を数値的に調整している。また、破線は位相差フィルム、実線はオプティカルフラットのエリアを表している。

図 1 2 から、位相差フィルムを 0° または 90° に置いたエリアのみで楕円偏光が見られる。またフィルムの方位を 39° に置いた時は位相差 $\Delta\phi_{sp}$ が小さいため、オプティカルフラットと変わらないような偏光が得られている。ここでフィルムのエリアについて、 $\Delta\phi_{sp}$ の計算値の平均値および理論値を図 1 3 に示す。

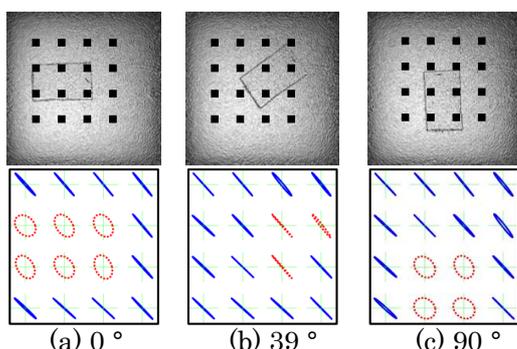


図 1 2 偏光方位を描いた位置と偏光方位

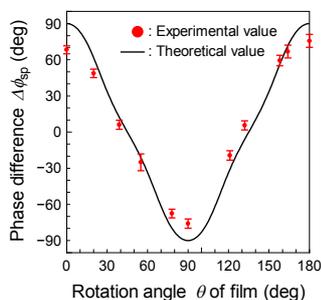


図 1 3 位相差の計算値と理論値

この図から、位相差フィルムの方位が 0° 、 90° 、 180° のときは、計算値と理論値で 14° 以上異なる。これはリターダンス精度が低いために起こったと考えられる。一方で、位相差フィルムの方位が 45° や 135° に近い値のとき、計算値と理論値の誤差は 6° 程度に収

まっている。今回の実験で、位相差フィルムの向きを変えることで、偏光方位が変わることを確認できた。

今後、上記の実験を継続し、塗膜の偏光解析から応力の変化を推定する実験を行う。また、顕微鏡配置における位相差不安定性の問題は、現状では改善が難しいため、まずは通常の光学系において偏光解析を行うことを優先する。二波長による形状計測では、やはり塗膜面の凹凸やムラ、透過光強度などが問題になっており、形状計測よりも変位計測の方が安定性や信頼性が高いため、こちらを変位計測を優先することになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 5 件)

小林幸一、横田正幸、デジタルホログラフィで塗装の乾燥・硬化を可視化する、産学官連携ジャーナル、査読無、Vol. 13, 2017, 18-20

青山郁弥、横田正幸、デジタルホログラフィック顕微鏡によるインクドット乾燥過程の評価、レーザー研究、査読有、44 巻、2016, 255-259

M. Yokota, "Digital holography for inspection of drying processes of paint films," Journal of the Imaging Society of Japan, 査読有, Vol.55, 2016, 697-703

横田正幸、デジタルホログラフィによる乾燥・硬化過程の解析、ケミカルエンジニアリング誌、査読無、Vol.60, 2015, 36-42

横田正幸、デジタルホログラフィによる接着剤の硬化過程の観察と解析、コンバーテック誌、査読無、Vol. 12, 2015, 116-119

〔学会発表〕(計 17 件)

横田正幸、岡田和樹、楠木英士、石川達也、デジタルホログラフィを用いた統合的な乾燥解析法の研究、レーザー学会第 513 回研究会(米子市文化ホール、鳥取県)、pp. 1-5, 12 月 4 (2017). 招待講演

H. Aziz, K. Kanamori and M. Yokota, Analysis of curing process of adhesive using both digital holographic interferometry and spectroscopy, International symposium on Imaging, Sensing, and Optical Memory 2017 (ISOM2017), 22-25 Oct., 2017 (Matsue, Shimane), pp. 61-62, 2017.

E. Kusunoki, F. Aoyama and M. Yokota, Monitoring of the drying process for an ink dot on tracing paper by using digital holographic microscopy, International symposium on Imaging, Sensing, and Optical Memory 2017 (ISOM2017), 22-25 Oct., 2017 (Matsue, Shimane), pp. 119-120, 2017.

M. Yokota, E. Kusunoki and K. Kanamori,

Digital holography for assessment of drying and hardening processes of films, International symposium on Imaging, Sensing, and Optical Memory 2017 (ISOM2017), 22-25 Oct., 2017 (Matsue), pp.141-142, 2017 (**Invited**)

M. Yokota and F. Aoyama, Digital holographic inspection of drying processes of paint films and ink dots, 2017 Optical Metrology (Munich, Germany), 25-29 June, 9page, 2017.

横田正幸, デジタルホログラフィによる塗膜の乾燥解析, 日本画像学会年次大会 (119回) (学術総合センター), pp. 697-703, 6月20-22日(2017).

丹生晃隆, 横田正幸, 小林幸一, デジタルホログラフィを用いた塗料乾燥硬化評価装置の製品化, 産学連携学会第15回大会 (栃木県総合文化センター), 2page, 6月15-16日(2017).

楠木英士, 横田正幸, デジタルホログラフィック顕微鏡を用いたインクドット乾燥時間の推定法の提案, レーザー学会学術講演会第37回年次大会(徳島大学), 1page, 1月7-9日(2017).

E. Kusunoki and M. Yokota, Monitoring of the drying process for tiny ink dots having different glycerin concentration using digital holographic microscopy, 2nd International Symposium of Gunma University Medical Innovation and 7th International Conference on Advanced Micro-Device Engineering (GUMI&AMDE2016), 9 Dec., 2016 (Kiryu), p.105, 2016.

横田正幸, 塗料やインクの乾燥の様子を見えるようにする夢の技術, デジタルホログラフィ, シンポジウム島根大学夢の先進研究大公開, 10月22日, (くにびきメッセ国際会議場)(2016). 招待講演

金森光太郎, 横田正幸, デジタルホログラフィック乾燥・硬化評価装置の開発, 電気学会産業応用部門大会 (群馬大学), 8月30日 - 9月1日 (2016)

M. Yokota, Digital holography for industrial instruments, The 2016 EMN Qingdao Meeting (Qingdao, China), 7-10 June, 1page, 2016(**Invited**)

横田正幸, デジタル時代のホログラフィー: デジタルホログラフィによる工業計測, 日本光学学会第42回冬期講習会 (東京大学山上会館), pp. 153-178, 1月14-15日(2016).

青山郁弥, 横田正幸, デジタルホログラフィック顕微鏡とタック力測定によるインクドットの乾燥過程の評価, レーザー学会学術講演会第36回年次大会(名城大学), 1page, 1月9日 11日(2016).

金森光太郎, 横田正幸, GPUを用いた実時間での乾燥・硬化評価装置の開発, 第17回

IEEE 広島支部学生シンポジウム(HISS17)(岡山大学), 11月21-22日, pp. 61-64 (2015).

横田正幸, デジタルホログラフィによる乾燥・硬化過程の解析, 山陰(鳥取・島根)発新技術説明会(JST東京本部別館, 東京), 7月7日, pp. 28-31 (2015).

丹生晃隆, 石倉賢, 横田正幸, 小林幸一, 産学連携による塗料乾燥評価装置の研究開発, 産学連携学会第13回大会(北見工業大学 北海道), 6月25日~26日, 0625C1400-2, pp. 68-69 (2015).

〔図書〕(計 1件)

横田正幸 他、光学ライブラリー7 デジタルホログラフィ: 第5.1節, 朝倉書店, 2016, 28

〔産業財産権〕

出願状況(計 1件)

名称: 乾燥硬化評価装置および方法

発明者: 横田正幸

権利者: 島根大学

種類: 特許

番号: 特願 2015-168099

出願年月日: 2015年8月27日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

http://www.ecs.shimane-u.ac.jp/~yokota/ylab_hp_japanese/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横田 正幸 (YOKOTA, Masayuki)

島根大学・総合理工学研究科・教授

研究者番号: 80323335