

令和 4 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04236

研究課題名(和文) 環境水中のナノ・マイクロ粒子の実時間測定法の開発と応用

研究課題名(英文) Development and application of a real-time method for measuring nano-micro particles in environmental water

研究代表者

茂木 信宏 (Moteki, Nobuhiro)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・助教

研究者番号：20507818

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：空気や水などの流体に浮遊する微粒子の正確かつ高速な自動測定法は、物理学・化学・生物学の実験、地球環境モニタリングなど、多くの科学技術研究・産業分野において必要とされている。しかしこれまで、直径数マイクロメートル未満の微小粒子について、粒子の構成物質と粒子の大きさを両方とも正確に決定できる利便性の高い自動測定法はなかった。本研究では、流体中に浮遊する粒径範囲0.2～5マイクロメートルの微粒子について、複素散乱振幅の正確な単一粒子測定に基づき、粒子を構成する物質の複素屈折率と粒径別数濃度を、両方とも同時にかつ正確に自動測定できる手法を考案・実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発された複素散乱振幅センシング法は、流体試料の前処理が不要で、安価に実現可能であるため環境中の微粒子の広域観測などに適する。また非破壊分析であるため、他の任意の分析化学・物理センシング手法と組み合わせた複合分析を行うことができる。このような汎用性と拡張性の高さから、今後、大気圏・水圏・雪氷圏の微粒子の観測など、多方面に多様な形で応用されていくことが期待される。

研究成果の概要(英文)：Accurate and fast automated methods for the measurement of fine particles suspended in air, water, and other fluids are needed in many scientific research fields, including physics, chemistry, and environmental monitoring. However, until now, there has been no convenient automated measurement method that can accurately determine both the constituent material and the size of particles for small particles less than a few micrometers in diameter. Here, we have developed a method for the simultaneous and accurate determination of both the complex refractive index and size-resolved number concentration of the constituent materials of particles based on accurate single-particle measurements of complex scattering amplitude for particles in the size range 0.2 to 5 micrometers. We have devised and demonstrated a method that can simultaneously and accurately measure both the complex refractive index and size-specific number concentration of the material comprising the particles.

研究分野：地球大気環境科学・環境物理学

キーワード：微粒子計測技術 光散乱 エアロゾル 海洋微粒子

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

- (1) 水中の懸濁粒子の構成物質を同定する方法としては、フィルター採集試料のバルク化学分析と顕微鏡観察が主流である。前者では粒子種ごとの粒径や混合状態の情報が失われ、前者では数濃度の定量ができないという制限がある。研究開始当時、流体中の懸濁粒子の実時間分析に適用可能な最新の光分析手法としてデジタルホログラフィが挙げられる。この手法は粒子のサイズと形状の測定能をもつが、波長よりも大きい粒子にしか適用できず、複素屈折率にはほとんど感度を持たない。また従来の光分析法は、ナノ・マイクロサイズ領域では固体粒子と気泡を互いに区別できなかった。
- (2) 上記の問題を解決する一つの方法として、ガウシアンビームの自己参照干渉法に基づき、単一粒子の前方での複素散乱振幅を測定する Single-Particle Extinction and Scattering (SPES)法が提案されているが、複素散乱振幅の測定の精度と確度の確認・制御方法が確立されておらず、また、複素散乱振幅から粒子の物理特性を推定する方法が開発されていなかった。

### 2. 研究の目的

ガウシアンビームの自己参照法に基づき、液体中の懸濁粒子・気泡の単一粒子毎の複素散乱振幅を高精度・高確度で測定できる装置・計測信号解析法を開発する。測定された複素散乱振幅のデータ点群クラスターから粒子の物理特性を推定するアルゴリズムを開発する。

### 3. 研究の方法

- (1) バックグラウンドノイズを抑制する新しい方法を用いた独自のハードウェアシステム、光検出器の構成を変更することで簡素化した信号処理回路を開発する。
- (2) 複素散乱振幅データ解析のための理論的枠組みと実用的アルゴリズムを開発する。このアルゴリズムは、ベイズ型モデル選択とパラメータ推定理論に、非球形粒子による光散乱の厳密な考察を加えて構築される。モデルデータと実験データを用いてこのデータ解析手法を検証する。

### 4. 研究成果

ガウシアンビームの自己参照干渉法により、フローセルを流れる液中粒子の前方複素散乱振幅を高精度に測定するプロトコル(Complex Amplitude Sensing version 1) CAS-v1を開発した。以下、これを複素散乱振幅センシング CAS 法と呼ぶ。CAS 法では先行研究 SPES 法[Potenza et al. 2015]に比べて以下の点が改良されている。

1. 実際の測定器ではフローセルの流路幅が有限であるため、一般には粒子の光軸上の座標 ( $z$  座標) がビームウエストに一致しない。SPES 法では粒子の  $z$  座標が信号に及ぼす影響が無視されていたが、CAS 法では粒子の 3D 座標を正しく考慮した信号モデルを導入した。
2. フローセル位置をステッピングモーター付きステージで厳密に位置調整できるようにした。
3. ガウシアンビームが平面波でないことによる効果、粒子サイズがビーム径に対して有限であることの効果を理論的に評価する計算ツールを開発した。これにより測定可能な粒径上限はビームウエスト径の  $1/3$  倍程度であることが分かった。

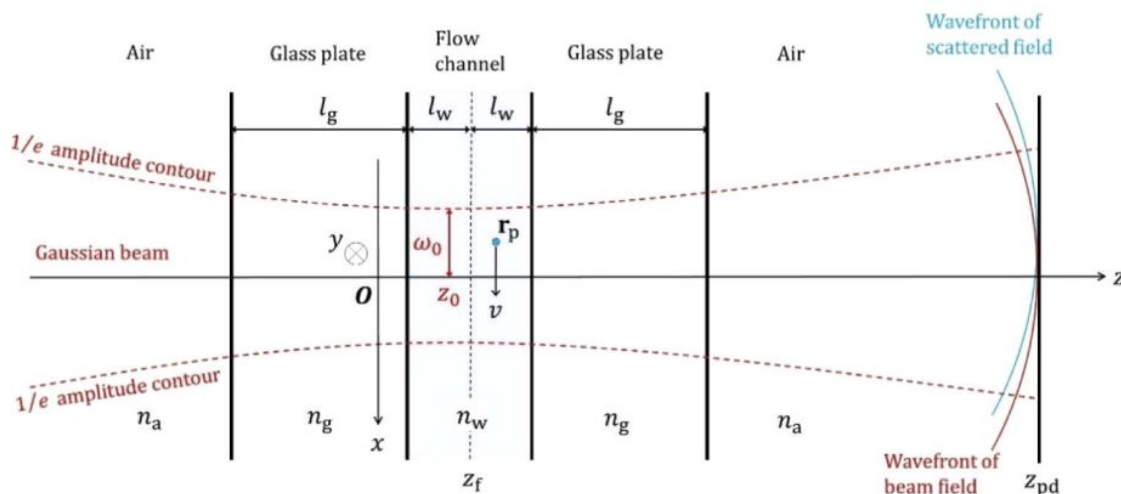


図1 . CAS法の信号モデルで考慮した実験パラメータの模式図

CAS法の開発の結果、粒子データ点群の散布図形状をフローセルの流路幅と流速分布により説明できるようになった。フローセルの流路幅・ビームウエスト径と散布図の形状の関係が明らかになり、複素散乱振幅のデータ品質を制御する方法が確立された[Moteki 2021, Optics Express]。

複素散乱振幅データ点群から、粒子群の物理特性(屈折率・形状・粒径分布)を推定する理論を開発した。この理論では2次元データ点群をクラスタリングし、各クラスターは屈折率と形状モデルが同一かつ粒子体積が分布を持つ粒子種の集団であると仮定する。各クラスターのprincipal curve fitを求め、principal curveに沿う距離座標が粒子体積の単調増加関数であると仮定すると、各粒子種の形状モデル・複素屈折率・体積等価粒径の粒径別数濃度を導出できることを明らかにした[Moteki 2020, JQSRT]。

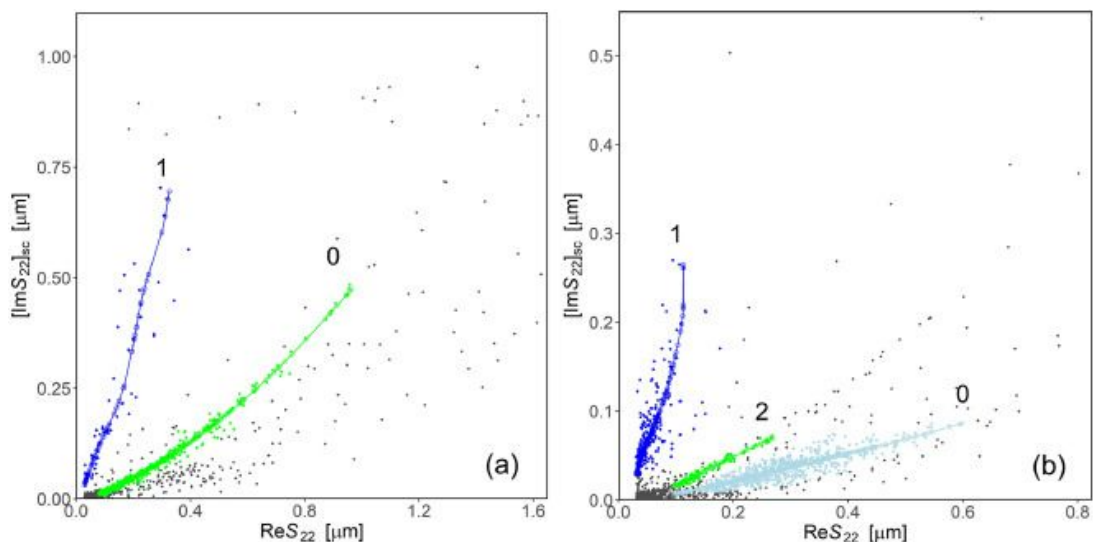


図2 . 環境水中の懸濁粒子の複素散乱振幅のデータ点群とクラスタリング結果の例 (a) 東京と (b) 沖縄の降水試料。

さらに鉱物ダスト試料について、酸化鉄とシリケート粒子を判別したうえで、主成分であるシリケート粒子の形状モデルと有効屈折率を推定できることを実証した[Yoshida et al. 2022]。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Adachi Kouji, Oshima Naga, Ohata Sho, Yoshida Atsushi, Moteki Nobuhiro, Koike Makoto	4. 巻 21
2. 論文標題 Compositions and mixing states of aerosol particles by aircraft observations in the Arctic springtime, 2018	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Atmospheric Chemistry and Physics	6. 最初と最後の頁 3607 ~ 3626
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5194/acp-21-3607-2021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Moteki Nobuhiro	4. 巻 243
2. 論文標題 Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer	6. 最初と最後の頁 106811 ~ 106811
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jqsrt.2019.106811	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yoshida Atsushi, Moteki Nobuhiro, Adachi Kouji	4. 巻 56
2. 論文標題 Identification and particle sizing of submicron mineral dust by using complex forward-scattering amplitude data	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Aerosol Science and Technology	6. 最初と最後の頁 609 ~ 622
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/02786826.2022.2057839	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Moteki Nobuhiro	4. 巻 29
2. 論文標題 Measuring the complex forward-scattering amplitude of single particles by self-reference interferometry: CAS-v1 protocol	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 20688 ~ 20688
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.423175	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 N.Moteki
2. 発表標題 The single-particle extinction and scattering method for online characterization of submicron particles: Principles and applications to aerosol research
3. 学会等名 JpGU Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Nobuhiro Moteki
2. 発表標題 Material identification of small particles by forward-scattered wave sensing
3. 学会等名 NOAA CSL seminar (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 茂木信宏
2. 発表標題 単一粒子測定技術の開発に基づく大気エアロゾルの動態と放射影響の研究
3. 学会等名 日本気象学会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 茂木信宏
2. 発表標題 光吸収性エアロゾルの測定技術の開発と気候影響に関わる観測的研究
3. 学会等名 JpGU Meeting 2022 (招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 微粒子識別装置及び微粒子識別方法	発明者 茂木信宏	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2021-078102	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 微粒子検出装置	発明者 茂木信宏	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2019/ 37583	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

プレスリリース「流体中のナノ・マイクロ粒子の物性・粒径分布の自動測定法」 <a href="https://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/press/2020/6662/">https://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/press/2020/6662/</a>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	足立 光司  (Adachi Kouji)  (90630814)	気象庁気象研究所・全球大気海洋研究部・主任研究官   (82109)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------