

平成 22年 5月 19日現在

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2008 ～ 2009

課題番号：20840014

研究課題名（和文）白熱偏光を用いた煤粒子の形状測定法の開発

研究課題名（英文）Development of a method to measure shape of soot particles by using polarized thermal emissions

研究代表者

茂木 信宏 (MOTEKI NOBUHIRO)

東京大学・先端科学技術研究センター・助教

研究者番号：20507818

研究成果の概要（和文）：

広く用いられているキルヒホッフの法則は粒子の形状の典型的長さが波長よりも十分大きな幾何光学近似の適用範囲内でのみ正しい理論であり、エアロゾルからの白熱光のように、波長が粒子サイズに大して十分大きくない条件ではキルヒホッフの法則を一般化した理論が必要である。電気力学と揺動散逸の定理に基づいて任意形状、任意サイズの物体からの熱輻射の強度を記述したのが Rytov 理論 (S.M.Rytov, 1953) である。現在までに検証実験の困難さと、注目度の低さから、Rytov 理論の実験的証拠は報告されていなかった。

本研究では高温に加熱された単一微粒子から放出される熱輻射（白熱）光の放出強度が、粒子が非球形の場合その形状に応じた異方性を持つことを実験により発見した。この観測された異方性は、Rytov の理論 (S.M.Rytov 1953) によって整合的に説明出来た。これは Rytov 理論の初めての実験的証拠だと考えられる。

研究成果の概要（英文）：

Widely used Kirchhoff's law of thermal radiation is based on geometric optics approximation, in which typical linear dimension of object is much larger than the wavelength. General theory of thermal radiation beyond the Kirchhoff's law is required for interpretation of thermal radiation (incandescence) from heated aerosol particles because of break down of geometric optics approximation. S.M.Rytov (1953) derived general theory of thermal radiation from object of arbitrary size and shape, based on electrodynamics and fluctuation-dissipation theorem. However, no experimental evidences have been reported so far because of technical difficulties and low attention from practitioners.

We have found significant change of directional dependence of thermal radiation from small particles according to their shape. The observed directional dependences were successfully explained by the Rytov theory. This seems to be the first experimental evidence of Rytov theory since 1953.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,290,000	387,000	1,677,000
2009年度	1,080,000	324,000	1,404,000
総計	2,370,000	711,000	3,081,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：気象・海洋物理・陸水学

キーワード：エアロゾル・大気化学

1. 研究開始当初の背景

エアロゾルの形状は光学特性、移動度などの物理特性を決める基礎的なパラメータである。粒子形状は単一粒子毎のパラメータであるため、個別粒子で計測されるべきであるが、現在までにその主要な計測原理は電子顕微鏡像の解析、光散乱の方位-偏光依存性の2つに限られている。前者は大気中における統計値を取ることが困難であるし、後者は形状-成分-サイズの情報が複雑に混合した観測量となっており、閉じた解釈が困難である。したがって、既存のものと相補的な、独立な計測原理の開発が望まれている。任意形状の粒子について、散乱、白熱という現象は、共通した物理的視点から解釈することができる。これは任意形状の物体を微小体積に分割した極限を考え、その微小体積を個々の点波源と考えて、その効果の体積積分を行うというものである。ある特定の方向への散乱光強度は、入射電場で励起される微小体積による二次的散乱波の、粒子体積全体にわたるコヒーレント和により与えられる。一方で、ある特定の方向への白熱光強度は、内部電荷の熱揺動により放射される一次的波の、粒子体積全体にわたるインコヒーレント和により与えられる。ここで、粒子温度と電荷の熱揺動の大きさの関係は、揺動散逸定理により与えられる。この白熱の理論はRytov [1953]による。Rytovの理論による白熱は、マクロな物体の極限(幾何光学近似)において、Kirchhoffの法則+Planck放射の白熱に一致する。Rytov理論は、粒子の大きさが波長と同程度かそれ以下(幾何光学近似が成立しない条件)において白熱を計算するのに使用できる(現時点では)唯一の理論である。

2. 研究の目的

本研究では、Rytov理論から予測される白熱光の方位-偏光特性の粒子形状依存性を利用して新しい煤粒子の形状計測原理を開発することである。

3. 研究の方法

実験用粒子のキャラクタリゼーション

実験に用いる市販の7種の異なる炭素粒子の形状を、(1)透過型電子顕微鏡写真、(2)質量-移動度の関係の2つの独立な方法で調べた。この情報をもとにそれぞれの粒子の典型的な形状モデルを作成し、実験結果を解釈するための理論計算に用いた。

実験

Single-particle soot photometer (SP2)の光検出系を用いて、単一粒子からの散乱光、白熱光を2つの異なる方位で検出するシステムとした。検出システムでは、レーザービームを通過する際中の粒子の散乱光、白熱光の波形を $0.2\mu\text{s}$ の時間分解能で計測する。この光学系では球形粒子は散乱、白熱の検出強度に方位依存性を持たないが、非球形である場合、散乱光は顕著な方位依存性をもつはずである。一般に、レーザービーム中で粒子は回転しているため、散乱光の方位依存性は、粒子の回転の周期と同じ周期で振動する。また、Rytov理論によれば、白熱光の方位依存性も、粒子の回転と同程度の周期で振動する。個々の粒子について、蒸発が少ない連続した時間領域における、方位1と方位2の強度比(R)の時系列の標準偏差を、方位依存性を示すパラメータとして用いる。以降、この標準偏差のことを単純に方位依存性と呼ぶ。実際に、散乱の方位依存性(R_{sc} の標準偏差)、白熱の方位依存性(R_{TE} の標準偏差)は、非球形性ととも大きくなった。散乱と白熱の方位依存性の相関関係は、その形状を反映した特徴を示した(図1)。

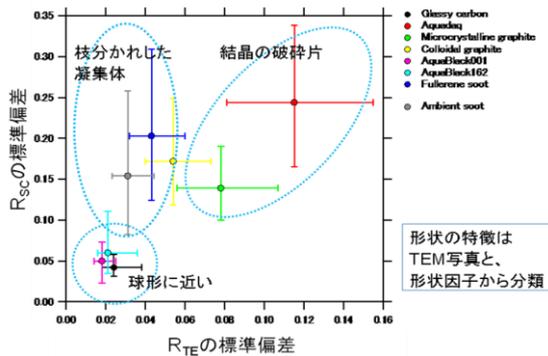


図1.様々な形状の炭素粒子について計測された、散乱光の方位依存性の強さと白熱光の方位依存性の強さの関係

モデル計算

図1の実験データの解釈をおこなうためにRytov理論を用いて方位依存性を計算するモデルを作成した。このモデルにおいては実験粒子のキャラクタリゼーションにおいて作成したモデル形状の粒子について、回転によってランダムな多数の方位の散乱光、白熱光を観測した時の、方位1と方位2の強度比の標準偏差を計算するものである。この標準偏差を、モデルによる方位依存性と呼ぶ。実験の方位依存性とこのモデルの方位依存性が直接的に比較可能であるためには、実験で以下のような条件が満たされていなければならない。(1)レーザービーム通過中において、粒子は回転により、くまなくあらゆる方位をとる。(2)回転の周期が、データ取得システムで計測可能な周期範囲であり、回転と方位依存性の効果がボケなく観測できている。

(1)の条件については、実験データのほうで、個々の粒子ではなく、多数の粒子についての統計値をもちいることで解決可能である。(2)の条件については、このモデルによって、方位依存性は散乱、白熱の両方ともかなり良く定量的に再現されたため、満たされていると考えられる。

4. 研究成果

散乱と白熱の方位依存性の相関関係が実験とモデルで良い一致を見せたということは、モデルに用いた理論が妥当であることを示している。この結果は、炭素粒子形状の新しい計測原理として、白熱の方位依存性が有効であることを示しているだけでなく、幾何光学近似の成立しない条件下でのRytov理論の妥当性を実験的に示した初めての結果である。

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4件)

- ① Nobuhiro Moteki, Yutaka Kondo, Nobuyuki Takegawa, and Shin-ichi Nakamura, Directional dependence of thermal emission from nonspherical carbon particles, *Journal of Aerosol Science*, 40, 790-801, 2009.
- ② Tomoki Nakayama, Yutaka Kondo, Nobuhiro Moteki, Lokesh K. Sahu, Takeshi Kinase, Kazuyuki Kita, Yutaka Matsumi, Size-dependent correction factors for absorption measurements using filter-based photometers: PSAP and COSMOS, *Journal of Aerosol Science*, 41, 333-343, 2010.
- ③ Nobuhiro Moteki, Yutaka Kondo, Tomoki Nakayama, Kazuyuki Kita, Lokesh K. Sahu, Takuya Ishigai, Takeshi Kinase, Yutaka Matsumi, Radiative transfer modeling of filter-based measurements of light absorption by particles: Importance of particle size dependent penetration depth, *Journal of Aerosol Science*, 41, 401-412, 2010.
- ④ Nobuhiro Moteki, Yutaka Kondo, and Shin-ichi Nakamura, Method to measure refractive indices of small nonspherical particles: Application to black carbon particles, *Journal of Aerosol Science*, 41, 513-521, 2010.
- ⑤ Nobuhiro Moteki and Yutaka Kondo, Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon aerosols: Measurements and theoretical interpretation, *Aerosol Science and Technology*, in press.

[学会発表] (計2件)

- ① 茂木信宏, 近藤豊, 竹川暢之, 中村新一, 散乱光と白熱光強度の方位依存性を用いた炭素エアロゾルの形状判定法, 第15回大気化学討論会, つ

くば国際会議場，2009年10月20日

②茂木信宏，近藤豊，中山智喜，L. Sahu，北一之，石谷拓也，木名瀬健，松見豊，フィルター光吸収法（PSAP，COSMOS）の応答特性を解釈するための物理モデル，第15回大気化学討論会，つくば国際会議場，2009年10月20日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

茂木 信宏 (MOTEKI NOBUHIRO)

東京大学・先端科学技術研究センター・助教

研究者番号：20507818