

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月20日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760063

研究課題名（和文） 透明物質中でのナノスケール超音波パルス伝播の可視化法の開発

研究課題名（英文） Development of imaging method for propagation of ultrasonic pulses with nanometer wavelength in transparent materials

研究代表者

友田 基信（TOMODA MOTONOBU）

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：30344485

研究成果の概要（和文）：申請者の研究グループが開発した透明媒質中に屈折率変化をもたらす超高速現象を深さ方向に可視化する新しい光測定技術である超高速光干渉トモグラフィ法をより発展させることを目的とした。そのデモンストレーション実験としてガラス中を伝播する超音波パルスを150 nmの空間分解能、1 psの時間分解能で自動計測するシステムを開発した。また超音波パルスを利用して生体細胞内部の屈折率と音速の空間分布を測定する方法の開発に取り組んだ。

研究成果の概要（英文）：This research aimed to develop a new optical imaging method called ultrafast optical interference tomography which images ultrafast phenomena causing refractive index modulation in transparent materials. As a demonstration we constructed an auto-measurement system and we measured propagating ultrasonic pulses in a glass with 150 nm spatial- and 1 ps temporal- resolutions. We also tried to develop the method imaging three dimensional velocity and refractive index distributions in living cells.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物理学一般

キーワード：光計測、超音波、可視化、超高速現象、3次元計測

## 1. 研究開始当初の背景

超音波の伝播はその媒質の音響的性質を反映している。超音波による内部測定は、不透明物質の場合は半導体チップの内部での電極間の接触検査のようなナノメートルスケールの対象から地球の内部構造など非常に大きい対象に至るまで幅広く行われている。透明物質の場合においても例えばその屈折率が内部で大きく変わらないようなもの（弱散乱の透明物質）では、超音波によって散乱される光を利用して、超音波の通り抜ける様子を観測することで内部の音響的性質の空間分布を知ることは有効な非破壊検査法である。

申請者は、超音波のうちでも特にピコ秒・

ナノメートル幅のパルス（ピコ秒超音波パルスと呼ばれる）を利用して、物質内部の非破壊検査の研究を行ってきた。特に、ガラス内部でピコ秒超音波パルスが伝播する様子を時間分解する新しい手法を考案・実現した。この方法にはまだ明確な名前がないため、以下では便宜的に超高速光干渉トモグラフィと呼ぶこととする。超高速光干渉トモグラフィでは、フェムト秒レーザーパルスをピコ秒超音波パルスを光励起するポンプ光と、その超音波パルスが引き起こす物質中の屈折率変化を反射率変化として観測するプローブ光に分け、プローブ光の到着時間を走査して時間領域で観測するポンプ・プローブ法を基にしており、超音波がつくる屈折率変化の空

間分布をプローブ光波のブラッグ回折の条件を利用して測定するものである。この方法はピコ秒超音波法の分野において、試料内部音響場の新しい検出方法を提案したという事で注目されている。ただし超高速光干渉トモグラフィはデモンストレーション的な要素が強く、その研究はまだ初期段階であり、測定装置や可視化アルゴリズムなどにおいて改善の余地が大いに残されていた。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、申請者が過去に開発した新しい光測定技術（超高速光干渉トモグラフィ法）をより発展させることである。超高速干渉トモグラフィとは、透明試料内部で光励起による現象（例えば超音波パルスの発生・伝播）によって引き起こされる屈折率変化の空間分布を、光の干渉を利用して光波長（数百ナノメートル）・ピコ秒の分解能で得るものである。この手法の研究はまだ初期段階であり、今回の研究ではより高感度・全自動で計測するシステムを構築することを目的とする。また、この手法を超音波パルス伝播の観察に応用して、透明媒質の屈折率と音速の空間分布を非破壊的に得る方法（超音波パルスと光干渉による試料内部の屈折率・音速分布測定）についても開発する。

## 3. 研究の方法

(1) 超高速光干渉トモグラフィの改良によるナノメートル幅超音波パルス伝播等の超高速現象測定

### 1-1 超高速光干渉トモグラフィ法の原理

超高速光干渉トモグラフィ法は、フェムト秒レーザーを使い物質内部のピコ秒領域で起こる超高速現象をその屈折率変化を利用して深さ方向の空間分解を可視化する新しい光計測法である。既に確立している光学的断層撮影法 (Tomography) として **Computer Tomography** や **Coherence Tomography**、共焦点顕微鏡などがある。しかし本手法の原理はこれらとは異なり、分類すれば X 線回折による構造解析の原理を可視光の波長領域に応用した光計測法となる。

超高速光干渉トモグラフィ法では、試料中に現象（たとえば超音波）によって引き起こされるわずかな屈折率変化の分布の空間周波数に着目する。屈折率変化の空間周波数とプローブ光の波長がちょうどブラッグ回折の条件を満たすとき、プローブ光はブラッグ回折の角度に散乱される。その散乱光の振幅は、屈折率変化量に比例する。ただこのままだと、この散乱された光は微弱であり位相の情報も検出できない。そのため、表面等で反射した別のプローブ光と干渉させ検出する。屈折率変化がもついろいろな空間周波数成分を検出するためには、プローブ光の入射角

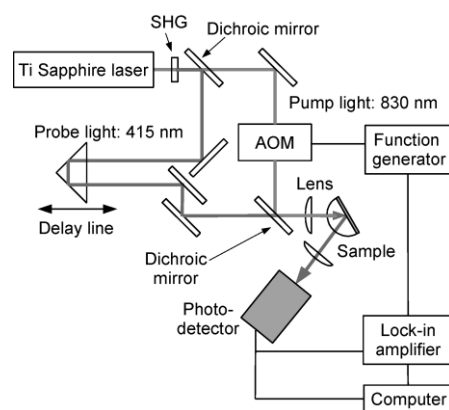


図1 超高速トモグラフィ法による超音波伝播イメージングのセットアップ (SHG: 第2高調波発生結晶、AOM: 音響光学変調器)。試料は半球形のガラスに超音波励起用の金属薄膜を貼りつけたものである。試料と光検出器はそれぞれ今回新たに作製した  $\theta$ - $2\theta$  回転ステージに取り付けられている。

を走査させる。そのように集めた空間周波数成分から屈折率分布を求める過程では、X 線回折で使われるフーリエ変換と位相回復法ではなく、屈折率分布から反射率変化を求める解析式を順問題にした、特異値分解による逆問題解析を行う。さらにプローブ光の遅延時間を走査することで、屈折率変調源の現象の時間変化（超音波伝播）が可視化できる。

1-2 測定システムおよび試料

まずデモンストレーション実験として超音波パルス伝播の可視化について記す。図1にこのデモンストレーション実験用のセットアップの概略図を示す。試料としては屈折率の異なる2種類のガラスを用いた。プローブ光の入射角度の範囲を広くするために、試料形状は半球とし、中心を通る平面には超音波励起用の金属膜を蒸着している。

フェムト秒チタンサファイアレーザーから出た光パルス（波長 830 nm）は第2高調波発生結晶を通り、波長 415 nm の光パルスを生成する。元の 830 nm の光パルスを超音波パルス生成用のポンプ光、415 nm の光パルスを検出用の検出光とする。ロックイン増幅器で微小反射率変化成分のみを検出するために、通常のポンプ・プローブ法と同様にポンプ光は音響光学変調器でチョッピングされてから試料の半球ガラス側から試料中心に照射する。プローブ光は遅延光路を通った後にポンプ光と重ねて同じレンズで試料中心に絞られて入射する。試料と反射光はそれぞれ回転中心を一致させた別の回転ステージに乗っており、試料が  $\theta$  回転すると、検出器は  $2\theta$  回転する。プローブ光の反射率は光検出器で電圧信号に変換される。その電圧信号

はコンピュータに、反射光強度そのものとロックイン増幅器で取り出した反射光強度変化として、光入射角度や遅延時間の情報と同期して取り込む。

## (2) 超音波パルスと光干渉による試料内部の屈折率・音速分布測定

### 2-1 試料内部の屈折率・音速分布測定の原理

透明な媒質中の超音波パルスにプローブ光を入射すると、超音波による屈折率変化の空間周波数と光波長がブラッグ回折の条件を満たすときに、プローブ光が超音波パルスにわずかに反射される。この微弱な反射光と試料の表面や界面で反射したプローブ光の干渉を利用する。超音波パルスは音速で伝播するので、干渉条件は超音波パルスの位置によってことなり、時間領域で見ると反射率変化は振動する（ブリルアン振動）。このブリルアン振動の周波数  $f$  は、均一な媒質中ではプローブ光が超音波パルスの波面に垂直に入るときには、 $f = 2nv/\lambda$  となる。ただし、 $v$  は音速、 $n$  は屈折率、 $\lambda$  はプローブ光の波長である。不均一な媒質中（ $n$  と  $v$  が空間の関数である媒質中）では、超音波パルスの位置によってブリルアン振動の周波数が異なる。このことを利用して、超音波が強く反射しない透明試料内において、瞬間的なブリルアン振動の周波数と超音波パルスの位置（遅延時間と音速の積算から求める）から、試料内部の音速や屈折率の分布を測定する。さらにプローブ光の入射角を2つにして試料表面の屈折を利用すると、音速と屈折率を積の形でなく分離して求めることもできる。この原理は、この研究の申請時には発表されていなかったが、研究期間中に他のグループによってより洗練された形で発表された（V. Gusev, et al., “Depth-profiling of elastic and optical inhomogeneities in transparent materials by picosecond ultrasonic interferometry: Theory,” *J. Appl. Phys.* **110**, 124908 (2011)）。

### 2-2 測定システムおよび試料

同様の研究を先に発表されたこともあり、研究対象を測定方法からより応用的なものに変更した。研究の目標を培養液中の生きている細胞内部の音速・屈折率分布の3次元マッピングにおき、その初期段階として培養中にホルマリンで固定したラットの細胞の測定に取り組んだ。

液体試料を計測できるようにポンプ・プローブ法のセットアップを自作の光学顕微鏡下に組んだ。試料が液中であること、試料が回転ステージの代わりに2次元走査ステージに乗っていること、2つの角度からプローブ光を入射し検出できるように切り替えができるようにしてあることを除けば、光学系のセットアップは図1のものに類似している。

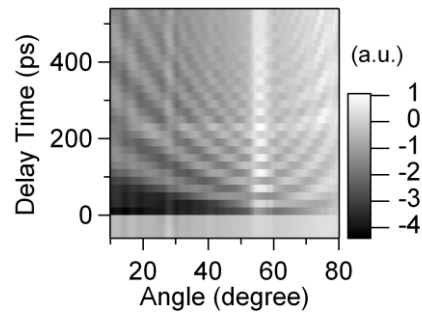


図2 試料としてBK7ガラスにアルミ薄膜を400 nm蒸着したものを使った際の相対反射率変化  $\Delta R/(R \cos \theta)$  を横軸プローブ光入射角度（度）、縦軸遅延時間（ps）で強度プロットしたもの。ブリルアン振動によって縞状の様態が見られる。

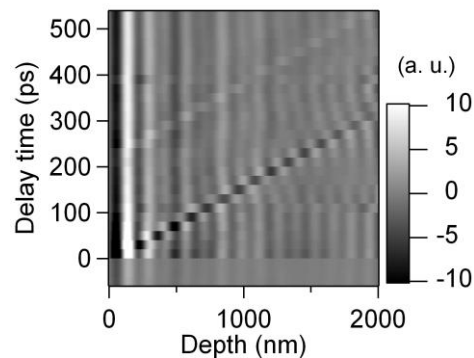


図3 特異値分解による逆問題解析法によって図2の測定データから再構築した深さ方向の歪み分布を遅延時間の関数として表示したもの。左下の0 ps点から右上に見える直線は、超音波が縦波速度で試料内部に伝播していることを示す。

試料である細胞は培養液中で超音波を発生する金属薄膜上に付着している。その金属薄膜からポンプ光により励起された超音波パルスが細胞内部を伝わることを、プローブ光を使って反射率を時間の関数としてモニタリングする。この信号からブリルアン振動の瞬間的な周波数を求めるためウェーブレット変換を行い、先の原理で深さ方向の音速と屈折率の積を求める。さらに試料を2次元空間走査することで、3次元的な空間分布も計測できる。

## 4. 研究成果

### (1) 超高速光干渉トモグラフィ法によるナノメートル幅超音波パルス伝播の超高速現象測定

デモンストレーション実験として、試料にBK7ガラスを使った際の測定データを図2に示す。この測定の際には、入射角の範囲を10～80°、角度ステップを0.2°、遅延時間の

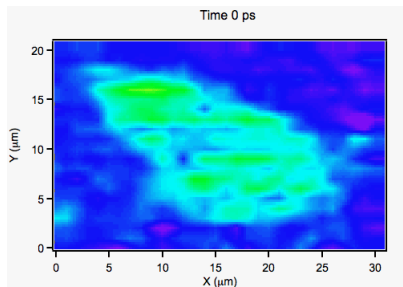


図4 脂肪細胞中の反射率変化の例

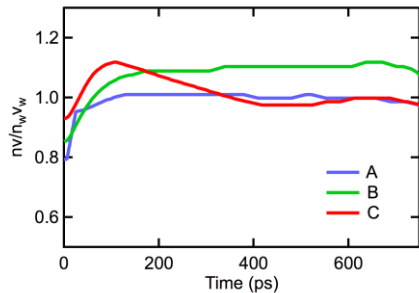


図5 細胞の内外3点での音速×屈折率の空間分布。横軸に音速を掛けると細胞の底面からの距離に変換される。

範囲を $-60 \sim 520$  ps、時間ステップを 20 ps とした。遅延時間を固定した際の 1 度の角度走査の計測時間は 20 秒程度であり、全測定時間は数時間である。角度走査の際にポンプ光のスポット形状が楕円になり単位面積当たりの吸収エネルギーが変化することを、相対反射率変化  $\delta R/R$  を  $\cos \theta$  で割ることで補正している。

このデータを本手法で再構築したものが図3である。歪みパルスが等速度で深さ方向に伝わる様子が可視化できている。この傾きは BK7 ガラス中の縦波音速 5900 m/s に一致する。230 ps から出てくる平行な直線は、励起直後にアルミ薄膜を伝播し空気との表面で反射してから BK7 ガラスに透過してきた 2 つ目の超音波パルスである。1 つ目のパルスと 2 つ目のパルスの歪みの符号が反転するのも予測通りである。縦縞がみられるのは、測定の際の誤差の影響であり、試料表面の汚れなどが原因である。これは時間に依存していないこともあり、簡単なデータ処理で除去できる。

ここでは、BK7 ガラスの結果のみを図示したが、より屈折率の高い S-LAH79 ガラスや金属薄膜としてタンゲステンを使った場合の実験も行った。

以上の結果は、まだ査読付きの学術論文には投稿していないが、大学院修士課程の学生の修士論文としてまとめてあり、国内学会や国際学会で発表した(学会発表①~③)。なお、関連する研究として歪みパルスの形状を調べる論文(雑誌論文①)の掲載が決定しており、雑誌論文②にも本研究内容の一部が反

映されている。

## (2) 超音波パルスと光干渉による細胞内部の屈折率・音速分布測定

試料としてラットの脂肪細胞 3T3-L1 を使い、細胞各所でのブリルアン振動の測定を行った。図4に細胞中での反射率変化のマッピング例を示す。これは瞬間的なものであり時間走査するとブリルアン振動によって反射率変化が振動する。図5に反射率変化の振動をウェーブレット変換して求めた音速と屈折率の積の空間分布を示す。現在の段階では、予備的な実験結果を得た段階にとどまっており、測定値と細胞の部位の物理量の比較による解釈は行っていない。

この結果はまだ十分とは言えないが、国際学会で発表した(学会発表④)。

## 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 2 件)

- ① Osamu Matsuda, Motonobu Tomoda, Takehiro Tachizaki, Shun Koiwa, Atsushi Ono, Kae Aoki, Ryan P. Beardsley, and Oliver B. Wright, 'Ultrafast ellipsometric interferometry for direct detection of coherent-phonon strain pulse profiles,' Journal of the Optical Society of America B, 査読有, 掲載予定 Doc ID: 187284.
- ② Hirotaka Sakuma, Motonobu Tomoda, Paul H. Otsuka, Osamu Matsuda, Oliver B. Wright, Takashi Fukui, Katsuhiko Tomioka, and Istvan A. Veres, 'Vibrational modes of GaAs hexagonal nanopillar arrays studied with ultrashort optical pulses,' Applied Physics Letters, 査読有, 100, 131902-1-3 (2012)

[学会発表] (計 4 件)

- ① Motonobu Tomoda, "Optical tomographic imaging of nanometer ultrasonic pulses propagation in a glass," International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2011 (ATEM'11), 2011 年 9 月 20 日, 神戸国際会議場
- ② Motonobu Tomoda, "Optical tomographic imaging of picosecond pulses with 150 nm spatial resolution," PHONONS 2012, 2012 年 7 月 9 日, University of Michigan, Ann Arbor (アメリカ)

- ③ 友田基信、「ピコ秒超音波パルス伝播の200nm 空間分解能での光トモグラフィイメージング」、第33回超音波エレクトロニクス基礎と応用に関するシンポジウム、2012年11月13日、千葉大学西千葉キャンパス
- ④ Sorasak Danworaphong, “3D animal-cell imaging with picosecond ultrasonics,” 2013 International Congress on Ultrasonics, 2013年5月2日、Grand Copthorne Waterfront Hotel, Singapore (シンガポール)

[その他]

ホームページ

<http://kino-ap.eng.hokudai.ac.jp/j-index.html>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

友田 基信 (TOMODA MOTONOBU)  
北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：30344485

### (2)研究協力者

Oliver B. Wright  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
松田 理 (MATSUDA OSAMU)  
北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
Roberto Li Voti  
Sapienza Università di Roma・准教授  
Sorasak Danworaphong  
Walailak University (タイ)・講師