

氏 名	こうやま まりこ 香山 真理子
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 6 2 3 号
学位授与の日付	平成 24 年 3 月 26 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	工芸科学研究科 生命物質科学専攻
学 位 論 文 題 目	Studies on High Frequency Dynamic Ultrasound Scattering and Its Application to Suspended Polymer Systems (高周波動的超音波散乱法の開発および懸濁高分子系への応用)
審 査 委 員	(主査)教授 宮田貴章 教授 高橋雅興 教授 櫻井伸一

論文内容の要旨

粒子径が数ナノから数十マイクロメートルの微粒子は、化粧品、塗料、ドラッグデリバリーシステム、フィラーなど、様々な分野で利用されている。粒子の粒径は、機能性を左右する重要な因子であり、様々な手法により評価が行われている。一般的には、走査型電子顕微鏡 (SEM)、動的光散乱 (DLS) や高速画像解析法 (PIV) が用いられるが、いずれの方法も、試料の破壊、光の吸収等の問題があり、試料を希釈することなく、液中そのままの状態を観察が困難である。

本論文では超音波を線源とした新しい非破壊かつ非接触のダイナミクス解析法である高周波動的超音波散乱 (DSS) 法の開発に取り組んだ。超音波が「媒体を介して振動を伝える波」である事に着目し、光学的に乳濁した試料の解析を可能とした。超音波は、胎児のエコー診断や非破壊検査など、古くから利用されているが、波長の半分以下の物体を解像できない回折限界により、一般的にはミリからセンチメートルの構造体が対象とされている。本研究では、超音波の技術を材料解析分野に持ち込むこみ、マイクロもしくはナノメートルオーダーを対象としている点が新しい。

本論文は 5 つの章から構成されている。第 1 章では、超音波の先行研究よりも 10 倍程度の波長に対応する 20 MHz の縦波超音波散乱信号を高精度で検出し、粒径 3~45 μm のポリスチレン粒子の測定に成功した。第 2 章では、DSS 解析に必要な超音波減衰や音速といった基本物理量を高精度に解析する方法論を開発し、時々刻々と変化する試料の状態をリアルタイムで分析可能なシステムも構築した。第 3 章では第 1 章の系に対して、自己相関関数法による高精度な時間・空間解析を行い、揺らぎ理論に基づく DSS 法の基盤を確立した。第 4 章では、位相に着目し、3 章までの振幅モード DSS では不可能な運動方向情報をもつ解析法の開発 (位相モード DSS) に取り組んだ。第 5 章では、長距離相互作用によって構成される微粒子の集団運動状態を位相モード DSS によって可視化し、動的なプロセスを画像として得ることに成功した。

以上のように、本論文は、超音波の散乱現象を利用した全く新しい微粒子解析法を提案し、学術的価値はもちろん、産業界に対する大きなニーズに応える有用な技術を提供するものである。

論文審査の結果の要旨

本論文は、超音波を用いた高分子材料を代表とするソフトマターに対する新しい構造物性解析法を提案し、特に、マイクロ粒子懸濁液における流体力学的相互作用の定量的評価と、それを考慮した非破壊かつ非接触の粒径評価方法を提供している。光を透過しない試料についても測定可能であるため、当該技術は化粧品や塗料を代表とする幅広い応用分野で活用可能であると期待できる。音波の伝搬は、我々のライフタイムと比較するとかなり高速であるが、光と比べると遙かに遅く、高速デジタイザを用いて膨大な空間情報を有した信号をリアルタイムでキャプチャー可能である。最近になって可能になった大容量かつ高速なデータ記録技術に着目した全く新しい研究と言える。振幅に加えて、位相評価が可能である点が特に新しく、従来のスペクトロスコピー技術ではなし得ない、動的情報のイメージングにも成功している。微粒子の沈降現象に着目し、沈降の際に生ずる複雑な構造を可視化することで、その運動状態の理解を可能とした。

本論文は以下に示す5編の主論文から構成されている。申請者はこれらの論文のうち、2編において筆頭著者になっている。これに加えて、1編の特許と1編の参考報文は本論文の学目的かつ工業的な価値を反映している。

[主論文]

1. “High Frequency Dynamic Ultrasound Scattering from Microsphere Suspensions.”, M. Kohyama, T. Norisuye, Q. Tran-Cong-Miyata, *Polymer Journal* **2008**, *40*, 398-399.
2. “Dynamics of Microsphere Suspensions Probed by High Frequency Dynamic Ultrasound Scattering.”, M. Kohyama, T. Norisuye, Q. Tran-Cong-Miyata, *Macromolecules* **2009**, *42*, 3, 752-759.
3. “Simultaneous Observation and Analysis of Sedimentation and Floating Motions of Microspheres Investigated by Phase Mode-Dynamic Ultrasound Scattering.” A. Nagao, M. Kohyama, T. Norisuye, Q. Tran-Cong-Miyata, *Journal of Applied Physics* **2009**, *105*, 2, 023526
4. “Simultaneous Evaluation of Ultrasound Velocity, Attenuation and Density of Polymer Solutions Observed by Multi-echo Ultrasound Spectroscopy.”, T. Norisuye, S. Sasa, K. Takeda, M. Kohyama, Q. Tran-Cong-Miyata, *Ultrasonics* **2011**, *51*, 215-222.
5. “Collective Motion of Microspheres in Suspensions Observed by Phase-mode Dynamic Ultrasound Scattering Technique.”, A. Nagao, T. Norisuye, M. Kohyama, T. Yawada, Q. Tran-Cong-Miyata, *Ultrasonics*, in press.

[参考論文、学術雑誌および特許]

1. 特願 2009-114873, 特開 2010-261910, “動的超音波散乱法測定装置および微粒子の解析方法”, 則末智久, 香山真理子, 2009年5月出願, 2010年11月公開
2. “動的超音波散乱による沈降微粒子のダイナミクス解析”, 則末 智久, 香山 真理子, 宮田 貴章, 電子情報通信学会技術研究報告. US, 超音波 IEICE technical report. *Ultrasonics* **109**(239), pp.17-22 (2009.10)