

研究

透明なミクロン粒子のインラインホログラム像

石川 宗晴・村上 昭年

九州大学工学部応用理学教室 〒812 福岡市東区箱崎 6-10-1

(1984年8月1日受理)

In-line Holographic Images of Transparent Micron Particles

Muneharu ISHIKAWA and Terutoshi MURAKAMI

Department of Applied Science, Faculty of Engineering, Kyushu University,
6-10-1, Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812

The in-line holographic image of a transparent micron sphere is theoretically investigated. Van de Hulst's formulation of Mie scattering theory is used to derive three near-field scattering amplitude functions for the radial, longitudinal, azimuthal components of the electric field of the scattered light. The holographic intensity function under unpolarized illumination is formulated by using the three amplitude functions. These three functions are evaluated numerically by using Lentz algorithm for a calculation of ratios of Bessel functions and by using the recurrence algorithm for other functions. The holographic intensity distributions are obtained at different far-field numbers and different ratios of a particle's radius to the wavelength of light. The resultant holographic images are compared with the images obtained on the basis of Fresnel diffraction approximation. It is found that the use of the Fresnel approximation for a small transparent sphere should be limited to the recording distance larger than a thousand of the wavelength.

1. ま え が き

インラインホログラフィは $10\ \mu\text{m}$ 以上の粒子計測法としてよく確立した技術で、3次元的な空間分布・粒径分布計測に用いられている¹⁻³⁾。理論的にもフラウンホーファ回折近似に基づき球形粒子のホログラム干渉縞の形成、再生粒子像の再現過程などに関していくつかの研究がなされている⁴⁻⁸⁾。しかし対象粒子の粒径が小さくなると、そのホログラムを鮮明に記録するために、干渉縞のコントラストが高い近距離で回折光をとらえホログラム干渉縞を記録することが有利になる⁸⁾。しかしこの条件ではファーフィールド条件が成り立たなくなることもあるため、記録された干渉縞の解析にはフレネル回折近似に基づく議論がなされねばならない⁹⁾。

さらに波長の数倍程度の粒径になると、球形粒子をその射影断面をもつ不透明円盤に置き換える回折理論は使えなくなる。これに対してミー散乱理論では粒子の物性を考慮した厳密な散乱光を求めることができるため、フラウンホーファ回折理論の評価に用いられている¹⁰⁾。こ

の場合ファーフィールド領域における散乱振幅を扱うためにミー散乱関数に含まれる観測点までの距離の関数は漸近展開されて用いられている。しかしニアフィールド領域における振幅を考える上では、上記の距離の関数を厳密に考慮したミー散乱振幅関数を求めることが必要になる。

そこで本研究ではミー散乱理論に基づいて微小球形粒子の散乱光の厳密な表式を求めて、透明粒子のつくるホログラム干渉縞の特徴を調べた。またこの干渉縞の光強度分布をフレネル回折理論から計算したフレネルホログラムの干渉縞の強度分布と比較して、強度分布の差を生ずる粒径およびホログラム記録距離に関する条件を求め、フレネルホログラムの表式が適用できる範囲を明らかにした。

2. インラインフレネルホログラムの表式

いま、Fig. 1 に示すように、球の中心を通り光軸に垂直な面を物体面とし、それから距離 Z だけ離れた面をホログラム面とする。強度 I_0 、波数 $k(=2\pi/\lambda)$ の単

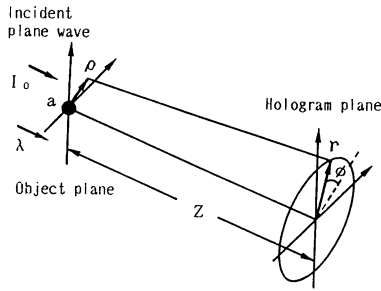


Fig. 1 Plane wave recording geometry for the in-line hologram.

色平行光束中にある半径 a の球がホログラム面上につく
る光振幅はフレネル近似を行なうと、

$$U(r) = \sqrt{I_0} \{ \exp(ikZ) + (i/\lambda Z) \exp ik(Z+r^2/2Z) \}$$

$$\times \int_D \exp [(ik/Z)(\rho^2/2 - r \cdot \rho)] d\rho$$

となる。ここで D は物体面にある球の断面内での積分領域を表わしている。ベクトル r と ρ のなす角を ϕ とし、 $\tilde{U}(r) = U(r)/\sqrt{I_0}$ 、 $\tilde{r} = r/a$ 、 $\tilde{\rho} = \rho/a$ 、 $N = \lambda Z/4a^2$ で無次元化して積分すると、

$$\tilde{U}(\tilde{r}) = \exp(ikZ) [1 + i \exp(i\pi\tilde{r}^2/4N) S(\tilde{r})]$$

$$S(\tilde{r}) = (\pi/2N) \int_0^1 \tilde{\rho} J_0(\pi\tilde{r}\tilde{\rho}/2N) \times \exp(i\pi\tilde{\rho}^2/4N) d\tilde{\rho}$$

となる。関数 $S(\tilde{r})$ を繰り返し部分積分すると、

$$S(\tilde{r}) = \exp(i\pi/4N) \cdot [P - iQ]$$

$$P = \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m-1} J_{2m-1}(\pi\tilde{r}/2N) / \tilde{r}^{2m-1} \quad (1)$$

$$Q = \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m-1} J_{2m}(\pi\tilde{r}/2N) / \tilde{r}^{2m} \quad (2)$$

ここで、 N はファーフィールド数 (far-field number) と呼ばれ、粒子位置の遠距離度を示す、フラウンホーファホログラムの干渉縞を特徴づけるパラメータである。

したがって、ホログラム面上の干渉縞の光強度分布の表式はつぎようになる。

$$\begin{aligned} \hat{I}(\tilde{r}) &= |\tilde{U}(\tilde{r})|^2 \\ &= |1 + i \exp\{i\pi(1+\tilde{r}^2)/4N\} \{P - iQ\}|^2 \\ &= 1 + (P^2 + Q^2) - 2\{P \sin \theta - Q \cos \theta\} \quad (3) \end{aligned}$$

ここに、 $\theta = \pi(1+\tilde{r}^2)/4N$ である。

(1), (2)式において、 N を大きくすると、 J_n を含む各項の寄与は $(\pi/4N)^n/n!$ となることから、粒子から遠く離れたファーフィールドの位置では、第1近似で、

$$P = J_1(\pi\tilde{r}/2N)/\tilde{r}, \quad Q = 0$$

と近似できる。 $\tilde{r}^2 \gg 1$ の領域では、 $\theta = \pi\tilde{r}^2/4N$ とおけば (3)式はフラウンホーファホログラムの式と一致する。

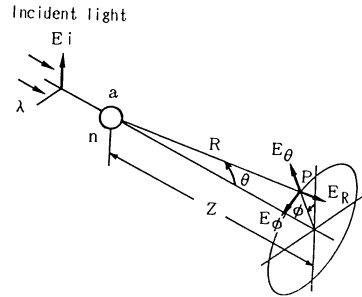


Fig. 2 Scattering geometry of polarized plane wave.

3. ミー散乱理論に基づく粒子ホログラムの表式

3.1 ニアフィールド領域における散乱振幅関数

いま屈折率 n_0 の一様媒質中にある屈折率 n 、半径 a の球形粒子を考える。この球に電気ベクトル E_i の単色平面波が入射したとき、観測点 P における散乱波の電気ベクトルは Fig. 2 のように、三つの成分 E_R, E_θ, E_ϕ に分けられる。 P 点における入射波の振幅を $\exp(ikZ)$ ($k=2\pi/\lambda$) とし、 P 点の極座標を (R, θ, ϕ) とすると散乱波の各成分はつぎのように表わされる。

$$\begin{aligned} E_R &= \{\cos \phi / (kR)\}^2 \\ &\times \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{i^{n+1} \zeta_n(kR) a_n \pi_n(\cos \theta) \sin \theta\} \quad (4) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} E_\theta &= (i \cos \phi / kR) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{i^n \zeta_n'(kR) a_n \\ &\times \tau_n(\cos \theta) + i^{n+1} \zeta_n(kR) b_n \pi_n(\cos \theta)\} \quad (5) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} E_\phi &= (-i \sin \phi / kR) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{i^n \zeta_n'(kR) a_n \\ &\times \pi_n(\cos \theta) + i^{n+1} \zeta_n(kR) b_n \tau_n(\cos \theta)\} \quad (6) \end{aligned}$$

ここで上付き記号 ' は関数をその引数で微分したことを示している。また各関数および係数は以下のように定義している¹¹⁾。第1種随伴 Legendre 関数を P_n とすると

$$\begin{aligned} \pi_n(\cos \theta) &= P_n(\cos \theta) / \sin \theta \\ \tau_n(\cos \theta) &= (d/d\theta) P_n(\cos \theta) \\ &= -P_n'(\cos \theta) \sin \theta \end{aligned}$$

であり、第1種 n 次の球 Bessel 関数を j_n 、第1種 n 次の球 Hankel 関数を h_n と表わすとき、

$$\psi_n(y) = y j_n(y), \quad \zeta_n(y) = y h_n(y)$$

である。粒径パラメータを $x (=2\pi a/\lambda)$ とし、相対屈折率を $m (=n/n_0)$ とすると、

$$a_n = \frac{\psi_n(x) \{\psi_n'(mx)/\psi_n(mx)\} - m\psi_n'(x)}{\zeta_n(x) \{\psi_n'(mx)/\psi_n(mx)\} - m\zeta_n'(x)} \quad (7)$$

$$b_n = \frac{m\psi_n(x) \{\psi_n'(mx)/\psi_n(mx)\} - \psi_n'(x)}{m\zeta_n(x) \{\psi_n'(mx)/\psi_n(mx)\} - \zeta_n'(x)} \quad (8)$$

である。

通常の散乱問題で扱われるミ-の散乱式はファ-フィールドの条件から、 $\zeta_n(kR)$ を漸近展開し、電気ベクトルの E_R 成分の寄与を無視した形の式であるが、ここでは近似を行わずに厳密な散乱振幅を考える。 $\zeta_n(kR)$ の漸近展開の関数形を考えて、つぎのような関数を導入する。

$$\begin{aligned} \xi_n(kR) &= i^{n+1} \zeta_n(kR) \exp(-ikR) \\ \xi_n^*(kR) &= i^n \zeta_n'(kR) \exp(-ikR) \end{aligned} \quad (9)$$

$\zeta_n(y)$ の微分関係式から、

$$\xi_n^*(kR) = \xi_{n-1}(kR) + (in/kR)\xi_n(kR) \quad (10)$$

の関係が成り立つ。(9)式の関数を用いて(4)~(6)式を書き改めると、

$$E_R = \{\cos \phi / (kR)^2\} \exp(ikR) S_0(R, \theta) \sin \theta \quad (4')$$

$$E_\theta = (i \cos \phi / kR) \exp(ikR) S_2(R, \theta) \quad (5')$$

$$E_\phi = (-i \sin \phi / kR) \exp(ikR) S_1(R, \theta) \quad (6')$$

となる。ここに関数 S_0, S_1, S_2 は次式で定義される。

$$S_0(R, \theta) = \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \xi_n(kR) a_n \pi_n(\cos \theta) \quad (11)$$

$$\begin{aligned} S_2(R, \theta) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{ \xi_n^*(kR) a_n \tau_n(\cos \theta) \\ &\quad + \xi_n(kR) b_n \pi_n(\cos \theta) \} \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} S_1(R, \theta) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{ \xi_n^*(kR) a_n \pi_n(\cos \theta) \\ &\quad + \xi_n(kR) b_n \tau_n(\cos \theta) \} \end{aligned} \quad (13)$$

干渉は同じ偏光成分間で生ずるため、入射波と干渉する散乱波の電気ベクトル成分 E_s は(4')~(6')式を用いて

$$\begin{aligned} E_s &= (E_R \sin \theta + E_\theta \cos \theta) \cos \phi - E_\phi \sin \phi \\ &= \exp(ikR) [\{ (\sin \theta / kR)^2 S_0(R, \theta) \\ &\quad + (i \cos \theta / kR) S_2(R, \theta) \} \cos^2 \phi \\ &\quad + (i/kR) S_1(R, \theta) \sin^2 \phi] \end{aligned} \quad (14)$$

と書ける。P点における入射振幅は $\exp(ikZ)$ であるから、合成波の振幅 E は、

$$E = \exp(ikZ) + E_s \quad (15)$$

となる。いま入射波が非偏光であるとする、P点で記録される合成波は、(15)式をいろいろな ϕ についてアンサンブル平均したものとなる。 ϕ についてのアンサンブル平均は、 $\langle \cos^2 \phi \rangle = \langle \sin^2 \phi \rangle = 1/2$ となるので、合成波 $\langle E \rangle$ は(14), (15)式より、

$$\begin{aligned} \langle E \rangle &= \exp(ikZ) [1 + (i/2kR) \exp\{ik(R-Z)\} \\ &\quad \times \{ S_2(R, \theta) \cos \theta + S_1(R, \theta) \} \end{aligned}$$

$$-i(\sin^2 \theta / kR) S_0(R, \theta)] \quad (16)$$

となる。したがってP点における光強度 I_p は、

$$I_p = | 1 + (i/2kR) \exp\{ik(R-Z)\} S(R, \theta) |^2 \quad (17)$$

$$\begin{aligned} S(R, \theta) &= S_2(R, \theta) \cos \theta + S_1(R, \theta) \\ &\quad - i(\sin^2 \theta / kR) S_0(R, \theta) \end{aligned} \quad (18)$$

の形になる。ここで $S(R, \theta)$ はニアフィールド領域における散乱振幅関数である。

3.2 散乱振幅関数の数値計算

(17)式のホログラム干渉縞を求める場合に重要な項は(18)式の散乱振幅関数 $S(R, \theta)$ の項である。 $S(R, \theta)$ のうち $S_1(R, \theta), S_2(R, \theta)$ については kR に関する漸近展開を行なった関数形に対して種々の数値計算が行なわれている^{12,13)}。とくに相対屈折率 m が複素数の場合に誤差を生じやすい、係数 a_n, b_n 中の比の関数

$$\psi_n'(mx) / \psi_n(mx) \quad (19)$$

の計算方法について工夫されているが、ここでは Grehan ら¹²⁾が用いている Lentz の連分数法¹⁴⁾を使って(19)式の関数値を計算することにし、係数中のその他の関数は漸化式に従って n の増加する順に計算する順方向漸化法により計算した。

この方法によって関数値 ($|S_1(R, \theta)|^2 + |S_2(R, \theta)|^2$)/2 を計算し、文献¹²⁾の計算結果と比較した例を **Table 1** に示している。粒子の相対屈折率は $m=1.33$ としている。表中 F は前方散乱 $\theta=0$ を表わし、B は後方散乱 $\theta=180^\circ$ を示している。**Table 1** の(a)は文献値との直接比較を行なうために、(9)式において kR について漸近展開を行なった場合の計算値で、 kR に対する依存性

Table 1 Comparisons of calculated values of Ref. 12) or (a) for the far-field (asymptotic) amplitude function with (b) for the nearfield amplitude function.

x	Ref. 12) asymptotic expansion for kR	(a)	(b) $kR=300$
1	F 5.26(-2)	5.26(-2)	5.26(-2)
	B 2.12(-2)	2.12(-2)	2.12(-2)
5	F 5.86(+2)	5.86(+2)	5.78(+2)
	B 2.16	2.17	2.25
20	F 4.8(+4)	4.80(+4)	4.38(+4)
	B 2.4(+2)	2.40(+2)	2.20(+2)
50	F 1.54(+6)	1.54(+6)	3.81(+5)
	B 2.55(+2)	2.54(+2)	3.76(+2)
100	F 2.76(+7)	2.71(+7)	6.04(+5)
	B 4.24(+8)	4.21(+8)	3.82(+5)

F: forward ($\theta=0$), B: backward ($\theta=180^\circ$). Values in parentheses express the powers of 10.

はない。Table 1 の(a)の前方散乱の計算値は $x=50$ まで文献¹²⁾の値と一致しており、本研究で用いた計算アルゴリズムが十分な精度をもつことがわかる。この計算アルゴリズムを用いて、 kR に対する依存性が扱えるニアフィールドでの散乱関数の値を計算した例が Table 1 の(b)である。ここでは数 μm の粒子による、ファーフィールド数が0.5以上のホログラムを考えることにして、 $a/\lambda=5$, $R \sim Z=0.5 \times (2a)^2/\lambda$ の値に対応する $kR=$

300 場合を計算した。Table 1 の(b)の計算値は粒径パラメータ x の値が大きくなるにつれ(a)の値からずれてくる。とくに kR の値が小さいほどそのずれは大きくなることから、ニアフィールドにおける散乱関数の計算には上述した距離関数を含む散乱振幅関数の扱いが重要であることがわかる。

上記の計算法により(17)式のホログラム干渉縞の強度分布を求め図示した例が Fig. 3 である。ここでは球形粒子としてポリスチレン微小球を考え、相対屈折率を1.58として計算している。図中の実線はミー理論から求めた(17)式の値で、破線はフレネル回折理論に基づく(3)式の計算値である。 $N=1$ の場合には両者の差が大きく、図が煩雑になるため(3)式の計算値は示していない。粒径と波長との比 a/λ およびファーフィールド数 N の値により二つの式の一致の具合は異なっている。 $a/\lambda=5$ かつ $N=5$, $a/\lambda=5$ かつ $N=10$ の場合にはよい一致が見られる。この数値計算条件を、粒径と波長との比 a/λ を縦軸にファーフィールド数 N を横軸として図示し、フレネル回折理論の適用範囲をまとめた図が Fig. 4 である。

3.3 フレネル近似の適用範囲の判定

回折理論から得られたホログラム干渉縞の強度と縞間隔がミー理論の結果と一致する程度でフレネル回折理論の適用範囲を判定した。具体的にはフレネル回折理論で

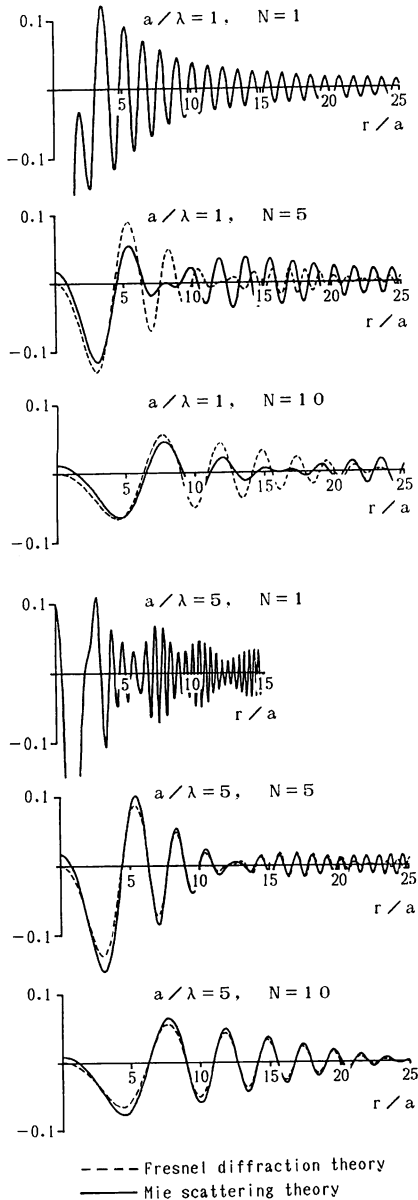


Fig. 3 Comparison of holographic images of a transparent sphere of relative refractive index $m=1.58$.

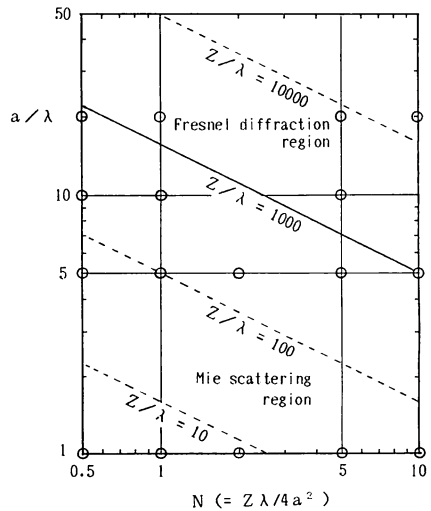


Fig. 4 Limits for possible application of the Fresnel diffraction theory, classified by the far-field number and the ratio of particle's radius to the wavelength of light. Symbols o indicate calculating conditions of holographic images.

示される干涉縞の強度曲線 ($\log I$) の包絡線の第2ゼロ点 ($2\pi ar/Z\lambda \leq 7.0156$) までの領域において, 干涉縞の縞間隔が一致することと, 両者の強度値の差が2%以下であることを条件とした. その結果, Fig. 4 で粒子のホログラム記録距離 Z が入射光の波長の1,000倍以上である領域が適用範囲となった. ここで Z/λ は,

$$Z/\lambda = 4N \cdot (a/\lambda)^2 \quad (20)$$

であるので粒径と波長の比 a/λ で示した適用範囲は \sqrt{N} に反比例して変化することになる.

4. ま と め

ニアフィールド領域における微小球形粒子のホログラム干涉縞を厳密に求めることができるミー理論を用いて, ミー理論よりも数学的取扱いが簡単なフレネルホログラムの表式の適用範囲を評価した. 従来, ミー散乱振幅関数はファーフィールド領域での適用を考え, 観測点までの距離の関数は漸近展開して用いられていたが, ニアフィールド領域における関数値が計算できるように, 漸近展開を行わず関数を厳密に取り扱った計算式を求めた. この計算式を用いて, ホログラム干涉縞の表式を求め, フレネルホログラムの表式と比較した. この結果, 粒子のホログラム記録距離が波長の1,000倍以上であれば, 両者の干涉縞の縞間隔や振幅がよく対応することがわかった. この条件は波長を $0.63 \mu\text{m}$ とすると, 数 μm の透明球粒子をファーフィールド数の距離1~5で計測する場合には, フレネル回折からのずれを考慮する必要があることを示している.

文 献

- 1) B. J. Thompson: Holographic particle sizing techniques. *J. Phys. E*, **7** (1974) 781.
- 2) J. D. Trolinger: Particle field holography. *Opt. Eng.*, **14** (1975) 383.
- 3) B. J. Thompson and P. Dunn: Advances in far-field holography-theory and applications. *Proc. Soc. Photo-Opt. Instrum. Eng.*, **215** (1980) 102.
- 4) B. J. Thompson: A new method of measuring particle size by diffraction techniques. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **4**, Suppl. 1 (1965) 302.
- 5) T. Asakura, Y. Matsushita and H. Mishina: In-line Fraunhofer hologram field under illumination of partially coherent light. *Optik*, **47** (1977) 185.
- 6) R. A. Belz and F. M. Shofner: Characteristics and measurements of an aperture-limited in-line hologram image. *Appl. Opt.*, **11** (1972) 2215.
- 7) G. A. Tyler and B. J. Thompson: Fraunhofer holography applied to particle size analysis: a reassessment. *Opt. Acta*, **23** (1976) 685.
- 8) 石川宗晴, 村上昭年: レーザーによる噴霧流の画像計測—In-line Fraunhofer Holographyの応用—. *日本航空宇宙学会誌*, **30** (1982) 389.
- 9) 石川宗晴, 村上昭年: 干涉縞制限ホログラムの再生粒子像特性. *光学*, **13** (1984) 32.
- 10) A. R. Jones: Error contour charts relevant to particle sizing by forward-scattered lobe methods. *J. Phys. D*, **10** (1977) L163.
- 11) H. C. Van de Hulst: *Light Scattering by Small Particles* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1957) p. 114.
- 12) G. Grehan and G. Gouesbet: Mie theory calculations: new progress, with emphasis on particle sizing. *Appl. Opt.*, **18** (1979) 3489.
- 13) N. C. Wickramasinghe: *Light Scattering Functions for Small Particles with Applications in Astronomy* (Adam Hilger, London, 1972).
- 14) W. J. Lentz: Generating Bessel functions in Mie scattering calculations using continued fractions. *Appl. Opt.*, **15** (1976) 668.