

# 動的散乱光の多重散乱特性と高濃度懸濁液の微粒子計測

石 井 勝 弘

## Dynamic Properties of the Multiple Scattered Light and Characterization for Dense Scattering Media

Katsuhiko ISHII

Dynamic Light Scattering (DLS) techniques have been widely used to characterize particles and molecules suspended in liquids. The measurements are restricted to extremely diluted media since the single scattering theory is used to explain them. Recently, DLS techniques have been extended to analyze the scattering phenomena produced from dense media. In this article, the studies on dynamic properties of light which undergoes multiple scattering from Brownian particles in a dense medium are reviewed from the viewpoint of characterizing particles. The dynamic properties of the multiply scattered light are explained by the theory of diffusing wave spectroscopy which was proposed for the purpose of the particle sizing in a dense medium. The techniques of cross-correlation DLS and of low-coherence DLS are described as the examples of measuring temporal correlation function of a single scattering component in dense media.

**Key words:** dynamic light scattering, diffusing wave spectroscopy, cross-correlation, low-coherence interferometry, multiple scattering

屈折率が時空間でゆらいでいる媒質に光を入射させると、時空間でゆらぐ散乱光を生じる。散乱光ゆらぎの時間相関から散乱媒質の動特性を測定するのが動的散乱法 (DLS) であり<sup>1-3)</sup>、高分子溶液、懸濁液、エマルジョン、ミセル、ゲル、生体高分子、顔料、金属コロイドなど幅広い媒質の粒質測定に用いられている。溶液中をブラウン運動する粒子の場合、散乱光ゆらぎは粒子の拡散定数に関係しており、DLS を用いて粒子径や粒子径分布測定される。DLS では、光は散乱体に一度だけ散乱される単散乱現象を基礎としているため、その適用は極端に希薄な媒質に限られてきた。

DLS の理論を多重散乱光に拡張し、高濃度懸濁液の粒子径計測を行うために提案されたのが、拡散波分光法である<sup>4-6)</sup>。多重散乱光の動特性に関する研究は、光の弱局在化現象の研究に端を発して、1980 年代後半に始まる<sup>6-9)</sup>。拡散波分光法は、十分に多数回散乱された拡散光の時間相

関を解析する手法である。高濃度媒質内における光の伝播は、光子拡散近似のもとで理論的解析が行われる。しかしながら、この手法では、媒質の平均的な粒子径が計測されるのみで、粒子径分布の計測はできない。なお、多重散乱光の時間ゆらぎは、すべての散乱点の屈折率ゆらぎの影響の総和であり、単散乱光のそれより非常に速いので、光の波長より短いスケールの拡散現象の測定ができる。

一方、高濃度媒質からの多重散乱光のうち、単散乱光成分のみの相関関数を測定する方法が、相互相関 DLS である<sup>10,11)</sup>。この方法は、2つの散乱光の相互相関を計測することで、従来の DLS の時間相関関数と同等の相関関数が計測可能である。光学系の配置から、一光束相互相関 DLS<sup>12,13)</sup>、二波長 DLS<sup>14-16)</sup>、三次元 DLS<sup>17,18)</sup> に分類される。また、低コヒーレンス干渉計を用いて、多重散乱光から単散乱光成分の時間相関を計測する低コヒーレンス DLS もある<sup>19,20)</sup>。この方法は、時間相関関数の光路長分

解測定が可能であり、多重散乱現象における低次散乱領域の解析に有用である<sup>21,22)</sup>。

本稿では、第1章で単散乱光の動特性と粒子径計測への応用について概説する。第2章では、拡散波分光理論をもとに多重散乱光の動特性と粒子径計測への応用について概説する。第3章では、相互相関DLSの原理を、二波長DLSを用いて説明し、第4章では、低コヒーレンスDLSの光路長分解測定の原理と単散乱光の測定について説明する。

## 1. 単散乱光の動特性と粒子径計測

媒質にレーザーを照射すると、媒質内の屈折率の空間分布によって散乱光を生じる。屈折率分布に時間的変動があると、散乱光も時間的に変動する。DLSは、散乱光ゆらぎの時間相関関数から散乱媒質の動特性を測定する手法である。図1にDLSの光学系の配置を示す。媒質内の位置  $r$  での入射光の電場を

$$E_i = E_0 \exp(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t) \quad (1)$$

と表す。ここで、 $\mathbf{k}_i$  と  $\omega$  はそれぞれ入射光の波数ベクトルと角周波数である。散乱体内部において誘電率ゆらぎ  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t)^*$  が存在すると、入射光は散乱される。このとき、 $\mathbf{k}_s$  方向の検出位置  $\mathbf{R}$  での散乱光の電場は、

$$E_s(\mathbf{q}, t) = E_s \int_V \delta\epsilon(\mathbf{r}, t) \exp(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t) d\mathbf{r} \quad (2)$$

となる。ここで、 $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$  は散乱ベクトル、 $V$  は散乱体積であり散乱光の測定領域を示す。式(2)は、散乱光の電場が、誘電率ゆらぎの空間フーリエ変換  $\delta\epsilon(\mathbf{q}, t) = \int_V \delta\epsilon(\mathbf{r}, t) \exp(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}$  に比例することを示す。したがって、散乱光振幅の時間自己相関関数は、

$$g^1(\tau) \equiv \langle E_s^*(0) E_s(\tau) \rangle / \langle E_s^*(0) E_s(0) \rangle \\ = \langle \delta\epsilon(\mathbf{q}, 0) \delta\epsilon(\mathbf{q}, \tau) \rangle \exp(-\omega\tau) \quad (3)$$

となる。すなわち、散乱光の時間相関は誘電率ゆらぎの空間フーリエ成分の時間相関と等しく、時間相関から媒質の動特性の測定が可能である。

散乱体が分子や粒子の場合、誘電率ゆらぎは分極率に置き換えられ、誘電率の時間ゆらぎは粒子の移動に対応する。分極率ゆらぎの空間フーリエ変換  $\delta\alpha(\mathbf{q}, t)$  は  $\delta\alpha \exp[\mathbf{i}\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}(t)]$  となり、散乱光振幅の時間自己相関関数は、

$$g^1(\tau) = \langle \exp[\mathbf{i}\mathbf{q} \cdot \Delta\mathbf{r}(\tau)] \rangle \quad (4)$$

となる。ここで、 $\Delta\mathbf{r}(\tau) = \mathbf{r}(\tau) - \mathbf{r}(0)$  は、時間  $\tau$  の間の粒子変位である。また、光の振動数の位相項は省略した。すなわち、粒子変位のフーリエ変換が散乱光振幅の時間自己相関関数となる。ブラウン運動している粒子の変位確率

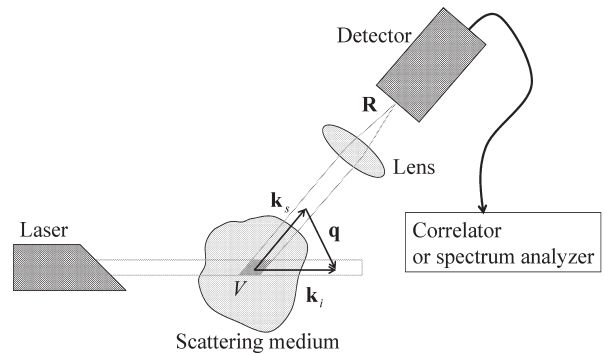


図1 動的散乱法の概略図。

は  $(4\pi Dt)^{-3/2} \exp(-r^2/4Dt)$  で表されるので、ブラウン運動粒子からの散乱光振幅の時間自己相関関数は、

$$g^1(\tau) = \exp(-Dq^2\tau) \quad (5)$$

となる。ここで、 $D$  は粒子の拡散定数である。式(5)は散乱光の時間自己相関関数の測定より、粒子の拡散定数を計測することが可能であることを示す。粒子の拡散定数にストークス・アインシュタインの関係を用いると粒子径が求められる。粒子径に分布がある場合には、時間相関関数は、各粒子径に対応した散乱光強度を重みとした相関関数の積分で表されるので、逆ラプラス変換を行うことにより、粒子径分布を求めることも可能である。DLSでは、散乱ベクトルの大きさは入射光の波数と同程度であるので、波長スケールで粒子の拡散運動をみていることに等しく、それより短いスケールの運動を計測することはできない。

散乱光の時間相関関数の計測では、直接、散乱光振幅の時間相関関数を測定することはできず、散乱光強度の時間相関関数を計測することになる。散乱光の強度と振幅の時間相関関数の間には、散乱振幅が複素ガウスランダム過程に従うと仮定すると、シーゲルトの定理より次式の関係がある。

$$g^2(\tau) \equiv \langle I(0)I(\tau) \rangle / \langle I^2(0) \rangle = 1 + |g^1(\tau)|^2 \quad (6)$$

散乱光が不均一な場合や非エルゴード的な場合に対して、強度相関と振幅相関の一般的な関係についても研究が行われている<sup>23)</sup>。また、散乱光と入射光の一部を干渉させるヘテロダイン計測を用いて、散乱光振幅の時間自己相関関数の実部を直接計測することも可能である。

## 2. 多重散乱光の動特性—拡散波分光

単散乱光を仮定するDLSでは、高濃度媒質からの多重散乱光には適用することはできず、多重散乱光の動特性を

\* 入射光と散乱光が偏光されている場合は、誘電率ゆらぎテンソルの入射・散乱偏光方向成分となる。

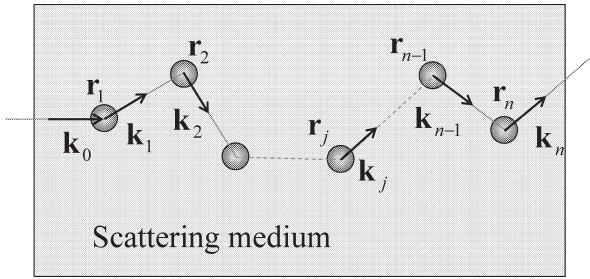


図2 多重散乱光の散乱過程.

直接解析する必要がある。本章では、文献4)をもとに、独立な粒子から発生する多重散乱光の時間自己相関関数について述べる。粒子間相互作用が無視できないほど非常に濃厚な媒質<sup>5,24)</sup>や、液晶などの非等方性媒質<sup>25)</sup>からの多重散乱現象についても理論解析が行われている。

図2は、 $n$ 回散乱光の伝播光路の例を示す。各粒子の位置と各散乱光の波数ベクトルは、それぞれ $r_1, \dots, r_n$ と $k_1, \dots, k_n$ で表す。各散乱事象での散乱ベクトルは、 $q_j = k_j - k_{j-1}$ である。式(2)より、図2に示された $n$ 回散乱光振幅の自己相関関数は、 $\langle \exp[i \sum_{j=1}^n q_j \cdot \Delta r_j(\tau)] \rangle$ となる。異なる光路を伝播した散乱光は無相関であると考えられるので、全散乱光振幅の自己相関関数は、すべての光路を伝播した散乱光振幅の相関関数のインコヒーレント和であり、次式で与えられる。

$$g^1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} P(n) \langle \prod_{j=1}^n \exp[iq_j \cdot \Delta r_j(\tau)] \rangle \quad (7)$$

ここで、 $P(n)$ は、全散乱光強度に対する $n$ 回散乱光強度の割合であり、外側の $\langle \dots \rangle$ は散乱ベクトルに関する平均を表す。式(7)について、散乱ベクトルと時間に関する平均操作を実行すると、散乱光振幅の自己相関関数は、

$$g^1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} P(n) \exp[-2k_0^2(l/l^*) \langle \Delta r^2(\tau) \rangle / 6] n \quad (8)$$

となる。ここで、 $l$ と $l^*$ はそれぞれ、平均自由行程と輸送平均自由行程である。ブラウン運動する粒子の場合、 $D$ を粒子の拡散定数とすると変位の二乗平均は $\langle \Delta r^2(\tau) \rangle = 6D\tau$ である。

式(8)から相関関数を具体的に求めるには、各散乱次数の散乱光強度の割合、すなわち散乱回数分布 $P(n)$ を決定する必要がある。数値解析を行って $P(n)$ を算出することは可能であるが<sup>26,27)</sup>、解析解を得ることは困難である。そこで、離散的な散乱回数 $n$ を連続的な光路長 $s = nl$ に近似し、式(8)の和を積分に置き換える。散乱光振幅の自己相関関数は、

$$g^1(\tau) = \int_0^{\infty} P(s) \exp[-2k_0^2 D(s/l^*) \tau] \quad (9)$$

と近似される。式(9)において、積分の下限は散乱光の最短の光路長とすべきであるが、解析の容易さから、近似の精度は悪いが、一般的に0が用いられる。多重散乱光の光路長分布を求める方法は、一般的には光子拡散近似が用いられるが、電信方程式<sup>28,29)</sup>を用いる方法もある。また、多重散乱光の時間相関関数は、入射光に関しては平面波入射か点入射か、散乱光に関しては透過光か後方散乱光かで変化する。ここでは、媒質に光を点入射した場合の光拡散近似より算出される、後方散乱光の時間相関関数を次式に示す。

$$g_1(\tau) = \exp(-\gamma \sqrt{6k_0^2 D \tau}) \quad (10)$$

ここで、 $\gamma$ は、媒質の平均自由行程、輸送平均自由行程、および散乱光の偏光方向に依存する定数である。

式(10)で示すように、多重散乱光の時間相関関数から粒子径計測が可能である。多重散乱光の時間相関関数では、散乱ベクトルに関して平均されているので、散乱角依存性はない。ただし、後方散乱光の場合、光弱局在の影響による散乱角依存性が存在する<sup>27,30)</sup>。粒子径に分布がある場合、粒子径分布の影響も平均されており、平均的な粒子径のみが求まる。拡散波分光による粒子径計測においては、拡散定数以外にも平均自由行程など粒子径に依存する項が存在するため、拡散波分光法のみで粒子径計測を行うことは困難である。そこで、中性子散乱法(SANS)と合わせた計測が行われている<sup>31)</sup>。多重散乱光の相関関数は、すべての散乱粒子の動きの影響を受けるので、従来のDLSよりも非常に短い時間スケールの拡散運動を調べることができる。

### 3. 相互相関DLS—二波長DLSを例にして

拡散波分光法は、多重散乱光の時間相関関数から粒子径計測が可能であるが、単散乱光の時間相関関数とまったく同じ情報が得られるわけではない。相互相関DLSは、2つの散乱光の時間相互相関関数を測定することで、多重散乱光の影響を抑え、高濃度媒質からの多重散乱光のうちの単散乱光成分の相関関数を測定する。この方法には、使用する光源光学系の配置から二波長DLS、三次元DLS、一光束相互相関DLSに分類される。Philliesが提案した相互相関DLSは、対向する2つの光束を入射し、左右90°方向の2つの散乱光強度の相互相関を測定した<sup>10,11)</sup>。二波長DLSは、異なる波長の入射光を用いることで90°以外の散乱角で相関関数を計測することに成功した<sup>14)</sup>。三次元DLSは、2つの入射方向と検出方向を三次元的に配置することで、光学系の調整を簡略化し波長の制限をなくし

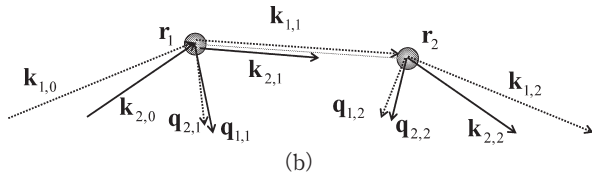
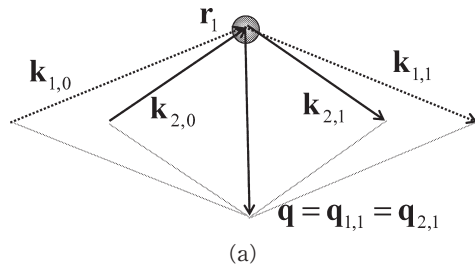


図3 二波長DLSにおける (a) 単散乱光と (b) 2回散乱光の散乱過程。

た<sup>18)</sup>。一光束相互相関DLSは、1つの入射光のもとで散乱角がわずかに異なる2つの散乱光の相互相関を計測する<sup>13)</sup>。これらの方法では、単散乱光の相関関数が測定できる原理は基本的には同じであるので、二波長DLSをもとに相互相関DLSについて説明する。

2つの散乱光強度  $I_1$ ,  $I_2$  の時間相互相関関数は、

$$g_{I_2}^2(\tau) \equiv \langle I_1(0) I_2(\tau) \rangle / \langle I_1(0) \rangle \langle I_2(0) \rangle \\ = 1 + | \langle E_1^*(0) E_2(\tau) \rangle |^2 / \langle I_1(0) \rangle \langle I_2(0) \rangle \quad (11)$$

で定義される。式(11)は、2つの散乱光振幅の相互相関関数を評価することで、強度相関関数を解析できることを示す。第2章で述べたように、異なる光路を伝播した散乱光は無相関であるので、同じ光路を伝播した散乱光のみに相関を考えればよい。図3(a)は、2つの光の単散乱過程を示す。入射光1と2は、入射方向と周波数がわずかに異なる。それぞれの波長の散乱光は、分離され、別々の検出器で検出される。このとき2つの散乱光振幅の時間相関関数は、 $\langle \exp[-iq_1 \cdot r(0)] \exp[iq_2 \cdot r(\tau)] \rangle$  である。2つの散乱ベクトルが異なる場合、2つの散乱光は独立であり無相関である。入射方向と検出方向を図3(a)のように調整し、2つの散乱ベクトルを等しくした場合、散乱光振幅の相互相関関数は  $\langle \exp[iq \cdot \Delta r(\tau)] \rangle$  となり、第2章で述べたDLSの相関関数とまったく同じになる。次に、図3(b)を参照して2回散乱光について考える。2回散乱光は、図3(a)に示す散乱光と入射方向と検出方向が等しいため、単散乱光と同時に検出される。これらの散乱光振幅の相互相関関数は、 $\langle \exp[-iq_{1,1} \cdot r_1(0)] \exp[iq_{1,2} \cdot r_2(\tau)] \exp[iq_{2,1} \cdot r_1(\tau)] \exp[iq_{2,2} \cdot r_2(\tau)] \rangle$  となる。このとき、4つの散乱ベクトルが等しくなることはなく、すべての散乱光は独立で

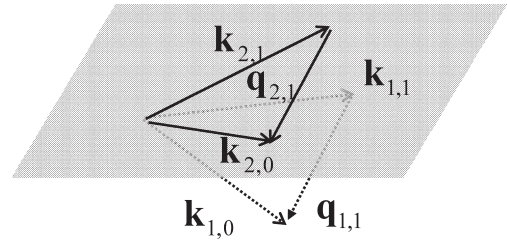


図4 三次元DLSの入射光と散乱光の波数ベクトルと散乱ベクトル。

あり無相関である。同様に、三次以上の多重散乱光の同一光路を伝播し散乱光も無相関となる。したがって、図3に示す入射方向と検出方向をもつ散乱光の強度相互相関関数は、

$$g_{I_2}^2(\tau) \equiv \langle I_1(0) I_2(\tau) \rangle / \langle I_1(0) \rangle \langle I_2(0) \rangle \\ = 1 + A | \langle \exp[iq \cdot \Delta r(\tau)] \rangle |^2 / \langle I_1(0) \rangle \langle I_2(0) \rangle \quad (12)$$

となる。ここで、 $A$ は、多重散乱光のうちの単散乱光成分の割合に関係した定数である。式(12)は、相互相関DLSでは、高濃度媒質からの多重散乱現象を用いているにもかかわらず、単散乱光を用いたDLSと同じ情報を得ることが可能であることを示す。しかし、多重散乱光の割合が増加すると、定数 $A$ は減少し、信号の $S/N$ 比が悪くなる。光の透過率が0.5%の懸濁液に対する粒子径測定<sup>15)</sup>や、濃度46.5%のPMMA(ポリメチルメタクリレート)を用いたブラウン運動の測定が行われている<sup>32)</sup>。この方法では、入射方向と検出方向の制限から、すべての散乱方向に対する測定はできず、散乱角は、光源の波長にもよるが、約 $20^\circ$ から $140^\circ$ の範囲に限られる。Ar<sup>+</sup>レーザー光源の2つの波長成分を利用する場合には、入射光どうしの相関に注意が必要である<sup>15)</sup>。

三次元DLSは同じ波長の入射光を用い、図4に示すような入射方向と検出方向の配置をとる。2つの入射光に対する散乱光を分離せずに検出しても、 $k_{1,0}$ 方向入射の $k_{1,1}$ 方向への単散乱光と $k_{2,0}$ 方向入射の $k_{2,1}$ 方向への単散乱光以外は無相関であるので、単散乱光の相関関数が得られる。ただし、二波長DLSに比べて $S/N$ 比は低下する。しかし、三次元DLSでは、光学系の配置が容易であることと波長を自由に選択できるなどの利点がある。

#### 4. 低コヒーレンスDLS

低コヒーレンス干渉計は、レーザーのかわりにスーパーluminescentダイオードに代表される低コヒーレンス光源を用いた干渉計である。参照光と信号光の光路長差が、光源の可干渉距離より短い場合のみ干渉信号を生じる。した

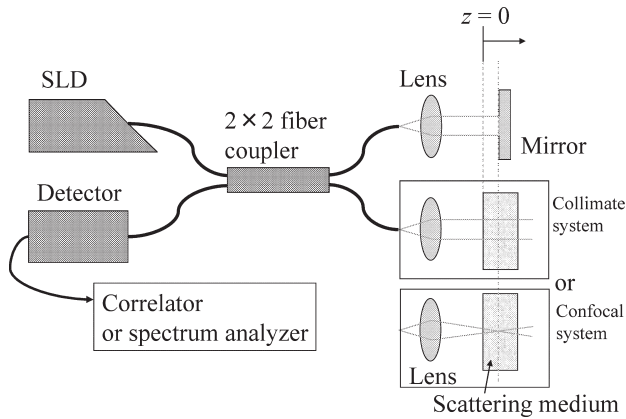


図5 低コヒーレンス DLS の概略図.

がって、干渉信号を測定することで、参照光と等しい光路長をもつ信号光のみの検出が可能となる。すなわち、光路長分解測定が可能となる。さらに、光路長を限定することで、単散乱光を抽出できる効果もある。低コヒーレンス干渉計は、OCTとして生体などの断層像測定に利用されている<sup>33)</sup>。

図5は、光ファイバマイケルソン干渉計を用いた低コヒーレンス DLS の測定系を示す。マッハ・ツェンダー干渉計を用いて、散乱角を変化させることも可能である<sup>34)</sup>。また、散乱光のスペクトルを直接測定するフーリエ領域低コヒーレンス干渉計<sup>35)</sup>や、極短パルス光を用いる方法<sup>36)</sup>も提案されている。参照ミラーの位置を  $z=0$  に置いたとき、散乱媒質表面からの反射光と参照光の光路差が0となるようにする。参照ミラーを  $z$  の位置に移動したとき、検出器で検出される強度は次式で与えられる。

$$I_d(t) = I_r + I_s(t) + 2\text{Re}[E_r^* E_s(z, t)] \quad (13)$$

ここで、 $I_r$  と  $I_s(t)$  はそれぞれ参照光強度と散乱光強度であり、 $E_r$  と  $E_s(z, t)$  はそれぞれ参照光と光路長  $z$  だけ伝播した散乱光の複素振幅である。光源のコヒーレンス長は無限に狭く、参照光の強度と複素振幅は時間的に変動しないと仮定した。コヒーレンス長が有限な場合には、式(13)の3項目の散乱光は、 $z$  を中心として伝播する光路長が光源のコヒーレンス長幅以内の散乱光が検出される。一方、レーザー光の場合には、コヒーレンス長が長いので、ほぼすべての散乱光が検出される。検出光強度の時間自己相関関数は式(13)を用いて、

$$\begin{aligned} \langle I_d(0) I_d(\tau) \rangle &= I_r^2 + 2I_r I_s + \langle I_s(0) I_s(\tau) \rangle \\ &\quad + 2I_r \text{Re}[\langle E_s(z, 0) E_s(z, \tau) \rangle] \end{aligned} \quad (14)$$

となる。ここで、 $I_s = \langle I_s(t) \rangle$  は、散乱光の平均強度を示す。

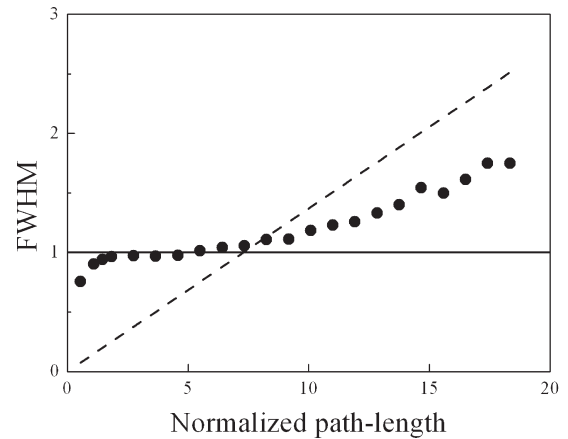


図6 多重散乱光の振幅パワースペクトルの光路長依存性.

式(14)の導出で、散乱光複素振幅の平均  $\langle E_s(z, t) \rangle$  が0であることを用いた。3項目は散乱光強度の時間相関関数であり、DLSと拡散波分光法で測定されるものと同じである。4項目は、光路長  $z$  を伝播した散乱光の振幅時間相関関数である。したがって、4項目のみを取り出すことによって、散乱光の振幅時間相関関数の光路長分解測定が可能となる。4項目を取り出すには、参照光を周波数変調する方法<sup>19)</sup>や、参照ミラーを  $z < 0$  の位置に置いたときの時間相関関数を減算する方法<sup>37)</sup>などがある。低コヒーレンス DLS は、ヘテロダイン検出を行っているので、散乱光強度ではなく振幅の相関関数を直接測定可能である。参照光を周波数変調することで  $S/N$  比も向上する利点がある。

図6は、筆者らがこの方法を用いて、散乱光の振幅パワースペクトルの光路長分解測定を行った結果である。散乱光振幅のパワースペクトルは、時間相関関数のフーリエ変換である。散乱媒質は、粒子径 450 nm、体積濃度 10% のポリスチレンラテックス懸濁液を用いた。横軸は散乱光の光路長であり、平均自由行程で規格化した。縦軸は、スペクトルの半値半幅であり、単散乱光のそれで規格化した。実線は単散乱光のスペクトル幅、破線は、式(9)より計算される光路長  $s$  の光路を伝播した散乱光のスペクトル幅を示す。図6より光路長が平均自由行程の数倍程度の光路長を伝播した散乱光のスペクトル幅は、単散乱光のスペクトル幅と一致することがわかる。したがって、散乱光の光路長を適当に調整することで、高濃度散乱媒質からの多重散乱光から単散乱光成分のみを抽出し、動的散乱計測が可能である。この手法を用いて、体積濃度 10% の懸濁液に対する粒子径計測も報告されている<sup>20)</sup>。光路長が増加すると、多重散乱光の影響が顕著となり、測定されるスペクトルは単散乱理論から外れる。また、拡散波分光の理論

とも一致しない。これは、拡散波分光では、散乱光は十分に多重散乱されているという拡散近似の仮定を用いているためである。時間相関関数の光路長分解測定が可能になったことで、低次多重散乱光の動特性の理論的研究も行われており<sup>38-40)</sup>、実験的な実証が待たれる。

多重散乱光の動特性に関する研究は、1980年代後半に始まり、拡散波分光法として確立し、高濃度媒質中の粒子径計測を可能にした。その後、粒子径計測としては、多重散乱光すべてを計測する拡散波分光法から、多重散乱光から単散乱成分を抽出する相互相関DLSへ展開された。最近、低コヒーレンスDLSが提案され、より高濃度な媒質の粒子径分布計測へと発展している。また、光路長分解測定により多重散乱光の動特性の解明も進行している。

今後の進展としては、低コヒーレンス干渉計の特性を生かした散乱媒質中の動特性の三次元断層画像化や、その生体組織への応用などへ展開していくことが期待される。

本稿の執筆にあたりご助言いただいた岩井俊昭（北海道大学）、松田浄史（光産業創成大学院大学）両氏に感謝します。

## 文 献

- 1) B. J. Berne and R. Pecora: *Dynamic Light Scattering* (Dover Publications, New York, 2000).
- 2) B. Chu: *Laser Light Scattering* (Academic Press, New York, 1991).
- 3) W. I. Goldberg: "Dynamic light scattering," *Am. J. Phys.*, **67** (1999) 1152-1160.
- 4) D. J. Pine, D. A. Weitz, J. X. Zhu and E. Herbolzheimer: "Diffusing-wave spectroscopy: Dynamic light scattering in the multiple scattering limit," *J. Phys. France*, **51** (1990) 2101-2127.
- 5) F. C. MacKintosh and S. John: "Diffusing wave spectroscopy and multiple scattering of light in correlated random media," *Phys. Rev. B*, **40** (1989) 2383-2406.
- 6) D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin and E. Herbolzheimer: "Diffusing wave spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, **60** (1988) 1134-1137.
- 7) G. Maret and P. E. Wolf: "Multiple light scattering from disordered media. The effect of Brownian motions of scatterers," *Z. Phys. B*, **65** (1987) 409-413.
- 8) M. Rosenbluh, M. Hosen, I. Freund and M. Kaveh: "Time evolution of universal optical fluctuations," *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987) 2754-2757.
- 9) M. J. Stephen: "Temporal fluctuations in wave propagation in random media," *Phys. Rev. B*, **37** (1988) 1-5.
- 10) G. D. J. Phillies: "Suppression of multiple scattering effects in quasielastic light scattering by homodyne cross-correlation techniques," *J. Chem. Phys.*, **74** (1981) 260-262.
- 11) G. D. J. Phillies: "Experimental demonstration of multiple-scattering suppression in quasielastic-light-scattering spectroscopy by homodyne coincidence techniques," *Phys. Rev. A*, **24** (1981) 1939-1943.
- 12) A. J. Adorjan, J. A. Lock, T. W. Taylor, P. Tin, W. V. Meyer and A. E. Smart: "Particle sizing in strongly turbid suspensions with the one-beam cross-correlation dynamic light-scattering technique," *Appl. Opt.*, **38** (1999) 3409-3416.
- 13) J. A. Lock: "Role of multiple scattering in cross-correlated light scattering with a single laser beam," *Appl. Opt.*, **36** (1997) 7559-7570.
- 14) K. Schatzel, M. Drewel and J. Ahrens: "Suppression of multiple scattering in photon correlation spectroscopy," *J. Phys.: Condens. Matter*, **2** (1990) SA393-SA398.
- 15) P. N. Segre, W. Van Megen, P. N. Pusey, K. Schatzel and W. Peters: "Two-color dynamic light scattering," *J. Mod. Opt.*, **42** (1995) 1929-1952.
- 16) M. Drewel, J. Ahrens and U. Podschus: "Decorelation of multiple scattering for an arbitrary scattering angle," *J. Opt. Soc. Am.*, **7** (1990) 206-210.
- 17) E. Overbeck and C. Sinn: "Three-dimensional dynamic light scattering," *J. Mod. Opt.*, **46** (1999) 303-326.
- 18) K. Schatzel: "Suppression of multiple scattering by photon cross-correlation techniques," *J. Mod. Opt.*, **38** (1991) 1849-1865.
- 19) L. B. Aberle, P. Hulstede, S. Wiegand, W. Schroer and W. Staude: "Effective suppression of multiply scattered light in static and dynamic light scattering," *Appl. Opt.*, **37** (1998) 6511-6524.
- 20) D. A. Boas, K. K. Bizheva and A. M. Siegel: "Using dynamic low-coherence interferometry to image Brownian motion within highly scattering media," *Opt. Lett.*, **23** (1998) 319-321.
- 21) K. Ishii, R. Yoshida and T. Iwai: "Single-scattering spectroscopy for extremely dense colloidal suspensions by use of a low-coherence interferometer," *Opt. Lett.*, **30** (2005) 555-557.
- 22) H. Xia, K. Ishii and T. Iwai: "Hydrodynamic radius sizing of nanoparticles in dense polydisperse media using a low-coherence dynamic light scattering," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** (2005) 6261-6264.
- 23) H. Furukawa and S. Hirotsu: "Dynamic light scattering from static and dynamic fluctuations in inhomogeneous media," *J. Phys. Soc. Jpn.*, **71** (2002) 2873-2880.
- 24) S. Fraden and G. Maret: "Multiple light scattering from concentrated, interacting suspensions," *Phys. Rev. Lett.*, **65** (1990) 512-515.
- 25) H. Stark and T. C. Lubensky: "Multiple light scattering in anisotropic random media," *Phys. Rev. E*, **55** (1997) 514-533.
- 26) D. J. Durian: "Accuracy of diffusion-wave spectroscopy theories," *Phys. Rev. E*, **51** (1995) 3350-3358.
- 27) K. Ishii, T. Iwai and T. Asakura: "Angular polarization properties of dynamic light scattering under influence of enhanced backscattering," *Opt. Commun.*, **140** (1997) 99-109.
- 28) P. A. Lemieux, M. U. Vera and D. J. Durian: "Diffusing-light spectroscopies beyond the diffusion limit: The role of ballistic transport and anisotropic scattering," *Phys. Rev. E*, **57** (1998) 4498-4515.
- 29) D. J. Durian and J. Rudnick: "Photon migration at short times and distances and in cases of strong absorption," *J. Opt. Soc. Am. A*, **14** (1997) 235-245.
- 30) D. N. Qu and J. C. Dainty: "Polarization dependence of dynamic light scattering by dense disordered media," *Opt. Lett.*, **13** (1988) 1066-1068.
- 31) L. F. Rojas-Ochoa, S. Romer, F. Scheffold and P. Schurtenberger: "Diffusing wavespectroscopy and small-angle neu-

- tron scattering from concentrated colloidal suspensions,” *Phys. Rev. E*, **65** (2002) 051403.
- 32) P. N. Pusey, P. N. Segre, O. P. Behrend, S. P. Meeker and W. C. K. Poon: “Dynamics of concentrated colloidal suspensions,” *Physica A*, **235** (1997) 1-8.
- 33) 丹野直弘: “光コヒーレンス断層画像化法と生体映像への応用”, *光学*, **28** (1999) 116-125.
- 34) A. L. Petoukhova, W. Steenbergen, T. G. van Leeuwen and F. F. M. de Mul: “Effects of absorption on coherence domain path length resolved dynamic light scattering in the diffuse regime,” *Appl. Phys. Lett.*, **81** (2002) 595-597.
- 35) A. Wax, C. Yang and J. A. Izatt: “Fourier-domain low-coherence interferometry for light-scattering spectroscopy,” *Opt. Lett.*, **28** (2003) 1230-1232.
- 36) A. G. Yodh, P. D. Kaplan and D. J. Pine: “Pulsed diffusing-wave spectroscopy: High resolution through nonlinear optical gating,” *Phys. Rev. B*, **42** (1990) 4744-4747.
- 37) A. L. Petoukhova, W. Steenbergen and F. F. M. de Mul: “Path-length distribution and path-length-resolved Doppler measurements of multiply scattered photons by use of low-coherence interferometry,” *Opt. Lett.*, **26** (2001) 1492-1494.
- 38) R. Carminati, R. Elaloufi and J.-J. Greffet: “Beyond the diffusing-wave spectroscopy model for the temporal fluctuations of scattered light,” *Phys. Rev. Lett.*, **92** (2004) 213903.
- 39) A. Wax, C. Yang, R. R. Dasari and M. S. Feld: “Path-length-resolved dynamic light scattering: Modeling the transition from single to diffusive scattering,” *Appl. Opt.*, **40** (2001) 4222-4227.
- 40) S. Nakamura, K. Ishii and T. Iwai: “Numerical analysis on a path-length-resolved spectrum of dynamically scattered light,” *Technical Digest of ICO'04* (OSJ and ICO, 2004) pp. 141-142.

(2005年6月15日受理)