

# 全物質を対象とする高感度な 光干渉型化学計測計の設計と試作

吉留 俊史\* 藤田 由\*\* SARNO Brian John\*\*\* 大橋 卓矢\*\* 肥後 盛秀\*

## Design and Test Construction of Analytical Apparatus for General Measurements of All Chemical Materials Using Light Interference Phenomenon

Toshifumi YOSHIDOME, Yuki FUJITA, Brian John SARNO,  
Takuya Oohashi, and Morihide HIGO

New analytical method for general use was designed and constructed for all chemical materials using light interference phenomenon. Simulations were carried out for apparatus design based on light pass calculation. Referring to the simulation, the apparatus actually constructed. Model experiments were done and their successful results obtained showed the possibility of the method proposed as a new analytical tool.

**Keywords:** light, interference, chemical sensor, all chemical subjects

### 1. 緒言

全ての物質は固有の屈折率を持つ。屈折率を測定することで、すべての物質を測定対象とする汎用の化学計測計を開発できる。屈折率を測定する方法として光干渉計があり、非常に高感度という特徴のために微量分析の可能性も併せて期待される。光干渉現象の計測への応用としては距離計測が挙げられ、実用化されているとともに、より高性能化のための研究も多く報告されている<sup>1, 2)</sup>。しかしながら汎用の化学計測のための光干渉型計測計は市販されておらず、研究例も多くない。光干渉計においては測定信号として強度が扱いやすい。その場合、信号強度が極値にないと、その変化により濃度の増減など

が分かる。しかし信号強度が極値にあると、その状態から濃度が増加しても減少しても強度は例えば減少してしまい、濃度がどちらに変化したか分からない。また着色物質の場合にも光は吸収されるので、強度変化が屈折率変化によるものか着色によるものか判断できない。

そこで本研究では、光干渉計において位相変化を信号とすることでこれらの問題点を克服した、光干渉型化学計測計の開発を行った。位相を信号とする手法は研究としていくつか提案されているが<sup>3-5)</sup>、本研究ではそれらとは異なり位相を実時間計測する手法の確立を目指す。この手法はクロマトグラフィーなどのその場測定において有用となる。

### 2. 設計のための光路計算

#### 2.1 光干渉型化学計測計の概要

光干渉型化学計測計は試料用セルと光干渉計を兼務する構成とした(図-1)。この干渉計兼試料

---

2012年8月20日受理

\*化学生命・化学工学専攻

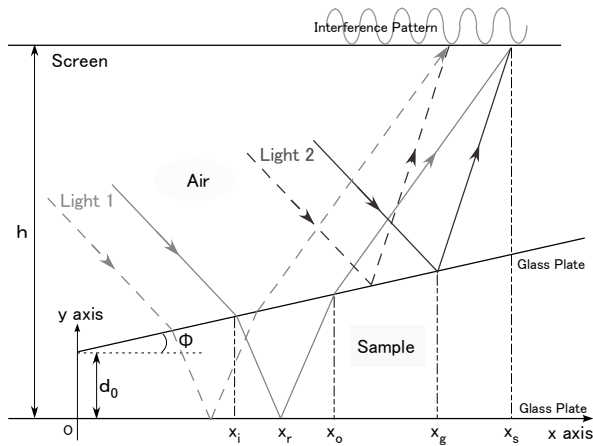
\*\* 応用科学工学科

\*\*\*博士後期課程物質生産科学専攻

セルは非平行に配置した 2 枚のガラス板からなり、それぞれのガラス板で反射した光が干渉し合ってスクリーンに空間的な干渉縞を形成する。濃度などにより試料の屈折率が変化すると、この空間的干渉縞の位相がずれるなどして、その様子に変化する。逆に、位相のずれを計ることによって試料の屈折率すなわち濃度などを知らることができる。

## 2.2 シミュレーションのための計算式の導出

シミュレーションのために計算式を導出した。図一1において、平行ガラス板上に x 軸、それに垂直に y 軸を取り、変数を図中のとおりとする。



図一1 設計のための全体図

ここで、

$h$  : 平行ガラス板からスクリーンまでの距離

$d_0$  : 傾斜ガラス板と平行ガラス板間の距離

$\Phi$  : 傾斜ガラス板と平行ガラス板のなす角度

$x_i$  : 光線 I の傾斜ガラス板への入射 x 座標

$x_r$  : 光線 I の平行ガラス板での反射 x 座標

$x_o$  : 光線 I の傾斜ガラス板への再入射 x 座標

$x_g$  : 光線 II の傾斜ガラス板での反射 x 座標

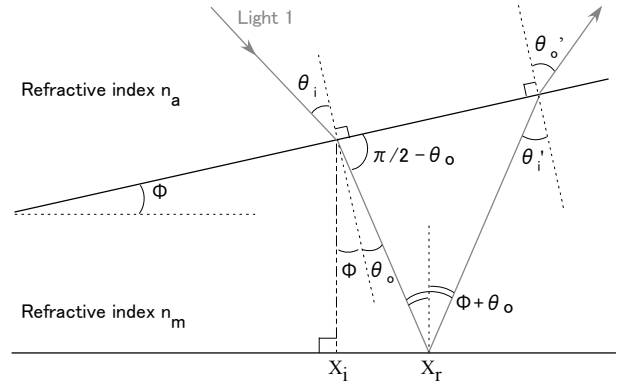
$x_s$  : スクリーン上で干渉が起こる x 座標

である。なお、各 x 座標に対応する y 座標は同じ添え字を「Y」に付して表す。

### 2.2.1 傾斜ガラス板に光線 I が入射および再入射する際の屈折角 $\theta_0, \theta'_0$

図一2において傾斜ガラス板に光線 I が入射す

る際の屈折角を  $\theta_0$ 、およびそれが平行ガラス板で反射して傾斜ガラス板に再入射する際の屈折角を  $\theta'_0$  としてそれらの導出を行う。



図一2 設計のための模式図—屈折角  $\theta_0, \theta'_0$  の導出

空気からの入射角を  $\theta_i$  とすると屈折角  $\theta_0$  はスネルの法則：

$$\frac{\sin \theta_i}{\sin \theta_0} = \frac{n_m}{n_a}$$

より、

$$\theta_0 = \sin^{-1} \left( \frac{n_a}{n_m} \sin \theta_i \right)$$

再入射角  $\theta'_i$  は  $\theta_0$  を用いて、

$$\theta'_i = \theta_0 + 2\Phi$$

再入射の際の屈折角  $\theta'_0$  は  $\theta'_i$  を用いて、スネルの法則：

$$\frac{\sin \theta'_0}{\sin \theta'_i} = \frac{n_m}{n_a}$$

より、

$$\theta'_0 = \sin^{-1} \left( \frac{n_m}{n_a} \sin \theta'_i \right)$$

### 2.2.2 光線 I の平行ガラス板での反射位置 $x_r$

図一3においてまず、平行ガラス板と傾斜ガラス板間の  $x_i$  での距離は、

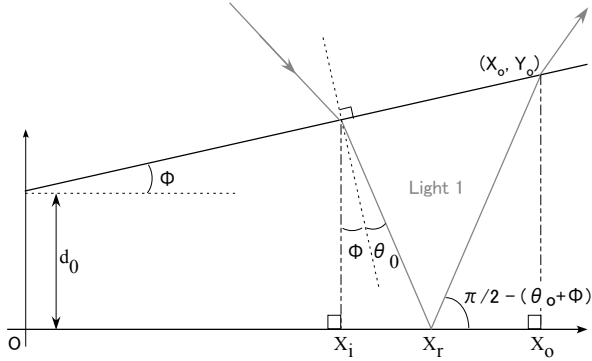
$$x_i \tan \Phi + d_0$$

次に、直線  $x_i x_r$  を一辺とする直角三角形において、

$$\frac{(X_r - X_i)}{(X_i \tan \Phi + d_0)} = \tan(\theta_o + \Phi)$$

よって、

$$X_r = X_i + (X_i \tan \Phi + d_0) \times \tan(\theta_o + \Phi) \quad (1)$$



図—3 設計のための模式図— $X_r$ 、 $X_o$ 、 $Y_o$ の導出

### 2.2.3 光線 I の傾斜ガラス板への再入射位置 $X_o$ 、 $Y_o$

図—3においてまず、傾斜ガラス板を示す直線の式は、

$$y = \tan \Phi \times x + d_0$$

次に、平行ガラス板からの反射光 I を示す直線の式は、傾きが  $\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right)$  で、かつそれが点  $(X_r, 0)$  を通ることから切片を求めて結局、

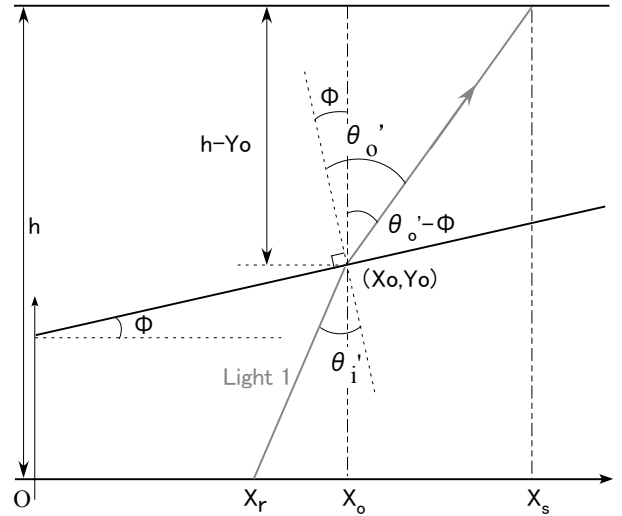
$$y = \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) x - \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) X_r$$

上記の2式より交点の座標  $(X_o, Y_o)$  は、

$$X_o = \frac{d_0 + X_r \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right)}{\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) - \tan \Phi} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} Y_o &= \tan \Phi \times X_o + d_0 \\ &= \tan \Phi \frac{d_0 + \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) X_r}{\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) - \tan \Phi} + d_0 \\ &= \frac{d_0 + X_r \tan \Phi}{\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) - \tan \Phi} \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_o - \Phi\right) \end{aligned}$$

### 2.2.4 スクリーンで干渉が起こる x 座標 $X_s$



図—4 設計のための模式図—干渉位置  $X_s$ の導出

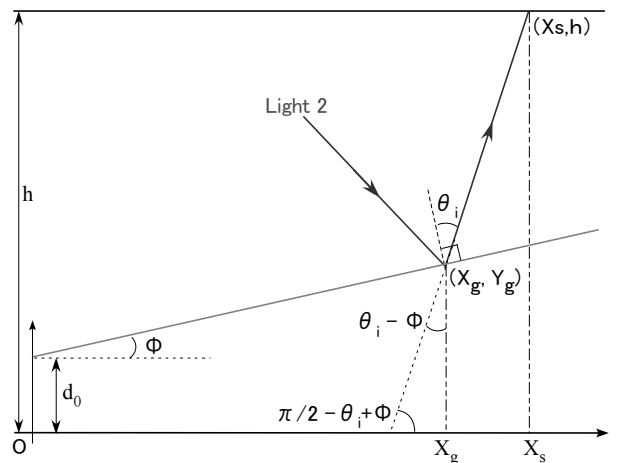
図—4において、角  $\theta'_o - \Phi$  を頂角の一つとする直角三角形において、

$$\frac{X_s - X_o}{h - Y_o} = \tan(\theta'_o - \Phi)$$

より、

$$X_s = \tan(\theta_o - \Phi)(h - Y_o) + X_o$$

### 2.2.5 光線 II の傾斜ガラス板での反射位置 $X_g$ 、 $Y_g$



図—5 設計のための模式図—光線 II の反射位置  $X_g$ 、 $Y_g$ の導出

干渉が起こるスクリーン上の x 座標  $X_s$ に到達す

る光線Ⅱの傾斜ガラス板上での反射位置は図—5において、傾斜ガラス板を示す直線の式と光線Ⅱの反射光（2点 $(X_g, Y_g)$ 、 $(X_s, h)$ を通る）を示す式の交点である。

まず、傾斜ガラス板を示す直線の式は、

$$y = \tan \Phi \times x + d_0$$

次に、光線Ⅱの反射光を示す式は、傾き $\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_i + \phi\right)$ で、かつそれが点 $(X_s, h)$ を通ることから切片を求めて結局、

$$y = x \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_i + \phi\right) + h - X_s \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta_i + \phi\right)$$

上記二式より交点の座標 $(X_g, Y_g)$ は、

$$X_g = \frac{h - X_s \tan(\pi/2 - \theta_i + \phi) - d_0}{\tan \Phi - \tan(\pi/2 - \theta_i + \phi)}$$

$$Y_g = \tan \Phi \times X_g + d_0$$

### 2.2.6 光線ⅠとⅡの光路差

図—6において光路差は、光線Ⅰが2枚のガラス板間で余分に進む距離 $L (= L_1 + L_2)$ と光線Ⅱが傾斜ガラス板まで余分に進む距離 $L'$ の差であるから、干渉による光強度は、

$$\cos\left\{\left(\frac{L}{\lambda/n_m} - \frac{L'}{\lambda/n_a}\right) \times 2\pi\right\} \quad (3)$$

ただし、反射光がスクリーンに届くまでの距離は光線ⅠとⅡの両方で等しいとした。

光路 $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L'$ は図—6を用いて以下のように求められる。

まず、光路 $L_1$ は次式、

$$\sin(\theta_o + \Phi) = \frac{X_r - X_i}{L_1}$$

に(1)式を代入して整理すると、

$$L_1 = \frac{\tan(\theta_o + \Phi) \times (X_i \tan \Phi + d_0)}{\sin(\theta_o + \Phi)}$$

次に、光路 $L_2$ は次式、

$$\cos(\pi/2 - \theta_o - \Phi) = \frac{(X_o - X_r)}{L_2}$$

に(2)式を代入して整理すると、

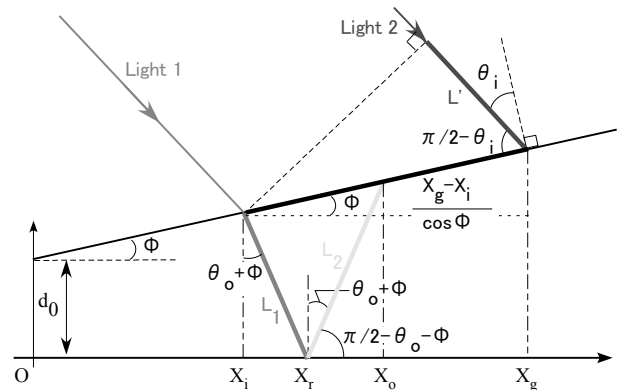
$$L_2 = \frac{\frac{d_0 + X_r \tan \Phi}{\tan(\pi/2 - \theta_o - \Phi) - \tan \Phi}}{\cos(\pi/2 - \theta_o - \Phi)} = \frac{d_0 + X_r \tan \Phi}{\cos(\pi/2 - \theta_o - \Phi) \times \{\tan(\pi/2 - \theta_o - \Phi) - \tan \Phi\}}$$

更に、光路 $L'$ は次式、

$$\cos(\pi/2 - \theta_i) = \frac{L'}{X_g - X_i} \cos \Phi$$

より、

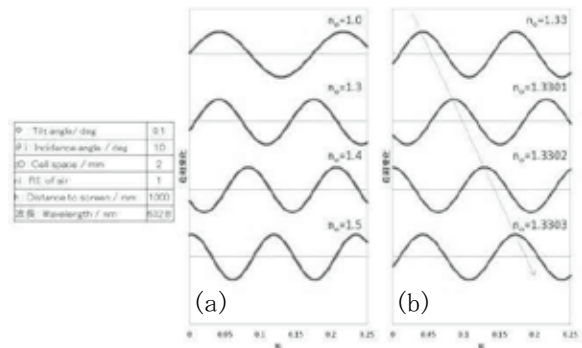
$$L' = \frac{X_g - X_i}{\cos \Phi} \cos(\pi/2 - \theta_i)$$



図—6 設計のための模式図—光路差の導出

## 3. シミュレーション

### 3.1 試料の屈折率を変えた場合の干渉縞の様子



図—7 試料側の屈折率を(a)大きく変化させた場合、(b)小さく変化させた場合での、ある空間領域に生成する干渉縞の様子

得られた式(3)に基づきシミュレーションを行い、干渉縞の様子を予測した。図-7 (a)は試料側の屈折率を大きく変化させた場合、(b)は試料側の屈折率を小さく変化させた場合である。(a)より、試料の屈折率が変わると位相および波数が変化することがわかる。(a)では位相がずれる様子は一様でないが、(b)のように試料の屈折率を少しずつ変化させると位相が規則的にずれる様子がわかる。

### 3.2 光の入射角を変化させた場合の干渉縞の様子

図-8にレーザー光の入射角を変化させたときのある空間領域に生成する干渉縞の様子を示す。入射角を変化させると波数は変化せず、位相が少しずつずれるのがわかる。

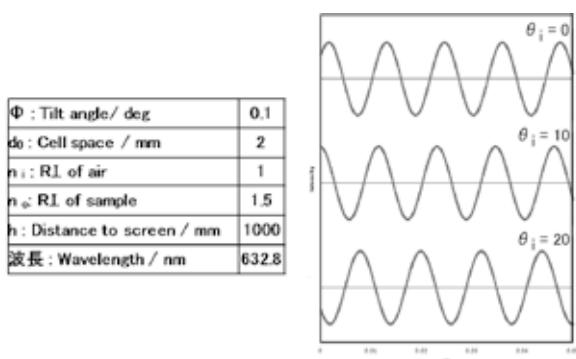


図-8 光の入射角を変化させた場合のある空間領域に生成する干渉縞の様子

### 3.3 傾斜ガラス板の傾斜角を変化させた場合の干渉縞の様子

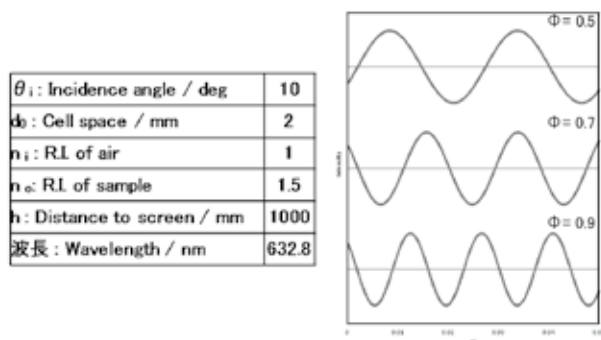


図-9 傾斜ガラス板の傾斜角を変化させた場合のある空間領域に生成する干渉縞の様子

図-9に傾斜ガラス板の傾斜角を変化させたときのある空間領域に生成する干渉縞の様子を示す。傾斜角に大きく依存して、波数および位相が変化するのわかる。

### 3.4 試料の屈折率に対する位相の変化

図-10に試料の屈折率を変化させたときの位相変化の様子を示す。直線的に変化し、逆に、位相変化から屈折率が求められることがわかる。

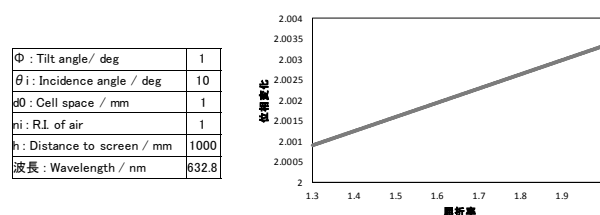


図-10 試料の屈折率に対する位相の変化

## 4. シミュレーションに基づく干渉計兼試料セルの試作

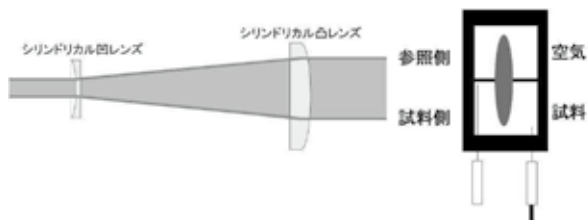
### 4.1 傾斜二重ガラス干渉計兼試料セル

傾斜二重ガラス干渉計兼試料セル(以下セル)は平行および傾斜ガラス板として2枚のスライドガラス、スペーサーとして2 mm厚のラバー、および試料を注入排出する注射針からなる。その一式をアクリル板と真鍮板ではさんでねじで固定し、除振台に固定した。

### 4.2 傾斜二重ガラス干渉計兼ダブル試料セルへの改良と空気を参照試料とした補正

上記のセルは試料室が一室であり、試料の注入・排出によるセルの物理的な寸法変動、レーザーや温度の揺らぎのために干渉縞が不規則に変動した。そこで、試料室を二室にした傾斜二重ガラス干渉計兼ダブル試料セル(以下ダブルセル)に改良した(図-11)。二室の一方に空気を導入してこれからの干渉縞を参照信号とすることで、測定試料室からの干渉縞を補正する仕組みとした。参照室と試料室の同時測定のために、レーザー光は凹、凸シリンドリカル

レンズの組み合わせで拡大してダブルセルの二試料室に同時に照射した。注射針は試料の注入・排出用1本と空気抜き用1本を測定試料室に挿入した。



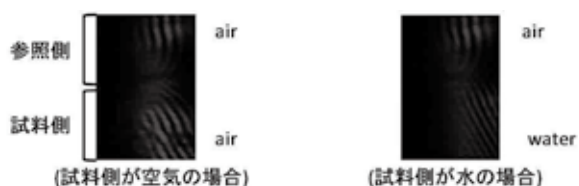
図—11 傾斜二重ガラス干渉計兼ダブル試料セルとレーザー光照射の様子

参照信号を利用して不規則変動を補正する方法は次のとおりである。各試料測定と同時に得られる参照室からの干渉縞の各写真を短冊状に切り出してその縁をそろえて並べると、干渉縞は前述の変動等のために通常不規則にずれる。すべての干渉縞がずれないで一列に並ぶように各写真全体をそれぞれ適宜平行移動すると、その移動させた分がその試料測定における前述の変動等に対する補正值となる。この各補正值を対応する各測定試料の干渉縞の写真に施すことで、変動分を補正した、その測定試料の干渉縞（信号）が得られる。

## 5. 試作機の動作の確認とモデル実験

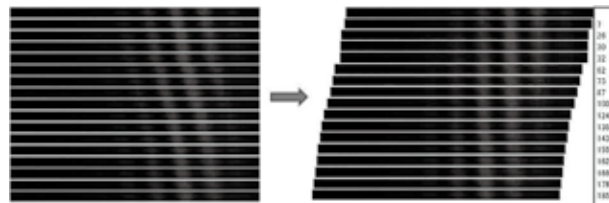
### 5.1 干渉縞の全体の様子

図—12 にダブルセルでの干渉縞の全体写真を示す。上下がそれぞれ参照室および測定試料室からの干渉縞である。試料室の試料を空気から水に変えると干渉縞が変化し、図—7 (a)のシミュレーションからの予測通り波数が大きくなった。これより、ダブルセルで試料に応答することが確認された。



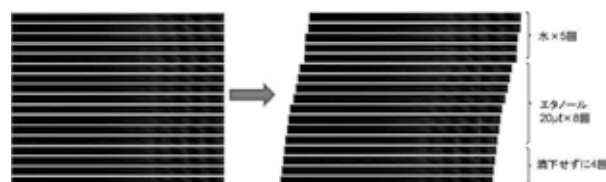
図—12 参照室および測定試料室からの干渉縞の様子

### 5.2 測定試料の干渉縞の様子



図—13 参照室の空気試料からの干渉縞。縁をそろえて並べただけのもの（左）と干渉縞が揃うよう並び替えを行った後（右）の様子

測定試料室の試料としてエタノール水溶液を用いて、その濃度を徐々に変えて測定した。各試料測定と同時に参照室の空気からの干渉縞も得た。図—13 に縁をそろえて並べただけの写真（左）と干渉縞が揃うように適宜平行移動した後の写真（右）を示す。試料室の試料からの干渉縞の写真で濃度変化がない領域（「水×5回」、「滴下せずに4回」）では、補正前（図—14 左）は位相が不規則に乱れているが、補正を施す（図—14 右）と揺らぎが消えて干渉縞が揃ったのがわかる。これより参照信号を利用する補正が成功したことがわかった。また、濃度を変えている領域（「エタノール 20 $\mu$ l×8回」）では、図—7 (b)のシミュレーションからの予想通り、試料室からの干渉縞は一方向に規則的にずれるのが観測された。このように、濃度に依存して位相がずれること、そして逆に位相のずれから濃度を求められることが示された。



図—14 エタノール水溶液の濃度を変えた場合の干渉縞の変化の様子。補正前（左）と補正後（右）

## 6. 結言

屈折率を測定することですべての物質を測定対

象とする、光干渉を利用した汎用の化学計測計を開発するため、設計と試作を行った。設計のために光干渉の式を導出してシミュレーションを行った。試料測定と同時に参照試料も測定するダブルセルを試作して、諸変動を補正することに成功した。試料濃度を変化させるとシミュレーションの予測する通り干渉縞が変化して、応答することが確認された。逆に、干渉縞の位相のずれを信号として濃度が求められることが示された。

### 謝辞

本研究は、科学研究費補助金（課題番号：基盤研究 C 22550077、平成 21-23 年度）の補助により行われたものです。

### 参考文献

- 1) M. Dobosz and O. Iwasinska-Kowalska, A new method of non-contact gauge block calibration using a fringe-counting technique: I. Theoretical basis, *OPTICS AND LASER TECHNOLOGY*, **42**, pp.141-148, (2010).
- 2) O. Iwasinska-Kowalska and M. Dobosz, A new method of non-contact gauge block calibration using a fringe-counting technique: II. Experimental verification, *OPTICS AND LASER TECHNOLOGY*, **42**, pp.149-155, (2010).
- 3) Y. Yeh and Y. Lin, High-precision measurement system based on laser interferometer for determining alcohol concentration of liquid solution, *OPTICS COMMUNICATIONS*, **281**, pp.744-749 (2008).
- 4) G. I. Leibengardt, A. S. Naidenov, and VL. Shur, Physicochemical measurements - A liquid laser interference refractometer for measuring the concentration of solutions, *MEASUREMENT TECHNIQUES*, **47**, pp.1211-1216 (2004).
- 5) Y. Yeh, Real-time measurement of glucose concentration and average refractive index using a laser interferometer, *OPTICS AND LASERS IN ENGINEERING*, **46**, pp.666-670 (2008).