拡散波分光の応用

超分子分光研究分野　西　村　吾　朗

多重散乱媒質の中での電場相関関数および強度の吸収係数依存性の間とのスケーリングの関係を確かめ，吸収測定への応用可能性を確かめた。さらに，これらの基礎となる光の拡散係数の吸収依存性に関し議論する。

はじめに

生体組織の分光学は，生体の非破壊的測定という意味で極めて生物学的および医学的に応用の広い分野である。特に光を用いる事により，生体の酸素代謝を反映する生体分子（Hemeタンパク）の定量を行う事が出来，その情報は細胞の活動を知る上で極めて重要である。しかしながら，良く知られる通り，生体組織は光の強い散乱体であり，その中での光伝搬を理解する事は生体分光の基礎として必須である。また，これらの理解は，生体に限らず広く工業的な応用においても極めて重要である。ここでは，簡単にその光の伝搬に関し述べ，吸収の定量に関する基礎的な方法論についてまず述べる。ここでは，幾何学的な配置などを除いた吸収の定量法を提案する。さらにそれらのベースとなる光拡散定数に関し，強い吸収条件下での振舞を簡単に議論する。

光拡散

非常に強い散乱体では，その中での光の伝搬を光のエネルギの拡散のみを考慮し，輸送方程式を用いても良いと考えられる[1]。

$$\left\{\frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}+\boldsymbol{\Omega}\cdot\nabla+(\mu_s+\mu_a)\right\}I(\boldsymbol{r},\boldsymbol{\Omega},t)=$$

$$\mu_s\int_\Omega p(\boldsymbol{\Omega},\boldsymbol{\Omega}')I(\boldsymbol{r},\boldsymbol{\Omega},t)d\boldsymbol{\Omega}'+q(\boldsymbol{r},\boldsymbol{\Omega},t) \qquad (1)$$

この方程式において吸収係数に関する項は，ある場所での光エネルギの損失のみに関与するため変数分離され時間応答は，$I(\boldsymbol{r},t)=I_0(\boldsymbol{r},t)\exp(-ct\mu_a)$ と書けることが示される[2]。時間応答は，光路長の分布関数を反映する。吸収の無い時の時間応答関数 I_0 は，試料の幾何学的な配置などに依存し，一般的には輸送方程式を解く必要がある。さらに，いわゆるＰ１近似を用いる事により，拡散方程式を導出する事ができ，数値計算あるいは解析的なアプローチが可能となる。しかしながら，生体組織の分光を考えた場合，組織の形などを考慮してそれを解くというのは現実的にはかなり難しい問題である。

少し話題を変え，光のコヒーレンスのdecayに関して考えてみる。散乱粒子が，ブラウン運動でゆらぐ場合，その動きによりコヒーレンスが失われる。単散乱では良く知られるようにそのdecayは単一指数関数で表され，decay timeから散乱粒子の拡散定数を与える。多重散乱系においては，散乱が積み重なることにより，コヒーレンスはより速くdecayし，また散乱回数の分布すなわち光路長の分布の存在により単一指数関数からずれる。これらを考慮し光電場の相関関数を計算すると

$$g^{(1)}(\tau)=\langle E^*(t)E(t+\tau)\rangle/\langle E^*(t)E(t)\rangle$$

$$=\int_0^\infty dsP(s)\exp\left(-\frac{2\tau}{\tau_0}\frac{s}{l^*}\right) \qquad (2)$$

となる[3]。ここで時間応答が先に述べた形であると考えると，吸収は相関関数の時間軸のシフトを与える事を意味する。もし吸収係数がμ_aであるとすると，そのシフトは$\mu_a l^*\tau_0/2$である[4]。一方，散乱光の強度は，時間応答の積分で表され，

$$I(\mu_a)=\int_0^\infty dtI(t)=\alpha\int_0^\infty dsP_0(s)\exp(-\mu_a s)$$

となり，吸収 μ_a に対する依存性は相関関数 $g^{(1)}(\tau)$ と

スケーリングの関係にあり，そのスケールは$l^*\tau_0/2$であり，この関係を用いることにより吸収を評価することが出来るはずである[5]。

光強度と相関関数

光強度と相関関数のスケーリング関係を確かめるために，懸濁液に吸収体を加えて求めた強度変化および相関関数を測定した。測定では，単一モードアルゴンレーザを用い，光子計数法により強度を測定すると同時にディジタル相関器により相関関数を計測した。散乱体にはIntralipid，吸収体には，Rhodamine 6 Gを用い発光の影響を取り除くため干渉フィルタにより波長選択した。図1は，強度相関関数と強度の吸収依存性を示したものである。図の中で白丸（○）は，強度相関関数，黒四角（■）は強度依存性を示している。スケーリングは，強度をスプライン関数で表し，それを相関関数に合うように非線形最小2乗法でフィットした。図から明らかなように，強度の変化は，相関関数の形を良く再現していることがわかる。さらにこのスケーリングから，吸光係数と相関関数の時間軸の比すなわちスケーリングファクタは，0.037±0.001 ms･cmとなり，$\tau_0=2.0$ msを用い輸送平均自由行程l^*が0.037 cmと求められ，これは文献の値と良い一致を示す。この結果は，最初に相関関数の形と平均自由行程，相関時間が知られていれば，吸収を強度から評価できる事を意味している。さらにこれは系の幾何学的状況を計算する事無く評価出来る方法である。

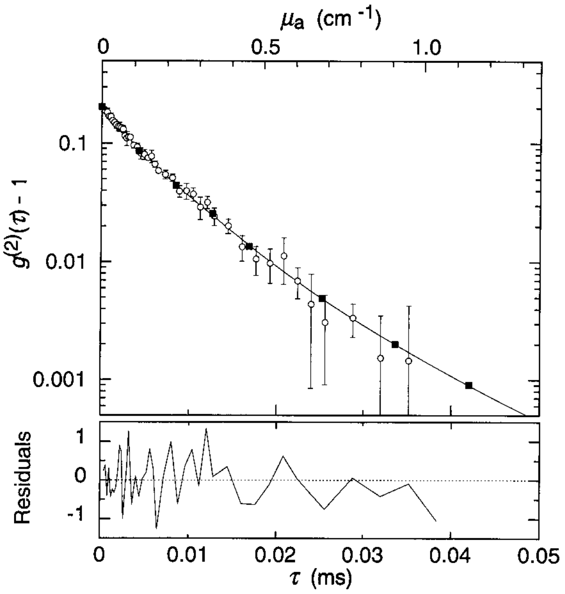

図1　Intralipid 5%溶液の強度相関関数$g^{(2)}(\tau)-1$と，強度の吸光度依存性をスケーリングにより重ね比較したもの

光拡散定数

一方，これらの基礎になっているのは，P 1近似から求められる光拡散方程式である。この際，光の拡散定数を計算する事ができるが，石丸らの行った方法に従うと$D=1/3(\mu'_s+\mu_a)$となり拡散定数が吸収係数に依存すると共に拡散近似自体が吸収が強い時成り立たなくなる[1]。ところが最初述べた通り，吸収に関する項は輸送方程式のレベルで分離可能であり，その結果光拡散定数に対し吸光度は関与せず$D=1/3\mu'_s$となる。そこで，吸収が非常に強い条件下でそれを確かめた[6]。実験には十分大きな水槽を用い境界などの影響がないようにした。光源は809 nmのレーザダイオードで検出にはディジタルオシロスコープを用いた。図2は，光強度と光源検出器間の距離との関係を示す。実線は，拡散方程式の解$I(r)=A/r\exp(-\sqrt{D\mu_a r})$によりフィットしたものである。データは，拡散方程式の解で良く再現されている事がわかる。さらに，ここから求めた拡散定数と吸収係数との関係をプロットしたものが図3である。図において実線は新しい拡散定数$D=1/3\mu'_s$をプロットしたものであり，破線は従来からの拡散定数である。実験結果は明らかに新しい拡散

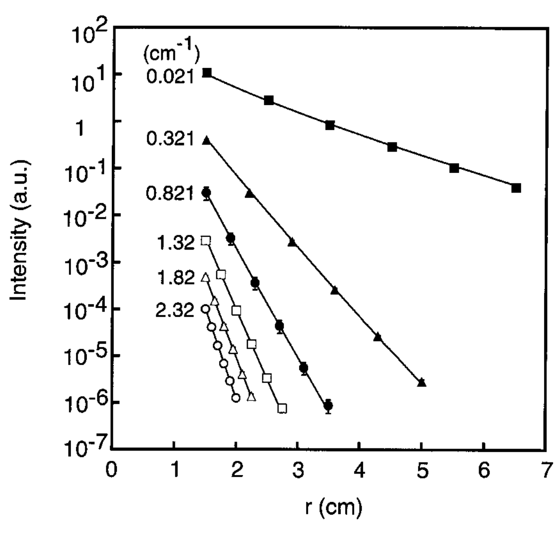

図2　Intralipid 1%溶液での強度と光源検出器の間の距離との依存性

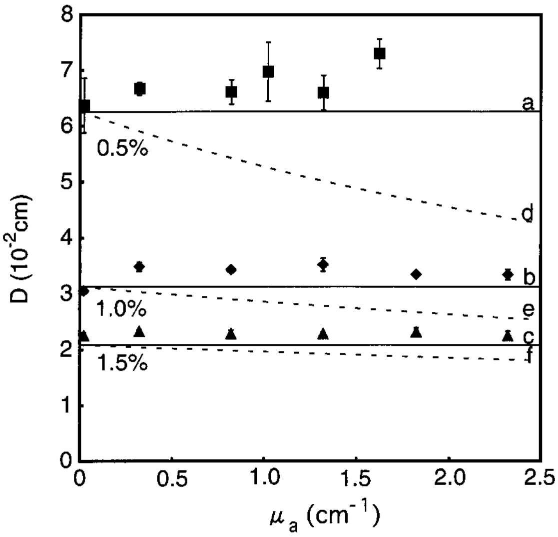

図 3　光拡散定数の吸収係数依存性

定数の形を支持する。

結　　論

強度と相関関数の等価性を確かめた。その結果から，両者の比較により吸収係数の定量を幾何学的な条件と無関係に測定することが可能であると考えられる。一方それらの基礎にある光拡散定数に関し吸収係数との関係を調べたところ，吸収には依存していないことが確かめられた。

【参考文献】

[1] A. Ishimaru, Wave Propagation and Scattering in Random Media, (Academic, New York, 1978).

[2] K. Furutsu and Y. Yamada, Phys. Rev. E 50 (1994) 3634.

[3] D. A. Weitz and D. J. Pine, in Dynamic Light Scattering, edited by W. Brown, (Oxford, New York, 1993).

[4] K. Katayama, G. Nishimura, M. Kinjo and M. Tamura, Appl. Opt. 34 (1995) 7419.

[5] G. Nishimura, K. Katayama, M. Kinjo and M. Tamura, Opt. Commun. 128 (1996) 99.

[6] T. Nakai, G. Nishimura, K. Yamamoto and M. Tamura, Opt. Commun. (submitted)