

解説

光音響法

吉田篤正

(受取日：2001年10月25日，受理日：2001年12月25日)

Photo-acoustic Method

Yoshida Atsumasa

(Received October 25, 2001; Accepted December 25, 2001)

The characteristics, basic principle, experimental system and measured examples of a non-contact photo-acoustic method are introduced in order to measure the thermophysical properties of thin solid materials on the basis of my recent studies. The relation among light, heat and sound in relation to the photo-acoustic method is described briefly. The phase lag of the photo-acoustic signal for the incident modulated light expressed as a function of some properties such as the thermophysical properties of sample is derived from the RG (Rosencwaig and Gersho) theory. The thermal diffusivity of sample is obtained from the measured phase lag versus the modulated frequency of incident light, even if the thermophysical properties of backing material are unknown. The relation between the modulated frequency of incident light and the obtained vertical information of sample, and the analytical point in accordance with the transparency of sample for the incident light are also explained to some extent.

1. はじめに

今日，様々な材料が様々な用途で用いられているが，この材料及び仕様の多様化で，熱設計を行なう上で重要な情報である熱物性値の測定が困難な材料も増えつつある。厚みがあり，単体で自立できる材料の熱物性値の測定は比較的容易で，様々な測定法が確立されている。しかし，基板へ蒸着によって作成された金属薄膜や溶射されたセラミックス材料などの分離することが困難な材料や，組織が厚さ方向に分布のある傾斜機能材料の熱物性値の測定は，従来の測定技術では困難であり，その有力な測定法として，光音響法を挙げることができる。

光音響法は熱物性値の測定以外にも多くの用途で利用される。¹⁾ また，固体試料以外に液体および気体試料も対象とするが²⁾，ここでは，紙面の都合もあるので，筆者が関与し

ている固体試料の熱物性値の測定に関連していることを主に述べることにする。

2. 光音響法の概要と特徴

光音響法は，光熱変換法²⁾と呼ばれる計測方法の一つとして位置づけることができる。光熱変換法では，まず，固体試料に光を断続的に照射する。試料が光を吸収し，光のエネルギーが熱のエネルギーに変換される。断続的に生成された熱のエネルギーが試料内部および試料表面近傍の気体に拡散する。その結果，試料の表面温度，試料表面近傍の気体の温度が時間的に変化する。この変化量を検出するのに多くの方法が提案されている。具体的には，試料を入れた密閉容器中の圧力変動（音波）をマイクロフォンにより検出する音響法，試料の熱的な歪みを圧電素子を用いて検出する方法，試料の表面温度の変化を赤外線センサを用

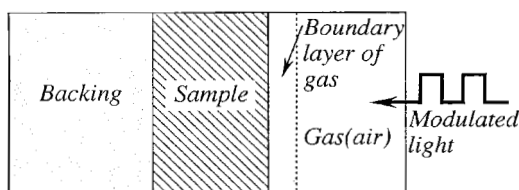


Fig.1 One-dimensional model of a photo-acoustic cell.

いて検出する赤外検知法、試料表面近傍の気体の温度分布を光の曲がりから検出する偏向法などを挙げることができる。それらを総称して光熱変換法と呼んでいる。ここでは光音響法を取り上げることとする。上述のことより光熱変換音響法が正しい名称のように思うが、ここでは、従来から使用されている光音響法の名称を踏襲することとする。

光音響法は、センサーを直接試料に取り付ける必要がないこと、試料と組み合わせられている基盤の熱物性値が未知であっても測定が可能なこと、試料の厚さ方向に沿っての熱物性値の測定が可能である、という特徴から、非破壊、非接触での材料の評価が可能で、基盤上に作成された薄膜や傾斜機能材料などの熱物性値の測定に有効な手段である。また、材料を均一と仮定した見かけの評価しか得られない方法と異なり、材料内部の局所的な部分に対し詳細な熱物性評価が可能となり、傾斜機能材料などにも応用することが可能である。

3. 測定理論と熱物性値の算出

Fig.1に示す光音響セルと呼ばれる密閉容器内の試料に、前面から周期的な断続光を照射すると、試料層の表面および内部でそれを吸収し、非発光遷移過程で熱に変換され、周囲に拡散する。そのため、試料層で周期的な温度変化が生じ、その熱が試料表面に接した気体部分に伝わる。その結果、試料表面のごく近傍の気体部分が断続光の周期に対応して膨張・収縮し、圧力が周期的に変化を起こして音波が発生する。これを光音響信号と呼んでいる。

固体試料の光音響信号の発生機構はRosencwaigとGershoにより理論化されており、RG理論と呼ばれている。³⁾ その際、次のような仮定が必要となる。窓材、セル内の気体の光吸収はない。光は試料に吸収されると瞬時に熱に変換される。セル内の気体の対流はない。数値解析では、まず、試料層における光吸収の結果生成される熱流束を求める。試料層を光が透過し、基盤でも光吸収がある場合は、基盤層において生成される熱流束も求める。これらの結果を含めて、気体、試料、基盤の各層について非定常の熱拡散方程式を立てる。各層間で温度および熱流束の連続性など適切な境界条件の下、これらの熱拡散方程式の解を求め

る。最終的に得られる試料表面近傍の気体の温度変化の交流成分が音波として検出されることになる。具体的な定式化は、文献(1)に詳しく述べられている。

マイクロフォンによって検出される光音響信号(音波)からの情報としては、振幅と変調された入射光との位相差が考えられる。振幅は光エネルギーの吸収量に一義的には関係する。位相差は断続的な入射光に対する音波発生が遅れを意味する。振幅と位相差は、試料、基盤の熱拡散率、熱伝導率などの熱物性値、入射光に対する吸収係数、試料厚さなどに依存する。振幅と位相差を比較すると、位相差の方が振幅よりこれらの値に対する依存性は強い。このため、熱物性値を測定する場合、位相差を入射光の変調周波数の関数として出力し、RG理論に基づいた解析を行う。振幅の大きさは試料の入射光に対する吸収率に比例するため、分光された入射光を用いる場合は、分光吸収率を直接求めることが可能となり、分光分析に用いられる。¹⁾

入射光の波長における試料の光透過性により、取り扱いがやや異なる。金属のように光学的に不透明な材料の光音響信号の位相差(位相遅れ) ψ は、一般的に次に示す四つのパラメータの関数として表される。⁴⁾

$$\psi = F[f; K_s l, l / \alpha, b, g] \quad (1)$$

ここで、 f は入射光の変調周波数、 l は試料厚さ、 α は試料の熱拡散率である。気体(空気)と固体試料の熱浸透率の比である g は実際の熱物性値を代入して計算すると非常に小さな値であるため、近似的に $g = 0$ とすることができる。また、不透明材料として考える材料の吸収係数 K_s は、 10^8 m^{-1} 程度のもを想定しているため、試料の厚さ l が $1 \mu\text{m}$ 以上では光学厚さ $K_s l$ は十分に大きくなる。そのため、位相遅れに対して $K_s l$ の依存性は小さくなる。ゆえに、 l / α と基盤と試料の熱浸透率の比である b の二つのパラメータを使って、測定理論(RG理論)に最小二乗法を用いて、測定データにフィッティングさせて l / α と b の値を決定する。試料の厚さ l は、通常、既知であるので、基盤の熱物性値が不明の場合でも、試料の熱拡散率 α を求めることができる。また、基盤の熱物性値が既知である場合、基盤と試料の熱浸透率の比 b の値より、試料の熱拡散率に加えて、熱伝導率も同時に求めることができる。

一般的に入射光の変調周波数が大きい(高周波になる)ほど、次回の光照射までの時間が短くなるため、熱拡散が及ぶ領域が試料表面近傍に限定される。逆に、変調周波数が小さくなるほど、試料の下にあり、試料表面からの距離がある基盤の影響も受けるようになる。従って、変調周波数を変化させると試料の厚さ方向の情報が順次得られることになる。

RG理論に基づいて計算された光学的に不透明な試料の

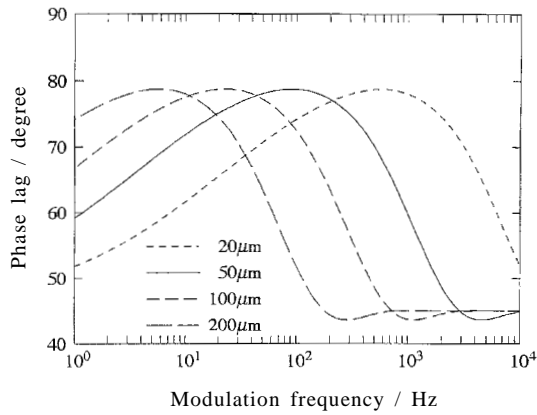


Fig.2 Calculated results of phase lag vs. modulation frequency based on the RG theory (Effect of thickness of sample) [$\alpha = 9.25 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, $b = 8.4 \times 10^{-2}$].

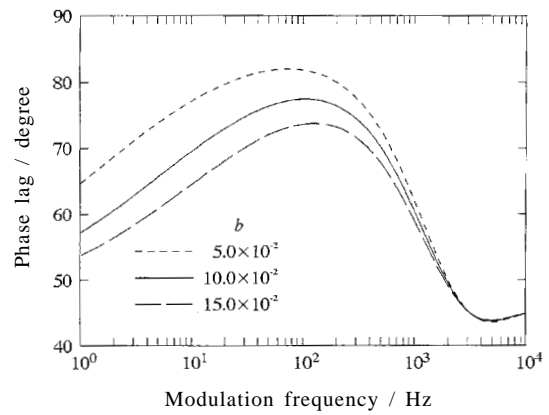


Fig.4 Calculated results of phase lag vs. modulation frequency based on the RG theory (Effect of ratio of thermal effusivity of backing to sample) [$l = 50 \mu\text{m}$, $\alpha = 10.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$].

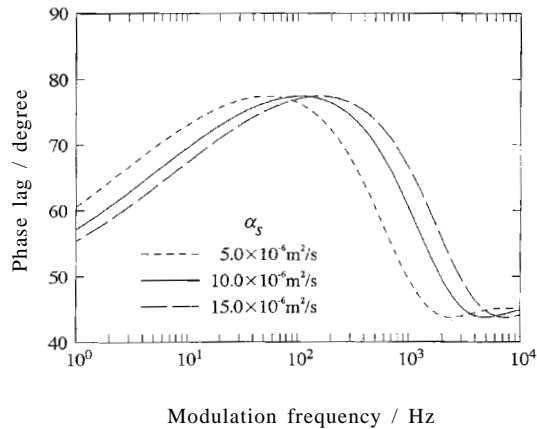


Fig.3 Calculated results of phase lag vs. modulation frequency based on the RG theory (Effect of thermal diffusivity of sample) [$l = 50 \mu\text{m}$, $b = 10.0 \times 10^{-2}$].

位相遅れと入射光の変調周波数の関係を Fig.2 ~ Fig.4 に示す。それぞれ試料厚さ l 、試料の熱拡散率 α 、基盤と試料の熱浸透率の比 b の影響を表す。いずれもある周波数において位相遅れは極大値を持つ。試料厚さが大きくなるにつれて、位相遅れの極大値を示す周波数は低くなるが、位相遅れの極大値に変化はない。熱拡散率が小さくなっていく場合も同様の变化を示す。基盤と試料の熱浸透率の比が大きくなるにつれて、位相遅れの極大値は小さくなるが、極大値を示す周波数には大きな変化はない。従って、光音響法では、試料厚さが既知であれば、試料の熱拡散率は位相遅

れの極大値を示す周波数、基盤と試料の熱浸透率の比は位相遅れの極大値からほぼ決定されると言える。測定周波数帯域が設定されている場合には、適切な厚さの試料を選択しなければならない。

入射光の波長に対して光学的に半透明および透明な材料の光音響信号の位相遅れは、式(1)に示したパラメータ以外に基盤の吸収係数が必要となる。半透明材料の場合、不透明材料では無視した光学厚さの影響も考慮する必要がある。試料がセラミックスのような光学的な散乱性材料についても検討されている。⁵⁾

4. 測定装置の構成と測定データの処理

光音響法により測定を行うための装置に必要な構成要素は、光源、光学チョッパ、光音響セル（試料容器）、マイクロフォン、増幅・信号処理系である。Fig.5 に測定装置の一例⁴⁾を示す。連続発振するアルゴンレーザを光源として用い、光学チョッパである音響光学変調器（AOM）により所定の周波数の断続光に変調する。これを光音響セル内に設置された試料に入射する。光音響セルは、窓には光学ガラスを使用し、セル本体はアクリル樹脂で作られており、光源の波長に対して透明である。発生した音波を検知するマイクロフォンは、光の吸収源になるのを防ぐため、試料からの反射光を受けにくい位置に置かれる。音波の出力を大きくするため、窓から試料側の密閉された空間体積を可能な範囲で小さくするのが望ましい。光音響セルは気密性が十分に保証されている必要もあり、製作には細心の注意が求められる。マイクロフォンからの出力信号は、変調入射光と同じ周波数の成分だけを、ロックインアンプにより増幅し、

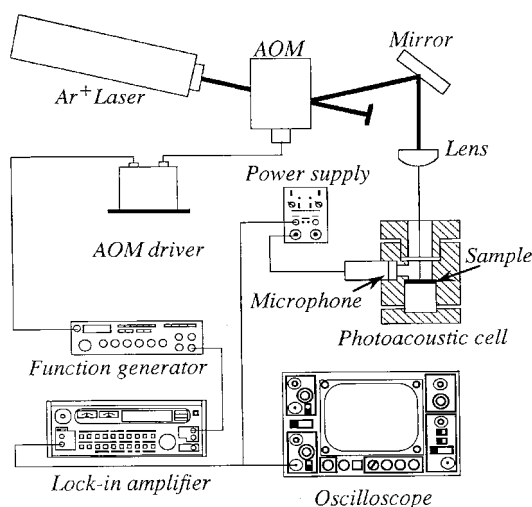


Fig.5 Schematic diagram of experimental apparatus.

入射光との位相差（位相遅れ）を最終的に出力する。マイクロフォンは安定性の高い、高精度なものが求められ、測定可能周波数帯域が広いものが望ましい。測定に際しては、外部からの雑音、振動を極力小さくするように配慮する。

光源は試料を加熱するのに用いるので、出力はある程度必要である。光源としてレーザーだけでなく、キセノンランプなどの白色光源が用いられることもある。この場合には、分光素子を挿入することにより、試料の分光分析が可能となる。また、装置を小型化するために半導体レーザーを用い、機動性を増すために光源と試料の間に光ファイバが使用される場合がある。

一般に測定される位相遅れには、測定機器の応答性や試料表面とマイクロフォンの距離など、装置固有の要因が含まれている。こうした周波数に依存する測定原理に含まれない位相遅れを取り除くため、一定の位相遅れが得られる試料を参照試料に用いて、装置の位相遅れの校正を行う必要がある。RG理論によると、光学的に不透明で、熱的に厚い試料の場合、光音響信号の位相遅れは周波数に依存せず45°一定となる。このような参照試料の位相遅れを ψ_{ref} 、試料の位相遅れの測定値を ψ_{mea} とすると、実際の試料の位相遅れ ψ は、以下の式で求められる。

$$\psi = \psi_{mea} - (\psi_{ref} - 45) \quad (2)$$

参照試料として文献(4)では、厚さ14.0 mmのTiおよび厚さ15.6 mmのNi平板を使用している。

5. 測定例

光学的に不透明な材料の例として金属箔を取り上げる。

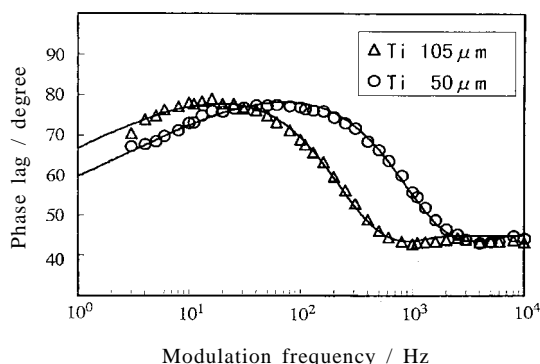


Fig.6 Measured data and fitted curves of phase lag vs. modulation frequency for titanium foils.

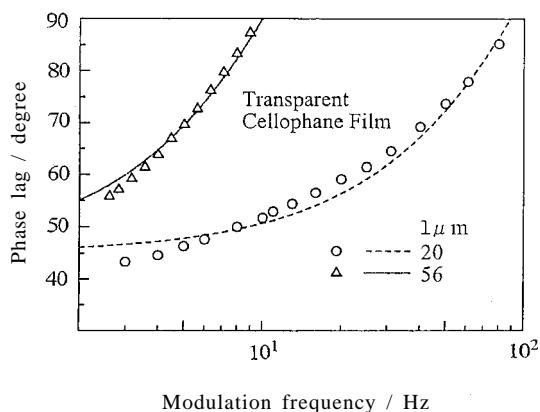


Fig.7 Measured data and fitted curves of phase lag vs. modulation frequency for transparent cellophane films.

Fig.6に厚さ50, 105 μmのチタン箔の測定結果(△, ○印)を示す。⁴⁾ 基盤にはアクリル樹脂、試料と基盤の接着にはエポキシ樹脂系の接着剤を用いた。図中の曲線は、RG理論により測定データにフィッティングさせた結果である。測定データとフィッティング曲線にはよい一致が見られる。得られたチタンの熱拡散率は、十分に厚みのあるチタン材の文献値⁶⁾に比べてやや小さい値である。この原因としては、試料の表面および内部構造が関係していることが示唆される。同様の測定を行っている赤堀ら⁷⁾の結果も同じ傾向を示している。基盤(アクリル樹脂)の熱物性値を文献値⁶⁾と同じとすると、試料のチタン箔の熱伝導率も求めることができ、文献値⁶⁾に比較的近い値が得られている。

光学的に透明および半透明な材料の測定例⁵⁾をそれぞれFig.7, Fig.8に示す。試料は透明および色つきセロファン

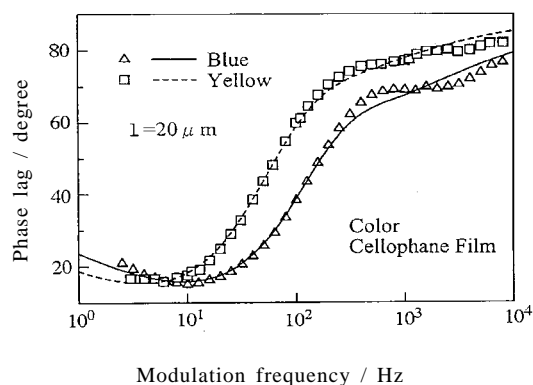


Fig.8 Measured data and fitted curves of phase lag vs. modulation frequency for color cellophane films.

フィルムである。透明材料は不透明材料と異なり、高周波になるほど位相が遅れる。試料の熱拡散率が小さいほど、位相の遅れが大きくなる。半透明な材料に関しては、高周波側で位相遅れが90°に近づいている。低周波数側は基盤の影響を強く受け、基盤の物性値に支配される。また、試料の入射光に対する吸収係数が、試料の色に応じて異なるため、測定結果に違いが現れている。吸収係数の決定も同時に試みた結果、別途透過測定から得られた吸収係数と大きな差異は認められなかった。

6. おわりに

厚さの薄い固体材料の熱物性値測定の観点から、光音響法に関して特徴、基本的な原理、測定装置などについて概略を述べてきた。測定周波数帯域がマイクロフォンの特性により決定される問題もあるが、ここには述べていない分光分析など幅広い応用が考えられており、今後多くの分野で非破壊検査としての発展の可能性を秘めていると思われる。

文 献

1) 沢田嗣郎 (編), 光音響分光法とその応用 - PAS (日本分光学会 測定シリーズ1), 学会出版センター (1982).

2) 沢田嗣郎 (編), 光熱変換分光法とその応用 (日本分光学会 測定シリーズ36), 学会出版センター (1997).
 3) A. Rosencwaig and A. Gersho, *J. Appl. Phys.* **47**, 64-69 (1976).
 4) A. Yoshida, Y. Omae, T. Kurita, and S. Washio, *Int. J. Thermophysics* **21**, 513-524 (2000).
 5) A. Yoshida, H. Nogami, T. Kurita, and S. Washio, *Analytical Sciences* **17s**, s154-s157 (2001).
 6) 熱物性学会 (編), 熱物性ハンドブック, 養賢堂 (1990).
 7) 赤堀正憲, 宮城俊介, 長坂雄次, 長島 昭, 日本機械学会 論文集 **B57**, 324-330 (1991).

要 旨

非接触測定法である光音響法の特徴, 測定原理, 測定装置, 測定例について, 筆者が関与している固体材料の熱物性値測定に関する研究を中心に解説を進めた。光音響法で関係する光, 熱および音の関わり合いを概説した。変調された入射光に対する光音響信号 (音波) の位相遅れが, RG (Rosencwaig and Gersho) 理論により試料の熱物性値などの関数として導出されることが説明された。入射光の変調周波数を変化させて測定された位相遅れの結果から, 基盤の熱物性値が未知の場合にも, 試料の熱拡散率が得られることを示した。入射光の変調周波数と試料の厚さ方向の情報との関係, 試料の入射光に対する透過性の差異による取り扱いの留意点についても若干の説明を行った。

吉田篤正 Atsumasa Yoshida
 岡山大学工学部機械工学科, Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Okayama Univ., TEL. 086-251-8053, FAX 086-251-8266, e-mail: ayoshida@mech.okayama-u.ac.jp
 研究テーマ: 熱・ふく射物性, 光応用計測, 環境伝熱, 都市熱環境
 趣味: 旅行, 自然探索, 読書, 畑いじり