

令和元年6月23日現在

機関番号：32619

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K17875

研究課題名(和文)エバネッセント波の干渉を用いたレーザー計測によるコロイド固液界面挙動の解明

研究課題名(英文) Investigation of colloidal flow behavior in the vicinity of solid-liquid interface using laser measurement based on the interference of evanescent waves

研究代表者

白井 克明 (Shirai, Katsuaki)

芝浦工業大学・工学部・准教授

研究者番号：00634916

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ナノ流体や相変化エマルションなど不溶性粒子が液体に分散した熱輸送コロイドに着目し、壁面近傍の粒子挙動が固液間伝熱に及ぼす影響の解明を目指した。粒子挙動は粒子の流動速度として、エバネッセント(EW)光の干渉によるレーザードップラー法に基づき計測した。浸透距離が数百nm程度と短いEW光を用いることで壁面近傍に回折限界を超える高分解能を実現した。まずコロイド試験部と計測システムを構築し、原理の成立を実証するとともに計測性能を評価した。コロイド流動実験では、印加電場強度に比例した速度が得られ、コロイド粒子の流動計測への適用性を実証した。さらに粒子濃度と粒径が流動速度へ及ぼす影響を調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固液境界近傍のコロイド粒子挙動の計測は、従来マイクロ粒子画像流速計(MicroPIV)など顕微鏡観察に基づく手法に限られてきた。MicroPIVは蛍光トレーサー粒子を必要とし、粒子画像解像による空間分解能の制約と画像計測による不確かさの影響を受ける。他方、本研究で構築した計測手法は蛍光粒子を必要とせず試験コロイド中の分散粒子を散乱粒子としてそのまま利用でき、レーザードップラー法に基づく周波数計測であるため解像の必要がなく、画像計測に対して計測の不確かさを低減可能と考えられる。今後の計測に向け、計測原理の成立を実験的に実証し、速度計測の不確かさを定量的に評価した点で学術的意義が高いと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Colloids are explored for thermal transporting media such as nanofluids and phase-change emulsion. An investigation was conducted towards clarifying electrokinetic effects of dispersed colloidal particles on the characteristics of heat transfer between liquid and solid. Velocities of colloidal particles are measured based on laser Doppler principle using an interference of evanescent waves. With the short penetration depth of evanescent waves, a high spatial resolution beyond the diffraction limit is obtained perpendicular to a solid surface. A prototype system was built and the measurement performance was evaluated. The principle was confirmed and the system was applied to a series of measurements of particle motions of colloids. The particle velocities were proportional to the induced strengths of the electric field, which was consistent to the theoretical prediction. Furthermore, influences of particle density and diameter were investigated on the resulting particle velocities.

研究分野：流体工学

キーワード：コロイド 伝熱 固液境界 電気運動学 粒子流動 マイクロ・ナノスケール 近接場光 レーザー計測

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究では不溶性の微粒子を含む流体を介した熱輸送に注目した。液体にサブミクロン粒径の金属粒子を添加した流体はナノ流体と呼ばれ、粒子濃度からの想定よりも遥かに高い熱伝導率の向上が複数研究で報告されている^①。ナノ流体を作動流体とすると、ポンプ動力を増加させることなく、より高効率な伝熱が実現され、ヒートポンプやヒートパイプでの利用が期待される。また、溶媒にマイクロ・ナノメートルの粒径の相変化粒子を分散させた相変化エマルションは、体積あたりの熱容量に優れ、潜熱蓄熱への利用が研究されている^②。こうした熱輸送媒体としてのコロイドは、流動性を持つことが特徴的である。固液境界面での伝熱を伴うため、伝熱特性の把握や向上には、固体壁近くでのコロイド粒子の挙動解明が重要と考えられる。固体壁近傍での粒子挙動を捉えるには、一般に粒径と同程度の空間分解能が必要である。

空間分解能の高い手法として、微小スケールの流れ場の速度計測に蛍光顕微鏡を利用した Micro-PIV (=Particle Image Velocimetry) が広く用いられる^③。Micro-PIV は蛍光顕微鏡の高倍率と高開口数 (NA: Numerical Aperture) による焦点深度の薄さで高空間分解能を実現し、蛍光粒子をトレーサーに用いることで周囲との区別を実現する。高分解能の実現に高い開口数が必要だが、代わりに作動距離が短くなる。Micro-PIV を含む画像計測手法では回折限界による分解能の制約を受け、空間分解能は油浸レンズによる波長の半分程度が限界である。また高空間分解能の実現手法には、レーザードップラー流速計を発展させた速度プロファイルセンサーがある^④。2種類の干渉縞を組合せて計測体積内に回折限界を超える高空間分解能を実現する。しかし、高分解能の実現には個々の粒子による散乱が必要となるため高濃度コロイドの計測には適さない。この他、エバネッセント波レーザードップラー流速計が提案されている^⑤。この手法は、固液境界面で全反射に基づくエバネッセント波の干渉による計測体積を固体壁極近傍に形成し、レーザードップラー原理で壁面極近傍の流速を計測する。基本動作が確認された後、マクロ流れへの適用が報告されている^⑥が、コロイド溶液への応用は報告されていない。

研究代表者は、エバネッセント波の干渉に基づくレーザードップラー計測に着目した。熱輸送コロイドの固液境界近傍での電気運動学的挙動が伝熱特性に及ぼす影響の解明を目指し、コロイド粒子の流動速度計測システムの構築を開始した^⑦。エバネッセント波は境界面の流体側への浸透距離が極めて短く、境界面に垂直な方向に回折限界を超える空間分解能を実現できる。また、計測体積が常に壁面に固定され、その大きさを制御可能なため、Micro-PIV や速度プロファイルセンサーとは異なり、固液境界面に対する計測体積の位置に関する不確かさを考慮する必要がない。さらに、ナノ流体では粒子径がサブミクロンよりも小さく、レイリー散乱が支配的となる。粒子からの散乱光は粒径の 6 乗に比例し散乱強度が著しく減衰する。Micro-PIV などの画像計測では微弱な散乱光や蛍光をカメラで捉えるには解像に伴う困難が伴うが、レーザードップラー計測では光電子増倍管など、さらなる高感度光検出器を利用できる。また、周波数計測に基づくレーザードップラー計測では、画像計測よりも計測不確かさを低減可能と考えられる。こうした背景から計測システムを構築し、計測体積を通過する移動物体による散乱信号を確認した。だが、当初の計測システムでは可干渉性の高い光源と高感度の検出器を使用しておらず、計測性能と溶液中での計測に関して十分な検証がなされていなかった。

2. 研究の目的

(1) 計測システムの構築と性能評価

まず計測システムを構築し、計測原理の成立を実証するとともに計測性能の評価を目的とした。性能評価として、本研究では速度計測における不確かさを実験的に評価した。

(2) コロイド粒子の流動速度計測

次に、コロイド粒子の流動速度計測の検証を目的とした。本研究では試験コロイドに電場を印加した際の固体壁近傍の流動速度を計測し、その挙動を理論式と比較することで検証を実現した。

3. 研究の方法

(1) 計測システムの構築

構築した計測システムの模式図を図 1 に、装置写真を図 2 に示す。光源には縦シングルモード発振のレーザー光源を用いた。レーザー光はアイソレーターを通過後、ペリスコープで高さを調整し等強度に分割した。分割後の直進光はレンズを通過させ、ミラーで反射させた後、直角プリズムへ入射させた。もう片方の分割光はミラーで一度反射させ、レンズを通過させ、再び別のミラーで反対側から直角プリズムへ入射させた。2本の入射光は図 2 のように各プリズムの短辺から対向するようにガラス基板に入射させた。プリズム・ガラス基板の間にはガラスに屈折率の近い顕微鏡観察用イマージョン・オイルを塗布して隙間を埋めることで境界での反射を低減した。ガラス基板の反対側の表面は試験溶液と接し、溶液の屈折率を考慮し、固液境界面で入射角が臨界角以上になるように調整した。入射光は基板中央付近の固液境界面で全反射して生成する一対のエバネッセント波の干渉で図 3 のように形成される。計測体積を通過する粒子からの散乱光はガラス基板を通じて受光し、マルチモード・ファイバーを通じて検出器へ伝送し、電気信号へ変換した後、ローパス・フィルターを通り出力した。ヘテロダイン検出された時間信号波形をオシロスコープで観察するとともにデータ集録し、自作の処理プログラムでオフライン解析した。

なお、計測体積の厚み（固液境界面に対して垂直な方向）はエバネッセント波の浸透深さから決まる。本研究では媒質が空気（屈折率1）の場合 85 nm 程度および、純水（屈折率1.338）の場合 262 nm と算出された。境界面に平行な方向の計測体積の大きさは、受光用光ファイバーのコア径の投影面積で決まり、直径 150 μm の円形であった。

(2) 性能評価

コロイド粒子を模擬した散乱体を用いて計測体積を一定速度で走査することで、計測性能すなわち計測の不確かさを実験的に調べた。図4のように試験セルを装着せずにガラス面に接する空气中に計測体積が形成された状態で、半球レンズとロッドレンズを組み合わせたプローブ先端に平均粒径 300 nm の Al_2O_3 粒子を複数付着させ、計測体積の干渉縞内を走査した。プローブ先端をガラス基板に密着した状態で精密リニアステージを用いて境界面に対して平行に一定速度で走査した。操作速度は4種類の 0.4, 0.6, 0.8, 1.0 mm/s に設定し各走査速度で約 30 個の散乱信号を計測した。走査速度自体の不確かさ評価のためレーザー変位計を用いて精密ステージの変位を計測し、散乱光計測システムとは独立にプローブ走査速度を算出した。

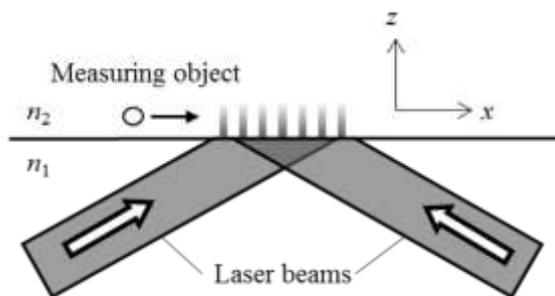


図3 エバネッセント波の干渉による固体近傍のコロイド粒子速度計測の模式図

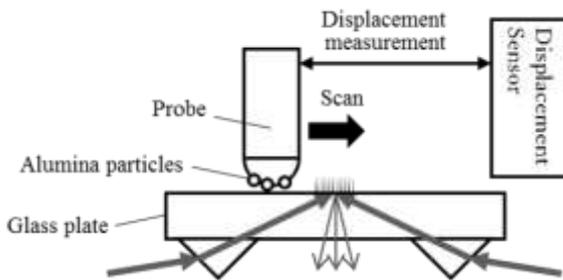


図4 計測性能評価試験の模式図

速度 v を取り、各設定速度での計測の平均値を図示した。平均値の 95%信頼区間は円の中に包括される。計測値に対し最小二乗法で求めた近似直線を実線で、近似直線の 95%信頼区間を点線で示す。図よりドップラー周波数と走査速度の間には明らかな線形な関係が確認できる。近似直線の傾きは干渉縞間隔に相当し $d=179 \pm 2$ [nm] となった。この値を設計値の $d=178 \pm 3$ [nm] と比較すると不確かさの範囲内で一致した。このことから、実験で得られた散乱信号はエバネッセント波の干渉の結果として生じたもので、構築した計測システムが計測原理に基づき機能することが確認された。

また、レーザー変位計で計測したプローブ走査速度と、本計測システムで得られた散乱信号の周波数 f_D に関して、平均値および標準偏差、標準誤差を算出した。周波数 f_D の標準偏差は最大 4.9% で、速度計測の不確かさは約 5% と見積もられた。なお、走査速度の標準偏差は最大 0.63%

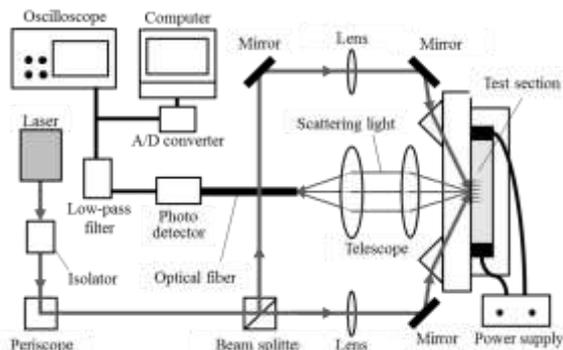


図1 計測装置の光学系模式図

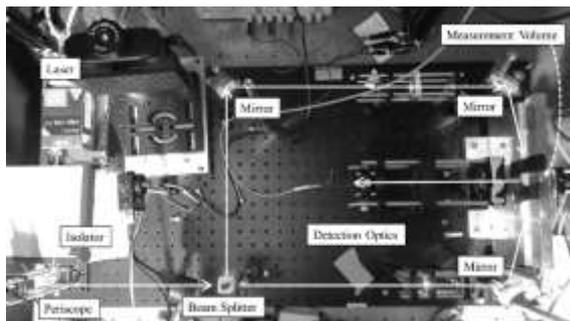


図2 構築した計測システムの写真

3) コロイド粒子速度の計測

試験コロイド溶液を封入する試験部（セル）は光学系の調整を変えずに計測体積周辺をアクリル製カバーで覆うことで形成される構造とした。セルは $25 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$ の直方体形状であり、計測体積は $25 \times 5 \text{ mm}^2$ の面の中心付近に形成した。セル両端に銅電極が設置（電極間距離 25 mm）し、溶液に電場を印加し溶液内のコロイド粒子を電気泳動と電気浸透により駆動させる構造とした。直流電場を印加すると森・岡本[®]による理論式での速度分布の流れがセル内に生じると予想された。

溶液中を流動するコロイド粒子の速度計測を確かめる実験を実施した。平均粒径 1 μm の粒子から成る Al_2O_3 水溶液を試験セルに充填し、直流電場を印加して粒子を駆動した。溶液温度は 22.5°C、pH 値は 7.2 で、印加電場強度は $E=500 \sim 2500 \text{ V/m}$ の間で 5 段階に設定した。各電場強度で 17~31 個の散乱信号を取得した。

4. 研究成果

(1) 計測システムの性能評価

プローブ走査実験の結果を図5に示す。横軸にドップラー周波数 f_D 、縦軸にレーザー変位計による位置情報から算出したプローブ走査

で、周波数の標準偏差と比べて1桁小さく、プローブの走査速度の不確かさは無視できる。

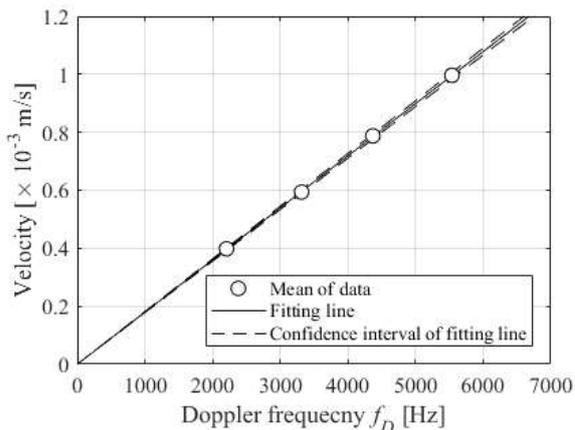


図5 計測性能評価実験で得られたプローブ走査速度 v とドップラー周波数 f_D の関係

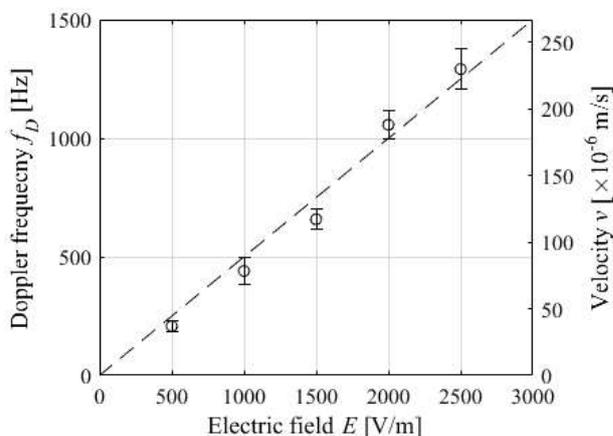


図6 コロイド流動実験における印加電場強度に対する粒子流動速度の計測の結果

散乱光の影響と、計測試験部のコロイド液温に応じた粒子のブラウン運動による影響の検証が重要と考えられる。

<引用文献>

- ① 増田 英俊, 江幡 晶, 寺前 和成, 菱沼 信夫, 超微粒子分散による液体の熱伝導率と粘性率の変化, 熱物性, 7巻, 1993, 227-233
- ② T. Kawanami, K. Togashi, K. Fumoto, S. Hirano, P. Zhang, K. Shirai, S. Hirasawa, Thermophysical properties and thermal characteristics of phase change emulsion for thermal energy storage media, Energy, Vol. 117, 2016, 562-568
- ③ J.G. Santiago, S. T. Wereley, C.D. Meinhart, D.J. Beebe, R.J. Adrian, "A particle image velocimetry system for microfluidics", Exp Fluids, Vol. 25, 1998, 316-319
- ④ J. Czarske, Laser Doppler velocity profile sensor using a chromatic coding, Meas Sci Technol, Vol. 12, 2001, 52-57
- ⑤ J. Yamada, Evanescent wave Doppler velocimetry for a wall's near field, Appl Phys Lett, Vol. 75, (1999), 1805-1806
- ⑥ 山田 純, 高原 大輔, 中根 民之, 壁面近接場における流動計測のためのエバネッセント波ドップラー流速計, 日本機械学会論文集 B 編, 69巻 679号, 2003, 617-622
- ⑦ K. Shirai, S. Kaji, T. Kawanami, S. Hirasawa, Development of measurement system using evanescent waves for characterizing colloidal liquids in heat transfer applications, Int J Comp Methods and Exp Meas, Vol.5, 2017, 34-43
- ⑧ 森 祐行, 岡本 寿夫, 顕微鏡電気泳動法における長方形セル内の流れの解析, 浮選, 27巻, 1980, 117-126

(2) コロイド粒子の流動速度計測

図6に実験結果を示す。横軸は印加電場の強度 E [V/m], 縦軸はドップラー周波数 f_D および流動速度である。速度の算出過程で用いた干渉縞間隔には設計値 $d=178$ nmを使用した。図中の各点は各印加電場条件での計測平均値であり, エラーバーは平均値の95%信頼区間を表す。破線は最小二乗法で求めた近似直線である。森・岡本の式^⑧によると, 矩形断面の試験セルでは, ここで, 流動速度は印加電場強度に比例することが知られる。図6では印加電場強度と流動速度には95%信頼区間に入らないものも一部で見られるが, 概ね線形の関係にあることが分かる。また, 計測システムを改良し, 信号の質を改善し, 数種類の球形ポリスチレン粒子水溶液で実験を繰り返した結果, 同様の結果を得た。得られた流速の標準偏差を走査プローブによる性能評価と比較すると, ばらつきが数倍に増大したことが確認された。このことから, 溶液の粒子流動計測では, 再現性が重要であり, コロイドの液温変化に応じた粒子のブラウン運動が影響したと考えられる。さらに, 試験コロイドの Al_2O_3 溶液と接するガラス表面のゼータ電位を見積り, 粒子流動速度を算出すると, 境界面で $O(10^{-6})\sim O(10^{-4})$ m/s となり, 計測で得られた速度は, この範囲に収まった。したがって, 本計測システムがコロイド粒子の平均流動速度の計測に適用できることを確認した。

今後は, ブラウン運動を通じて再現性に影響を及ぼすと考えられる温度境界条件を確立すべく, 試験部壁面の温度を一定に保持した状態で計測可能な装置の実現が必要と考えられる。さらに, 固液境界面の

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 0 件）

〔学会発表〕（計 5 件）

- ① 白井 克明, 梶 祥一郎, 細川 茂雄, 川南 剛, 平澤 茂樹, エバネッセント波の干渉を用いた固液界面近傍におけるコロイド粒子流動速度の計測, 日本機械学会 IIP2018 情報・知能・精密機器部門講演会, 1C07, 2018 年 3 月.
- ② K. Shirai, S. Kaji, S. Hosokawa, T. Kawanami, S. Hirasawa, Measurement of flow velocities of colloidal particles near solid-liquid boundary using interference of evanescent waves, 12th European Fluid Mechanics Conference, P.2.4, Vienna, Austria, September, 2018.
- ③ K. Shirai, S. Kaji, S. Hosokawa, T. Kawanami, S. Hirasawa, Measurement of kinetic behaviour of colloidal particles in the vicinity of solid-liquid interfacial boundary using interference of evanescent waves, 32nd Conference of the European Colloid and Interface Society, Ljubljana, Slovenia, PP4.13, September, 2018.
- ④ 白井 克明, 梶 祥一郎, 細川 茂雄, 川南 剛, 平澤 茂樹, 固液境界近傍における熱輸送コロイドの粒子流動速度の計測, レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会, E414aIV02, 2019 年 1 月.
- ⑤ 白井 克明, 畠中 丈瑠, 建石 勇斗, 山田 侑汰, 温度条件制御下での固液境界におけるエバネッセント光の干渉によるコロイド粒子の流動速度計測の試み, 日本機械学会 IIP2019 情報・知能・精密機器部門講演会, 1C03, 2019 年 3 月.

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

なし

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。