

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月20日現在

機関番号：12301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23655061

研究課題名（和文） 溶液中の温度勾配生成を利用する液液光導波路の構築とその化学分析への応用

研究課題名（英文） Liquid-core/liquid-cladding Optical Waveguides Using Thermal Gradients Formation and Their Application to Chemical Analysis

研究代表者

角田 欣一（TSUNODA KIN-ICHI）

群馬大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30175468

研究成果の概要（和文）：

本研究では、層流中に温度勾配（屈折率勾配）を形成させ、GI型光ファイバーのような屈折率分布を持つ、コア・クラッドともに液体である液液光導波路を構築し、その性質を調べた。ステンレス管（内径 800 μm ）に LC ポンプを用いて純水を送液し、アクリルパイプ内に恒温器で温度を調節した温水（30 $^{\circ}\text{C}$ ～70 $^{\circ}\text{C}$ ）を流すことによって、ステンレス管を外部から加熱し、管内を流れる純水に温度勾配（屈折率勾配）を形成させた。光源光は光ファイバーを介してステンレス管内に導入し、さらに、管内を導波した光を、検出器側の光ファイバーを介して検出した。まず、検出器側の光ファイバーの位置（導波距離）を固定して、加熱温度・流速の影響による導波光の強度変化を観察した。また、その結果を、数値流体力学ソフト（COMSOL MULTIPHYSICS）を用いて管内を流れる純水の温度分布シミュレーション（CFD シミュレーション）を行い、それぞれの実験結果と比較した。実験では、導波光強度は流速を遅くすると低下し、速くすると上昇した。また、各流速において加熱温度を高くすると強度が上昇した。これらの結果は、管内の温度勾配の大きさに関する CFD シミュレーションの結果によって説明されることが分かった。また、検出器側の光ファイバーを、ステンレス管内をスライドさせて導波距離を変化させて強度を測定したところ、強度は距離に対して周期的に変化し、加熱温度が高いほどその周期が短くなることがわかった。この現象は GI 型光ファイバーの理論により説明される。

研究成果の概要（英文）：

Proposed was a liquid-core/liquid-cladding optical waveguide using thermal gradients (TG-LLW), where laminar flow of water in a stainless capillary tube was placed in a heat source, and thermal gradients across the laminar flow were formed. Laminar flow of water was formed in a stainless steel tube (i.d., 0.8 mm; o.d., 1.6 mm, 15 cm long) using an HPLC pump, whose flow rate was 0 to 9 $\text{cm}^3 \text{min}^{-1}$ (the average linear velocity of the flow was 0 to 30 cm s^{-1}). The stainless tube was placed in a heat source, i.e., circulated hot water, whose temperature was changed from room temperature to 70 degree. In the experiments, the higher the temperature of the heat source was and the greater the flow rate, the higher intensity of the guided light was obtained. CFD simulation showed that the increase in the temperature of the heat source resulted in the increase in thermal gradients in the flow, i.e., the increase in refractive index gradients in the flow. Moreover, the CFD calculation also elucidated the effect of the flow rate. The guided light intensity changed periodically with the distance, and the period became shorter with the increase in the temperature of the heat source. This

phenomenon is explained by the theory of graded index optical fiber. That is, the smaller refractive index gradient results in the longer period of the guided light. This nature of TG-LLW should be useful to manipulate the light, i.e., focusing and dispersing guided light in optofluidic systems in future.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：分析化学

科研費の分科・細目：複合化学・分析化学

キーワード：液液光導波路、温度勾配、層流、数値流体力学

1. 研究開始当初の背景

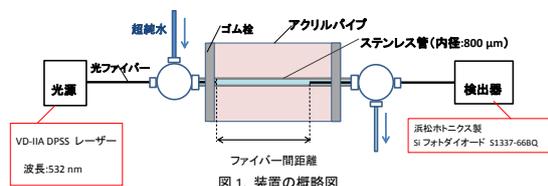
申請者らは以前よりスラブ光導波路や液体コア型光導波路 (LCW)^{注2)} など様々な光導波路の分析化学的応用に関する研究を行ってきた。一方、そうした光導波路の一つとして、申請者らは屈折率の異なる2つの溶媒のシースフローを利用する液/液光導波路^{注1)}を提案している(研究計画の部、図1参照)。この概念は申請者らが世界で最初に提案したものであり(Takiguchi et al., *Appl. Spectrosc.*, 57, 1039(2003))、その後、Harvard大学のWhitesidesのグループ(*Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 101, 12434 (2004))を含む数グループがこの研究を報告している。これまでの研究から、このLLWにおいては、コアとクラッド間にごくわずかな屈折率の違いがあれば、驚くほど効率的に光を伝送できることが分かってきた。そこで、溶液内に屈折率勾配を生成する方法として、温度差を利用することを着想した。温度差による光導波路の作製に関しては、岡田らにより、水をコアに、氷をクラッドとしたLCWが提案されているが、LLWとしては、現在までに研究例がない。

注1) シースフローの内側の流れ(コア：より高屈折率の溶媒)に光を導入すると、外側の流れ(クラッド：より低屈折率の溶媒)との境界での全反射により、光ファイバーのようにその光が減衰せずに導波されるシステム。

注2) コアを液体として、クラッドには通常コアの液体よりも屈折率の低い材質のチューブを用いる。チューブの中に液体(コア)を満たし、その内に光を閉じ込め伝送する。分析化学的には長光路セルとしての応用が一般的である。

2. 研究の目的

本研究においては、温度勾配生成によるLLWの構築を試み、その評価と分析化学的応用を目的とした。すなわち、ステンレスキャピラリー管などに溶液を送液し層流をつくり、外部から加熱することにより流体中に温度勾配を形成させてLLWを構築することを試みた。なお、計画当初は、シースフローの中心流(コア)と周辺流(ク



ラッド)の界面で発熱反応を起こさせ、それによりLLWを形成させることも計画したが、実現には至らなかった。

3. 研究の方法

装置の概略図を図1に示す。ステンレス管(内径800 μm)にLCポンプを用いて純水を送液し、アクリルパイプ内に恒温器で温度を調節した温水(30℃~70℃)を流すことによって、ステンレス管を外部から加熱し、管内を流れる純水に温度勾配(屈折率勾配)を形成させた。光源光(半導体レーザー、532 nm)は光ファイバーを介してステンレス管内に導入し、さらに、管内を導波した光を、検出器側の光ファイバーを介して検出した。このとき、光源側と検出器側のファイバー間距離を導波距離とし、アクリルパイプ内の温水の温度を加熱温度とした。また、光源側のファイバーは加熱が始まる位置に固定し、検出器側のファイバー位置を動かすことによって、導波距離

を変化させた。また、数値流体力学ソフト (COMSOL MULTIPHYSICS) を用いて管内の純水の温度分布シミュレーションを行い、それぞれの実験結果と比較した。

4. 研究成果

まず、導波距離を 12 cm に固定し、各加熱温度 (30~70 °C) において、純水の流速を 9 ml/min→7 ml/min→5 ml/min→2 ml/min→0 ml/min→2 ml/min→5 ml/min→7 ml/min→9 ml/min と変化させ、それぞれ 2 分間ずつ、続けて導波光の強度測定を行った。強度変化の様子を図 2 に示す。この結果より、強度は流速を遅くすると下がり、速くすると上がっていくことがわかった。

また、各流速における強度の平均値を比較した (図 3)。いずれの流速においても、加熱温度を高くすると強度は上がる、という傾向がみられた。また、水を流さないときはいずれの加熱温度においても導波光強度は観察できなかったが、流速を 2 ml/min としたとき、強度変化がみられた。

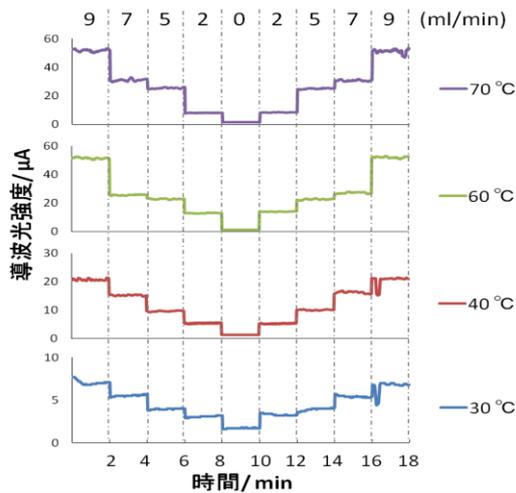


図 2, 強度変化の様子

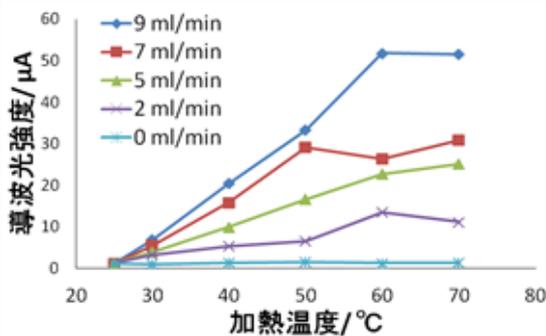


図3, 各流速における強度の平均値比較

数値流体力学計算ソフトを用いて、ステンレス管内の水の温度分布シミュレーションを行った。表 1 は、加熱開始地点から

12cm の位置における、管中心と外側の温度差を算出しまとめた表である。シミュレーション結果より、流速 2 ml/min のときの管内の水に温度差は僅かであったが、実験結果との比較により、少しでも温度差があれば光は導波することがわかった。また、温度差が大きくなるほど強度が上昇することもわかった。

表 1. 導波距離 12 cm の位置における LLW 中心部の温度についてのシミュレーション [°C]

流速 (ml/min)	温度差(°C)*				
	30°C**	40°C**	50°C**	60°C**	70°C**
9	3.72	7.31	10.72	14.00	17.15
7	2.52	4.89	7.12	9.21	11.19
5	1.25	2.38	3.40	4.33	5.19
2	0.03	0.05	0.07	0.08	0.09

*加熱温度 (水浴の温度) - LLW の中心部の温度

**加熱温度 (水浴の温度)

導波距離を変化させて強度減衰の様子を観察した結果を図 4 に示す。加熱前のように緩やかな曲線を描きながら強度は減衰していくと予想したが、実際は図 4 に示したように、強度は周期的に変動しながら徐々に減衰していくという結果になった。これは、グレーテッドインデックス型 (GI) 型光ファイバーのように、光がコア内で同期して進んでいるため、検出位置が節に近い位置にあれば、強度は高くなり、光がコア全体に広がっている位置にあれば、強度が低くなったと考えられる。GI 型ファイバーの理論によれば、屈折率差が小さくなるほ

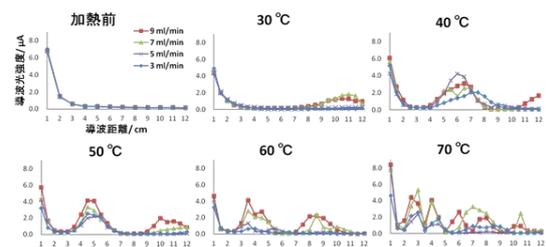


図4, 強度減衰の様子

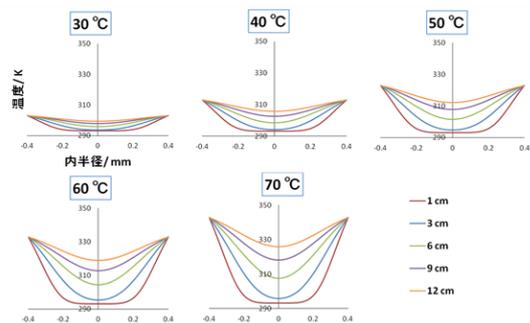


図5, 管内の水の温度分布シミュレーション結果

ど、その周期は短くなることが予想される。

また、流速を 9 ml/min としたときの、各加熱温度における管内の水の温度分布シミュレーション結果を図 5 に示す。グラフは、縦軸に絶対温度、横軸に管内の位置を現し、内半径 0 mm が管中心を示している。加熱温度が高くなるほど、中心と外側の温度差、すなわち屈折率差も大きくなっていくことがわかる。以上のことから、温度勾配形成を利用する本 LLW は、GI 型ファイバーの性質を有していると考えられる。

結論として、キャピラリー管内に溶媒を送液し、管外部から熱を加えることによって、管内の溶媒に温度勾配を形成し、それを利用した LLW を構築することができた。流速を速くする、または加熱温度を高くすることによって導波光強度が上がるということがわかった。これらの結果は、温度分布に関するシミュレーションによっても説明された。さらに、本 LLW は、GI 型光ファイバーとして機能し、導波される光強度は周期性を示すことがわかった。本 LLW のこれらの性質は、Optofluidics システムにおいて、将来、集光、光の分散など、光の操作に応用可能であると思われる。

5. 主な発表論文等
〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)

「温度勾配による液液光導波路の構築」
中村 真奈美・村田 博康・佐藤 記一・角田 欣二、第 73 回分析化学討論会、北海道大学函館キャンパス、2013 年 5 月 17 日、18 日

〔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：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

角田 欣一 (TSUNODA KIN-ICHI)
群馬大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：30175468

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし