

レーザー誘起表面波法による非ニュートン流体粘性率測定に関する研究 —べき乗則流体に関する実験的・理論的検討—

A Study on Viscosity Measurement for Non-Newtonian Liquid by Laser-induced Capillary Wave Method -Experimental and Theoretical Analysis of Power Law Fluid-

80816840 野田 伊織 (Iori Noda) Supervisor : 長坂 雄次 (Yuji Nagasaka)

1. 結論

液状食品の粘性率は、食感・味覚に対して大きな相関があり、その値を測定・制御することで精緻な品質管理が可能である。さらに製造現場における *in-situ* 測定においては、衛生面や安全面を考慮すると高速・非接触な測定が望まれる。また多くの液状食品は非ニュートン流体であるため、温度や濃度、さらには加わるせん断速度によってその値は大きく変化し、取りうる範囲も他の熱物性値と比べて非常に幅広い。しかし既存の毛細管法や回転法は、試料のサンプリングを必要とした接触式測定法であり、また同一の装置での広粘性率域測定は難しく、現場測定での要求を満たすことが難しい。

本研究は、光学的な非接触粘性率測定法、レーザー誘起表面波(LiCW)法を開発し、*in-situ* で非ニュートン流体を含む液状食品の粘性率評価を行うことを目的とし、まずはニュートン流体試料を用いて本測定法の測定精度および粘性率域の拡大について検討を行った。さらに、LiCW法の原理を非ニュートン流体・べき乗則流体に適用可能な形に拡張し、非ニュートン流体標準液の測定結果と比較を行った。

2. 測定原理および測定装置

本測定法は、レーザー加熱により試料表面に強制的に表面波を誘起し、その減衰挙動より粘性率を測定する方法である。等強度の2光束に分割した加熱用レーザーを試料表面において干渉させることで、周期的な温度分布を形成させる。これに伴う熱膨張により瞬間的に波長 μm オーダー、振幅 nm オーダーの微細なレーザー誘起表面波が誘起される。加熱終了後、表面波が減衰していく挙動を観察用レーザーによって検知する。本測定法では観察用レーザーを表面波に入射することで得られる回折光を信号光としている。波の表面形状が動的な回折格子の役割を果たし、その反射1次回折光の信号光強度 $I_1(t)$ が(1)式で示すように、表面波振幅 $u_z(t)$ の2乗に比例することを利用し、表面波の挙動を測定する。

$$I_1(t) \propto u_z(t)^2 \quad (1)$$

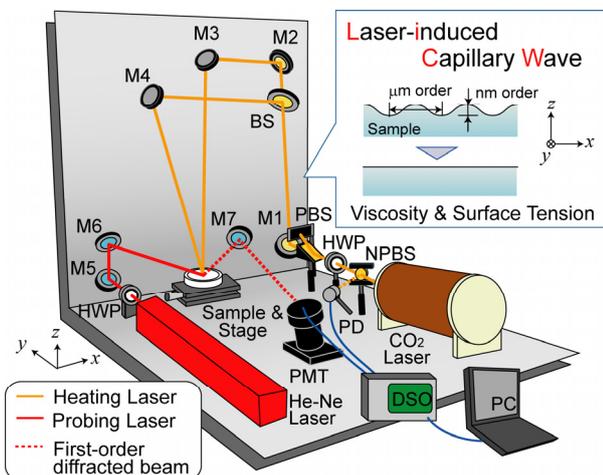


Fig. 1 Experimental Apparatus.

一方で、表面波の振幅 $u_z(t)$ は、基礎方程式である Navier-Stokes の式、連続の式、熱伝導方程式を、表面張力の温度依存性を考慮した試料表面での応力の釣り合い式などの境界条件と連立させて解くことで、(2)式のような熱物性値の関数として表現することができる。表面波振幅の減衰は粘性率が支配的であり、得られた信号に対して逆問題解析を行うことで、粘性率を算出する。

$$u_z(t) = f(\eta, \sigma, \lambda, T, C_p, \rho, \alpha, \beta, V_L, I_h, \Lambda, t) \quad (2)$$

η : 粘性率 [Pa·s], σ : 表面張力 [N/m], λ : 熱伝導率 [W/(m·K)],
 T : 試料温度 [K], C_p : 定圧比熱 [J/(kg·K)], ρ : 密度 [kg/m³],
 α : 吸収係数 [1/m], β : 体積膨張率 [1/K], V_L : 音速 [m/s],
 I_h : 加熱光強度 [J/m²], Λ : 干渉縞間隔 [m], t : 時間 [s]

本研究で用いている測定装置の概略を Fig. 1 に示す。加熱用レーザーとしてパルス CO₂ レーザー(出力 65 mJ, 波長 10.6 μm , パルス幅 50 ns, 直線偏光)を、観察用レーザーとして He-Ne レーザー(出力 15 mW, 波長 633 nm)を用いている。まず加熱用レーザーの強度を 1/2 波長板(HWP)および偏光ビームスプリッター(PBS)からなる加熱光強度可変システムで調節する。調節された加熱光は複数のミラーおよびビームスプリッターを介し、試料表面で干渉させる。測定試料はシャーレおよび専用の容器に入れ、恒温槽によって任意の温度に制御する。観察用レーザーを、試料上方より適切な角度で加熱領域に入射し、発生した反射1次回折光を、ピンホールとバンドパスフィルターを介し、光電子増倍管(PMT)で検知する。PMTによって検知された信号はデジタルオシロスコープ(DSO)を経て、コンピューター(PC)に取り込まれる。

3. ニュートン流体の測定

3.1 精度向上の検討

本測定法を非ニュートン流体に適用する前段階として、ニュートン流体の測定およびその精度の検討を行った。測定精度の向上を目的とし以下の対策・改良を行った。

- ・ 加熱光干渉位置固定方法を含む光軸設定の変更
- ・ 無偏光ビームスプリッター(NPBS)とフォトンディテクター(PD)からなる0点($t=0$)検出機構の導入
- ・ 精緻な干渉縞間隔測定方法の導入

解析の結果、粘性率 $10^2 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ オーダーまでの試料では、偏差 $\pm 8\%$ 以内、標準偏差 3% 以内での測定が可能となった。また高粘性試料においても測定のばらつきは 5% 以内であり、熱伝導率の影響を低減することで、同程度の精度で測定が可能であるといえる。結果を Fig. 3 に示す。これより、本測定法がニュートン流体試料に対して、有用な粘性率測定技術であることを示した。

3.2 測定可能粘性率域の拡張

液状食品への応用や非ニュートン流体の測定を考慮し、本装置の測定可能範囲を $10^5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ オーダーまで拡張させた。それにより、これまでよりもさらに広粘性率域におよぶニュートン流体試料において測定が可能となった。

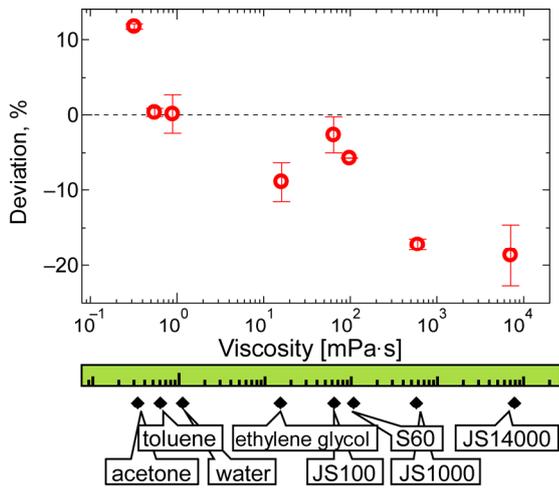


Fig. 3 Measurement results for Newtonian liquids.

4. 非ニュートン流体への適用

4.1 べき乗則流体の理論構築

本測定法は測定中にせん断速度が変化するという特徴的な性質を持つ。せん断速度に依存して粘性率が変化する非ニュートン流体を測定する場合、この性質を利用することで1つの信号波形から試料の流動特性を検知することができると考えられる。

本測定法の従来の理論は基礎方程式に Navier-Stokes の式を含むことから、ニュートン流体を仮定しており、非ニュートン流体に適用することはできない。そこで、(3)式に示すべき乗則の仮定を新たに組み込み、非ニュートン流体に適用可能な理論の構築を行った。また、境界条件である応力の釣り合い式にも同様に仮定を組み込み、理論振幅 $u_z(t)$ の算出を行った。なお、他の基礎方程式および境界条件は、ニュートン流体の仮定が無いため現行の式を用いている。

$$\eta_a = K \dot{\gamma}^{n-1} \quad (3)$$

K : 流動係数 [$\text{Pa} \cdot \text{s}^n$], n : 流動性指数 [-],

η_a : 見かけの粘性率 [$\text{Pa} \cdot \text{s}$], $\dot{\gamma}$: せん断速度 [s^{-1}]

得られた理論解は(4)式で示され、未知数6個を含む4項の和として得られた。各未知数の算出式は、本論文を参照されたい。しかし一般解を算出することは難しく、最小自乗法による数値解析によってその妥当性の検討を行った。ただ、解析が可能であったのは、熱伝導方程式より算出した(4)式の右辺第2項までの $(A+B)$ である。モデル試料は、再現性が高く安定した信号波形が得られる独研究機関 PTB の非ニュートン流体標準液 NNRF2 ($K = 16.3, n = 0.34$) とした。解析結果を Fig. 4 に示す。

$$u_z(t) = \{Ae^{a^2 z} + Be^{b^2 z} + Ce^{a^2 z} + De^{b^2 z}\} \exp(ikx) \quad (4)$$

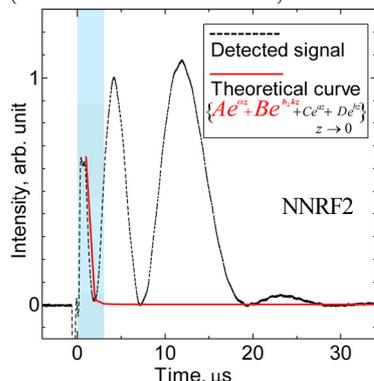


Fig. 4 Comparison of the detected signal with the theoretical calculation for Non-Newtonian liquid NNRF2. ($\Lambda = 50 \mu\text{m}$)

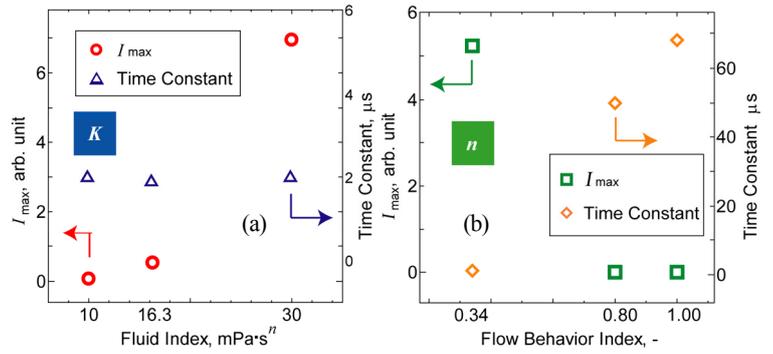


Fig. 5 Results of sensitivity analysis for Non-Newtonian liquid NNRF2.

(a) Fluid consistency coefficient, (b) Flow behavior index.

Fig. 4 より、 $0 \sim 3 \mu\text{s}$ における 1st ピークの減衰挙動を捉えることに成功した。さらにべき乗則変数である流動係数 K と流動性指数 n において、定性的な感度解析を行った。結果を Fig. 5 に示す。流動係数 K はピーク値のみに、また流動性指数 n はピーク値と減衰時定数に対して感度を示す結果が得られた。ピーク値に対して両変数は異なる感度を有していることから、2つを分離して解析することが可能であり、信号波形から流動曲線を直接算出できる可能性が示唆された。

4.2 降伏値を有する試料の測定結果および考察

液状食品の多くは降伏値を有していることから、Fig. 6 (a) に示す降伏値 τ_0 を有す PTB 非ニュートン流体標準液 NNFT1 を試料の測定を行った。試料の粘性率変化を検知するため、加熱光強度によってせん断速度を変化させた。もし試料がニュートン流体の場合、せん断速度 (\propto 加熱光強度) を変化させても信号波形は変化しない。1st ピークで正規化した信号波形を Fig. 6 (b) に示す。すると、2nd ピークが、加熱光強度に反比例して大きくなる結果が得られた。またせん断速度が大きく変化する条件(干渉縞間隔が小さい)において、その差がより顕著に現れ、試料の非ニュートン性の検知に成功したといえる。降伏値を有する試料においても粘性率変化を検知することができたことで、本測定法による液状食品の適用可能性を示すことができた。

5. 結論

- ◆ 測定の不確かさを低減し、広粘性率域におよぶニュートン流体の粘性率を、文献値との偏差 $\pm 10\%$ 程度で測定が可能となった。
- ◆ べき乗則流体の仮定を理論式に加えることで、非ニュートン流体試料より得られる信号波形を再現することが可能であることが示唆された。
- ◆ 降伏値を有す非ニュートン流体試料に対しても、信号波形の取得および粘性率変化の検知に成功した。

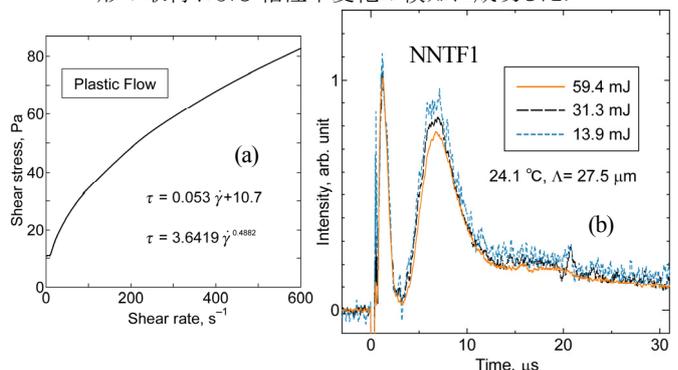


Fig. 5 (a) Flow curve for Non-Newtonian liquid NNFT1 at 20°C . (b) Detected signals of the sample.