近赤外吸収イメージング法を利用した マイクロ流路内水溶液の反応拡散現象の可視化*

川嶋 大介**, 角田 直人***

Visualization of Reaction-diffusion Phenomena of Aqueous Solutions in Microfluidic Channels Using Near-infrared Absorption Imaging Technique

Daisuke KAWASHIMA and Naoto KAKUTA

1. 緒 論

マイクロ流体チップを利用した微量試料の分析，化学合成，分離に関する研究が盛んに行われているが^{1, 2)}，流路構造の設計，流体の最適制御，反応・分離の評価には物質濃度と温度の計測が欠かせない．例えば，micro-PCR (Polymerase Chain Reaction) では区画ごとの温度制御による反応プロセスの最適化が求められる¹⁾．これまで様々な計測法が研究されてきたが，蛍光プローブを用いた手法³⁾に加えて，近年ではラマン分光法⁴⁾やインピーダンス分光法⁵⁾といったプローブ物質を必要としない技術も開発されている．一方，著者らは近赤外分光法を応用した濃度と温度のイメージングに取り組んできた⁶⁻⁸⁾．近赤外分光法は多くの分野ですでに広く用いられている分析法であるが，最近では，hyperspectral imaging と呼ばれる分光画像計測法⁹⁾の進展に伴い，新たな学術および応用分野を開拓しつつある．著者らのイメージング法の特徴は，溶質濃度と温度に対する水の近赤外吸収バンドのスペクトル変化を巧みに利用する点にあり，従来の手法や hyperspectral imaging に比べてイメージング速度に優れ，装置も簡略化しやすい．また，マイクロ流体チップの材料であるガラスや polydimethylsiloxane (PDMS) は近赤外光を透過するため，既製のマイクロ流体チップをそのまま使用できることも実用上の利点である．

本稿では，近赤外吸収イメージング法の原理と計測システムを解説し，代表的なアルコール，酸，アルカリ，塩の水溶液に関する濃度と温度の可視化結果を紹介する．分光イメージングデバイスには波長可変の音響光学式フィルタや液晶型フィルタ，回折格子式のライン走査デバイスなどがあるが，ここでは高速撮像およびコストの

点から光学バンドパスフィルタを用いた装置を紹介する．

2. 近赤外吸収イメージング法

2.1 測定原理

本節では，近赤外域における水の吸収スペクトルの特徴について概説する．近赤外域は一般に波長 $\lambda = 800$ nm から $\lambda = 2500$ nm までを指し，水の吸収バンドが複数存在する．Fig. 1 (a) は $\lambda = 1350 - 2150$ nm における水の吸収スペクトルであるが¹⁰⁾，およそ $\lambda = 1450$ nm, 1940 nm をピークとする 2 つの吸収バンドが観察される．ここで，縦軸の吸光度 A は入射光強度 I_0 と透過光強度 I を用いて次式で定義される（自然対数によって定義されるケースもあるが，ここでは常用対数を採用する）．

$$A = -\log_{10}[I(\lambda)/I_0(\lambda)] \quad (1)$$

吸収バンドは水分子の振動モードに対応しており， $\lambda = 1450$ nm の吸収バンドは対称伸縮振動 (ν_1) と逆対称伸縮振動 (ν_3) の結合音 ($\nu_1 + \nu_3$)， $\lambda = 1940$ nm は変角振動 (ν_2) と ν_3 の結合音 ($\nu_2 + \nu_3$) である^{11, 12)}．2 つの大きさは異なるため，マイクロ流路深さすなわち試料光路長 d に応じて使用する吸収バンドを選択する必要がある．大まかに言えば，水や希薄水溶液の場合， $\nu_1 + \nu_3$ バンドは $d = 0.1 - 1.0$ mm， $\nu_2 + \nu_3$ バンドは $d = 0.01 - 0.1$ mm での使用が適当である¹¹⁾．

Fig. 1 (a) は吸収バンドのスペクトルが温度 T に従って変化することも示している．温度上昇に従い，両バンドとも短波長側にシフトする．これは水分子間の水素結合状態に起因し，温度上昇により分子振動が活発になり，水素結合状態の水分子より自由水の側に平衡が移動すると解釈されている¹²⁾．同図には， $\lambda = 1850 - 2000$ nm の吸光度差 ΔA も示した．ここで， ΔA は

$$\Delta A(\lambda) = A(\lambda) - A_{ref}(\lambda) = -\log_{10}[I(\lambda)/I_{ref}(\lambda)] \quad (2)$$

で定義され，基準透過光強度 I_{ref} には温度 16℃ の I を用いた． ΔA は $\lambda = 1905$ nm で極大値を示し，1935 nm で変化のない等吸収点が存在する．次に 1 成分水溶液の一例としてエタノール水溶液の濃度ごとの $A(\lambda)$ を Fig. 1 (b) に示す．エタノール濃度の増加とともに，吸収バン

* 原稿受付 2019 年 3 月 15 日

** 正会員 千葉大学 大学院工学研究院
(〒263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33,
E-mail: dkawa@chiba-u.jp)

*** 正会員 首都大学東京 大学院システムデザイン研究科

Fig. 1 (a) Absorption spectra of water at 16.0, 24.0, 32.0 and 40.0 °C. The arrows indicate the direction of temperature increase. The inset shows the absorbance difference spectra of water from 16.0 °C to 44.0 °C with a step of 4.0 °C, where the reference temperature is 16.0 °C. The optical path length is 0.1 mm. The vertical dotted lines indicate the wavelengths of 1905 nm and 1935 nm. (b) Absorption spectra of ethanol/water mixtures with varying the ethanol mass fraction from 0 wt% to 100 wt% with a step of 10 wt% at 16.0 °C. Reproduced from Ref. 10.

ドにおける A が単調に減少することが分かる。水溶液の場合、 A は水と溶質の吸収分の和として、次のように表すことができる。

$$A(\lambda, T, c_e) = \mu(\lambda, T, c_e) d \log_{10} e \quad (3)$$

$$\mu(\lambda, T, c_e) = \varepsilon_w(\lambda, T, c_e) c_w + \varepsilon_e(\lambda, T, c_e) c_e \quad (4)$$

ここで、 μ は水溶液の吸収係数 [mm^{-1}]、 c はモル濃度 [M]、 ε はモル吸収係数 [$\text{mm}^{-1} \text{mol}^{-1}$] であり、下添字の w と e はそれぞれ水と溶質（ここではエタノール）を表す。Fig. 1 (b) の純水と純エタノールのスペクトルから明らかなように、水の吸収バンドでは $\varepsilon_w \gg \varepsilon_e$ であるため、 A の変化は水分子の体積分率またはエタノール濃度が支配的な因子となり、変化量はエタノール固有の吸収バンド ($\lambda = 1700 \text{ nm}$ 付近) のそれよりも大きい。つまり、近赤外域でそれ自体の吸収がほとんどない溶質や希薄水溶液でも水の吸収バンドを利用することによ

て測定が可能になる。このとき、 ΔA は ΔT と Δc_e を用いて次のように表すことができる。

$$\Delta A(\lambda) = [\alpha_T(\lambda) \Delta T + \alpha_c(\lambda) \Delta c_e] d \quad (5)$$

$$\alpha_T(\lambda) = \left(\frac{\partial \mu(\lambda)}{\partial T} \right)_{c_e} \log_{10} e, \quad (6)$$

$$\alpha_c(\lambda) = \left(\frac{\partial \mu(\lambda)}{\partial c_e} \right)_T \log_{10} e$$

式(5)は ΔA が ΔT と Δc_e の線形和で表せることを意味しており、係数 α_T 、 α_c はある程度限定された温度と濃度の範囲であれば定数としてよい。厳密には、水-溶質間の相互作用すなわち水和の影響によって、 μ は c_e に対する非線形的な関数であるため¹³⁾、大きく変動する c_e の正確な定量には注意が必要である。これらの係数を決定する際には、適切な波長を選択する必要があるが、先に示した温度変化に対して極大値を取る波長 ($\lambda = 1905 \text{ nm}$) と等吸収点 ($\lambda = 1935 \text{ nm}$) を利用するのがよい。等吸収点を利用する理由は、 $\alpha_T = 0$ より式(5)を2波長で連立して解く際に生じる共線性を回避でき、かつ吸収バンドのピーク波長であり α_c が最も大きくなるためである。著者らは、常温の $0 < c_i < 0.21 \text{ M}$ のエタノール水溶液において $\lambda = 1905 \text{ nm}$ で $\alpha_T = 0.022 \text{ mm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 、 $\alpha_c = -0.443 \text{ mm}^{-1} \cdot \text{M}^{-1}$ 、 $\lambda = 1935 \text{ nm}$ で $\alpha_c = -0.378 \text{ mm}^{-1} \cdot \text{M}^{-1}$ と求めている¹⁰⁾。

2成分以上の水溶液の場合においても特徴的な波長を見出す必要があるが、スペクトルデータに統計分析処理(ケモメトリックスとも呼ばれる)を用いることも有効である。これについては4節で述べる。

2.2 イメージング装置

近赤外吸収イメージングシステムは従来の透過型の吸光法に基づいて設計できるため、光学系は比較的単純化でき、一般の光学顕微鏡と組み合わせることも容易である。Fig. 2 にシステムの一例を示す^{6), 10)}。この例では、白色光から特定の2波長を抽出し、イメージングセンサ

Fig. 2 Illustration of dual-wavelength imaging system. A microfluidic chip was irradiated with two light beams at the wavelengths of 1905 nm and 1935 nm alternately by using NBPFs and a rotating chopper disk. The transmitted images are acquired by a NIR camera, synchronized with the timing of irradiation. Reproduced from Ref. 10.

に一定周期で交互に検出する方法を採用している．具体的には，2つのハロゲンランプからの光をピーク波長 1905 nm と 1935 nm の狭帯域バンドパスフィルタ (NBPF) を通している．NBPF の半値全幅は小さい方が望ましいが，10 nm 程度であれば多くの波長で既製品が存在する．また，NBPF のみでは広帯域の光吸収による熱ダメージを受けるため，ハロゲン光源と NBPF の間に $\lambda = 1600 - 2200$ nm のバンドパスフィルタ (BPF) を挿入した．2つの光束はチョッパにより一定の時間遅れをもって交互に顕微鏡内へと入射され，試料の透過光が近赤外カメラに検知される．近赤外カメラは感度波長 1000 - 2350 nm の InGaAsII 素子のカメラ (CV-N800, 住友電工) を用いた．照射タイミングと同期するためにチョッパから出力される TTL 信号をもとにパルスジェネレータによってトリガー信号を生成し，カメラに入力している．なお，波長を増やしたい場合には，NBPF を取り付けたレボルバを回転させる方法や光音響素子を用いた方法も採用できる．

3. 拡散現象の可視化と温度依存性

3.1 温度・濃度同時イメージング

近赤外吸収イメージングの一例としてエタノール水溶液の温度・濃度同時イメージングについて紹介する．用いたイメージングシステムは Fig. 2 に示したとおりであり，NBPF の中心波長は 1905 nm と 1935 nm である．Fig. 3 に示す Y 字型マイクロ流路に一定流量で水とエタノール水溶液を流し，物質拡散による濃度分布を安定形成させた．このときディスクヒーターによってチップ全体が温度制御されており， $T_{set} = 16 - 44$ K で調整した．

Fig. 4 は $T_{set} = 16, 27$ K のときのエタノール濃度分布 $c_e(x, y)$ と温度分布 $T(x, y)$ である． $T(x, y)$ は流路全域にわたってほぼ一様となり，これは全体加熱されていることと水の熱拡散率が比較的大きいためである．一方， $c_e(x, y)$ では水と水溶液の領域が左右で明瞭に区別されるものの，上流から下流にかけて混合領域が x 方向に広

Fig. 3 Schematic showing a PDMS/glass microfluidic chip with a Y-channel. Water flowing in Branch A was heated by an electrical tape heater and film heater. The temperature of the whole chip was controlled by a disk heater. Reproduced from Ref. 10.

Fig. 4 (a) Images of the ethanol concentration, c_e , and the temperature, T , at the whole chip temperatures of 16 °C and 27 °C when water and ethanol/water mixture with $c_e = 0.43$ M (2.0 wt%) flowed in the main channel through Branch A and Branch B, respectively. (b) Transverse line profiles of c at three positions ($y = 0.2, 1.2$ and 2.2 mm). For comparison, numerically calculated line profiles are also shown by dashed curves, where the diffusion coefficients of $0.91 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ and $1.30 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ for 16 °C and 27 °C, respectively, were used. Reproduced from Ref. 10.

がっていくことが分かる．また， $T_{set} = 27$ K の方が広がりも大きく，拡散が早く進行したことが示されている．

3.2 拡散係数の温度依存性

Fig. 4 の $c_e(x, y)$ からは物質拡散係数 D [m^2/s] を算出することができる．そのために以下に示す移流拡散方程式 (7) をもとに解析解 (式 (8)) を求めた¹⁴⁾．

$$D \frac{\partial^2 c_e(x, y)}{\partial x^2} - u_y \frac{\partial c_e(x, y)}{\partial y} = 0 \quad (7)$$

$$c_e(x, y) = \frac{c_0}{2} \text{erfc}\left(\frac{x - x_0}{2\sigma}\right) \quad (8)$$

ただし，

$$\sigma^2 = D_t = \frac{D}{u_y} (y - y_0) \quad (9)$$

ここで, u_y は y 方向の平均流速, x_0 は流路幅中心の x 座標, y_0 は合流直後の y 座標である. この算出法は, 一様な u_y の押し出し流れにおいて x 方向のみ拡散が生じるとした仮定に基づいており, 初期すなわち合流前の濃度分布がステップ関数 ($c=c_0$ for $x \leq x_0$; $c=0$ for $x > x_0$) のときに得られる式 (8) と測定値をフィッティングすることで D を決定する. マイクロ流体研究では比較的良好に用いられる算出法であるが, 本イ

メージング法の利点は, 2 次元的なフィッティングが可能であるため信頼性の高い推定ができることと, 同時に得られる T を参照できることである. こうして得たエタノール水溶液の D の T に関するプロット¹⁶⁾ を Fig. 5 に示す. 温度 T が上昇すると線形的に D が上昇することが確認できる. また, 他のアルコールや糖についても D と T の関係を求めており¹⁶⁾, これらの結果は他の文献値およびストークス・アインシュタイン式とも矛盾がなく, 計測の妥当性を保証している.

4. 酸・アルカリ中和反応の可視化

4.1 近赤外吸収スペクトル

代表的な化学反応の一つである酸・アルカリ中和反応の可視化結果を紹介する. Fig. 6 (a) に, $\lambda=1250-1650$ nm における HCl, NaOH, NaCl 水溶液の吸収スペクトルを示す. これらの吸収スペクトルの顕著な違いとして, 次の二点があげられる. 一点目は, HCl と NaOH では, $\lambda=1520$ nm において濃度によらない等吸収点が存在するが, NaCl では観察されず, A は濃度と共に減少する. この差異は Fig. 6 (b) に示す ΔA スペクトルでより明瞭に確認される. この等吸収点は, H^+ や OH^- の存在に起因する. これらのイオンは, NaCl 同様, 水分子間の水素結合に影響を与えるが, イオン自体も水分子との水

Fig. 5 D plots of methanol in water as functions of T . The literature values are plotted for comparison. Reproduced from Ref. 16.

Fig. 6 (a) Absorbance spectra of aqueous solutions of HCl (left), NaOH (center), and NaCl (right) with the concentrations of 0, 0.2, 0.5, 1.0, and 2.0 M at the temperature of 20 °C. (b) Absorbance difference spectra of aqueous solutions of HCl, NaOH and NaCl with the concentrations of 0.2, 0.5, 1.0, and 2.0 M at the temperature of 20 °C. The reference is the absorbance of pure water (0 M). The vertical dashed line in each graph indicates the wavelength of 1520 nm. Reproduced from Ref. 17.

素結合を形成するため、NaCl とは異なるスペクトル変化を生じる。二点目は、HCl と NaOH では濃度上昇により $\lambda=1442$ nm のピーク付近の A が全体的に減少するのに対して、NaCl では A の減少に加えてピークが短波長側にシフトすることである。水の吸収バンドは、複数の水素結合種に帰属されるサブバンドのコンボリューションと解釈されており¹⁵⁾、NaCl で短波長シフトした原因は、自由水の割合が水素結合水と比較して相対的に増加したためと考えられる。

以上の特徴から、まず、等吸収点 ($\lambda=1520$ nm) のみを利用することで中和反応時の NaCl 濃度を計測・イメージングできることが分かる¹⁷⁾。単一波長計測は実用性に優れるため、このように等吸収点を見出すことはスペクトル分析における基本方針ともいえる。NaCl と同時に HCl と NaOH を濃度イメージングする場合は、特徴的な波長をさらに加えて濃度変換モデルを構築することになるが、選定波長の妥当性の検証にはステップワイズや主成分分析などの統計手法を利用するのがよい。今回のケースでは、 $\lambda=1520$ nm に加えて、 1412 nm (HCl のピーク波長でかつ NaOH ではほとんど変化しない) と 1442 nm を容易に見出すことができるため、これら 3 波長の重回帰による画像演算により濃度イメージングを行った¹⁸⁾。用いた装置の Fig. 2 と異なる点は、1つのハロゲン光源と、3つの NBPF を取り付けけた回転レボラを用いた点である。

4.2 濃度イメージング結果

Fig. 7 は、 2.0 M の HCl (流路上側) と NaOH (下側) を Y 字マイクロ流路に流して合流させたときの各成分の濃度画像である。Fig. 7 (a), (b) では、流れ方向 (x 方向) に沿った流路中央付近 ($y \sim 0$ mm) において HCl と NaOH が接触し、その界面で両溶液とも濃度が低くなっていることから、中和反応が生じたことがわかる。また、Fig. 7 (c) より NaCl 濃度が接触界面より生成し、 y 方向に拡散している様子が可視化されている。

Fig. 8 は $x=5.7$ mm における y 方向の濃度プロファイルである。中和反応の反応速度定数は $k=10^9$ M⁻¹s⁻¹ 程度であり¹⁹⁾、速やかに反応を完了することから、HCl

Fig. 8 Concentration profiles of the three solutions along A-A' line shown in Fig. 7. Reproduced from Ref. 18.

と NaOH の接触と同時に NaCl が生成し、反応は拡散律速として進行していることが示唆されている。言い換えると、NaCl の周囲への拡散が生成と釣り合っており、その領域に供給される HCl と NaOH についても相互拡散により NaCl と同程度の拡散輸送量となるため、そのような釣り合いが成り立つと考えられる。また、流路中央の NaCl 濃度は、設定された HCl と NaOH 濃度のおよそ半値を示した。これは化学量論的に生成塩のモル数は反応物のそれと等しいが、体積が 2 倍になるためである。このとき同時に H₂O も生成するが、溶媒としての水が元々多量に存在するため、水の体積分率変化はおよそ 2 % と小さく、濃度への影響はほとんどない。

5. おわりに

本稿では、近赤外吸収イメージング法の基礎原理と装置を解説し、可視化および解析結果の一例を紹介した。近赤外域に現れる水の吸収スペクトルは溶質種や温度ごとにユニークなものであるため、本稿で紹介した以外の水溶液や反応系にも本方法は応用可能である。そのためのスペクトルデータと濃度変換モデルの提供が著者らの今後の課題のひとつと考えている。本方法はシンプルな光学系および画像処理系が特長であるが、普及にはハードウェアの低価格化と使いやすさが求められる。分光照射光源については、音響光學式フィルタや液晶型フィル

Fig. 7 Concentration images of (a) HCl, (b) NaOH, and (c) NaCl. Reproduced from Ref. 18.

タなどの任意波長を選択できるデバイスが今後入手しやすくなるかもしれない。近赤外カメラについては、現状、波長 900–1700 nm に感度を有する InGaAs カメラは比較的低価格で機種も多い。一方、波長 1900 nm 帯をカバーする感光素子は未だ高価であるが、一般的なマイクロ流路深さである 0.01–0.1 mm の測定に適していることを考えると、将来的に主要な分析波長帯になる可能性がある。また、可視域のようなハイスピードで撮像できる近赤外カメラも今後期待され、その辺りの環境が整えば、本方法による可視化の対象がさらに広がっていくと期待する。

謝 辞

本研究を進めるにあたりご指導を頂きました電気通信大学の山田幸生先生に深く感謝を申し上げます。また、実験、解析に協力頂きました山下大樹氏、大畑俊哉氏に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) Elvira, K. S., Solvas, X. C., Wootton, R. C. R., A. J. deMello : The past, present and potential for microfluidic reactor technology in chemical synthesis, *Nat. Chem.*, Vol.5 (2013) pp.905–915.
- 2) Jensen, K. F., Reizman, B. J., Newman, S. G., Tools for chemical synthesis in microsystems, *Lab Chip*, Vol.14 (2014) pp.3206–3212.
- 3) Hoffmann, M., Schlüter, M., Rübiger, N. : Experimental investigation of liquid-liquid mixing in T-shaped micro-mixers using LIF and PIV, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.61 (2006) pp.2968–2976.
- 4) Kuriyama, R., Sato, Y. : An investigation of measurement condition for non-intrusive velocity determination based on thermal tracing by Raman imaging, *J. Therm. Sci. Tech.-Jpn.*, Vol.9, Issue 2 (2014), p.JTST0014.
- 5) Liu, X., Zhao, T., Obara, H., Cui, Y., Takei, M. : Image reconstruction under contact impedance effect in micro electrical impedance tomography sensors, *IEEE Trans. Biomed. Circuits Syst.*, Vol.12, 3 (2018), pp.623–631.
- 6) Kakuta, N., Fukuhara, Y., Kondo, K., Arimoto, H., Yamada, Y. : Temperature imaging of water in a microchannel using thermal sensitivity of near-infrared absorption, *Lab Chip*, Vol.11 (2011), pp.3479–3486.
- 7) Kakuta, N., Nishijima, K., Kondo, K., Yamada, Y. : Near-infrared measurement of water temperature near a 1-mm-diameter magnetic sphere and its heat generation rate under induction heating, *J. Appl. Phys.*, Vol.121 (2017) 044901.
- 8) 角田直人, 近藤克哉, 有本英伸, 山田幸生 : 水の近赤外吸収特性を利用した非接触温度イメージング, システム制御情報学会誌, Vol.57, No.12 (2013), pp.493–498.
- 9) Manley, M. : Near-infrared spectroscopy and hyperspectral imaging: Non-destructive analysis of biological materials, *Chem. Soc. Rev.*, Vol.43, Issue 24 (2014) pp.8200–8214.
- 10) Kakuta, N., Yamashita, H., Kawashima, D., Kondo, K., Arimoto, H., Yamada, Y. : Simultaneous imaging of temperature and concentration of ethanol-water mixtures in microchannel using near-infrared dual-wavelength absorption technique, *Meas. Sci. Technol.*, Vol.27 (2016) 115401.
- 11) Libnau, F.O., Kvalheim, O.M., Christy, A.A., Toft, J. : Spectra of water in the near-and mid-infrared region, *Vib. Spectrosc.*, Vol.7, Issue 3 (1994) pp.243–254.
- 12) Segtnan, V. H., Šašić, Š., Isaksson, T., Ozaki, Y. : Studies on the structure of water using two-dimensional near-infrared correlation spectroscopy and principal component analysis, *Anal. Chem.*, Vol.73, No.13 (2001) pp.3153–3161.
- 13) Onori, G., Santucci, A. : Dynamical and structural properties of water/alcohol mixtures, *J. Mol. Liq.*, Vol.69 (1996) pp.161–181.
- 14) Kirby, B. J. : *Micro-and Nanoscale Fluid Mechanics*, Cambridge University Press (2010).
- 15) Šašić, Š., Segtnan, V. H., Ozaki, Y. : Self-modeling curve resolution study of temperature-dependent near-infrared spectra of water and the investigation of water structure, *J. Phys. Chem. A*, Vol.106, No.5 (2002) pp.760–766.
- 16) Yamashita, H., Kakuta, N., Kawashima, D., Yamada, Y., Measurement of temperature-dependent diffusion coefficients of aqueous solutions by near-infrared simultaneous imaging of temperature and concentration, *Biomed. Phys. Eng. Express*, Vol.4, No.3 (2018), p.035030.
- 17) 川嶋大介, 角田直人, 有本英伸, 近藤克哉, 山田幸生, 近赤外域の単一波長を利用した中和反応で生成する塩濃度の可視化, 可視化情報学会論文集, Vol.36, No.12 (2016) pp.62–70.
- 18) 大畑俊哉, 角田直人, 川嶋大介, 山田幸生, マイクロ流路内の中和反応における反応・生成物の濃度イメージング, 第45回可視化情報シンポジウム(2017.7), F103.
- 19) Buxton, G. V., Greenstock, C. L., Helman, W. P., Ross, A. B. : Critical review of rate constants for reactions of hydrated electrons, hydrogen atoms and hydroxyl radicals (OH/O⁻) in aqueous solution, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol.17, No.2 (1988), pp.513–886.
- 20) Gary-Bobo, C., Weber, H. W. : Diffusion of alcohols and amides in water from 4 to 37°, *J. Phys. Chem.*, Vol.73, Issue 4 (1969) pp.1155–1156.
- 21) Pratt, K. C., Wakeham, A. : The mutual diffusion coefficient of ethanol-water mixtures: determination by a rapid, new method, *Proc. Royal Soc. A*, Vol.336, Issue 1606 (1974) pp.393–406.
- 22) Easta, A. J., Woolf, L. A., Pressure and temperature dependence of tracer diffusion coefficients of methanol, ethanol, acetonitrile, and formamide in water, *J. Phys. Chem.*, Vol.89, No.7 (1985) pp.1066–1069.