

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760124

研究課題名(和文) 感圧・感温塗料によるマイクロ気液二相流の計測

研究課題名(英文) Measurements of Micro Scale Gas-Liquid Two Phase Flows

研究代表者：

松田 佑 (MATSUDA YU)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：20402513

研究成果の概要(和文)：近年、注目を集めるマイクロ熱流体デバイス内部での流体现象の解明を可能とする計測法を開発するため、酸素分子との相互作用あるいは雰囲気温度によって発光強度が変わる色素分子をプローブとした感圧塗料(PSP)、感温塗料(TSP)によるマイクロスケール計測法の確立を行った。また気液二相状態にも適用可能とするため、従来空気中での使用に限定されていたPSPの液中での特性評価を行った。さらにPSP・TSPの同時計測を可能とする複合センサーの開発に取り組んだ。

研究成果の概要(英文)：It is desired to understand thermo-fluid phenomena inside micro-devices. In this study, a measurement technique based on the pressure- and temperature-sensitive paint technique was studied. Firstly, the technique applicable to micro scale measurement was developed. Secondary, characteristics of PSP, which has been generally used in gas phase, in liquid phase were investigated. Moreover, the dual sensor of PSP and TSP was studied.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：流体工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：感圧塗料, 感温塗料, 可視化計測, マイクロ流れ

## 1. 研究開始当初の背景

近年、医療および環境測定分野から分析の簡素化、高速分析が可能な $\mu$ TASの実用化が切望されており、またノート型PCあるいは携帯電話の電源としてPowerMEMSのもつ高いエネルギー密度の優位性が注目され、このようなマイクロ熱流体デバイスの研究開発が盛んに行われている。マイクロ熱流体デバイスでは流体が重要な役割を果たし、流体をデバイス内でいかにハンドリングするかによって、その性能が大きく左右される。このため、高性能かつ高信頼性のデバイスを開発するには、マイクロデバイス内での流体挙動を理解するための流体計測法が必要とな

る。本研究では、これまで気体流の計測に用いられてきた感圧塗料(PSP)及び感温塗料(TSP)に着目する。PSPは色素分子と酸素分子の相互作用、TSPは色素分子の熱的失活に基づいた計測手法であり、気相・液相を問わず適用でき、気液二相流への適用可能性も高いと考えられる。またPSPは従来気体流の圧力計測に用いられてきたが、その原理から気相・液相を問わず酸素濃度計測法としての応用が期待できる。またTSPは温度の計測が行え、従来のマイクロ流れの計測手法と異なる物理量の計測が可能である。さらにPSP、TSPは点(1次元)での情報しか得られない圧力計や熱電対と異なり、塗料を塗布し

た面(2次元)での物理量の取得が可能であり、その有用性、汎用性及び応用分野は極めて広い。

## 2. 研究の目的

(1) マイクロスケールでの気体流計測手法の確立を行う。本研究では、マイクロスケールでのPSPによる計測を目的としているが、これまでにPSPで達成されている空間分解能は数100 $\mu\text{m}$ であり、現在のPSP計測技術によっては、マイクロスケールでの計測は不可能である。そこで、本研究ではまず、PSPを高秩序分子膜化した感圧分子膜(PSMF)によってマイクロスケールでの気体流れ計測手法の確立を目指す。

(2) PSPによる気体中での酸素濃度計測手法の確立を行う。PSPは色素分子と酸素分子間の酸素消光という相互作用に基づく計測手法であり、PSPからの発光強度はPSP膜内に浸透している酸素分子数に依存する。従来のPSPでは、PSP内の酸素分子数が境界層内では静圧に比例するという関係(ヘンリーの法則)から圧力を計測している。本研究ではPSPの発光強度とPSP内に溶解している酸素分子数の依存性という計測法の原点に立ち返って酸素濃度を計測することに注目し、非定常に変化する酸素濃度場計測を行う。

(3) 気体流の計測に用いられてきたPSP, TSPの液体中での適用法を確立する。PSP, TSPは機械的強度が強く、非常に安定な膜で構成されていることから、液体流中に適用する際にも大きな問題は無いと考えられる。本研究では主に気体流の計測に用いられてきたPSPとTSPを気液二相流の計測に適用するため、液体中で適切な酸素濃度感度、温度感度及び物性を持つ色素分子と、色素分子を模型上に保持するためのバインダーの組み合わせを決定することが重要となる。本研究では種々の色素分子とバインダーに対し、液体中での酸素濃度感度、温度感度の調査を行い多様な実験条件に対応し得る色素とバインダーの組み合わせを調査する。

## 3. 研究の方法

(1) PSMFによってマイクロスケールでの気体流れ計測手法の確立を目指し、マイクロスケールにおいても十分なSN比の確保が可能なPSMFの開発を行い、その特性評価及び最適化を行う。また、実際にベンチマークとなるような単純形状の流路内においてマイクロスケールでの気体流れの計測を行い、数値シミュレーション結果との比較を行う。

(2) 非定常に変化する酸素濃度分布を、空気と窒素の混合する流路において酸素濃度分布計測を行う。さらに種々の流入条件において計測を行い、流動場の構造を明らかにする。

(3) PSP, TSPは現在まで主に気体流の計測に用いられてきた。気液二相流での酸素濃度分布及び温度分布計測へPSP, TSPを適用するにあたり、液体中においても利用でき、かつ十分な精度の計測が行えるよう高い酸素濃度感度、温度感度を有するPSP, TSPを開発する必要がある。そのために液体中でのPSPの酸素濃度感度、計測可能な濃度範囲などの基礎特性を調査するための実験系を構築し、様々な種類の色素とバインダーの組み合わせに対して試験を行う。具体的には液体中の酸素濃度を変化させ、PSPの発光強度の濃度依存性を調査する。またTSPに関して、気体中での特性評価により新規の色素分子の選定を行った。

## 4. 研究成果

(1) PSMFは分子膜であり、その発光強度が極めて小さく、高SN比でのマイクロスケールでの計測は困難であった。そこで、本研究では、PSMFとその基板の間に、アラキジン酸分子膜のバッファー層を設けることにより、励起状態にあるPSMF内の色素分子から基板へのエネルギー散逸を抑制し、PSMFの発光強度の向上を実現した(図1)。

また開発したPSMFにより、スロート幅90 $\mu\text{m}$ のマイクロコニカルノズル内を流れる気体流の圧力分布計測を行った。結果を図2に示す。図2(a)の上側がPSMFによる計測結果であり、直接シミュレーションモンテカルロ法(DSMC)によって計算した結果を図2の下側に示した。またノズル中心部での圧力分布を図2(b)に示した。図2からPSMFとDSMCによる結果は非常に良く一致し、PSMFによるマイクロ気体流計測の妥当性が示された。本成果は、マイクロ気体流れでの圧力分布計測を始めて可能にした例であり、極めて卓越した成果である。

(2) 色素分子にPlatinum(II)-tetrakis(pentafluorophenyl) porphyrin (PtTFPP)を、バインダーにpoly(1-trimethylsilyl-1-propyne) (poly(TMSP))を用いた。また塗布量は膜厚が1.5 $\mu\text{m}$ 程度となるように決定し、PSP塗布後の膜厚はレーザー顕微鏡(VK-9510, キーエンス)によって計測した結果、膜厚は平均1.2 $\mu\text{m}$ 、PSP膜の表面粗さはRMS値で0.3 $\mu\text{m}$ であった。PSPの時間応答特性はPSPの膜厚及びバインダー内での酸素の拡散係数に依存することが知られており、本PSPの時間応答は6.7msec程度より短い。図3に示す形状の混合流路において、一方から乾燥空気(酸素

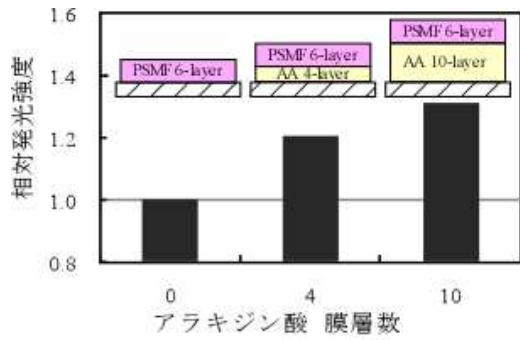
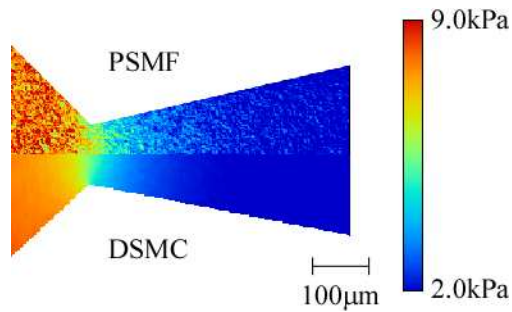
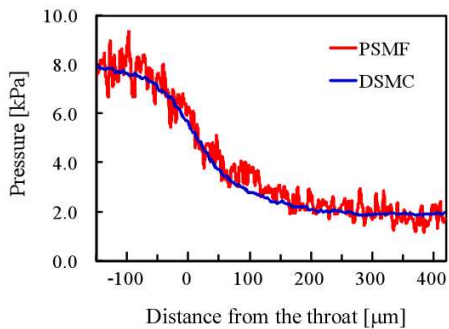


図1 アラキジン層添加による PSMF の発光強度の増大



(a) ノズル内の圧力分布(PSMF, DSMC)



(b) ノズル中心軸上での圧力分布

図2 マイクロノズル内の圧力分布

濃度 21%), もう一方から窒素を流入させた際の混合室内の酸素濃度の様子を図4に示す. 図4には, 流入条件としてレイノルズ数(Re)が  $Re=1100$  の様子を示す. このとき, 空気と窒素の混合界面が周期的に振動する様子を計測した. また時系列で得られた酸素濃度分布に対し, フーリエ変換処理を行うことにより, この界面での振動は  $0.5\text{-}1.5\text{Hz}$  程度の周期のものであることが分かった(図5参照). 以上から, PSPにより, 非定常に変化する酸素濃度分布計測が可能であることが示された.

(3) 水中で使用可能なPSPの開発を行う. ただし, 将来的な気液二相流中での計測を念頭に, これまで用いてきたPSPの構成をベースにする. そこで本研究では, 色素分子にPtTFPP, バインダーとして3種類のポリマー poly(TMSP), poly(IBM-co-TFEM), poly(4-tert-butylstyrene)を用いたPSPを

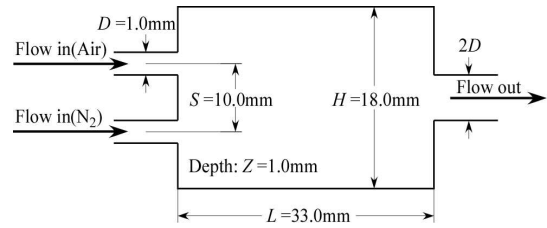


図3 混合流路の形状

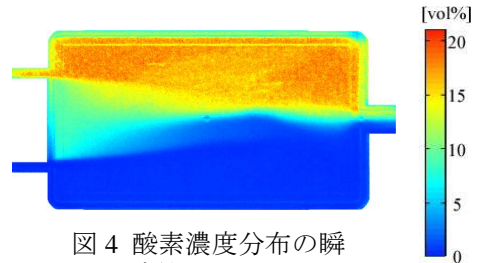


図4 酸素濃度分布の瞬時値( $Re=1100$ )

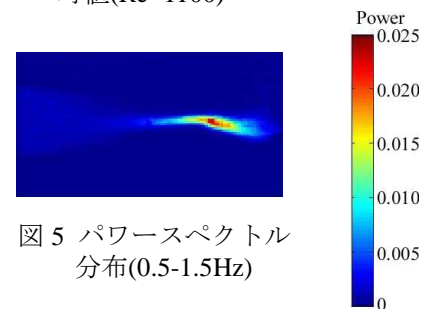


図5 パワースペクトル分布(0.5-1.5Hz)

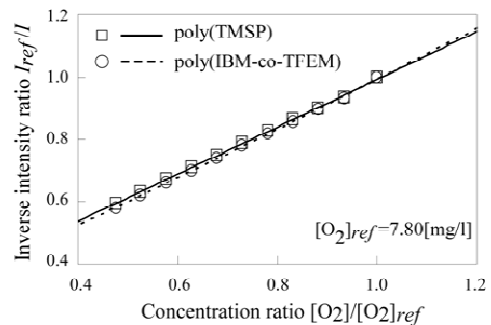


図6 酸素濃度変化によるPSP発光強度の変化の様子

作製した. それぞれシリコン系, フッ素系, スチレン系ポリマーである. これらを溶媒としてトルエンを用い, スプレーによりスライドガラスに塗布した. 実験装置には酸素濃度可変の水槽を設置し, その中にPSPサンプルを設置したものをを用いた. 実験に使用した3種類のポリマーのうち poly(4-tert-butylstyrene)をバインダーとして用いたPSPは水中に入れてすぐにPSP層がスライドガラスから剥離した. いくつかのサンプルで同様の結果だったため, 水中での使用には不適と考えられる. 図6に poly(TMSP), および poly(IBM-co-TFEM)の Stern-Volmer plotを示す. 図6における横軸は溶存酸素濃度の比 $[O_2]/[O_2]_{ref}$ であり, 縦軸は発光強度の

逆比  $I_{ref}/I$  である。測定データを近似した直線を併せて図示した。このとき poly(TMSP) をフィッティングした直線の傾き、すなわち酸素濃感度は 0.76, poly(IBM-co-TFEM) をフィッティングした直線の傾きは 0.78 であり、ほぼ同程度の感度を示すことが分かった。図 6 より、2 種類のポリマーをバインダーとして用いた PSP はどちらについても今回調査した溶存酸素濃度の範囲では線形性が高く、酸素濃度感度も同程度であるという結果となった。次に、空間的な発光強度のばらつきについて考える。発光強度のばらつきは空間分解能や計測精度に直結するため重要である。調査範囲は CCD カメラの撮像画像において  $150 \times 150$  ピクセル(実際のサンプル上では  $17.3 \times 17.3 \text{ mm}^2$ )とした。まず各計測点におけるピクセル毎の発光強度の値から算術平均および標準偏差を算出する。その後、標準偏差を発光強度の算術平均で除した値(変動係数)について 2 種類のポリマーで比較する。各計測点で得られた変動係数の平均値は、poly(TMSP)では 0.07, poly(IBM-co-TFEM)では 0.12 であった。この結果から poly(TMSP)の方が空間的な発光強度のばらつきが小さくより一様に発光していることが明らかとなった。以上の結果から、今回の調査範囲では、poly(TMSP)がバインダーとして最も適していることが分かった。これは、気体中で酸素濃度分布計測に使用した PSP, PtTFPP/poly(TMSP)がそのまま液体中においても優れた特性を示すことを意味しており、極めて重要な知見である。

TSP に関しては、従来から多くの研究が行われているが、本研究の最終目的となる、PSP 及び TSP による酸素濃度・温度分布の同時計測を達成するには、困難を伴う。PSP, TSP は共に発光強度の変化を計測する手法であるため、PSP 及び TSP からの発光を分離して計測する必要があるが、これまでに報告例のある PSP/TSP の複合センサーは、PSP と TSP の発光波長に重複があるため、計測精度の低下が予測される。そこで本研究では、量子ドットを TSP の色素とすることを検討した。量子ドットは、作製段階において、発光波長をコントロールでき、かつシャープな発光スペクトルを持つものとして知られ、その発光を PSP の発光と分離することが容易であり、なおかつ PSP 毎に適切な波長のものを選ぶことが可能である。さらに広範な波長の光によって励起状態に遷移させることができるため、PSP と励起光源を同一にすることができ、実用上にも適している。そこで、本研究では量子ドットを TSP 化するにあたり、その温度特性の調査を行った。実験装置は図 1 とほぼ同様のものであり、本実験では流路に替え、温度可変のチャンバー内にサンプルを設置した。サンプルには量子ドットと

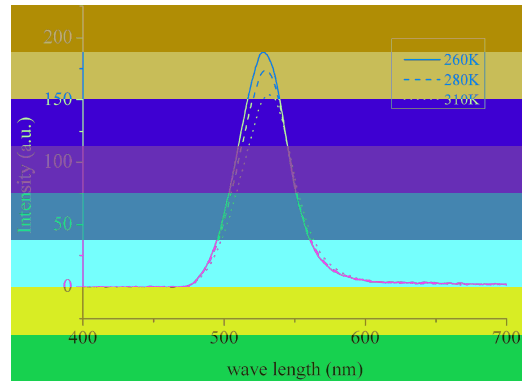


図 7 TSP の発光スペクトル(CdSe/Zns)

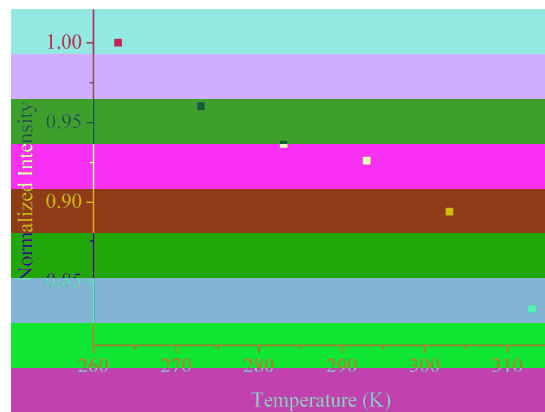


図 8 TSP の発光強度の温度依存性

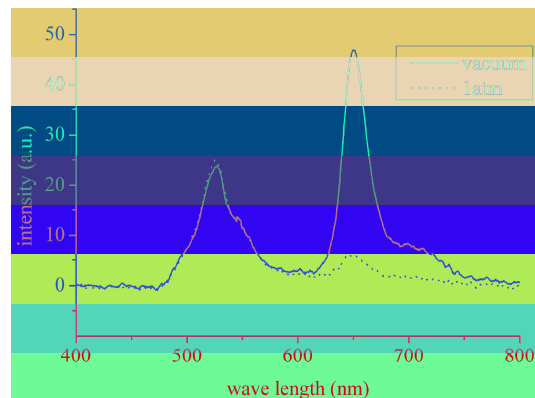


図 9 PSP/TSP 複合塗料の発光スペクトル

して CdSe/ZnS 530(Aldrich 社)を用い、これを TLC プレートに堆積したものを用いた。

図 7 にこの TSP の発光スペクトルを、図 8 に発光強度の温度依存性を示す。図 13 から、この TSP が 530nm をピーク中心に比較的シャープな発光を有することが確認できる。さらに温度の上昇に伴い、強度が低下し、かつピーク波長が長波長へシフトする様子が確認できる。また図 8 から、本研究で用いた量子ドット TSP はおよそ 1%/K の温度感度を有しており、実用上十分な感度であることを確認した。また、この TSP に感圧色素として

PtTFPP を加えて PSP/TSP 複合センサーを作製した。その発光スペクトルを図 9 に示す。図は大気圧下及び真空下での発光スペクトルを示している。PtTFPP の発光は 670nm にピークを持ち、圧力に応じて変化していることが分かる。一方、TSP の方は圧力に関して変化せず、さらに PSP の発光と重複していないことが確認できる。これは本研究において確認した色素の組み合わせにおいて、PSP/TSP の複合化が可能であることを意味しており、重要な知見である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① Y. Matsuda, T. Uchida, S. Suzuki, R. Misaki, H. Yamaguchi, T. Niimi, Pressure-sensitive molecular film for investigation of micro gas flows, *Microfluidics and Nanofluidics*, 査読有, Vol. 10, No. 1, 2011, pp. 165-171.
- ② Y. Matsuda, H. Mori, Y. Sakazaki, T. Uchida, S. Suzuki, H. Yamaguchi, T. Niimi, Extension and characterization of pressure-sensitive molecular film, *Experiments in Fluids*, 査読有, Vol. 47, No. 6, 2009, pp.1025-1032.
- ③ 松田佑, 林田将也, 長島史裕, 山口浩樹, 新美智秀, 酸素感応色素を用いた混合流路内酸素濃度分布の計測 第 2 報 流路形状が臨界 Reynolds 数に与える影響, 可視化情報学会論文集, 査読有, Vol.29, No. 10, 2009, pp. 51-57.
- ④ T. Niimi, H. Mori, H. Yamaguchi, Y. Matsuda, Experimental analyses of high Knudsen number flows, *International Journal of Emerging Multidisciplinary Fluid Sciences*, 査読有, Vol. 1, No. 3, 2009, pp. 213-227.
- ⑤ H. Yamaguchi, Y. Matsuda, H. Mori, T. Niimi, Discussion on measurement mechanism of pressure-sensitive paints, *Sensors and Actuators B: Chemical*, 査読有, Vol.142, No. 1, 2009, pp.224-229.
- ⑥ 松田佑, 林田将也, 長島史裕, 山口浩樹, 新美智秀, 酸素感応色素を用いた混合流路内酸素濃度分布の計測 第 1 報 流動様式の可視化, 可視化情報学会論文集, 査読有, Vol.29, No. 8, 2009, pp. 27-33.

[学会発表] (計 7 件)

- ① 長島史裕, 水中溶存酸素濃度計測のための感圧塗料の開発, 日本機械学会流

体工学部門講演会, 2010.10.30-31, 山形大学.

- ② 見崎亮太, 感圧色素を用いたマイクロスケール気体流れの計測, 日本機械学会 2010 年度年次大会, 2010.9.5-8, 名古屋工業大学.
- ③ 松田佑, 白金ポルフィリン錯体を用いたマイクロ気体流れ計測, 可視化情報シンポジウム, 2010.7.20-21, 工学院大学.
- ④ 長島史裕, 感圧塗料を用いた混合流路内酸素濃度分布計測, 第 87 期日本機械学会流体工学部門講演会, 2009.11.7-8, 名古屋工業大学.
- ⑤ 松田佑, 感圧分子膜を用いたマイクロスケール気体流の圧力分布計測, 可視化情報学会全国講演会, 2009.10.24-25, 山形大学.
- ⑥ 鈴木卓, 感圧分子膜によるマイクロスケールの流れ場の計測, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009.9-13-16, 岩手大学.
- ⑦ Y. Matsuda, Pressure Sensitive Molecular Film for Measurement in Micro-Flows, 7th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, 2009.6.28-7.3, Krakow, Poland.

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

松田 佑 (MATSUDA YU)  
名古屋大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号: 20402513

##### (2) 研究分担者 なし

##### (3) 連携研究者 なし