

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 3月31日現在

機関番号：32612
 研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23760193
 研究課題名（和文） 共添加型蛍光微粒子をトレーサとする燃焼反応場の温度・速度二次元非接触同時測定法
 研究課題名（英文） Two-dimensional Simultaneous Temperature and Velocity Measurements using Co-doped Phosphor Particles
 研究代表者
 横森 剛 (YOKOMORI TAKESHI)
 慶應義塾大学・理工学部・専任講師
 研究者番号：90453539

研究成果の概要（和文）：燃焼ガス等の高温ガス中に添加された蛍光体微粒子にシート状の励起光を照射し、そこから得られる蛍光発光の温度依存性及び粒子挙動を検出することで温度及び速度の同時測定を可能とする新規測定法の開発を行なった。まず、高温ガス中でも良好な蛍光発光の温度依存性が発現する新規な蛍光体微粒子の開発に取り組み、蛍光発光中心物質の共添加により感温性能の高い蛍光体微粒子の創製に成功した。また、蛍光体を実際に高温ガス流中に添加・分散させ、温度及び速度測定が可能であることも示した。

研究成果の概要（英文）：This study reported the development of a two-dimensional simultaneous temperature and velocity measurements of high-temperature gas flow by using phosphor particles. The new highly temperature-sensitive phosphor particles were produced by co-doping different luminescence center materials in phosphors. Then, the temperature of the high-temperature gas flow were measured by the intensity ratio of two-color photoluminescent emissions from seeded phosphor particles, and also the velocity of the flow was measured by the particle displacement motion. The present measurement technique was validated.

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	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：二次元温度測定，蛍光体，高温ガス温度測定，微粒子，温度速度同時測定，二波長強度比

1. 研究開始当初の背景

レシプロエンジンやガスタービンエンジン等の内燃機関、焼却炉やボイラ、高温反応管プラント、その他の多くの熱工業設備・機器において、燃焼ガスなどの高温ガスを適切に管理し、熱エネルギーを有効に利用することは、省エネ・環境低負荷の観点から極めて重要な課題である。そこで、適切な熱管理や熱エネルギー抽出のためには、その高温ガス流動場の詳細な温度及び速度状況の把握が大きな鍵を握るが、燃焼ガス等の高温ガス流

動場での測定には高価な測定装置や高度な知識・経験を必要とし、簡便に測定可能な手法が確立されているとは言い難い。

特に従来の温度測定法では、熱電対や白金測温体を流体中へ直接挿入する接触型測定法や、レーザー光の散乱を利用するCARS法、特定化学種の赤外吸収率の温度依存性を利用した光吸収法等の非接触型測定法などが存在するが、前者は点測定であることや流動場に外乱を与えてしまうこと、後者は大出力光源や高感度検出器が必要となり装置が高

価、さらに熟練の技術が要求されるなど、温度測定法としては未だ多くの問題点を有している。

そのような中において近年、対象とする流動場に蛍光体微粒子をトレーサとして添加した後、特定の励起光を照射することで蛍光発光を発現・検出し、その蛍光の温度依存性から温度を特定するという蛍光温度測定法が注目を集めている。この測定法は基本的に非接触であり、光源及び検出器も比較的安価であること、2色蛍光強度比からの温度推定では2次元温度分布測定が容易である等、その期待度は高い。しかし現状では、蛍光微粒子の温度耐久性や、高温領域での温度消光によって測定温度範囲が限定される等、技術的な課題も多く存在する。

一方、速度計測については流体場中添加された固体トレーサ粒子の移動挙動から速度情報を得る手法が十分に確立されている。従って、先述の蛍光微粒子の蛍光発光特性からの温度測定と同時に、粒子の挙動から速度情報を得ることも可能であり、温度・速度同時計測の可能性が期待され、その開発研究は極めて有用であると考えられる。

2. 研究の目的

上述の背景を踏まえ、本研究では特に 1). 燃焼場のような高温ガスに適用可能な感温蛍光微粒子の開発、2). 蛍光微粒子を利用した2色蛍光強度比法による2次元温度測定法の確立、3). 蛍光体微粒子の挙動からの速度測定の実施について段階的に検討を行い、本研究で提案する2次元非接触温度・速度同時測定法を開発することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 感温蛍光微粒子の開発

① 粒子合成装置

本研究では温度依存性の高い（感温性能の高い）新規な蛍光体微粒子の開発を行なうことを目的として、各種蛍光体について以下の方法で合成を実施した。使用した実験装置の概略を図1に示す。実験装置は、前駆物質噴霧装置、燃焼用バーナ、合成粒子捕集装置によって構成される。燃焼用バーナは同軸二重円管構造(内管径:5.6 mm, 外管径:20.4 mm)となっている。前駆物質噴霧装置では、溶液貯蔵タンクの下部に設置された超音波式噴霧器(1.7 MHz)によって前駆物質水溶液が未燃ガス中へと噴霧・散布される。次に、噴霧液滴は未燃ガスによって燃焼用バーナへと導かれ、火炎を通過し、高温域で短時間の内に前駆物質を結晶化する。内管からは未燃ガスとしてメタンと窒素の混合ガスを、外管からは酸化剤として純酸素を噴出させ、それぞれの平均流速を 50 cm/s と設定した。合成は、メタンの窒素による希釈率を変化させ、合成

時の火炎温度を調節出来るようになっていいる。粒子捕集装置では、下流側に設置した吸込型ポンプで燃焼ガスを吸引し、ガラスフィルター(Whatman:GF/F)において燃焼ガス中の浮遊粒子を分離・捕集する。なお、吸引による燃焼室内の減圧はなく、燃焼質内は大気圧に保たれている。また、前駆物質溶液としては、合成対象とする蛍光体物質元素の硝酸塩水和物を純水中に溶解させたものを用い、その硝酸塩水和物の種類、組み合わせ、濃度を調整することで各種蛍光体微粒子を合成することが可能となっている。

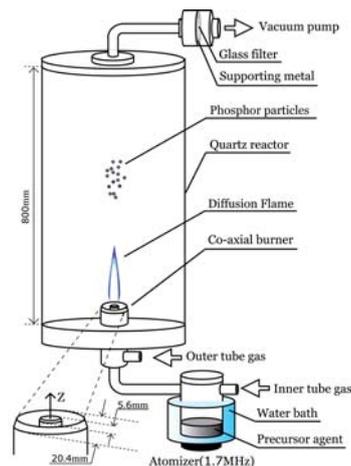


図1 蛍光体微粒子合成装置
(噴霧燃焼合成法)

② 蛍光体温度依存性の調査試験

①の手法で合成された蛍光体微粒子からの蛍光発光について、その温度依存性を調査するために、以下のような装置で蛍光発光スペクトルの測定を行なった。実験装置の概略図を図2に示す。蛍光体を発光させるための励起光には、その蛍光体の種類によって水銀キセノンランプ(三永電機製作所:UVF-204S)による紫外線、又は赤外線レーザー(Newport:LQC980-220E)を使用し、ダイクロ

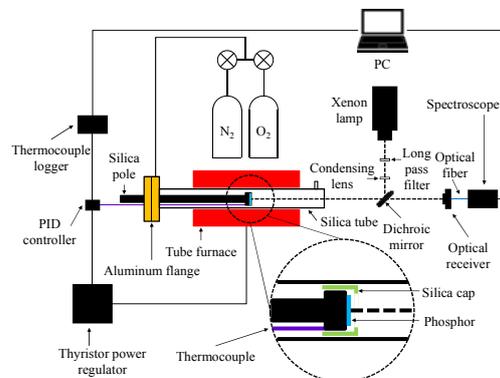


図2 蛍光発光温度依存性測定装置

イックミラーを介して蛍光体に照射した。一方、蛍光体の発光は上記のダイクロイックミラーによって励起光とは光路を分離し、光ファイバを通して分光器 (Ocean Optics: HR4000)まで導き、スペクトル分析を行った。蛍光体は石英管内に設置し、石英管を覆う電気管状炉によって加熱した。蛍光体の温度はK型シース熱電対を蛍光体近傍に設置して熱電対ロガー(Omron: ZR-RX25)でモニターした。

(2) 蛍光体微粒子を利用した高温ガス流の温度測定

高温ガス流中に蛍光体微粒子を添加・分散させ、励起光のシート状による照射からそのガス流の2次元断面において蛍光発光を発現させ、その発光特性(温度依存性)から温度を推定するための実証試験として、以下のような装置を用いて検討を行なった。使用した実験装置の概略を図3に示す。被測定流動場としては円管噴流場を用いた。噴流上流部において蛍光粒子をガス流中に添加し、流速1.0 m/sで内径8.5 mmの円筒石英管に流す。石英管は十分に長く、周囲に設置されたヒータによって任意に温度の調節が可能であり、蛍光体微粒子を添加されたガスは石英円管内で十分に加熱される。蛍光粒子を発光させるための励起光にはNd:YAGレーザー(Spectra Physics: Quanta-Ray GCR-130)を用いた。励起光は石英シリンドリカルレンズ(Melles Griot:RCC-12.7-6.4 -6.5-UV 他)を用いることでシート状にし、石英管の中心軸上、噴流出口から下流方向10 mmから35 mmの位置を通過する高温ガス中の蛍光体微粒子に照射した。粒子から発せられた蛍光をステレオアダプタ(PENTAX:D セット)およびバンドパスフィルタ(日本真空光学)を介し、デジタルカメラ(NIKON:D3100)によって2種類の波長での発光強度を示す別個の画像として撮影した。なお、露光時間は30秒、ISO感度は400とした。

得られた2種類の波長からなる2つの画像について、テンプレートマッチング法を用いてレンズやステレオアダプタの視差からなる歪みを補正した。補正された二つの画像か

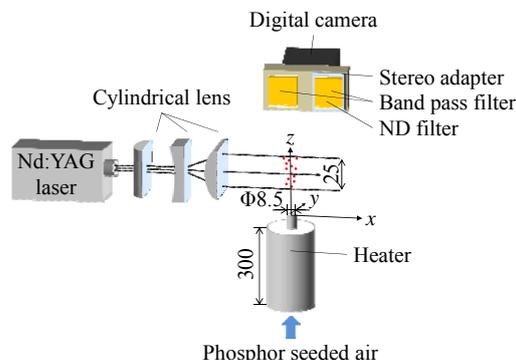


図3 高温ガス流温度測定試験装置

ら各画素の輝度比を算出し、事前に求めた二波長輝度比-温度の関係から温度を推定した。また、二色蛍光法により測定された温度の妥当性を検証するために、K型シース熱電対(チノー: NCF600 φ0.3mm)を用いガス流中の局所温度を測定した。

(3) 蛍光体微粒子を利用した高温ガス流の温度・速度同時測定

上記(2)の温度測定システムにPIVシステムを新たに加え、蛍光体微粒子の挙動検出による速度測定も実施した。PIVシステムは従来のガス流速度測定に用いられているものと基本的に同様であり、ダブルパルスYAGレーザー(New Wave, Mini-Lase, 20mJ, 10Hz)による2次元シート光の照射系、及び2画像瞬時露光が可能な高解像度カメラ(MEGAPLUS)による撮影系によって成り立ち、(2)に示した蛍光体微粒子が浮遊しているガス噴流場に適用させた。なお、速度算出は、ダブルパルスレーザーの照射間隔によって得られる2時刻粒子画像について、相互相関法をベースとする独自に作成したプログラムを用いて粒子移動距離の検出を行うことで実施した。

4. 研究成果

(1) 感温蛍光体微粒子の蛍光発光温度依存性

本研究では様々な蛍光体微粒子について合成を行ない、その感温性能(蛍光発光特性の温度依存性)について調査を行なったが、その一部の例について以下に示す。

図4は母体 Y_2O_3 に蛍光発光中心 Tb^{3+} と Tm^{3+} を共添加した蛍光微粒子 $Y_2O_3: Tb, Tm$ の蛍光発光スペクトルの温度依存性を示した図である。ここで励起光には紫外線を使用している。456 nm付近のピーク(Tm^{3+} からの発光)は立ち続けているが、他のピーク(Tb^{3+} からの発光)は温度消光の影響を受けている事がわかる。これは蛍光発光ピークにおけるエネルギー遷移が異なる事に起因する。また高波長領域(赤色以上)に発光ピークを持たないため、蛍光発光を検出する際には輻射の影響を受けにくい事がわかる。この発光スペクトルを元に各ピーク波長蛍光強度の強度比を温度に対してプロットしたものを図5に示す。ここで縦軸は以下のように定義した。

$$\text{Intensity ratio (\%)} = \frac{I_{ref(T)} / I_{(T)}}{I_{ref(T_0)} / I_{(T_0)}}$$

I_{ref} は代表蛍光発光強度であり、本研究では最も発光強度が強いピーク波長の強度を代表強度とした。一方 I は発光スペクトル中の特定のピーク波長の強度、 T_0 は323 Kを示している。図5より I_{543nm} / I_{456nm} が温度変化に対する傾きが最も大きい事がわかる。また図4よ

り 543 nm 及び 456 nm の蛍光は高温領域においても発光強度が十分大きく外乱に影響されにくいと考えられる。よって測温蛍光体として使用し易い微粒子であると考えられる。図 6 は合成された $Y_2O_3:Tb,Tm$ 蛍光体微粒子に対して、電子顕微鏡上で EDX 分析により Y, Tb, Tm の元素分布を測定したものである。これらの分布の様子を見ると、各微粒子中に Tb および Tm のどちらの元素も均一に分布している様子がわかる。従って、今回合成した蛍光体微粒子においては、単一の粒子各々から上述の蛍光発光強度比の温度依存性が得られるものと考えられる。

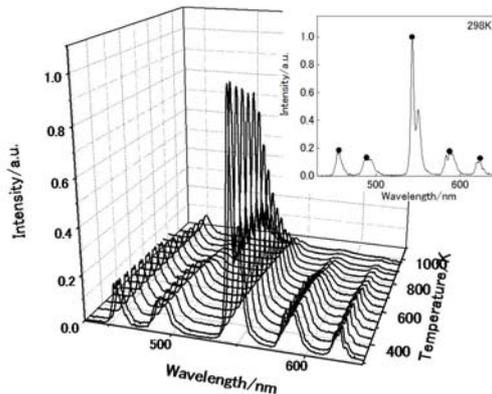


図 4 $Y_2O_3:Tb,Tm$ 蛍光体微粒子の蛍光発光スペクトルの温度依存性

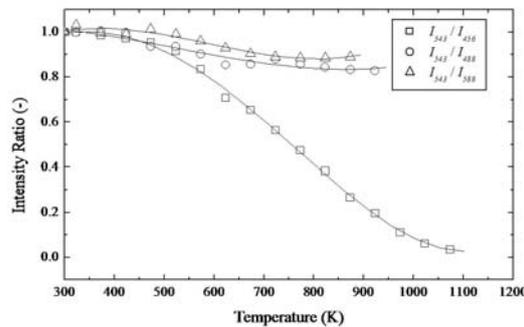


図 5 $Y_2O_3:Tb,Tm$ の二波長強度比の温度依存性

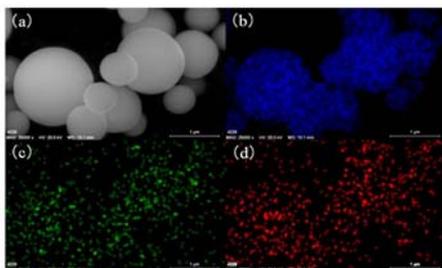


図 6 $Y_2O_3:Tb,Tm$ 微粒子の EDX 分析結果。(a).SEM 画像 (b) Y 元素, (c) Tb 元素, (d) Tm 元素。

一方、図 7 には $Y_2O_3:Yb,Er$ の蛍光発光スペクトルの温度依存性を示す。この蛍光体はアップコンバージョン型の蛍光体であり、先述の $Y_2O_3:Tb,Tm$ とは異なり、赤外線によって励起される特殊な蛍光体である。この図より、温度上昇に伴い 548 nm, 557 nm, 672 nm などの発光強度は急激に減衰し、一方で 527 nm の発光強度は比較的緩やかに減衰することが確認できる。図 8 には、図 5 と同様に、発光スペクトル中の各ピーク波長発光強度の強度比を温度に対してプロットしたものを示す。なお、図中の W_1, W_2 は選定した二波長の波長を示している。 $W_1 = 557$ nm, $W_2 = 527$ nm および $W_1 = 548$ nm, $W_2 = 527$ nm, また $W_1 = 672$ nm, $W_2 = 527$ nm を用いた二波長強度比は温度上昇に伴い指数関数的に減衰している。一方、 $W_1 = 548$ nm, $W_2 = 672$ nm および $W_1 = 557$ nm, $W_2 = 672$ nm の時の二波長強度比は温度上昇に伴う変化が少ないことがわかる。従って、前者の二波長強度比を選定すれば感温蛍光体微粒子として使用が可能であり、さらに先述の $Y_2O_3:Tb, Tm$ と異なり赤外線にて励起が可能のため、光学的にも使用し易い蛍光体であると言える。また、図

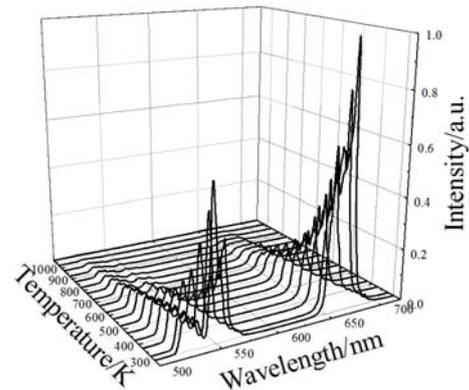


図 7 $Y_2O_3:Yb,Er$ 蛍光体微粒子の蛍光発光スペクトルの温度依存性

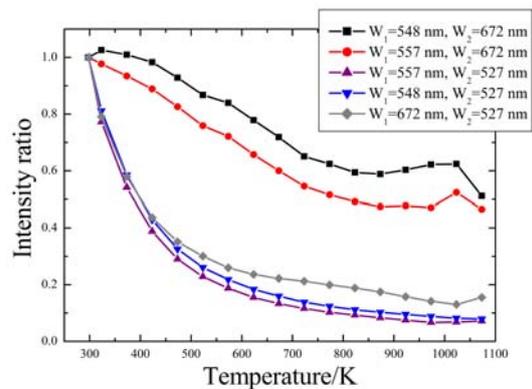


図 8 $Y_2O_3:Yb,Er$ の二波長強度比の温度依存性

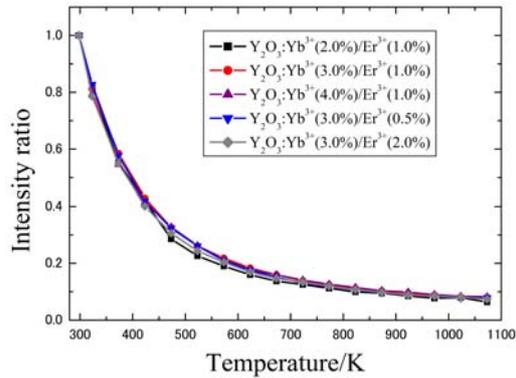


図 9 添加濃度を変化させた際の二波長強度比の温度依存性

9 には Yb と Er の添加濃度を変化させた際の $W_1 = 548 \text{ nm}$, $W_2 = 527 \text{ nm}$ の二波長強度比と温度の関係を示す。Yb と Er の添加濃度を変化させても二波長強度比の温度依存性は変わらないことがわかる。これは、微粒子中の発光中心の添加濃度の精度は蛍光体の感温性能（二波長強度比温度依存性）に殆ど影響を与えないことを意味しており、感温用蛍光体微粒子を準備する際の大きな利点となる。

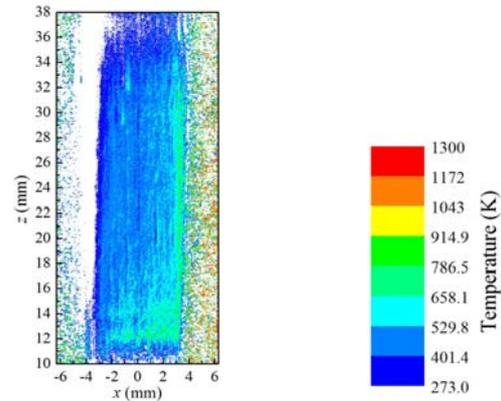
また、その他にも本研究では、粒子の表面状態の保護を目的としたコア・シェル型蛍光体微粒子の合成や、蛍光強度増強を目的とした多孔質微粒子の合成等も実施し、各々成功を取っている。

(2) 蛍光体微粒子による高温ガス流 2 次元温度分布測定結果

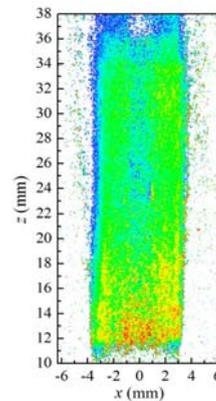
蛍光体微粒子を添加した空気噴流へ励起光を照射して得られた画像に、画像処理により座標変換を施し各画素の輝度値から二波長強度比の 2 次元分布を求め、その強度比から温度を算出・推定した結果を図 10 に示す。

なお、ここで、二波長強度比と温度の関係については当システムの光学系において改めて測定したものを使用した。また、参照輝度比は常温での 10 枚の輝度分布画像における噴流中央領域(下流方向 $17 \text{ mm} < z < 30 \text{ mm}$, 半径方向 $-2 \text{ mm} < x < 2 \text{ mm}$)の全画素の輝度平均を求めたものとした。また、 T_R はヒータ内部に挿入された熱電対による測定温度であり、参照温度として示している。 T_R が上昇するにつれて、測定された温度も全体的に上昇している。また、いずれの画像においても、上流部から下流部に進むにつれて次第に測定温度が低下している様子が伺えるが、外気との熱交換による温度低下を踏まえると妥当な結果と言える。さらに、同噴流について熱電対によって測定された温度分布と比較したところ、この蛍光発光から算出された温

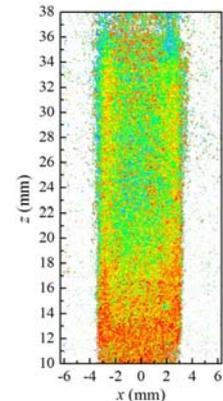
度分布と良い一致を示したことから、本手法による 2 次元温度測定の妥当性についても示すことができた。



$T_R = 473 \text{ K}$



$T_R = 873 \text{ K}$



$T_R = 1073 \text{ K}$

図 10 本手法によって測定された噴流 2 次元温度分布

(3) 2 次元速度分布測定結果

図 11 には、前記(2)の温度分布測定場において、蛍光体粒子をトレーサとした際の PIV による速度測定結果を示す。なお、このベクトル図は 50 組の 2 時画面像から得られた速度の平均を取ったものである。この結果を見ると、速度の分布はポアズイユ形状を示しており、円管噴流の速度分布を良く表していることがわかり、本研究での蛍光体粒子トレーサによる速度測定も可能であることがわかる。但し、実際の測定時にはガス中に添加された粒子の数密度が通常のガス流 PIV 測定に使用される固体粒子(例えばアルミナ等)の場合に比べて極端に少なく、分解能等の点から精度の良い測定を行なうことは困難であった。これは、蛍光体微粒子の凝集性の強さ等によるガス中への添加のし難さが原因と考えられ、今後、凝集性の弱い新たな粒子を開発するか、ガス中への粒子添加方法について

改善を行なう必要があると思われる。

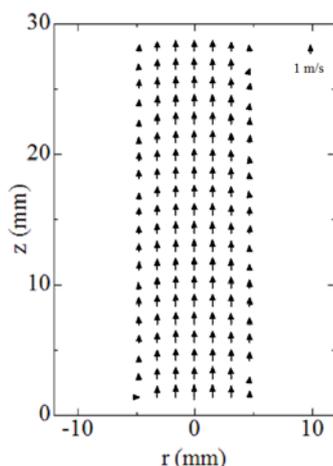


図 11 速度測定結果($T_R = 473$ K)

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)

[学会発表] (計 10 件)

- (1). 大矢 晃輔, 岡野 紗耶, 高野 貴帆, 植田 利久, 横森 剛, アップコンバージョン型蛍光体を利用した温度測定法の可能性に関する検討, 熱工学コンファレンス 2012 講演論文集, pp.411-412, 2012 年 11 月 17 日, 熊本
- (2). Kentaro Hayashi, Hiroshi Isoya, Toshihisa Ueda, Takeshi Yokomori and Taro Hirasawa, Two-dimensional Non-contact Temperature Measurement of High Temperature Air Jet using Phosphor Thermometry, Frontiers in Optics 2012/Laser Science XXVIII (OSA's 96th Annual Meeting, APS/DLS 28th Annual Meeting), FW3A27, 2012 年 10 月 16 日, Rochester(アメリカ).
- (3). Kosuke Oya, Saya Okano, Toshihisa Ueda, and Takeshi Yokomori, Temperature Dependence on Up-conversion Photoluminescence Properties of Yb³⁺/Er³⁺ co-doped Y₂O₃ phosphors, Frontiers in Optics 2012/Laser Science XXVIII (OSA's 96th Annual Meeting, APS/DLS 28th Annual Meeting), FW3A28, 2012 年 10 月 16 日, Rochester(アメリカ).
- (4). 大矢 晃輔, 石和田 尚弘, 植田 利久, 横森 剛, Dy³⁺, Tm³⁺ を添加した希土類酸化物 Y₂O₃ の蛍光温度依存性, 第 49 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, pp.691-692, 2012 年 5 月 30 日, 富山.

- (5). 林 健太郎, 磯谷 弘志, 植田 利久, 横森 剛, 平沢 太郎, 蛍光体微粒子を利用した二色蛍光法による高温空気流二次元温度測定, 第 49 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, pp.433-434, 2012 年 5 月 30 日, 富山.
- (6). 松田 優, 本村 光規, 長谷川 寛, 植田 利久, 横森 剛, Y-Al 複合酸化物蛍光ナノ粒子の気相燃焼合成, 第 49 回燃焼シンポジウム講演論文集, p.458-459, 2011 年 12 月 5 日, 横浜.
- (7). 佃 一樹, 植田 利久, 横森 剛, 多孔質酸化物微粒子のスプレー燃焼合成法による創製, 第 49 回燃焼シンポジウム講演論文集, p.460-461, 2011 年 12 月 5 日, 横浜.
- (8). Takeshi Yokomori, Kazuki Tsukuda and Toshihisa Ueda, Porous Oxide particles Prepared by Flame Spray Pyrolysis, Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI-2011), pp.24-25, 2011 年 11 月 9 日 Sendai(日本).
- (9). 佃 一樹, 植田 利久, 横森 剛, スプレー燃焼合成法を用いた多孔質微粒子の合成に関する研究, 第 48 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, pp.111-112, 2011 年 6 月 1 日, 岡山.
- (10). 松田 優, 長谷川 寛, 植田 利久, 横森 剛, 気相燃焼法を用いた複合酸化物蛍光ナノ粒子の合成に関する研究, 第 48 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, pp.375-376, 2011 年 6 月 1 日, 岡山.

[その他]

ホームページ

<http://www.yokomori.mech.keio.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横森 剛 (YOKOMORI TAKESHI)

慶應義塾大学・理工学部・専任講師

研究者番号: 90453539

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: