

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630058

研究課題名(和文) 無消光で校正不要な定量可視化用感温中空マイクロカプセルの開発

研究課題名(英文) Fabrication of calibration-free temperature sensitive hollow micro capsules for quantitative flow visualization

研究代表者

染矢 聡 (Someya, Satoshi)

独立行政法人産業技術総合研究所・エネルギー技術研究部門・上級主任研究員

研究者番号：00357336

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：水・油・アルコール等で利用可能な、感温性中空マイクロカプセルを開発した。具体的には、1) 温度依存性を示す蛍光物質を殻材に重合し、粒径0.5～1.0μmの中空マイクロカプセルを開発し、2) その光学特性評価、3) 温度分布の定量可視化計測を行った。可視化計測に適用しやすい明るさと感温性を示す蛍光物質を探索し、数十種類の蛍光物質のカプセル化後の発光特性、感温性、光劣化について評価した。蛍光物質については1種類の物質のみを重合する場合と複数の蛍光物質を重合する場合について調べた。また、良好な特性を示した感温性カプセルを用いて複雑な形状をした熱交換器内の温度分布、速度分布を可視化した。

研究成果の概要(英文)：We fabricated temperature sensitive hollow micro capsules, applicable to the flow of water, oil or other liquid medium. The capsules were made from a polylactic acid and fluorescence materials of which intensity depended on the temperature. The diameter of capsules were from 0.5 to 1.0 micro meters. We investigated optical properties of capsules and applied capsules to the visualization of temperature field of the flow in a heat-exchanger. We measured emission spectra, temperature sensitivity, oxygen sensitivity and photo-deterioration of several ten kinds of capsules with different fluorescence materials. In addition, simultaneous measurement of temperature and velocity field was demonstrated in the flow inside of a heat exchanger with small ribs.

研究分野：熱流動、流体計測

キーワード：可視化 蛍光 マイクロカプセル

1. 研究開始当初の背景

PIVは研究開発を支える強力な速度分布計測ツールとして実用化されている。一方、エネルギーの高効率利用や μ TAS開発等に重要な流体温度の定量可視化法にはレーザー誘起蛍光法(LIF)があるが一般化されていない。LIFによる温度計測では、ローダミンBなどキサンテン系の感温性蛍光染料を水中で乖離させて用いる。溶存物質との反応等により消光が起きるため、緻密な in situ 校正及び一定条件下での実験が不可欠である。キサンテン系染料は過励起による不可逆性消光も生じやすい。作動流体は水溶液に限定される。これらの問題がLIFの普及・一般化を阻害している。温度分布計測のニーズは国際的に高まりつつあるが、光学安定性が高く水溶液以外にも適用可能なトレーサ物質の欠如のため停滞している。作動流体の選択性を持つトレーサとしては、粒子・カプセルが考えられる。研究代表者らは近年、燐光分子を焼結した多孔性粒子や蛍光体を用いた温度速度計測法を提案し、実用研究に繋げてきたが、これらは粒径($>4\mu\text{m}$)や比重($>1.02\text{g/cm}^3$)の点で微小スケール流れに適用する上では課題が残る。なお、市販の蛍光マイクロ粒子は感温性を持たない。

2. 研究の目的

流体の温度計測法であるLIFは、水溶液中で乖離させた蛍光分子をレーザーで励起して発光強度から温度を評価する。そのため、作動流体が水溶液に限られ、溶存物質等による光学的不安定性が強く、精密な in situ 校正が不可欠である。本研究では、LIFの欠点を克服し、任意の作動流体の温度計測に適用可能で、消光を起こしにくく in situ 校正が不要な感温性中空マイクロカプセルを開発し、従来の温度定量可視化法にブレイクスルーをもたらすことを目的とする。

3. 研究の方法

感温性金属錯体を有機溶媒可溶の樹脂にドープする方法を開発して感温性カプセルを作成するとともに、その粒径制御法を開発する。その光学特性を明確にし、カプセルを用いた温度場定量可視化法につなげる。

4. 研究成果

本研究ではマイクロバブルを核としたマイクロカプセル合成法を用いる。マイクロカプセルの殻となる樹脂中に感温性の錯体や蛍光染料を混合させ、これらのセンサ物質を殻にドープする。感温性の溶液を核に封入するのではなく、殻にドープすることで中空を保ち、樹脂製中実粒子よりも比重の小さいカプセルを合成する。図1は白金ポルフィリン錯体のPtTFPPをドープしたカプセルの燐光画像及びSEM画像である。SEM撮影は真空で行われるため、一部のカプセルは殻が割れるなどする。ここでは殻が凹んだことにより中空であることが判りやすいSEM画像を示した。作成したカプセルの直径分布(図2)は約7割が $0.5\sim 1.0\mu\text{m}$ でありマイクロ熱流

動、マクロスケール熱流動のどちらの流れのトレーサとしても有用である。本研究では殻となる樹脂には生分解性物質のポリ乳酸を用いた。殻にドープする発光物質としてはフルオレセイン、ローダミン、クマリンといった主要な蛍光物質、ルテニウム、プラチナ、パラジウムやこれらのポルフィリン化合物といった燐光物質数十種類についてカプセルを合成し、 $355\sim 532\text{nm}$ の6種類の励起波長に対する特性を調べた。

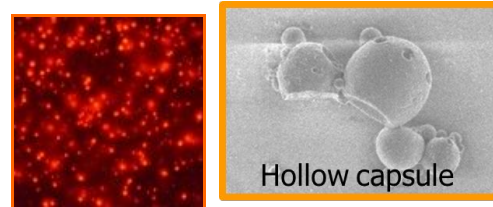


図1 作成した中空マイクロカプセルの蛍光写真及びSEM画像

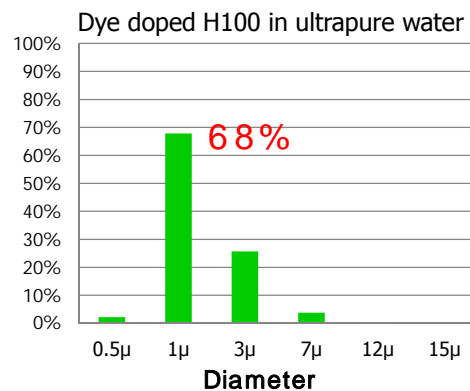


図2 平均粒子径

図1のカプセルを 405nm で励起した際の発光スペクトルを $20\sim 50$ の範囲で温度を変化させつつ測定した結果を図3に示した。また、ピーク発光波長である 647nm の波長の光の発光強度と温度との関係を図4にまとめた。図から、温度が 20 から 50 に上がると、発光強度が 80% 低下し、約 $-2.7\%/$ の温度感度をもつことがわかる。しばしばLIF法による水溶液の温度計測に用いられるローダミンB水溶液のもつ温度感度は約 $-1.5\%/$ であり、今回作成した感温性マイクロカプセルはその約2倍の高い感温性を持っていた。なお、PtTFPPは水中の溶存酸素濃度にも応答する。図3~4は大気圧下で安定的に溶存酸素を含んだ状態で測定した結果であり、溶液中には溶存酸素を 6mg/L 程度含む。溶存酸素をすべて排除すると感温性がやや低下し、 $-1\%/$ となったが、その場合でもLIFで用いられるフルオレセインなどの蛍光染料の水溶液と同程度である。また、カプセルは強い有機溶媒以外の任意の液体中に分散させることが可能であり、これは水溶液中で解離させて蛍光染料を利用するLIF法にはない特徴である。

図5は同じカプセルを532nmで励起した際のピーク発光波長における発光強度(647nm)と温度との関係をもとめた結果である。カプセルにドープしたPtTFPPはSoret帯と比べて吸光度が大幅に低下するがQ帯の532nmでも励起可能である。発光スペクトルは405nm励起の場合と類似している。このときの発光強度は30の温度変化で約1/2になり、温度感度は-1%/ほどであった。

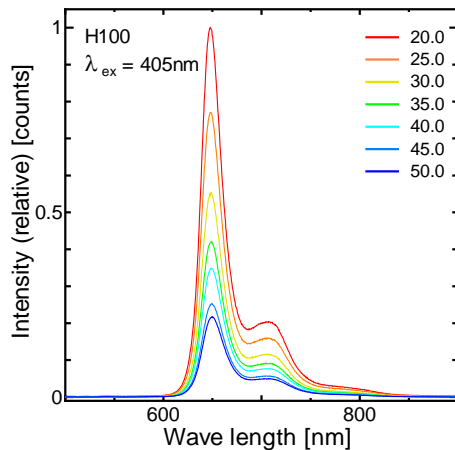


図3 20~50におけるPtTFPPマイクロカプセルの発光スペクトル(励起波長405nm)

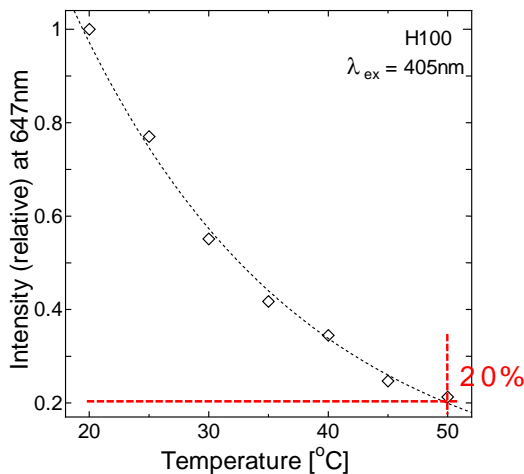


図4 PtTFPPの発光強度(647nm)と温度との関係(励起波長405nm)

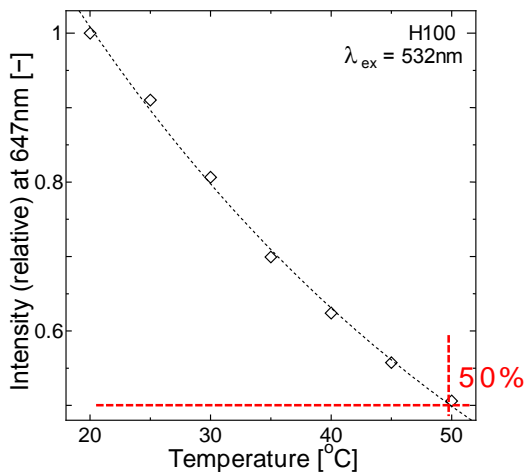


図5 PtTFPPの発光強度(647nm)と温度との関係(励起波長532nm)

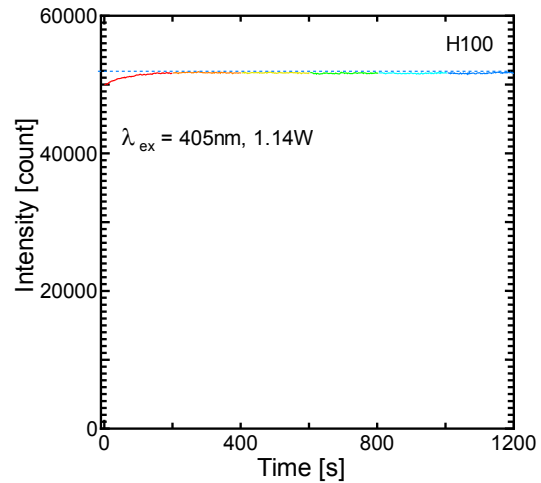


図6 PtTFPPの発光強度(647nm)の時間依存性(励起波長405nm)

一方、これまでのLIFの大きな課題は消光現象による測定不安定性であった。消光には多様な要因があるが、過剰な励起によって蛍光分子が分解されるなどの光劣化は、計測精度とのトレードオフに直結する大きな問題である。輝度の高い画像を取得し、カメラのダイナミックレンジを最大限に活用して高分解能、広い測定レンジを確保するには、励起強度を高めるか蛍光物質濃度を増やす以外にない。しかし濃度消光が起きるため、濃度をあまり高くすることはできない。光劣化を抑制できれば励起強度を高めることができ、これらの問題を解決できる。本研究では、図6に示すように、405nmのレーザーダイオードを用い、1.14Wもの高出力光を連続照射して発光強度を20分間測定した。測定開始時にレーザーダイオードの出力が安定せず徐々に強度が増しているが、20分間の間、発光強度の低下が生じておらず、光劣化が起き難い機能性トレーサであることがわかる。本研究ではこの感温性マイクロカプセルを用いて、リップ付の加熱金属板周りの水の温度速度分布の可視化を試みた。ここでは1種類の蛍光染料(PtTFPP)のみをドープした図1~6のカプセルを用い、冷却水中の溶存酸素を排除した状態で実験を行った。装置の概要は図7に示すとおりである。高さ1mm、長さ3mmの突起を10mm間隔で設置したアルミ板をカートリッジヒーターで加熱した。アルミ温度は60で一定とし、流速を変化させて実験を行った。励起には532nmのパルスレーザーを利用し、リップの正面からレーザーシートを照射した。高速度カメラでリップを側面から観察し、リップ周辺の色と温度を評価した。図8は得られた速度分布、温度分布を時間平均した結果である。下から上に向かって冷却水が流れ、リップの直後に淀んで低速高温になっている領域が見られる。図中のカラーマップがそれぞれ速さと温度を表している。図8左図のリップ後方に白い線で囲まれた青色の領域が淀んで逆流を形成している。ま

た、実験ではリップによって剥離し、高温になった水が振動しながら流れる様子も見られた。

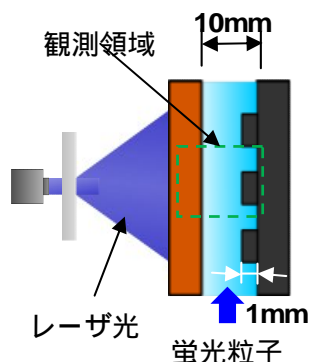


図7 実験装置概要(リップ付熱交換器まわりの熱流動)

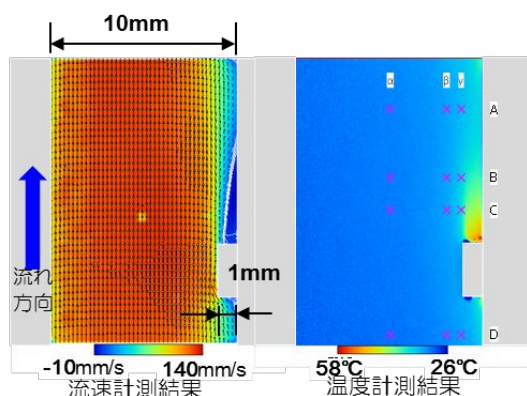


図8 可視化結果例(左:速度分布,右:温度分布)

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3件)

染矢聡, 浅井圭介, 感圧塗料計測における最近の進捗, 査読無, 可視化情報, Vol34, No.132, 2014, 3-8

染矢聡, 坂田藍美, 機能性粒子を用いた流体の温度・速度の同時計測, 精密工学会誌, 査読無, Vol.79(7), 2013, 618-621

染矢聡, 坂田藍美, 宗像鉄雄, 燐光による可視化計測の可能性, 査読無, 日本ガスタービン学会誌, Vol41, No.5, 2013, 387-393

〔学会発表〕(計7件)

染矢聡, 加熱円柱周りの気流の温度速度同時計測, 自動車技術会シンポジウム「省エネを支える伝熱技術」, 2015年2月13日, 東京

Someya S., Takemura F. and Munakata T., Fabrication of temperature sensitive hollow micro capsule for the flow visualization, 67th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics, G29.00006, 2014年11月23-25日, San Francisco, U.S.A.

Ishii K., Someya S. and Munakata T., Combined measurements of temperature

and velocity in a microscopic flow, The 25th International Symposium on Transport Phenomen, Paper No.109, 2014年11月5-7日, Krabi, Thailand

染矢聡, PIV技術を用いた温度場流れ場解析, 自動車技術会シンポジウム「省エネを支える伝熱技術」, 2014年2月14日, 東京

6. 研究組織

(1)研究代表者

染矢 聡 (SOMEYA, SATOSHI)

産業技術総合研究所・エネルギー技術研究部門・上級主任研究員

研究者番号: 00357336