

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：33903

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560211

研究課題名(和文) マイクロ配列化した複合分子センサによる非定常流れの高速多変量同時計測法の開発

研究課題名(英文) Development of simultaneous multivariate measuring method by means of fast-responding bi-luminophore-pressure sensitive dot array sensor

研究代表者

江上 泰広 (EGAMI, Yasuhiro)

愛知工業大学・工学部・教授

研究者番号：80292283

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円、(間接経費) 1,260,000円

研究成果の概要(和文)：複雑に時間変化する物体表面上の非定常流れを計測するために陽極酸化基板上に感圧感温複合センサを開発した。インクジェット装置を用いて感圧センサと感温センサをマイクロドット配列に塗布することで、色素間干渉による特性劣化が生じないセンサの開発を図った。色素に応じて適切な溶媒を選択することで、コーヒーリング現象の発生を防ぎながら感度と発光強度を最大化したセンサドットを作成することができた。作成した複合センサによって、圧力と温度を同時計測することで、温度誤差を0.97%/ から0.02%/ まで低減することができた。またステップ状の圧力変化に対して64 マイクロ秒の時間応答を実現した。

研究成果の概要(英文)：A fast response bi-luminophore pressure-sensitive dot array sensor has been developed on an anodized aluminum (AA) substrate for unsteady flow measurements. We have applied the isolated dot arrays of PSP and TSP formed on an AA substrate by an inkjet printing method to prevent interference between the two luminophores. Suitable solvent was chosen for each dye to form the dots with uniform and high luminescence intensity, and high sensitivity. The created bi-luminophore AA-PSP could simultaneously measure pressure and temperature and could reduce the temperature effect from 0.97%/degree C (without temperature correction) to 0.02%/degree C (with temperature correction). It showed a pressure response time of 64 micro sec at 90 % pressure rise to a step change of pressure, which is in the same range with a conventional AA-PSP.

研究分野：流体工学

科研費の分科・細目：流体工学

キーワード：感圧塗料 感温塗料 複合センサ 分子イメージング 非定常流れ 同時計測 光学計測

1. 研究開始当初の背景

感圧塗料(PSP: Pressure Sensitive Paint) 及び感温塗料(TSP: Temperature Sensitive Paint) は、圧力と温度の光学的な非接触、非侵襲かつ高空間分解能の分子イメージング計測方法であり、点(0次元)での情報しか得られない圧力計や熱電対とは異なり、模型表面上の圧力や温度の面(2次元)情報が取得可能である。特に陽極酸化被膜型の感圧センサは、数kHzの高速応答性を持ち非定常流体現象の測定に大きな力を発揮し注目されている。しかし、一般に感圧塗料は圧力だけでなく温度依存性も有するため、精度良く測定するためには温度補正が必要となる。そのため感圧センサと感温センサを複合化して圧力と温度を同時計測する試みが盛んに行われてきている。陽極酸化被膜型センサでは、複数のセンサ分子を溶解・混合した溶液に模型を浸漬することで被膜表面にセンサ分子を吸着させ、複合センサを作成する。しかし被膜上にランダムに分布する異なるセンサ分子同士が近接すると相互干渉を起し、センサ特性が大きく劣化する現象が見られ、有効な解決法は国内外とも未だ見出されていなかった。

2. 研究の目的

本研究では、陽極酸化被膜上に感圧センサと感温センサをマイクロドット配列に微細に塗り分けることで、色素間干渉を生じない理想的な高速複合センサを構築し、非定常の多変量同時計測を高い精度で実現することを目的としている。混合浸漬法とは異なり2つのセンサを個別に塗布するため、異なる溶媒を必要とするセンサ同士も複合化できるようになり、センサの組み合わせの自由度が格段に大きくなる。同時計測した温度データによる時間毎の温度補正方法を確立し、非定常圧力計測の精度を大きく向上させることが目的である。

3. 研究の方法

大きく3段階に分けて以下の通り研究を推進した。

(1) 陽極酸化型 PSP/TSP 複合センサの作成条件の最適化と基礎特性の評価

インクジェットヘッドから揮発性の高いPSP, TSPの安定吐出を実現するために、センサ溶液の濃度やインクジェットヘッド制御パラメータなど作成条件の最適化を行った。感圧・感温塗料の溶媒は揮発性の高い有機溶媒の場合が多いため、安定した吐出を実現するためのインクジェットのピエゾ装置の制御パラメータの最適化を図った。また、作製されたドットの発光強度分布や感度を校正試験装置で評価した。用いるセンサ色素と溶媒の組み合わせによって発光強度や感度などのセンサ特性や、形成されるドット内部の発光強度分布の均一性が大きく変化することが見出されたため、良好な塗布性もちドット内部の発光強度が均一になり、さらにセ

ンサ感度と発光強度が高くなる溶媒について詳しく調査した。溶媒と色素の組み合わせによってはコーヒーリングが形成される場合が多く見られた。その過程についても詳細に調べ、どのような条件でコーヒーリングが生じるのかについても考察した。

(2) 複合センサの温度補正評価

開発したPSP/TSP複合センサの温度補正について評価を行った。圧力と温度を変化させた環境において、PSPによる圧力測定値の温度誤差を計測した。次にTSPを用いて同時計測した温度分布の情報を元に、PSPの温度補正を行い、温度補正の精度を評価した。

(3) 複合センサの時間応答の評価

衝撃波風洞においてステップ状の圧力変化に対する複合センサの複合センサからの光強度の時間変化を光電子増倍管によって計測し、圧力センサの時間応答の評価を行った。

4. 研究成果

(1) 陽極酸化型 PSP/TSP 複合センサの作成条件の最適化と基礎特性の評価

感圧・感温塗料の溶液をインクジェット装置を用いて陽極酸化基板上に塗布し、センサドットを作成した。感圧センサにはPtTFPPを感温センサにはQ-dotの一種であるZAISを用いた。図1に両者の励起及び発光スペクトルを示す。PtTFPPは650nm付近に鋭い発光ピークを持つのに対しZAISは540nm付近にピークを持っており、光学フィルターによって容易に分光観測することができる。

図2は様々な溶媒にPtTFPPを溶解したものを基板上に塗布したものの発光を撮影したものの一例である。疑似カラー表示となっており赤いものほど高い発光強度を示している。これまでセンサ溶液に浸漬することで作成していた陽極酸化型のPSPでは、PtTFPPは基板上にあまり付着せず、十分な発光強度を持つPtTFPPベースの陽極酸化型PSP(AA-PSP)は作成することができなかった。本研究では、溶媒を変化させることで高い発光強度を示すPtTFPPベースのAA-PSPを作成することに成功した。図2をみると、溶媒に(a)トルエンや(b)プロパノールを用いた場合は、色素がドット縁に凝集し、ドット内部の発光強度が極端に低い“コーヒーリング”を形成していることが分かる。これに対してより揮発性高い(c)ジクロロメタンやクロロホルムを用いるとコーヒーリングは形成されず一様な発光強度分布を得ることができた。さらにヘキサンを2%程度混ぜた混合溶媒にするとさらに発光強度が増加することを見出した。液滴が基盤に衝突し乾燥していく過程で、ドットの縁が固定されるピニングが生じる場合はコーヒーリングが生じた。

さらに、プロパノールやメタノールを溶媒に用いると発光強度や圧力感度も低くなることを見出した。それに対してジクロロメタンやジクロロメタンとヘキサデカンの混合溶媒を用いると、発光強度は高くなり、圧力

感度も大きくなった(図3).これは塗布後のドット溶液の乾燥過程において,センサ色素が析出する際に,溶媒によって基板に残されるセンサ色素の分布が異なり,それが発光強度の分布やその強さ,圧力感度などに影響を及ぼしているものと考えられる.また,図4に示すようにPSPの温度感度も用いる溶媒によって変化した.PtTFPPとの組み合わせではジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒が20で0.75%と最も小さくなること分かった.これは,通常の浸漬型のAA-PSPの場合(1-2%)と比較すると小さな値となっており,温度誤差を大幅に低減できることが分かる.

今回用いたインクジェットノズル(内径100 μm)では,溶媒にジクロロメタンのみを用いると,揮発性が高いため吐出不良が生じることが多かった.そのため,揮発性を低下させ安定吐出を実現するためにも混合溶媒を用いた.

同様にTSPであるZAISに適した溶媒についても調べた(図5).その結果トルエンを用いるとドット径が大きくなり,コーヒーリングが生じることがわかった.また発光強度も

低かった.それに対して,クロロホルム,ジクロロメタン,ヘキサンを用いるとより一様な発光強度分布を持つドットを形成することができた.さらに発光強度自体も高くなった.また,温度感度もジクロロメタンとクロロホルムでは大きくなることを明らかにした.

次に,感温センサの特性についての校正試験の結果を述べる.感圧センサ同様にZAISベースの感温センサも用いる溶媒によって異なる特性を示した.特に図6,図7に示さ

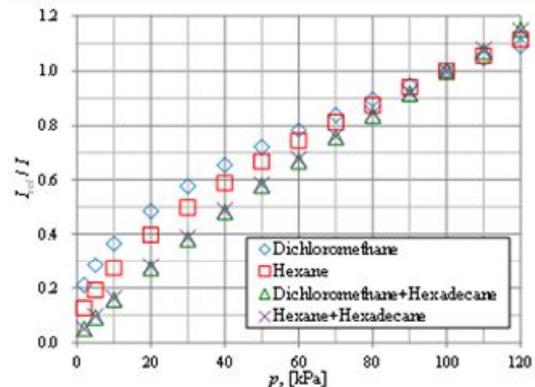


図3 溶媒によるPSPの圧力感度の変化

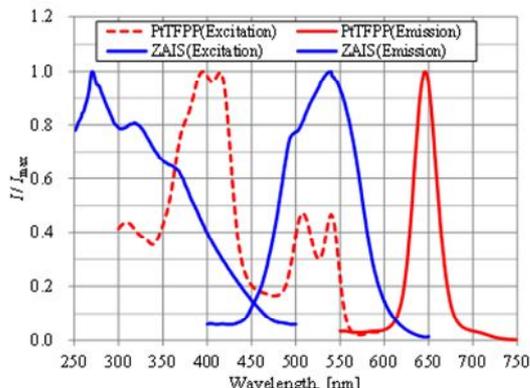


図1 感圧センサ(PtTFPP)・感温センサ(ZAIS)の励起及び発光スペクトル

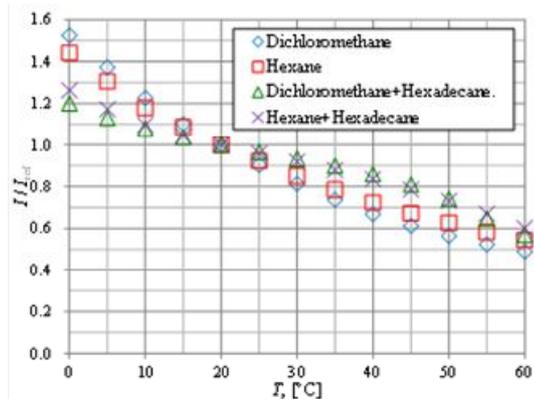


図4 溶媒によるPSPの温度感度の変化

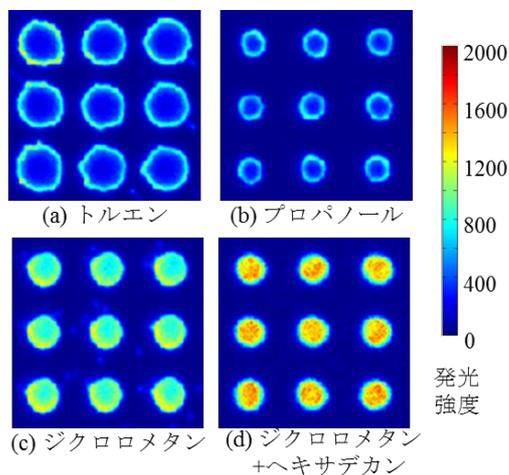


図2 様々な溶媒を用いたPtTFPPベースPSPのマクロドット

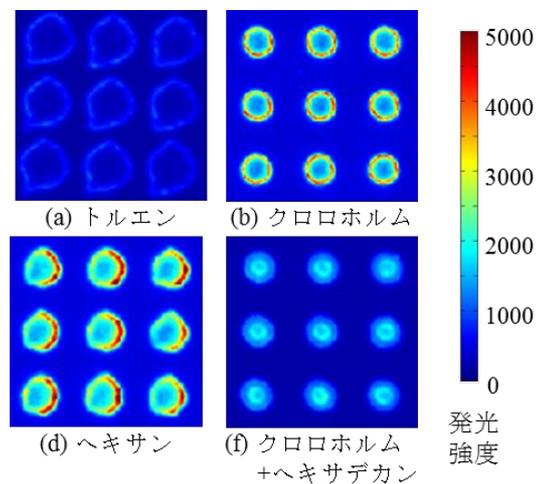


図5 様々な溶媒を用いた感温センサ(ZAIS)のマクロドット

れたようにジクロロメタンにヘキサデカン
を少量加えたものと、クロロホルムにヘキサ
デカンを少量加えた混合溶媒を用いると、圧
力感度は小さく温度感度は大きな感圧セン
サを得ることができた。ヘキサンを用いると

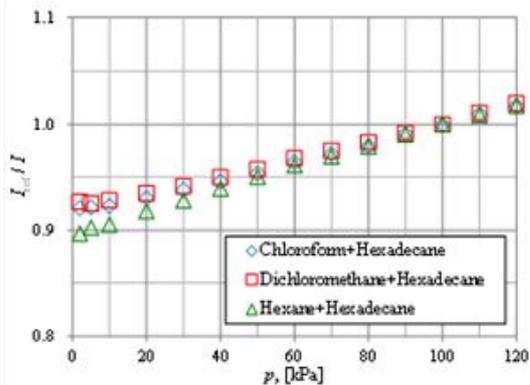


図 6 溶媒による TSP の温度感度の変化

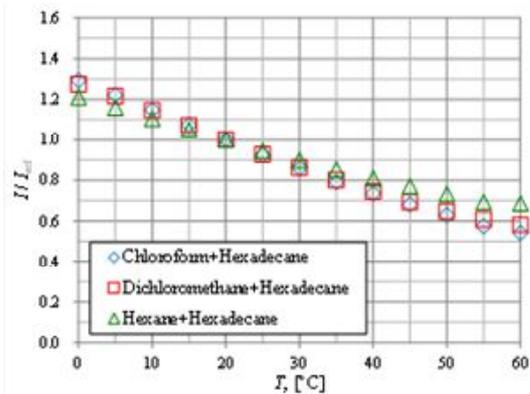


図 7 溶媒による TSP の温度感度の変化

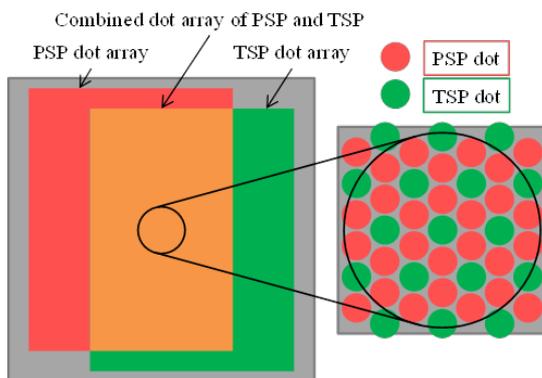


図 8 複合センサの概略図

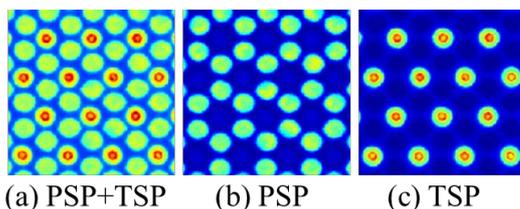


図 9 複合センサからの発光

圧力感度は大きく、温度感度は小さくなった。
以上の結果より、感圧センサはジクロロメタン
+ヘキサデカンの混合溶媒に PtTFPP を溶
解したもの、感温センサはクロロホルム+ヘ
キサデカンの混合溶媒に ZAIS を溶解したも
のを以後の試験では使用した。

(2) 複合センサの温度補正評価

(1)の複合センサの作成条件の最適化と基
礎特性の評価の結果を踏まえて、感圧センサ
と感温センサの複合化を行った。図 8 に複合
センサの概略図を示す。図のように PSP と
TSP を最密充填に配置した。ドットの直径は
0.3mm、ドット間距離は 0.7mm とした。図 9
は複合センサからの発光を撮影したもので
ある。図 9(b), (c)では CCD カメラに適切なフ
ィルターを設置することで PSP と TSP を分光
できることが分かる。航空機の物体表面上の
温度分布は圧力分と比較して変化が小さい
ので、塗布割合は PSP:TSP=2:1 とした。

次に、校正チャンバー内で圧力を 100kPa
から 50kPa に、温度を 20°C から 0°C に変化
させた環境における、複合センサの温度変化
による圧力測定値の誤差を評価した。感温セ
ンサによる温度補正を施さない感圧センサ
のみを用いた場合の圧力の測定値は 50kPa
30.6kPa となり測定誤差は $\Delta p = 19.4$ kPa に
も達した。これは 0.97%/°C の温度誤差に相
当する。これを複合センサの感温センサで同
時測定した温度分布の情報を用いて温度補正
を施したところ、圧力の測定値は 49.8 kPa
となり、測定誤差は $\Delta p = 0.2$ kPa まで減少
した。温度変化による誤差は 0.02%/°C まで
低減することができた。これまで陽極酸化被
膜を用いた感圧塗料(AA-PSP)はその高速応
答性のため、非定常計測に多く用いられて
きたが、その温度による誤差がポリマー型
と比較して大きいため、温度が大きく変化
する流れ場における測定精度に問題があっ
た。今回の研究成果により、AA-PSP にお
いても複合センサを構築することができ
るようになり、圧力の測定精度を大幅に
向上させることが可能となった。

(3) 複合センサの時間応答評価

複合センサの高速応答性について、図 10
の衝撃波管風洞で行った。作製した複合セ
ンサのサンプルを衝撃波管端面に設置し、
衝撃波管内を伝播する垂直衝撃波の衝突時
のサンプルの発光強度の変化を観測した。
衝撃波は高压室圧力を 240 kPa (絶対圧)、
低压室圧力を 30 kPa (絶対圧) に調節し、
高压室と低压室を隔てる 75 μ m 厚のポ
リエステル製のマイラ膜を撃針により強
制破膜させることで発生させた。衝撃波
管計測部の観察窓から複合感圧塗料に対
し励起光を照射し、励起光の反対側の観
察窓に光電子増倍管を設置することで複
合感圧塗料からの発光を観測した。圧力
変動の計測は、衝撃波管端面に設置した

サンプル表面と同一平面上に圧カトランスデューサを設置し、衝撃波の到達時に発生する圧力変動をトリガ信号としてオシロスコープを用いて圧力波形を取得した。サンプルの圧力応答時間は圧カトランスデューサの観測した圧力波形と比較することで算出した。図 11 は複合センサの圧力変化に対する時間応答の測定結果を示したものである。これより応答時間 $63\mu\text{s}$ を得た。これは、従来型の AA-PSP と同程度の時間応答性を示している。今回基盤として用いた陽極酸化膜は硫酸浴で作製したものであるが、開発中のリン酸浴で作製した陽極酸化の孔径の大きなものを使用すればさらに高速な圧力センサを作成することが可能となる。

(4) 結言

模型上の非定常流体现象を計測するために、陽極酸化型の感圧・感温複合センサを開発した。従来の浸漬法では困難であった、感圧センサと感温センサの陽極酸化被膜上での複合化をインクジェット技術を用いて実現した。開発された感圧・感温複合センサは従来の陽極酸化型のセンサと同等の圧力・温度感度と時間応答性を有することが示された。この複合センサにより温度変化による誤差を $0.97\%/^{\circ}\text{C}$ から $0.02\%/^{\circ}\text{C}$ まで低減することができた。また、圧力変化に対する応答時間も $63\mu\text{s}$ と高速応答を実現した。

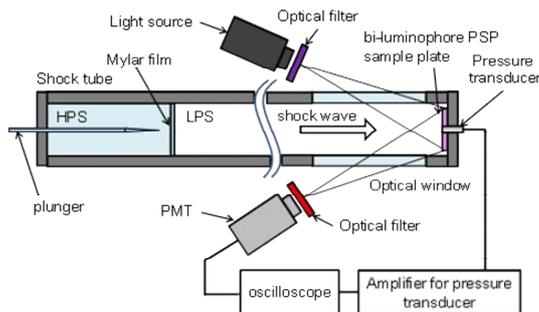


図 10 衝撃波風洞試験の概略図

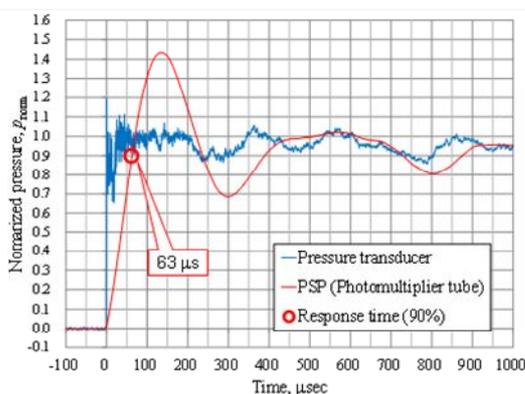


図 11 複合センサの圧力に対する時間応答

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 13 件)

- (1) 上山淳一, 古川聖, 亀谷知宏, 松田佑, 山口浩樹, 新美智秀, 江上泰広, 「陽極酸化被膜上のマイクロドット型 PSP 実現のためのインクジェット塗布条件」, 日本機械学会論文集, 査読有, Vol.80, No.811, (2014), p. FE0040. doi:10.1299/transjsme.2014fe0040
- (2) Y. Egami, Y. Matsuda, H. Yamaguchi, T. Niimi, "Property changes of temperature-sensitive paint immobilized in acrylic polymer matrices", 査読有, Sensors and Actuators B: Chemical, Vol.195, (2014), pp.677-681. doi:10.1016/j.snb.2014.01.091
- (3) T. Kameya, Y. Matsuda, Y. Egami, H. Yamaguchi, T. Niimi, "Dual luminescent arrays sensor fabricated by inkjet-printing of pressure- and temperature-sensitive paints", Sensors and Actuators B: Chemical, 査読有, Vol.190, (2014), pp. 70–77. doi:10.1016/j.snb.2013.08.011
- (4) Y. Egami, K. Fujii, T. Takagi, Y. Matsuda, H. Yamaguchi, T. Niimi, "Reduction of Temperature Effects in Pressure-Sensitive Paint Measurements", AIAA Journal, 査読有, Vol.51(7), (2013), pp.1779-1782. doi: 10.2514/1.J052226
- (5) 亀谷知宏, 松田佑, 江上泰広, 山口浩樹, 新美智秀, 「ドット配列による感圧/感温塗料の複合化」, 日本機械学会論文集, 第 78 巻第 791 号 B 編 (2012), pp.1327-1335, 査読有, doi:10.1299/kikaib.78.1327

〔学会発表〕(計 28 件)

- (1) 奥谷太賀「マイクロドット型 AA-PSP の溶媒による特性変化に関する研究」, 日本機械学会東海支部第 45 回学生員卒業研究発表講演会, 大同大学(愛知県), 2014.3.17
- (2) 古川聖「マイクロドット型感圧センサ特性における溶媒の影響」, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2013.11.9-10, 九州大学(福岡県)
- (3) 上山淳一「疎水処理を施した陽極酸化基板におけるマイクロドット型感圧センサの形成」, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2013.11.9-10, 九州大学(福岡県)
- (4) S. Furukawa, "Development of fast response pressure-sensitive microdot arrays", 4th Japanese-German Seminar on Molecular Imaging Technology for Interdisciplinary Research, 2013.09.23-25, Munich (Germany)
- (5) T. Kameya, "A novel dual luminescence sensor applicable to surfaces with

non-uniform temperature distribution",
4th Japanese-German Seminar on
Molecular Imaging Technology for
Interdisciplinary Research, 2013.9.23-25,
Munich (Germany)

- (6) 亀谷知宏, 「配列型 2 色発光 PSP の開発」, 第 41 回可視化情報シンポジウム, 2013.07.16-17, 工学院大学 (東京都)
- (7) Y. Egami, "Change of Temperature-Sensitive Paint Characteristics by Polymer Structure", 12th Asian Symposium on Visualization (ASV12), 2013.5.19-23, Tainan (Taiwan).
- (8) 上山 淳一, 「陽極酸化型感圧センサにおける疎水処理の影響」, 日本機械学会東海支部第 44 回学生員卒業研究発表講演会, 2013.3.17, 三重大学 (三重県)
- (9) 古川聖, 「マイクロドット型感圧センサの開発」, 日本機械学会東海支部第 44 回学生員卒業研究発表講演会, 2013.3.17, 三重大学 (三重県)
- (10) 亀谷知宏, 「PtTFPP と CdSe/ZnS を用いた PSP/TSP 複合センサ」, 第 40 回可視化情報シンポジウム, 2012.7.24-25, 工学院大学 (東京都)
- (11) 亀谷知宏, 「感圧・感温塗料による圧力と温度の同時計測」, 日本機械学会 2011 年度年次大会, 2011.9.11 - 14, 東京工業大学 (東京都).

〔その他〕

ホームページ等

<http://aitech.ac.jp/~egami/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

江上 泰広 (EGAMI, Yasuhiro)

愛知工業大学・工学部・教授

研究者番号: 80292283

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

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