

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14095

研究課題名（和文）固液界面微細気泡の動的挙動解明に向けた全反射蛍光観察に基づく液体温度計測

研究課題名（英文）Development of liquid temperature measurement based on total internal reflection fluorescence observation for elucidation of dynamic behavior of microbubbles at solid-liquid interface

研究代表者

栗山 怜子（KURIYAMA, Reiko）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：70781780

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本課題は界面近傍微細気泡の周囲の熱流動場の詳細な観察に向けて、全反射蛍光偏光法に基づく温度計測法を提案し、界面近傍の液体温度計測における有効性を検証した。まずマイクロ流路内の単相流において提案手法による加熱壁面近傍の温度分布計測の妥当性を示した。次に固気液三相界面近傍に提案手法を適用し、気液界面近傍における散乱光による影響や、固液界面と蛍光分子の相互作用の影響が偏光度に与える影響を明らかにした。また、得られた知見を活かして蛍光溶液封入型の表面温度センサーの開発や局在表面プラズモン共鳴を利用したプローブの開発にも取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固液界面の微細気泡が介在する熱流動現象は工学上の有用性が高い一方で、観察が難しいことから基本的性質や挙動に不明な点が多く、気泡周囲の熱流動場に関する計測技術の発展が望まれている。本課題は蛍光分子の回転運動に伴う偏光解消特性に基づく温度計測原理と全反射蛍光観察を組み合わせた全反射蛍光偏光法を提案し、固気液三相界面近傍に適用を試みた。単相流中で計測の妥当性を示すとともに、気液界面における光の反射や壁面と色素間の相互作用が計測に与える影響を明らかにし、今後の計測技術開発において重要な知見を得た。また、上記の知見を活かした新たな表面温度センサーや蛍光信号の増強が可能な蛍光プローブの開発にも取り組んだ。

研究成果の概要（英文）：The present study proposed a liquid temperature measurement method based on total reflection fluorescence polarization method for detailed observation of thermal flow field around microbubbles near the interface. The proposed method was applied to single phase flow in microchannel to demonstrate the validity of the liquid temperature measurement. The measurement results near the solid-gas-liquid three-phase interface showed that the fluorescence polarization was affected by scattering near the gas-liquid interface and the interaction between the solid-liquid interface and fluorescent molecules. We also developed a fluorescent solution-encapsulated surface temperature sensor and a fluorescent nano-probe using localized surface plasmon resonance.

研究分野：熱流体工学

キーワード：液体温度計測 蛍光偏光法 全反射蛍光観察 固気液三相界面 表面温度 フィルム型センサー

## 1. 研究開始当初の背景

固液界面にはナノ～ミリメートルの様々なサイズの気泡の存在が確認されており、それぞれに特徴的な性質や工学的重要性を持つ。例えば、ミリバブルは直径数 mm 程度の気泡であり、特に沸騰伝熱に関連する研究が古くから盛んである。気泡周囲の液体の蒸発や気泡運動に伴う対流などの素過程の解明が進められる中で、気泡成長過程で底部（伝熱面上）に形成される厚さ数  $\mu\text{m}$  のマイクロ液膜の存在と伝熱へ寄与が明らかになっており、界面における気泡の成長とマイクロ液膜の蒸発による潜熱輸送の相関を定量的に明らかにすることが期待されている。またこれ以外にも、近年は界面ナノバブルやプラズモンバブルなど様々な形態の微細気泡の研究が活発であり、加熱条件下におけるこれらのバブルの動的挙動と周囲温度との相関を明らかにすることが求められている。

一方で、いずれの気泡も微視的スケールにおける相変化や界面現象が複雑に関わる上、時空間分解能の点から精密な観察・計測が難しく、単一気泡についても基本的性質や挙動には不明な点が多い。界面微細気泡が介在する理解・制御のためには、固液界面に存在する微細気泡周囲のミクロスケールの液体温度を時空間的に捉える計測技術の開発が急務であると考えられる。

これまで、沸騰現象をはじめ固液界面近傍の気液二相流を対象とする研究では、熱電対や MEMS センサー、赤外線カメラなどによる詳細な表面温度計測が行われてきた (Copper & Lloyd, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **12**, 1969; Yabuki & Nakabepu, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **76** 2014; Gerardi et al., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **53**, 2010)。これに対して液体側の詳細な温度計測例は限られるが、Yabuki らは高速度な干渉計測により孤立気泡周りの液体温度計測に成功している (Yabuki et al., *J. Therm. Sci. Technol.*, **7**, 2012)。Baffou らは波面解析により固液界面近傍の液体温度の 3 次元分布を取得し、熱プラズモニクスによる気泡生成の温度条件を明らかにしたが、気泡の存在が計測を阻害するため生成直前の温度しか得られていない (Baffou et al., *J. Phys. Chem. C.*, **118**, 2014)。Banks らはレーザー誘起蛍光法を用いて気泡周りの液体温度を計測したが、蛍光色素の圧力依存性や濃度の不均一性の影響により、気泡存在下での正確な温度計測は困難であった (Banks et al., *Exp. Therm. Fluid Sci.*, **103**, 2019)。

## 2. 研究の目的

上記の通り、固液界面近傍の微細気泡周りの温度計測は発展途上にあり、微細気泡が関わる様々な相変化現象の解明に向けた計測技術の開発が求められている。そこで本研究は、全反射蛍光観察とレーザー誘起蛍光法 (LIF) に基づく液体温度計測 (Kim & Yoda, *J. Heat Transfer*, **134**, 2012) を発展させ微細気泡周りの温度場に適用する。具体的には、界面近傍 100 nm のみを高感度に観察可能な全反射照明と、色素濃度分布や時空間的な蛍光強度変化の影響を受けにくいレシオメトリックな温度校正手法を組み合わせることで、色素が不均一に分布し、光の干渉・散乱などの影響を受けやすい界面近傍領域においても安定した計測法を確立することを目標とする。

## 3. 研究の方法

本研究は、令和 3～5 年度の研究期間に主に下記の内容に取り組んだ。

- (1) 界面における色素濃度分布や時空間的な蛍光強度変化の影響を受けにくい温度校正方法の確立を目的に、全反射蛍光観察システムを構築し、エバネッセント波励起による 2 色 LIF 法および蛍光偏光法に基づく温度校正を実施した。提案手法をマイクロ流路内の単相流に適用することで壁面近傍液体温度計測としての妥当性を検証するとともに、固液界面への蛍光色素の吸着の影響と対策についても調査した。
- (2) 微細気泡周りの熱流動場における温度計測に向けた前段階として、2 枚のガラス平板間に蛍光色素溶液の液滴を封入してガラス・空気・溶液からなる固気液三相界面を形成し、その近傍で温度条件を変化させながら蛍光強度や偏光度分布の計測を行った。全反射照明による提案手法と体積照射による計測の結果を比較し、界面近傍における液体温度計測手法としての提案手法の優位性を検証した。
- (3) 温度計測の時間分解能の向上に向けて局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) による蛍光増強について検討し、LSPR を利用した蛍光偏光型ナノプローブの開発に取り組んだ。また、蛍光分子の表面への吸着を嫌う用途に有用な蛍光色素封入型の表面温度センサーについても別途開発を進めた。

## 4. 研究成果

- (1) 台形プリズムを用いた全反射蛍光観察システムを構築し、蛍光色素によるエバネッセントスポットの可視化や蛍光粒子像の観察の結果から、界面選択的な蛍光観察が可能であることを確認した (図 1(a))。また温度制御・プリズム保持用のステージや光路調整用の治具を

自作し、全反射の入射角度の調整 ( $\sim 0.1^\circ$ の精度) およびステージ温度の制御を可能にした。レシオメトリックな温度校正方法の検討に向けて、観察光路を波長もしくは偏光方向に応じて2方向に分岐させ、2台のカメラによる2成分の蛍光画像の同時計測を可能にした。

次に構築したシステムを用いて2色LIF法および蛍光偏光法による温度校正を実施した。2色LIF法では、1種類の蛍光色素(スルホローダミンB (SrB)やSNARF-1)の蛍光波長のうち温度感度の異なる2つの蛍光波長帯を選定し、その波長帯に応じた光学素子を検出経路に組み込むことで2波長帯の蛍光画像の同時取得を行った。その結果、深さ方向全体を照明する体積照明を用いたバルクの計測では蛍光強度比と温度の相関が良好に得られた一方、全反射照明による固液界面近傍の計測ではいずれの色素も測定開始からの時間とともに強度比が減少し、温度と強度比の校正が困難であった。この原因として色素のガラス壁面への吸着が挙げられ、実際にガラスに吸着したSrBと液中のSrBの蛍光スペクトルを比較すると、ピーク波長のシフトが確認された。2色LIF法では温度感度の異なる複数の波長帯を持つ色素が必要であり、色素の選択性が比較的限られることから、選定した色素に応じた吸着抑制対策が必要であると分かった。これに対して、蛍光色素の回転ブラウン運動に基づく蛍光偏光法の場合は色素の選択性が高いため、負に帯電するガラス壁面に吸着しにくいと考えられるウラニンを用い、流路表面のコーティングと色素溶液のpH調整を併用して校正を行った。その結果、20~40°Cの範囲において温度と蛍光偏光度の相関が得られ、2色LIF法と比較して時間的な安定性も良好であったため、これ以降は全反射蛍光偏光法に絞って研究を進めた。

- (2) 全反射照明と蛍光偏光法を組み合わせた上記手法を固気液三相界面の近傍に適用し、測定の妥当性を検証した。なおこの際、蛍光偏光計測の簡略化に向けて偏光カメラの導入を行い、カメラの位置合わせ等が不要な簡便な計測システムを構築した(図1(a))。また、カメラ素子の感度や計測システムの偏光特性に起因する系統誤差を考慮して偏光度の解析を行うことで、正確な偏光度の測定を可能にした。2枚のガラス平板間に蛍光色素溶液の液滴を封入してガラス・空気・溶液の三相界面を形成し(図1(b))、その近傍で温度条件を変化させながら蛍光強度や偏光度分布の計測を行った。全反射照明と体積照明の場合について液滴中央部で計測を行った結果、いずれの照明方法においても液相部分で蛍光偏光度は温度とともに減少し、理論値と同程度の変化率が得られた(図2)。その一方、全反射蛍光観察で得られる蛍光偏光度は、Perrinの式に基づく理論値および体積照射によるバルクの測定値よりも高く、浸み込み深さが小さいほどその差が大きい傾向が得られた。これは壁面が蛍光分子の回転運動を束縛するような影響を与えることを示す結果と考えられる。続いて、接触線近傍における蛍光強度測定の結果(図3上段)、全反射照明の方が体積照明に比べて界面における光散乱の影響を受ける範囲が狭いこと、気液界面が蒸発などにより移動しても液相領域の蛍光強度分布はガウシアン状の強度分布を保つことが分かった。偏光度測定の結果については、蛍光強度の場合と同様に全反射照明の方が界面の影響を受ける領域が狭いことを示した一方で、測定の最大誤差は界面から20 $\mu\text{m}$ 程度の範囲では全反射照明の方が大きかった(図3下段)。エバネッセント波の進行方向や気泡に対するスポットの大きさ、浸み込み深さを変化させて界面の影響を低減する方法を引き続き検討していく必要がある。

- (3) 全反射蛍光偏光法による温度計測の時間分解能を向上させるため、局在表面プラズモン共鳴(LSPR)を利用して蛍光信号の増強を試みた。LSPRの効果を最大化させるためには色素と金属ナノ粒子の距離を適切に制御する必要があるため、シリカ被膜した金属ナノ粒子に蛍光色素を修飾した蛍光偏光型ナノプローブを合成した。シリカ膜厚を適切に設計したプローブについて、9倍程度の蛍光増強効果および温度と偏光度の相関を得ることができた。また、(1)の結果から、色素溶液と固体表面の接触による色素の吸着が不可避であることが分かったため、色素の吸着や色素溶液との接触を嫌う場面に適用可能な表面温度センサーの開発に別途着手した(図4)。柔軟性の高い2枚の透明フィルムの間で蛍光溶液を封入した蛍光偏光型センサーを作製し、センサーを測定面に貼り付けることで表面温度分布計測への有効性を示した。また、封入する溶液の粘度を制御することで温度測定のばらつきを0.2°C程度まで低減し、センサー設計の最適化により高精度な表面温度分布測定が可能であることを示した。

(まとめ)

本課題は、蛍光分子の回転運動に伴う偏光解消特性に基づく温度計測原理と全反射蛍光観察を組み合わせた全反射蛍光偏光法を提案し、固気液三相界面近傍に適用を試みた。単相流中での液体温度計測法としての妥当性を示すと同時に、気液界面における光の反射や壁面と色素間の相互作用が計測に与える影響を明らかにし、今後の計測技術開発において重要な知見を得た。また、上記の知見を活かした新たな表面温度センサーや蛍光信号増幅を可能にするプローブの開発にも取り組み一定の進展を得た。

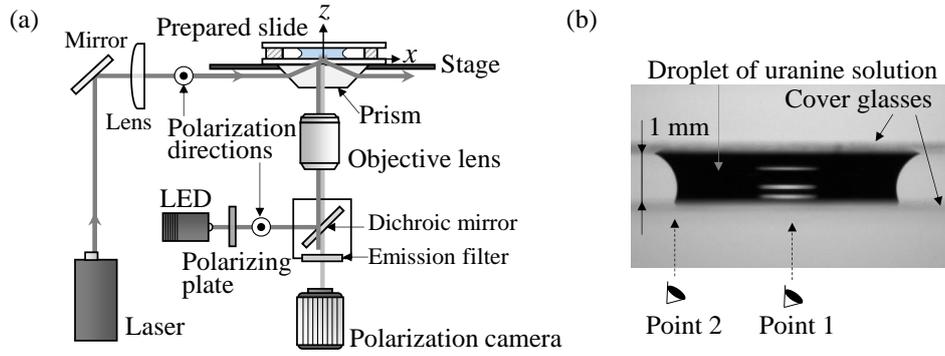


図 1 (a) 全反射蛍光偏光測定システム。(b) ガラス平板間に作製した固気液界面の様子。

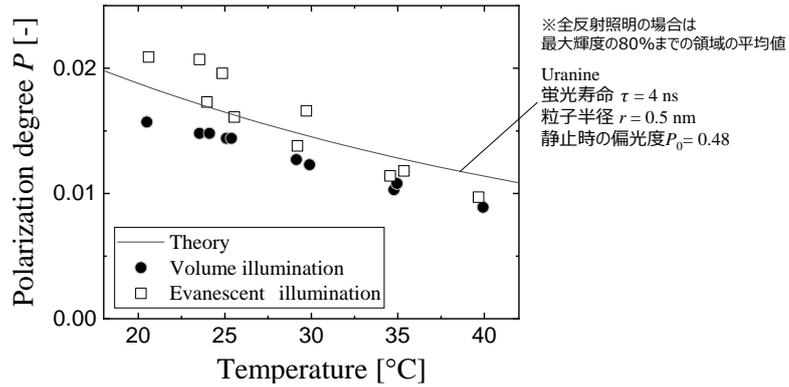


図 2 全反射照明および体積照明により得た温度と蛍光偏光度の関係。

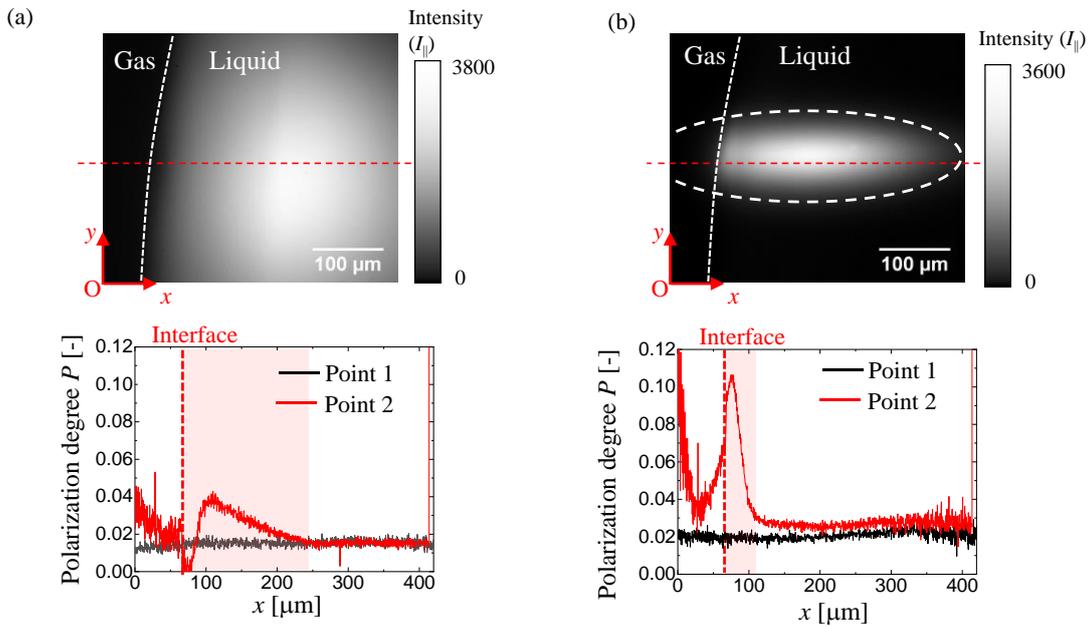


図 3 (a) 体積照明および(b)全反射照明による固気液界面近傍の蛍光強度と蛍光偏光度の分布。

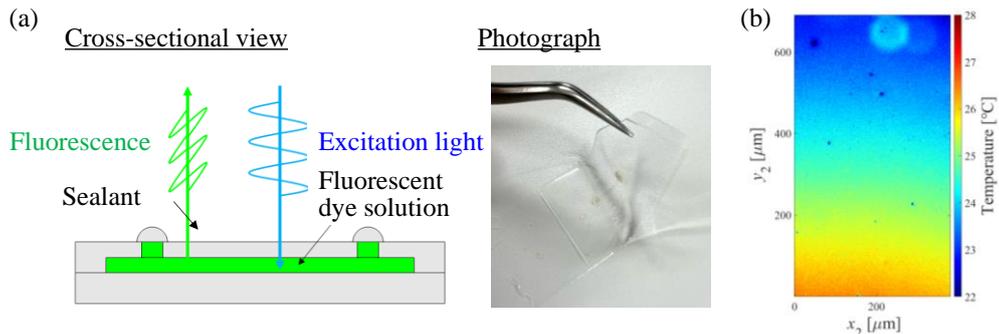


図 4 (a) 蛍光偏光型のフィルム表面温度センサーの概要および (b) 温度分布可視化例。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Kuriyama, R., Ueda, K., Tatsumi, K., and Nakabe, K.
2. 発表標題 Measurement of Near-wall Liquid Temperature Based on Total Internal Reflection Fluorescence Microscopy
3. 学会等名 The 17th International Heat Transfer Conference, IHTC-17 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 栗山怜子, 植田啓太, 西原聖人, 上田隆生, 巽和也
2. 発表標題 蛍光偏光法による液体温度計測と壁面近傍・表面温度計測への応用
3. 学会等名 第19回学際領域における分子イメージングフォーラム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 栗山怜子, 村田貴彬, 巽和也
2. 発表標題 局在表面プラズモン共鳴を利用した液体温度計測用蛍光偏光型ナノプローブの開発
3. 学会等名 第52可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Kuriyama, R., Ueda, T., and Tatsumi, K.
2. 発表標題 Development of film-type surface temperature sensor based on fluorescence polarization
3. 学会等名 10th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, ExHFT-10 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 栗山 怜子
2. 発表標題 光と分子運動を利用したマイクロ流路内の熱流体可視化技術
3. 学会等名 日本伝熱学会関西支部第29期第3回講演討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西原聖人, 栗山 怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント場を用いた固気液三相界面の蛍光観察
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2022年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 栗山 怜子, 井上実優, 有田大輝, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント場の放射圧による壁面近傍単一微粒子層の運動制御
3. 学会等名 日本機械学会関西支部第98 期定時総会講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 栗山 怜子, 西原聖人, 巽和也
2. 発表標題 全反射蛍光偏光法に基づく固気液三相界面近傍の液体温度計測
3. 学会等名 第51可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 栗山怜子, 植田啓太, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント波を用いた蛍光偏光法によるマイクロ流路壁面近傍の液体温度計測
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 栗山怜子, 中川友貴, 植田啓太, 山本和佳, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 蛍光分子の運動特性を利用したマイクロ流路内の熱流体可視化技術
3. 学会等名 第49可視化情報シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関