多孔質膜を用いた差圧応答型 PSP の開発*

依田大輔¹⁾, 永井大樹²⁾, 浅井圭介³⁾

Development of luminescent differential-pressure sensor based on porous membrane

Daisuke Yorita, Hiroki Nagai and Keisuke Asai

ABSTRACT

Pressure-Sensitive Paint (PSP) is applied to various wind tunnel tests as a useful technique to measure pressure distribution on model surfaces. PSP is inherently an absolute pressure sensor so that it is difficult to use this technique in low-speed flow where pressure change on a model is very small. To measure pressure with a high degree of accuracy at low speeds, we have developed a new type of PSP that responds to differential pressure rather than absolute pressure. This novel technique uses porous membrane through which gas containing no oxygen (e.g. nitrogen) is transported from the backside to the front side by pressure difference across the membrane. The transported gas purges oxygen near the surface and luminescence of PSP is enhanced. The results of sample tests show that the pressure sensitivity of the new PSP is higher than that of the conventional PSP by a factor of 100 times or more. In addition, the response of this sensor to differential pressure is almost linear and highly reproducible.

Keywords: pressure-sensitive paint(PSP), differential-pressure, porous membrane

1. 結論

近年, 航空宇宙工学の分野では物体表面の圧力分布を計測する手法として, 感圧塗料(Pressure-Sensitive Paint, PSP)と呼ばれる分子センサを用いた光学的計測手法が注目されている^{1,2)}. 従来の点計測と異なり, PSP には物体表面の圧力を面分布で計測することができる, 流れに対して非侵襲な計測が行えるといった利点があり, 広い分野での応用が期待されている. このような利点から, 低速領域の様々な現象に対しても PSP の適用は試みられている^{3,4,5,6)}. しかしながら, 低速現象において圧力の変化は動圧(流速 10 m/s で 60 Pa)と同程度であるのに対し, 大気圧付近での PSP の圧力変化に対する発光強度の変化, すなわち圧力感度は 0.7 %/kPa 程度しかない. また, PSP の発光強度は温度にも依存する. このため, 流速が遅くなるにつれ SN 比が悪化し, 十分な計測精度を得ることが困難になる. 現状での PSP の計測限界は 100 Pa 程度である. これらは現状の PSP 計測手法の特性上, 大気圧付近で圧力感度が小さくなることが原因である. より小さな圧力変化を示す現象への PSP の適用には, 大気圧付近の微小な圧力変化に対して大きな感度を持つ新たな PSP 計測手法

の開発が不可欠である. そこで本研究では, 低速領域の風洞実験への適用を目指して, 多孔質膜を用いた微差圧にตอบสนองする新たな PSP 計測手法の開発に取り組み, その有効性について検証する.

2. 理論

2.1 感圧塗料(Pressure-Sensitive Paint, PSP)

感圧塗料とは励起光を照射すると燐光を発する色素を含む塗料で, 周囲の酸素濃度によって色素の発光強度が変化する酸素消光(Oxygen quenching)と呼ばれる現象を利用した光学的酸素分子センサである. 通常, 物体表面にはたらく圧力と酸素濃度の間に相関があることを利用して圧力値を得ている. 色素はバインダーとなるポリマーなどによって, または静電気力や分子間力などの物理的作用によって物体表面に固着されている. 酸素消光による色素の発光強度の変化特性は, Stern-Volmer 関係式と呼ばれる式(1)によって表される.

$$\frac{I_0}{I} = 1 + K_{sv} [O_2] \quad (1)$$

ただし, I は発光強度, $[O_2]$ は酸素濃度, K_{sv} は定数, 添字 0 は真空を表す.

従来の PSP 計測手法では酸素濃度が酸素分圧に比例し, 酸素分圧が静圧の 21 %であることを利用して圧力計測

* 原稿受付 2008 年 2 月 5 日

1) 非会員 東北大学大学院 工学研究科
(〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-01,
E-mail: yorita.daisuke@aero.mech.tohoku.ac.jp)

2) 非会員 東北大学大学院 工学研究科

3) 正会員 東北大学大学院 工学研究科

を行う。また、実際の風洞実験では真空状態を作り出すのは困難なことが多く、一般的にはある既知の圧力(基準圧力) P_{ref} に対する発光強度を I_{ref} とすることで、式(1)を式(2)のように変形して発光強度比 I_{ref}/I から圧力 P の算出を行う。

$$\frac{I_{ref}}{I} = A(T) + B(T) \frac{P}{P_{ref}} \quad (2)$$

ここで、 A 、 B は温度の関数であり Stern-Volmer 係数と呼ばれる。式(2)は、必要に応じて高次の項まで追加することができる。

このような従来の PSP 計測手法は、相対的に圧力比 P/P_{ref} が小さくなる大気圧付近では計測される発光強度比 I_{ref}/I が小さくなる。

2.2 差圧応答型 PSP

Fig. 1 に差圧応答型 PSP の概念図を示す。本研究の差圧応答型 PSP では、圧力を計測する物体表面に多孔質壁で仕切ったキャビティを設け、多孔質壁表面に PSP を塗布する。キャビティ内には酸素未含有ガス(たとえば窒素)を充填し、外部の圧力と等しくする。この状態ではガスはほとんど漏れ出さないが、多孔質壁上の圧力が低下した場合、差圧によってキャビティ内から多孔質壁を透過してガスが漏れ出す。ガスが漏れ出した場所では酸素濃度が著しく低下するため、PSP の発光強度は大きく変化する。

このように、多孔質壁に塗布した PSP 近傍の酸素濃度を差圧に応じて漏れ出すガスによって従来の静圧変化に伴う変化よりも大きく変化させてやれば、PSP の発光強度は従来の計測手法よりも大きな変化を示す。

3. 実験装置および方法

Fig. 2(a)に本実験で用いた多孔質壁を、Fig. 2(b)に多孔質壁の有する微細孔の走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope, SEM)画像を示す。多孔質壁としてはアルミナ製の多孔質膜(Whatman, ANODISC25)を用いた。多孔質膜の直径は 21 mm であり、外周にポリプロピレン製のサポートリングが取り付けられている。本実験に用いた多孔質膜の細孔径は 20, 100, 200 nm の 3 種類であり、膜厚はいずれも 60 μm である。Fig. 2(b)に示すように、この多孔質膜は比較的均一な孔径の微細孔が真っ直ぐに空いていることが特徴であり、多孔質膜上での差圧の分布がそのままキャビティからのガスの漏れ出しの分布に反映されると考えられる。

多孔質膜に塗布する感圧色素には、バソフェニルテニウム [Tris-(4,7'-diphenyl-1,10'-phenanthroline)ruthenium (II)] (GFS Chemicals)を用いた。この感圧色素の吸収波長のピークは 470 nm であり、発光波長のピークは 620 nm である。この塗料はアルミナ基板に対して色素を静電気力や分子間力といった物理的な作用で直接吸着させる⁷⁾。パ

Fig. 1 Concept of differential-pressure sensor.

(a) ANODISC membrane

(b) SEM image of ANODISC membrane
(Pore diameter 200 nm)

Fig. 2 Porous alumina membrane.

インダーとなるポリマーを用いないことでポリマーがガスの流路となる微細孔を塞ぐ問題も避けることができる。

Fig. 3 に PSP を塗布した多孔質膜のサンプルを固定するサンプルホルダを示す。サンプルはキャビティ部と蓋により挟み込む形で固定され、キャビティを外部と仕切る。このとき接触面となるサポートリングには真空グリスを塗布し、細孔以外からのガスの漏れを防いだ。PSP の励起光や発光の反射を防ぐため、蓋にはつや消し黒塗装を施した。

Fig. 4 に本実験で用いた計測システムの概略図を示

Fig. 3 Sample holder.

す。サンプルホルダのキャビティ内に充填する酸素未含有ガスには窒素を用い、差圧はサンプルで仕切ったキャビティ内を加圧することで発生させた。このとき、キャビティ内から多孔質膜の細孔を通じた漏れ出しと同量の窒素ガスを圧力コントローラ(Druck, DPI515)から供給することで、キャビティ内の圧力が常に一定になるように制御を行った。圧力コントローラの精度は ± 35 Pa, 制御安定性は ± 3.5 Pa である。PSP の励起にはピーク波長 395 nm の UV-LED(浜松ホトニクス, LEDA294)2 基を、発光の計測には 650 ± 20 nm の光学フィルタを取り付けた分解能 12 bit の冷却 CCD カメラ(浜松ホトニクス, ORCA-ER C4742-95)を用いた。計測は漏れ出した窒素ガスの対流の影響を避けるためサンプルを水平にして上面から行った。1 つのケースに対して画像は 5 枚ずつ取得し、ノイズ低減のために加算平均と暗電流画像の減算を行った後、差圧 $\Delta P = 0$ を基準とした各差圧におけるサンプル上の PSP の発光強度比 $I/I_{\Delta P=0}$ を算出した。

本実験では、微小な圧力変化に対する特性として、大気圧からの差圧 ΔP が 0 から 1 kPa の範囲における差圧応答型 PSP の圧力感度を調べた。また、多孔質膜の細孔径を 20, 100, 200 nm と、多孔質膜を複数枚重ねることで膜厚を $60 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m} \times 2$, $60 \mu\text{m} \times 3$ と変化させることで、圧力感度の細孔径や膜厚への依存性について調べた。加えて、より大きな圧力変化に対する特性として、差圧 ΔP が 0 から 10 kPa の範囲においても差圧応答型 PSP の圧力感度を調べた。この差圧範囲においても、多孔質膜の細孔径を 20, 100, 200 nm と、多孔質膜を複数枚重ねることで膜厚を $60 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m} \times 2$, $60 \mu\text{m} \times 3$ と変化させることで、圧力感度の細孔径や膜厚への依存性について調べた。

Fig. 4 Experimental setup.

4. 結果および考察

4.1 微小な圧力変化に対する特性

はじめに、差圧が 0 から 1 kPa の範囲における差圧応答型 PSP の特性について述べる。Fig. 5 に差圧 0 を基準とした各差圧におけるサンプル上での PSP の発光強度比分布を示す。多孔質膜の細孔径は 200 nm, 膜厚は $60 \mu\text{m}$ である。サンプル上に見られる発光強度比のない領域はサンプルの向きを確認するためのマーカーである。Fig. 6 にサンプルの中心 100×100 pixel の範囲を平均して算出した PSP の圧力感度を示す。この図において、プロットは各差圧における PSP の発光強度比であり、プロットの傾きが圧力感度を表す。ここで、P_Up は差圧を 0 から 1 kPa まで 0.1 kPa ずつ増加させたことを意味し、P_Down は逆の差圧変化を意味する。P_Up に関しては 3 回の繰り返し計測を行っており、エラーバーには各差圧における発光強度比の標準偏差 σ の 2 倍を用いている。また、従来の PSP の圧力感度を Conventional PSP として同じ図に示した。これらの結果から、差圧の増加とともにサンプル上の PSP の発光強度比が増加していることがわかり、差圧 1 kPa において発光強度比は 2 倍近くに達している。すなわち、差圧応答型 PSP の圧力感度はおよそ $100 \text{ \% / kPa}$ であり、従来の PSP の圧力感度 ($0.7 \text{ \% / kPa}$) と比較して 100 倍以上の感度増加である。さらにサンプル中心の圧力感度は、圧力の変化方向に依らず再現性と線形性を有している。

本実験ではサンプルに対して一様な差圧を与えているにも関わらず、計測されたサンプル上の PSP の発光強度比の分布は様々ではない。この分布は同一差圧で取得した 5 枚の計測画像においても異なる形で現れ、ゆらぎを生じていたことから、色素吸着のむらや窒素の漏れ出し量の不均一さが原因ではなく、差圧により漏れ出した窒素ガスが表面に滞留していることが原因だと考えられる。風洞実験

Fig. 5 Intensity ratio distribution on the porous membrane in the differential pressure range of 1 kPa.

Fig. 6 Pressure sensitivity in the differential pressure range of 1 kPa.

においては漏れ出した窒素ガスは気流により短時間で吹き飛ばされると予想される。

Fig. 7(a)に膜厚 $60\ \mu\text{m}$ の多孔質膜の細孔径を 20, 100, 200 nm とした場合のサンプル中心での圧力感度を示す。Fig. 7(b)に細孔径 200 nm の多孔質膜を複数枚重ねることで膜厚を $60\ \mu\text{m}$, $60\ \mu\text{m} \times 2$, $60\ \mu\text{m} \times 3$ とした場合のサンプル中心での圧力感度を示す。これらの図において、プロットは各差圧における PSP の発光強度比であり、プロットの傾きが圧力感度を表す。孔径が大きくなるほどに、また膜厚が薄くなるほどに差圧応答型 PSP の圧力感度が

(a) Effect of pore diameter

(b) Effect of membrane thickness

Fig. 7 Pressure sensitivity characteristic in the differential pressure range of 1 kPa.

大きくなっていることがわかる。本実験で用いたような多孔質膜を透過するガスのモル流量 F は式(3)により与えられる⁸⁾。

$$\frac{F}{\varepsilon A} = D \cdot \frac{\Delta P}{RT} \cdot \frac{1}{L} \quad (3)$$

ここで、 ε は多孔質膜の気孔率、 A はサンプル面積、 D は拡散係数、 R は気体定数、 T は気体温度、 L は膜厚を表す。式(3)より、多孔質膜を透過するガスのモル流量は細孔径とともに増加するパラメータである拡散係数と差圧に比例し、膜厚に逆比例する。これらは差圧応答型 PSP の圧力感度と傾向が一致していることから、圧力感度は透過流量の関数になっていると思われる。圧力感度と透過流量の関係や透過流量と細孔径、膜厚の関係を定式化することで実験条件に合わせた差圧応答型 PSP の最適化が可能になると思われる。

Fig. 8 Intensity ratio distribution on the porous membrane in the differential pressure range of 10 kPa.

Fig. 9 Pressure sensitivity in the differential pressure range of 10 kPa.

4.2 大きな圧力変化に対する特性

次に、差圧が 0 から 10 kPa の範囲における差圧応答型 PSP の特性について述べる。Fig. 8 に差圧 0 を基準とした各差圧におけるサンプル上での PSP の発光強度比分布を示す。多孔質膜の細孔径は 200 nm、膜厚は 60 μm である。Fig. 9 にサンプルの中心 100 $\times$ 100 pixel の範囲を平均して算出した PSP の圧力感度を示す。この図において、プロットは各差圧における PSP の発光強度比であり、プロットの傾きが圧力感度を表す。ここで、P_Up は差圧を 0 から 10 kPa まで 1 kPa ずつ増加させたことを意

(a) Effect of pore diameter

(b) Effect of membrane thickness

Fig. 10 Pressure sensitivity characteristic in the differential pressure range of 10 kPa.

味し、Conventional PSP は従来の PSP の圧力感度である。この差圧範囲で差圧応答型 PSP の発光強度比は差圧の増加とともに非線形的に増加し、最大で 15 倍近くに達する。さらに、差圧がおおよそ 7 kPa 以上になると発光強度は変化しなくなる。この圧力感度が失われる領域ではサンプル上の発光強度比の分布も全面でほぼ一様になっている。

Fig. 10(a)に膜厚 60 μm の多孔質膜の細孔径を 20, 100, 200 nm とした場合のサンプル中心での圧力感度を示す。Fig. 10(b)に細孔径 200 nm の多孔質膜を複数枚重ねることで膜厚を 60 μm , 60 $\mu\text{m} \times 2$, 60 $\mu\text{m} \times 3$ とした場合のサンプル中心での圧力感度を示す。これらの図において、プロットは各差圧における PSP の発光強度比であり、プロットの傾きが圧力感度を表す。この差圧範囲においても、多孔質膜の細孔径や膜厚に依存して差圧応答型 PSP の圧力感度が変化することがわかる。細孔径が 100 nm と 200 nm の結果を比較すると、圧力感度が失われる領域で発光強度比はほぼ同じ値となっている。サンプル上で発光強度

比の分布が一樣になっていること, 細孔径が違うサンプルでも発光強度比がほぼ同じ値となっていることから, この領域で PSP 近傍の酸素濃度は漏れ出した窒素ガスにより 0 になっていると考えられる. また, 細孔径が 20 nm(膜厚 60 μm), 膜厚が 60 $\mu\text{m} \times 2$, 60 $\mu\text{m} \times 3$ (ともに孔径 200 nm)のサンプルでは, 圧力感度は小さくなっているが差圧が 10 kPa に達しても圧力感度は失われていない. 計測する差圧範囲に合わせて細孔径や膜厚を選択することで, 本研究の差圧応答型 PSP はより広い圧力レンジへ適用できる可能性がある.

5. 結論

PSP の低速領域での計測精度の向上のために, 多孔質膜を用いた差圧に応答する新たな PSP 計測手法を開発し, その有効性を検証した. 得られた知見を次に示す.

1. 開発した差圧応答型 PSP は, 差圧が 0 から 1 kPa の範囲で従来の PSP の 100 倍以上の圧力感度を有する. 加えて, 圧力感度には線形性と再現性がある.
2. 差圧が 0 から 10 kPa の範囲で発光強度比は最大で 15 倍近くに達する. 圧力感度は差圧の増加とともに非線形的に増加し, 最終的に PSP 近傍の酸素濃度が 0 となることで圧力感度は失われる.
3. 圧力感度は多孔質膜の細孔径や膜厚により変化し, 多孔質膜を透過するガスの流量の関数になっている.

今後は風洞実験への適用に向けて通風時の特性を調べるとともに細孔径や膜厚など各パラメータと圧力感度との関係を調べ差圧応答型 PSP の最適化を行う必要がある.

参 考 文 献

- 1) Bell, J.H., Schairer, E.T., Lawrence A. Hand, L.A. and Mehta, R.D. : Surface pressure measurements using luminescent coatings, *Annu. Rev. Fluid Mech.* Vol.33 (2001) pp.155-206.
- 2) 浅井圭介 : 感圧塗料の現状と展望, 可視化情報学会誌, Vol.21, No.83 (2001) pp.203-208.
- 3) Bell, J.H. : Application of Pressure-Sensitive Paint to Testing at Very Low Flow Speeds, 42nd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, Reno, Nevada, AIAA2004-0878 (2004).
- 4) Brown, O. : Low-Speed Pressure Measurements Using a Luminescent Coating System, Ph.D Thesis, Stanford University (2000).
- 5) 江上泰広, 飯島由美, 浅井圭介 : 自動車模型を用いた低速 PSP 実験, 可視化情報シンポジウム講演論文集, Vol.23, No.1 (2003) pp.149-152.
- 6) Yamashita, T., Sugiura, H., Nagai, H., Asai, K., Ishida, K. : Pressure-Sensitive Paint Measurement of the Flow around a Simplified Car Model, *Journal of Visualization*, Vol.10, No.3 (2007) pp289-298.
- 7) 亀田正治, 浅井圭介, 中北和之 : 高速応答型感圧コーティング, ながれ, Vol.22, No.4 (2003) pp.299-307.
- 8) Roy, S., Raju, R. Chuang, H.F., Cruden, B.A., Meyyappan, M. : Modeling gas flow through microchannels and nanopores, *Journal of Applied Physics*, Vol.93, No.8 (2003) pp.4870-4879.