慶應義塾大学学術情報リポジトリ Keio Associated Repository of Academic resouces

Title	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		
Sub Title	Two-dimensional simultaneous temperature and velocity measurements using co-doped phosphor		
Author	横森, 剛(Yokomori, Takeshi)		
Publisher			
Publication year	2013		
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2012.)		
JaLC DOI			
Abstract	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.		
Notes	研究種目 : 若手研究(B) 研究期間 : 2011~2012 課題番号 : 23760193 研究分野 : 工学 科研費の分科・細目 : 機械工学・熱工学		
Genre	Research Paper		
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_23760193seika		

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって 保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.



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 菅プラント、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 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 (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. – 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 (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. 粒子から発さ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





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(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 Y₂O₃ に蛍光発光中心 Tb³⁺と Tm³⁺を共添加した蛍光微粒子 Y₂O₃: 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(Tm³⁺からの発 光)は立ち続けているが,他のピーク(Tb³⁺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.

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

 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 Y₂O₃: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 Y₂O₃: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 Y₂O₃:Tb,Tm の二波長強度比の温度 依存性



図 6 Y₂O₃: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 Y₂O₃: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 Y₂O₃: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蛍光強度の 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 W₁, W₂は選定した二波長 の波長を示している. $W_1 = 557 \text{ nm}, W_2 = 527$ nm および W₁ = 548 nm, W₂ = 527 nm, また W₁ = 672 nm, W₂ = 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 W₁ = 557 nm, W₂ = 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 Y₂O₃:Tb, Tm と異な り赤外線にて励起が可能なため、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 Y₂O₃: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 Y₂O₃: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 $W_1 = 548$ nm, $W_2 = 527$ 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 を収めている.

(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 mm < z < 30 mm, 半径方向-2 mm < x < 2 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.





(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 時刻画像から得られた速 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, <u>横森 剛</u>, 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, <u>Takeshi Yokomori</u> 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($\mathcal{T} \neq \mathcal{I} \not{\mathcal{I}}$).

(3). Kosuke Oya, Saya Okano, Toshihisa Ueda, and <u>Takeshi Yokomori</u>, 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, <u>横森</u> 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, <u>横</u> 森<u>剛</u>, 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, <u>横森</u><u></u>, 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, <u>横森</u><u></u>, 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). <u>Takeshi Yokomori</u>, 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, <u>横森</u> 剛, スプレ 一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,<u>横</u> <u>森</u><u></u>,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

(2)研究分担者
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(1)
(2)
(2)
(3)
(4)
(4)
(5)
(4)
(5)
(5)
(6)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
(7)
<l