

宇宙航空研究開発機構研究開発報告

JAXA Research and Development Report

超低圧力環境における機能性分子を用いた
圧力センシング
- 高Kn数流れへの適用に向けて -

満尾 和徳

2014年9月

宇宙航空研究開発機構

Japan Aerospace Exploration Agency

超低圧力環境における機能性分子を用いた圧力センシング

- 高 Kn 数流れへの適用に向けて -

満尾 和徳^{*1}

Characteristics of Pressure-Sensitive Paint in Ultra Low Pressure Range

Kazunori MITSUO^{*1}

Abstract

Pressure-Sensitive Paint (PSP) technique has been developed for acquiring surface pressure images on a model in the wind tunnel tests. Generally, PSP measurement has been conducted with a pressure range from 1kPa to 500kPa. In this study, the characteristics of PSP in the ultra low pressure range ($10^{-3} \sim 10^2$ Pa) were evaluated for visualization of high Knudsen (Kn) number flowfields.

Keywords: Pressure-Sensitive Paint, High-Kn Number, Rarefied Flow

概要

感圧塗料 (Pressure-Sensitive Paint :PSP) 計測はこれまで 1kPa~500kPa の圧力レンジで利用され、風洞において航空宇宙機モデル上の圧力場計測が行われてきた。本研究では、PSP 計測技術利用拡大に向けて、高 Kn (*Knudsen Number*, Kn) 数流れへの適用可能性を調べるため、超低圧力レンジでの圧力感度特性を評価した。本レポートではその結果について報告する。

1. はじめに

感圧塗料 (Pressure-Sensitive Paint : PSP) 計測は、流体実験における熱流体計測ツールとして国内外で注目されている¹⁾⁷⁾。PSP に含まれる感圧色素はもともとは酸素濃度センサーとして医学の分野で利用されていたものである。PSP 計測は塗料に含まれる色素の発光強度が酸素により消光する現象 (酸素消光) を利用したものであり、模型表面に塗られた感圧塗料からの発光強度を CCD カメラで観測し、その発光強度画像から圧力場を算出する。従来の静圧孔を用いた電子式センサによる離散的な点計測とは異なり、詳細に模型上の圧力場を計測できる利点がある。また、模型にスプレー塗装するだけで計測ができるため安価に圧力場を計測できる。

我が国では 1990 年代半ばに (旧) 航空宇宙技術研究所で PSP 計測技術の研究がはじまった。その技術は (現) 宇宙航空研究開発機構 (JAXA) の風洞技術開発センターで実用化され、JAXA 航空宇宙プロジェクトや国産小型旅客機開発に利用されている。

また、PSP 計測は自動車や鉄道分野にも利用されつつあり、航空宇宙以外の分野への展開が進んでいる。さらに、近年では燃料電池内部の溶存酸素の可視化にも用いられている。これまでの実績から PSP 計測のパフォーマンスの高さが示され、適用範囲拡大が期待されている。

注目されている適用先のひとつとして、希薄気体流れにおける圧力計測がある。高 Kn (*Knudsen Number*) 数流れの希薄気体中では、流れ場の圧力差が極めて小さいため通常風洞試験等で用いられる半導体圧力センサでは計測できない。超低圧力域の圧力計測では電気抵抗型のピラニ真空計等が用いられるが、センサが大きく、装置が大掛かりになるため、流れ場診断には適さない。

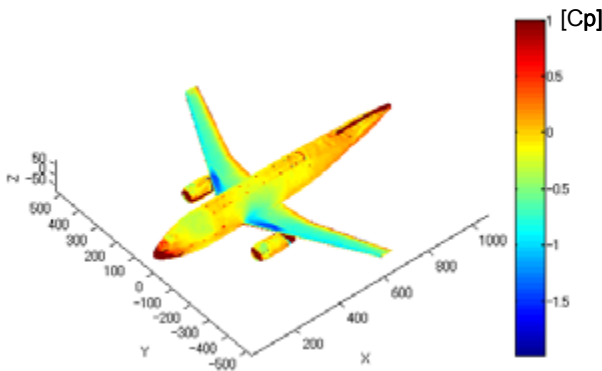
一方、PSP は酸素消光を利用した分子センサであるため、理論上、酸素分子が存在する限り感圧センサによって圧力を計測することができるはずである。また、PSP を物体にコーティングすることにより圧力イメージを取得することができる。

* 平成 26 年 4 月 21 日受付 (Received 21 April, 2014)

*1 航空本部 風洞技術開発センター (Wind Tunnel Technology Center, Institute of Aeronautical Technology)



(a) PSP 塗装された風洞模型



(b) PSP データ処理結果

図1 2m × 2m 遷音速風洞における PSP 計測の実施例

JAXA の研究開発活動を例にとれば、超低高度衛星開発や惑星探査エアロブレーキ技術、テザーによる人工衛星の超低軌道航行技術など、希薄大気（超低压）環境を航行する高速飛行体の研究に PSP 計測技術が利用できる可能性がある。

そこで本研究では、これまで風洞実験等で約 1kPa ~500kPa の圧力範囲で利用されてきた PSP 計測技術が超低压力範囲（~1Pa）で利用できることを示すとともに、現状の PSP 技術で計測できる圧力範囲の限界を明らかにする。

2. PSP 計測原理

PSP コーティングは図2に示すように、白色ベースコートと PSP の層から構成される。PSP は感圧色素と酸素を透過させる酸素透過性ポリマーおよび溶媒からなる。ここで、ポリマーは酸素透過性を維持したまま計測対象に感圧色素を固着させる役割がある。白色ベースコートは PSP 発光増強のため塗られる。PSP は通常ス

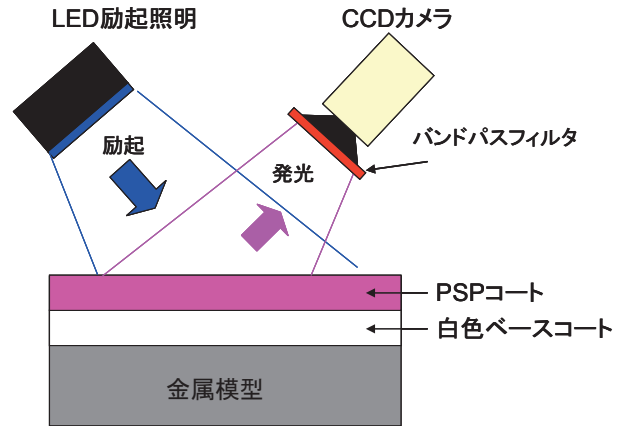


図2 PSP 計測の原理図

プレーガンを用いて塗装され、白色ベースコート層と PSP 層の膜厚はそれぞれ約 50 μ m、5 μ m 程度になる。

PSP 計測原理図が示すように、励起光源として Xe 光源や LED (Light Emitting Diode)、レーザーなどが用いられ、光検出器には CCD (Charge Coupled Device) カメラや PMT (Photomultiplier Tube) が使用される。Xe からの光は連続光であるため、Xe 光源を用いる場合、PSP の励起帯に合った波長の光だけを選択的に照射するために光学フィルタが取り付けられる。また、PSP 発光を計測する CCD カメラには、PSP 発光波長だけを透過する光学フィルタを取り付ける。

圧力と PSP 発光強度の関係は、理論的に以下に示す Stern-Volmer の式で表される。

$$\frac{I_0}{I} = A(T) + B(T) \frac{P}{P_0} \quad (1)$$

ここで、 I および P はある圧力のときの PSP 発光強度とその圧力値を意味し、 I_0 および P_0 は基準状態の発光強度および圧力を表す。(1) 式が示すように、圧力を算出する際に発光強度比をとるため計測精度は基本的に塗装の塗りムラや照明パターンの影響は受けない。

図3に、感圧色素に PtTFPP を用いた時の励起と発光のスペクトルを示す。励起帯は紫外から可視域に渡って広く分布する。共通な励起帯として可視部に強い複数のピークがあり、長波長領域のものを Q 帯 (Qband)、400nm 付近のものをソーレー帯 (soret band) といい、環の共役 π (パイ) 電子系の状態と関連が強い。なお、ソーレー帯と Q 帯の励起ピーク強度は色素濃度に依存する。色素濃度が低い場合はソーレー帯のピークが大きく、濃度が高い場合は Q 帯のピークが大きくなる。この励起波長域の光を照射すると PSP は発光する。なお、PSP は圧力を低くすると酸素消光による失活が減るため、発光が明るくなる。

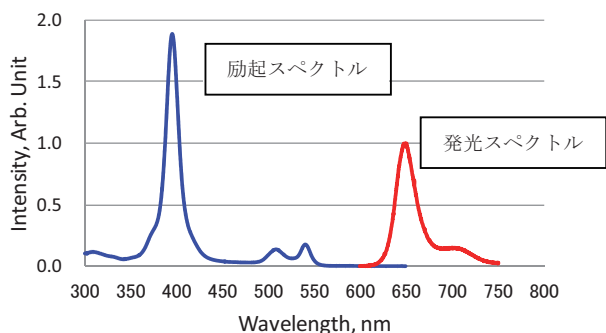


図3 PtTFPPの励起波長と発光波長

3. PSPの仕様

本実験ではPSPに用いる感圧色素として、PtTFPP (Pt(II) meso-tetrakis (pentafluorophenyl) porphine), PdTFPP (Pd(II) meso-tetrakis (pentafluorophenyl) porphine), PdOEP (Pd(II) octaethylporphyrin) を使用した (図4)。ポルフィリンの中心金属が白金とパラジウムの場合で感圧特性がどのように違うかを調べるために、PtTFPPとPdTFPPを選択した。また、色素の環状構造による感圧特性の差異を評価するために、PdOEPとPdTFPPを色素に選んだ。これらは、PSP用感圧色素としてよく使用される色素であり、試薬メーカーから購入することができる。

また、酸素透過性ポリマーとしてJAXA風洞技術開発センターの標準PSPに用いているPoly-HFIPM (poly(isobutyl-co-1,1,1,3,3,3-hexafluoroisopropyl methacrylate)⁸⁾と、酸素透過性が極めて高いとされるPoly-TMSP (poly[1-(trimethylsilyl)-1-propyne])を用いた (図5)。Poly-HFIPMは山梨大学の小幡准教授との共同研究で開発されたポリマーである。

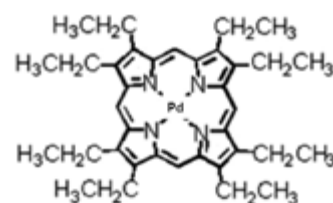
これらを溶媒に溶解させて混合し、スプレーを用いてPSP薄膜をアルミ基板上に作製した。通常の風洞模型試験では白色ベースコートが塗装されるが、本研究では低圧力域の発光を調べるため発光強度は十分強い。そのため、PSPのみを塗装してサンプル基板を作成した。

4. 超低圧力環境PSP評価システム

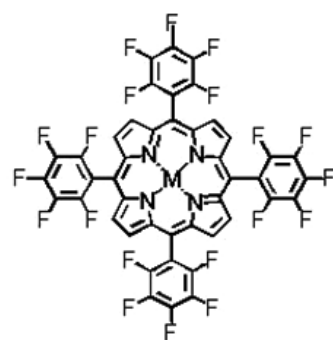
4-1. 高真空装置

PSPの超低圧力域での圧力感度特性を評価するため高真空装置を作製した。真空装置は、真空容器と排気装置、真空容器内圧力を制御する微量流量調整器、および圧力を計測する真空計で構成されている (図6)。真空排気装置には、油回転ポンプとターボ分子ポンプを用いた。

真空排気プロセスにおいて、低真空域 (圧力の高い範

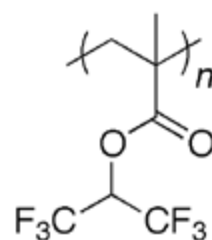


(a) Pd-OEP

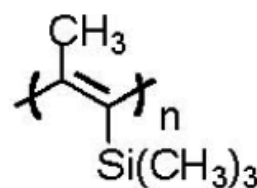


(b) M-TFPP (M=Pt, Pd)

図4 感圧分子の分子構造



(a) Poly-HFIPM



(b) Poly-TMSP

図5 酸素透過性ポリマーの図

囲)では油回転ポンプを使用した。ポンプのオイルミストによる汚染によってPSPポリマーの酸素透過性が低下すると圧力感度が悪化する。そのため、オイルミストが真空容器に流入しないように、ターボ分子ポンプと油回転ポンプ間にオイルミストトラップを入れて汚染を防いだ。また、PSPへのオイル汚染の影響のないターボ分子ポンプを高真空排気用ポンプとして用いた。

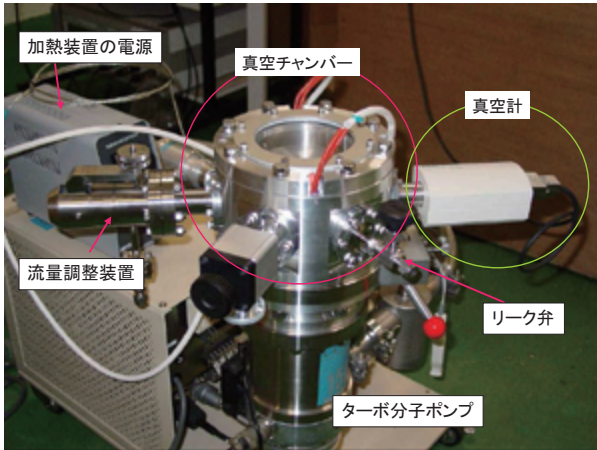


図 6 高真空発生装置

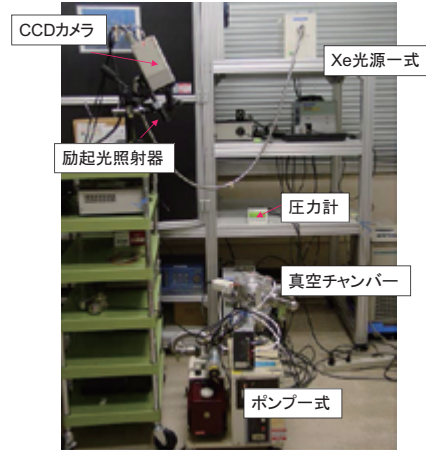


図 7 PSP 計測システム写真

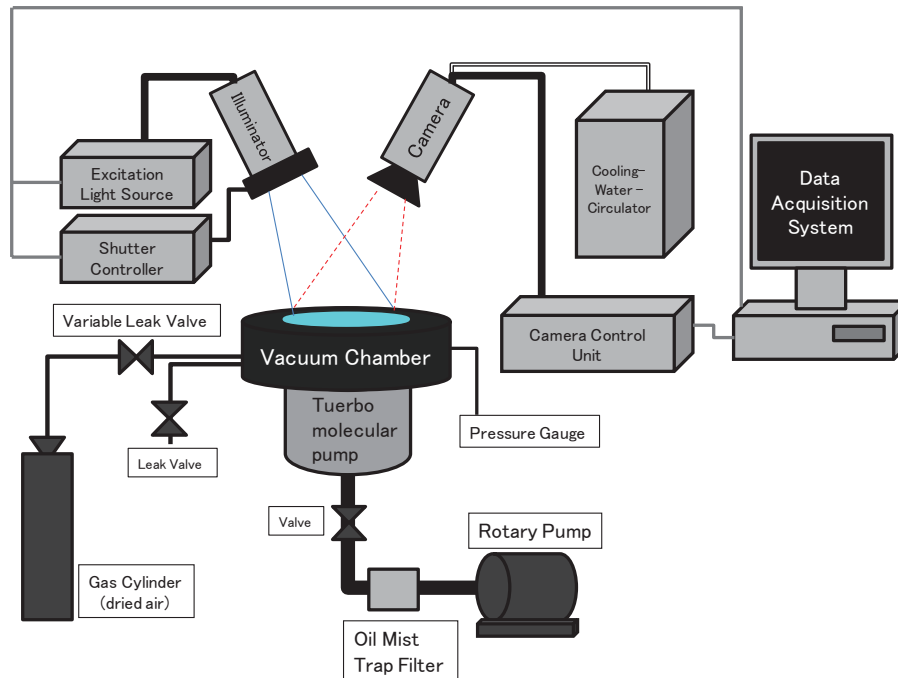


図 8 超低圧力環境 PSP 評価システムの概要図

圧力の調整は、流量調節器（超高真空バリアブルリークバルブ（NW25-CF70 変換付））を用いた。流量調節器には高純度乾燥空気ポンプが接続されており、微量の空気を容器内に送り込むことにより真空度を調節した。容器内の圧力は真空計（キャノンアネルバ社製 クリスタルイオンゲージ M-336MX-SP）を用いて計測した。また、ターボ分子ポンプとチャンバーの間にはバラフライバルブが設置されており、バルブの開閉を調整することで圧力の微調整を行った。

なお、本真空容器の側壁には加熱シートが配置されており、容器を高温にすることにより真空容器壁面に付着した分子を遊離させ真空度を高めることができる。しか

し、PSP 試験では 10^3Pa 以下に減圧する必要がなかったためその機能は使用しなかった。

真空容器には $\phi 100\text{mm}$ の合成石英窓ガラスが取り付けられ、容器の中に配置された PSP サンプルが計測できるようになっている。

4-2. PSP 計測システム

PSP 計測システムは、励起照明である Xe 励起光源と画像取得用 CCD カメラ（HAMAMATSU PHOTONICS, ORCA- II -BT104）で構成される（写真：図 7、システム概要：図 8）。CCD カメラコントローラにカメラと制御用 PC が接続され、専用のソフトでカメラを制御する。

CCD カメラは水冷式であり、CCD を直接冷却することにより暗電流ノイズを軽減する。なお、カメラの階調度は 16bit、解像度は 1024×1024 pixel である。

PSP の励起帯に合った波長の光を当てるために、Xe 光源に接続されたバンドルファイバ先端の照射器に熱線吸収フィルタと 380-530nm バンドパスフィルタを取り付けた。また CCD カメラに取り付けたレンズの前面には PSP 発光のみを計測するために 590-710nm 光学バンドパスフィルタと IR カットフィルタを取り付けた。

CCD カメラによって PSP サンプル基板の発光イメージが計測される。同じ条件（励起照明強度、温度環境）で計測するために、PSP サンプル基板 5 枚を並べてチャンパー内に置いて同時計測した。

4-3. データ処理

CCD カメラで計測した PSP の tif 画像を MATLAB ソフトを使って処理した。各圧力で計測した画像中の PSP 発光が確認できる領域内で発光強度を平均化して PSP 発光データを計算した。次に、各圧力における発光強度を基準圧力の PSP 発光強度で正規化し、PSP 発光強度比を求めた。

5. 実験結果

まず、大気圧付近の高圧力域（5～100kPa）の PSP 圧力感度特性（色素:PtTFPP, ポリマー:HFIPM を使用）を参考までに図 9 に示す。図では、100kPa の PSP 発光強度の値で無次元化している。発光強度は PSP 発光強度画像から平均値を求めた。

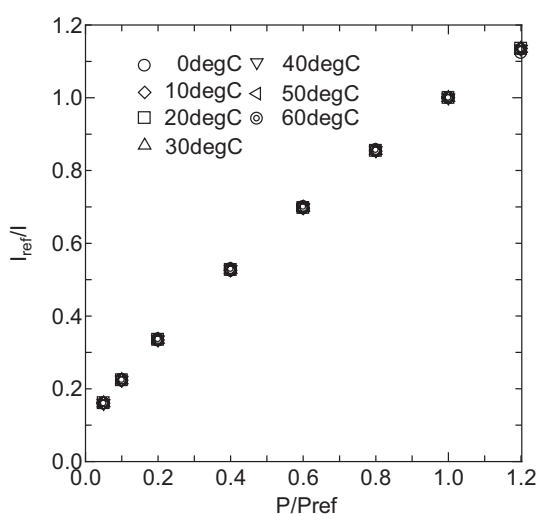


図 9 高圧領域（5kPa～120kPa）の PSP 圧力感度特性（ $P_{ref}=100kPa$ ）

※ PSP：色素：PtTFPP とポリマー：HFIPM を使用

圧力感度特性は圧力に対してほぼ線形的に変化し、約 1%/kPa の圧力感度を示した。また、温度を変えても圧力感度は変わらないのが、この PSP の特徴である。風洞試験では、この圧力範囲で模型上圧力を計測している。

次に、 10^{-3} ～ 10^3Pa の低圧力範囲における PSP 圧力感度特性の計測結果を図 10 に示す。圧力計測ポイントは、100, 50, 10, 5, 1, 0.5, 0.1, 0.05, 0.01, 0.005, 0.00012Pa に設定した。また、真空容器内の温度は 22℃であった。図 10 では 100Pa の発光強度を PSP 基準発光強度としている。

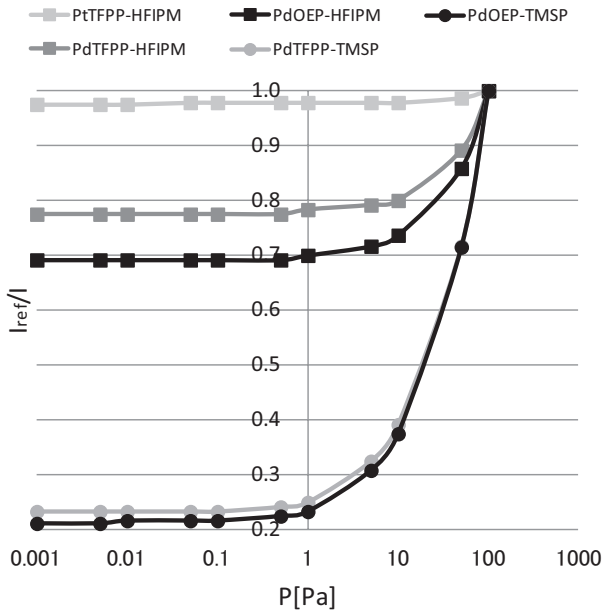
ポリマーに Poly-HFIPM を使用した場合、100Pa から 10Pa までは圧力感度は大きく変化するが、10Pa 以下では傾きが小さくなり、1Pa 以下では発光強度はほとんど圧力に依存しなくなった。感圧色素による違いでは、PtTFPP ≪ PdTFPP < PdOEP の順で圧力感度が大きくなった。感圧分子の中心金属である Pt と Pd の違いによる差が大きく現れている。中心金属によって分子の電子状態の差異が酸素による失活に影響しているものと推定されるが、正確なメカニズムについては不明である。また、PdTFPP と PdOEP を比較すると、TFPP と OEP の差異による顕著な差はみられなかった。

ポリマーによる感圧特性の差異をみると、Poly-HFIPM の場合、10Pa 以下では PSP 発光強度変化は小さくなったが、Poly-TMSP では 1Pa まで発光強度比が大きく変化した。さらに、圧力感度は小さいが、0.1Pa まで発光が変化しているのが確認できる。よって、Poly-HFIPM よりも Poly-TMSP を使用した方が約 1 ケタ低い圧力範囲まで計測が可能である。なお、PdTFPP と PdOEP による差は観測されなかった。

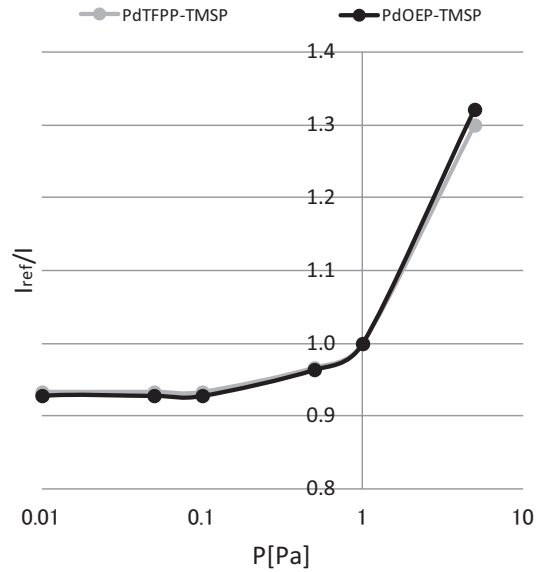
PSP の酸素消光は感圧色素へ酸素分子が衝突することによって起こる反応である。Poly-TMSP は酸素透過性が極めて高いポリマーであるため酸素分子が感圧色素に近づき消光反応を起こしやすいと推定される。 10^2Pa 以下の圧力で PSP 発光強度比が変化しない理由は、超低圧力域になると酸素分子の数が極端に少なくなり、ポリマー構造内を掻い潜って感圧色素に衝突する酸素分子がなくなるためと推定される。

低圧力域の PSP 計測は森氏らによっても計測されており⁹⁾、本実験の結果と同じように Poly-TMSP を使用した PSP の圧力感度が高いことを報告している。また、Pt よりも Pd を中心金属とした方が感圧特性が良いことについても述べられている。なお、彼らが評価した圧力範囲は本実験の圧力よりも高い。

再現性を調べた結果を図 11 に示す。図から明らかのように高い再現性があり、ヒステリシスは観測できなかった。よって、実験に使用した PSP は酸素分子のポリマーへの吸着等による酸素透過性の不可逆性はないこ



(a) 広範囲の圧力レンジの PSP 計測結果 (100Pa における PSP 発光画像を基準画像とした)



(b) 1Pa 付近の PSP 計測結果 (1Pa における PSP 発光画像を基準画像とした)

図 10 超低压領域の PSP 圧力感度特性

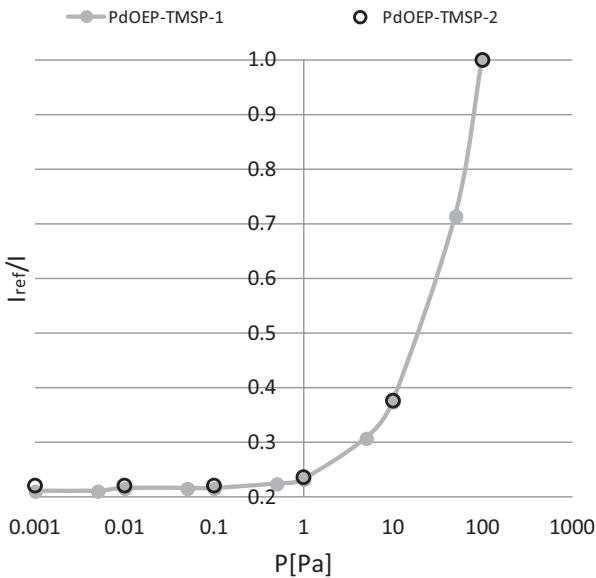


図 11 PdOEP の再現性評価結果 (-1: 1 回目, -2: 2 回目)

とが実証され、PSP を超低压圧力計測に適用できることが示された。

次に、高 Kn 数流れの一例を考えてみる。 Kn 数は (2) 式のように分子間の平均自由行程 λ と代表長さ L を使って定義される。

$$Kn = \frac{\lambda}{L} = \frac{k_B T}{\sqrt{2} \pi \sigma^2 P L} \quad (2)$$

λ : 平均自由行程 (m), L : 代表長さ (m), T : 温度 (K), k_B : ボルツマン定数 (J/K) (1.380×10^{-23} J/K), P : 全圧 (Pa), σ : 分子直径 (m) (3.74×10^{-10} [m] (空気))

平均自由行程が小さく代表長さが大きい場合、分子間の衝突頻度が高くなり、また壁面との衝突回数が減少するため運動量・エネルギーが平均化される。これらが空間的に連続であるので、分子全体を連続体として扱うことができる。一方、平均自由行程が大きく代表長さが小さい場合、分子衝突の頻度が少なくなり、壁面との衝突回数が増えるために運動量・エネルギーは平均化されず、連続体としては扱えない。 Kn 数の値によって以下のように流れが分類される¹⁰⁾。

$Kn \sim 0$: 連続流領域

$0.01 < Kn < 1$: すべり流れ領域

$Kn \sim 1$: 遷移流領域

$Kn > 1$: 自由分子流領域

たとえば、PSP で可視化する代表長さを 10mm、圧力を 1Pa、温度を 273.15K と仮定すると、 $L=10\text{mm}$, $P=1\text{Pa}$, $T=293.15\text{K}$ を代入して、

$$Kn = \frac{\lambda}{L} = \frac{k_B T}{\sqrt{2} \pi \sigma^2 P L} = \text{約 } 0.7 \sim 1 \quad (3)$$

を得る。よって、上記の実験条件 (Kn 数, 模型サイズ) の場合、遷移領域の流れを PSP で可視化することができる。PSP 計測では、カメラレンズで計測対象をクローズ

アップすれば良いので、模型が小さくなっても基本的に計測精度は変わらない。よって、代表長さを 10mm より小さくすれば、自由分子領域の流れ場も可視化できる。

6. まとめ

超低圧力環境 PSP 評価システムを用いて、PSP 感度特性を評価して得られた研究成果を以下にまとめる。

- (1)PSP に使用したポリマー Poly-TMSP と Poly-HFIPM を比較すると、Poly-TMSP を用いた PSP の方が、低い圧力域で圧力感度を示した。
- (2)PSP による圧力計測の再現性に問題はなく、PSP は超低圧力域においても圧力計測に適用できることが確認できた。
- (3)真空装置を用いて 10^3Pa の低圧範囲まで PSP の圧力感度特性を調べた結果、本研究で評価した PSP (PdOEP + Poly-TMSP) の圧力感度の下限は 0.1Pa (大気圧に対して百万分の一の圧力) であり、高 Kn 数流れの可視化に利用できることが示された。

7. 参考文献

- 1) 浅井圭介：感圧塗料による圧力分布の計測技術、可視化情報, Vol.18, No.69, 1998, pp.97-103.
- 2) 満尾和徳, 中北和之, 栗田充, 渡辺重哉：JAXA 感圧塗料計測システムの研究開発 (I), JAXA-RR-2013-05, 2013.
- 3) Bell, J.H, Schairer, E. T., Hand, L. A and Mehta, R. D., “Surface Pressure Measurements Using Luminescent Coatings,” Annu. Rev. Fluid Mech., 33 , 2001, pp.155-206.
- 4) Engler, R. H., Klein, C. And Trinks, O., “Pressure-Sensitive Paint Systems for Pressure Distribution Measurements in Wind Tunnels and Turbomachines,” Measurement Science and Technology, Vol. 11, No. 5 , 2000, pp. 1077-1085.
- 5) Liu, T. and Sullivan, J. P., “Pressure and Temperature Sensitive Paints”, Springer Berlin Heidelberg New York, 2004.
- 6) 中北和之, 満尾和徳：実用試験への PSP の適用, 航空宇宙学会特集記事, Vol.53, No.624, 2006 年.
- 7) 満尾和徳, 栗田充, 中北和之, 渡辺重哉, 伊藤正剛, 山内智史, 山谷英樹：JAXA における実用 PSP 計測システムの研究開発, 第 46 回飛行機シンポジウム, 2008 年 10 月.
- 8) 満尾和徳, 小幡誠, 矢野重信：温度感度を低減した感圧塗料および感圧センサ, 特願 2008-187174 号.
- 9) Mori, H., Niimi, T., Hirako, M. and Uenishi, H., “Pressure sensitive paint suitable to high Knudsen number regime”, Measurement Science and Technology, Vol. 17, 2006, pp. 1242-1246.
- 10) 日本機械学会・編, 「原子・分子の流れ－希薄気体力学とその応用－」, 共立出版株式会社, 1996, pp.48-49.

