

Optische Temperaturmessung in der Mikrofluidik mittels temperatursensitiver fluoreszenter Partikel

Optical temperature measurement in micro fluids using temperature sensitive fluorescent particles

J. Massing, R. Irwansyah, C.J. Kähler, C. Cierpka

Institut für Strömungsmechanik und Aerodynamik, Universität der Bundeswehr München, Werner-Heisenberg-Weg 39, 85577 Neubiberg

Schlagworte: Mikrofluidik, Particle Tracking, Laser Induced Fluorescence

Key words: Microfluidics, particle tracking, laser-induced fluorescence

Zusammenfassung

Eine optische Methode zur Messung des Temperaturfeldes innerhalb eines Fluides ist die Verwendung von fluoreszierenden Farben, deren Emissionsintensität eine Temperaturabhängigkeit aufweist. Zur simultanen Geschwindigkeits- und Temperaturmessung können Tracerpartikel eingesetzt werden, die mit solchen Farbstoffen markiert sind. Um die Temperatur anhand der Partikelbilder zu bestimmen, wird in makrofluidischen Anwendungen das Intensitätssignal mehrerer Partikel in einem Bildausschnitt gemittelt. In Mikrokanälen ist es jedoch aufgrund der vorherrschenden Volumenbeleuchtung und der geringen Partikelbilderdichte vorteilhaft, das Signal einzelner Partikelbilder auszuwerten. Darüber hinaus liefert diese Technik auch bei großen räumlichen Gradienten verlässliche Messergebnisse, da Mittelungsfehler entfallen. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit systematisch untersucht, ob sich eine Auswertemethode auf Grundlage von einzelnen Partikelbildern für die Temperaturmessung eignet. Unter Verwendung von fluoreszenzmarkierten Polymer-Partikeln konnte die Temperatur in einem ruhenden Fluid mit einer Standardabweichung von $\pm 15\%$ des untersuchten Messbereichs (10 °C bis 40 °C) bestimmt werden. Dies zeigt, dass die Temperaturbestimmung für einzelne Partikel prinzipiell möglich ist.

Einleitung

Die Bestimmung des Temperaturfeldes innerhalb mikrofluidischer Systeme ist für zahlreiche Anwendungen von großem Interesse. Beispielsweise ist die Effizienz bei der Umwandlung von chemischer in elektrische Energie innerhalb einer Brennstoffzelle unter anderem von der vorherrschenden Temperatur abhängig. Mikrofluidische Brennstoffzellen werden häufig bei Umgebungstemperatur betrieben, welche unterhalb der Auslegungstemperatur liegen kann. Durch eine Regelung der Temperatur ist es möglich, die Effizienz der Zelle zu steigern (Kjeang et al 2009). Eine Methode die Temperatur zu beeinflussen besteht darin, das Fluid mit Partikeln in der Größenordnung von wenigen Nanometern zu versetzen, welche den Wärmeübergang an der Wand beeinflussen. Die Wirkungsweise dieser Nanopartikel ist dabei jedoch nicht abschließend geklärt und wird in der Literatur kontrovers diskutiert (Buongiorno et al 2009 und Wen et al 2009). Für ein grundlegendes Verständnis der Wärmeübertragungsmechanismen in solchen Nanofluiden sowie eine effektive Auslegung der Temperatur-

regelung ist es nötig, das Temperaturfeld hochaufgelöst und störungsfrei (nicht-invasiv) zu vermessen. Dazu eignen sich insbesondere optische Messmethoden.

Eine verbreitete optische Methode um das Temperaturfeld zu bestimmen, ist der Einsatz von laser-induced fluorescence (LIF). Dabei wird dem Fluid ein Farbstoff beigemischt, dessen Fluoreszenz eine Temperaturabhängigkeit aufweist (z.B. Rhodamin B, Fluorescein). Aus der Intensität des emittierten Lichtes kann somit auf die Temperatur im Fluid geschlossen werden. Eine Schwierigkeit bei der Anwendung dieser Messtechnik besteht jedoch darin, eine homogene Beleuchtung sicherzustellen. Beispielsweise können Variationen im Brechungsindex aufgrund von Konzentrations- und Temperaturgradienten zu Variationen der Beleuchtungsintensität in der Messebene führen. Daher wird vielfach ein weiterer Farbstoff als Referenz verwendet, dessen Fluoreszenzsignal näherungsweise temperaturunabhängig ist (Sakakibara und Adrian 1999) oder eine entgegengesetzte Temperaturabhängigkeit aufweist (Shafii et al 2010). Die Verwendung von einer entgegengesetzten Temperaturabhängigkeit trägt hier zu einer zusätzlichen Sensitivitätssteigerung bei. Das Temperaturfeld lässt sich damit aus dem Verhältnis der beiden Signale bestimmen, wodurch Fehler aufgrund von einer variierenden Beleuchtungsintensität minimiert werden können. In der Makrofluidik wird die zu vermessende Ebene mittels eines Lichtschnittes beleuchtet.

In mikrofluidischen Anwendungen ist aufgrund der geringen Abmessungen häufig nur eine volumetrische Beleuchtung möglich. Dadurch tragen bei der Verwendung von gelösten Farbstoffen auch Regionen außerhalb der Fokusebene signifikant zum Signal bei und es kommt zu einer Mittelung in Tiefenrichtung. Da jedoch in vielen Fällen ein vollständig dreidimensionales Strömungs- und Temperaturfeld mit starken Gradienten vorliegt, ist eine Methode vorzuziehen, die nicht über das Messvolumen integriert. Eine Möglichkeit das Temperaturfeld lokal aufzulösen besteht darin, die LIF-Technik mit der sogenannten „confocal microscopy“ zu kombinieren (Jeong et al 2009). Dies erfordert jedoch einen erheblichen Mehraufwand an experimenteller Technik. Eine weitere nicht-integrale Messmethode ist die sogenannte Particle Imaging Thermometry (Dabiri 2009). Hierbei werden der Strömung Partikel beigemischt, die die gesuchte Temperaturinformation liefern. Wenn diese der Strömung sehr gut folgen, ist gleichzeitig eine Geschwindigkeitsmessung mittels Particle Image Velocimetry (PIV) möglich. Die Geschwindigkeitsinformation wird dabei aus dem Partikelversatz in zwei aufeinanderfolgenden Bildern bestimmt. Als Partikel können beispielsweise Flüssigkristalle verwendet werden. Diese haben die Eigenschaft, dass sie einfallendes weißes Licht bei unterschiedlichen Temperaturen in verschiedenen Farben reflektieren. Segura et al (2013) konnten unter der Verwendung individueller Partikelbilder von ungekapselten Flüssigkristallpartikeln Temperaturmessung im Bereich von 24-37 °C mit einer Genauigkeit von 4.9% (zweifache Standardabweichung) realisieren. Bei hohen Temperaturen sind Flüssigkristalle jedoch nicht mehr stabil. Hier bietet sich die Verwendung von Partikeln an, die mit einem oder mehreren fluoreszierenden Farbstoffen markiert sind. Vogt und Stephan (2012) führten mit dieser Technik Temperaturmessungen in Mikroströmungen mit einem Fehler von ± 6.9 Kelvin bis ± 8.9 Kelvin durch (zweifache Standardabweichung, bei einem Messbereich von 20 °C bis 50 °C). Dabei wurde jedoch eine räumliche Mittelung über Auswertefenster sowie aufgrund der geringen Partikelkonzentration eine zeitliche Mittelung über 500 aufeinanderfolgende Bilder durchgeführt. Dadurch ist es einerseits nicht möglich instationäre Vorgänge zu erfassen, andererseits ist die räumliche Auflösung durch die Größe der Auswertefenster beschränkt. Letzteres führt zu einer ungenauen Auflösung von starken räumlichen Temperaturgradienten.

Eine mögliche Lösung für diese Problematik besteht darin, individuelle Partikelbilder zu betrachten. Dabei werden über ein Particle Tracking Verfahren einzelne Partikelbilder identifiziert und die Intensität des von ihnen emittierten Lichtes ausgewertet. Dadurch reduziert sich der Fehler bei der Ermittlung von räumlichen Gradienten auf die Unsicherheit bei der Be-

stimmung der Partikelposition (Kähler et al 2012). Des Weiteren lässt sich, falls monodisperse Partikel verwendet werden, das Geschwindigkeitsfeld mit dem Astigmatismus PTV Verfahren simultan bestimmen (Cierpka et al. 2010). Bei dieser Methode wird dem optischen Aufbau eine Zylinderlinse hinzugefügt, welche optische Verzerrungen (Astigmatismus) verursacht. Dadurch erscheinen die Partikelbilder als Ellipsen. Aus der Größe der Halbachsen kann die Tiefenposition bestimmt werden. Damit kann gleichzeitig das dreidimensionale Temperatur- und Geschwindigkeitsfeld erfasst werden.

Im vorliegenden Beitrag werden erste grundlegende Experimente erläutert, bei denen die Temperaturabhängigkeit der Fluoreszenzintensität von Polymer-Partikeln, die mit dem Farbstoff Rhodamin B versetzt waren, untersucht wurde. Sie dienen als Ausgangspunkt für die Entwicklung eines Systems zur simultanen Messung des dreidimensionalen Temperatur- und Geschwindigkeitsfeldes mit temperatursensitiven fluoreszierenden Partikeln unter Auswertung des Signals einzelner Partikelbilder.

Experimentelle Methodik

In Abbildung 1 ist der Aufbau der durchgeführten Versuche schematisch dargestellt. Um das Temperaturverhalten der Partikel zu bestimmen, wurde ein mit Partikeln versetzter Wassertropfen zwischen einem Mikroskopträger und einem Peltier-Element eingebracht und durch ein invertiertes Mikroskop (Zeiss Axio Observer Z1) beobachtet. Die Temperatur des Tropfens konnte über eine Temperaturregelleinheit TC2812 (CoolTronic GmbH) und ein Thermoelement (Mini Pt1000) mit einer Genauigkeit von $<0.1\text{K}$ geregelt werden. Die Fluoreszenz der Partikel wurden mittels eines gepulsten Nd:YAG Lasers mit einer Wellenlänge von 532 nm angeregt und das emittierte Licht über eine Prisma auf eine sCMOS Kamera (LaVision Imager sCMOS) mit 16 bit Tiefe und einer Sensorfläche von 2560×2160 Pixeln gelenkt. Dabei liegt das Emissionsmaximum von Rhodamin B bei einer Wellenlänge von 562 nm. Um Reflektionen des Laserlichtes zu blockieren aber gleichzeitig möglichst viel Signal passieren zu lassen wurde ein 540 nm Langpassfilter vor der Kamera platziert.

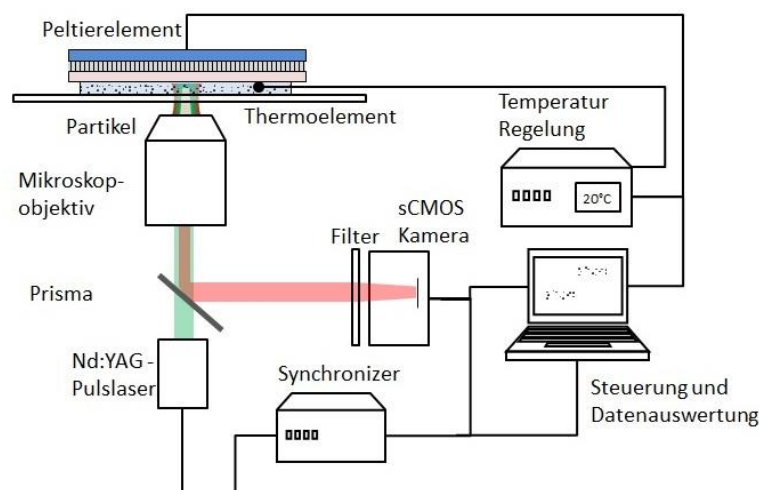


Abb. 1: Schema des Versuchsaufbaus

Zunächst wurde der Farbstoff Rhodamin B in gelöster Form untersucht, um die Temperaturabhängigkeit der Fluoreszenz des verwendeten Farbstoffes in dem gegebenen Aufbau zu ermitteln. Dazu wurde ein Tropfen eines Gemisches aus Rhodamin B und deionisiertem Wasser unter dem Mikroskop betrachtet. Die Temperatur des Tropfens wurde in Schritten von 10 K von 10 °C auf 40 °C erhöht und bei jeder Temperaturstufe zehn Bilder aufgenommen. Um das Fluoreszenzsignal auszuwerten, wurde ein erfasstes Bild in Auswertefenster

mit einer Größe von 4×4 Pixeln unterteilt. Für jedes Auswertefenster wurde ein mittlerer Intensitätswert (\bar{I}) berechnet, sodass pro Bild eine Anzahl von 640×540 Intensitätswerten vorlag. Aus den gefundenen Werten wurde die mittlere Emissionsintensität ($\langle \bar{I} \rangle$) des gelösten Farbstoffes bei einer gegebenen Temperatur bestimmt. Dabei ist eine Reduktion der mittleren Intensität des emittierten Lichtes von bis zu 2% pro Kelvin zu erwarten (Sakakibara et al 2012).

Darüber hinaus wurden zwei verschiedene Arten von fluoreszenten Partikeln getestet. Zum einen wurden polydisperse Polymethylmethacrylat (PMMA) Partikel mit einer Größenverteilung von 1-20 μm verwendet, welche mit Rhodamin B gefärbt waren. Als zweite Partikelart wurden monodisperse Polystyrol (PS) Partikel mit einer Größe von 5 μm untersucht, welche ebenfalls mit Rhodamin B markiert waren (vgl. Abbildung 2 oben). Die Partikel wurden in deionisiertem Wasser gelöst und ein Tropfen der wässrigen Lösung unter dem Mikroskop beobachtet. Die Temperatur des Tropfens wurde in Schritten von 10 K von 10 °C auf 40 °C geregelt und bei jeder Temperatur zehn Bilder aufgenommen. Zur Auswertung des Fluoreszenzsignals wurden die einzelnen Partikelbilder eines Bildes betrachtet. Dazu wurden über ein Partikel Tracking Verfahren (Cierpka et al 2010) die Mittelpunkte und der Durchmesser einzelner Partikelbilder identifiziert. Um die Partikelbilder vom Hintergrund unterscheiden zu können, wurde ein Schwellwert von 0.2% des maximalen Intensitätswertes definiert. Die Ergebnisse sind im unteren Teil von Abbildung 2 gezeigt. Die mittlere Intensität des emittierten Lichtes der einzelnen Partikel wurde aus den Intensitätswerten aller zum Partikel zugehörigen Pixel bestimmt. Um die mittlere Emissionsintensität bei einer gegebenen Temperatur zu berechnen, wurden die mittleren Intensitätswerte der gefundenen Partikelbilder gemittelt.

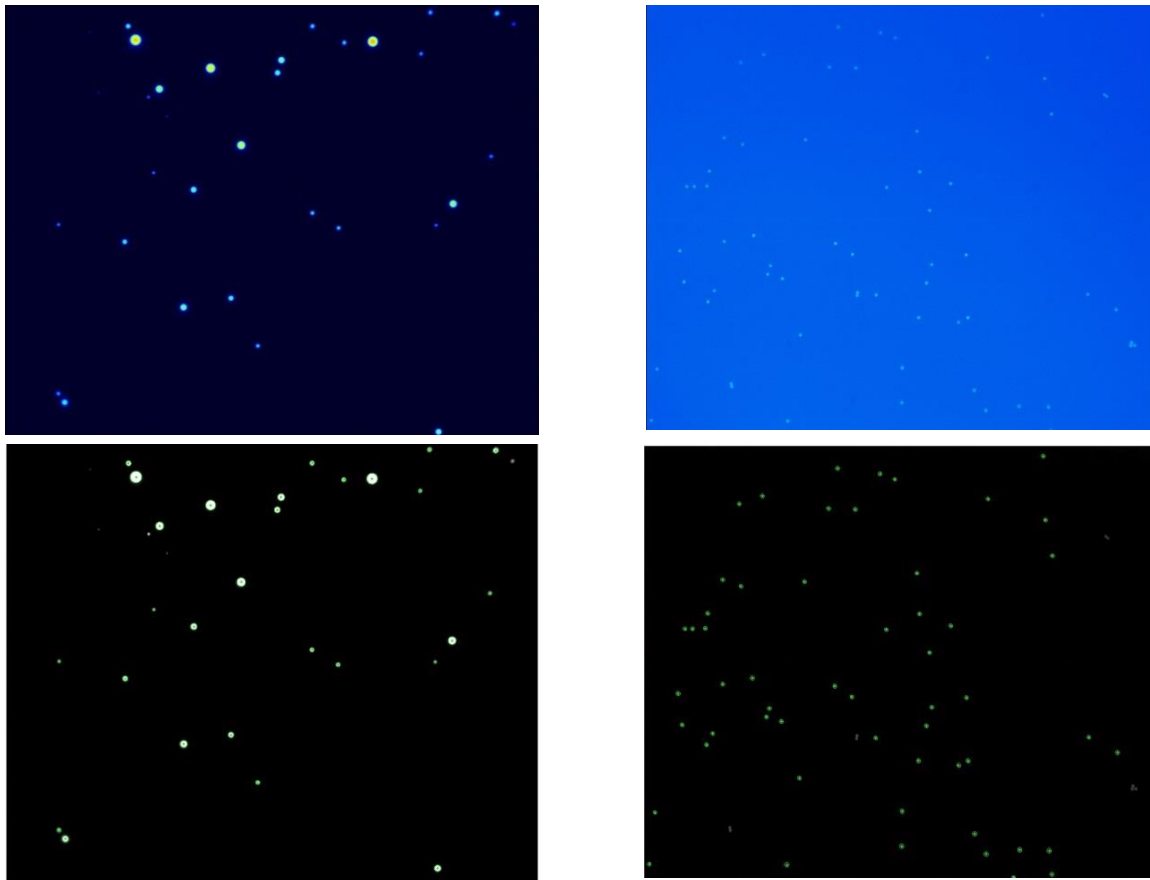


Abb. 2 Oben: Partikelbilder der polydispersen PMMA Partikel (links) und monodispersen PS Partikel (rechts) bei $T=10$ °C. Unten: Mit dem Partikel Tracking Verfahren gefundene Partikel in den entsprechenden Bildern

Ergebnisse

In Abbildung 3 sind die Ergebnisse der Temperaturmessungen unter Verwendung des gelösten Farbstoffes dargestellt. Im linken Teil der Abbildung ist der Verlauf der mittleren Fluoreszenzintensität in Abhängigkeit von der Temperatur gezeigt. Pro Kelvin reduziert sich die Intensität um circa 1.2% des mittleren Intensitätswertes bei $T = 20\text{ °C}$. Die Fehlerbalken repräsentieren die Standardabweichung der mittleren Intensitätswerte der Auswertefenster. Es ergibt sich eine relativ große Standardabweichung von etwa $\pm 50\%$ der Intensitätsabnahme über den gesamten Messbereich. Dies wird zum einen dadurch verursacht, dass keine homogene Beleuchtung über das gesamte Messvolumen realisiert werden konnte. Darüber hinaus konnte nicht sichergestellt werden, dass die Farbstoffkonzentration über den gesamten Tropfen konstant ist. Aus diesem Grund wurde bei jedem Temperaturschritt zusätzlich ein Referenzbild bei einer Fluidtemperatur von 20 °C aufgenommen. Die mittleren Intensitätswerte der einzelnen Auswertefenster wurden auf die entsprechenden Werte im Referenzbild bezogen (\bar{I}/\bar{I}_{20}) und die Verhältnisse anschließend über das ganze Bild gemittelt ($\langle \bar{I}/\bar{I}_{20} \rangle$). Das Ergebnis ist im rechten Teil der Abbildung 3 dargestellt. Es ergibt sich eine erhebliche Reduktion der Standardabweichung auf $\pm 4.4\%$ des Messbereiches.

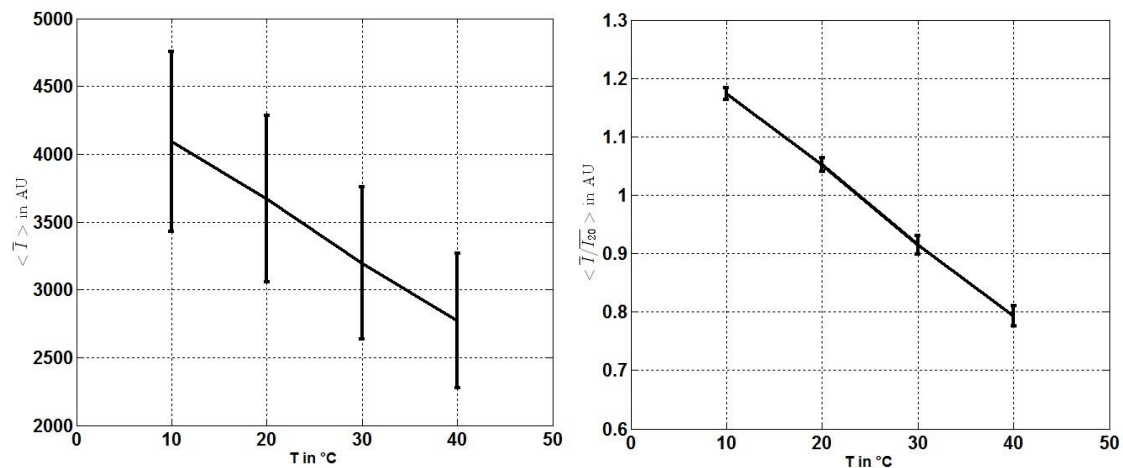


Abb. 3: Verlauf der mittleren Emissionsintensität des gelösten Farbstoffes in Abhängigkeit von der Temperatur (links) und Verlauf der mittleren bezogenen Emissionsintensität des gelösten Farbstoffes in Abhängigkeit von der Temperatur (rechts)

Der Verlauf der mittleren Emissionsintensität in Abhängigkeit von der Temperatur ist für die untersuchten polydispersen PMMA Partikel in Abbildung 4 links und für die monodispersen PS Partikel rechts dargestellt. In beiden Fällen ist verglichen mit dem gelösten Farbstoff eine geringere Intensitätsreduktion pro Kelvin von durchschnittlich 0.12% der mittleren Intensität bei $T = 20\text{ °C}$ zu erkennen. Darüber hinaus ergibt sich eine sehr große Standardabweichung der Intensitätswerte der Partikelbilder, welche durch die Fehlerbalken repräsentiert ist. Diese wird einerseits wie beim gelösten Farbstoff ohne Referenzierung durch die inhomogene Beleuchtung des Messvolumens verursacht. Eine weitere Fehlerquelle ist die inhomogene Größenverteilung der Partikel. Dies führt vor allem bei den polydispersen PMMA Partikeln zu einer großen Streuung der mittleren Intensitätswerte der einzelnen Partikelbilder. Daher ergeben sich für diese Partikelart im Vergleich zu den monodispersen Partikeln größere Fehlerbalken. Somit ist es aufgrund der großen Fehler für beide Partikelarten nicht möglich die Temperatur über die gemittelten Intensitätswerte der einzelnen Partikelbilder zu bestimmen.

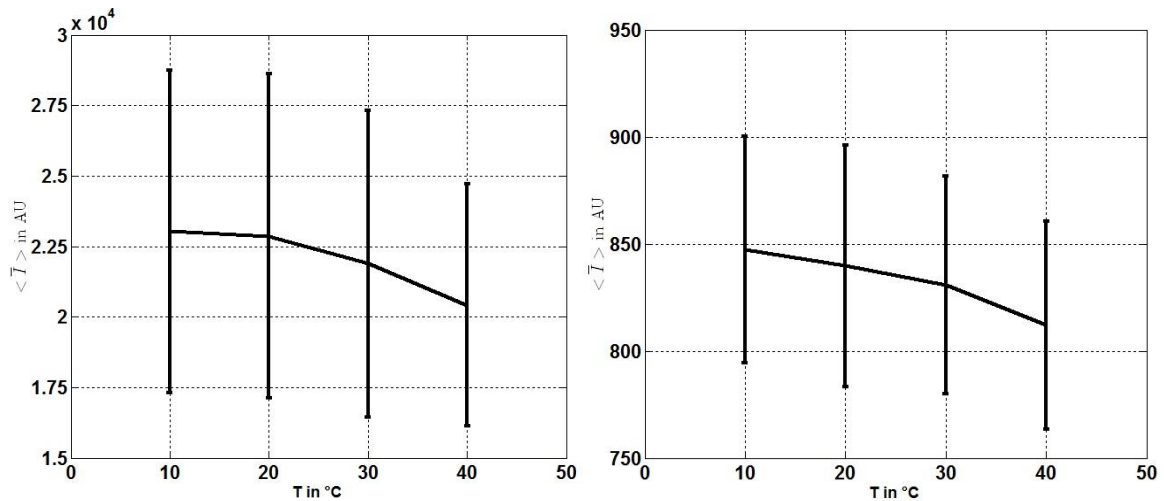


Abb. 4: Verlauf der mittleren Emissionsintensität der polydispersen PMMA Partikel in Abhängigkeit von der Temperatur (links) und der monodispersen PS Partikel (rechts)

Um den Einfluss von Beleuchtung und Partikeldurchmesser zu minimieren, wurde bei jeder Temperaturstufe ein Referenzbild bei 20 $^{\circ}C$ aufgenommen und die gemittelten Fluoreszenzintensitäten der Partikel im Temperaturbild auf die gemittelten Intensitäten der gleichen Partikel im Referenzbild bezogen. Bei dieser Methode ist jedoch darauf zu achten, dass näherungsweise keine Partikelbewegung vorliegt, da bis zu drei Minuten vergehen können, bis die Temperatur des Tropfens stabil auf den Referenzwert geregelt ist. Selbst bei einer geringen Partikelbewegung aufgrund der Brownschen Molekularbewegung und Konvektion im Tropfen, können sich die Partikel in dieser Zeit relativ weit von ihrem Ursprungsort entfernt haben. Dadurch ergeben sich einerseits Fehler aufgrund der inhomogenen Beleuchtung, andererseits entstehen zusätzliche Fehler, wenn die Partikel die Fokusebene verlassen. Um gleiche Partikel in Temperatur- und Referenzbild zu ermitteln, wurde ein Particle Tracking Verfahren verwendet (Cierpka et al 2010). Der Verlauf der gemittelten Intensitätsverhältnisse in Abhängigkeit von der Temperatur ist in Abbildung 5 links für die polydispersen und rechts für die monodispersen Partikel dargestellt. Es ist zu erkennen, dass sich die Standardabweichung für beide Partikelarten auf maximal $\pm 15\%$ des Messbereichs verringert hat. Dies zeigt, dass eine Temperaturmessung durch die Auswertung einzelner Partikelbilder möglich ist, wenn das Temperatursignal auf ein geeignetes Referenzsignal bezogen wird.

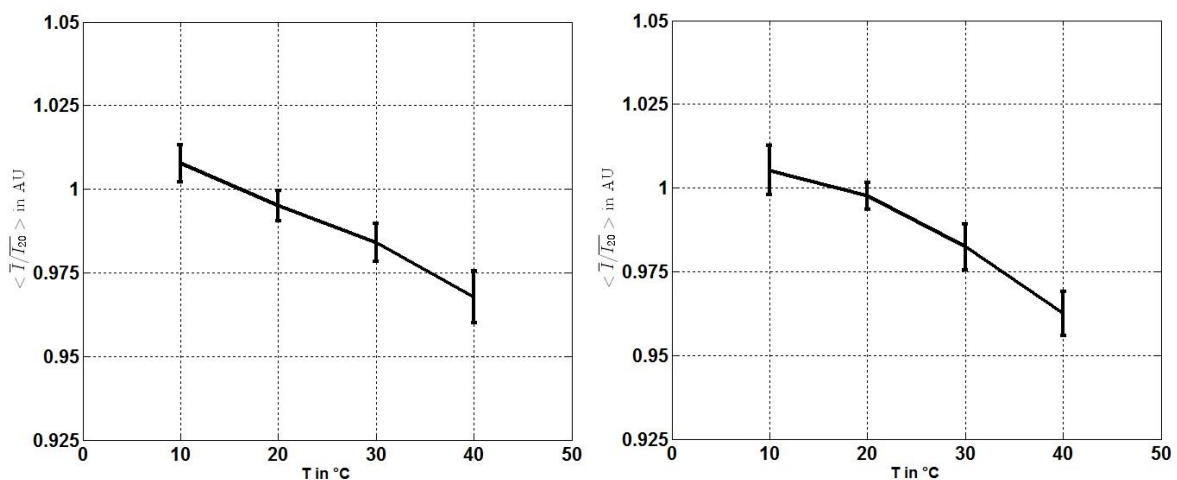


Abb. 5: Verlauf der mittleren Intensitätsverhältnisse in Abhängigkeit von der Temperatur für polydisperse PMMA Partikel (links) und monodisperse PS Partikel (rechts)

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der dargestellten Experimente wurden Temperaturmessungen in einem ruhenden Fluid mit dem Farbstoff Rhodamin B sowohl in gelöster Form, als auch durch die Auswertung einzelner Partikelbilder von Partikeln, die mit Rhodamin B gefärbt waren, durchgeführt. Dabei wurde das Temperatursignal auf ein Referenzsignal bezogen, um Fehlerquellen wie die inhomogene Beleuchtung oder unterschiedliche Partikeldurchmesser auszugleichen. Dadurch konnten Messungen mit einer Standardabweichung von $\pm 4.4\%$ des Messbereiches, bzw. ± 1.3 K, für den gelösten Farbstoff und $\pm 15\%$ des Messbereiches, bzw. ± 4.5 K, bei der Verwendung von Partikeln realisiert werden. Die hier eingesetzte Methode, ist jedoch für eine gleichzeitige Temperatur und Geschwindigkeitsmessung nicht geeignet, da sich die Partikel im Vergleich zum Referenzbild nicht bewegen dürfen, sofern nur ein Farbstoff in die Partikel eingebracht wird. Dies widerspricht dem Messprinzip der Geschwindigkeitsmessung. Aus diesem Grund sollen zukünftig Polymer-Partikel verwendet werden, die mit zwei fluoreszenten Farbstoffen gefärbt sind, welche ein unterschiedliches Temperaturverhalten aufweisen. Zukünftige Arbeiten werden sich vor allem darauf konzentrieren, den Messfehler zu reduzieren und somit die mögliche Temporauflösung zu erhöhen. Langfristig soll in Kombination mit der 3D3C Astigmatismus Particle Tracking Velocimetry (APT_V) (Cierpka et al. 2010) das dreidimensionale Temperatur- und Geschwindigkeitsfeld simultan bestimmt werden.

Dankesworte

Dieses Projekt wurde im Rahmen der Emmy-Noether Nachwuchsgruppe CI-185 von der DFG gefördert.

Literatur

- Kjeang, E., Djilali, N., Sinton, D., 2009: "Microfluidic fuel cells: A review", *Journal of Power Sources*, Vol. 186, No. 2, pp. 353-369
- Buongiorno, J., et al, 2009: "A benchmark study on the thermal conductivity of nanofluids", *Journal of Applied Physics*, Vol. 106, pp. 1-14
- Wen, D., Zhang, L., He, Y., 2009: "Flow and migration of nanoparticle in a single channel", *Heat and Mass Transfer*, Vol. 45, No. 8, pp. 1061-1067
- Sakakibara, J., Adrian, R. J., 1999: "Whole field measurement of temperature in water using two-color laser induced fluorescence", *Experiments in Fluids*, Vol. 26, pp. 7-15
- Shafii, M. B., Luml, C. L., Koochesfahani, M. M., 2010: "In Situ LIF temperature measurements in aqueous ammonium chloride solution during uni-directional solidification", *Experiments in Fluids*, Vol. 48, pp. 651-662
- Jeong, D. W., Lee, C. Y., Lee, S.Y., 2009: "Measurement of fluid temperature across microscale gap using two-color ratiometric laser-induced fluorescence technique in combination with confocal microscopy", *Journal of Heat Transfer*, Vol. 131, No. 9, pp. 1-8
- Dabiri, D., 2009: "Digital particle image thermometry/velocimetry: a review", *Experiments in Fluids*, Vol. 46, pp. 191-241
- Segura, R., Cierpka, C., Rossi, M., Joseph, S. Bunjes, H., Kähler, C. J., 2013: "Non-encapsuled thermo-liquid crystals for digital particle tracking thermography/velocimetry in microfluidics", *Microfluidics Nanofluidics*, Vol. 14, pp. 445-456
- Kähler, C. J., Scharnowski, S., Cierpka, C., 2012: "On the resolution limit of digital particle image velocimetry", *Experiments in Fluids*, Vol. 52, pp. 1629-1639
- Cierpka, C., Segura, R., Hain, R., Kähler, C. J., 2010: "A simple single camera 3C3D velocity measurement technique without errors due to depth of correlation and spatial averaging of microfluidics", *Measurement Science and Technology*, Vol. 21, pp. 1-13