

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04196

研究課題名(和文)酸化グラフェンナノシート懸濁液による摩擦抵抗と熱伝達の同時向上

研究課題名(英文)Improvement of heat transfer and friction coefficient by graphene oxide nanosheet suspensions

研究代表者

小方 聡(Ogata, Satoshi)

東京都立大学・システムデザイン研究科・准教授

研究者番号：50315751

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：省エネルギーに関連し、流動における抵抗低減効果が注目されている。しかし、低減効果を得れば熱伝達も同程度低減する。本研究では抵抗低減と熱伝達率向上を同時達成することを目的として、酸化グラフェンナノシート(GO)懸濁液の流動抵抗および熱伝達性能を実験的に明らかにしたものである。研究の結果、GO懸濁液は乱流域における抵抗減少を示すと同時に伝熱性能が向上することを明らかにした。さらに、エチレングリコール水溶液を循環系流路に適用した実験においても、GO懸濁液は同様の抵抗減少効果および熱伝達率の向上効果を示す。これらの結果は、本研究で初めて明らかにされ、工学的・工業的に意義があることと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

乱流の抵抗低減を得ようとするれば熱伝達率も同程度低減する。しかし現時点では、これらを同時に達成する添加剤や手法は存在しない。この問題を解決するために、熱伝導性および水分散性に優れる酸化グラフェンナノシートに着目し研究を行い、熱伝達性能向上と抵抗低減を同時に達成することが可能であることを明らかにした。このようなトレードオフの関係にある物性を両立する材料は、国内外で誰も実現しておらず、ここに研究成果の学術的意義がある。また、実機の熱交換器に本材料を適用することで、その性能を向上させることも可能である。このような新しい省エネルギー手法の提案に社会的な意義がある。

研究成果の概要(英文)：Methods for flow drag reduction have become very important from an energy-saving viewpoint. However, when a drag-reducing agent is used in equipment that generates heat and flow, the drag decreases. Simultaneously, the heat-transfer performance deteriorates, hindering the performance enhancement of the heat exchangers. This study investigated graphene oxide (GO) nanosheets as additives that could achieve a trade-off relationship between drag reduction and heat transfer improvement. The experimental results show that the frictional coefficient of the GO nanosheet suspensions was reduced compared to that of distilled water in the turbulent flow region. Meanwhile, the Nusselt number increased in the range of the Reynolds number where the drag reduction occurred. The results demonstrate that GO nanosheet suspensions possess both characteristics of drag reduction and heat-transfer enhancement, which have hitherto been considered difficult to achieve simultaneously.

研究分野：流体工学

キーワード：熱伝達特性 抵抗低減 圧力損失 円管内流れ 酸化グラフェンナノシート 混相流 複雑流体

1. 研究開始当初の背景

近年、効率的な熱エネルギーの管路内輸送手段の一つとして、輸送媒体に抵抗低減効果を有する流体を利用する試みが注目されている。特に、配管の圧力損失の低減はプラントや地域冷暖房などの比較的大きい装置だけでなく、ビルなどの空調の温水冷水循環を担うポンプのランニングコストの低下に直結し、エネルギーの大幅な削減が期待できる。さらに、流体摩擦抵抗の低減化技術の開発は、流体流動が関連する様々な機器の効率向上や小型化にも繋がるなどの利点もある。この流動抵抗を低減させる方法は種々考えられるが、抵抗低減添加剤を溶媒に添加する方法は、その低減量が他の方法と比較して非常に大きく、また既存の流路を改良する必要がなくコストを安くすることが可能である。

これら抵抗低減添加剤は管内乱流渦の発生や発達を抑制することで流動抵抗の減少をもたらすものとして知られている。しかしながら、このような抵抗低減添加剤を熱交換器などの熱と流動が同時に発生する機器に適用した場合、「レイノルズのアナロジー」として知られているように抵抗低減を得ることと同時に熱伝達率も同程度低減してしまう。このことは、熱交換器に代表される熱と流動が同時に発生する流体機械の性能向上を妨げる要因の一つになっている。よって、その高効率化を実現するためには、抵抗低減流体を流用した際に生じる熱伝達低減を解決することが非常に重要である。

一方、現在、熱伝導特性や潤滑特性の向上を目的としてナノ粒子懸濁液の流動が粒目されている。ナノ粒子は粒子径が 100 nm 以下と非常に小さく活性度や反応性が高い。さらに、ナノ粒子懸濁液は水やオイルなどと比較して高い熱伝導特性を持つ。しかしながら、一般的には、ナノ粒子添加はベース流体と比較して熱伝達特性が向上するが、同時に圧力損失は増加の傾向にあると言える。本研究では、このトレードオフの関係にある抵抗低減と熱伝達向上を達成する添加剤として、熱伝導性および水分散性に優れた酸化グラフェンナノシートに着目した。酸化グラフェンはカーボンの単相シートであるグラフェンが酸化したもので、炭素原子 1 個分ほどの厚さの 2 次元シート状の物質である。また機械的強度が高く、比較的安価であるため様々な工業分野への応用が期待されている。また、通常ナノ材料では凝集性が非常に高く、液中では凝集してしまうが、酸化グラフェンではカルボキシ基やヒドロキシ基によって凝集が阻害され、液中でも凝集し難い特性を有する。このように、本材料は高アスペクト比の薄板状であるために、ファイバー懸濁液などと同様の抵抗低減効果を有する可能性があり、グラフェン骨格に由来する優れた熱伝導性と合わせて、この問題を解決出来るものと考えられる。しかしながら、現時点で酸化グラフェンナノシート懸濁液の熱流動特性は十分明らかにされているとは言い難い。

2. 研究の目的

本研究は新しい抵抗低減効果の応用として環境負荷への軽減、劣化現象の緩和、さらに熱伝達特性の向上の観点から、酸化グラフェン懸濁液の流動及び熱伝達特性を実験的に明らかにし、抵抗低減効果と熱伝達率向上を同時に達成することを目的とする。

3. 研究の方法

熱伝達率測定に用いた実験装置の概略図を図 1 に示す。装置はシリンジポンプ、シリンジ、カートリッジヒーター、温度調節機およびデータロガーから構成され、ヒーターの中心には流路となるステンレス鋼製の円管が通っている。それらは水平に接続され、流量はシリンジポンプのピストンの移動速度から求められる。供試円管の内径 d_i は 1.99 mm であり、加熱区間長 l_h は 580 mm である。試験部出入口に設置した K 型熱電対で入口壁面温度 T_{wi} および出口壁面温度 T_{wo} をそれぞれ測定した。試験部壁面は温度調節機を用いて温度を一定に保ち、実験を行った。また、T 型熱電対を円管の前後に挿入することで入口の流体温度 T_i および出口の流体温度 T_o を測定した。測定した壁面および流体温度はデータロガーを用いて収集した。厚さ 10 mm の断熱チューブを円管外側に配置しヒーターからの熱損失を軽減した。供試流体の温度と実験室内の温度の両方を 22 °C とし、供試円管の壁面温度を 25 °C に保った状態で実験を行った。修正レイノルズ数が $3000 < Re' < 6000$ の乱流領域で実験を行った。熱伝達特性の評価は式(1)で表される熱伝達率 h の変化がほぼ一定となった値で行った。

$$h = \frac{\rho c_p d_i U (T_o - T_i)}{4 l_h \Delta T} \quad (1)$$

ここで、 c_p は供試流体の定圧比熱、

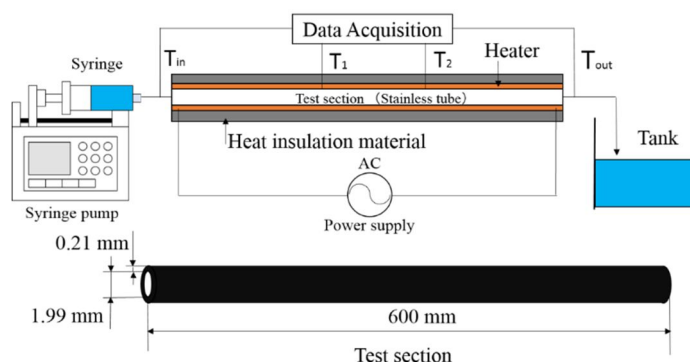


図 1 実験装置

ρ は供試流体の密度, ΔT は次式で表される対数平均温度差である.

$$\Delta T = \frac{(T_{wi}-T_i)-(T_{wo}-T_o)}{\ln \frac{T_{wi}-T_i}{T_{wo}-T_o}}$$

圧力損失測定装置は図1の加熱円管部分を2か所の圧力測定孔が開けられた円管に変えたものである。その供試円管はステンレス鋼製であり、内径 d_i は 1.77 mm, 圧力測定区間は 150 mm である。助走区間は 100 mm に取られており、乱流域において十分発達した流れが得られている。圧力損失は圧力変換器で測定される。本研究では、修正レイノルズ数が $3.0 \times 10^2 < Re' < 1.0 \times 10^4$ の範囲で実験を行った。

本研究で用いた酸化グラフェンナノシート(GO)は粒子形状がシート状で、厚さが 0.8 nm, サイズが $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ 程度である。供試懸濁液は蒸留水を用いて作製し、濃度は 0.1 wt%, 0.3 wt%, 0.5 wt% の 3 種類とした。供試懸濁液は実験前にミキサーでよく分散させた。比較のため、蒸留水, 抵抗低減流体である高分子水溶液, 伝熱性能向上のための酸化チタンナノ粒子懸濁液も用意した。高分子水溶液は Polyethylene oxide を蒸留水に溶解させたもので濃度は 15 ppm である。酸化チタン粒子は直径 10 - 15 nm であり、濃度は 0.5 wt% とした。

4. 研究成果

(1) 熱伝達特性

熱伝達率 h をヌセルト数 $Nu = hd_i / k$ と修正レイノルズ数 Re' の関係で示した結果を図2に示す。ここで、 k は供試懸濁液の熱伝導率であり、Hamilton and Crosser の相関式を用いて求めた。図2の実線は以下の式で与えられる円管内における十分発達した乱流での対流熱伝達式である。

$$Nu = 0.027Re'^{0.8}Pr^{\frac{1}{3}} \left(\frac{\eta_{ck}}{\eta_{ckw}} \right) \quad (2)$$

ここで、 η_{ck} は流体温度における供試流体の見掛けの粘度, η_{ckw} は壁面温度における供試流体の見掛けの粘度, Pr は水のプラントル数である。

図2より、水の値は式(2)と比較して低い値となった。これは酸化グラフェンが少量しか合成出来ないことに対応し試作した本実験装置の特性上、循環させることが出来ないため、出口温度が十分平衡になっていないことに起因すると考えられる。このことを考慮して、本研究では同一条件の水との比較を行うことで、各供試流体の性能の評価を行った。

GO 懸濁液の場合、すべての濃度で水と比較して高い熱伝達特性を示すことが分かる。そして、懸濁液の濃度の増加に伴い熱伝達率は若干上昇する。他方、Peo 15 ppm 水溶液ではヌセルト数は大きく低減し、 TiO_2 0.5 wt% 懸濁液のヌセルト数は 0.1 wt% の熱伝達低減率懸濁液と同程度の増加を示した。

従来の研究と同様に、熱伝達性能の変化を蒸留水を基準とした熱伝達低減率 HTR を用い定量的に評価した結果を図3に示す。 HTR は式(7)で定義される。

$$HTR = \frac{Nu_w - Nu}{Nu_w} \times 100 \quad (3)$$

ここで、 Nu および Nu_w は供試流体および蒸留水のヌセルト数である。

図3より、熱伝達低減率懸濁液は、どの濃度、レイノルズ数においても熱伝達低減率が負であり、水よりも熱伝達特性が向上している。0.1 wt% および 0.3 wt% の場合、 Re' が 3000 を超えた辺りから、熱伝達低減率がマイナスからゼロに近づくことから熱伝達特性の向上が減少し始め、レイノルズ数の増加と共に熱伝達低減率がゼロに近づいた。それぞれの濃度での熱伝達低減率 HTR の最大値は $C_w = 0.1 \text{ wt\%}$, 0.3 wt\% , 0.5 wt\% でそれぞれ $HTR = -8.7\%$, -16.3% , -24.3% とな

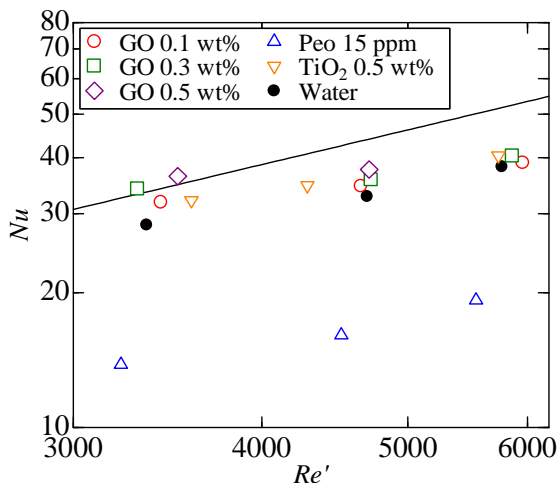


図2 GOの熱伝達特性

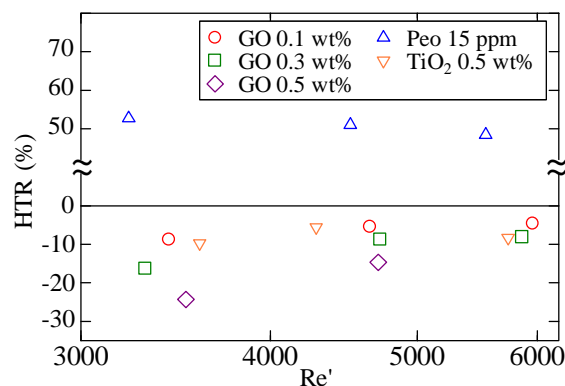


図3 GOの熱伝達低減率

り、濃度の増加とともに熱伝達性能が向上した。一方、 Pe_o 水溶液は乱流域において最大約 50% の熱伝達性能低下が確認された。これは抵抗低減率と同程度であることが分かる。 TiO_2 懸濁液は熱伝達性能が向上している。それは最大で約 9.7% であった。

(2) 圧力損失特性

図 4 に GO 懸濁液の管摩擦係数と修正レイノルズ数 Re' の関係を示す。図中の L は円管内流れにおける層流の厳密解、 N は Prandtl-Kármán formula である。点線は Virk の最大抵抗減少漸近線である。図 4 より層流域ではすべての供試流体の管摩擦係数は層流の厳密解とよく一致していることが分かる。一方、乱流域において GO 懸濁液の管摩擦係数は蒸留水と比較し減少している。そして、その減少率は懸濁液濃度が高くなるほど増加する。この領域における高分子水溶液の管摩擦係数は蒸留水と比較し大幅に減少し、Virk の最大抵抗減少漸近線に値が漸近した。酸化チタンの場合は乱流域で抵抗減少効果は生ぜず、水の結果と同様にプラジウスの式と一致した。管摩擦係数の抵抗減少効果を定量的に評価するため、蒸留水を基準とした抵抗低減率 DR を以下の式(3)によって定義した。 DR と Re' で表記した結果を図 5 に示す。

$$DR = \frac{f_w - f}{f_w} \times 100 \quad (4)$$

ここで、および f_w は供試流体および蒸留水の管摩擦係数である。図 5 より、 Re' が 2000 を越えた領域から抵抗が減少し始め、 Re' の増加と共に抵抗低減率も増加した。そして、極大値を持った後、一定値に漸近した。それぞれの濃度での最大抵抗低減率は 0.1 wt%、0.3 wt%、0.5 wt% でそれぞれ $DR = 19.0\%$ 、 24.1% 、 36.5% となった。一方、従来の研究と同様に、 Pe_o 15 ppm 水溶液は Re' の増加に伴い DR が増加し、 Re' が約 8000 で最大抵抗低減率 $DR = 60\%$ をとり、その後 Re' の増加に伴い抵抗低減率は減少している。 TiO_2 0.5 wt% 懸濁液では、抵抗が $2000 < Re' < 3000$ で抵抗が増加するが、レイノルズ数の増加と共に水の値に近づき、 $Re' > 3000$ では抵抗低減率はゼロを示した。比較的高濃度のファイバーに関して、Bari らは、サイズ 11 nm、長さ 100~200 nm の繊維形状の Fumed Silica fiber を 600 ppm の濃度で添加した懸濁液を用い $20000 < Re' < 40000$ の範囲で 20~40% の抵抗減少効果を明らかにしている。高濃度の繊維懸濁液中の繊維は絡み合いフロックを形成することで乱流渦を減衰させる効果を有することが指摘されている。本研究で用いた GO は、形状は異なるが厚さ(直径)は同程度であり、それらが流体中で繊維の絡み合いに似た構造を形成すれば乱流渦を減衰させ、繊維懸濁液の抵抗減少効果と同様な挙動を示すことが類推できるが現時点では不明である。

一方、抵抗低減添加剤の構造に関連して、Virk らは添加剤による乱流域の抵抗減少効果を溶媒のみの値と比較して平行に変化するか、そうでないかによって分類し、前者を Type B、後者を Type A と分類している。この違いは微視的には添加剤の分子構造の違いによって生ずるものと考えられており、Type B は伸張された分子や繊維で観察され、Type A はランダムコイルの高分子などで観察される。この分類によれば、GO 懸濁液の抵抗低減挙動は Type B の挙動を示すことが分かる。

(3) 熱伝達特性と抵抗低減の関係

抵抗低減率と熱伝達低減率のアナロジーを評価するために、図 6 に本研究で得られた抵抗低減率 DR と熱伝達率低減率 HTR を従来の結果と合わせて示す。図は横軸を HTR 、縦軸を DR としており、第 1 象限は抵抗低減は生じるが同時に熱伝達率も減少することを示し、従来の抵抗低減流体はこの領域に存在する。熱伝達性能を向上させる効果を有する一般的なナノ流体は、第 3 象限もしくは負の y 軸上にプロットされる。一方、第 2 象限は抵抗低減と熱伝達性能の同時達成を示している。

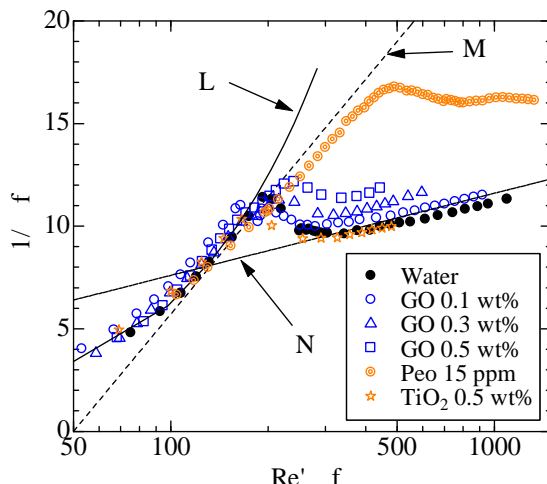


図 4 GO の圧力損失特性

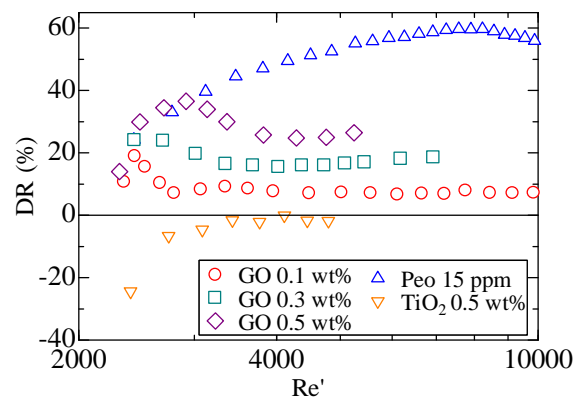


図 5 GO の抵抗低減率

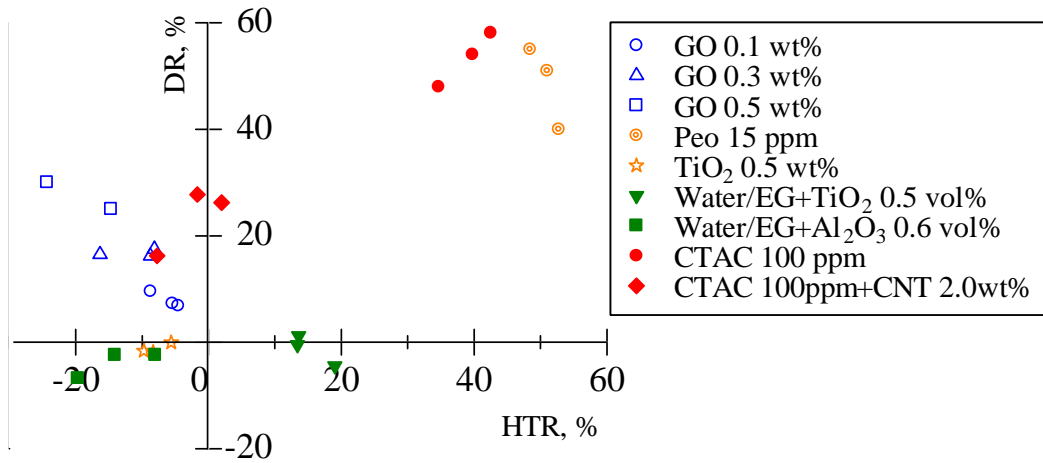


図6 抵抗低減率と熱伝達低減率の関係

図6より明らかなように、本研究で用いたGO懸濁液の実験結果は第2象限にあり、抵抗低減と熱伝達率性能向上を同時に達成していることが分かる。また、両者はほぼ線形関係にあり、抵抗低減量の増加とともに熱伝達性能も増加する。当然のことながら、抵抗低減効果を生じないTiO₂懸濁液や水/エチレングリコールにナノ粒子を添加した懸濁液は、第3象限もしくは負のy軸上にプロットされ、熱伝達は変化するものの抵抗低減は生じない。一方、熱伝達性能が悪化したPeo水溶液や従来のCTAC水溶液は第1象限にあり、抵抗低減効果は大きいとその効果を発揮しているレイノルズ数において、それと同程度の熱伝達低下が生じる。また、熱伝達を改善するCNTをCTAC水溶液に添加すると熱伝達率低下はある程度抑制されるが、抵抗低減率は半分程度に減少してしまう。以上のことにより、GO懸濁液は流れの乱れ抑制効果に加えて、熱伝導率の高いグラフェンによる有効熱伝導率の向上、粒子の熱運動なども合わせて熱伝導率の向上の効果があると指摘出来る。これらの結果から、GO懸濁液は、これまで両立困難と考えられてきた抵抗低減と熱伝達増加の両方の特性を有することが示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

| | |
|--|-----------------|
| 1. 著者名 小方 聡, 仁科 勇太, 栃木 弘, 渡辺 敬三 | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 酸化グラフェンナノシート懸濁液による抵抗減少効果と熱伝達特性 | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 日本機械学会論文集 | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/transjsme.20-00047 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|---|-----------------|
| 1. 著者名 Watanabe Keizo, Ogata Satoshi | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 Drag reduction of aqueous suspensions of fine solid matter in pipe flows | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 AIChE Journal | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/aic.17241 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 中村 さえ, 小方 聡, 仁科 勇太, 伊藤 源基, 栃木 弘, 渡辺 敬三 |
| 2. 発表標題 酸化グラフェンナノシート懸濁液の熱伝達性能に関する研究 |
| 3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 小方 聡, 仁科 勇太, 栃木 弘, 渡辺 敬三 |
| 2. 発表標題 酸化グラフェンナノシート懸濁液の熱伝達と流動抵抗の相関 |
| 3. 学会等名 日本機械学会2020年度年次大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 三富崇大, 小方聡, 仁科勇太, 栃木弘, 渡辺敬三 |
| 2. 発表標題 酸化グラフェンナノシート懸濁液の流動に及ぼす管内径の影響 |
| 3. 学会等名 日本機械学会第97期流体工学部門講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 三富崇大, 小方聡, 仁科勇太, 栃木弘, 渡辺敬三 |
| 2. 発表標題 抵抗低減効果を有する酸化グラフェンナノシート懸濁液のレオロジー特性 |
| 3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会 |
| 4. 発表年 2019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 |
|-------|---|--|----|
| 研究分担者 | 仁科 勇太 (Nishina Yuta) (50585940) | 岡山大学・異分野融合先端研究コア・研究教授 (15301) | |

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 |
|---------|---------|