

令和 3 年 6 月 19 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14918

研究課題名(和文) 自己組織的3次元ナノポーラス構造の創製と高性能伝熱面への応用

研究課題名(英文) Development of self-organizing 3D nanoporous structures and application to high-performance heat transfer surface

研究代表者

馬場 宗明 (Soumei, Baba)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員

研究者番号：10711773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、合金化・脱合金化によって形成される共連続型ポーラスの自己組織化を利用した微細構造に着目し、毛管現象による浸透や超撥水面形成、超親水面のパターニングによる濡れ性勾配の形成等を利用した機能性伝熱面の製作を試みた。エッチング技術を併用することで、ナノスケールの微細構造とマイクロ構造とを組み合わせた階層的ナノ・マイクロ構造を製作し、凝縮液滴生成密度や液滴自発跳躍現象、液滴供給・排除の制御を行った。超撥水性の凝縮伝熱面にナノ・マイクロスケールの階層的構造を設けることで、自発的な跳躍液滴径を20-30um程度まで微小化し、跳躍発現頻度の著しい向上による凝縮熱伝達向上の指針を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

凝縮挙動を核生成から液滴排出までマルチスケールに制御を行うために、微細形状をパラメータとして試作検討を行い、マイクロスコプを用いた観察実験を実施した。実験結果に基づき、超撥水面における滴状凝縮挙動を制御するパラメータを見出し、凝縮熱伝達を促進させるための知見を獲得した。さらに、非定常な液滴挙動による伝熱促進の可能性を示唆する実験結果を得た。凝縮熱伝達は熱利用技術の高度化のために非常に有用であり、特に今後市場拡大が見込まれる電子機器の冷却デバイスにおいて活用が見込まれる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we focused on the co-continuous porous formed by alloying and dealloying, and produced a functional heat transfer surface with a wettability gradient due to permeability due to capillarity and hydrophobic / hydrophilic patterning. By using dry etching technology together, we have produced a hierarchical nano/micro structure that combines nano-scale structures and microstructures. We have tried to dynamically control the nucleation density, spontaneous droplet jumping, and droplet exclusion by changing the dimensions of the nano/micro structure. By providing a nano/microscale hierarchical structures on the heat transfer surface of the condensation, the diameter of the spontaneous jumping droplets was reduced to about 20-30 um, and a guideline for improving the heat transfer of the condensation was obtained by significantly improving the frequency of jumping.

研究分野：熱工学

キーワード：微細加工 伝熱促進 凝縮 液滴ジャンプ

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

近年の微細加工技術の発展とともに、相変化伝熱面の微細構造や濡れ性を制御することが注目されており、伝熱促進を飛躍的に向上させる試みが多く報告されている。伝熱面上のフィン及びポーラス層等のマイクロ微細構造のパターン化や、化学エッチングやドライエッチングによるナノ構造などの研究が盛んにおこなわれている。ナノスケールの表面改質は、凝縮液滴径に相当する流体力学的スケールで伝熱面構造を設計することで、伝熱性能を著しく向上させることができる可能性がある。凝縮熱伝達に関しては、滴状凝縮の液滴サイズを制御することで微小液滴の自発跳躍（Jumping droplet）が生じ、滴状凝縮を持続させることから膜状凝縮に比して熱伝達率が向上する報告がなされているが、金属製伝熱面においては μm オーダの二次元ピラー構造か、または化学エッチングなどによるいわば成り行き任せの設計手法となっており、 $10\mu\text{m}$ 以下からサブミクロンオーダでの制御性のある伝熱面表面加工技術の確立が課題となっている。また、実用的には化学処理により作成した金属表面の超撥水面は長期安定性や化学安定性に課題を有しており、応用までには至っていないのが現状である。すなわち、技術的に未踏の課題によって、科学的に未解明な部分が多く残されているため、マルチスケール性を考慮した凝縮熱伝達向上に関する設計指針は未だ確立されていない。そこで、本研究では、合金化・脱合金化によって形成される共連続型ポーラスの自己組織化ナノ構造を利用し、高度に制御され、かつ安定性の良い微細構造を作成手法とともに、凝縮液滴排除に関する基本的知見の獲得を目指す。液滴制御による凝縮熱伝達向上は実用上での波及効果が大きく、民生機器においては、燃焼排熱回収時の凝縮液排出制御の高度化や熱交換器の着霜抑制・除霜促進、ICT 技術の進展により益々需要が増大している電子デバイスの冷却技術、加速減速を伴う自動車用のインバータ冷却や宇宙機用半導体冷却など、本課題により得られる成果の潜在的なインパクトは膨大である。

2. 研究の目的

本研究では、金属薄膜から形成される自己組織化ナノ構造により高度に制御された微細構造凝縮伝熱面を製作することで、滴状凝縮挙動を詳細に調べ、凝縮熱伝達特性向上に資する知見を得ることを目的とする。凝縮液滴排除を促進するためには、触媒などに用いられるような様なポーラス体ではなく、伝熱面内での濡れ性パターン化（分布・勾配）を実現するための階層構造が重要となる。そこで、伝熱面上にあらかじめ設けたマイクロスケールの構造体全体あるいは表層のみを合金化させ、溶解除去を行うことで残存元素の開気孔ポーラスを形成させる。原理的に、ポーラス形成は犠牲元素の溶解および残存元素の表面拡散・自己集積が主要なパラメータとなることから、合金条件や溶解条件を制御することで、固体・電解液界面での原子拡散を抑制あるいは促進させ、孔径を任意に設計する。これを凝縮面に適用することで、自発跳躍など液滴挙動とその結果としての凝縮熱伝達の大幅向上を目指す。

3. 研究の方法

(1) ナノ・マイクロ微細構造の製作

合金から特定元素成分のみを選択的に取り除く脱合金法は、残存元素成分による $\text{nm}\sim\mu\text{m}$ スケールの共連続型ポーラス体の自己組織化を利用した微細構造の生成が可能となる。階層構造を製作するために、まずマイクロ構造をリソグラフィとドライエッチングにより形成させた。シリコンウエハ表面にパターン形状をマスクレスリソグラフィで描写し、ドライエッチングの一種であるボッシュプロセスを用いてマイクロ構造を形成させた。マイクロ構造の寸法は、直径 $5\sim 20\mu\text{m}$ 、高さ $6.5\sim 19.5\mu\text{m}$ のピラー形状をピッチ $20\sim 80\mu\text{m}$ の範囲で、パラメータをふったサンプルを用意した。脱合金法については、 Ag-Au 膜等をシリコン表面に形成させて、脱合金化させることで、ナノポーラス金属層を形成させた。また、比較として、ナノピラー形状についても検討を行った。ナノピラーは、金属薄膜をシリコン表面に成膜したのち、Thermal dewetting を行うことで、自己組織化したナノ粒子をマスクとしたナノピラー形成を行った。

(2) 凝縮特性の評価実験

凝縮実験では、製作したサンプルを下部よりペルチェユニットにより冷却し、調湿された加湿空気を流入させることで、サンプル表面に生じた凝縮液の挙動を観察した。サンプルは水平配置として、上面からはマイクロスコープにより液滴生成密度・液滴合体挙動・時間経過に伴う液滴径分布の推移を観察した。側面からは高速度カメラを用いた光学観察を行うことで、凝縮液滴の合体・離脱にともなう動的な液滴の挙動を観察した。サンプル表面は 0°C に設定し、流入させる調湿ガスは、温度 $23\pm 0.4^\circ\text{C}$ (室温)、相対湿度 $70\pm 0.5\%$ として実験を行い、サブクール温度 $17\pm 0.3\text{K}$ における凝縮挙動を観察した。

(3) 自然界のナノ・マイクロ構造の観察

自然界では、多くの現存する種が進化の過程で機能化された表面構造を示す。そこで、植物の葉の表面構造を理解し、人工的に模写することで新しい機能性伝熱面を開発するために、超撥水性を有する植物の表面観察ならびに表面における凝縮挙動の観察を行った。いくつか観察した中でも、特に超撥水性が高かったユーフォルビア・ミルシニテス (*Euphorbia myrsinites*) の葉の階層的ナノ・マイクロ構造に焦点を当て、葉表面での凝縮挙動を観察した。*E. myrsinites* の葉には、高さ約 $10\mu\text{m}$ のマイクロスケールの乳頭状の突起があり、表面にはナノワックスがあった。この階層構造に起因する超疎水性により、葉の表面で液滴の凝縮が発生するだけでなく、液滴が自発的にジャンプすることが観察された。凝縮が進むにつれ、微小突起上部に形成された約

200 μm の二次液滴の底に 10 μm 以下の小さな液滴が形成されていることが確認され、この微小な液滴は核形成と成長合体が頻繁に繰り返されることが明らかになった。

4. 研究成果

(1) 滴状凝縮の時間推移

製作したサンプル表面で観察された凝縮様子の一例を図 1 に示す。凝縮発生の確認後 10 分後において、均一ナノ構造を有する表面では、滴状の凝縮液滴が確認され、時間の経過とともに、液滴サイズが大きくなった。一方、階層的なナノ・マイクロ構造の人工表面では、ピラー高さが 19.5 μm の場合、ジャンプして落下した液滴がマイクロピラーの上部で跳ね返り、再付着を防いだ。その結果、時間の経過に伴う大きな液滴の形成が抑制された。特に、ピラー径 5.6 μm 、高さ 19.5 μm のサンプルでは、ジャンプした液滴直径 35 μm 以上の液滴が自発的に跳ね上がり、再び表面に付着できず、観察領域から流出した。その結果、10 分後でも 35 μm 以上の液滴が伝熱面上に存在することができなかった。ピラー径 16 μm の大きな液滴ジャンプと連続ジャンプも確認されたが、周波数は小さい直径のそれよりも低い傾向となった。

(2) 液滴ジャンプの挙動

図 2 に伝熱面上から自発的にジャンプした液滴挙動を示す。1000fps で撮影した画像を合成することで、液滴の動的な挙動を可視化した。最初にジャンプした液滴が落下し、再付着すると、すぐに連続した液滴ジャンプが発生し、その後続いて 3 回目の液滴ジャンプが繰り返された。連続的な液滴ジャンプは、表面に付着している他の液滴を同伴し、液滴直径はジャンプごとに増加した。戻り液滴の合体によって引き起こされた液滴ジャンプは、均質な微細構造表面でも発生したが、マイクロピラーの存在は、次の液滴ジャンプの誘導を強化していると推定された。マイクロ構造がピラー径 5.6 μm 、高さ 19.5 μm の表面では、ほとんどの液滴の初期直径が 10~30 μm の範囲であるため、戻り液滴の直径はマイクロピラーピッチよりも大きいと推定された。したがって、界面張力がマイクロピラー上部の急峻なエッジに作用し、接触面積が小さい Cassie 状態で接触し、付着エネルギーが大幅に抑制される。さらに、マイクロピラーの間に存在する液滴は、大きなラプラス圧力を持っているために、階層構造ではアスペクト比の高いマイクロピラーの戻り液滴と付着液滴が結合した際に発生する余剰エネルギーが大きくなり、液滴ジャンプが促進されたものと推測された。

(3) マイクロ構造の影響に関する考察

マイクロピラー高さが 6.5 μm の表面では、*E. myrsinites* の葉と同様に、二次液滴の底に多くの小さな液滴が核形成され、非常に高い頻度で生成および二次液滴との合体を繰り返した。マイクロピラーの直径が 16 μm 、高さが 6.5 μm の表面では、上部に二次液滴が存在しない液滴と比較して、下にある液滴の体積が約 3.5~8.0 倍の割合で増加する傾向が得られた。この原因として、蒸気拡散速度の急速な増加および局所的な物質移動境界層のより大きな擾乱を伴う物質移動係数が、下にある液滴の形成および成長に対応する豊富な蒸気供給を提供すること示唆された。これは、非定常な液滴挙動による凝縮熱伝達の向上に関する可能性が示されたものと考えている。

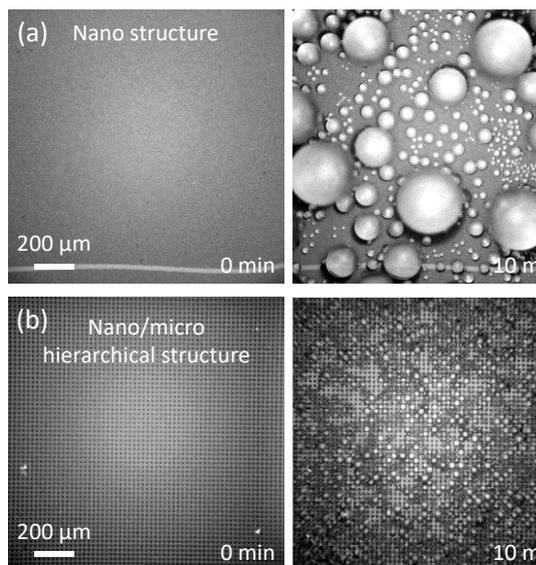


Fig. 1 Condensed droplets observed with a microscope on the uniform and hierarchical structured surface.

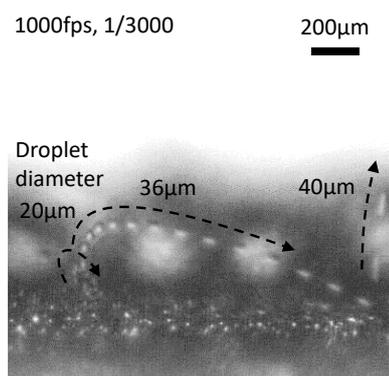


Fig. 2 High-speed shot image of jumped droplets.

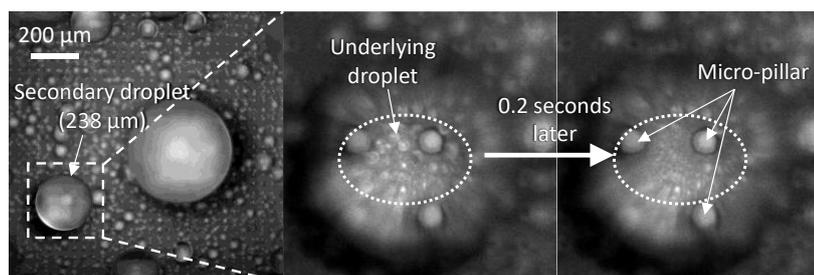


Fig. 3 Underlying droplet confirmed by focusing on the bottom of the secondary droplet on the surface of the nano/microstructured surface.

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Soumei Baba, Kenichiro Sawada, Kohsuke Tanaka, Atsushi Okamoto	4. 巻 36
2. 論文標題 Dropwise Condensation on a Hierarchical Nanopillar Structured Surface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 LANGMUIR	6. 最初と最後の頁 10033-10042
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.langmuir.0c00950	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 馬場宗明、澤田健一郎、田中洸輔、岡本篤
2. 発表標題 宇宙機搭載熱機器用ペーパーチャンバの蒸発面温度分布評価
3. 学会等名 第56回 日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 馬場宗明、澤田健一郎、田中洸輔、岡本篤
2. 発表標題 階層的ナノピラー構造上での滴状凝縮挙動
3. 学会等名 熱工学コンファレンス2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 馬場宗明、澤田健一郎、田中洸輔、岡本篤
2. 発表標題 ナノ・マイクロ階層構造を持つ超撥水表面での滴状凝縮挙動
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 馬場宗明、澤田健一郎、田中洸輔、岡本篤
2. 発表標題 シリコン製マイクロペーパーチャンバの熱流動特性
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------