

平成22年 5月27日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2008～2009
 課題番号：20760139
 研究課題名 (和文) 自己組織化単分子膜を用いた沸騰伝熱促進技術の開発
 研究課題名 (英文) Enhancement of Boiling Heat Transfer by Self-Assembled Monolayers
 研究代表者
 河南 治 (KAWANAMI OSAMU)
 兵庫県立大学 大学院工学研究科 助教
 研究者番号：20382260

研究成果の概要 (和文)：

二酸化チタンナノチューブ表面の水酸基に自己組織化を構築し、任意の液体に対して紫外線を照射せずに超親水性から撥水性まで濡れ角を制御できることが明らかになった。次に、超親水性酸化チタンナノチューブ膜を形成した銅伝熱面においてプール沸騰実験を実施し、限界熱流束が通常銅伝熱面の約1.4倍に増大することを確認した。また、撥水性酸化チタンナノチューブ膜伝熱面では、低過熱度域での伝熱促進効果が顕著に表れた。さらに、超親水性膜、撥水性膜ともに熱伝達率が約1.5倍増大し、本手法によって限界熱流束増大と熱伝達促進を同時に実現できることが明らかとなった。

研究成果の概要 (英文)：

To Enhance boiling heat transfer, control of heating surface wettability is important because it affected bubble generation and detachment from the heating surface. In this study, the wettability of the surface from super-hydrophilic to hydrophobic can control by coating the TiO₂ nanotube (TNTs) with self-assembled monolayers (SAMs) film without UV irradiation. Critical heat flux and heat transfer coefficient of pool boiling employed the surface with TNTs-SAMs film were 1.4 times and 1.5 times larger than those of normal copper surface.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：沸騰伝熱促進、濡れ性制御、自己組織化、酸化チタンナノチューブ

1. 研究開始当初の背景

沸騰・二相流は原子炉の炉心冷却部や発電用水管ボイラ内の支配現象であるのみでなく、宇宙環境での人工衛星等の熱制御など、高発

熱密度系に対応し得る除熱過程で不可避な現象として、その特徴の一つである高効率熱伝達が熱エネルギー伝達および熱輸送機器に適用されてきた。近年、電子機器の大型化や高

出力化、高密度化に伴って、総廃熱量の増大やラジエータ設置位置までの熱輸送距離の増大、ヒートスポットの局所化が問題となり、従来のヒートパイプなどの小容量の受動廃熱方式ではすでに限界に達していることは明白である。その解決策として、すでに单相流体ループが導入されているが、より高効率な二相流体ループの適用が今後の技術開発の進展には不可欠である。すなわち沸騰・二相流体ループでは能動・受動のいずれの方式においても潜熱輸送が主体となり、单相流体ループに比して、コールドプレートの小型化、液体循環量すなわちポンプ駆動力の低減、保有液体質量の低減が見込まれる。しかし一方では、コールドプレートでの液体枯渇によるバーンアウト（ドライアウト）現象が除熱限界を与えることも事実であり、限界熱流束状態を回避するために、様々な工夫が研究されている。例えば、大田らは長い伝熱面を有する狭隘流路への液体供給方法として、副流路から伝熱面側面から液体を供給し、下流部でのバーンアウト防止を実現している。また、阿部らは作動流体に自己潤滑性（表面張力異常）をもつ高級アルコール溶液を適用し、限界熱流束の向上を図っている。

バーンアウト回避とは、ドライパッチ拡大の抑制、つまり、ドライパッチ部分への効果的な液体供給に他ならないが、この問題に対する一つの有効な手段として、伝熱面の濡れ性を改善する方法が挙げられる。すなわち、伝熱面のドライパッチ部分に伝熱面の親水性によって液体を供給するという概念である。このような濡れ性改善による限界熱流束の向上は、特に、微小重力環境のような浮力効果が激減する環境でも伝熱面からの気泡離脱を容易にし、限界熱流束の向上に非常に有効であると考えられる。伝熱面の濡れ性改善策として、1. 酸化チタンコーティングを施したうえで紫外線照射による光触媒効果で伝熱面を超親水化、2. 酸化チタンを含む高分子膜を伝熱面に焼結によってコーティングして親水化、といった方法が既に研究されている。しかし、いずれの方法も、外的要因（紫外線）や耐久性、適用伝熱面（細管内部には適用困難）といった短所がある。

2. 研究の目的

沸騰二相排熱システムでは、効果的な潜熱輸送によって、従来の空冷や液単冷システムの除熱限界を超える $200\text{W}/\text{cm}^2$ 程度の排熱が可能と考えられるが、更なる高性能化のためには、冷媒組成や伝熱面構造、給液構造などの工夫が必須であり、それらに対して、様々なアプローチが取られている。その一つに、伝熱面の濡れ性を向上させる手段がよく知られている。本研究にて、我々は、伝熱面に自己組織化単分子膜（Self-Assembled

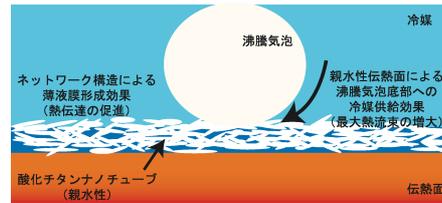


図1 酸化チタンナノチューブのコーティングによる親水性が付与された伝熱面での沸騰伝熱促進の概要

Monolayers, SAMs) を構築することで伝熱表面の濡れ性を制御し、沸騰伝熱促進を実現することを目標に、研究を開始する。具体的には、図1に示すように、表面に自己組織化膜を形成した酸化チタンナノチューブ膜を伝熱面に形成することで伝熱面の濡れ性を制御し、沸騰熱伝達の促進かつ限界熱流束の増大を両立する革新的排熱技術を開発する。開発する技術の適用範囲は、プール沸騰の伝熱促進のみならず、強制対流沸騰やマイクロ流路での濡れ性向上による伝熱促進にも応用することも視野に入れている。つまり、この技術開発により、沸騰気泡の離脱が生じにくい宇宙環境での排熱問題や、濡れ性が大きく影響する、マイクロ流路群の排熱デバイスでの高性能化などに貢献する。

3. 研究の方法

本研究にて用いる二酸化チタンナノチューブは、水熱合成によって生成され、さらに、表面の水酸基を足場に、自己組織化膜によって表面性状を制御した独自開発したものである。この特徴として、紫外線などを照射しなくても図2のように超親水性が確保できる点にある。また、別途実験によって、この表面改質の自己組織化膜は、 250°C 程度の耐熱性と、耐紫外線があることを確認している。すなわち、この自己組織化二酸化チタン親水膜は沸騰伝熱促進技術に有効であると考えられる。さらに、膜自体がナノチューブのネットワーク構造になっており、ナノチューブ間のポーラス部分に液体を保持でき、より大きな伝熱促進が期待できる。この自己組織化二酸化チタン親水膜の伝熱評価は、図3のプール沸騰装置にて行う。

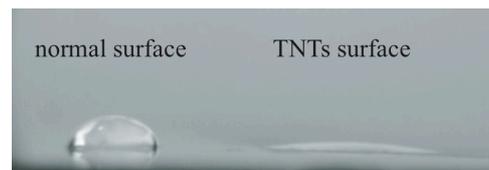


図2 超親水性二酸化チタンナノチューブ膜伝熱面（右）と通常の銅伝熱面（左）の濡れ性。

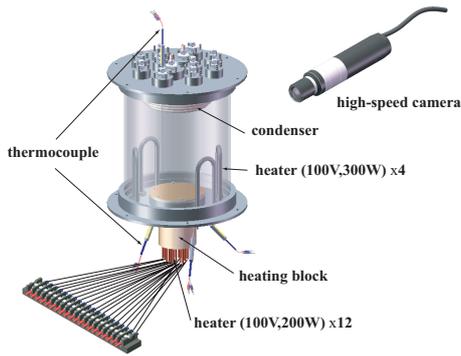


図3 プール沸騰実験装置

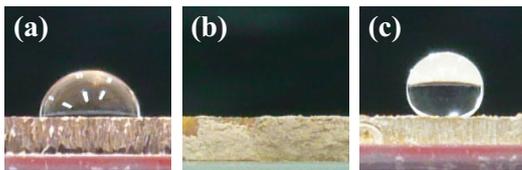


図4 実験で用いた伝熱面：(a)通常銅伝熱面、(b)超親水性酸化チタンナノチューブ成膜面、(c)撥水性酸化チタンナノチューブ成膜面

装置の主要部分は、沸騰容器、加熱ブロック、液温調節用ヒーター、凝縮器で構成されている。沸騰容器は、内径 180mm(肉厚 5mm)、長さ 200mm のガラス製円筒を O-リングによって上下のアルミフランジに固定した構造となっている。図 3 に示す上部フランジには凝縮器・熱電対・圧力計が装着されており、下部フランジには加熱ブロックが装着されている。この下部フランジと加熱ブロックを固定する際、熱の損失を防ぐために熱伝導率 0.25W/mK と極めて小さい PEEK 材を挟み込んだ。また、容器からの液体の漏れを防ぐため、O-リングおよび 6 個のネジで固定した。なお、本実験は大気圧下にておこなった。

また、伝熱面は図 4 に示す平滑面(濡れ角 83.6°)・超親水性酸化チタンナノチューブ成膜面(濡れ角 5° 以下)、撥水性酸化チタンナノチューブ成膜面(濡れ角 136.9°) の 3 通りで実施した。

4. 研究成果

まず、代表的な沸騰曲線を図 5 (超親水性伝熱面と通常銅伝熱面) および図 6 (疎水性伝熱面と通常銅伝熱面) に示す。本研究では、通常銅平滑面のバーンアウト時の熱流束は 0.9MW/m^2 であるが、超親水性伝熱面の場合、最大で成膜していないときの約 1.4 倍の熱流束 1.33MW/m^2 となった。一般に親水性伝熱面では、伝熱面に生成した気泡底部へスムーズに液体の供給が行うというメリットがあり、このため限界熱流束が増大したと考えられ

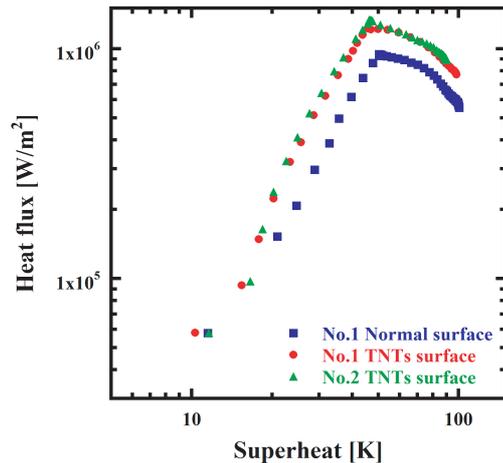


図5 沸騰曲線 (●, ▲: 超親水性伝熱面、■: 通常銅伝熱面)

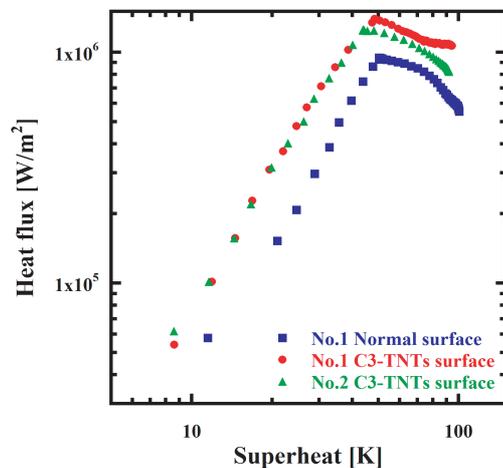


図6 沸騰曲線 (●, ▲: 疎水性伝熱面、■: 通常銅伝熱面)

る。また、沸騰実験後の伝熱面の濡れ性は、超親水性が保持されていた。

次に、撥水性酸化チタンナノチューブを成膜した撥水性伝熱面の場合、限界熱流束は最大 1.39MW/m^2 であり、親水性酸化チタンナノチューブ成膜面と同様、通常銅伝熱面の約 1.4 倍となった。しかし、沸騰実験後の伝熱面の濡れ性は超親水性へと変化していた。この原因としては、以下の 2 点が考えられる。

- ① Kandlikar の報告によると濡れ角が 130° では、 0.2MW/m^2 程度でバーンアウトが起きる。このことから沸騰条件下である一定以上の熱量が加わると、シランカップリング剤の修飾が剥がれてしまう可能性がある。
- ② 表面改質酸化チタンナノチューブの薄膜内部に引き込まれた液体が沸騰実験後も抜けきれずに、実験終了後にも超親水性を示した可能性がある。詳細については現時点では分かっておらず、今後検討を行う。

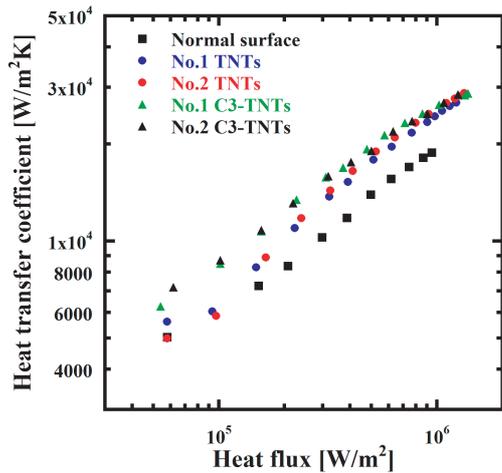


図7 熱伝達率 (●, ●: 疎水性伝熱面、▲, ▲: 疎水性伝熱面、■: 通常銅伝熱面)

次に、熱伝達率の比較を行った結果を図7に示す。一般的に、濡れ性が向上すると、平滑面では活性な気泡核となりうる小さなキャビティを潰してしまうと考えられ、限界熱流束は増大するが、熱伝達の劣化を促すといわれている。しかし、酸化チタンナノチューブを成膜することで、限界熱流束の増大と共に、約1.5倍の熱伝達率の増大を確認した。これは、酸化チタンナノチューブ膜を伝熱面にコーティングしたことにより、伝熱面表面にナノポラス構造が形成され、毛細管力により常に液体が伝熱面に供給された結果、薄液膜蒸発が繰り返されるために沸騰熱伝達が促進されたと考えられる。疎水性酸化チタンナノチューブの成膜では、低過熱度域から高い熱伝達率を維持している。これは、撥水性の特徴である低過熱度域での沸騰開始による熱伝達促進効果の表れである。

最後に、一度成膜を行った伝熱面で繰り返しバーンアウトを生じるまでプール沸騰実験を行い、耐久性の検討を行った。従来の濡れ性制御技術における限界熱流束向上の報告では、5~7回程度が限界であったが、超親水性酸化チタンナノチューブ膜伝熱面で繰り返し行ったところ、図8、9に示すように、超親水性膜が劣化することなく、バーンアウト時の過熱度および限界熱流束、熱伝達率にほとんど変動は見られなかった。また、濡れ性についても超親水性を保持していた。このことから、限界熱流束に相当する熱流束を繰り返し与えても機能的な変動がなく、本技術に高い耐久性があることが示された。

一方、撥水性酸化チタンナノチューブ膜伝熱面では、前述のとおり沸騰実験後の濡れ性は超親水性を示し、2回目以降、超親水性酸化チタンナノチューブ膜伝熱面と同様の傾向と耐久性が確認された。

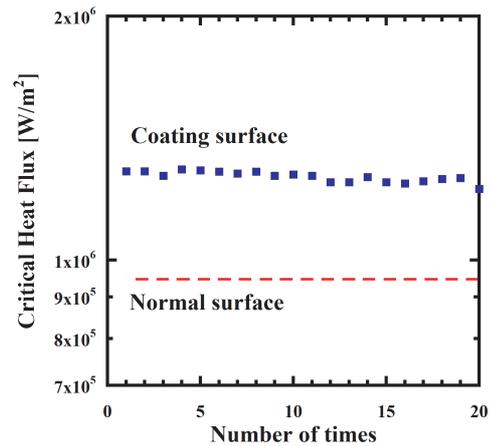


図8 限界熱流束に対する耐久性試験の結果 (横軸はバーンアウト回数)

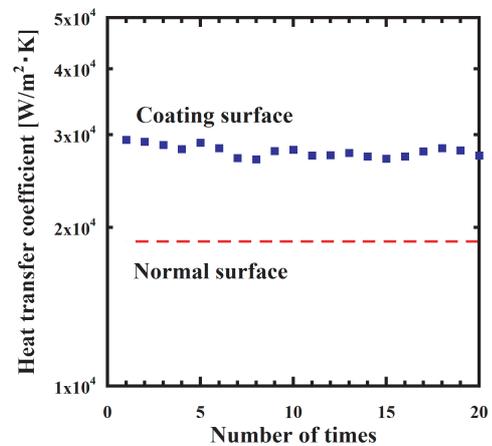


図9 熱伝達率に対する耐久性試験の結果 (横軸はバーンアウト回数)

以上、本研究の成果は以下のように総括できる。

- 未修飾の酸化チタンナノチューブを成膜した超親水性表面では、限界熱流束が平滑面の約1.4倍に増大した。
- 表面改質した酸化チタンナノチューブを成膜した撥水性表面では、低過熱度域での伝熱促進効果が顕著に表れた。また、未修飾のものと同様限界熱流束が約1.4倍に増大した。しかし、沸騰実験後の濡れ性は超親水性を示しており、シランカップリング剤による修飾が剥がれてしまったかどうかについては、今後検討していく。
- 一般的に濡れ性向上による限界熱流束の増大は熱伝達の劣化を促す。しかし、酸化チタンナノチューブの成膜では、熱伝達劣化の回避に成功した。
- 酸化チタンナノチューブ成膜面では、

20 回のバーンアウトに対して機能的な変動はなく、高い耐久性を示した。

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)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① 加藤太郎, 河南 治; 活性酸素を発生しない酸化チタンの開発と特性, *FRAGRANCE JOURNAL*, 査読無し, 36, pp. 42-48 (2008).
- ② 加藤太郎, 河南 治; 紫外線吸収能力に特化した酸化チタンナノチューブの調製, *月刊機能材料 10 月号*, 査読無し, pp. 48-58 (2008).

[学会発表] (計 3 件)

- ① 浜辺 雄太, 河南 治, 本田 逸郎, 川島 陽介; 自己組織化膜による伝熱面の濡れ性制御ー沸騰伝熱促進に向けてー, 日本マイクログラビティ応用学会第24回学術講演会 (JASMAC-24), 26, pp. 394, 2009.
- ② 浜辺雄太, 河南 治, 加藤太郎; 表面改質二酸化チタンナノチューブの生成と新機能性材料としての応用, 化学工学会姫路大会2008講演要旨集, pp. 18 (2008年10月17-18日 姫路).
- ③ O. Kawanami, K. Nishimura, S-C. Huang, I. Honda, Y. Kawashima (2008): Enhancement of Critical Heat Flux on Pool Boiling by TiO₂ Nanotubes Coated Super-hydrophilic Surface. *Proc. The Int. Topical Team Workshop on Two-phase Systems for Ground and Space Applications*, Sept. 2008, 34 (in Brussels, Belgium, Best Poster Awards 受賞).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

河南 治 (KAWANAMI OSAMU)

兵庫県立大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 20382260

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: