

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02085

研究課題名（和文）化学修飾ポラス界面の熱流体物理解明に基づく新しい熱輸送機能発現

研究課題名（英文）New Thermal Transport Functionality Based on Understanding of Heat Fluid Physics at Chemically Modified Porous Interfaces

研究代表者

長野 方星（Nagano, Hosei）

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：10435810

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：高性能な多孔体特性および相界面幾何学形状に基づいて多孔体を製作し、熱輸送デバイスに組み込むことでシステムとしての性能を明らかにした。熱輸送デバイスとしては薄型、小型、大型と異なるシステムに基づく最適条件を設定し、指針に基づくデバイス設計、製作を行った。また、新たな多孔体粒子配向制御方法として磁性ナノ粒子を鋳型とした一方向性多孔体製造方法を提案し、異なる樹脂および製造条件で複数の多孔体試作を行った。その結果、磁場の印加条件、磁性ナノ粒子鎖除去条件により多孔体特性が大きく異なることが明らかとなった。また、熱輸送デバイスとして好ましい特性が得られる多孔体製造条件を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電力を用いることなく熱輸送が可能なループヒートパイプは次世代の熱輸送技術として中毛されている。しかしながら動作原理となる多孔体表面での気液相変化過程は明らかになっておらず性能向上指針も明らかではなかった。本研究は多孔体表面での気液相変化過程の理解に基づく表面改質と幾何学形状最適化により性能向上を図ることに成功した。また、化学的手法による高度に一次元配向した多孔体の製作も試行し、その実現性も検証することができた。

研究成果の概要（英文）：Porous materials with high-performance characteristics and specific geometric shapes were created and incorporated into heat transport devices to assess their system-level performance. Optimal conditions were determined for different types of heat transport devices, and device design and fabrication followed established guidelines. A novel method using magnetic nanoparticles as a mold was proposed to produce directional porous materials, and multiple prototypes were manufactured under various resin and production conditions. The results showed that the characteristics of the porous materials varied significantly based on the applied magnetic field and the removal conditions of magnetic nanoparticle chains. Furthermore, manufacturing conditions were identified that produced porous materials with desirable properties for heat transport devices.

研究分野：熱工学

キーワード：ループヒートパイプ 多孔質 濡れ性 二相流 熱輸送デバイス 磁性ナノ粒子

## 1. 研究開始当初の背景

近年電子機器の高発熱化、高密度実装化に伴い、ベーパーチャンバーやループヒートパイプなど、多孔体内での相変化を用いた徐熱デバイスの研究が活発に行われている。多孔体界面における蒸発素過程は、キャピラリー力、固気液三相界面積、多孔体と固体壁の濡れ性に支配されるため、濡れ性を極限まで高めることでキャピラリー力を増大することができる。しかし、①多孔体内部にまで親水化できる技術が確立されていないこと、②多孔体表面の濡れ性はバルク状態での濡れ性とは大きく異なるものの、マイクロ表面の接触角を直接計測する技術が確立されていないことなど、多孔体界面の蒸発熱伝達性能の理論限界に挑むための基礎技術が未確立であった。

濡れ性改善法としてはプラズマ照射[1]が一般的であるが、長期的かつ細孔内部にまで至る処理は難しく多孔体内に適用できない。また、濡れ性評価方法としてはWilhelmy法や液滴法が一般的であるが、バルク材料に対してのみ有効な手法であり、親水性多孔体に付着したナノスケール液滴の接触角を直接的に計測する手法は確立されていない。さらに、化学的な超親水化方法としては、シリカや自己集合単分子膜(SAM膜)修飾などが考えられるが、多孔体の特性(細孔径、浸透率)に影響を与えることなく多孔体内部に修飾するためにはナノオーダーの膜厚で修飾する必要があり、そのような研究事例は存在しない。また、濃厚ポリマーブラシ(材料表面からポリマー鎖を絨毯のように成長させた高分子薄膜)を施したキャピラリーにはキャピラリー力以上の液上昇効果が見られる報告があるが[2]、その物理現象の根源的理解や、効果を熱輸送機能に応用した例は皆無である。

このように熱流体工学と界面化学の学際領域では未知なる現象や未達成の技術課題が多く残されているため、本領域の基礎学理を深化・発展させることで革新的な技術の創出が期待できる。

[1] Y. Takata et al., *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 25 (2004) 320.

[2] D. Pranantyo et al., *Biomacromolecules*, 16 (2015) 723.

## 2. 研究の目的

多孔体界面における蒸発素過程は、キャピラリー力、固気液三相界面積、多孔体と固体壁の濡れ性に支配されるため、界面熱物質輸送の促進には支配物性の制御と精密計測が不可欠となる。本研究は化学修飾を多孔体に施すことで濡れ性が大きく制御できることに着目し、溶液プロセスによる多孔体の内部まで親水化する手法を構築するとともに、これまで確立されていないナノスケールでの濡れ性・熱伝達性能を評価できる手法を新たに構築する。次に構築した手法を用いて化学修飾キャピラリーの濡れ特性制御メカニズムを実験的に明らかにすることで、化学的濡れ性が蒸発熱伝達に与える影響を明らかにする。さらに、多孔体への浸透圧効果を直接観察し、熱輸送機構への効果を実験的に検証することで、多孔体界面での蒸発熱伝達の理論限界を超える新たな熱輸送メカニズムの創出を目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) 溶液プロセスによる多孔体の親水化手法構築

多孔体の特性(細孔径、浸透率)に影響を及ぼさず、多孔体の内部に至る親水化が可能な手法として、溶液プロセスによる多孔体のナノスケールシリカ修飾を考えた。ステンレスワイヤ積層多孔体のシリカ修飾を行い、その水に対する濡れ性変化を環境制御型走査型電子顕微鏡(ESEM)により確認した。

### (2) 新たな多孔体細孔配向制御手法の提案

指針に基づく熱輸送デバイス設計、製作では、細孔形状の制御された多孔体の獲得が重要となる。マイクロスケールの径の一方向性細孔を有する樹脂多孔体は薄型、小型のキャピラリー力駆動熱輸送デバイスに適していると予想されるが、これを簡易に作製する手法はまだない。本研究では、磁性ナノ粒子(MNP)の一様磁場下での鎖状自己配列に着目し、MNP鎖を鋳型とした、一方向性細孔を有する樹脂多孔体の作製を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 溶液プロセスによる多孔体の親水化手法構築

水に対する濡れ性改善を目的とした、ステンレスワイヤ積層多孔体のナノスケールシリカ修飾を実施した。ステンレス多孔体の細孔特性（細孔径，ガス浸透率）にほとんど影響を及ぼさない，ナノスケールシリカ修飾を達成し，シリカ修飾によりステンレス多孔体の水に対する濡れ性が改善されることを，ESEMを用いた接触角測定から明らかにした [3]。

水接触角の一般的な評価手法は，試料上に水滴を設置し水滴形状を観察する手法である。しかし，親水性の多孔体試料の場合，試料上に水滴を設置しても，水滴が多孔体内部に瞬間に吸収されてしまうため，この手法は適用できない（図1）。そこで本研究では，ESEMを用い，多孔体試料の細孔よりも微小な，マイクロ水滴を試料上に形成および観察し，ステンレス多孔体の水接触角直接評価を行った（図2）。そして，ナノスケールシリカ修飾により，水接触角が $87^\circ$ から $54^\circ$ に減少することを確認した。

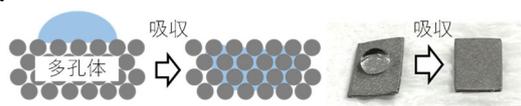


図1 親水性多孔体上に水滴を置いたときの様子

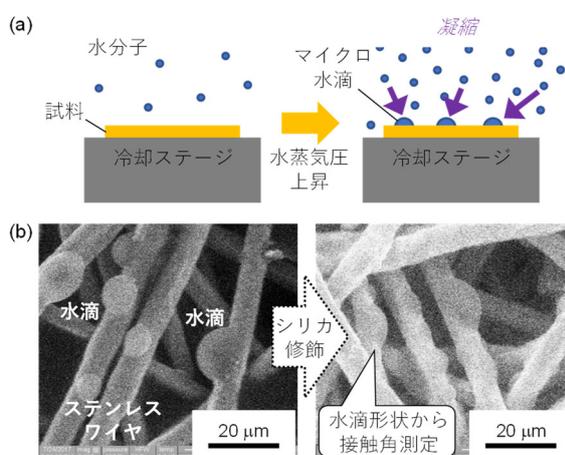


図2 (a) ESEM内での水滴形成機構の概略図および (b) ステンレス多孔体上水滴のESEM観察画像

##### (2) 新たな多孔体細孔配向制御手法の提案

MNP の一様磁場中における鎖状自己配列を利用し，MNP 鎖を鋳型とした，マイクロスケールの径の一方方向性細孔を有するUV 硬化樹脂多孔体を作製した。そしてその細孔形状が，UV 照射角度で制御可能であることを明らかにした [4]。

UV 硬化樹脂をマトリクス材料として用いた場合の，MNP 鎖を鋳型とした一方方向性多孔体作製手法の概略図を図 3(a) に示す。作製手法の詳細は次の通りである。まず，MNP 粉末を樹脂溶液に分散させ，その分散溶液を2つのネオジム磁石間に設置し，一様磁場に曝す。磁石間に設置するとMNP は瞬時に鎖状に配列する。この状態のまま，溶液の斜め上方向からUV を照射し，樹脂を硬化させる。その後，未硬化樹脂部分を除去するために洗浄を行い，MNP 鎖含有多孔体を得る。続いて，塩酸を用いてMNP を除去し，一方方向性多孔体を得る。樹脂材料としてUV 硬化樹脂を用いた場合は，MNP 鎖本体だけでなく，MNP のUV 吸収により形成される陰部分も細孔の鋳型として機能する。

磁場印加およびMNP 添加の効果を評価するため，図 3(a) の手順で作製した試料 No. 1 だけでなく，磁場印加無し（試料 No. 2），MNP 添加無し（試料 No. 3）の試料をそれぞれ作製し，比較した。各試料の上面，断面SEM 画像を図 4 に示す。MNP を添加している試料 No. 1 と No. 2 では，MNP 凝集体のUV 吸収により，MNP 除去前から表面に $15\ \mu\text{m}$ 程度の細孔が形成されていることがわかる。一方で，MNP 添加無しの試料 No. 3 では，表面の細孔は見られない。また，断面画像から，磁場印加をしていない試料 No. 2 の細孔は表面にのみ存在しており，磁場方向に沿った細孔が形成されているのは，MNP 鎖が形成される磁場印加有りの試料 No. 1 のみであることがわかる。このことから，MNP 鎖のUV 吸収により形成される陰部分を鋳型として，一方方向性細孔が形成されたと確認できた。この多孔質構造はMNP 除去後も保持されており，MNP 除去後に細孔の平均長径が増加することも確認できた。これは，細孔の片側，つまりUV 光源側に偏って残存していたMNP が除去されたことに起因する。したがって，MNP 鎖本体の鋳型機能も確認できた。

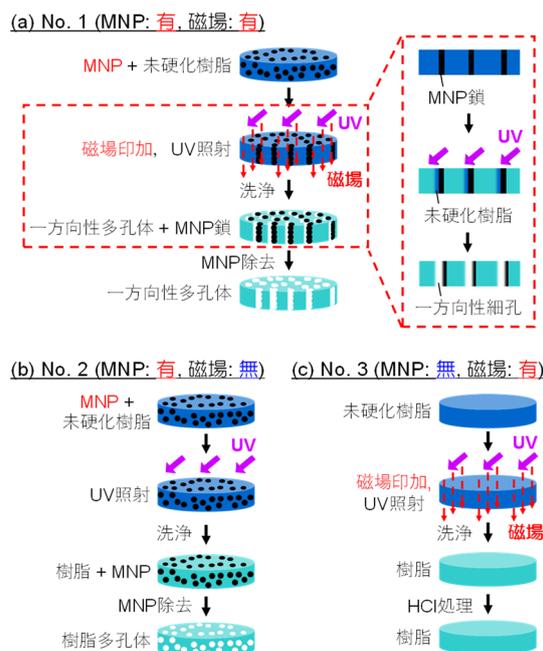


図3 試料作製手順概略図：(a) MNP鎖を鋳型とした一方方向性多孔体作製，(b) 磁場印加無し試料作製，(c) MNP添加無し試料作製

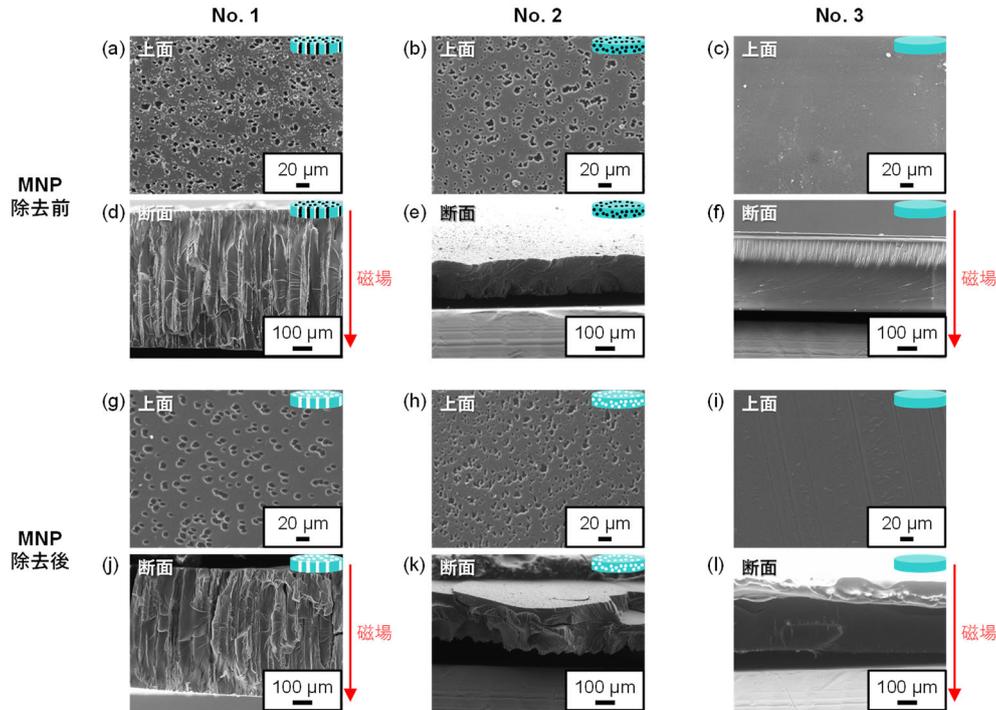


図4 試料のMNP除去前後の上面および断面SEM画像：(a,d,g,j) 試料No. 1, (b,e,h,k) 試料No. 2, (c,f,i,l) 試料No. 3

図5は、試料No.1のMNP除去前後、および試料No.2のMNP除去後の試料上に水滴を置いたときの様子を示している。吸水すると赤色を呈する紙の上に試料を設置し、各試料の上に10  $\mu$ Lの水を滴下し、60秒後の紙の濡れを確認した。その結果、試料No.1のMNP除去前後双方で紙の濡れを確認できた。このことから、試料No.1で形成されている一方向性細孔は貫通孔を含んでいることが確認できた。一方で、試料No.2では、水の通り抜けが確認できなかったことから、試料No.2の条件では貫通孔は形成されないことが確認できた。つまり、試料No.1の貫通孔はMNP鎖を鋳型としたものであるとわかる。したがって、試料No.1の条件で、MNP鎖を鋳型とした、熱輸送デバイスに应用可能な一方向性多孔体が得られることがわかった。

提案手法において一方向性細孔は、MNP鎖のUV吸収により形成される陰部分とMNP鎖本体という、2つの鋳型効果を利用し形成される。MNP鎖本体だけでなく、MNP鎖のUV吸収により形成される陰部分が細孔の鋳型として機能することから、樹脂硬化のために照射するUVの照射角度により、得られる細孔形状を制御可能と期待できる。そして実際に、UV照射角度を変更した実験により、UV照射角度増加に伴い試料表面で観察される細孔の楕円率が増加することがわかっており、UV照射角度による細孔形状制御の可能性が確認できている(図6)。

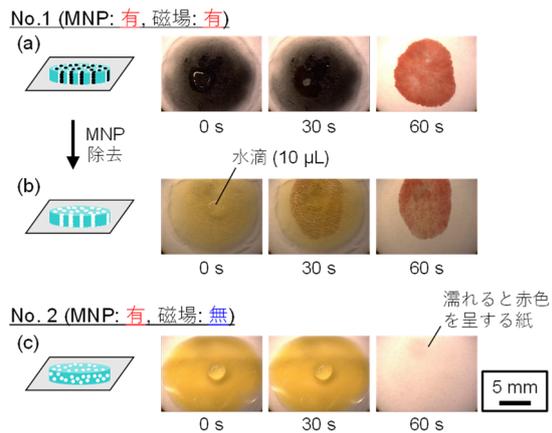


図5 試料上に水滴を置いたときの様子：(a) 試料No.1のMNP除去前、(b) 試料No.1のMNP除去後、(c) 試料No.2のMNP除去後、60秒後に試料を退かし、紙の濡れを確認。

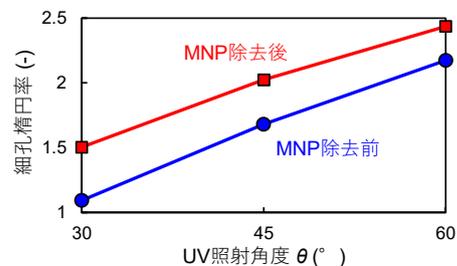


図6 試料No.1の作製条件における、UV照射角度と上面SEM観察画像から算出した細孔楕円率(細孔長径/短径)の関係

[3] C. Oka et al., Journal of Coatings Technology and Research, 18 (2021) 601.

[4] A. Kobayashi et al., IEEE Magnetics Letters, in press, 10.1109/LMAG.2023.3268851.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kimihide Odagiri, Chiemi Oka, Chieko Kondoh, and Hosei Nagano	4. 巻 140
2. 論文標題 Thermo-fluid dynamic analysis in a micro-textured evaporator based on microscale infrared/visible observations for loop heat pipes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103623
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103623	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 -
1. 著者名 Ai Ueno, S. Tomita, and H. Nagano	4. 巻 143
2. 論文標題 Experimental Investigation on A Thin Loop Heat Pipe with New Evaporator Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Heat Transfer	6. 最初と最後の頁 103623
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/1.4050405	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 -
1. 著者名 Nguyen Phan, Yuki Saito, Naoki Katayama, and Hosei Nagano	4. 巻 172
2. 論文標題 Operating characteristics of a dual flat-evaporator loop heat pipe for single heat source cooling in any orientation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 121146
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2021.121146	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 該当する
1. 著者名 Noriyuki Watanabe, Takuji Mizutani, Hosei Nagano	4. 巻 236
2. 論文標題 High-Performance Energy-Saving Miniature Loop Heat Pipe for Cooling Compact Power Semiconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Energy Conversion and Management	6. 最初と最後の頁 114081
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.enconman.2021.114081	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 -

1. 著者名 富田樹, 渡邊紀志, 上野藍, 長野方星	4. 巻 30
2. 論文標題 10kW級大容量ループヒートパイプの研究	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Thermal Science & Engineering	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Kimihide Odagiri, Hosei Nagano, Hiroyuki Ogawa	4. 巻 158
2. 論文標題 Experimental investigation on thermal characteristics of a capillary pumped loop with different reservoir locations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 119964
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119964	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9件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 中津川克久, 小田切公秀, 上野藍, 長野方星
2. 発表標題 高熱流束 LHP 蒸発器開発に向けた多孔体内気液二相熱流動現象の観察
3. 学会等名 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中津川克久, 小田切公秀, 上野藍, 長野方星
2. 発表標題 マイクロスケール赤外・可視観察に基づく多孔体内熱流動現象の理解 (三相界線増加と濡れ性改善が蒸発熱伝達に及ぼす影響)
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 Y. Nakatsugawa, K. Odagiri, A. Ueno, H. Nagano
2. 発表標題 CHARACTERISTICS OF THERMO-FLUID BEHAVIOR IN A MICROGROOVED EVAPORATOR OF LOOP HEAT PIPE BASED ON MICROSCALE INFRARED / VISIBLE OBSERVATIONS AND MODELING
3. 学会等名 ATE-HEFAT 2021 (THE 15th INTERNATIONAL CONFERENCE ON HEAT TRANSFER, FLUID MECHANICS AND THERMODYNAMICS (HEFAT) AND EDITORIAL BOARD OF APPLIED THERMAL ENGINEERING (ATE)) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Nakatsugawa, K. Odagiri, H. Nagano
2. 発表標題 Thermo-fluid behavior in a micro-grooved evaporator of LHP based on microscale infrared / visible observations
3. 学会等名 Joint 20th International Heat Pipe Conference and 14th International Heat Pipe Symposium (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Nakatsugawa, K. Odagiri, A. Ueno, H. Nagano
2. 発表標題 Experimental and theoretical study of liquid-vapor interface behavior on a porous structure for enhancing performance of Loop heat pipe
3. 学会等名 2nd ACTS - Asian Conference on Thermal Sciences (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsuki Kobayashi, Junpei Sakurai, Seiichi Hata, Chiemi Oka
2. 発表標題 Production of unidirectional porous materials utilizing self-assembly of magnetic nanoparticles
3. 学会等名 The Eighth International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林 京貴, 櫻井 淳平, 秦 誠一, 岡 智絵美
2. 発表標題 磁性ナノ粒子の自己組織化を利用した一方向性多孔体作製
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 Y. Nakatsugawa, K. Odagiri, H. Nagano
2. 発表標題 THERMO-FLUID BEHAVIOR IN A MICROGROOVED EVAPORATOR OF LHP BASED ON MICROSCALE INFRARED / VISIBLE OBSERVATIONS
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Transport Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中津川 克久, 小田切 公秀, 長野 方星
2. 発表標題 マイクロスケール赤外・可視観察に基づく多孔体内熱流動現象の理解 (蒸気溝幅と濡れ性が蒸発熱伝達に及ぼす影響)
3. 学会等名 日本混相流学会 混相流シンポジウム
4. 発表年 2020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	岡 智絵美  (Oka Chiemi)  (70823285)	名古屋大学・工学研究科・助教    (13901)	

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			
ベトナム	Thuyloi University			