

令和 6 年 6 月 11 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02088

研究課題名(和文)階層型表面科学的手法に基づく沸騰開始下限界への挑戦

研究課題名(英文)A challenge to lower limit of boiling incipience by hierarchical surface science

研究代表者

高田 保之(Yasuyuki, Takata)

九州大学・カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所・特命教授

研究者番号：70171444

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)：沸騰開始過熱度(ONB)低減を目的に、アルミニウム表面にアルマイト処理を施して、表面に10～20nmサイズの開孔を有するリエントラントキャビティ構造を作製することに成功した。この伝熱面をエタノールやHFE7100に適用することで沸騰開始過熱度の大幅な低減および核沸騰領域での伝熱促進を達成することができた。また、AFMによる気液界面の挙動観察および分子動力学シミュレーションを実施し、沸騰開始のメカニズムを理解する上で重要な知見を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

沸騰開始過熱度(ONB)の低減下は、電子機器の冷却に非常に重要である。水を冷却材に用いる場合は濡れ性の制御により可能であったが、水以外の流体にこの手法を用いることはできなかった。本研究では、アルミニウム表面に微細なリエントラントキャビティ構造を設けることでONBの低減下に成功した。濡れの制御ではなく表面微細構造の制御により達成できたことと水以外の流体への展開が可能となったことは実用上非常に重要である。

研究成果の概要(英文)：We succeeded in creating a reentrant cavity structure with 10-20 nm-sized openings on the surface of aluminum by performing anodizing treatment, aiming to reduce the onset of nucleate boiling (ONB) superheat. By applying this heat transfer surface to ethanol and HFE7100, we achieved a significant reduction in ONB superheat and enhancement of heat transfer in the nucleate boiling region. Furthermore, observations of the gas-liquid interface behavior using AFM and molecular dynamics simulations provided important insights for understanding the mechanism of boiling onset.

研究分野：熱工学

キーワード：沸騰開始点 濡れ性 表面構造 分子動力学

1. 研究開始当初の背景

電子機器の高発熱密度化に伴って、ヒートパイプ、サーモサイフォン、ペーパーチャンバーなど気液相変化を利用した冷却が行われているが、その際の大きな課題の一つが安定的な沸騰動作である。特に、起動時には沸騰開始(Onset of Nucleate Boiling, ONB)までに加熱面の温度が沸点を大きく超過するオーバーシュートが問題となる。沸点を 15-20K 上回る温度まで沸騰開始に至らない場合が多く、電子機器の上限温度(85℃)を超過する恐れがあり、これを解決する手段が求められている。起動時だけでなく負荷変動するような場合も同様の問題が発生する。

これを解決するために、伝熱面表面の濡れ性を制御する方法が注目を浴びてきたが、沸騰性能の改善効果は、これまでは水だけに限定されてきた。一方、近年軽量化のメリットからアルミニウム伝熱面に対するニーズが高まっているが、アルミニウムと水の組み合わせは腐食が発生するので相性が悪い。そこで、他の流体、例えば冷媒などの有機液体に本手法が拡張できると応用範囲は大いに広がる。問題は、これらの流体の表面張力が小さいため、濡れ性制御の効果が水ほどには期待できないという点である。

これを解決するには沸騰開始に対するナノ・マイクロスケールにおける理解に基づいた表面微細構造と化学的な表面修飾の組み合わせによる方法の開発が必要と思われるが、現在はそのような微細構造表面の設計指針すらない状態である。本研究では、分子動力学(MD)計算およびナノ空間での気泡成長観察から得られる知見を基に、多様な流体においても ONB 過熱度を低下させることが可能な伝熱面材料の設計手法を提案するものである。

2. 研究の目的

濡れ性と表面微細構造の組み合わせが沸騰開始過熱度に与える影響について主に実験により解明し、水以外の流体(エタノール, HFE7100 などの冷媒)でも適用可能な低過熱度による安定的な沸騰を起動できる伝熱面を開発を行う。また、沸騰開始のメカニズムを明らかにし、伝熱面の構造の最適化を支援する目的で分子動力学シミュレーションを実施しマルチスケールでの探求を行う。最終的に研究項目を、(1)新規表面開発と沸騰伝熱実験、(2)ナノ空間での気液界面および相変化の実験的研究、(3) 発泡現象の分子シミュレーション、の3つのサブテーマに分けて実施した。なお、本研究の主要部分は(1)であり、(2)(3)は相変化メカニズムの理解のための補助的な内容である。

3. 研究の方法

前述の(1)~(3)に対応付けて記述する。

(1) 新規表面開発と沸騰伝熱実験

沸騰試験用流体として、主にエタノール, HFE7100 を使用した。また、伝熱面表面のコーティング剤として Halloysite Nanotube(以下 HNT と省略)コーティングを使用した。アルミの伝熱面には、(株)UACJ の協力を得て、アルマイト処理によりナノレベルの細孔を作成した。その際、10~20nm の細孔は硫酸アルマイト処理(SA)、~200nm の細孔はリン酸アルマイト処理(PA)により作成した。この2つのアルマイト処理をうまく組み合わせることで、図1に示すような表面に10~20nm、内部に200nm サイズの空洞を有するリエントラントキャビティ構造を作製した。実験に用いた伝熱面表面とリエントラントキャビティ構造の写真を図2に示す。これらの伝熱面を用いて沸騰試験を行った。

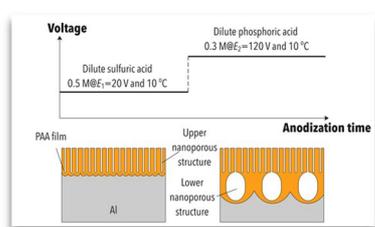


図1 リエントラントキャビティを作成する方法

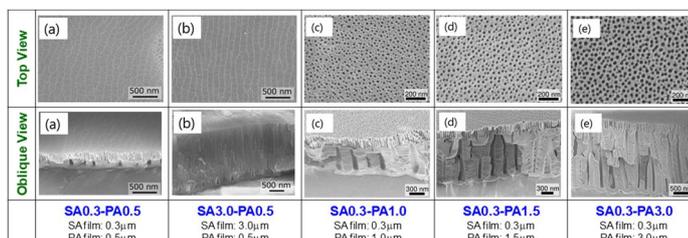


図2 硫酸アルマイト処理およびリン酸アルマイト処理の組み合わせによるリエントラントキャビティ

(2) ナノ空間での気液界面および相変化の実験的研究

AFM や TEM を駆使して、微小領域における気液界面の挙動を観察し、表面濡れ性が接触線ピンニングに及ぼす影響を調べる。

(3) 発泡現象の分子シミュレーション

エタノールに対して、エタノール、円筒形の撥液性ナノロッド および 銅を想定した基板を

4.7 × 4.7 × 17.4 nm³ の計算領域として分子数 1000 個，固体壁の原子数 1700 個，ナノロッドの原子数 700 個で計算を実施した．時間積分法には RESPA 法を用い，ペアポテンシャルおよびクーロン相互作用に対する時間刻みは 2.0 fs，その他については 0.2 fs とした．使用ソフトウェアは LAMPS である．

4. 研究成果

(1) 新規表面開発と沸騰伝熱実験

図 2 で示した伝熱面に対する沸騰試験の結果を図 3 に示す．左側(a)は，1 回目の試験結果，右側(b)は 1 回目の終了後，24 時間以上放置して再起動を行った場合の結果である．1 回目はキャビティ内に空気がトラップされている可能性が否定できないが，2 回目は徹底した凝縮条件であるので，キャビティ内に気体が残っているとすれば，それはエタノール蒸気であるとの認識である．いずれの表面も沸騰特性は Rohsenow の式の値よりも良好で，沸騰領域では大幅な伝熱促進結果が得られている．沸騰開始過熱度について，表 1 にまとめた．沸騰開始特性が良好なのは，SA0.3-PA1.0 および SA0.3-PA3.0 であり，2 回目の再起動時でも沸騰開始過熱度は 1 回目とほぼ同等である．この実験結果から，アルマイト処理によるリエントラントキャビティ構造の伝熱面により沸騰開始過熱度を低下させることができることが明らかとなった．

図には示していないが，エタノールだけでなく，HFE7100 においても同様の効果が確認された．すなわち，リン酸アルマイトおよび硫酸アルマイトを組み合わせた処理により作製されたリエントラントキャビティ構造は，沸騰開始過熱度低減に大いに効果があることが明らかとなった．

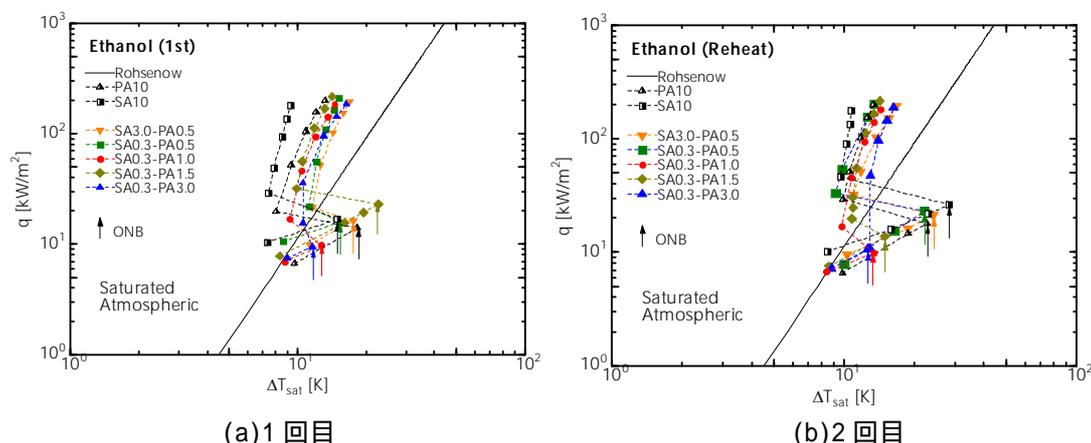


図 3 エタノールの沸騰特性 (リエントラントキャビティ面)

表 1 沸騰開始過熱度(1回目および2回目)

Sample	$\Delta T_{\text{sat, ONB}}$ [K] (First)	$\Delta T_{\text{sat, ONB}}$ [K] (Reheat)
SA3.0-PA0.5	17.6	24.3
SA0.3-PA0.5	15.3	22.2
SA0.3-PA1.0	11.6	13.4
SA0.3-PA1.5	22.6	15.0
SA0.3-PA3.0	12.7	12.7
SA10	15.0	28.2
PA10	18.3	22.7

(2) ナノ空間での気液界面および相変化の実験的研究

図 4 は AFM で計測された HOPG と SiO₂ 基板上的のナノ液滴の底面径と接触角の関係である．実線はマクロ液滴の平衡接触角を示す．三相接触線近傍を調べたところ，厚さが数 10 nm 以下の液膜では固体表面のサブナノオーダーの凹凸がピンギングを有意に引き起こすことがわかった．TEM 観察の結果も合わせて考察した結果，固液界面の種々の機微が相変化の未解明な物理機構に帰着していると結論付けた．

(3) 発泡現象の分子シミュレーション

図 5 に，各条件における沸騰開始までの待ち時間を示す．この待ち時間が短いほど，沸騰が生じやすい(より厳密には気泡核の生成速度が高い)ことになる．ナノロッド無しの場合には，接触角が小さくなるほど，沸騰開始までの待ち時間は短くなっていることがわかる．接触角が小さい場合には液体と基板間の分子間相互作用が強いために，壁面からの熱伝導性がよくなるためと

考えらる。一方 実験においては、接触角が大きいほど発泡しやすくなることがよく知られておりこの点については MD と実験の間に大きな差異がある。

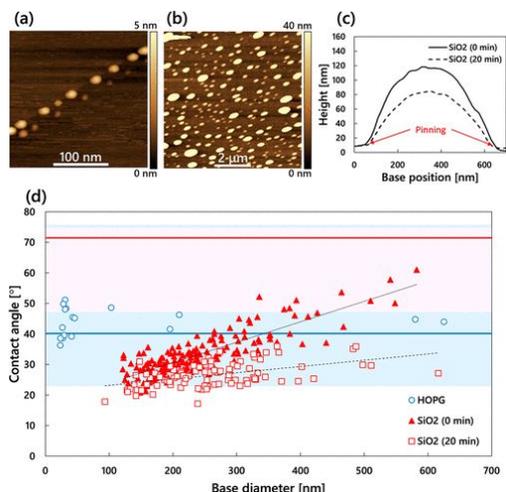


図4 ナノ液滴の底面径と接触角の関係

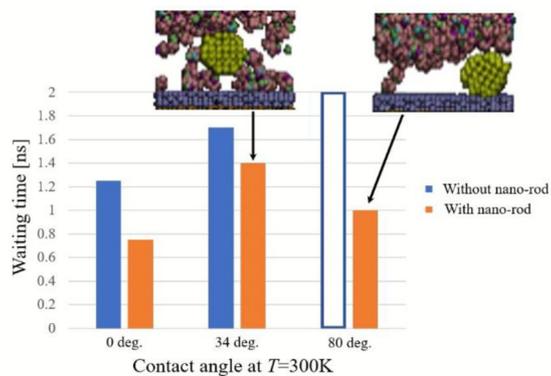


図5 沸騰開始までの待機時間の比較

本研究では、濡れ性と表面微細構造の組み合わせにより、沸騰起動特性を改善させる手法の開発を行った。また、AFM や TEM を使ってナノ・マイクロスケールでの現象把握し、かつ MD シミュレーションにより濡れ性の影響のメカニズムを解明し、表面開発に有益な情報を得ようと試みた。実験的側面からは、沸騰開始過熱度低減を可能にするアルマイト処理によるリエントラントキャビティ構造伝熱面の開発に成功し、エタノール、HFE7100 での効果を確認できた。AFM 観察や MD シミュレーション結果との整合性の点では課題が残っており、今後さらなる検討が必要である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Shen Biao, Mine Tomosuke, Iwata Naoki, Hidaka Sumitomo, Takahashi Koji, Takata Yasuyuki	4. 巻 113
2. 論文標題 Deterioration of boiling heat transfer on biphilic surfaces under very low pressures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Experimental Thermal and Fluid Science	6. 最初と最後の頁 110026 ~ 110026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.expthermflusci.2019.110026	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 Teshima Hideaki, Nakamura Naoto, Li Qin-Yi, Takata Yasuyuki, Takahashi Koji	4. 巻 10
2. 論文標題 Zigzag gas phases on holey adsorbed layers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 44854 ~ 44859
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0RA08861G	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 Shen Biao, Hamazaki Takeshi, Kamiya Kohei, Hidaka Sumitomo, Takahashi Koji, Takata Yasuyuki, Nunomura Junji, Fukatsu Akihiro, Betsuki Yoichiro	4. 巻 142
2. 論文標題 Persistent reduction of boiling incipience of ethanol on biphilic porous textured surfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103739 ~ 103739
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103739	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8件（うち招待講演 2件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 津田 伸一, Galmandakh Sambalkhudev, 高橋 竜二, 渡邊 聡
2. 発表標題 撥液性のナノロッドがエタノールの沸騰に及ぼす影響の分子動力学解析
3. 学会等名 日本機械学会2022年度年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koji Takahashi
2. 発表標題 Nanomaterials for phase change heat transfer
3. 学会等名 13th Asian Thermophysical Properties Conference (ATPC2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋厚史
2. 発表標題 固液界面の顕微観察の現状と課題
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 シェン ビャオ, 岩田 直樹, 日高 澄具, 高橋 厚史, 高田 保之
2. 発表標題 撥水キャビティ-伝熱表面上の減圧沸騰
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 黒谷昇平, 日高澄具, 森昌司, 高田保之, Shen Biao, 中島大希, 戸次洋一郎
2. 発表標題 陽極酸化によるリエントラントキャビティ構造の伝熱面開発と沸騰特性
3. 学会等名 熱工学コンファレンス2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shen Biao, 黒谷昇平, 日高澄具, 森昌司, 高田保之, 中島大希, 戸次洋一郎
2. 発表標題 二層多孔質表面におけるエタノールの核沸騰開始の安定化
3. 学会等名 第56回空気調和・冷凍連合講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 廣川颯汰, 手嶋秀彰, Pablo Solis Fernandez, 吾郷弘樹, 李秦宜, 高橋厚史
2. 発表標題 透過型電子顕微鏡を用いた三相界線ピンギングのナノスケール観察
3. 学会等名 熱工学コンファレンス2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 正覚 雄善, Sarthak Nag, 塘 陽子, 李 秦宜, 生田 竜也, 河野 正道, 高橋 厚史
2. 発表標題 TEMを用いたナノバブルの温度応答に関する実験的研究
3. 学会等名 化学とマイクロ・ナノシステム学会
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	津田 伸一 (Tsuda Shin-ichi) (00466244)	九州大学・工学研究院・准教授 (17102)	

6. 研究組織（つづき）

	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	高橋 厚史 (Takahashi Koji) (10243924)	九州大学・工学研究院・教授 (17102)	
研究分担者	S h e n B i a o (Shen Biao) (80730811)	筑波大学・システム情報系・助教 (12102)	

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