

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110
研究種目：若手研究（B）
研究期間：2011～2012
課題番号：23760196
研究課題名（和文） ナノ・マイクロ構造伝熱面による SiC セラミックスの伝熱促進技術の開発
研究課題名（英文） Development of Heat Transfer Enhancement Technology by Nano- and Micro-structured Surface on SiC Ceramics
研究代表者 野口 弘喜（NOGUCHI HIROKI） 独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力水素・熱利用研究センター・研究員 研究者番号：00414532

研究成果の概要（和文）：200字程度

ナノ・マイクロ構造伝熱面による炭化ケイ素（SiC）製熱交換器の伝熱促進技術の開発を目的として、SiC 表面分解法により生成したカーボンナノチューブ（CNT）によるナノ・マイクロ構造伝熱面と多孔体 SiC を伝熱面に接合したナノ・マイクロ構造伝熱面を試作し、それらの伝熱促進効果を調査した。濡れ性を向上させた CNT によるナノ・マイクロ構造伝熱面のみ伝熱促進効果が確認され、ナノ・マイクロ構造伝熱面による伝熱促進には表面の濡れ性が関係していることを示した。

研究成果の概要（英文）：

With the aim of enhancing heat transfer in the SiC heat exchanger, a nano- and micro-structured surfaces made of carbon nanotubes (CNTs) by surface decomposition of SiC and bonded with a porous SiC plate were produced on SiC substrates. The effect of heat transfer enhancement by these nano- and micro-structured surfaces were examined by a convective heat transfer test using water. The nano- and micro-structured surface on the CVD-SiC with hydrophilicity was the only surface that showed any heat transfer enhancement. The surface wettability was related to heat transfer enhancement of the nano- and micro-structured surface.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,400,000	720,000	3,120,000

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：マイクロ・ナノスケール伝熱・伝熱促進・炭化ケイ素

1. 研究開始当初の背景

金属材料が使用できない高温かつ腐食性の環境における熱回収技術において、ファインセラミックスを応用した熱交換器がその用途を拡大している。例えば、将来の水素エネルギー社会の実現に向けた大規模水素製造技術の一つである熱化学法 IS プロセスで

は、高温ガス炉から得られる 900℃近い高温の He ガスを熱源として、硫酸を沸騰蒸発させる高腐食環境で用いる耐食熱交換器の開発研究が行われている。このような環境で耐食性を有する材料は炭化ケイ素（SiC）等のファインセラミックスに限られるが、一般的な SiC セラミックス材料の焼結技術では、熱

交換器の大型化は開発コストや製品信頼性の観点から大きな障害となる。小型の熱交換器により高効率に熱を回収するためには、伝熱促進機構を施す必要があるが、従来の突起加工等による伝熱促進技術では、一般的に流動抵抗が増加する欠点がある。

近年、ナノ・マイクロサイズの微小な凹凸を有する多孔体を伝熱面に施すことで流動抵抗を増加させずに伝熱促進が可能な革新的な伝熱促進手法（ナノ・マイクロ構造伝熱面）が報告されている。従来のナノ・マイクロ構造伝熱面の研究では、ナノ粒子を酸やアルカリを用いて付着させる化学的エッチング法や He イオンビームを用いた物理的エッチング法が採用され、部材としては、銅板やステンレス鋼が用いられており、セラミックス材料への応用例はない。これらのエッチング技術をセラミックス材料へ適用した場合、高温環境において母材と多孔体の熱膨張差による割れ、剥離および微細構造の劣化が生じる。

2. 研究の目的

本研究では、SiC セラミックスに適用できるナノ・マイクロ構造伝熱面による伝熱促進技術の開発に向けて、高温環境における熱膨張差による割れや剥離が抑制できる新たなナノ・マイクロ構造伝熱面の製作方法として、①SiC 表面にカーボンナノチューブ(CNT)を形成できる SiC 表面分解法を用いた方法と② SiC の多孔体と緻密体を接合した複合材を用いた方法を検討する。これらのナノ・マイクロ構造伝熱面の伝熱特性を調査する。

3. 研究の方法

本研究では、(1)ナノ・マイクロ構造伝熱面を有する伝熱試験片の試作・表面分析、(2)高温曝露試験、(3)対流熱伝達試験による伝熱促進効果の評価を実施した。

(1) ナノ・マイクロ構造伝熱面を有する伝熱試験片の試作・表面分析

① SiC 表面分解法による伝熱試験片の試作
SiC 表面分解法とは、SiC を真空中で熱処理することにより、表面の Si 原子のみ選択的に除去され、残された C 原子が CNT を形成する手法である。形成された CNT はそれぞれ独立して形成されるため、熱膨張による割れ等は発生しない。SiC 表面分解法により生成される CNT の形態は母材の結晶方位に依存されるため、結晶方位の異なる 2 種類の SiC 母材を使用した。一つ目は熱交換器等の材料に使用される常圧焼結 SiC であり、ランダムな結晶方位を持ち、二つ目は CVD 法により製作した SiC であり、規則的な結晶方位を持っている。また、試作した CNT によるナノ・マイクロ構造伝熱面は、高い撥水性を

示した。そこで、表面の濡れ性の影響を評価するため、CVD 法により製作した SiC について、CNT 生成処理後に親水処理を施した伝熱試験片を試作した。試作した試験片は、電子顕微鏡（日立ハイテック製 SU-8000）を用いて表面観察を行った。

② SiC 多孔体を接合した伝熱試験片の試作

SiC の多孔体と緻密体を接合した伝熱試験片を試作した。本試験片は、接合材も含めすべて SiC であるため、多孔体、緻密体の熱膨張率はほぼ同じであり、高い耐食性、耐熱性が期待できる。試作した試験片は、光学顕微鏡による表面観察を行った。

(2) 高温曝露試験

上記 2 種類のナノ・マイクロ構造伝熱面に対して、雰囲気置換型加熱炉を用いて高温曝露試験を実施した。昇温速度 200°C/h で昇温し、最高到達温度 400°C、600°C、800°C で約 30 分保持した。曝露試験後の試験片を観察することで、その健全性を評価した。

(3) 対流熱伝達試験

上記ナノ・マイクロ構造伝熱面に対して、水を冷媒とした平板体系の対流熱伝達試験を行い、未処理の SiC 伝熱面との比較によりナノ・マイクロ構造伝熱面の伝熱促進効果を評価した。使用した試験装置の概要を図 1 に示す。本装置は試験容器(φ 100 mm×100 mmH)、加熱ヒータ、上部伝熱板、下部伝熱板、ペルチェ冷却ユニット、循環ポンプ、白金測温抵抗体およびデータ収録装置から構成される。試作した伝熱試験片を上部伝熱板に設置する。下部伝熱板は、伝熱促進効果を評価するための基準として使用するため、すべての試験で同じもの (SUS316) を使用した。各伝熱板は、接触熱抵抗の影響を抑えるために熱伝導性オイルコンパウンドを用いて固定した。試験容器には純水を封入し、循環ポンプにより 2 L/min の一定流量で循環させた。

本試験では、加熱ヒータを 50°C±0.1°C で制御し、ペルチェ冷却ユニットを各母材によって異なる設定温度で制御する。ヒータで発生した熱は上部伝熱板から試験容器内の純水に對流熱伝達する。純水は常時一定流量で循環されるため、一定温度に保たれる。純水から下部伝熱板に再び對流熱伝達し、ペルチェ冷却ユニットにより冷却される。試験容器内の純水は一定温度に保たれるため、容器内で熱損失することなく、上部伝熱板から下部伝熱板に熱が伝えられる。つまり、熱平衡状態において、上部伝熱板の熱伝達と下部伝熱板の熱伝達の比（低温面での温度差/高温面での温度差）が上下伝熱板の伝熱特性を示す指標 H となる。

$$H = \frac{\alpha_{top}}{\alpha_{bottom}} = \frac{T_L - T_2}{T_2 - T_L}$$

ここで、 T_L ：液温 $T_3 \sim T_7$ の平均値[°C]、 T_2 ：上部伝熱板温度[°C]、 T_8 ：下部伝熱板温度[°C]である。ここで、循環水流量を一定（2 L/min）にして、上部伝熱板のみを交換することで、下部伝熱板の伝熱特性は変わらないので、下部伝熱板をレファレンスとした上部伝熱板の伝熱特性の評価が可能である。ナノ・マイクロ構造伝熱面による伝熱促進効果がある場合には、上下伝熱板の伝熱特性を示す指標HがSiC伝熱面に比べて増加する。

試験は、まず未処理の伝熱試験片を上部伝熱板に設置し、対流熱伝達試験を実施した。ヒータ温度を $50^\circ\text{C} \pm 0.1^\circ\text{C}$ で制御し、ペルチェ冷却ユニットは使用しない。このときのペルチェ冷却ユニットの温度をペルチェ冷却ユニットの設定温度（PLS-SiC： 41.7°C 、CVD-SiC： 41.8°C 、p-SiC： 42.3°C ）とした。次に、ナノ・マイクロ構造伝熱面を有する伝熱試験片を上部伝熱板に設置し、対流熱伝達試験を実施した。未処理のとき同様にヒータ温度を $50^\circ\text{C} \pm 0.1^\circ\text{C}$ で制御した。ペルチェ冷却ユニットの温度が設定温度を超えた場合、ペルチェ冷却ユニットを使用し、設定温度に調整した。これらの試験は、定常状態に到達後、温度データを 10 分間取得し、伝熱特性を評価する指標 H の算出に使用した。

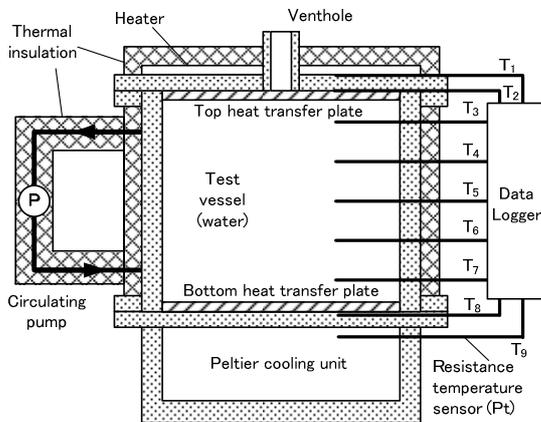


図 1 試験装置の概要

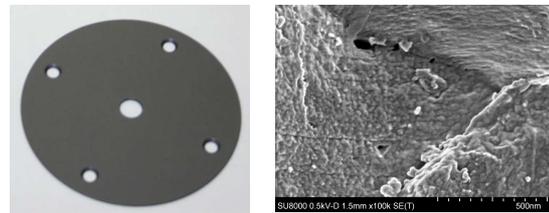
4. 研究成果

(1) ナノ・マイクロ構造伝熱面を有する伝熱試験片の試作・表面分析

① SiC 表面分解法による伝熱試験片の試作
常圧焼結 SiC（PLS-SiC： $\phi 100.5 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm}$ ）と CVD 法により製作した SiC（CVD-SiC： $\phi 100.5 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$ ）に対して、高温雰囲気炉を用いて、真空中、 1700°C で約 30 分間の焼成を行い、SiC 表面分解法

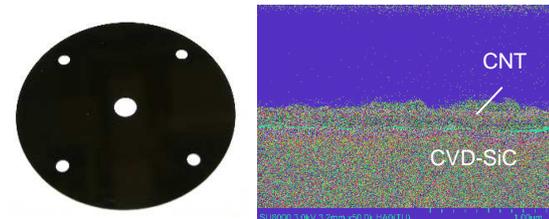
による CNT の生成処理を行った。CNT 生成処理後の常圧焼結 SiC（PLS-SiC/CNT）と CVD 法による SiC（CVD-SiC/CNT）の外観、電子顕微鏡観察結果を図 2、図 3 に示す。どちらの試験片も CNT 生成処理後はカーボンの黒色に変化していた。PLS-SiC/CNT では、表面観察から一部に直径 10 nm 程度の微小な凹凸が確認できたが、断面観察では CNT による均一な層は観察できなかった。これは、常圧焼結 SiC は結晶方位がランダムであるため、一部では CNT が生成しているが、それ以外の部分ではグラフェン等が生成したと考えられる。また、CVD-SiC/CNT では、 $100 \sim 200 \text{ nm}$ の CNT の層の生成が観察できた。過去の報告（例えば、Kusunoki, et al., Phil. Mag. Lett. 79, 153.）より、本 CNT の層は数ナノメートルの隙間を持っていると推定される。

また、CNT 生成処理により撥水性の高い伝熱面に变化した。そこで、表面の濡れの影響を把握するため、CVD-SiC/CNT について熱処理を行い、親水性を示すナノ・マイクロ構造伝熱面（CVD-SiC/CNT-w）を試作した。各伝熱面について、表面の濡れ性の違いを観察するため、水に対する接触角を $\theta/2$ 法により測定した。表 1 に示すように、どちらの母材についても CNT 生成処理により撥水性を示す伝熱面に变化していることがわかる。CVD-SiC/CNT-w については、親水処理により接触角が 90° から 26° に変化し、濡れ性が大きく改善された。



(a) 外観写真 (b) 電子顕微鏡観察結果

図 2 PLS-SiC/CNT 伝熱試験片



(a) 外観写真 (b) 電子顕微鏡観察結果

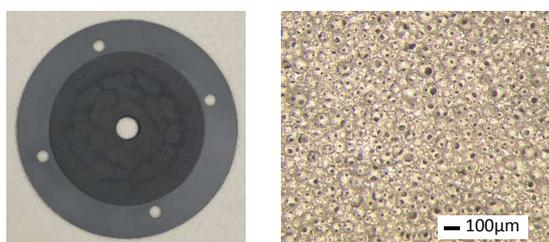
図 3 CVD-SiC/CNT 伝熱試験片

表 1 接触角測定結果

試験片	接触角	測定誤差
PLS-SiC	49°	±3
PLS-SiC/CNT	109°	±2
CVD-SiC	50°	±2
CVD-SiC/CNT	90°	±2
CVD-SiC/CNT-w	26°	±3
PLS-SiC/PLS-SiC	74°	±2
PLS-SiC/p-SiC	91°	±4

② SiC 多孔体を接合した伝熱試験片の試作

常圧焼結 SiC の表面に多孔体 SiC を接合した伝熱試験片 (PLS-SiC/p-SiC: $\phi 100.5 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$) を試作した。試作した試験片の外観、光学顕微鏡による観察結果を図 4 に示す。常圧焼結 SiC の中心部に多孔体 SiC が接合されている。表面観察から 10~50 μm の気孔を有していることが分かった。また、レファレンスとして、常圧焼結 SiC 同士を接合した伝熱試験片 (PLS-SiC/PLS-SiC) も製作した。表 1 に本試験片の水の接触角測定の結果を示す。本試験片については、水の接触角の違いは小さい。



(a) 外観写真 (b) 電子顕微鏡観察結果

図 4 PLS-SiC/p-SiC 伝熱試験片

表 2 高温曝露試験の結果

試験片	400°C	600°C	800°C
PLS-SiC /CNT	○	×	—
CVD-SiC /CNT	○	×	—
PLS-SiC /p-SiC	—	○	○

○：健全、×：消失

(2) 高温曝露試験

(1)で試作した試験片に対して、雰囲気置換型加熱炉を用いて He ガスを流通しながら高温曝露試験を実施した。試験結果を表 2 に示す。PLS-SiC/CNT 及び CVD-SiC/CNT については、600°C の曝露試験において、カーボンを示す黒色から SiC 母材の色に変化した。これは、加熱炉内に残存する酸素と CNT が反応したため消失したと考えられる。PLS-SiC/p-SiC については、800°C の高温域においても多孔質層の劣化、剥離は観察されず、健全であった。

(3) 対流熱伝達試験

(1)で試作した伝熱試験片の伝熱促進効果を評価するために、水を熱媒とした対流熱伝達試験を実施し、各伝熱面の伝熱特性を示す指標 H を算出した。これらの結果を図 5~7 に示す。PLS-SiC/CNT では、伝熱特性を示す指標 H は未処理のものと比べてほぼ同じであり、伝熱促進効果は確認できなかった。CVD-SiC/CNT では、伝熱特性を示す指標 H は未処理のものと比べてほぼ同じであったが、親水処理を施した CVD-SiC/CNT-w では、指標 H の増加が確認できた。ただし、これまで報告されているような 1.4~1.8 倍の高い伝熱促進効果は確認できなかった。これは、CNT によるナノ・マイクロ構造伝熱面の隙間がこれまで報告されているものに比べ非常に小さいことが関連していると考えられる。しかしながら、表面の濡れ性の改善により伝熱促進効果が得られたことは、ナノ・マイクロ構造伝熱面による伝熱促進に表面の濡れ性が深く関係していることが示唆された。また、PLS-SiC/p-SiC では、伝熱特性を示す指標 H は未処理のものと比べてほぼ同じであった。これは、ナノ・マイクロ構造伝熱面による伝熱促進効果に比べ、製作上必要となる多孔体の厚み (~1 mm) による熱抵抗が大きいと考えられる。

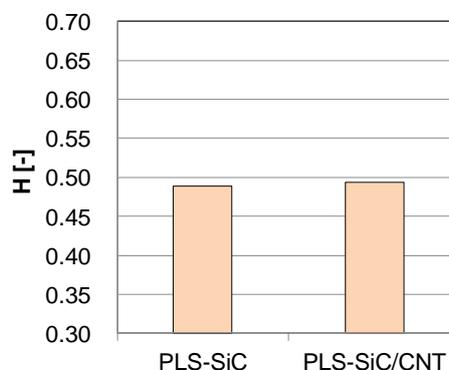


図 5 対流熱伝達試験の結果 (PLS-SiC)

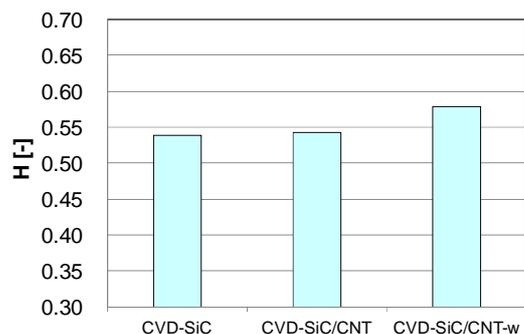


図 6 対流熱伝達試験の結果
(CVD-SiC)

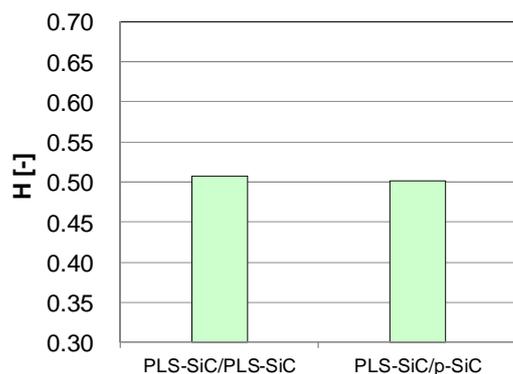


図 7 対流熱伝達試験の結果
(接合試験片)

6. 研究組織

(1)研究代表者

野口 弘喜 (NOGUCHI HIROKI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構
原子力水素・熱利用研究センター・研究員
研究者番号：00414532

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

① Hiroki Noguchi, Heat Transfer Enhancement Effect of Nanostructured Surface Made of Carbon Nanotube on SiC Ceramics, Proceedings of the ASME 2013 11th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, 査読有, ICNMM2013-73086, 2013(in press).

〔学会発表〕(計 3 件)

① 野口弘喜, SiC 伝熱面に生成した CNT によるナノ構造伝熱面の伝熱促進効果の評価, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2012, 2012.11.18, 熊本市

② 野口弘喜, SiC 表面に生成した CNT によるナノ構造伝熱面の伝熱特性に関する研究, 日本原子力学会北関東支部支部大会, 2012.4.20, 東海村

③ 野口弘喜, SiC 伝熱面に生成した CNT によるナノ構造伝熱面の伝熱特性, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2011, 2011.10.30, 浜松市