

平成21年6月5日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007－2008

課題番号：19560207

研究課題名（和文） ナノ構造による固液界面の熱物性制御

研究課題名（英文） Effect of Nanostructure on Solid-liquid Interfacial Heat and Mass Transfer

研究代表者

長山 暁子（NAGAYAMA GYOKO）

九州工業大学・工学研究院・准教授

研究者番号：60370029

研究成果の概要：半導体製造技術をベースにした微細加工技術の進歩は、 μm または nm オーダの熱輸送デバイスの製作を可能にした。このような小さな系では、重力の影響よりも固体と液体の界面が重要な役割を果たし、界面効果が顕著になる。本研究では、ナノスケールの分子動力学解析を進めると同時に、微細加工技術を用いたマイクロスケールの伝熱実験を行い、ナノ構造が固液界面の伝熱特性に及ぼす影響を調べた。固液界面の伝熱特性は、流路寸法が $50\ \mu\text{m}$ 以下になれば界面構造の影響を受けやすく、親水部と疎水部を交互に配置した機能性伝熱面が固液界面の熱物性を能動的に制御できることが分かった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,640,000

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：熱物性，ナノ構造，固液界面，マイクロチャンネル，MEMS，分子動力学法

1. 研究開始当初の背景

近年、高い熱輸送能力を持つマイクロ・ナノデバイスの需要が高く、ナノスケールにおける界面の役割を明確に示し、効果的な界面制御技術を確立することが期待されている。これまでに伝熱促進技術の研究開発にあたって、流路表面に親水性処理を施すと、熱抵抗は低減するが流動抵抗は大きくなり、流路表面に撥水性処理を施すと、流動抵抗は低減

するが熱抵抗は大きくなるといったトレンドオフの性質があると知られている。ところで、研究開始当初、京都大学の功刀資彰教授らは伝熱面にナノ粒子多孔質層を形成することにより、圧力損失を抑えながら、著しい伝熱促進効果を報告し（例えば40th 伝熱シンポジウム講演論文集 Vol.1, p.77-78; 41th 伝熱シンポジウム講演論文集 Vol. 2, p.419-420）、ナノ構造を用いた伝熱促進技術が大いに期待されていた。し

かし、ナノ粒子多孔質層による伝熱促進の理論的背景は未解明の上、国内外において、功刀教授ら以外の実験データがほとんどない状況であった。

2. 研究の目的

ナノ・マイクロシステムにおいては、重力の影響が無視でき、固液界面の分子間相互作用を表すパラメータである界面濡れ性が重要な役割を果たす。高効率・高性能化のため、界面効果を考慮した伝熱面の界面制御・設計が必要である。本研究は、従来の表面粗さと異なる概念のナノ構造を伝熱面に設けることによって、固液界面の熱物性を能動的に制御することが目的である。固液界面付近で数 nm 程度の界面層内に形成したナノ構造（図 1）がもたらす伝熱促進効果のメカニズムについて、分子動力学解析を用いて検討した。同時に、半導体微細加工技術を用いてマイクロチャンネルにおける单相流の強制対流熱伝達実験による検証を行い、分子設計による親水性・疎水性ハイブリッド機能性伝熱面を創製することへの展開を試みた。

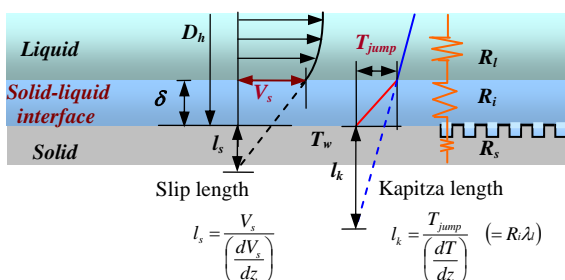


図 1 固液界面における界面抵抗の概念図

3. 研究の方法

本研究は、①分子動力学法を用いたメカニズム解析、②マイクロチャンネルにおける单相流の強制対流熱伝達実験による検証、さらにこれらの知見に立脚した③新たな機能性伝熱面の創製の 3 つの取り組みによって独自の解決ツールを展開した。

(1) 分子動力学法計算

分子動力学解析においては、図 2 に例示するナノ構造を有するナノチャンネルにおける熱流動の計算系を用いた。ナノチャンネルの内壁に高さ、幅とピッチの異なるナノ構造を配置し、非平衡条件下における親水面と疎水面の固液界面の熱抵抗、流動抵抗を調べた。図 2(a) に示すナノチャンネルにおける流動シミュレーションでは、左端 1 分子層に x 方向のみの駆動力を加えた。図 2(b) では、ナノチ

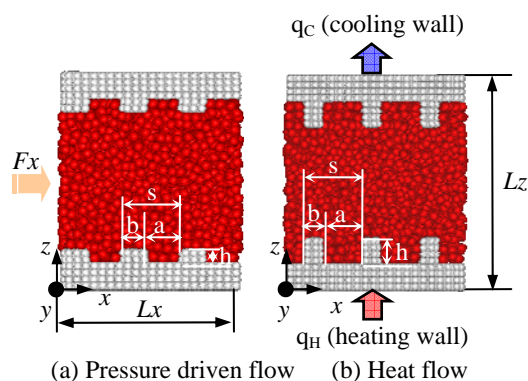


図 2 分子動力学計算系 (例)

ャンネルの片面を加熱面、片面を冷却面として熱輸送のシミュレーションを実現した。チャンネルの固体壁に用いたナノ構造には、凹幅 a 、凸幅 b 、高さ h およびピッチ s でその寸法を変化させ、各計算ケースに対応したパラメータとして整理した。計算系の x と y 方向には周期境界条件を適用し、 z 方向において固体壁の最外層のみ温度制御を行った。分子間相互作用には、同種分子に対して L-J (Lennard-Jones) ポテンシャル、異種分子 (固体-液体) についてはポテンシャルパラメータ $\sigma_{sl} = (\sigma_l + \sigma_s) / 2$ 、 $\epsilon_{sl} = \alpha \sqrt{\epsilon_l \epsilon_s}$ を適用した擬 L-J 関数を用いた。係数 α と β を調整することによって、異なる界面濡れ性を表現した。

(2) マイクロチャンネル実験

実験装置全体は図 3 に示すように、タンク、微調整バルブ、マイクロチャンネルテストセクション、差圧計および微小流量計で構成されている。作動流体は純水 (比抵抗 $18\text{M}\Omega \cdot \text{cm}$) を使用し、ポンプにより送液した。マイクロチャンネルの対流熱伝達特性の測定には、テストセクション裏面にあるヒーターにより熱流束一定条件下で行なった。作動流体

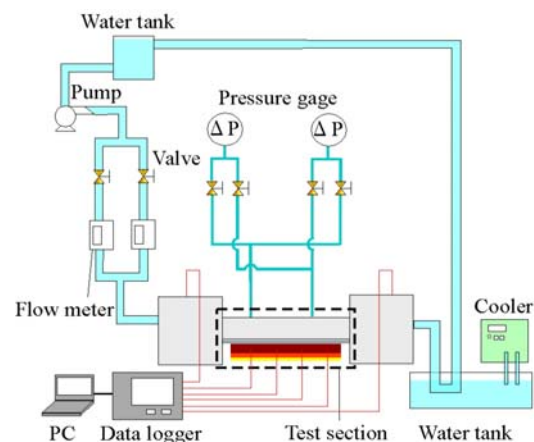


図 3 マイクロチャンネル実験装置概略

の流入・流出温度，各温度センサーの抵抗，差圧，流量を測定し，ポアズイユ数（摩擦係数とレイノルズ数の積）とヌッセルト数を求めた．実験で用いたマイクロチャンネルのアスペクト比が大きいため，平行平板間の流路と見なした．SUS 基板およびシリコン基板を用いて 2 種類のマイクロチャンネル実験を行った．

SUS 基板には無電解メッキ，電解エッチング，研磨などの方法を用いて基板表面にナノ構造による親水性と撥水性加工を施した．Ni メッキと Ni-St メッキを施した場合には，SUS 基板表面には数十 nm から数百 nm までの微細構造を形成した．塩鉄と弗化物を用いたエッチングの場合，50nm 以下の微細凹凸を表面に形成した．マイクロチャンネル流路となる壁面には 2 枚の SUS 平板を用い，その幅は 25mm，長さは 106mm である．SUS 平板は 2 枚の断熱材に埋め込んでその隙間に厚みが調整できるフォイルを挟み，流路の高さを 430 μm および 260 μm に調整した．

シリコン基板マイクロチャンネルは，北九州市学術研究都市内の共同研究開発センターのレーザービーム描画装置，イオン注入装置，プラズマ CVD，露光装置，スパッタ装置ほかを用いて作製した．高さ 100 \pm 2 μm および 50 \pm 2 μm を有するマイクロチャンネルより

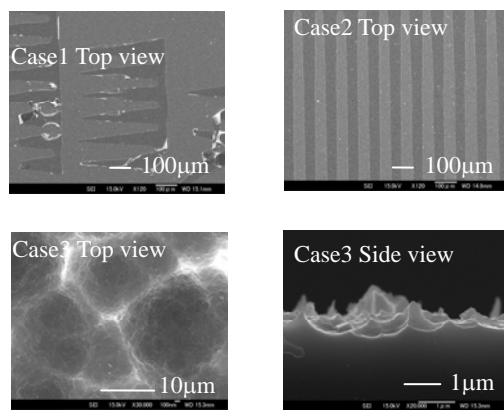


図 4 ナノ構造制御による親水性・撥水性ハイブリッド機能性伝熱面の SEM 画像例

Table 1 Solid-liquid surface conditions.

	Cases	Contact angle [deg]	Area ratio [%]
Flat surfaces	SiO ₂	30	0
	Si	80	0
Functional surfaces	Case 1	30 / 80	50
	Case 2	30 / 80	50
	Case 3	80 / 98	25

テストセクションを構成した．マイクロチャンネルの流路表面温度を直接計測するため，リンイオンをドーピングすることによってマイクロチャンネルと一体化させた温度センサーを作製した．流路上に設置した 3 つの温度センサーは，25°C から 40°C までの測定範囲において，電気抵抗値に対して良好な熱応答特性を示した．Si マイクロチャンネル基板は 400°C，2.0kV の条件で Si 基板と同じ寸法のガラス平板と陽極接合した．

(3) 機能性伝熱面

強制対流熱伝達における圧力損失と伝熱促進効果のバランスの両立を目指して，親水性・撥水性ハイブリッド機能性伝熱面を作製した．有限な伝熱面積をナノ構造化することによって，流体を輸送する疎水性部分と熱を輸送する親水性部分を交互に設けた．微細加工技術を用いて，Si マイクロチャンネルの流路表面にパターンニングにより，親水性・撥水性のハイブリッド機能性伝熱面を形成した．図 4 に示すのは 3 種類の異なる界面構造を持つ機能性伝熱面の表面 SEM 画像である．Case 1 と Case 2 では，接触角 80° である Si 表面，および接触角 30° である SiO₂ 表面を用いた．Case 3 では，接触角 80° である Si 表面と接触角 98° であるポーラス Si 表面を交互に配置させた．表 1 に各表面における接触角度及び異なる固液界面構造が占める面積割合を整理した．

4. 研究成果

(1) 分子動力学法計算

ナノチャンネルの端から駆動力を加えて流れを生じ，ナノ構造面における界面流動抵抗については調べた．同じ駆動条件において，平滑面とナノ構造面の親水性ナノチャンネルにおける速度分布（図 5）を比較すると，ナノ構造面の界面で生じるすべり速度や流路中心部の速度が小さく，界面における流動抵抗が増加した結果となった．疎水性ナノチ

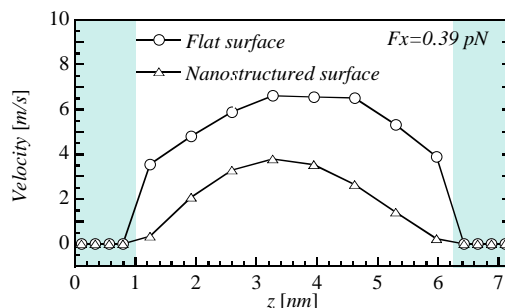


図 5 親水性ナノチャンネル内の速度分布

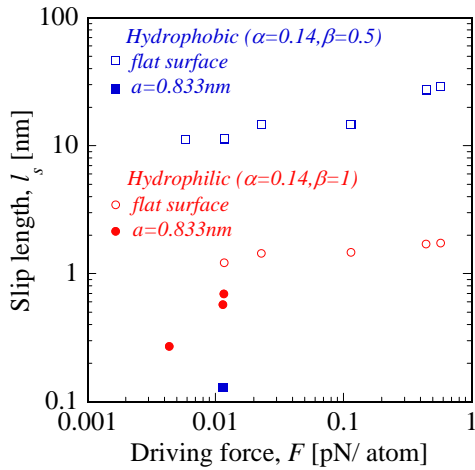


図6 ナノ構造面の界面すべり長さ

チャンネルについても同じく、平面より流動抵抗が増加した。これは、ナノ構造内の液体分子が固体壁にトラップされ、固液界面の液体分子が流れにくいことが一因と考えられる。図6にナノ構造の間隔を0.833nmに固定した場合、界面流動抵抗を示すすべり長さについて得た計算結果を示す。ナノ構造面の界面流動抵抗は駆動力と界面濡れ性によって変化することが確認できる。

ナノチャンネルを介した熱輸送解析については、固液界面熱抵抗は界面濡れ性に依存し、ナノ構造の寸法の違いによって低減できることが分かった。図7にナノ構造面における表面積の増加率、構造間隔と熱流束の関係を示す。親水面と疎水面を介して輸送された熱流束は、ナノ構造化による面積増加の比率である r_w におおよそ比例して増加する傾向が確認できる(実線は平面の熱流束と r_w の積を表している)。また、液体分子直径より大きければ、構造間隔が小さくなればなるほど、熱流束が大きくなるが分かった。これは、ナノ構造層内における液体分子のランダムな運動が制限され(分子並進運動の自由度が構造間の壁に拘束され)、擬結晶化が強化された結果と考える。

分子動力学解析より、ナノ構造は固液界面の熱抵抗を低減させる効果があるが、流動抵抗も同時に増加させることが分かった。また、熱流束の増加量もナノ構造による伝熱表面積の増加量におおよそ比例し、伝熱促進効果の「ミラクル」を確認できなかった。

(2) マイクロチャンネル実験

強制対流熱伝達実験においては、チャンネル高さ $430\mu\text{m}$ および $260\mu\text{m}$ の SUS マイクロチャンネルに対して、ナノ構造の影響は顕著に現れず、従来の理論値におおよそ一致し

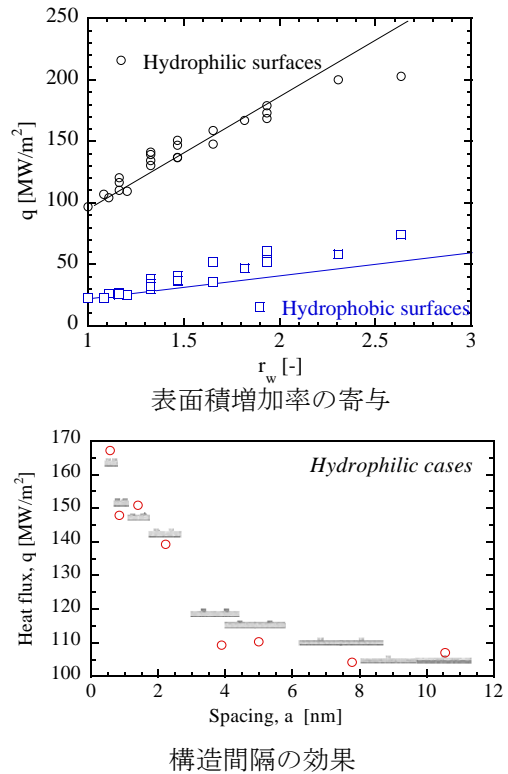


図7 ナノ構造による熱流束の増大

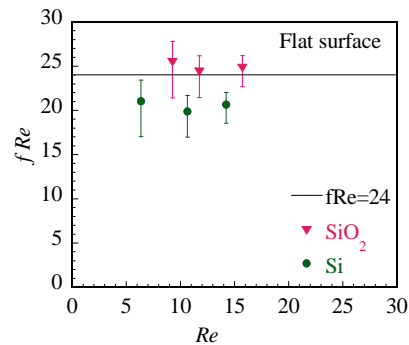


図8 Si マイクロチャンネルにおけるポアズイユ数 ($D_h=100\mu\text{m}$)

たことを確認した。また、Si マイクロチャンネルについて、チャンネル高さ $100\mu\text{m}$ の場合は顕著な違いが見られなかったが、 $50\mu\text{m}$ の場合では固液界面の影響を確認できた。これは、図1に示すように、流路代表寸法 D_h が固液界面層厚み δ と同じスケールになると、固液界面における界面抵抗が液体側の抵抗に匹敵するレベルに達し、界面抵抗が主体になってくることと考えられる。すなわち、固液界面構造は一般的なマクロスケールの熱伝達特性にほとんど効果がないが、ナノ・マイクロシステムにおいては大きな効果があると言える。

図8と図9に代表寸法 $100\mu\text{m}$ (=チャンネル高さ $50\mu\text{m}$) のマイクロチャンネルの強制

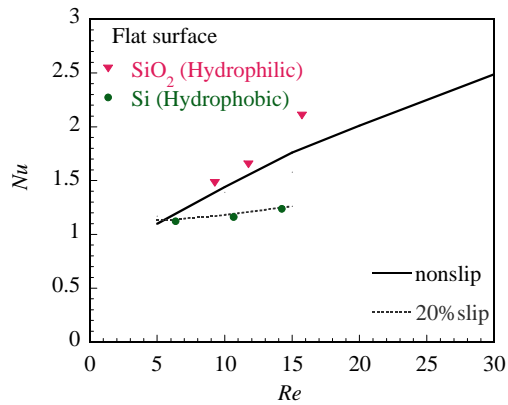


図9 Si マイクロチャンネルにおける平均ヌッセルト数 ($D_h=100\mu\text{m}$)

対流熱伝達実験で得たレイノルズ数に対するポアズイユ数と平均ヌッセルト数の変化を示す。よく知られている平行平板間の流路におけるポアズイユ数 $f\text{Re} \doteq 24$ ，平均ヌッセルト数 $\text{Nu}=5.385$ (片面断熱，片面熱流束一定の発達状態) に対して，親水性の SiO_2 表面ではおおよそ一致した結果を得た。 SiO_2 表面に比べて，比較的疎水的な Si 表面では流動抵抗と熱伝達率の両方が低下した結果となった。さらに，有限差分法を用いた二次元平行平板間の流れを解析したところ，親水性表面ではノンスリップ境界条件で得た解析結果 (実線)，疎水性界面では 20% の固液界面の速度スリップを加えた解析結果 (点線) とのよい一致を確認できた。

マイクロチャンネルにおける対流熱伝達特性に及ぼすナノ構造の影響について検討した結果，チャンネル高さ $50\mu\text{m}$ 以下の場合のみ確認できた。

(3) 機能性伝熱面

親水部と疎水部を交互に配置した機能性伝熱面がチャンネル高さ $50\mu\text{m}$ のマイクロチャンネルの熱抵抗および流動抵抗に及ぼす影響について調べた実験結果をそれぞれ図10と図11に示す。

流動抵抗については，平行平板間の流路におけるポアズイユ数の理論値と一致する SiO_2 表面を基準にして，Si 表面，機能性伝熱面の各実験ケースで得た流動抵抗の低減率 ε を次式で評価した。

$$\varepsilon = (f\text{Re}_{\text{SiO}_2} - f\text{Re}) / f\text{Re}_{\text{SiO}_2} \quad (1)$$

図10に示すように，Si 表面と Case3 の機能性伝熱面の流動抵抗がほぼ同じ，約 18% 低減できたことが確認できる。

熱抵抗については，流動抵抗と同様に， SiO_2 表面を基準にした平均ヌッセルト数の低減

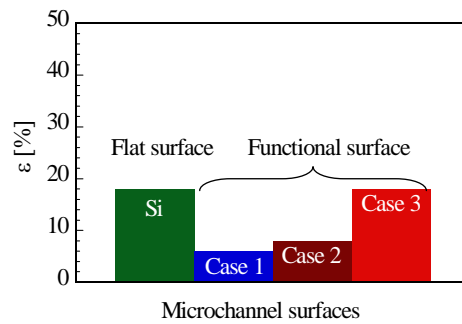


図10 流動抵抗の低減率の比較

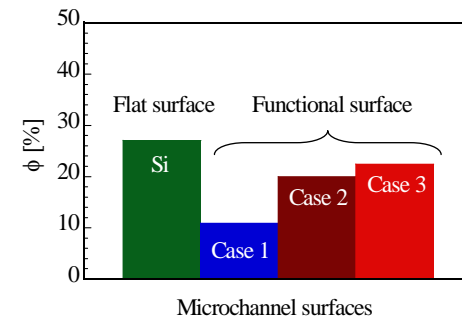


図11 熱伝達率の低減率の比較

率 ϕ を次式で評価した。

$$\phi = (Nu_{\text{SiO}_2} - Nu) / Nu_{\text{SiO}_2} \quad (2)$$

いずれの伝熱面も SiO_2 表面に比べて伝熱特性が低下したが，Case3 は約 9% の減少で，その流動抵抗の低減率を考えると比較的によい熱伝達特性を得たと考えられる。これは，異なる固液界面構造によって界面近傍の流れに微小な擾乱が生じ，熱伝達特性の向上に寄与したと考えている。

すなわち，親水部・疎水部を交互に配置した機能性伝熱面が，マイクロチャンネルにおける流動抵抗と熱抵抗をバランスよく制御できる可能性がある。今後は実験と解析の両面よりさらなる検証が必要である。

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 5 件)

① Gyoko Nagayama, Masako Kawagoe, Atsushi Tokunaga and Takaharu Tsuruta, On the Evaporation Rate of Ultra Thin Liquid Film at the Nanostructured Surface: a Molecular Dynamics Study, International Journal of Thermal Sciences, 2009 (in press 査読有) .

② Gyoko Nagayama, Kosuke Yanai and Takaharu Tsuruta, Effect of Nanostructures on

Solid-liquid Interfacial Boundary Condition in Nanoflow, Proceedings of 6th International Conference on Computational Heat and Mass Transfer, paper No. 221, 2009 (査読有)

③ Gyoko Nagayama, Ryuji Ando, Kei Muramatsu and Takaharu Tsuruta, Fabrication of Macroporous on No-Mask Silicon Substrate for Application to Microsystems, Proceedings of 2nd Integration & Commercialization of Micro & Nanosystems International Conference & Exhibition, Paper No. 70323, pp. 1-2, 2008 (査読有) .

④ Gyoko Nagayama, Seishi Sibuya, Masako Kawagoe and Takaharu Tsuruta, Heat Transfer Enhancement at Nanostructured Surface in Parallel-plate Microchannel, Proceedings of International Conference on Power Engineering-2007, Paper No. E053, pp.1-6, 2007 (査読有) .

⑤ Gyoko Nagayama, Atsushi Tokunaga and Takaharu Tsuruta, On the Evaporation rate of Ultra Thin Liquid Film at the Nanostructured Surface: a Molecular Dynamics Study, Proceedings of 5th International Conference on Computational Heat and Mass Transfer, pp. 205-210, 2007 (査読有) .

[学会発表] (計 9 件)

① Gyoko Nagayama, Microstructures of Porous Silicon and its Surface Wettability, The 7th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, 2008/10, Sapporo Japan.

② 長山 暁子, 固液界面の熱物質輸送機構におけるナノ構造の効果, 日本機械学会 2008 年度年次大会, 2008/8, 横浜.

③ Takaharu Tsuruta, Evaporation rate of liquid film in nanosystem, The 6th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena - Science and Engineering, 2008/7, Boston USA.

④ Gyoko Nagayama, Fabrication of Macroporous on No-Mask Silicon Substrate for

Application to Microsystems, The 2nd Integration & Commercialization of Micro & Nanosystems International Conference & Exhibition, 2008/6, Hongkong China.

⑤ 城谷将宏, 固液界面構造が極薄液膜の蒸発に及ぼす影響, 第 45 回日本伝熱シンポジウム, 2008/5, 筑波.

⑥ Gyoko Nagayama, Heat Transfer Enhancement at Nanostructured Surface in Parallel-plate Microchannel, Proceedings of International Conference on Power Engineering-2007, 2007/10, Hangzhou China.

⑦ Gyoko Nagayama, On the Evaporation rate of Ultra Thin Liquid Film at the Nanostructured Surface: a Molecular Dynamics Study, The 5th International Conference on Computational Heat and Mass Transfer, 2007/5, Canmore Canada.

⑧ 川越政子, 固液界面の熱伝達に及ぼすナノ微細構造の影響, 第 44 回日本伝熱シンポジウム, 2007/5, 長崎.

⑨ 渋谷誠司, マイクロチャンネルの対流熱伝達に及ぼすナノ構造界面の影響, 日本機械学会九州支部第 60 期総会講演会, 2007/3, 北九州.

[その他]

<http://www.heat.mech.kyutech.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長山 暁子 (NAGAYAMA GYOKO)

九州工業大学・工学研究院・准教授

研究者番号：60370029

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし