

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02081

研究課題名（和文）ナノ細孔における気泡発生の解析と制御

研究課題名（英文）Analysis and control of bubble generation in nanopores

研究代表者

大宮司 啓文 (Daiguji, Hirofumi)

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授

研究者番号：10302754

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：電子チップ冷却、スプレー冷却などの高熱流束の用途で、相変化熱伝達の長所を十分に活用するためには、ナノメートルの長さスケール、かつナノ秒の時間スケールで蒸気気泡のダイナミクスと沸騰現象を理解することが必要である。本研究では、固体ナノ細孔を用いた沸騰の実験系を構築し、電気化学計測、音響計測、数値シミュレーションを用いて、ナノスケールの沸騰現象を単一蒸気気泡のダイナミクスから捉えることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、加熱を集中させて気泡核を一つだけ作ることと、核生成後のナノ気泡のダイナミクスをナノ秒スケールで実験的に捉えることの二つの課題を克服し、ナノ細孔内の単一蒸気ナノ気泡のダイナミクスを実験的に捉えることに成功した。また、同じ系を数値シミュレーションで再現した。単一蒸気気泡のダイナミクスと系全体の加熱量を同時に捉えることは、沸騰現象の理解を深めるだけでなく、新しい冷却技術の開発にも繋がる。

研究成果の概要（英文）：To fully exploit the advantages of phase change heat transfer in high heat flux applications such as electronic chip cooling and spray cooling, it is necessary to understand vapor bubble dynamics and boiling phenomena on nanometer length scales and nanosecond time scales. In this study, we constructed an experimental system for boiling using a solid nanopore and used electrochemical measurements, acoustic measurements, and numerical simulations to capture nanoscale boiling phenomena from the dynamics of a single vapor bubble.

研究分野：熱工学

キーワード：沸騰 気泡 核生成 相変化 ナノ流体力学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高密度集積化が進む半導体素子の分野では、低消費電力化とともに半導体チップの冷却技術の技術革新が必要不可欠である。3次元積層チップなど、今後、ますます高密度集積化が進み、高い発熱密度が見込まれることから、様々な冷却技術が開発されている。その中でも、液体の相変化(沸騰熱伝達)を利用した冷却デバイスは高い冷凍能力をもつことから有望であり、水を媒体として用いた3次元積層チップの冷却デバイスにおいては各層あたり 180 W/cm^2 の冷凍能力まで到達することが報告されている。また、近年は電気伝導度の低い媒体を用いることにより、直接にチップの表面に媒体を接触させて3次元積層チップを冷却することにより、さらに冷凍能力を高めることができると報告されている。このような液体の相変化を利用した冷却技術においては、ナノスケールにおける沸騰現象の制御(気泡核生成の制御、および気泡核からナノ・マイクロスケールの気泡への成長過程の制御)は最先端技術であり、同時に次世代冷却技術のコア技術に成り得る。

また、マイクロ流路を用いた液体の沸騰熱伝達による冷却を安定に行うために、流路の入口にマイクロスケールの気泡を間欠的に生成する装置(バブルエミッター)を設置し、マイクロ流路内で不安定な沸騰現象を回避する方法などが検討されている。本研究はバブルエミッターの開発も視野に入れて研究を進めた。

2. 研究の目的

本研究では、ナノ細孔を加熱することによりナノ気泡を発生させる系を用いて、単一気泡の均一核生成、不均一核生成など気泡核生成条件の評価、および単一気泡から、気泡クラスター、マイクロ・マクロスケールの沸騰現象へ至る気泡成長過程の解明を目的とする。理想的な単一気泡の均一核生成がどこで崩れ、不均一核生成が発生するか、単一気泡から、気泡クラスター、さらにはマイクロ・マクロスケールの沸騰現象へどのように繋がっていくかという学術的な問いに対して、(1)ナノ細孔内部の気泡核生成の解析と制御、および(2)気泡核からナノ・マイクロ気泡への成長過程の解析と制御の二つの課題に取り組む。気泡核生成の基礎研究と沸騰現象という工学的な応用研究の関連性を議論するところに学術的独自性がある。また、ナノポアセンサーの研究で見られる沸騰現象を、より大きなスケールの沸騰伝熱の研究へ展開し、マイクロ冷却デバイスへの応用を目指している。

3. 研究の方法

研究項目(1)のナノ細孔内部の気泡核生成の解析と制御においては、ジュール加熱によるナノ細孔内部における気泡の生成・崩壊現象の電気化学計測、音響計測を行う。ナノメートル、ナノ秒の分解能で気泡のダイナミクスを計測する。SiNx薄膜にナノ細孔を作り、3Dプリンターで作成した溶液タンクに挟み込む。タンクに溶液を満ち、パルスジェネレータで電極に電圧を印加し、オシロスコープでナノ細孔のコンダクタンスの時間変化を計測する。先行研究においては、過飽和状態の水溶液からの均一気泡核生成が対象であったが、本研究においては、様々な寸法のナノ細孔を作り、印加電圧などをパラメータとして、均一気泡核生成のみならず、不均一気泡核生成、さらには気泡の合体成長、消滅過程などについても考察する。また、数値シミュレーションも同時に行い、細孔内部の温度分布、気泡径の予測モデルを確立する。

研究項目(2)の気泡核からナノ・マイクロ気泡への成長過程の解析と制御においては、可視化により気泡のナノ細孔からの離脱挙動を明らかにする。

4. 研究成果

研究項目(1) ナノ細孔内部の気泡核生成の解析と制御

これまで、単一蒸気ナノ気泡のダイナミクスを調べることは次の二つの理由から困難であった。(1) 気泡核が一つだけ生成するように加熱を集中させること、(2) 核生成後のナノ気泡のダイナミクスをナノ秒スケールで実験的に捉えること。これらの二つの課題を克服するために、本研究では、図1a, bに示すような直径が数100 nm程度のナノ細孔からなる沸騰の実験装置を用いる[1]。ナノ細孔をもつSiNx薄膜の両側を高濃度NaCl水溶液で満ちし、ここにパルス電圧を印加すると、電気泳動によりイオンが流れる。同時に、ジュール熱によりNaCl水溶液の温度が上昇し、過飽和状態になると気泡が発生する(図1c, d)。気泡は次第に成長するが、気泡が成長すると流路を塞ぐことになり、イオン流が抑制される。その結果、ジュール熱も抑制されて温度が下がり、気泡は崩壊する。気泡が崩壊すると再び流路が広がり、イオンが流れ、ジュール熱が発生する。この繰り返しにより、ナノ細孔内部で気泡の生成・崩壊が周期的に起こり、図1eに示すような周期的なイオン電流の信号が得られる。このナノ細孔を用いて、極めて均質な単一気泡を生成させる方法は分析化学の分野で知られていた[2, 3]。これらの研究においては、理論解析と組み合わせることで周期的な単一気泡の均一核生成を定量的に捉えることに成功している。

しかし、このような単一気泡の均一核生成は極めて限定された条件でのみ起こり、細孔径、印加電圧を僅かに変えただけで、図1fに示すような非周期のイオン電流の信号が表れることを見出した。解析の結果より、この信号は壁面近傍での不均一核生成を示していることがわかった[1]。

さらに、細孔径や印加電圧を大きく変えると、図2cに示すような様々な信号が表れることを見出した[4]。ここでは、イオン電流計測とハイドロフォンによる音響計測を同時に行い(図2a, b), 二つの信号から気泡の振動運動を解析した。解析の結果より、これらの信号は核沸騰(均一核沸騰, 不均一核沸騰)から膜沸騰(トーラス状の気泡)への遷移を示していることがわかった[4]。

以上の研究から、このナノ細孔を用いた実験系は、周期的な単一気泡を発生させるだけでなく、様々なナノスケールの沸騰現象を創り出すことが可能であり、ナノスケールの沸騰実験のプラットフォームになることを見出した。また、対象とする蒸気気泡の長さスケールは可視光の回折限界を超えるため、直接に可視化することは難しい。そこで、この実験系に電気化学的手法によるイオン電流計測、ハイドロフォンによる音響計測を適用した。さらに、数値シミュレーションによる気泡のダイナミクス、電場、温度場の解析[5]を組み合わせて、ナノ細孔内部の沸騰現象を解明した。

また、この実験系は単一蒸気気泡のダイナミクスと系全体の熱収支(加熱量)を同時に理解することができるため、今後、これらの研究をさらに進め、ナノ細孔内部の沸騰曲線を描いたり、印加電圧を増加させた場合と減少させた場合の沸騰遷移の違い、すなわち沸騰遷移のヒステリシス現象などを明らかにしたりすることを計画している。

研究項目(2) 気泡核からナノ・マイクロ気泡への成長過程の解析と制御

図3aはマイクロスケールの気泡を間欠的に生成する装置(バブルエミッター)の概念図である。前述の通り、マイクロ流路を用いた液体の沸騰熱伝達による冷却を安定に行うために、流路の入口に設置し、気泡核を間欠的に発生させる。図3bは、実際に、前述の実験装置を用いてジュール加熱によりナノ細孔内部でナノ気泡を発生させ、マイクロ気泡としてナノ細孔外部へ取り出したときの顕微鏡画像を示している。均一核生成が起こる条件では、気泡をナノ細孔外部へ取り出すことができ、間欠的なマイクロ気泡の発

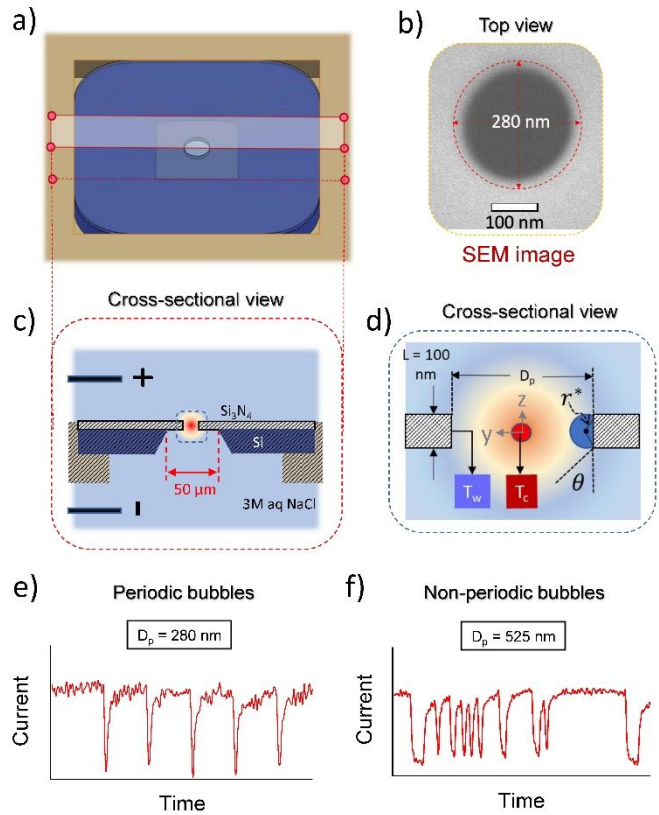


図1. ジュール加熱によるナノ細孔内部における気泡の均一核生成と不均一核生成 [1]。

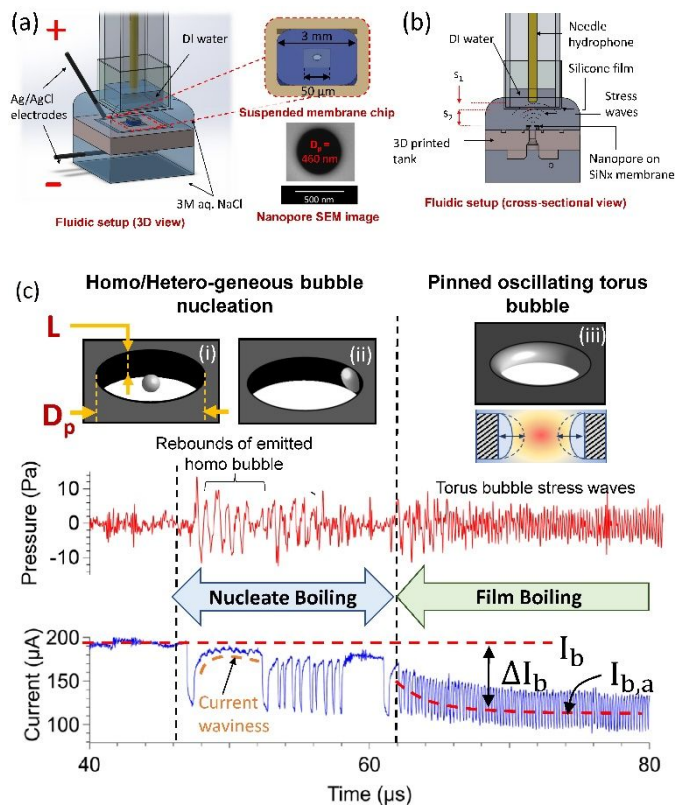


図2. ジュール加熱によるナノ細孔内部における核沸騰から膜沸騰への遷移 [4]。

生が見られるが、不均一核生成、遷移沸騰、膜沸騰などが起こる条件では、気泡はナノ細孔に付着して、外部へ取り出すことができない。ナノ細孔内部の沸騰現象を明らかにすることが、バブルエミッターの設計において極めて重要であることがわかった。

今後、ナノ細孔外部の単一気泡の成長・崩壊現象についても、可視化実験、理論解析を進めることを計画している。

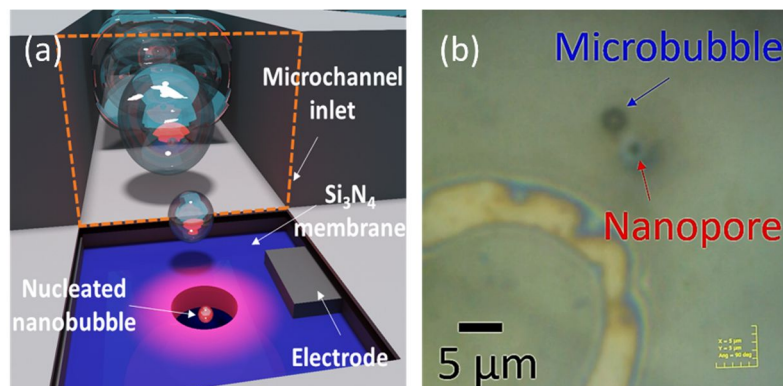


図3. バブルエミッターの概念図とナノ細孔からのマイクロ気泡の放出。

参考文献

- [1] S. Paul, W.-L. Hsu, M. Magnini, L. R. Mason, Y.-L. Ho, O. K. Matar and H. Daiguji, "Single-bubble dynamics in nanopores: Transition between homogeneous and heterogeneous nucleation," *Phys. Rev. Research* 2, 043400, 2020.
- [2] G. Nagashima et al., *Phys. Rev. Lett.* 113, 024506, 2014.
- [3] E.V. Levine et al., *Phys. Rev. E* 013124, 2016.
- [4] S. Paul, W.-L. Hsu, Y. Ito and H. Daiguji, "Boiling in nanopores through localized Joule heating: Transition between nucleate and film boiling," *Phys. Rev. Research* 4, 043110, 2022.
- [5] S. Paul, W.-L. Hsu, M. Magnini, L. R. Mason, Y. Ito, Y.-L. Ho, O. K. Matar and H. Daiguji, "Analysis and control of vapor bubble growth inside solid-state nanopores," *Journal of Thermal Science and Technology* 16, JTST0007, 2021.

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 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Mirco Magnini, Lachlan R. Mason, Ya-Lun Ho, Omar K. Matar, Hirofumi Daiguji	4. 巻 2
2. 論文標題 Single-bubble dynamics in nanopores: Transition between homogeneous and heterogeneous nucleation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 43400
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.2.043400	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 該当する

1. 著者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Mirco Magnini, Lachlan R. Mason, Yusuke Ito, Ya-Lun Ho, Omar K. Matar, Hirofumi Daiguji	4. 巻 16
2. 論文標題 Analysis and control of vapor bubble growth inside solid-state nanopores	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Thermal Science and Technology	6. 最初と最後の頁 JTST0007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1299/jtst.2021jtst0007	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 該当する

1. 著者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Yusuke Ito, Hirofumi Daiguji	4. 巻 4
2. 論文標題 Boiling in nanopores through localized Joule heating: Transition between nucleate and film boiling	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 43110
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.4.043110	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 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Paul Soumyadeep, 徐 偉倫, 何 亜倫, 大宮司 啓文
2. 発表標題 Resistive pulse sensing of bubble generation inside solid-state nanopores
3. 学会等名 第57回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Mirco Magnini, Lachlan R. Mason, Ya-Lun Ho, Omar K. Matar, Hirofumi Daiguji
2. 発表標題 A study of homogeneous and heterogeneous bubble nucleation inside nanopores through resistive pulse sensing
3. 学会等名 73rd Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Paul Soumyadeep, 徐 偉倫, 伊藤 佑介, 大宮司 啓文
2. 発表標題 固体ナノ細孔内部の不均一なナノバブル振動の音響計測
3. 学会等名 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Yusuke Ito, Hirofumi Daiguji
2. 発表標題 Acoustic and resistive pulse sensing of nanobubbles inside solid-state nanopores
3. 学会等名 2nd Asian Conference on Thermal Sciences (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Soumyadeep Paul, Yuichiro Hanada, Bluest Lan, Hirofumi Daiguji, Kuo-Ching Liang, Wei-Lun Hsu
2. 発表標題 Data analysis platform for nanobubble characterization of solid-state nanopores
3. 学会等名 17th IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems, F2.1.3 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Paul Soumyadeep, 伊藤 佑介, 徐 偉倫, 大宮司 啓文
2. 発表標題 固体ナノ細孔内部における単一均一ナノバブルの音響計測
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 Paul Soumyadeep, 伊藤 佑介, 徐 偉倫, 大宮司 啓文
2. 発表標題 固体ナノ細孔内における気泡核の発生
3. 学会等名 2022年度日本冷凍空調学会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Paul Soumyadeep, 徐 偉倫, 伊藤 佑介, 大宮司 啓文
2. 発表標題 局所的ジュール加熱によるナノ細孔内の沸騰
3. 学会等名 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nag Sarthak, Paul Soumyadeep, 徐 偉倫, 大宮司 啓文
2. 発表標題 ナノ細孔内における不均一系蒸気ナノバブルの熱的評価
3. 学会等名 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Soumyadeep Paul, Wei-Lun Hsu, Yusuke Ito, Hirofumi Daiguji
2. 発表標題 A Study on boiling inside nanopores through localized Joule heating
3. 学会等名 75th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 PAUL Soumyadeep, 伊藤 佑介, 徐 偉倫, 大宮司 啓文
2. 発表標題 固体ナノ細孔内の沸騰構造の熱力学的分岐
3. 学会等名 第60回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2023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	徐 偉倫 (Hsu Wei-Lun) (50771549)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授 (12601)	

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		
英国	Imperial College London	University of Nottingham	The Alan Turing Institute