

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 17 日現在

機関番号：32601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03919

研究課題名(和文) 感温磁性マイクロカプセルによるアクティブ伝熱促進機構の解明

研究課題名(英文) Research on active heat transfer promotion mechanism by temperature-sensitive magnetic microcapsules

研究代表者

麓 耕二 (Koji, Fumoto)

青山学院大学・理工学部・教授

研究者番号：50259785

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：マイクロ・ナノテクノロジー分野において構造体の形成、物性解明、さらに新機能発現に関する学術的研究が着実な進展を見せている。これらは電子情報・通信分野のみならず環境・エネルギー分野において大きなイノベーションをもたらす可能性を秘めている。本研究は、マイクロカプセル化技術を進化させた新奇な機能性マイクロカプセル粒子を創成し、最先端潜熱蓄熱技術との融合によるマイクロスケールでの超高効率熱交換デバイスの開発を行った。具体的には感温磁性粒子および相変化物質(PCM)をドーピングさせた多機能性カプセルを創成する。さらにカプセルを含む分散媒体と管壁間の高効率熱移動に関する基礎的メカニズムの解明を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では分散媒体中の感温磁性材料を含んだマイクロカプセルを伝熱面へ集めることで熱交換性能を飛躍的に向上させるアクティブ熱制御デバイスを試作し、その有効性と適用範囲を検証するとともに不均一温度場における熱制御の可能性を見出した。これらの成果は電子情報・通信分野のみならず環境・エネルギー分野において大きなイノベーションをもたらす可能性を秘めている。一方、現在、環境負荷低減および産業競争力強化の両面からサーマルマネジメント技術の高度化に対する社会的要請にも応えることができる。

研究成果の概要(英文)：Steady progress is being made in academic research on the formation of structures, the elucidation of physical properties, and the expression of new functions in the field of micro- and nanotechnology. These studies have the potential to bring about significant innovations not only in the fields of electronics, information, and communications, but also in the fields of environment and energy. In this study, we created novel functional microcapsule particles by advancing microencapsulation technology, and developed a micro-scale ultra-efficient heat exchange device by integrating it with state-of-the-art latent heat storage technology. Specifically, multifunctional capsules doped with thermosensitive magnetic particles and phase change materials (PCMs) are created. Furthermore, the fundamental mechanism of highly efficient heat transfer between the dispersion medium containing the capsule and the tube wall is elucidated.

研究分野：熱工学

キーワード：マイクロスケール 熱交換 熱流体 カプセル 相変化

1. 研究開始当初の背景

これまでマイクロ・ナノテクノロジー分野において構造体の形成、物性解明、さらに新機能発現に関する学術的研究が着実な進展を見せている。これらの成果は電子情報・通信分野のみならず環境・エネルギー分野において大きなイノベーションをもたらす可能性を秘めている。一方、現在、環境負荷低減および産業競争力強化の両面からサーマルマネジメント技術の高度化に対する社会的要請がある。具体的には技術開発が著しいモビリティの電動化・IoT コネクテッド化および携帯電話を含む小型電子デバイスのためのサーマルマネジメント技術が極めて重要なキーテクノロジーと位置付けられている。

◆ 先行研究(基盤研究(C), 2016-2019)から得られた成果と課題

研究代表者は、先行研究により、ナノ粒子の相変化現象を利用した蓄熱機能材料の創成に取り組んだ。具体的には O/W 型相変化ナノエマルジョンによる機能性潜熱蓄熱材を開発した。これまでアルカン系材料を用いた相変化ナノエマルジョンを生成し、従来型潜熱蓄熱材に比べて長期安定性と高い流動性を有する極めて優れた潜熱蓄熱媒体を開発することに成功した。一方、体系的な研究を続ける中で、以下の課題が明らかになった。

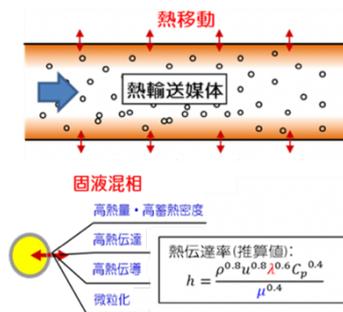


図 1 先行研究から得られた課題：分散媒体による熱伝達向上の難しさ

- ◎ ナノ粒子の均一分散化に伴う壁面近傍での熱伝達率低下。特に分散した PCM の相変化率は低下 (図 1 上参照)
- ◎ 産業的応用を目的とした熱交換技術に対する実スケールを考慮した検討の必要性(図 1 下参照)

2. 研究の目的

本研究は、マイクロカプセル化技術を進化させた新奇な機能性マイクロカプセル粒子を創成し、最先端潜熱蓄熱技術との融合によるマイクロスケールでの超高効率熱交換デバイスの開発を目的とする。具体的には感温磁性粒子および相変化物質(PCM)をドーピングさせた多機能性カプセルを創成する。さらにカプセルを含む分散媒体と管壁間の高効率熱移動に関する基礎的メカニズムの学理探求と最終的に超高効率小型熱交換器の創出を目標としている。

3. 研究の方法

本研究課題は大きく 4 つのテーマを踏まえた研究活動を実施した。具体的にはテーマ 1 としてナノスケール磁性粉末のカプセル化と物性把握である。Mn-Zn フェライト系ナノ粒子をコア材料として外殻にポリマーを用いたマイクロカプセル化技術を向上させ、その結果を基にカプセルの物理的安定性および利用限界範囲を明らかにし、同時に特性改善を図る。当該期間ではカプセルの微細観察を基に最適カプセル生成のためのレシピを探索する。テーマ 2 としてマイクロカプセルを媒体に分散させた機能性流体の各種物性を明らかにし、実デバイス化のための最適化を図る。これらの成果として、蓄熱機能を有し、磁場に引き寄せられる磁場カプセルを含んだ機能性作動流体の完成を目指す。テーマ 3 として熱交換デバイスの開発と伝熱特性調査である。ここではデバイス作製条件を検討すると共にラボスケールのマイクロ流路装置により、各種伝熱特性を計測する。テーマ 4 として小型熱交換器による実機試験と熱流動シミュレーションにより実機性能を予測し、最終的に高効率小型熱交換デバイスの設計指針の策定および提案を行う。

4. 研究成果

研究成果の一部として、マイクロカプセル（多機能カプセル）の合成および特性評価の結果を示す。具体的には、界面活性剤の投入量による影響、エマルジョンとゾル溶液の攪拌速度の影響およびゾル溶液内に界面活性剤を投入した影響を示す。また、DSCで測定した潜熱はカプセル内に封入されているPCMのみのものであるかを評価した結果を示す。

(1) 実験装置および方法

① 共沈法による磁性粒子の作成

本実験で用いる磁性粒子は共沈法によって調整した。共沈法とは、2種類以上の金属イオンを含む溶液から複数種類の難溶性塩を同時に沈殿させることで、均一性の高い粒子が調製できる方法である。作成手順は以下のようになる。蒸留水 50ml に塩化鉄（II）四水和物および塩化鉄（III）六水和物をモル比 1：2 になるように混合した後に、界面活性剤として臭化ヘキサデシルトリメチルアンモニウム（CTAB）を 0.5g 溶解した。さらにアンモニア水により pH 値を調整し、これをマグネチックスターラーにて 1 時間攪拌した。その後、磁石を用いて溶媒から分離し、蒸留水で 3 回洗浄し、室温で乾燥させることによって磁性粒子を採取した。

② ゼルゲル法によるカプセルの作成

ゾルゲル法の概略図を図 2 に示す。まず水温を 60℃ に保持した蒸留水 40ml に界面活性剤を投入して相変化物質と共にマグネチックスターラーで 1 時間攪拌することによってエマルジョンを調整する。一方で、11ml の蒸留水と 4ml の TEOS を 36ml の有機溶媒に混合し、加水分解開始剤を滴下して、ホモジナイザー（HSIANGTAL, HG-200）により攪拌してゾル溶液を調整する。調整したゾル溶液にエマルジョンを滴下して攪拌することにより、カプセル化が成される。その後、超音波洗浄を施し、溶媒を除去した後、室温で乾燥させることによってカプセルを採取する。今回の実験で使用した材料は以下に示す。芯物質に PCM としてオクタデカン（東京化成工業）、界面活性剤として CTAB（富士フィルム和光純薬）、有機溶媒としてエタノール（純度 99.5%、関東化学）、カプセルの壁材として TEOS（東京化成工業）、加水分解開始剤としてアンモニア水（富士フィルム和光純薬）を使用した。

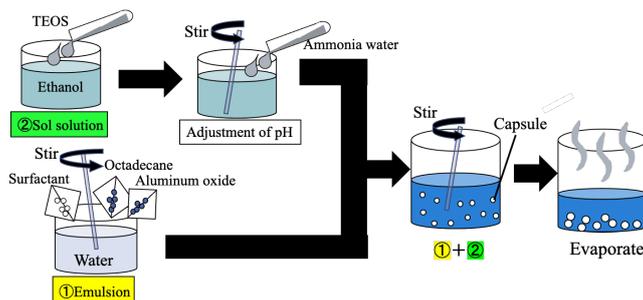


図 2 Schematic diagram of sol-gel method

③ 特性評価方法

カプセルの外観の観察には走査電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope : SEM）を使用した。また、示差走査熱量計（Differential Scanning Calorimetry : DSC）を用いて、毎分 1.5℃ の昇温速度でカプセルの融解温度、凝固温度及び潜熱を測定した。そして、計測によって得た潜熱を用いて式 (1) でカプセル化率 R を算出した。R の値が高い程に、多量の潜熱を有する熱輸送媒体の作成が期待できる。

$$R = (\Delta H_{(m, EPCM)}) / (\Delta H_{(m, PCM)}) \times 100\% \quad (1)$$

ここで、 $\Delta H_{(m, EPCM)}$ [kJ/kg]は融解時のカプセルの潜熱、 $\Delta H_{(m, PCM)}$ [kJ/kg]は融解時の PCM 単体の潜熱である。

④ 実験条件

表 1 にサンプル別の実験条件を示す。本研究ではカプセル生成時の界面活性剤の投入量をパラメータとして、カプセル化率の評価を行なった。

表 1 Composition of the prepared capsules

Sample	a	b	c	d	e	f
Surfactant[g]	0	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6

(2) 実験結果および考察

表 2 に各サンプルのカプセル化率 R の値を示す。

表 2 Encapsulation rate for each sample

Sample	a	b	c	d	e	f
R[%]	0.0	10.3	23.9	35.1	30.5	23.5

① 界面活性剤の投入量による影響

サンプル b から f までの DSC 曲線を図 3 に示す。表 2 より、サンプル a においては、カプセルが生成されなかった。また、サンプル d で R が最も高い値を示した。これは、サンプル a~c では界面活性剤の量が PCM 全てに吸着するためには不十分であり、ゾル溶液を被覆できる PCM が少ないためであると考えられる。一方サンプル e, f では、界面活性剤が過剰になってしまい、溶液の分散生が低下したためであると考えられる。以上より、界面活性剤は 0.4g が適量であると判断した。

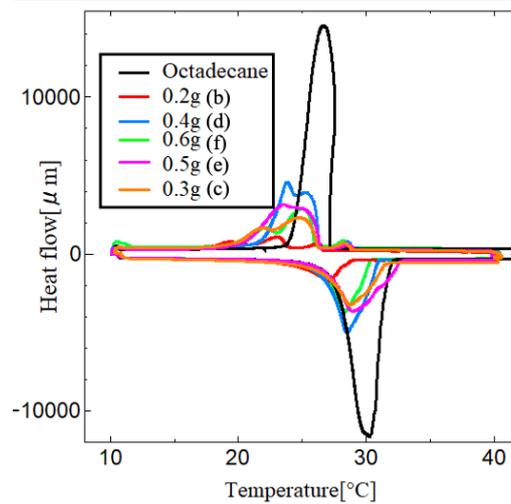
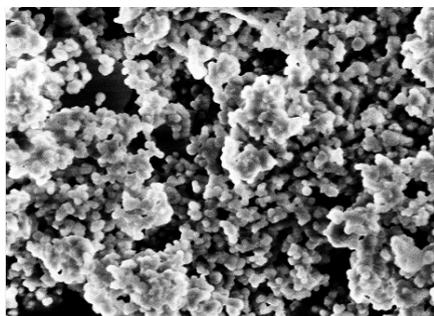


図 3 DSC curve of Sample b-f

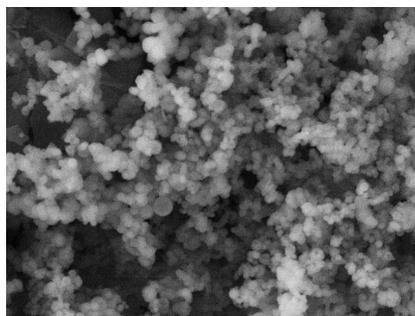
② エマルションとゾル溶液の攪拌速度の影響

エマルションとゾル溶液を混合する際に攪拌速度を 250rpm, 500rpm, 750rpm に変化させ、SEM で観察した結果を図 4 に示す。250rpm の場合、カプセル同士が融合していることがわかる。これは攪拌速度が不足していることによって流体剪断力が低く、カプセルを分断することができ

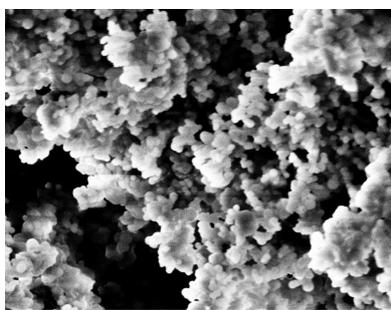
なかったためであると考えられる。500rpm の場合では、250rpm の場合よりもカプセルが分裂していることがわかる。750rpm の場合では、カプセルのみを採取することができず、SEM 像においてもカプセル化されなかった PCM とカプセルが混合している様子が観察された。これらより、攪拌速度は 500rpm が最適であると判断した。



(a) 250rpm



(b) 500rpm



(c) 750rpm

図 4 SEM picture of capsule

本研究で得られた成果は、例えばモビリティサーマルマネジメント等に必要な革新的潜熱蓄熱材料として利用され、熱エネルギー利用の高効率化に寄与することが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4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 2件）

1. 著者名 Keiko Ishii, Kazuki Ogura, Koji Fumoto	4. 巻 556
2. 論文標題 Optical visualization of the formation behavior of magnetic particle clusters in a forced convection field	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 169433
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jmmm.2022.169433	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 ISHII Keiko, OGURA Kazuki, KAWAYAMA Kosuke, SATO Ryo, FUMOTO Koji	4. 巻 42
2. 論文標題 磁性ナノ粒子含有マイクロ粒子を用いた磁性流れ場の可視化	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Visualization Society of Japan	6. 最初と最後の頁 22 ~ 25
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3154/jvs.42.164_22	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 小倉一起, 石井慶子, 麓耕二	4. 巻 3月号
2. 論文標題 感温磁性粒子を含有したマイクロカプセルの作成と流れ場における流動様相	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本機械学会流体工学部門 ニュースレター 流れ	6. 最初と最後の頁 1-2
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 無
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 Ishii Keiko, Kawayama Kosuke, Fumoto Koji	4. 巻 59
2. 論文標題 Synthesis and evaluation of high thermal conductivity magnetic heat storage inorganic microcapsules simultaneously containing gallium and magnetic nanoparticles by sol-gel method	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Energy Storage	6. 最初と最後の頁 106426 ~ 106426
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.est.2022.106426	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13件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 石井 慶子, 小倉 一起, 麓 耕二
2. 発表標題 磁性粒子含有マイクロカプセルの強制流動場におけるクラスター形成様相の解明
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 麓耕二
2. 発表標題 革新的蓄熱技術と超熱伝導デバイスによるサーマルコントロール
3. 学会等名 TECHNO-FRONTIER2022 第22回熱設計・対策技術シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koji FUMOTO
2. 発表標題 Innovative Thermal Control for Next-Generation Technologies
3. 学会等名 天津大学主催ウェブレクチャー（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Otaka , K. Ishii, K. Fumoto
2. 発表標題 The Simultaneous Visualization of Flow and Temperature inside a Pulsating Heat Pipe Using Temperature-sensitive Paint
3. 学会等名 The 18th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazuki OGURA, Keiko ISHII, Koji FUMOTO
2. 発表標題 Visualization of clusters in fluorescent magnetic microcapsule dispersions under forced convection
3. 学会等名 Asian Conference on Thermal Sciences (ACTS) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Rikuto SHIMODA, Yuya OTAKA, Koji FUMOTO, Keiko ISHII
2. 発表標題 Simultaneous Measurement of Two-Dimensional Temperature Distribution and Flow Inside a Single Channel Simulating Pulsating Heat Pipe
3. 学会等名 Asian Conference on Thermal Sciences (ACTS) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大貫凌河, 石井慶子, 麓耕二
2. 発表標題 ガリウムマイクロカプセルスラリーの調製と対流実験による熱輸送評価
3. 学会等名 第 10 回潜熱工学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川山昂祐, 石井慶子, 麓耕二
2. 発表標題 磁性粒子と相変化物質を封入したマイクロカプセルの合成とその観察
3. 学会等名 第 10 回潜熱工学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤 亮, 石井 慶子, 麓 耕二
2. 発表標題 温度差を有する場の感温磁性マイクロカプセル分散液パッシブ流動の可視化
3. 学会等名 日本機械学会 第99期 流体工学部門 講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小倉 一起, 石井 慶子, 麓 耕二
2. 発表標題 蛍光磁性マイクロカプセルが形成するクラスター構造の可視化と強制流動場における流動特性
3. 学会等名 第49回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮澤瑞希, 石井慶子, 麓耕二
2. 発表標題 感温磁性マイクロカプセルの自然対流（鉛直磁場下における流動特性評価）
3. 学会等名 日本機械学会 関東支部 第30期総会・講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 石井慶子, 宮沢瑞樹, 佐藤亮, 小倉一起, 麓耕二
2. 発表標題 模擬磁性流体の可視化
3. 学会等名 熱工学コンファレンス
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 石井慶子, 佐藤亮, 麓耕二
2. 発表標題 強制対流での感温磁性マイクロ カプセル分散液の流動様相
3. 学会等名 第51回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 鈴木洋 (神戸大) ほか37名 分担執筆	4. 発行年 2022年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 262
3. 書名 熱エネルギーの有効活用に向けた蓄熱技術開発	

1. 著者名 麓耕二 ほか9名	4. 発行年 2021年
2. 出版社 サイエンス&テクノロジー	5. 総ページ数 183
3. 書名 小型化・集密化する電子デバイスを支える 熱輸送・冷却技術の進化と新展開	

1. 著者名 堀部明彦 ほか	4. 発行年 2024年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 285
3. 書名 熱制御に向けた相変化材料PCMの開発と応用	

〔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	石井 慶子 (Ishii Keiko) (80803527)	青山学院大学・理工学部・助教 (32601)	

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