

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 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：35504

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656158

 研究課題名（和文） ナノ粒子バイポーラス構造体によるスーパークーリング技術
の原理実証と完全制御

 研究課題名（英文） Demonstration of super-cooling technology with nanoparticles-
assembled bi-porous structure and its control

研究代表者

結城 和久 (Yuki Kazuhisa)

山口東京理科大学・工学部・准教授

研究者番号：90302182

研究成果の概要（和文）：本研究では、ナノ粒子の集積によって発現する極めて強い毛細管現象と濡れ性、ならびにマイクロスケールの気孔による積極的蒸気排出、の2つの機能を兼備するナノ粒子バイポーラス構造体を伝熱面に施工することで沸騰伝熱促進を図る。高温面上での液滴の蒸発時間と動的挙動について評価し、ナノ粒子バイポーラス構造体の沸騰伝熱特性が飛躍的に向上することを明らかにした。具体的には、限界熱流束の飛躍的向上と核沸騰域における熱伝達の向上に大きく寄与することを実証した。

研究成果の概要（英文）：Feasibility of nanoparticles-assembled bi-porous structure on a heating surface is focused on in order to develop a new boiling heat transfer cooling device. This unique porous layer has both a micro/mini-pore structure with high permeability for discharging vapor and nano scale pore structure with a much stronger capillary effect as well as high wettability. It was confirmed that a water droplet intensely boiled and evaporated on a high temperature wall with the nanoparticles bi-porous layer even under Leidenfrost conditions. In addition, the life time of the droplet drastically decreases both in a high temperature and low temperature regimes, which proves that the nanoparticles-assembled bi-porous layer can enhance both heat transfer rate in a nucleate boiling regime and critical heat flux.

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	3,100,000	930,000	4,030,000

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

1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素の削減を目指して開発がすすむ電気自動車の次世代インバータでは、最大 $300\text{W}/\text{cm}^2$ の冷却が必要とされ、かつ SiC 素子温度を 200 度以下に保つ必要がある。通常、この様な高い熱負荷に対しては蒸発潜熱を有効的に活用する流動沸騰冷却が効果的であるが、エンジン冷却水の共用を期待できない電気自動車では浸漬環境における冷却手法を適用する必要がある。しかしながら平滑

面プール沸騰での限界熱流束は $100\text{W}/\text{cm}^2$ を超える程度であり、多孔質薄膜や壁面微細加工を用いる場合でも $300\text{W}/\text{cm}^2$ を超える限界熱流束と高い熱伝達率を得るのは至難の技である。そこで本研究では、ナノ粒子を二重構造として集積した「ナノ粒子バイポーラス構造体」により、固液の濡れ性と蒸気排出を同時に制御することを提案し、更にマイクロヒートパイプの毛細管熱輸送限界モデルを進展させ、伝熱面上に厚さ $10\ \mu\text{m}$ ほどのナ

ノ・マイクロ・バイポーラス構造膜を施工することで $1000\text{W}/\text{cm}^2$ を超える冷却が可能であることを予測した。更にナノ粒子バイポーラス構造体の製法として「沸騰付着法」を新たに提案し、通常、落下液滴が濡れずにライデンフロスト現象を起こすような高温面上でもナノ施工により液滴が瞬間的に蒸発する様子を確認した。これにより沸騰付着法による沸騰伝熱面が限界熱流束の向上に間違いなく寄与する事を明らかにした。

2. 研究の目的

本研究は、上述の予備的調査研究により得られたナノ粒子バイポーラス構造体の沸騰伝熱促進に対する高いポテンシャルを、制御された冷却技術へ発展させるための挑戦である。特に、

- (1) ナノ粒子バイポーラス構造体の製作と制御技術の確立
- (2) 沸騰伝熱への適用と有効性の実証
- (3) 電気自動車インバータを含むパワーデバイスへの装荷に向けた課題の抽出

の3点について明らかにすることを目的としている。

3. 研究の方法

本研究を確実に制御された技術へ発展させるため、研究内容を2つのフェーズ、すなわち基礎実験フェーズと応用実験フェーズに分けて、段階的かつ効率的に実施する。

研究初年度（平成23年度）では、主に基礎実験フェーズとして、ナノ粒子バイポーラス構造体の製作と沸騰伝熱促進へ有効な構造条件を明らかにするための実験を実施する。具体的には、沸騰付着法におけるナノ粒子添加溶液の塗布条件を変えて3Dデジタルマイクロスコープによる観察から、ナノ粒子バイポーラス構造体の制御条件を明らかにする。次に、製作した試験片上での液滴接触角の計測、ならびに高温面上における液滴の動的挙動の可視化と蒸発曲線の評価から、濡れ性促進と沸騰伝熱促進に適したナノ粒子バイポーラス構造体を推定する。

研究2年目に実施される応用実験フェーズでは、基礎実験フェーズにて推定されたナノ粒子バイポーラス体を、プール沸騰実験装置に装着して沸騰伝熱性能について実証するとともに、次世代インバータ冷却への適用のための課題について議論する。

4. 研究成果

- (1) ナノ粒子バイポーラス構造体の製作と制御技術の確立
研究者はナノ・マイクロスケールの孔が伝

熱面上に同時に施工できる沸騰付着法を独自に提案している。沸騰付着法とは、加熱した基板の上にナノ粒子を含有する溶液を塗布または滴下し、溶媒の沸騰現象を利用することで2重構造を有する機能性ポーラス体を施工する手法である。この施工方法によりナノ粒子の積層によるナノスケール孔と、沸騰時の蒸気の吹き抜けによるマイクロスケール孔を同時に発現させることができ、安価な施工方法でもあるため工学的応用上も非常に有望である。

一方、ナノ粒子バイポーラス構造体の施工技術における最大の問題点は、施工された構造膜の伝熱面からの剥離である。一般に、構造体バルクの熱膨張係数は基板のものと異なること、またナノ粒子分散溶液と伝熱面金属との濡れ性の問題から、ナノ粒子バイポーラス構造体を伝熱面上に一樣に付着施工することは非常に難しい。現に、本研究ではこの施工方法の確立に多くの時間を費やすことになった。施工環境における酸素濃度の調整や基板の研磨状態など、様々な試行錯誤から以下に記述する非常に有望な施工方向を確立することができた。

まず、基板となる銅の表面を500番のサンドペーパーで研磨した後、空気雰囲気中で表面温度を高温に維持し表面に酸化膜構造を形成する。酸化の度合いを面温度と加熱時間によって制御するが、本実験では面温度を $200\text{ }^\circ\text{C}$ 、加熱時間を10分とした。酸化膜構造を持たせる狙いは、銅表面上に形成された酸化膜がナノ粒子と銅基材を結びつけるストライクメッキとしての機能を果たすためである。図1は $200\text{ }^\circ\text{C}$ で加熱時間を10分に維持した際に形成される酸化被膜構造をSEMにより観察した写真である。基板表面にナノスケールからマイクロスケールの構造を確認することが出来る。サンドペーパーによるナノ・マイクロスケールの微細な研磨痕に酸化物が強く結びつくアンカー効果も期待でき、剥離のない強固な1次被膜を形成することが可能となる。一方、これ以上の加熱時間では構造が次第に平坦化され、液と構造面の濡れ性も大きく劣化することを確認している。このようにして基板表面に1次被膜を形成した後、選定したナノ粒子分散溶液を基板温度 $100\text{ }^\circ\text{C}$ ~ $200\text{ }^\circ\text{C}$ の範囲で塗布すると、図2に示すような強固なナノ粒子構造膜を形成することができる。図で使用したナノ粒子は酸化チタン粒子であり、図中矢印のスケールは $100\text{ }\mu\text{m}$ を表している。これにより、数十 μm の大孔が蜂の巣状に一樣に形成されており、かつ表面温度が高くなるに従い大孔サイズが小さく均一になっていることが分かる。大孔以外の領域はナノ粒子が積層した層であるため、これによりナノスケールの孔とマイクロスケールの孔が共存したバイポーラ

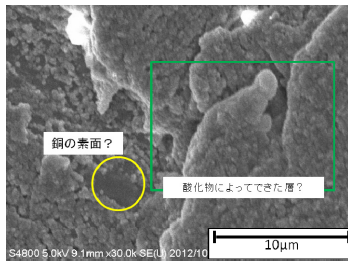


図1 高温加熱によって形成された酸化被膜

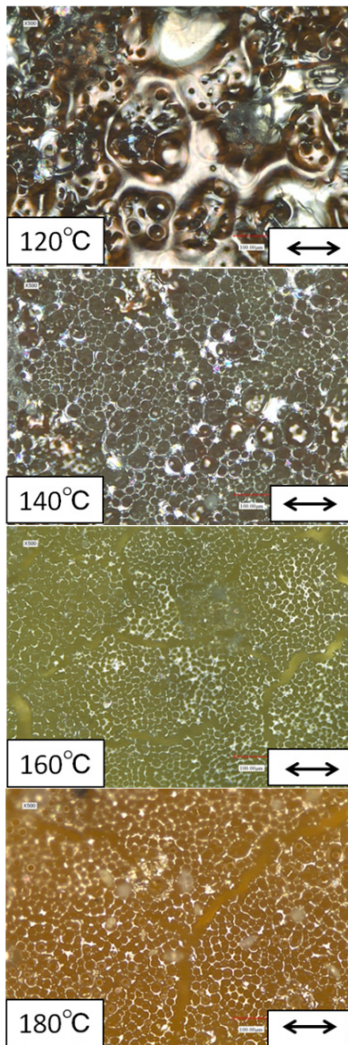


図2 ナノ粒子バイポーラス構造体

ス体が形成されていると言える。壁面温度 160 °C、180 °Cでは膜の割れも確認できるが、膜自身は表面に強固に固着している。以上により、この1次被膜形成法によって安定した沸騰付着法を確立できたと考ええる。なお、1次被膜の形成方法として、メッキにおいても酸化被膜に類似の構造体を持たせることが出来るため、基板に銅を使用しない場合においても沸騰付着法は有効であると考ええる。

(2) 沸騰伝熱への適用と有効性の実証

① 実験装置

得られたナノ粒子バイポーラス膜の沸騰伝熱への有効性を評価するため、高温面上における単一液滴の動的挙動と生存時間を評価する。図3は実験装置を表しており、直径60 mm、高さ70 mmの円柱型銅製伝熱ブロック上面に装着された20 mm角(厚さ3 mm)のナノ施工銅試験片をヒーターにより加熱し、その表面上にインジェクターでイオン交換水の液滴を滴下させることで、液滴の沸騰様相と生存時間(Life Time: 液滴が消滅するまでの時間)を評価する。試験片の温度は100 °Cから5 °C間隔で最大200 °Cまで上昇させる。伝熱ブロックの上部10 mmは銅試験面の装着のために取り外し可能なものとなっている。液滴挙動は最高フレームレート300/sの高速度カメラによって撮影される。注射針の直径は0.35 mmであり、これにより形成される液滴の大きさは約2 mmである。また、高温域における沸騰現象と液滴分裂の違いを明確に切り分けるため、液滴の落下高さ位置を10 mmとしてウェーバー数(Weber Number)が $We < 1$ となる条件を整えた。これにより、表面張力支配の安定した液滴を試験片上に落下させることができる。

なお、伝熱面に接近させる注射針は、100 °Cを超える高温の伝熱ブロックからの自然対流熱伝達と輻射によって加熱されるため落下液滴の液温を一定に保つことが難しい。これを回避するため、測定時以外はインジェクターを伝熱面上部から遠ざけ、かつ輻射シールドングプレートを設置した。これにより液温30 °Cでの液滴落下実験が可能となった。なお、本研究においてキーワードとなる濡れ限界温度を「液滴の一次接触から伝熱面上で完全に蒸発するまでの間に、主液が伝熱面上を2回以上離れた直前の温度」と定義する。

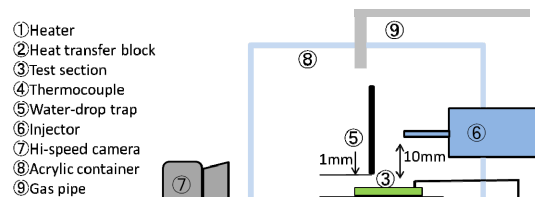


図3 液滴生存時間の評価装置

表1 ナノ粒子の特性

ナノ粒子	熱伝導率 W/(m・K)	溶媒	平均粒径 (nm)	濃度 (w%)
Al ₂ O ₃	237	D.W.	31	15
		Ethanol		
TiO ₂	21.9	D.W.	36	10
		Ethanol		15
ZnO	121	D.W.	34	15
		Ethanol		
CuO	398	D.W.	48	15
		Ethanol		



図4 実験パラメータ

② ナノ粒子の選定と施工方法

沸騰付着法で使用するナノ粒子分散溶液として、シーアイ化成が製造するナノ粒子超微粒子溶液「NanoTek Slurry」を使用する(表1参照)。このスラリーは平均粒径が約30～50nmの超微粒子からなる溶液であり、イオン交換水(D.W.)もしくはアルコール(主成分エタノール)を溶媒として選択することが出来る。ナノ粒子の重量濃度は10w%もしくは15w%であり、この溶媒を沸騰付着法で使用する原液とする。一般にナノ粒子のような微小粒子は分子間力によって空気中や液体中でクラスタリングと呼ばれる凝集現象を起こしやすいが、「NanoTek Slurry」は高い分散性を有しているため溶液内でもクラスタリングは発生せず、本実験に適した溶液である。

ナノ粒子の選定にあたっては、各種ナノ粒子の純金属の熱物性を参考にした。また、ナノ粒子の体積濃度がナノ粒子バイポーラス構造体の特性にどのような影響を与えるか調べるため、NanoTek Slurryの原液を蒸留水で更に希釈した。体積濃度は100、80、60、40 vol%であり、合計32種類に対する沸騰伝熱への影響を評価する(図4参照)。

一方、ナノ粒子溶液はそれぞれ固有の物性を有しているため、バルクとして発現する濡れ性もそれぞれ異なると考えられる。従って、ナノ粒子を含む液滴を単に高温面に落下させると沸騰付着法による施工面積、更には膜厚が変化する可能性があり、現にそのデータを取得している。従って、それぞれの溶液に対して、同一の施工面積を確保するため、スキージ法を参考に、ナノ粒子溶液が一定範囲内で一様に拡がるよう銅基板面上に「せき」を設け、構造体の施工面積の制御を試みた。「せき」は耐熱性のあるテフロンワッシャー(内径8mm、外径15mm)を採用した。また、

施工温度について、研究の第一ステップとし

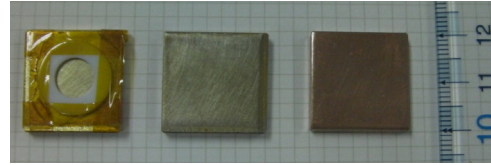


図5 セキにより施工面積の制御

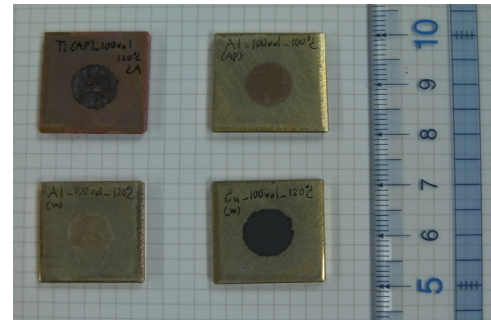


図6 沸騰付着法による施工面の一例

て、アルコール溶媒のものについては100℃、イオン交換水の溶媒については120℃とした。具体的には、図5のように加工した銅基板面上にテフロンワッシャーをカプトンテープで固定し、基板を所定温度に加熱した後、ナノ粒子溶液を20μL滴下する。施工後、被膜への熱衝撃を緩和するため10時間以上かけてゆっくりと常温へ戻す。図6に施工面の一例を示す。

③ 高温面上における液滴生存時間の評価

準備した各種バイポーラス構造体の試験片を実験装置に装着して加熱し、その面上にイオン交換水の液滴を滴下させてLife Time特性を評価する。32種類のナノ粒子バイポーラス施工膜について、設定温度である120℃/100℃で施工が十分でなかったものについては省略している(酸化アルミニウム(体積濃度60、80、100%)、酸化アルミニウム焼成(体積濃度100vol%)、酸化チタン(体積濃度100vol%)、酸化銅(体積濃度60、80、100%)のみ表示)。なお、使用する全ての施工面上での接触角の評価から、接触角が20°以下の新水面を示すことを確認している。図7はイオン交換水溶媒 NanoTek Slurry を用いたバイポーラス構造体(施工温度120℃)の濡れ限界温度に達するまでのLife time特性を示している。縦軸がLife Time、横軸が伝熱面温度である。凡例の数値は体積濃度を示している。各試料は濡れ限界温度に達するまでの値を示しており、伝熱面温度が低温域のときで30s以上のLife Timeを示したものは載せていない。図7からベア面のLife Time曲線に

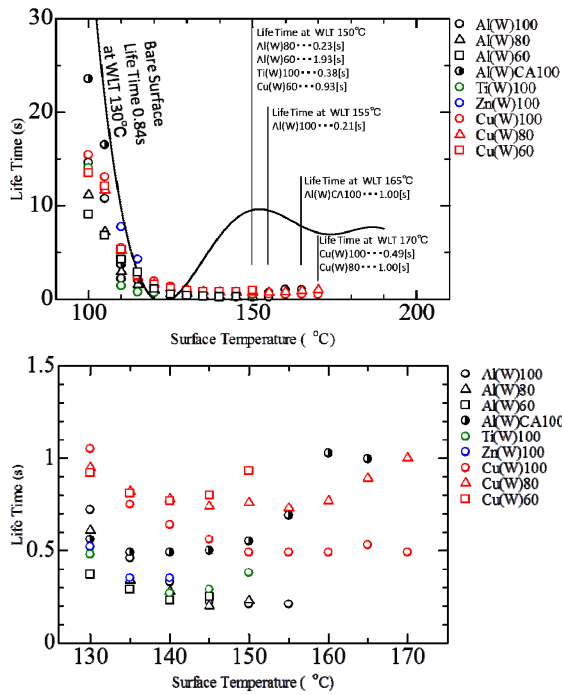


図7 バイポーラス構造体の Life Time 曲線 (イオン交換水:施工温度 120°C、下(拡大図))

対し、選定した全ての試料で高い液滴蒸発特性を示していることが分かる。具体的には、濡れ限界温度が非施工面のもものと比較して劇的に上昇し、更に、ベア面の濡れ限界温度である 125 度以上の高温域での蒸発時間が、例えば壁面温度 150 °C で施工無し面と比較して 1/10 以下に向上した。この事実は、ナノ粒子バイポーラス構造体が、限界熱流束の飛躍的向上に大きく影響することを示唆する結果であると考えられる。また、酸化亜鉛のナノ粒子以外について、ベア面の濡れ限界温度以下 (約 125 °C 以下) の低温域においても蒸発時間が短くなっており、これらの施工膜では活性なキャビティも増加し沸騰熱伝達率が向上することも予想できる。続いて、拡大図における高温域での Life Time 特性に注目する。濡れ限界温度条件において最も低い Life Time を示した試料は酸化アルミニウム (100vol%) である。最も高い濡れ限界温度を示した試料は酸化銅 (100 vol%) の約 170 °C であるが、全てのポーラス構造体において濡れ限界温度が 150 °C を超えていることが確認できる。大気圧環境における水プール沸騰では、限界熱流束時の壁面温度は 130 °C 足らずであることを考慮すると、何れのバイポーラス構造膜も限界熱流束の飛躍的な向上が期待できる。各種試料は最小 Life Time をそれぞれ示した後、濡れ性を維持しつつ Life Time が緩やかに上昇していく傾向を示すものが多い。これは最小 Life Time を示した温度 (MLT 点) を超えても液滴の挙動が完全な

Bouncing Motion へ遷移しにくいことを示唆している。この傾向は特に酸化銅 (100 vol%) では顕著で、明確な MLT 点を示すことなく 150°C~170 °C までほぼ同値の Life Time を示している。次に体積濃度に注目すると、濃度が高いものほど液滴蒸発特性が促進されていることが分かる。酸化アルミニウムのように濡れ限界温度で差を示すものもあれば、酸化銅のように、Life Time と濡れ限界温度双方において顕著な差を示す試料も存在する。一般に体積濃度が高い構造体ほど被膜厚さが増し濡れ限界温度も低下すると予想されるが、ナノ粒子構造膜の詳細な構造を含めた議論が必要である。一方、NanoTek Slurry の選定で各種ナノ粒子の純物質の熱伝導性を参考にしたが、図 7 においてそれらの影響による大きな差を見出すことはできなかった。なお、参考のため製作したアルミニウム粒子バイポーラス膜を 500°C の高温下で焼成したデータについても取得した。焼成体の濡れ限界温度は非焼成体より約 20°C 上昇する一方で、最小 Life Time では非焼成体の時間が約 2.5 倍となっている。現在のところ理由は明確ではないが、SEM による表面構造の評価が必要である。

参考のため、高い伝熱特性を示した酸化アルミニウム被膜の沸騰様相を図 8 に示す。ベア面であればライデンフロスト現象が生じる高温域 (155 °C) のものである。図から、

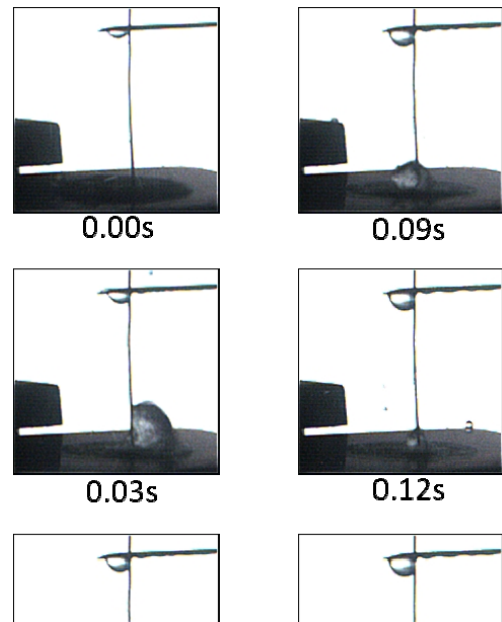


図 8 濡れ限界温度 (155°C) における酸化アルミニウム被膜上での液的挙動

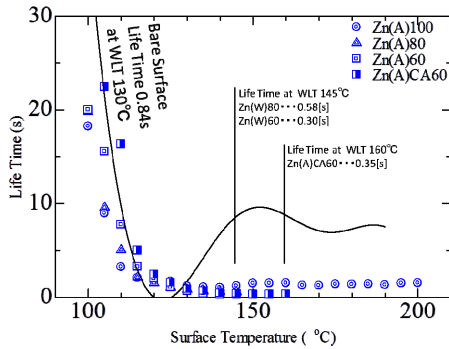


図9 バイポーラス構造体のLife Time 曲線 (エタノール溶媒：施工温度 100°C)

蒸気の激しい吹き抜けにより液滴が激しく変形しながらも、固液接触状態を失うことなく沸騰している様子が伺える。液滴沸騰形態マッピングではViolent Stirring Motionに相当すると考えられる。

続いてアルコール溶媒 NanoTek Slurry を用いたバイポーラス構造体(施工温度 100°C)に関し、濡れ限界温度に達するまでのLife time 特性を図9に示す。表示方法については図8と同様である。これより、同ペア面のLife Time 曲線に対し、特に高温域において高い液滴蒸発特性を維持していることが確認できる。濡れ限界温度において最も低い値を示した試料は体積濃度 60 vol%であり、最も高い濡れ限界温度を示した試料は体積濃度 100 vol%の試料である。この試料は測定の限界温度である 200°Cにおいても沸騰伝熱を維持するため、実際の濡れ限界温度は 200 °C以上であると考えられる。体積濃度による比較では、濃度が低いものほど濡れ限界温度のLife Time が低くなる傾向が見受けられ、イオン交換水溶媒とは逆の傾向を示している。焼成の影響に関し、最小Life Time の差は殆どないものの、焼成体の濡れ限界温度が約 15°C高くなっている。この傾向はイオン交換水溶媒と同様である。

以上、総括するとイオン交換水溶媒、エタノール溶媒ともに沸騰伝熱における核沸騰熱伝達および限界熱流束の向上の可能性を裏付けるデータを取得できた。今後、施工面温度を変化させたデータを蓄積するとともに、施工面縦断面における集積状況をSEMにより評価し、ナノ粒子バイポーラス構造体の微細構造(数密度や孔サイズなど)が沸騰伝熱に与える影響をプール沸騰実験とともに明らかにする。

(3) 電気自動車インバータを含むパワーデバイスへの装荷に向けた課題の抽出

本研究で提案するナノ粒子バイポーラス構造体を用いた沸騰伝熱促進技術を電子機

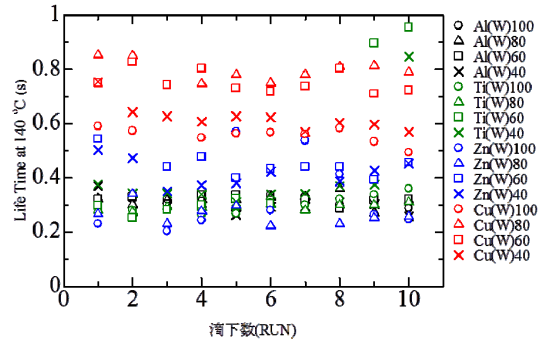


図10 バイポーラス構造体の耐久性能

器冷却へ適用するためには、先ずその冷却性能の維持と被膜の耐久性について検討する必要がある。図10は壁面温度 140 °CにおけるLife Time 特性に対する滴下回数の影響を表している。測定した試料は、酸化アルミニウム、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化銅の全体積濃度(100、80、60、40 vol%)の合計 16 種類である。合計 10 回の測定の中でLeidenfrost 現象を示した試料は図に載せていない。図10より、16種類全ての試料が高いLife Time 再現性を示しており、ナノ粒子の積層が強固であることを示している。今後、より長期的な実験による検討が必要である。また、Life Time の再現性を示す平均分散は 0.131 であり施工法についても若干の検討が必要と考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

Kazuhisa Yuki, Tessai Sugiura, Koichi Suzuki, Gang Chen, Boiling heat transfer enhancement with nanoparticles-assembled bi-porous structures 2nd International Workshop on Heat Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control (IWHT2013), 受理。

[学会発表] (計1件)

杉浦鉄宰, 結城和久, 鈴木康一, ナノ・マイクロ酸化構造膜制御による沸騰伝熱の促進, 日本原子力学会中国四国支部第6回研究交流会, 2012.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

結城 和久 (Yuki Kazhisa)

研究者番号：90302182