

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630064

研究課題名(和文) 光の波長に依存する粘弾特性を持つ機能性流体を利用した熱伝達制御に関する研究

研究課題名(英文) A Study on Light Control for Heat Transfer Performance Using Photo-sensitive Viscoelastic Fluids

研究代表者

中部 主敬 (Nakabe, Kazuyoshi)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80164268

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：小型の熱交換機器類への応用を視野に、伝熱性能を光の波長で簡便に制御する新規な方策を検討した。ある種の界面活性剤希薄水溶液に2-メトキシ桂皮酸(OMCA)とサリチル酸を少量混合すると、その粘弾特性は紫外光照射で顕著に変化することが分かった。この水溶液を伝熱媒体とし、紫外光照射による壁面熱伝達率・圧力損失の変化を調べた。その結果、両者とも光照射に対して不可逆的ではあるが大きく減少し、伝熱性能の光制御可能性を示すことができた。この要因は紫外光がOMCA分子の多くをトランス体からシス体に異性化させ、水溶液中に形成される紐状ミセルのネットワーク構造を変化させるためであると結論づけた。

研究成果の概要(英文)：To develop innovative methods to effectively control the heat transfer performance of heat exchangers, we investigated the easy-and-active control of heat transfer rates using photo-sensitive viscoelastic fluids, the properties of which can be tuned by light wavelength. A photo-sensitive chemical (OMCA) was added to an aqueous mixture of surfactants and counter-ions, the solution of which induces the formation of wormlike micelles. OMCA has trans- and cis-arrangements of the substituents, and trans-OMCA irreversibly undergoes a photo-isomerization to cis-OMCA upon exposure to UV light and shortens the micelles, so that the viscoelasticity of the aqueous solution as a working fluid of heat transfer becomes weaker as the exposure time increases. As a result, both the heat transfer coefficient and pressure loss penalty were decreased irreversibly with an increase in the exposure time, which implies attractive and realizable possibility for the light control of heat transfer.

研究分野：熱材料力学分野

キーワード：対流 機能性流体 熱伝達 光制御 粘弾性 異性体

1. 研究開始当初の背景

ミリメートル以下の狭小な流路内で水や空気のようなニュートン流体の流れは層流状態となり、壁面熱伝達率が乱流の場合に比して著しく低く、向上させ難い。そのため、非ニュートン性の機能性流体を活用した伝熱促進が古くから多く試みられている。研究代表者の研究室においても高分子 (PAAm^(#1)) や界面活性剤 (CTAC^(#2)) を他の化学物質および水と調合することで粘弾性のある機能性流体を作製して、それらを蛇行流路に流すことでニュートン流体の場合に比して4~5倍程度の伝熱性能が得られることを確認している^{(*)1}。一方、光による熱伝達制御の報告として、高分子 (OMCA^(#3)) の分子構造が紫外光照射によって不可逆的にトランス型⇒シス型に異性体変化を起こす特性 (フォトレオロジー) を利用した例^{(*)2}がある。

研究代表者は仏国の大学 (ENS^(#4)) に属する Baigl 教授の研究室に滞在した折りにアゾ基 (-N=N-) を有する高分子が光によってシス型⇌トランス型の可逆的变化を起こすことを確認するとともに、その合成方法を習得した^{(*)3}。それを基に OMCA の持つ -C=C- だけでなく、その他 -N=N- を含む高分子合成を行って他の化学物質と調合することで、PAAm や CTAC の場合と同様に粘弾性の発現する流体流れを実現することができれば、その伝熱特性を光照射によって可逆的に制御できるのではないかと、ということに思い至った。

(*)1 異, 永坂, Leong, H. C., 中部, *日本機械学会論文集 (B編)*, 79巻 797号 (2013), pp. 93-103.

(*)2 Shi, H, Wang, Y., Fang, B., Talmon, Y., Ge, W., Raghavan, S. R. and Zakin, J. L., *Langmuir*, vol. 27 (2011), pp. 5806-5813.

(*)3 V-Marques, A., Barbaud, F. and Baigl, D., *Journal of American Chemical Society*, vol. 135 (2013), pp. 3218-3223.

(#1) Polymethyl Methacrylate.

(#2) Cetyl-Trimethyl Ammonium Chloride.

(#3) Ortho-Methoxy-Cinnamic Acid.

(#4) Ecole Normale Supérieure.

2. 研究の目的

伝熱機器の狭小な流路内において熱交換が必要な領域ではニュートン流体以上の伝熱性能を発揮し、それ以外の領域では外部への熱損失防止のために伝熱性能を抑制するような空間的伝熱制御、あるいは、必要な時にだけ高い伝熱性能を発揮させるような時間的伝熱制御を行うことを目指す。そのための伝熱媒体として、光の波長に依存して粘弾特性が変化するような機能性流体の利用を考える。まず、分子構造が光照射によって変化する高分子を合成し、他の化学物質と調合して粘弾性の発現する非ニュートン性水溶液を製造する。そして、流動・伝熱特性を実測し、空気や水のようなニュートン流体との対比から光照射の有無による熱流動特性の

差異を実験的に明らかにし、その伝熱制御の有用性を判定する。具体的には以下の5項目を研究期間内に明らかにする：

- (1) 本研究で合成する化学物質が -C=C- あるいは -N=N- を含むような光異性化可能な構造であること。
- (2) その物質を含む水溶液が粘弾特性を発現するように、組み合わせる化学物質の種類、濃度等の条件を確定すること。
- (3) 水溶液の粘弾性が光照射の有無によって変化する特性ならびにその特性の光波長に対する依存性を調べること。
- (4) 水溶液の流動・伝熱特性を実測して照射光の波長、強度、時間などによる熱流動特性の差異を調べること。
- (5) 投入する光のエネルギー量を勘案した上で、光による伝熱制御の有用性ならびにニュートン流体に対する優位性について判定すること。

以上により、ミリあるいはマイクロメートルの長さスケールを持つ狭小な流路内において従来型のニュートン流体による層流伝熱特性を大幅に向上させるとともに、光照射によって空間的・時間的に伝熱特性を可逆制御する。このような研究は研究代表者の知るところ、これまでほとんどなされてきておらず萌芽的であり、新しい伝熱制御手法としてその詳細な機構を考察、解明することは伝熱学的に極めて興味深く、挑戦的内容を有しているものと考えられる。

3. 研究の方法

2年の研究期間に亘り、上章に示した5項目の目的を達成するための具体的な研究を以下に示すとおり遂行する。なお、光異性化する物質とそれに組み合わせる物質の水溶液が光の波長や強度に依存して、有意に粘弾特性を変化するかどうかの研究の遅速、成否を大きく左右することになる。

(1) 分子構造が光異性化する物質の合成

光照射に対して分子構造を変化させる化学物質の合成はこれまでに、研究代表者の研究室で実施してきた。その物質が -C=C- あるいは -N=N- の構造を有していることやトランス型⇌シス型の幾何異性体を取り得ることなどを明らかにするため、学内の化学系専攻に属する木村俊介教授の研究室に協力を仰ぎ、H-NMR法 (プロトン核磁気共鳴分光法) および紫外可視吸収スペクトル法 (UV-Vis法) によって得られるスペクトルを確認を行う。そのために、まず、この高分子の水溶液 (モル濃度として数10mMの希薄水溶液を想定している) で実験が行える程度に十分な量を確保できるように物質合成を行う。一方で、水溶液流れの可視化実験が行える流路系ならびに光学系を構築するとともに伝熱実験が行える温度測定系も構築する。

(2) 水溶液の粘弾特性の測定と検討

項目(1)で得た水溶液について、その粘弾特性をレオメーターで測定する。得られた複素弾性率 G の特性から、水溶液の貯蔵弾性率 (G の実部: G') ならびに損失弾性率 (G の虚部: G'') に関する濃度依存性を調べる。また、水溶液を可視化用流路に流すことでニュートン流体の流動様式と比較する。この場合、水溶液がミセルネットワークを構成して粘弾特性が陽に顕れることで流れに擾乱が与えられるような流路形状を設計、製作して、伝熱実験にも対応できるようにする。

(3) 粘弾特性の光波長依存性の確認

光照射の有無によって粘弾特性が発現するかどうかを確認し、粘弾特性が発現する場合には照射光の波長や強度と粘弾特性の間の依存性を詳細に検討する。

ここで前項(2)および本項(3)で得られる結果を吟味し、粘弾特性変化の可逆性ならび光波長依存性が構築した流路系で十分に発現するようであれば次項に進む。もし不十分と判定されれば、相性の高い他の化学物質を適切に選択、調合して粘弾特性を向上させた上で、再び、項目(2)、(3)を繰り返して光応答に最適な満足いく粘弾性水溶液を確定する。

一方で、項目(1)の流路系も適宜、改善して粘弾性発現による流れの高擾乱と光に対する高応答の確保ができるような工夫を行う。

(4) 照射光の有無や長さ、波長、強度による熱流動特性の差異の検証

照射光の有無や照射領域、照射時間、照射波長、照射強度によって水溶液流れが流路内でどのように変化するかを可視化実験によって詳細に調べる。また、PIV (粒子画像流速計) を利用した流路断面内速度分布、伝熱面の全領域に亘る平均熱伝達率、圧力損失の測定を行う。

(5) 光による伝熱制御の有用性およびニュートン流体に対する優位性の考察

項目(4)の実験結果に照らして、光による流動・伝熱制御が有用であるかどうか、また、ニュートン流体に比して伝熱特性が有意であるかどうかについての考察を行う有用性、優位性のいずれもが有意に秀でておれば本研究の目的は達成される。

一方で流路系に関する詳細な流れ場の数値予測も行い、実験値と比較することで今後、熱工学の新しい伝熱制御技術として更なる応用展開を目指す。

4. 研究成果

分子構造にトランス体、シス体と呼ばれる異性体を有する 2-メトキシ桂皮酸 (前出の OMCA) という塩は、光の波長がおおよそ 250nm ~ 350nm の範囲にある紫外光 (UV 光) を照射することでトランス体からシス体に不可逆的に変化することが知られている。また、臭化ヘキサデシルトリメチルアンモニウム (CTAB, 前出の CTAC と類似の陽イオン系界

面活性剤の一種) とサリチル酸ナトリウム (NaSal) を純水に溶かすと紐状ミセルのネットワーク構造を水溶液中に形成する。そこで、前者の OMCA を後者の CTAB/NaSal 水溶液に添加して作製した CTAB/NaSal/OMCA 混合水溶液 (CNO 水溶液) に注目し、それに UV 光を照射することで紐状ミセルのネットワーク構造が変化するかどうか、あるいは、混合水溶液の粘弾特性が変化するかどうかについて調べた。すなわち、作動流体としてこの混合水溶液を利用することで、UV 光照射による伝熱特性の制御可能性を探った。

まず、UV 光照射に先立って CNO 水溶液中の OMCA に占めるトランス-OMCA の含有率 ϕ の違いによる粘弾特性の変化を調べた。すなわち、OMCA 濃度一定の条件下で $\phi = 100\%$ のトランス-OMCA のみの水溶液から $\phi = 0\%$ のシス-OMCA のみの水溶液まで、様々な ϕ 値の異なる水溶液に対して粘弾特性をレオメーターで実測した。その一方で、UV 光を最大 8 時間まで照射した場合の粘弾特性の変化も同様に実測した。

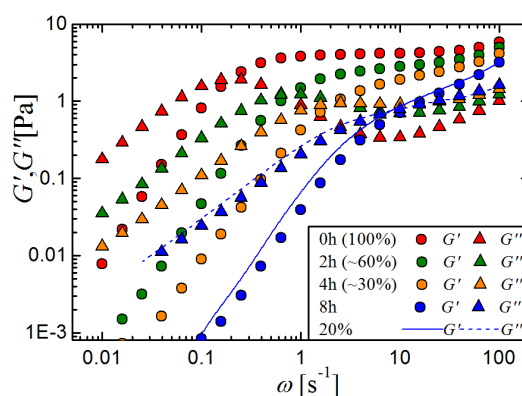


図1 CNO 水溶液の粘弾特性。

その結果、図1に示すとおり、 ϕ の値が小さくなる (すなわち、トランス体の濃度が低下して、逆にシス体の濃度が上昇する) につれて粘弾特性が失われ、緩和時間が短くなる傾向、すなわち、ニュートン流体的なものに変化する傾向を示すことが分かった。また、 $\phi = 100\%$ (トランス-OMCA のみ) の水溶液に UV 光を 8 時間照射したものは、 ϕ がおよそ 20% の CNO 水溶液と同等の粘弾特性を示すということも分かった。

次に、極低温透過型電子顕微鏡 (cryo-TEM) を利用して、CNO 水溶液中に形成される界面活性剤分子の絡み合い (紐状ミセル構造) の可視化観察を行った。得られた電顕画像を $\phi = 0\%$ (シス-OMCA のみ) の場合とトランス体を含む場合で比較すると、紐状ミセルの領域の数密度や長さに顕著な差が見られた。 $\phi = 100\%$ の水溶液に UV 光を照射したものについても同様の差が生じることが確認できた。

上記 2 つの実験結果から、混合水溶液の粘弾特性の変化と紐状ミセルのネットワーク

構造の違いとを関連づけることができた。さらに、これらのトランス-OMCAの含有率 ϕ の各条件に対して、伝熱実験を行い、平均熱伝達率ならびに圧力損失を測定した。

伝熱実験には水溶液の粘弾性効果が発現しやすい流路形状として半円形の湾曲ユニットを直列に多数連結した蛇行流路を選び、等温加熱される流路側壁全域の平均ヌセルト数を求めた。図2にその結果をレイノルズ数に対してプロットした。同図からトランス体の含有率が低下する程、あるいはUV照射時間が長くなる程、いずれのレイノルズ数に対しても全体的に平均ヌセルト数が小さくなり、充分発達した流れにおけるニュートン流体の場合の値に近づく傾向にあることが分かる。

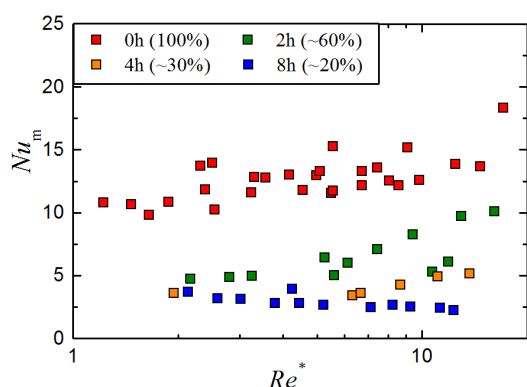


図2 レイノルズ数に対する平均ヌセルト数の変化。

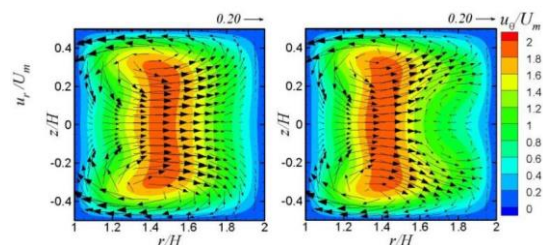
また、圧力損失についても同様の傾向を示すことが分かった。これらの傾向はやはり ϕ の値の低下に伴うトランス体の粘弾特性の消失、ならびに、紐状ミセルのネットワーク構造の変化に関連づけることができる。

以上のことから、照射によって伝熱特性が制御可能であることを示すことができたが、本研究ではOMCAが持つ-C=C-の構造の光感受性に依存し、伝熱特性はあくまで不可逆的にしか制御できていない。また、ワイゼンベルグ数に代表される緩和時間などの粘弾特性と伝熱特性がどのような関連性を有するかについても十分な考察が行えておらず、本研究の現象表現に有用な新たな伝熱パラメータ創出の可能性もある。今後、-N=N-のような光に対して可逆的に異性化するような物質を利用して伝熱媒体を作製する必要がある。また、光異性化する物質にとって最適なUV光源を準備すること、伝熱実験と並行して水溶液の吸収スペクトルの測定が行えるような光学系を構築することで、より詳細な伝熱機構解明と新たな伝熱技術開発に向けて支障なく研究が遂行できる工夫を行う必要がある。

伝熱実験と並行して流れの可視化実験、PIVを使った速度分布測定も実施し、その結

果として、トランス-OMCAの含有率が高い場合、流路断面内において非定常な縦渦構造が明瞭に観察された。

この複雑な流れ場が伝熱特性に大きな影響を及ぼしていると思われる。そこで粘弾性流体流れの数値解析も実施してきており、その一例として図3(a)および(b)に流路断面内の流速分布パターンを示す。



(a) 1対の縦渦 (b) 2対の縦渦

図3 断面内の瞬間速度分布。

現状では伝熱実験と同程度の低いレイノルズ数範囲 ($Re \sim O(10^0)$) において定常解しか得られていないので、非定常な挙動が見られるようになるレイノルズ数範囲 ($Re \sim O(10^2)$) に注目して速度分布や法線応力分布を調べている。同図には流路断面内の流速分布パターンとして、1対の大規模な縦渦が生じている時間帯と2対のそれが存在する時間帯が交互にあることが示されている。

このような縦渦の発生頻度に応じて伝熱特性が大きく変わる可能性のあることから、今後、更なる伝熱機構解明に向けた詳細な流動構造の分析が必要と考えている。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 11 件)

- ① 河原田賢, 藤井崇史, 巽和也, 中部主敬, 界面活性剤水溶液の低レイノルズ数流れにおける伝熱特性の光制御 (Light-Tuning of Heat Transfer Performance for Low Reynolds Number Flow of Surfactant Solution), 日本機械学会 第19回動力・エネルギー技術シンポジウム, 福井市 (2014.6.27).
- ② 藤井崇史, 河原田賢, 巽和也, 中部主敬, 界面活性剤水溶液の低レイノルズ数流れにおける伝熱特性の光制御-第2報: 照射の効果- (Light-Tuning of Heat Transfer Performance for Low Reynolds Number Flow of Surfactant Solution -2nd Report: Effect of the Light Irradiation), 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2014, 東京都 (2014. 11. 9).
- ③ 塩冶健, 河原田賢, 巽和也, 中部主敬, 感光性を有する立体異性体を利用した低レイノルズ数流れの伝熱制御, 日本機械学会 関西支部第90期定時総会講演会, 京都市 (2015. 3. 16), p. 483.

- ④ 木村隆一, 篠塚尚明, 巽和也, 中部主敬, 蛇行流路内における低レイノルズ数粘弾性流体流れの乱れと伝熱特性—第5報: 発達遷移領域における局所伝熱特性—, 第52回日本伝熱シンポジウム, 福岡市 (2015. 6. 3).
- ⑤ TATSUMI Kazuya, KIMURA, Ryuichi, SHINOTSUKA, Naoaki, and NAKABE Kazuyoshi, Heat Transfer Characteristics of Viscoelastic Fluid in Transitional Flow through a Serpentine Channel, International Symposium of Turbulence, Heat and Mass Transfer, Sarajevo, (2015. 9. 16), 査読有.
- ⑥ TATSUMI Kazuya, SHINOTSUKA, Naoaki, KIMURA, Ryuichi, and NAKABE Kazuyoshi, Vortices and Heat Transfer Characteristics of Viscoelastic Fluid in Serpentine Channels, International Symposium on Rheology, 神戸市, (2015. 9. 24), 査読有.
- ⑦ 塩冶健, 河原田賢, 巽和也, 中部主敬, 光異性化反応を利用した低レイノルズ数流れの熱流動制御, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2015, 吹田市 (2015. 10. 25).
- ⑧ KAWAHARADA, Ken, FUJII, Takafumi, ENYA, Takeshi, TATSUMI Kazuya, NAKABE Kazuyoshi, Light-Tuning of Heat Transfer Performance for Low Reynolds Number Flow of Micellar Solution, The First Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC 2016), Hawaii (2016. 3. 14), 査読有.
- ⑨ NAKAYAMA, Kai, TATSUMI Kazuya, NAKABE Kazuyoshi, Numerical Study on Unsteady Flow and Heat Transfer Characteristics of Viscoelastic Fluids in Serpentine Channels, The First Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC 2016), Hawaii (2016. 3. 14), 査読有.
- ⑩ 中山開, 巽和也, 中部主敬, 蛇行流路内における低レイノルズ数粘弾性流体流れの乱れと伝熱特性, 第53回日本伝熱シンポジウム, 大阪市 (2016. 5. 25).
- ⑪ ENYA, Takeshi, KURIYAMA, Reiko, TATSUMI Kazuya, NAKABE Kazuyoshi, Heat Transfer Control by Light Irradiation to Low Reynolds Number Flows Using Photosensitive Micellar Solution, The 4th International Forum of Heat Transfer (IFHT 2016), 仙台市 (2016. 11. 2, 発表申込中), 査読有.

[その他]

ホームページ等

京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻
熱材料力学研究室 (Mechanics of Thermal
Fluid and Material)

<http://mtfm.me.kyoto-u.ac.jp/home2/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中部主敬 (NAKABE, Kazuyoshi)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 80164268

(2) 研究分担者

巽和也 (TATSUMI, Kazuya)
京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 90372854