

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：17104

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630068

研究課題名(和文) ナノキャビティによる沸騰伝熱促進メカニズムの究明

研究課題名(英文) Nanocavity at Solid-liquid Interface and Boiling Enhancement

研究代表者

長山 暁子 (Nagayama, Gyoko)

九州工業大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：60370029

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：非平衡分子動力学解析および微視的な実験観察を用いて、ナノキャビティや固液界面エネルギー(濡れ性)などを含めた伝熱面の表面性状が核生成に及ぼす影響を調べ、沸騰現象に対する最も基本的な理解を得ることが本研究の目的である。固液界面からの不均質核生成は、界面エネルギー分布に依存し、必ずしもキャビティに依存しないことが分かった。また、マイクロキャビティは初期気泡核や気泡の成長や離脱にはほとんど寄与せず、むしろ、伝熱面に分布するナノキャビティの数密度が大きければ大きいほど、気泡が合体・離脱が促進され、最終的に多くの文献で報告された沸騰伝熱促進効果につながったのではないかと考察できる。

研究成果の概要(英文)：Evidence of the existence of nanobubbles have been provided by both the non-equilibrium molecular dynamics simulations and the experiments. Bubble occurs at the solid-liquid interface with ununiform surface energy distribution but not totally depends on the structured cavity. For a surface or a structured surface with uniform surface energy distribution, the phase change of liquid to vapor only occurs at the liquid-vapor interface as evaporation. The growth and the departure of the initial bubble seem to be independent on the cavity size or shape, but depends on the density of nanocavity and the degree of superheating and subcooling. The mechanism of boiling enhancement at nanocavity surfaces can be explained as the enhancement of the bubble coalescence due to the increased density of nucleation sites.

研究分野：熱工学

キーワード：沸騰伝熱 分子動力学解析 固液界面 ナノ・マイクロキャビティ 濡れ性 核生成理論

1. 研究開始当初の背景

沸騰は伝熱における重要な現象でありながら、学術的には未解明な点が多い。沸騰伝熱性能を向上するにあたって、従来から数 $\mu\text{m}$ から数百 $\mu\text{m}$ オーダーのキャビティを固体表面に形成する技術がよく知られるが、近年ナノキャビティを固体表面に形成する技術が注目されている。2008年7月に、ナノキャビティを用いた沸騰伝熱面が平坦面より最大17倍も大きい熱流束を得た論文が公表された (S. Li et al., "Nature-Inspired Boiling Enhancement by Novel Nanostructured Macroporous Surfaces", Adv. Funct. Mater. 2008)。以後ナノ・マイクロ構造面による沸騰伝熱促進効果が多く報告された。しかし、これらのナノキャビティを設けた伝熱面は、従来の表面粗さとは異なる概念の超平滑面であり、分子レベルから現象解明の必要がある。発泡点密度または気泡の離脱との関連性が不明のまま、沸騰伝熱促進あるいはCHF向上のメカニズムが理解されていない。

一方、従来では、図1に示すように、固体表面のキャビティは有効な気泡核を提供す

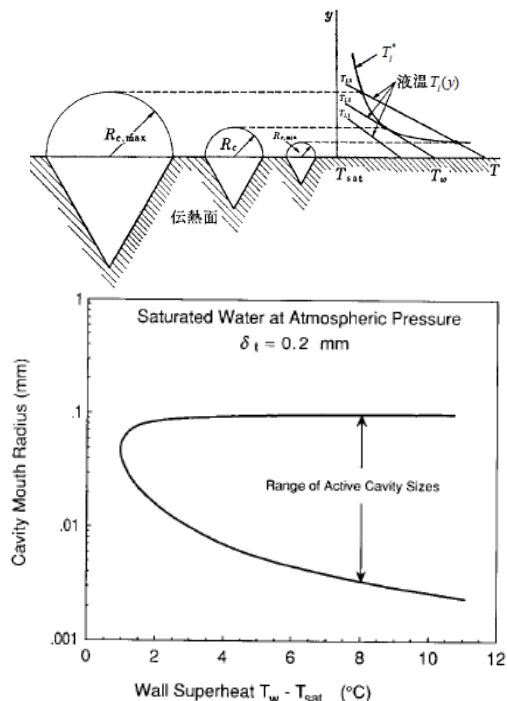


図1 Hsuの解析による活性キャビティの有効サイズ範囲 (出典: V. P. Carey, "Liquid-vapor phase-change phenomena", 1992, Hemisphere Pub.)

る役割を果たし、そのサイズは温度境界層の厚みに依存するモデルが構築されている (Y. Y. Hsu, J. Heat Transfer 1962; V. P. Carey, Liquid-vapor phase-change phenomena 1992)。既存のモデルによれば、活性キャビティの有効サイズは、おおよそ $\mu\text{m}$ オーダーであり、ナノサイズのキャビティは有効な気泡核としての可能性に疑問を生じる。加えて、ナノキャビティで生成した気泡核の安定性についても古典核生成理論の適用が疑問に残り、既存の理論体系では上記ナノキャビティによる沸騰伝熱促進機構を説明できない。

これまでに、著者は常温・常圧の条件下において、ナノ気泡は安定的に存在し、図2に示すようになかなか消滅しにくいことを実験より確認した。しかし、古典的均質核生成理論によれば、このような臨界半径以下の気泡については、長時間維持・存在することができないとされる。例えば、半径100nmのナノバブルの内圧はYoung-Laplaceの式によれば14atm、すなわち、常識をはるかに超える値 (自動車タイヤの空気圧を2atmとするとその約7倍) になる必要がある。ナノ気泡の存在を、平成23-25年度の挑戦的萌芽研究「ナノ気泡・液滴の界面特異性の学理探求」を通して、Young-Laplaceの修正式を提案することで理論的に説明できるようになった。これまでの研究結果を沸騰伝熱問題に適用し、ナノキャビティによる核生成のメカニズムを解明できるのではないかと本研究の着想に至った。

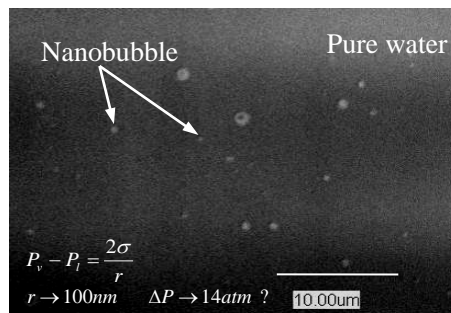


図2 静止状態における純水中のナノ気泡の走査型共焦点レーザー顕微鏡画像

## 2. 研究の目的

本研究では、非平衡分子動力学解析および微視的な実験観察を用いて、ナノキャビティや固液界面エネルギー（濡れ性）などを含めた伝熱面の表面性状が核生成に及ぼす影響を調べ、沸騰現象に対する最も基本的な理解を得ることを目的とする。学術的な基本理解に基づいて、ナノキャビティによる沸騰伝熱促進メカニズムを解明する。

## 3. 研究の方法

本研究はナノスケールの気泡を研究対象とする。現象解明に有効な分子動力学シミュレーションを用いると同時に、微視的な実験観察・計測を行い、固液界面および液中のナノ気泡の挙動を検証する。

分子動力学計算は九州大学情報基盤センターのスーパーコンピューティングシステムの高性能並列計算機を利用して行った。計算系は数千から数万個の液体分子と固体分子からなり、液体分子と固体分子間の分子間相互作用を表すポテンシャルパラメータを

調整することにより異なる界面濡れ性を実現した。また、固体面のバルク相の温度を一定にすることによって、等温加熱の条件を実現し、平坦面およびナノ構造面における不均質核生成で発生したナノ気泡について解析を行った。

実験計測については、走査型共焦点レーザー顕微鏡 (OLYMPUS 社製 LEXT OLS3000) および加熱・冷却ステージを活用し、固液界面および液中のナノ気泡の挙動を観察した。作動液には、超純水および、超音波振動によって発生したナノバブルを含有する超純水を用いた。さらに、界面の濡れ性などが起因する界面抵抗について、マイクロチャンネル法を用いた評価を行い、界面抵抗のスケール効果ならびに核生成に及ぼす影響を検討した。

## 4. 研究成果

### (1) 分子動力学計算結果

図3に親水・疎水複合ナノ構造面における液膜の不均質核生成および気泡の成長過程

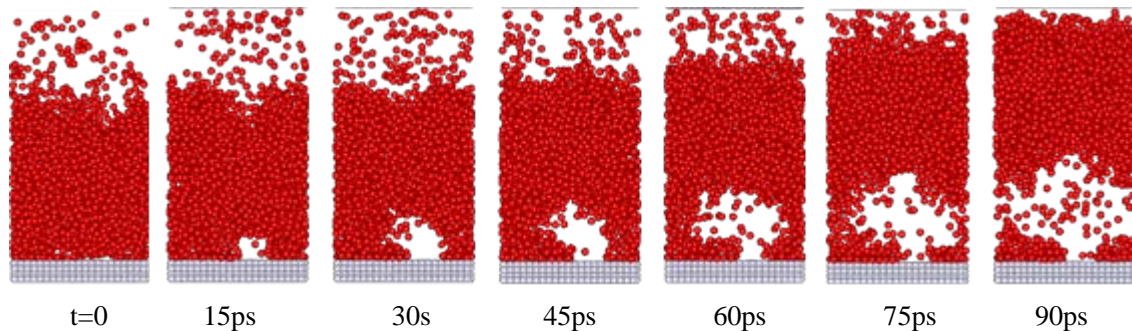


図3 親水・疎水複合ナノ構造面における液膜の不均質核生成・気泡成長・離脱

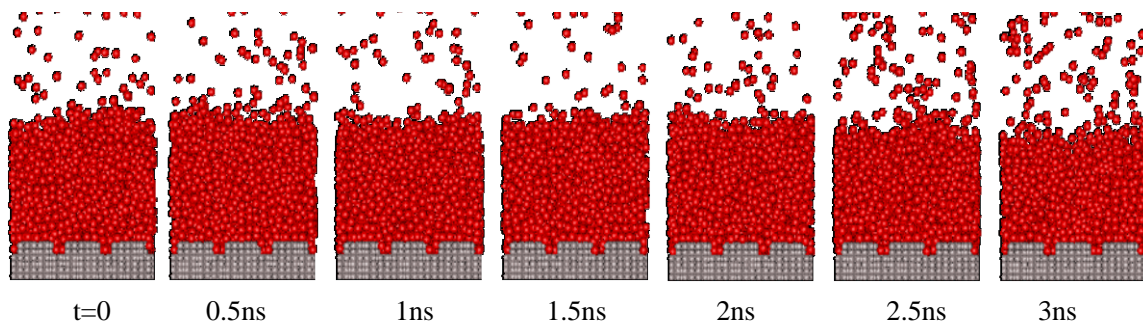


図4 親水性ナノ構造面における液膜の蒸発挙動

の計算スナップショット例を示す。気泡は親水面では発生せず、疎水面、すなわち、ナノキャビティのサイズ(幅)に合わせて発生し、その後のさらなる加熱より成長していく様子を確認できる。初期気泡核はナノキャビティのサイズ(幅)に依存するが、離脱半径はナノキャビティと関係なく、バルクの液相温度、すなわち、過冷度に依存する結果になる。また、濡れ性が一樣な固液界面では、同様な計算条件を課しても、不均質核生成が発生しないことを確認した。親水性のナノ構造面で液膜を加熱する際、図4に示すように、液膜の気液界面から蒸発を確認できるが、固液界面からの不均質核生成は、全く生じないことが分かった。

以上より、固液界面からの不均質核生成は、界面エネルギー分布に依存し、必ずしも界面構造・形状・キャビティに依存しないことが分かった。また、ナノキャビティは初期気泡核の生成に関与するが、気泡の成長や離脱にはほとんど寄与しないことが分かった。伝熱面に分布するナノキャビティの数密度が大きければ大きいほど、気泡が合体・離脱が促進され、最終的に多くの文献で報告された沸騰伝熱促進効果につながったことが考察できる。

## (2) 実験観察・計測結果

超音波振動によって発生した液中のナノ気泡は、不純物があれば、気泡の合体・浮上

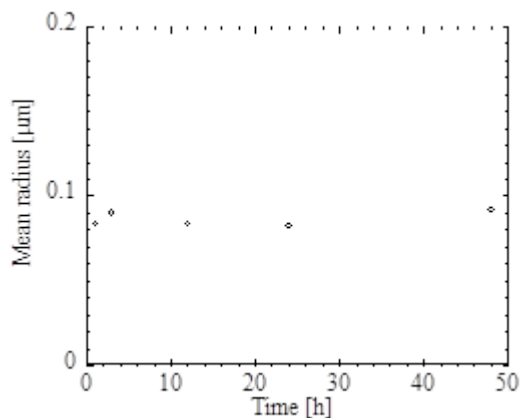


図5 常温常圧における超純水液中のナノバブルの平均半径の経時変化。

より液中に長時間に存在することができない。本研究では、同様な実験方法で精製水、超純水、NaCl水溶液、エタノール水溶液などの作動液にナノバブルを発生したが、超純水の液中のみ長時間に亘ってナノバブルが安定的に存在することを確認した。図5に超純水中のナノバブルの平均半径の時間変化の一部を示す。

一方、固液界面における不均質核生成については、分子動力学解析結果と同様に、濡れ性が均一な平坦面では超純水のナノ気泡がほとんど観察されなかった。図6に大気圧下において撮影したシリコンの固液界面の共焦点レーザー顕微鏡画像を示す。図6(a)に示すように、超純水の固液界面には気泡が飽和温度以下では検出されなかった。しかし、ナノ気泡含有水の固液界面では、図6(b)-(d)に示

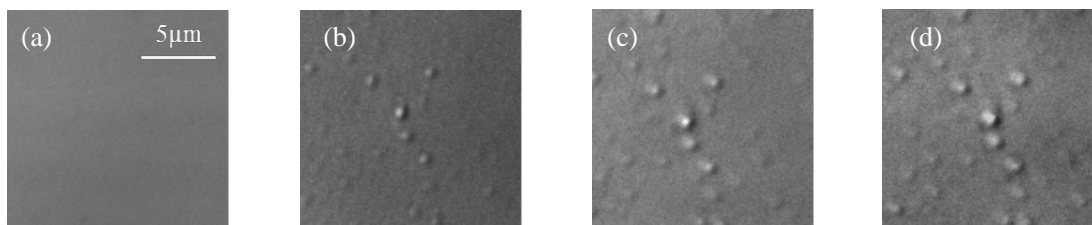


図6 Siの固液界面の共焦点レーザー顕微鏡画像：(a) 超純水中  $T_{si}=298K$ ; (b) ナノ気泡含有水中  $T_{si}=298K$ ; (c) ナノ気泡含有水中  $T_{si}=313K$ ; (d) ナノ気泡含有水中  $T_{si}=323K$ .

5 μm



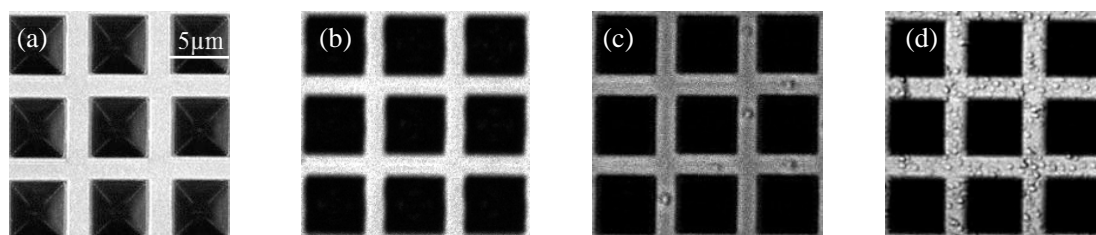


図7 Si マイクロ構造面の共焦点レーザー顕微鏡画像：(a) 空气中；(b)超純水中  $T_{si}=298K$ ；(c) ナノ気泡含有水中  $T_{si}=298K$ ；(d) ナノ気泡含有水中  $T_{si}\approx 353K$ .

すように、飽和温度以下であっても、液中のナノ気泡が固液界面に吸着・合体され、壁面加熱とともに気泡径が大きくなっていく。

図7にSiマイクロ構造面で得た固液界面の共焦点レーザー顕微鏡画像例を示す。図7(a)には空气中に置いてあるSiのマイクロ構造面を示しており、ピッチ $7\mu m$ で $5\mu m\times 5\mu m$ のくぼみを有することを確認できる。Siのマイクロ構造面を超純水に浸漬した場合には、気泡が観察されなかった。しかし、ナノバブル含有水を用いた場合は、図7(c)に示すように、常温では液中のナノ気泡が固液界面上の $2\mu m$ の固相部において吸着・合体される。飽和温度以下で加熱しても、固液界面のナノ気泡が $2\mu m$ 以上に成長せず、発泡点密度が著しく上昇することが確認できる。すなわち、初期の気泡核は、図1に示すマイクロキャビティを必要としなくても発生できることが明らかである。

以上の実験結果より、分子動力学解析結果と同様に、固液界面からの不均質核生成は、界面エネルギー分布に依存し、必ずしも界面構造・形状・キャビティに依存しないことが分かった。また、マイクロキャビティは初期気泡核や気泡の成長や離脱にはほとんど寄与しないことが分かった。むしろ、伝熱面に分布するナノキャビティの数密度が大きければ大きいほど、気泡が合体・離脱が促進され、最終的に多くの文献で報告された沸騰伝熱促進効果につながったのではないかと考察できる。

今後は、気泡の離脱のその場観察を行うことにより、現象をさらに解明していくことに期待したい。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

(1) Gyoko Nagayama, Takenori Matsumoto, Kohei Fukushima and Takaharu Tsuruta, Scale Effect of Slip Boundary Condition at Solid-Liquid Interface, *Scientific Reports*, Vol. 7, 43125, pp. 1-8, 2017. (査読有)

(2) Keisuke Arita, Gyoko Nagayama and Takaharu Tsuruta, Mechanism of Nanobubble in Ultra-pure Water, *Proceedings of the 27<sup>th</sup> International Symposium on Transport Phenomena*, Paper No. 185, pp.1-6, 2016. (査読有)

[学会発表] (計2件)

(1) 有田圭佑, 長山 暁子, 鶴田 隆治, Mechanism of Nanobubble in Ultra-pure Water, 第27回輸送現象国際シンポジウム, 2016年9月22日, ハワイコンベンションセンター (アメリカ合衆国ハワイ州ホノルル).

(2) 有田 圭佑, 中尾 政也, 長山 暁子, 鶴田 隆治, 超純水および水溶液中のナノバブルの実験観察, 第52回日本伝熱シンポジウム, 2015年6月4日, 福岡国際会議場 (福岡県福岡市).

[その他]

ホームページ等

<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・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：60370029