

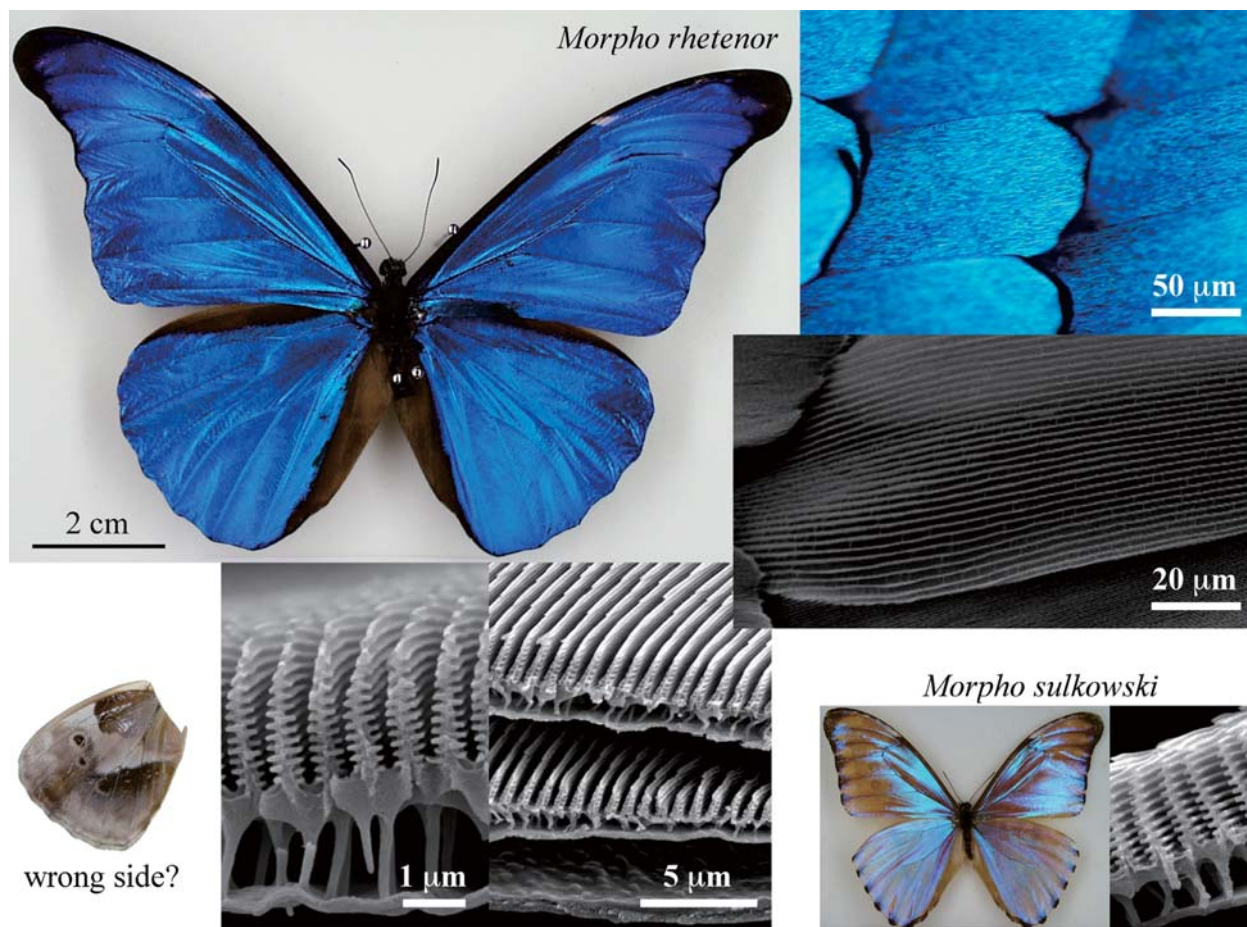
伝 熱

Journal of the Heat Transfer Society of Japan

ISSN 1344-8692 Vol. 47, No. 201
2008. 10

HSTJ

◆特集：マイクロリアクター◆



構造色の代表, モルフォ蝶 (レテノール)

King of Structural Color, Morpho Butterfly (rethenor)

山田 純 (芝浦工業大学) *Jun YAMADA (Shibaura Institute of Technology)*
jyamada@sic.shibaura-it.ac.jp

今月のグラビア美人は、美しい翅を持つことで有名な南米出身のモルフォ蝶です。生物学的な分類では、鱗翅目タテハチョウ科モルフォチョウ亜科に属しています (幼虫の形態からジャノメチョウ亜科に分類されることもあるそうです)。上の写真は、その中で私のもっとも好きなレテノールという種です。この美しい青をもつ蝶は、残念ながら♀です。もう既に有名ですが、この青は、色素ではなく、翅を一面に覆う鱗粉上の複雑な微細構造に由来しています。翅上の鱗粉は、右上に示すように、約 $200\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ の大きさを持ち、瓦屋根状に並んでいます。引き続き白黒写真は SEM イメージで、順次倍率をあげながら観察したものです。低倍率では、鱗粉上に縦縞が見えますが、それらは平行に並んだ壁状のもの (ridge) あることがわかります。さらに拡大すると、そこから水平に棚状のもの (lamella) が突き出しているのが見えます。基本的には、この lamella が多層干渉膜として働くことで、この青を発色していると言われていました。ただし、単純な多層薄膜構造ではないために、人を魅了する「いろ・つや」が生み出されたとも考えられています。

さて、右下の写真は、モルフォ蝶スルコフスキーです。この蝶もレテノールと全く同じに見える微細構造を鱗粉上に持ちますが、レテノールのような鮮やかな青にはなっていません。この色の違いを知るには、さらなる研究が必要でしょう。

最後に、あまり見る機会のない翅の裏側をちょっとだけ (左下)。ジャノメチョウ (蛇の目蝶) 亜科に分類されることがあるのもうなずけます。

伝 熱

目 次

〈特集：マイクロリアクター〉

マイクロプラズマを用いたシリコンナノ粒子合成	野崎智洋 (東京工業大学)	1
アルマイトプレート触媒を用いたマイクロリアクターの開発	桜井 誠 (東京農工大学)	8
固体高分子形燃料電池触媒層に対するマルチスケール計算化学アプローチ	古山通久, 金 寶英, 服部達哉, 鈴木 愛, サヌーン リアド, 坪井秀行, 島山 望, 遠藤 明, 高羽洋充, デルカルピオ カルロス, 久保百司, 宮本 明 (東北大学)	14
ナノテクを利用した熱電発電の高効率化	宮崎康次 (九州工業大学)	20
マイクロ熱光発電システムの開発に向けて	鈴木雄二 (東京大学)	26

〈プロジェクトQ〉

家庭用ガスエンジンコージェネレーションシステム「エコウィル」の学習制御の開発	八木政彦 (大阪ガス株式会社)	33
--	-----------------	----

〈国際会議報告〉

第2回国際伝熱フォーラム (IFHT2008) (東京)	中別府 修 (明治大学)	38
------------------------------	--------------	----

〈International Letter〉

パーデュー大学原子力熱水力研究室における研究活動について	石井 護, 日引 俊 (パーデュー大学)	43
------------------------------	----------------------	----

〈Heart Transfer〉

お湯の 100℃は熱いが, 油の 100℃は熱くない?	姫野修廣 (信州大学)	47
-----------------------------	-------------	----

〈巻頭グラビア : heat-page〉

構造色の代表, モルフォ蝶 (レテノール)	山田 純 (芝浦工業大学)	表紙裏
-----------------------	---------------	-----

〈行事カレンダー〉

		51
--	--	----

〈お知らせ〉

(株) エヌ・ティー・エスに感謝状を贈呈		53
公益法人制度改革に伴う日本伝熱学会の法人名称について		54
第46回日本伝熱シンポジウム講演論文募集		55
優秀プレゼンテーション賞 (第46回日本伝熱シンポジウム) について		58
事務局からの連絡		59
編集出版部会ノート		64

CONTENTS

<Special Issue on Micro-reactor>

In-flight microplasma synthesis of silicon nanoparticles
Tomohiro NOZAKI (Tokyo Institute of Technology) 1

Development of micro reactor using alumite plate catalysts
Makoto SAKURAI (Tokyo University of Agriculture and Technology) 8

Multi-Scale Computational Chemistry Study of Polymer Electrolyte Fuel Cell Catalyst Layer
Michihisa KOYAMA, Boyeong KIM, Tatsuya HATTORI, Ai SUZUKI, Riadh SAHNOUN,
Hideyuki TSUBOI, Nozomu HATAKEYAMA, Akira ENDOU, Hiromitsu TAKABA,
Carlos DEL CARPIO, Momoji KUBO, Akira MIYAMOTO (Tohoku University) 14

Enhancement of Thermoelectric Efficiency by using Nano-Technology
Koji MIYAZAKI (Kyushu Institute of Technology) 20

Toward Development of Micro Thermophotovoltaic System
Yuji Suzuki (The University of Tokyo) 26

<Project Q>

Development of Self-learning Function for Residential Gas Engine Cogeneration System “ECOWILL”
Masahiko YAGI (Osaka Gas co., Ltd.) 33

<Report on International Forum>

The 2nd International Forum on Heat Transfer(IFHT2008) @Tokyo
Osamu NAKABEPPU (Meiji University) 38

<International Letter>

Research Activities of Thermal-hydraulics and Reactor Safety Laboratory at Purdue University
Mamoru ISHII, Takashi HIBIKI (Purdue University) 43

<Heat Transfer>

Is it true that boiling water at 100 °C is hot, but oil at 100 °C is not hot?
Nobuhiro HIMENO (Shinshu University) 47

<Opening-page Gravure: heat-page>

King of Structural Color, Morpho Butterfly (rethenor)
Jun YAMADA (Shibaura Institute of Technology) Opening Page

<Calendar> 51

<Announcements> 53

マイクロプラズマを用いたシリコンナノ粒子合成

In-flight microplasma synthesis of silicon nanoparticles

野崎 智洋 (東京工業大学)

Tomohiro NOZAKI (Tokyo Institute of Technology)

e-mail: tnozaki@mech.titech.ac.jp

1. はじめに

2003年～2007年、文部科学省特定領域研究「プラズマを用いたマイクロ反応場の創成とその応用(通称マイクロプラズマ):代表・橘 邦英(京都大学・教授)」が行われた[1,2]. 著者は2004年～2005年の2年間、公募研究の代表者としてプロジェクトに参画したことをきっかけに、マイクロプラズマによるシリコンナノ粒子合成に関する研究を開始した. 当初、マイクロ空間で反応性プラズマを創るための技術開発が中心で、シリコンナノ粒子の合成はその応用探索という位置づけであったが、現在は次世代太陽電池への応用を目指したプロジェクトとして大きく舵を切り始めた.

マイクロプラズマはいまだ発展途上で定義も曖昧な点が多い. データが整理されるまでにしばらく時間がかかりそうである. 読者の皆様には各論的にならざるを得ない点をご理解頂き、本稿ではシリコンナノ粒子合成への応用についてマイクロプラズマの優位性、問題点、展望を紹介したい.

2. マイクロプラズマとは?

2.1 マイクロプラズマの歴史

フラットディスプレイや太陽電池パネルの大型化と同時にプロセス速度の向上が要求され、大容量・大面積かつ高密度のプラズマを生成するための技術開発が指向されてきた. プロセスを大型化するほど生産性が高まり、コストダウンにも寄与する. これと発想を逆転するように、「必要な場所に必要な大きさをもったプラズマを生成する」という着想が生まれ、1990年代の後半には、マイクロプラズマに関する組織的な研究が各国で活性化しはじめた.

マイクロプラズマの応用で最もよく知られているのがプラズマディスプレイパネルである. 1辺200 μm 程度のマイクロ空間(封入気体圧力:20–50 kPa)で非平衡プラズマを発生させ、壁面(蛍光物

質)との相互作用により1発光素子を点滅させる. 壁面とプラズマの相互作用を高めるために、必然的に「マイクロ空間でプラズマを創る」ことが指向された. このような発光素子を微細加工技術によって集積化すれば、プラズマディスプレイパネルとして機能する.

マイクロ化学分析システム(μTAS : micro total analysis system)では、微量元素を検出するためにミニチュアICP装置(Inductively-Coupled Plasma)が開発された(図1)[3]. 後述するように、マイクロ空間では電子密度が 10^{14} cm^{-3} をこえる高密度非平衡プラズマが生成されるため(一般的な(減圧)非平衡プラズマの電子密度は 10^{11} cm^{-3} 程度)、従来のICPでは検出が困難なハロゲン元素でも10 pg(ピコグラム)の高感度で分析できるようになった[4]. 電源も含めたプラズマ発生装置の可搬性が高いため、オンサイトで極微量元素を連続分析できるようになったことも重要である. このように、応用先行でマイクロプラズマの研究が展開しているが、研究事例の増加とともに学術的にも興味深い現象が数多く見出されるようになった[5].

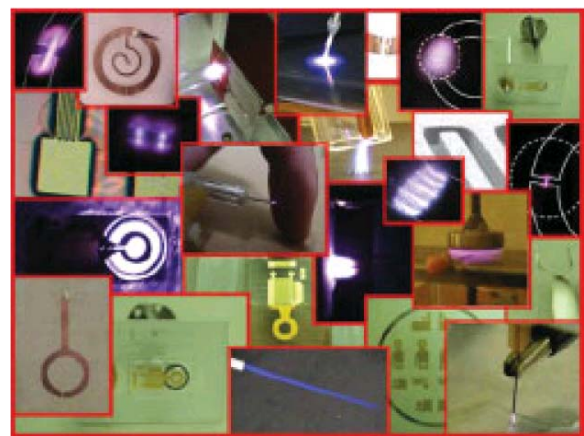


図1 微量元素分析に用いられる様々なマイクロプラズマ[3]

2.2 マイクロプラズマの特徴

100 μm だけ離れた平行平板電極を考える。常温常圧の窒素の場合、電子の平均自由行程は約 0.34 μm になるから、電子は電極間を走行する間に窒素分子と約 300 回衝突する。電子は電界により加速されエネルギーを得るが、電界強度が低い場合には電離に至らない。ところが、電極間電圧が閾値（窒素の場合 380 V）に達すると、窒素は電離してプラズマが形成される。その閾値を与える電界強度が $380 \text{ V} / 100 \mu\text{m} = 38 \text{ kV/cm}$ 、すなわち窒素の絶縁破壊電界強度に相当する。

さて、電極間の圧力を一般的な減圧プラズマが形成される圧力（1/1000 気圧）まで減圧しよう。すると電子の平均自由行程は約 300 μm となり、電子は電極間を走行する間、1 回も分子と衝突しない。いくら高電圧によって電子を加速しても、電子と気体分子の相互作用がなければプラズマは発生しない。翻って、リアクターの代表寸法が 1 mm より小さな空間でプラズマを発生させるためには、必然的に大気圧近傍の高密度媒体が必要になることを意味している。媒体の密度が高いので、生成されるプラズマの密度（電子密度、ラジカル密度）も高くなり、電子密度は $10^{14} - 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ に達する。反応体積が小さいため電力密度は $10^4 - 10^{10} \text{ W/cm}^3$ になるが、プロセスガスの滞在時間が極めて短くなると同時に、反応壁を通じて抜熱も促進されるため、定常動作でも非平衡状態（電子温度 \gg ガス温度）を実現できる。このような、「非平衡性」「局在性」「高密度性」「壁との相互作用」「極短反応時間」といった特徴を単独で、あるいは複数組み合わせ、従来のプラズマとは異なるパラメーターを持つ反応性プラズマを創ることがマイクロプラズマの本質である[6]。

マイクロプラズマを用いれば大気圧環境で反応性プラズマを形成できるため、減圧では扱いにくい液体サンプルをプラズマ処理できる。結果として、従来技術では対応できない新しいプラズマプロセスを開発できるのである。このような点も注目を集め、現在は超臨界流体、粉体、生体など様々な環境でマイクロプラズマを発生させるための技術開発と応用探求が推進されている。とりわけ、バイオ関係への応用が爆発的に発展している。

マイクロプラズマは、未踏領域を開拓しながら対象とする学際領域を拡大しているダイナミック

な研究分野であるから、学問としての体系化には今しばらく時間を要すると思われる。マイクロプラズマの ICP[3]と光源への応用[7]では、学術的に整理されたレビュー論文がではじめた。

3. シリコンナノ粒子の合成と応用

3.1 シリコンナノ粒子とは？

シリコンは優れた電気特性を有していることから、半導体産業の基幹物質として重用されている。しかし、シリコンは間接遷移半導体であるため光学特性は極めて貧弱で、元来シリコンは発光しない材料と考えられてきた。しかし、結晶のサイズが 5 nm より小さくなると、量子サイズ効果によってバンドギャップが顕著に増大し、室温でも可視発光（主に赤色）することが 1990 年になって初めて発見された。これが契機となり、オプトエレクトロニクスへの応用を意識した Si ナノ構造の研究が急速に進展した。ここで、量子サイズ効果が顕在化しやすい「結晶性のナノ粒子」を量子ドット（Quantum Dot: QD）と呼ぶことがある。我々は、結晶性ナノ粒子だけでなく、アモルファスシリコンナノ粒子の合成と応用展開も広く視野に入れているので、広義にシリコンナノ粒子（Silicon nanoparticle : Si-NP）という用語を用いたい。

図 2 にサイズの異なる CdSe ナノ粒子に紫外線を照射したときの様子を示す[8]。単色光を照射しても、ナノ粒子のサイズによって青色から赤色まで発光スペクトルをチューニングできる。別の見方をすれば、太陽光のようなブロードなスペクトルを広範囲にわたり効率よく吸収することを示している。



図 2 結晶サイズによって青色から赤色まで蛍光を発する CdSe ナノ粒子[8]

3.2 シリコンナノ粒子の応用

シリコンの場合、バルク結晶のバンドギャップは1.1 eVであるが、水素で完全に終端された粒径2 nmのSi-NP ($\text{Si}_{211}\text{H}_{140}$)のバンドギャップは約2.0 eVと推算される[9]。したがって、620 nmより短波長の光を照射するとSi-NPの内部で電子と正孔のペアが生成される。このとき発生する電子を外部回路を通して取り出すことができれば太陽電池として作用することになる（実際はもっと複雑なデバイス構造が必要である）。

薄膜太陽電池にSi-NPを組み込んだ”オールシリコン・タンデムセル（図3）[8]”は、発電効率が従来の理論限界（25%）を超え、40%に達すると試算されている[10]。さらに、量子サイズ効果により1つの光量子（可視光域）から二つ以上の電子-正孔ペアが生じる”マルチエキシトン”という現象が2007年になってシリコンでも見出された。究極の太陽電池（発電効率60%！）の実現に向け、Si-NPの重要性がますます高まっている。ヒ素など有毒な不純物をドーピングすることなく、サイズだけでバンドギャップ（光の吸収波長）をチューニングできるのが大変魅力的である。さらにシリコンは、① 資源が豊富、② 環境負荷が小さい、③ 既存の半導体テクノロジーと相性が良く材料を変えないで新機能を付与できる、など数多くのメリットを有している。

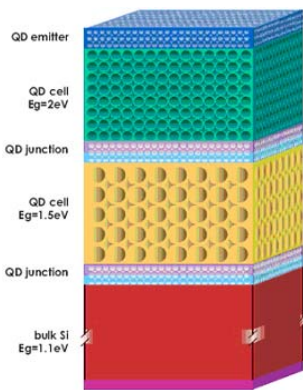


図3 オールシリコン・タンデムセル[8]

ところが、Si-NP（マテリアル）を合成しても、太陽電池（デバイス）として組み上げようとするとなんだ問題に直面することになる。セルを接合しデバイスに種々の配線を施すとき、材料の耐熱

性や加工条件によって材料合成プロセスが様々な制約を受けるためである（その逆も然り）。最近、省資源・リサイクルの観点から、性能は悪くとも環境負荷の小さい材料しか選択できないような場面にも遭遇する。たとえば、図2に示したCdSeナノ粒子はSi-NPより優れた光学特性を有するが、有毒な物質であるため大量消費できない。このよう制約の中で最適な条件を取捨選択しながら理想的なマテリアルを合成し、デバイスへと展開しなければならない。実は、このマッチングを取ることが最も難しく、「いいマテリアルがいいデバイスを生むとは限らない」といわれる所以である。果たして、マイクロプラズマは従来技術より魅力的な方法になるのだろうか？

3.3 従来のSi-NP合成方法

図4に一般的なSi-NPの合成法を示す。よく用いられるのが、シリコンの亜酸化物 ($\text{SiO}_x, x < 2$) やアモルファスシリコン (a-Si) の積層構造をプラズマCVDなどで作っておき、高温で熱処理してナノ結晶へと相変化させる方法である。その結果、図5に示すようなSi-NPが SiO_2 に整然と配列された超格子構造を作ることができる[11]。ところが、ナノ結晶への相変化には1000°Cを超える高温熱処理が必要となるため、デバイスを構成するSi-NP以外の材料に甚大なダメージを与えてしまう。他方、レーザーアブレーションやスパッタリングなどの気相合成法は、予め微粒子を合成するためデバイス設計の自由度は高まるが、粒径制御、位置制御が難しく大量生産に向かない。

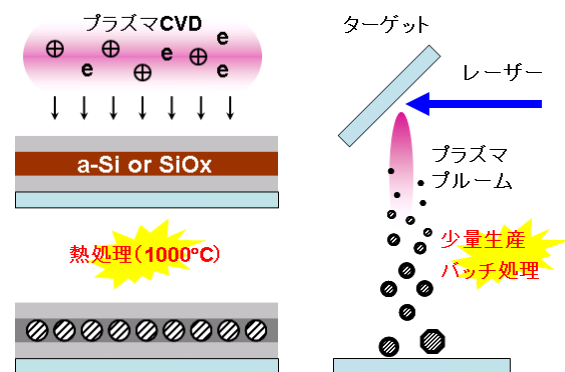


図4 シリコンナノ粒子の合成（従来法）。固相析出（左）、気相合成（右）。いずれも減圧環境（1/1000気圧以下）で処理される。

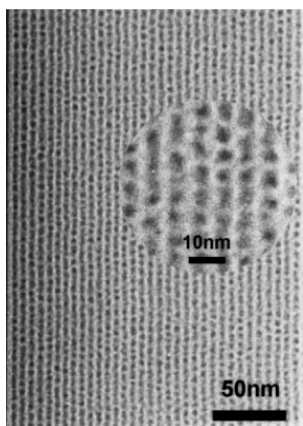


図5 SiO₂に配列されたSi-NP超格子構造[11]

3.4 マイクロプラズマによるSi-NP合成

我々は、従来法にはない量産性と材料設計の高い自由度を兼ね備えた方法としてマイクロプラズマ技術に着目し、Si-NPを大量連続合成するプロセスの開発に着手した。

図6にマイクロプラズマによるSi-NP合成の概念図を示す。従来技術(図4)(10~100 Pa以下の減圧環境が必須)に対するマイクロプラズマの特徴は3つある。①高密度媒体ではモノマー(Si, Si⁺など)のクラスタリング速度が加速されるが、マイクロ空間では反応時間が短いためナノ粒子が過度に成長しない。②モノマーの生成(マイクロプラズマの形成)と核生成・成長プロセスを分離して微粒子の低温合成を実現できる。③気相で合成するため、連続処理による大量合成が可能。このことをもう少し詳しく調べてみよう。

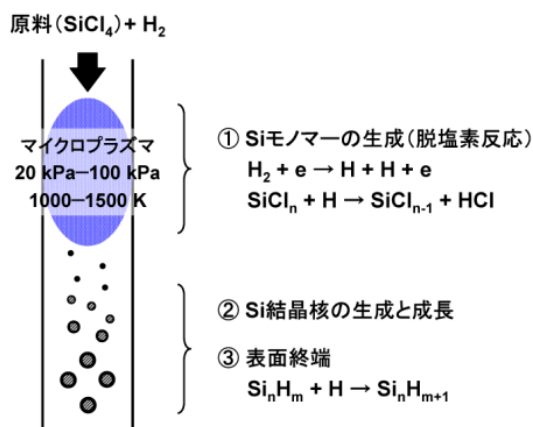
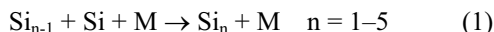


図6 マイクロプラズマによるSi-NP合成の概要

3.5 高気圧がナノ粒子合成に適している理由

反応の第一段階であるSiモノマーのクラスタリングについて、SiからSi₅までの生成過程をCHEMKIN IIにより解析した[12]。初期条件として100 kPa, 1500 Kのアルゴンのなかに100 ppmの原子状シリコンを与えた。この条件におけるSiモノマーの過飽和度は2300である。結果を図7に示す。



SiからSi₅の成長は三体衝突により逐次的に進行し、最も反応速度が遅いダイマー(Si₂)の生成が律速過程となる。100 kPaでは、Si₅濃度が定常の50%に達するまでに約10 msを要する。一方、1 kPaではSi₅濃度が50%定常値に達するまでに約100 sを要する。すなわち、減圧環境ではモノマーが気相で微粒子を合成する前に基板に拡散し、薄膜が生成されやすいことを示唆している。クラスタリング速度は圧力の2乗に比例して加速されるため、媒体の密度が高くなるほど微粒子を気相で合成しやすくなる。一方、マイクロ空間では反応時間を短くできるため、結晶核が過度に成長する前に反応をストップさせ、前駆体生成-核発生-核成長を分離した理想的な微粒子合成プロセスを実現できる可能性がある。

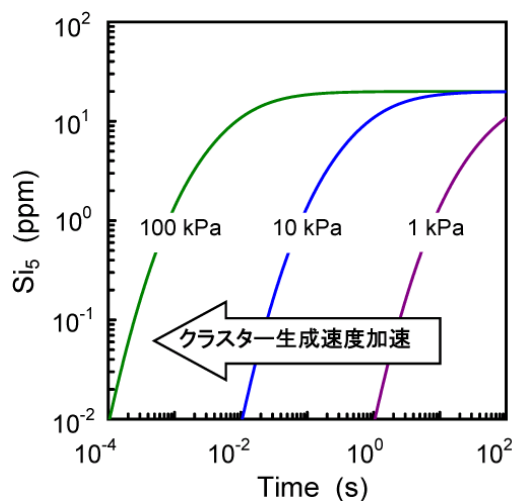


図7 Si₅クラスタ生成速度の圧力依存性

4. 可視発光シリコンナノ粒子の合成

4.1 予備実験

図6に示した概念に基づき、マイクロプラズマによるSi-NPを実践した[13,14]。実験では、内径630 μmのキャピラリーガラスを反応器として用い、その内部にマイクロプラズマを発生させた。原料には四塩化ケイ素(SiCl₄)を用い、これを水素で還元してSi-NPを合成した。図8(上)に示したTEM画像によれば、表面が酸化物で覆われた約3 nmのSi-NPが確認できる。図8(下)に示すように、合成直後のサンプルに紫外線を照射すると、元来発光しないはずのシリコンが蛍光を発する。水素濃度を高めるほど結晶が微細化し、緑色に発光するSi-NPが合成された。バンドギャップを直接測定することは難しいが、蛍光スペクトルの変化から間接的にバンドギャップの大きさを知ることができる。Si-NPの表面が僅かでも酸化されると、いくら結晶サイズを小さくしてもバンドギャップは2.1 eVより大きくならない[15]。事実、水素濃度2%以上では、蛍光スペクトルは525 nmよりブルーシフトしない。

4.2 マイクロプラズマの致命的な欠点

Si-NPの合成には成功したもの、課題も明らかとなった。第一に、壁面の汚れがあげられる。マイクロプラズマを化学合成に用いる場合、反応器の内壁に微粒子や薄膜が堆積するため、マイクロリアクターにとって致命的な欠点となる。本研究でも、プラズマより相対的に低温になる反応器内壁には合成開始から1分以内にスケールが付着し、長時間の安定した運転が困難であった。さらに、壁面で微粒子の核が発生すると、核の発生と成長を分離できず粒径分布が広がる。これはマイクロリアクターに共通の欠点である[16]。

壁の汚染を低減するためにSiCl₄濃度を200 ppm以下に設定せざるを得ず、供給したSiCl₄が全てSi-NPに転換したとしても、生成量は僅か1 mg/hである。マイクロリアクターでは、ナンバリング(マイクロリアクターを複数並列運転すること)によって容易にスケールアップできると言われるが、リアクター単体の問題である「壁汚染」を解決しなければ無意味である。

生産性が低ければ用途開発もままならない。マテリアルをデバイスへと展開するためには、まとまった量のサンプルが必須である。そこで、粒径

制御や表面修飾など解決すべき問題は山積みではあるが、まずは「生産性の確保」を第一優先にマイクロプラズマの改良に着手した。文献調査の結果から、本研究では当面10 mg/hを目指した。

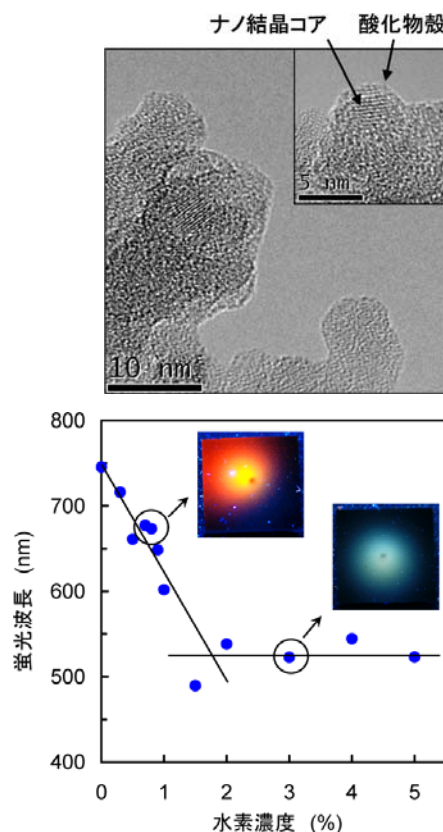


図8 Si-NPのTEM像(上)と水素濃度に対する蛍光スペクトル(バンドギャップ)の変化(下)[13]。挿入図は15 mm角の基板に捕集したSi-NPが発光している様子(360 nm UVランプ励起)

4.3 大量合成に向けたマイクロプラズマの改良

マイクロプラズマが持つ「高密度性」「短滞留時間」を損なうことなく、反応器体積を拡大することで対応した。そもそもマイクロプラズマの定義は曖昧であるが、「リアクターのサイズがサブミリメートルでなければいけない」という蒙昧とした強迫観念から脱却しさえすれば、誰でも思いつく簡単な方法で問題は解決できた。ただし、気相粒子合成を促進するためには、実験事実に基づき合成圧力10 kPa以上、電子密度10¹⁴ cm⁻³以上を達成できる高密度非平衡プラズマを生成しなければなら

らない。圧力 10 kPa 以下では、Si-NP は全く合成されなかった。

図 9 にマイクロプラズマの写真と実験装置の概略を示す。内径 3.5 mm、外形 6 mm の石英菅の外周にアンテナを設け、70 MHz の電源から電力を供給した。反応器内径を広げるほど局在化したプラズマが形成されるため、大気圧から 20 kPa まで微減圧し、反応器内で均一なプラズマを形成した。原子状水素の発光スペクトル (H_{β} : 486 nm) から電子密度を見積もると[17]、約 10^{14} cm^{-3} であることがわかった。壁汚染の影響が低減されたため、原料 (SiCl_4) 濃度を 200 ppm から 5000 ppm へ増やすことができ、その結果、生成速度 30 mg/h で Si-NP を合成することに成功した。

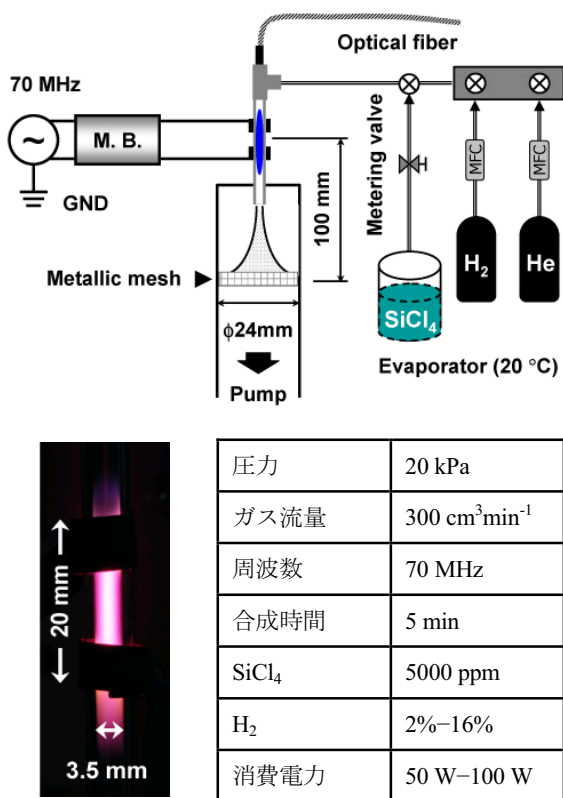


図 9 実験装置の概略とマイクロプラズマの写真

4.4 Si-NP の結晶性制御

合成されたナノ粒子は直径 25 mm のフィルターに捕集した後、顕微ラマン、蛍光分光分析によって評価した。図 10 (左) に、水素濃度 10%、消費電力 100 W で合成された Si-NP に紫外線 (360 nm) を照射したときの様子を示す。元来発光しないシリコンが、量子サイズ効果により赤色 (700

nm) に発光している様子がわかる。透過型電子顕微鏡で観察すると、粒径 3–5 nm のナノ結晶が確認された。図 8 (上) と比較しても、結晶化度が格段に向上している様子がわかる。電力を増加させるほど、水素濃度を高くするほどアモルファス成分が減少し、結晶化度の高い Si-NP を合成できる。アモルファス Si-NP が必要なら、低電力、低水素濃度で処理すればよい。

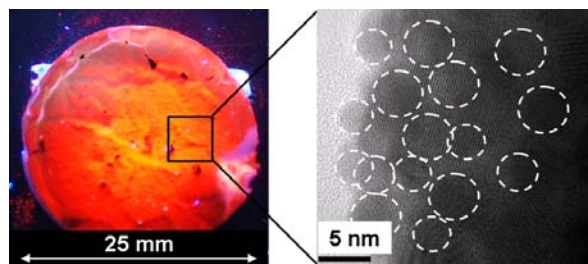


図 10 直径 25mm のフィルターに捕集した Si-NP が発光している様子 (左)。透過型電子顕微鏡のイメージ (右)

4.5 太陽電池のプロトタイプ作成を目指して

Si-NP をデバイスに応用する方法はいくつか考えられる。予め合成した Si-NP を溶液に分散させてコロイドを生成する。これを複数回コーティングすれば、原理的には図 5 に示した超格子構造を作ることができる。この時、サイズをチューニングした Si-NP を自己組織化などを利用して稠密にパッキングしなければならない。ナノ粒子は表面エネルギーが大きく、バルク状態より融点が低下しているため、低温 (400°C 以下) で熱処理して結晶の欠陥を改善したり、キャリアの移動度を制御できる可能性もある。マイクロプラズマを用いることで、Si-NP の大量合成とデバイス設計の低温度化が一度に達成できれば、次世代太陽電池の実現へ向け大きな一歩になることは間違いない。

5. おわりに

シリコンナノ粒子合成への応用に対して、マイクロプラズマの特徴、問題点、展望を紹介した。マイクロプラズマは単に小さいだけのプラズマではなく、従来のプロセスプラズマとは全く異なるパラメーターを持ったプラズマである。その特徴をうまく生かすことができれば、プラズマディスプレイや微量元素分析装置のような魅力的な応用

を開拓することができるだろう。

本稿で述べた Si-NP の合成は、「マテリアル研究」の観点からマイクロプラズマの特徴を生かした新しい材料合成プロセスとして評価できる。しかし、太陽電池などのデバイスへ展開できなければ、今後大きな波及効果は期待できないだろう。何故なら、シリコンを除くほとんどの微粒子は溶液中で合成されているからである（換言すれば、シリコンはコロイド成長法と相性がわるい）。マイクロプラズマを取り巻く環境はいまだ発展途上であり、学術的に整理されるまでにはもう少し時間がかかりそうである。今後の発展に期待しつつ、読者の皆様には本稿を通じてプラズマ材料科学の面白さを感じ取っていただければ幸いである。

謝辞

一連の研究は、科学研究費補助金、特定領域研究 (H16-H17: 16040207), 若手研究 (A) (H18-H19: 18686018), 基盤研究 (B) (H20-H22: 20360095) の助成を受けて行われた。TEM 分析では、本学総合分析支援センターの協力を得た。研究に協力してくれた本学大学院生諸君に謝意を表す。材料評価には、ミネソタ大学・機械工学科：Uwe Kortshagen 教授、本学・理工学研究科化学専攻：伊原 学 准教授の支援をいただいた。関係各位に謝意を表す。

参考文献

- [1] <http://plasma.kuee.kyoto-u.ac.jp/tokutei429/> (consulted on 2008 1st September)
- [2] 橘邦英, 寺嶋和夫 監修, マイクロ・ナノプラズマ技術とその産業応用, シーエムシー出版, (2006).
- [3] Iza, F. et al., Microplasmas: Sources, Particle Kinetics, and Biomedical Applications, *Plasma Process. Polym.*, **5** (2008) 322.
- [4] 沖野晃俊ら, 文献[2]の pp.282-292.
- [5] 特定領域研究成果報告書：文献[1]からダウンロード可
- [6] 橘邦英, マイクロプラズマの基礎と展望, *応用物理*, **75**(4) (2006) 399.
- [7] Becker, K. H., Schoenbach, K. H., Eden, J. G., *Microplasmas and applications*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** (2006) R55.
- [8] <http://nanoarchitecture.net/> (consulted on 2008 1st September)
- [9] Puzder, A. et al., Computational Studies of the Optical Emission of Silicon Nanocrystals, *J. Am. Chem. Soc.*, **125** (2003) 2786.
- [10] 小長井誠, 黒川康良, 新概念高性能太陽電池の展開－第 3 世代太陽電池開発の現状, *日本エネルギー学会誌*, **87**(3) (2008) 193.
- [11] Zacharias, M., et al., Size-controlled highly luminescent silicon nanocrystals: A SiO/SiO₂ superlattice approach, *Appl. Phys. Lett.*, **80**(4) (2002) 661.
- [12] 野崎智洋ら, 文献[2]の pp.82-93.
- [13] Nozaki, T. et al., Microplasma synthesis of tunable photoluminescent silicon nanocrystals, *Nanotechnology*, **12** (2007) 235603-1.
- [14] 野崎智洋ら, マイクロプラズマを使ったシリコンナノ粒子の気相合成, *Therm. Sci. Eng.*, **14**(4) (2006) 75.
- [15] Wolkin, M. V., Jorne, J. and Fauchet, P. M., Electronic States and Luminescence in Porous Silicon Quantum Dots: The Role of Oxygen, *Phys. Rev. Lett.*, **82** (1999) 197.
- [16] マイクロリアクタテクノロジー, NTS, (2005), pp.159-171.
- [17] Griem, H. R., *Plasma Spectroscopy*, McGraw-Hill, New York, (1964) Chap. 14.

アルマイトプレート触媒を用いたマイクロリアクターの開発

Development of micro reactor using alumite plate catalysts

桜井 誠 (東京農工大学)

Makoto SAKURAI (Tokyo University of Agriculture and Technology)

e-mail: sakuraim@cc.tuat.ac.jp

1. はじめに

筆者が所属する研究室では、金属アルミニウムの表面に、陽極酸化、水和処理を行なうことで、多孔質、高表面積の被膜を作成し、その被膜部分を触媒担体として利用した、アルマイト触媒の基礎的検討、様々な応用についての研究を進めてきている。従来は、構造体触媒反応器として、マイクロリアクターへの応用を中心に行なっており、現在でも様々なプロセスへの応用を検討している[1-3]。一方で、マイクロ化学プロセスについての研究開発が最近活発に行なわれているが、アルマイト触媒の応用として、このマイクロ化学プロセスに用いる、マイクロリアクターへの応用についての研究も行なっている。マイクロリアクターは、マイクロオーダーの流路内で反応を行わせる反応器であるが、よく言われている特長の一つに、その表面積効果がある。すなわち、マイクロリアクターは体積あたりの表面積が相対的に大きくなるので、反応が効率よく行なえ、また、加熱や徐熱などの温度制御も効率よく行なえる、と考えられている。したがって、前述のような多孔質で高表面積というアルマイト触媒の特長を考えると、このようなマイクロリアクターの構成材料として利用することで、非常に優れた特性をもつリアクターを作成することができる可能性がある。ここでは、筆者らが行なっている、アルマイト触媒を用いたマイクロリアクターについての研究事例を紹介させていただくとともに、マイクロリアクターへのアルマイト触媒の応用の展望について記させて頂く。

2. アルマイト基板

まずアルマイト基板の性状について簡単に説明する。金属アルミニウムの表面に陽極酸化を施すと、その条件にもよるが、厚さ 100 μm 程度の酸化被膜を形成させることができる。この被膜には

規則正しくシリンダー状の細孔が形成されているが、この被膜を水和処理し、さらに焼成することにより、規則的なシリンダー状細孔構造が複雑な構造となり、その結果非常に大きな表面積を持った多孔質な被膜とすることができる。水和処理は、陽極酸化処理で生成された無定形アルミナから、熱水処理によりベーマイトを生成させる反応である。これを乾燥させた後、焼成することにより多孔質な γ -アルミナが形成される。金属アルミニウムの表面処理による比表面積の変化を比較した一例を図1に示す[4]。

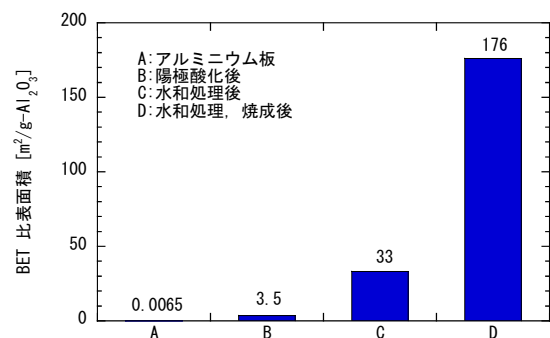


図1 アルミニウムの表面処理と比表面積

このようにアルミニウム基板はこのような表面処理（アルマイト処理）をすることにより多孔質化し、大幅に表面積が向上する。アルマイト基板は、この表面が多孔質で表面積が大きいという特長とともに、母材の金属アルミニウムに由来する、成形性の良さ、伝熱性の良さ等の特長も持っている。そこで、このアルマイト基板の多孔質被膜の部分を触媒担体として利用すれば、伝熱部分と触媒部分を一体化させた非常に優れた構造体触媒を調製することが可能になってくる。例えば、図2に示すようなセレートフィン型の複雑で単位体積当りの表面積を大きくとれるようなアルマイト触媒も調製可能である。このような構造体触媒として用いることができる点が、アルマイト基板を用いた

アルマイト触媒の大きな特長の一つである。

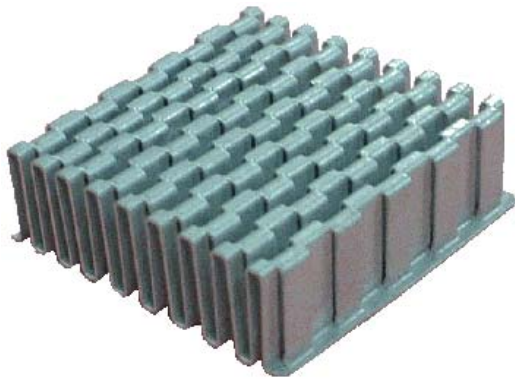


図2 セレートフィン状アルマイト担体

3. アルマイト基板を用いたマイクロリアクター

3.1 メタノール改質への応用

マイクロリアクターの特長としては、前述のように体積あたりの表面積を大きくとれること、それに伴い温度制御性がよいこと、などが言われているが、このような特長を考えると、多孔質、高表面積をもち、母材の伝熱性に優れたアルマイト基板は、優れたマイクロリアクターの材料となると考えられ、高性能なリアクターを作成できる可能性がある。現在、モバイル機器用の電源として、現状のリチウムイオン二次電池に代わる電源として、いわゆるマイクロ燃料電池の使用が想定され、その実用化開発に向けた研究が活発に行なわれている。ここで考えているようなモバイル機器用の燃料電池の燃料の候補の一つとして、常温で液体で比較的高いエネルギー密度を持つメタノールが考えられている。メタノールを燃料として利用した燃料電池としては、現時点ではダイレクトメタノール型の燃料電池（DMFC）の開発が多く行なわれている。この方式は液体燃料であるメタノールを燃料電池に直接供給するので燃料改質装置等を必要としない。また、動作温度も高くない。しかし、一方でDMFCの大きな問題の一つとして、原料のメタノールの電解質におけるクロスオーバーによる出力の低下が挙げられる。その問題のためにメタノールの濃度を高くできず、せっかくメタノールの持つ高エネルギー密度の特長を十分に生かすことができないことになり、この問題を解決するべく研究開発が進められている。メタノールを燃料の原料とした燃料電池としては、メタノ

ール改質型の燃料電池の利用も考えられている。この方式を用いる場合には、電池に水素を供給する装置、すなわちメタノール改質装置が必要であり、その分システム内でのプロセスが多くなり、これらを含めたトータルでコンパクトかつ高性能なマイクロ燃料電池システムを開発することが必要である。そこで、筆者らは、マイクロ燃料電池システムに用いることを想定し、アルマイト基板を用いたメタノール改質マイクロリアクターの開発に向けた研究を実施している[5, 6]。具体的には、マイクロリアクターの特性を明らかにし、その結果から、メタノール改質リアクターとして必要な性能をもつ反応器の設計を目指して検討を進めている。以下にその内容事例をいくつか簡単に紹介する。

3.2 マイクロリアクター

マイクロリアクターとしては、アルマイト基板の特長を生かし、さらにリアクターの評価のしやすさ等も考慮して、アルマイト基板によるプレート状触媒を用いて図3に示すようなものを作成した。

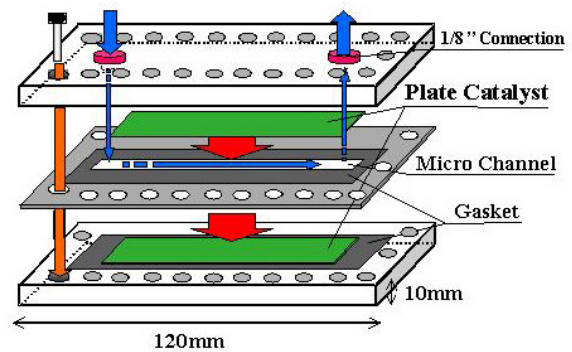


図3 アルマイトプレート触媒を用いたマイクロリアクターのイメージ

厚さ1 cm程度の2枚のアルミ板、スリット入りアルミプレート、プレート状触媒2枚、ガス漏れ防止用ガスケット4枚から構成されている。スリット入りアルミプレートを2枚のプレート状触媒で挟み、その間をマイクロ空間として反応ガスを流す。したがって、反応はこのマイクロ空間内の流路壁の上下にある2枚のプレート状触媒基板上で起こる。プレート状触媒としては、アルミニウム基板を基材として用い、表面を陽極酸化して皮膜を作成し、さらに触媒担体の細孔制御や調製過

程の工夫として、陽極酸化皮膜の細孔径を拡大させる細孔径拡大処理を陽極酸化後に行なっている。そして、水和処理を施したのちに焼成してアルマイト基板とした。アルマイト基板担体の調製手順の一例を図4に示す。



図4 アルマイト担体調製方法の一例

触媒はこのアルマイト基板担体の多孔質被膜上に触媒金属を含浸担持して調製した。この方法によって調製したプレート状触媒をマイクロリアクターに装着し、反応性の検討を行なった。活性試験は図5に示すような、流通式反応装置を用いて行なった。

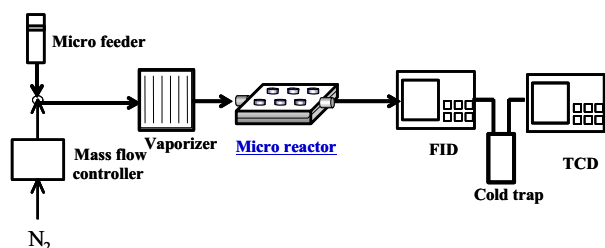


図5 流通式反応装置の構成

活性試験では触媒性能を評価するとともに、主に、マイクロチャンネルの流路深さや、アルマイト触媒基板の触媒被膜の厚み等のリアクターの形状の

影響を評価し、リアクター設計のための知見を得た。なお、実験によっては一面のみを触媒化したマイクロリアクターも用いている。

3.3 充填層反応器との比較

アルマイト触媒をマイクロリアクターとして用いることの優位性を確認するために、アルマイト触媒マイクロリアクターと、プレート状アルマイト触媒を管型反応器に充填した充填層型のリアクターとを用いてメタノール改質反応の活性の比較を行なった。比較は、反応成分の流量あたりの触媒量 (W/F, この場合 [g-Pt/(mol/h)] の単位で、0.098) を揃えて行なった。比較した結果を図6に示す。なお、ここでは一面のみを触媒化したマイクロリアクターを用いている。この結果から明らかなように、充填層型で行なうのに比較して、マイクロリアクターとすることで高い活性が得られることがわかった。これは、マイクロリアクターとすることにより伝熱性が良くなったこと、気相成分の拡散の影響が緩和されたことなどが原因であると考えられる。

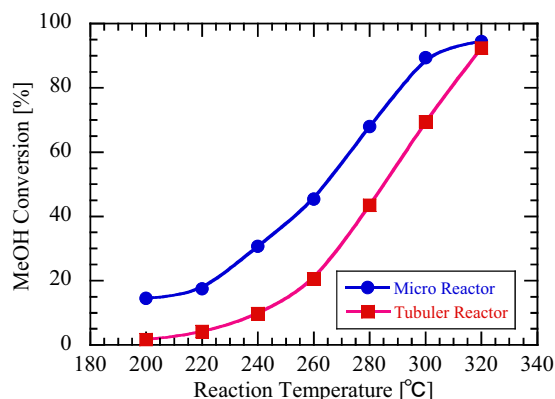


図6 マイクロリアクターと充填層リアクターの活性の比較

3.4 流路深さへの反応性の影響

マイクロリアクターでは、通常反応流体はマイクロチャンネル内を層流の状態で移動するが、この反応流体のマイクロチャンネル内での移動が反応性に影響を及ぼすと考えられたので、反応性へのマイクロチャンネルの流路深さの影響について評価するために、前述のマイクロリアクターを用いて検討を行った。同一のプレート状触媒を用いてマイクロリアクターを作製し、流路の深さを変えて活性試験を行った。ここでは、Ptを触媒種とし

て用い、流路深さとして、480、778 μm の 2 種類についてリアクターを作成し、検討を行ない、メタノール改質の活性を比較した。結果の一例としてメタノールの転化率について図 7 に示す。この結果より、深さ 480 μm と 778 μm では同程度のメタノール転化率を示し、流路深さの影響はほとんど見られなかった。このことから、今回のように流路深さが 1 mm 以下の浅いもので、その深さがマイクロオーダーで変わっても、本反応系のような気相反応を行なった場合には、気体分子の拡散が十分に速いために、原料である気体分子がすぐに触媒壁に到達して反応が起こると考えられ、マイクロチャンネル内での反応成分の物質移動よりも、プレート基板触媒面での反応が律速段階となっているものと考えられる。したがって、単位体積あたりの触媒面積を向上させたリアクターの作成、触媒性能の向上等がリアクターの高性能化のために重要であると考えられる。

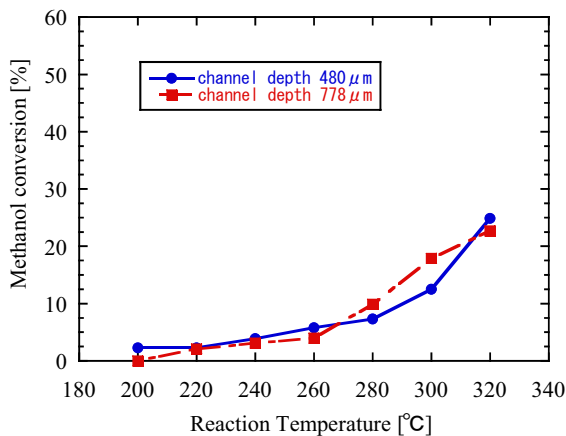


図 7 流路深さの影響

3.5 触媒層厚さの評価

前述の結果より気相反応をマイクロリアクターで行なった場合、マイクロチャンネル内における触媒表面での反応が重要であることがわかったので、別の形状の評価として、アルマイト被膜上の触媒層の被膜の膜厚方向の反応性への寄与を評価した。具体的には実験で得られた活性試験結果から、触媒被膜の触媒有効係数の算出を行なった。ここでは、従来からメタノール改質反応に多く用いられている、Cu/ZnO 系の触媒 (Cat-1 とする) と、さらに Cu/ZnO/ZrO₂ 系の触媒 (Cat-2 とする) についてそれぞれ検討を行なった。有効係数算出

の過程は省略するが、触媒有効係数の算出結果を表 1 に示した。

表 1 触媒有効係数算出結果

	被膜厚さ [μm]	触媒有効係数 [-]
Cat-1	109	0.25
Cat-2	105	0.21

この結果より、Cat-1 触媒では触媒層膜厚の 25%、Cat-2 触媒では 21% が反応に寄与していることが分かった。つまり、全体の膜厚に触媒有効係数をかけて実際に反応に寄与している膜厚を求めると、各々約 27、22 μm であり、実際に反応に寄与しているのは、陽極酸化して調製しているおよそ 100 μm 程度の膜厚の 3 分の 1 以下であることが分かる。つまり、この程度の触媒層膜厚で本活性を得られるということの意味している。現在の触媒担体調製条件では 16 時間の陽極酸化によって 100 μm ほどの膜厚を得ているが、30 μm 程度の膜厚であれば 5 時間程度で調製することができ、触媒調製工程の高効率化に結びつけることができると考えられる。また、触媒層膜厚を反応に寄与していると考えられる 30 μm 程度にした場合には、後述する熱交換型反応器に用いるために両面を触媒化しても、プレート状触媒基板の厚さを理論上全体で 60 μm 程度にすることができ、現状に比べて厚さを 3 分の 1 ほどにコンパクト化できることになる。今後マイクロリアクターを作製する場合には、反応基板を積層して用いることも考えられるため、必要触媒層膜厚が 3 分の 1 程度にコンパクト化されることは大きな利点であると考えられる。

3.6 熱交換型反応器の検討

高性能なメタノール改質マイクロリアクターの作成を目指して、アルマイト基板のもつ伝熱性の良さの特長から、吸熱反応であるメタノール改質反応と発熱反応とを組合せ、両者の間で熱交換を行なう熱交換型マイクロリアクター化するべく検討を行なっている。発熱反応としては燃料電池システムにおける未利用の水素を燃焼させることを想定し、メタノール改質反応および水素燃焼反応の反応性をそれぞれ解析し、その結果をもとに図 8 に示すような熱交換型反応器の設計および試作を行なっている。このリアクターでは、両面をアルマイト化したプレート状アルマイト基板を用い、

一方をメタノール改質用として Cu/ZnO 触媒化し、もう一方を水素燃焼用として Pt 触媒化しており、このアルマイトプレート状触媒基板を通して反応による熱交換を行なう構造になっている。現在は、発熱反応と吸熱反応を個別に評価している段階であるが、今後は、実際に発熱反応と吸熱反応を同時に行ない、反応による熱交換特性を評価し、反応器の詳細な設計を行なっていくつもりである。

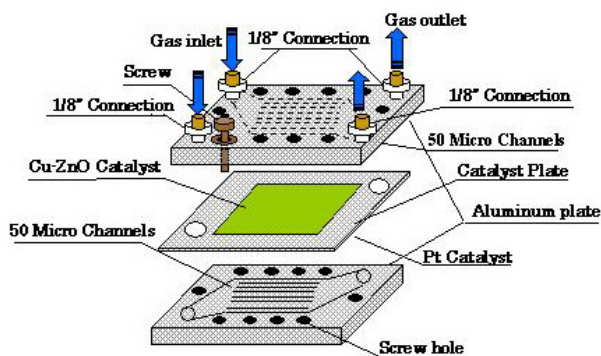


図8 熱交換型マイクロリアクターの概念

4. 今後の展望

4.1 チューブ状管壁型リアクターの作成

これまで検討しているマイクロリアクターでは、アルマイト触媒基板をプレート状触媒として利用してきているが、前述のように気相反応に応用する場合には、単位体積当りの触媒面積を大きくすることがリアクターの高性能化のために非常に有効であることがわかってきている。そのため、アルマイト基板の成形性の良さから、プレート状のみではなく、他の形状のリアクターの作成の可能性を検討することが必要である。その一つとして、例えば内径数百 μm のチューブ状アルミニウムを用い、その内表面をアルマイト化し触媒を担持するチューブ状の管壁型リアクターが考えられる。チューブ状のリアクターは、反応流体を流すためのリアクター化が比較的容易な上、図9に示すように、積層化したり、様々な形状に成型して利用することが可能になるので、プレート状触媒を用いるよりも、有利であると考えられる。現在、チューブ状アルミニウムのアルマイト化、触媒担持等の基礎的検討を始めている。

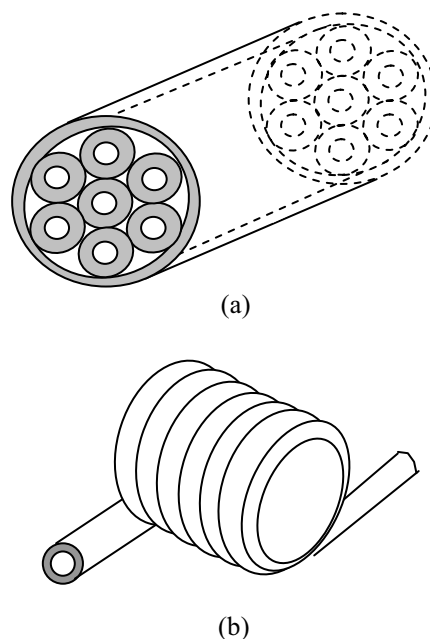


図9 チューブ状管壁型マイクロリアクターのイメージ (a) 積層型, (b)螺旋型

4.2 非定常操作への応用

マイクロリアクターは、その特長から、非定常な操作を行なうのに向いていると考えられる。筆者らは、これまでに化学プロセスに非定常な操作を導入することにより、定常な操作では得られない高い効率を達成するための研究を実施してきている。具体的には、2-プロパノールを脱水素してアセトンと水素を生成する触媒反応について、気相反応では平衡の制約から、それ程高い反応転化率が得られないので、液滴状の反応原料を、周期的に、加熱したアルマイト触媒基板に供給して反応をさせ、液相で反応を起こして生成物を気相で抜き出すことを繰り返す、スプレーパルス法という方法を提案し、検討を続けている[7]。スプレーパルス法による原料供給、反応の工程の概念を図10に示す。この方法を用いることによって、気相反応の平衡転化率を超える反応転化率が得られることが確認されている。図11に結果の一例を示す。なお、図11のグラフの縦軸に示しているQは、反応物成分、生成物成分の活量（常圧下では各成分分圧を用いた）により次のように表した数値である。

$$Q = \frac{(a_{ACE})(a_{H_2})}{(a_{IPA})}$$

a:活量, 添え字 IPA:2-プロパノール, ACE:アセトン, H₂:水素

また, 気相反応の平衡定数を K_p として記している. 現在, この反応系に, さらに温度の周期的な非定常操作を導入して, 非定常操作の効果のさらに詳細な解析を行ない, 高効率な操作条件の検討等を進めている. このような検討のためには, マイクロリアクターを用いることが有効であると考え, 非定常操作のアルマイト触媒を用いたマイクロリアクター試験装置を作成して検討を始めている.

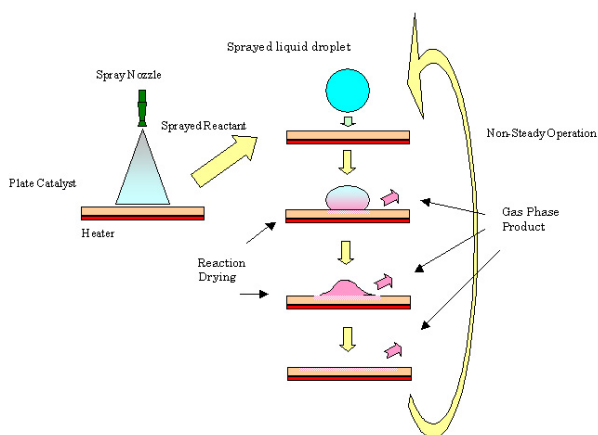


図 10 スプレーパルス法のイメージ

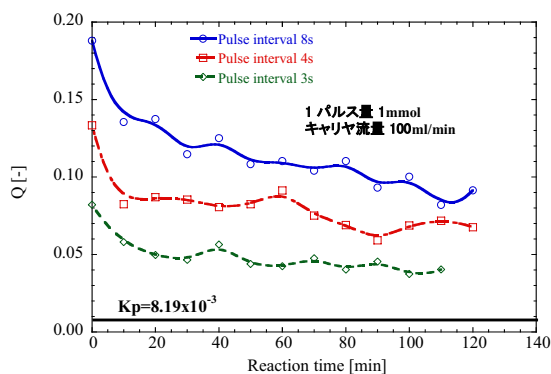


図 11 スプレーパルス法による活性の評価

5. まとめ

アルマイト基板という多孔質, 高表面積でかつ伝熱性に優れた基板材料をマイクロリアクターの

材料として利用した結果, アルマイト基板のもつ特長を生かしたリアクターとすることができた. その一方で, 気相反応においては, マイクロ空間を利用することのメリットを十分に生かし切れていない部分もある. この点については, 今後リアクターの形状の工夫や, 非定常操作のような装置の操作法からの工夫を併用して, さらに高性能化を目指していくことが必要である. 今後はエネルギーを有効に利用した, いわゆる省エネルギープロセスの構築がますます重要になってくると考えられる. そのような中で, アルマイト基板は触媒担体として非常に優れた特長を持っており, その特長を十分に生かしたマイクロリアクターを設計し, これまでに無いような高性能なマイクロリアクターの開発を目指していきたいと考えている.

参考文献

- [1] Guo, Y., Sakurai, M., Kameyama, H., Matsuyama, A. and Kudo, Y., Selective Catalytic Reduction of NO in Diesel Exhaust Over Anodic Alumina Catalyst, Journal of The Surface Finishing Society of Japan, 55 (2004) 366.
- [2] Wang, L., Sakurai, M. and Kameyama, H., Preparation of Platinum Catalysts Supported on Anodized Aluminum for VOC Catalytic Combustion: The Effect of Supporting Method. Journal of Chemical Engineering of Japan, 37 (2004) 1513.
- [3] Zhang, Q., Sakurai, M. and Kameyama, H., Performance Simulations of a Compact Plate Methane Steam Reformer using an Electrically Heated Alumina Catalyst, Journal of Chemical Engineering of Japan, 40 (2007) 319.
- [4] 亀山秀雄, 多孔質アルミナ層を有する伝熱材料, 水素エネルギーシステム, 20(1-2) (1995) 16.
- [5] Ichikawa, I., Gotoh, M., Sakurai, M., Kitajima, T. and Kameyama, H., Development of microreactor using porous anodized aluminum, Proc. of the 10th APCChe Congress, Paper No. 196, 2004, Kitakyusyu.
- [6] Tashiro, S., Ichikawa, I., Sakurai, M., Kitajima, T. and Kameyama, H., Study on methanol steam reforming micro reactor using anodized aluminum catalyst for micro fuel cell, Proc of World Hydrogen Technologies Convention, 2005, Singapore.
- [7] Sakurai, M., Honda, H. and Kameyama, H., Fundamental Study of a Non-steady Operation for 2-propanol De-hydrogenation, Int. Journal of Hydrogen Energy, 32 (2007) 1303.

固体高分子形燃料電池触媒層に対するマルチスケール計算化学アプローチ Multi-Scale Computational Chemistry Study of Polymer Electrolyte Fuel Cell Catalyst Layer

古山 通久, 金 寶英, 服部 達哉, 鈴木 愛, サヌーン リアド, 坪井 秀行, 畠山 望, 遠藤 明,
高羽 洋充, デルカルピオ カルロス, 久保 百司, 宮本 明 (東北大学)
Michihisa KOYAMA, Boyeong KIM, Tatsuya HATTORI, Ai SUZUKI, Riadh SAHNOUN, Hideyuki Tsuboi,
Nozomu HATAKEYAMA, Akira ENDOU, Hiromitsu TAKABA, Carlos DEL CARPIO, Momiji KUBO,
Akira MIYAMOTO (Tohoku University)

1. はじめに

環境問題・エネルギー問題の深刻化に伴って、固体高分子形燃料電池 (PEFC) に近年多くの注目が集まっている。しかしその実用化に向けては、格段の効率向上、耐久性・信頼性の向上が必須である。そのため、PEFC 内の電気化学反応だけでなく熱および物質の輸送現象の理解が強く求められている。例えば触媒層では、燃料極から電解質膜中を伝導してきたプロトンが、ガス拡散層内を拡散してくる酸素と白金上で反応する。さらに、反応により生成した水はガス拡散層へと拡散し排出されるなど反応に加えて様々な移動現象が連成して進行している。それら諸現象を速やかに進行させる目的で、触媒層には図 1 に模式的に示されるような複雑な多孔質構造が用いられる。具体的には、電極触媒活性点である白金を担持したカーボンを、プロトン伝導性高分子材料すなわちイオノマーが被覆した多孔質構造が一般に用いられる。触媒層では、イオノマーの不均一な空間分布などに由来する未利用白金の存在や、発生した水が液体として凝縮し白金表面を覆ってしまうなどの現象が活性を阻害する要因として言われている。し

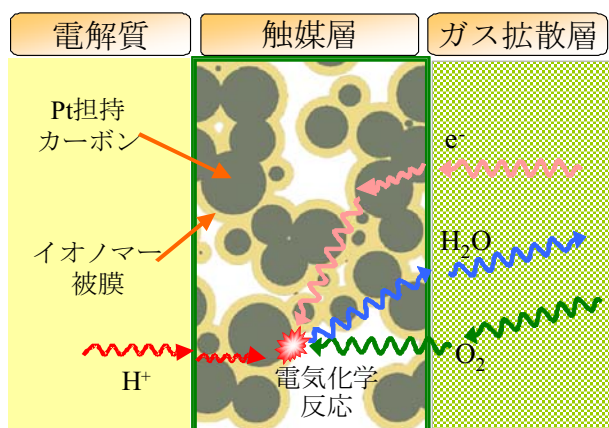


図 1 固体高分子形燃料電池触媒層の構造と複雑構造場における諸現象のイメージ図

かし、複雑な構造場における現象理解の困難さから何が主要な活性阻害要因となっているのか決定的な知見はなく、理論的なアプローチに大きな期待が寄せられている。理論的な現象解明の実現のためには、不規則な多孔質構造場を考慮し、かつ数ナノメートルから数十マイクロメートルのマルチスケールで進行する複雑連成現象の解明が必要となる。この課題に対して著者らは、不規則多孔質場のモデル化のための三次元多孔質シミュレータ POCO²を独自に開発し、様々な分野においてマルチスケールでの現象解明・理論材料設計を進めてきた[1-10]。

本稿では、三次元多孔質シミュレータに基づく PEFC のマルチスケール計算化学シミュレーションの具体例と複雑な多孔質場における現象解明に向けた今後の展望について述べる。

2. 三次元多孔質場のシミュレーション

2.1 三次元多孔質シミュレータ

三次元多孔質シミュレータ POCO²では、粒子形状、粒子サイズとその分布、空隙率、粒子の最大許容重複率、体積混合比などを入力パラメータとして多孔質構造を構築する。多孔質構造の構築には独自の重複許容粒子パッキング法を使用している。その基本アルゴリズムを図 2 に示す。はじめに、与えられた粒子形状および粒子サイズの分布に従い多孔質構造を構成する単位粒子群を発生させる。続いて、発生させた粒子を大きさの順にソートし、座標をランダムに指定することでセル内に挿入する。挿入の際には、セル内に存在する粒子群との重複率を判定し、与えられた重複率までであれば挿入を許可し、それを超えていれば再度座標を指定する。その後セル内の空隙率を判定し、所与の空隙率に達していたら多孔質構造の構築を完了する。

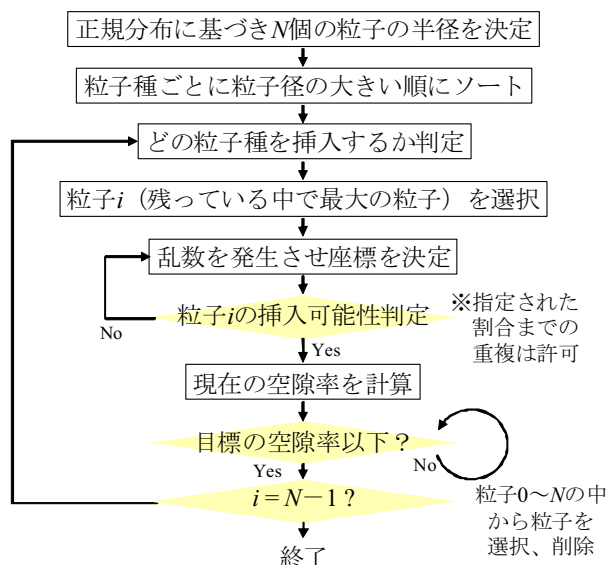


図 2 重複許容粒子パッキング法の基本アルゴリズム

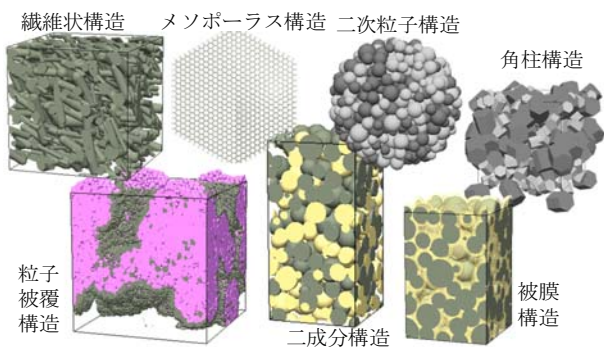


図 3 三次元多孔質シミュレータによる様々な複雑多孔質構造

図 3 には、POCO²により構築した様々な多孔質構造モデルを示す。二成分、繊維状構造、被覆構造、二次粒子構造、メソポーラス構造、角柱状構造など様々な多孔質構造モデルの構築が可能であることがわかる。

2.2 固体高分子形燃料電池空気極シミュレータ

三次元多孔質シミュレータにより構築されたPEFC 空気極触媒層構造モデルおよび触媒層における移動現象の概略を図 4 に示す。複雑な多孔質場における現象をシミュレーションするため、イオノマーに被覆された白金担持カーボン粒子からなる多孔質構造を領域に分割し、各領域における微細構造パラメータを抽出する。具体的には、体積比、断面積、白金表面積などに加えて、細孔径、プロトン伝導やガス拡散に対する屈曲度などの微細構造を評価可能である。評価された微細構造を考慮した上で、拡散、伝導、反応に伴う各領域の

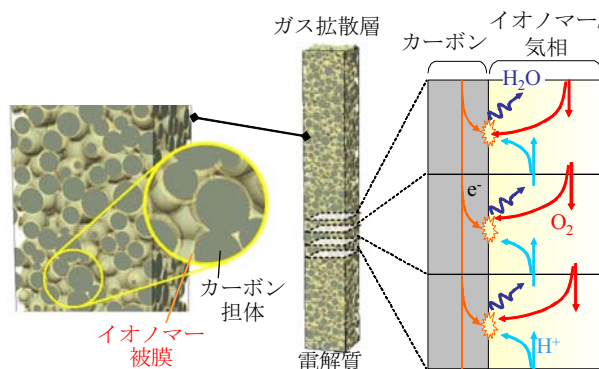


図 4 PEFC 空気極触媒層構造モデルと触媒層における反応・移動現象の概略

収支を解くことで過電圧を算出することができる。ここで過電圧とは、電池の内部抵抗に由来する電位ロスであり、オーム損、電極反応に起因する活性化過電圧、拡散抵抗に起因する濃度過電圧がある。過電圧の算出にあたっては、本稿では図 4 に示すように厚さ方向に一次元に構造モデルを分割した。触媒層内の物質移動として、気相およびイオノマー中の酸素拡散、イオノマー中のプロトン伝導を考慮した。電子の伝導は十分に速いと仮定し、生成水蒸気など酸素以外のガス種の拡散は頭には考慮しなかった。その他の詳細は既報を参照されたい[2]。

3. 固体高分子形燃料電池触媒層のマルチスケール計算化学解析

3.1 低加湿下におけるプロトン伝導解析

イオノマー内のプロトンの伝導機構は、プロトンが H_3O^+ として伝導する Vehicle 機構と H_3O^+ から隣接する H_2O 分子にホッピングして移動する Grotthuss 機構に大別される (図 5)。Grotthuss 機構では、水分子を介してプロトンが移動するため、伝導特性はイオノマー中の水クラスターの形成状態に大きく左右される。十分に加湿された状態で

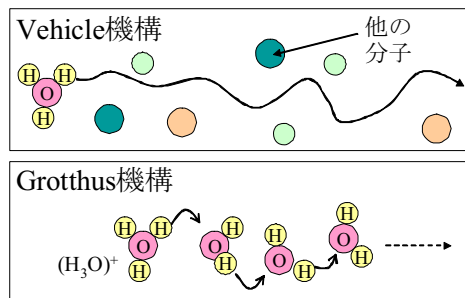


図 5 二つの主要なプロトン伝導機構

は、水分子がイオノマーと相分離し数ナノメートルのクラスター構造を形成することはよく知られている[11-12]が、低加湿条件における水クラスターの形成状態とプロトン伝導特性について原子・分子レベルでの知見は限定的である。本節では、原子・分子レベルでのシミュレーション例として、低加湿時のプロトン伝導特性を調べた結果を紹介する。

シミュレーションにはプロトンホッピング対応分子動力学法 New-RYUDO-CR[13]を用いてプロトン伝導シミュレーションを行った。シミュレーションの結果から、以下の式によりプロトン伝導率を算出した。まず、分子動力学計算中のある時刻における原子の位置 $r(t_0+\tau)$ と初期位置 $r(t_0)$ の差を二乗した平均値である平均二乗変位 (MSD: Mean Square Displacement) を算出する (式(1))。

$$MSD = \langle |r(t_0) - r(t_0 + \tau)|^2 \rangle \quad (1)$$

式(2)で示される Einstein の式により MSD から拡散係数 D を算出することができ、式(3)の Nernst-Einstein の式により伝導度 σ が算出される。

$$D = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{6t} MSD \quad (2)$$

$$\sigma = \frac{z^2 F^2 c}{RT} D \quad (3)$$

ここで、 F 、 R 、 T はファラデー定数、気体定数、温度であり、 z 、 c はイオンの価数、イオン濃度で

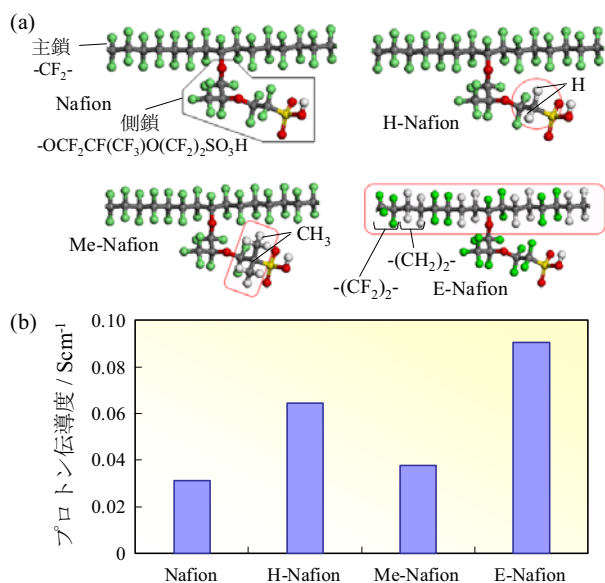


図 6 (a)プロトン伝導特性解析のためのイオノマーモデル, (b)算出されたプロトン伝導度

ある。

プロトン伝導特性に与える化学組成の影響を調べる目的で、図 6(a)に示す 4 通りのイオノマーモデル、すなわち、側鎖の化学組成が $-\text{OCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)\text{O}(\text{CF}_2)_2\text{SO}_3\text{H}$ の Nafion モデル、Nafion モデルの側鎖のフッ素原子二つを水素で置換した H-Nafion モデル、メチル基で置換した Me-Nafion モデル、主鎖にエチレンテトラフルオロエチレンを用いた E-Nafion モデルを用意した。これらのイオノマーモデルを用いて含水率 (水分子数/スルホン酸基数) が 6、353K の条件で計算されたプロトン伝導度を図 6(b)に示す。Nafion モデルのプロトン伝導度は 0.031 Scm^{-1} と算出され、実験的な報告値 (0.03 Scm^{-1} [14]) と良好な一致が得られた。計算の結果から、H-Nafion、Me-Nafion、E-Nafion とも Nafion よりも良好なプロトン伝導性が得られ、中でも E-Nafion が最も高いプロトン伝導性を示すと予測された。

3.2 多孔質構造が空気極過電圧特性に与える影響の解析

前節では、触媒層を構成する材料の物性解析例として、イオノマーのプロトン伝導性に関する分子シミュレーションの例を紹介した。本節では、触媒層の多孔質構造が電流-電圧特性に与える影響を調べる目的で異なる電極担体構造をモデル化し、その電流-電圧特性を調べた研究例を紹介する。

図 7(a)には、構築した空気極触媒層構造モデルの模式図を示す。図 7(a)左に示したのは、カーボン二次粒子が不規則に配置した表面をイオノマーが被覆した触媒層構造であり、標準的担体構造として作成した。触媒層厚さは $7\mu\text{m}$ 、イオノマー含有率 28wt%、空隙率 0.33 とした。カーボン二次粒子の粒径は 150nm とし、粒径 3nm の白金が 0.1mgcm^{-2} 担持されているとした。図 7(a)右に示したのは、一次元細孔が規則的に配置したメソポーラスカーボンの細孔表面をイオノマーが均一に被覆した構造で、触媒層厚さ、イオノマー含有率、空隙率、白金粒径・担持率は標準的構造と同様とした。その他の条件等は別稿に詳しい[2, 15]。これらのモデル構造を用いて、353K、相対湿度 66%・1 気圧の加湿空気に対する電流-電圧特性を計算した。ここで、燃料極過電圧は考慮せず、電解質膜厚は $50\mu\text{m}$ とした。図 7(b)には計算から得られた電流-電圧特性を示す。計算から、標準的構

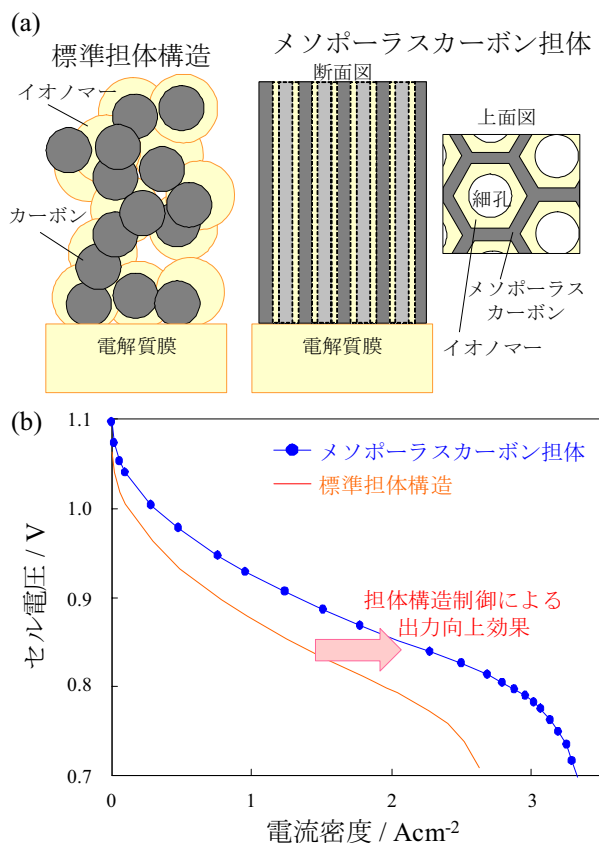


図7 (a)モデル化した触媒層構造の模式図, (b)担体構造の電流-電圧特性への影響解析結果

造と比較してメソポーラスカーボン構造の触媒層を用いることで優れた特性が得られることが予測された。また、三次元多孔質シミュレータに基づく解析によって、担体構造が電流-電圧特性にどのように影響を与えるのか定量的に解明可能であることがわかる。

3.3 固体高分子形燃料電池空気極触媒層のマルチスケールシミュレーション

本節では、ミクロな原子・分子レベル特性とメソスケールの多孔質構造を考慮したマクロな電流-電圧特性予測のためのマルチスケールシミュレーション例を紹介する。

表1 マルチスケールシミュレーションによる電流-電圧特性の評価条件

条件	担体構造	Pt 分布	イオノマー	電解質膜
A	標準	均一	Nafion	Nafion
B	メソポーラス	均一	Nafion	Nafion
C	メソポーラス	不均一	Nafion	Nafion
D	メソポーラス	不均一	E-Nafion	Nafion
E	メソポーラス	不均一	E-Nafion	E-Nafion

表1には、検討した五つのケースに対する条件を示す。ここでは、触媒層の担体構造、担持白金の空間分布、イオノマー材料、電解質膜材料を変えて電流-電圧特性の評価を行った。担体構造としては、前節で検討した標準的粒子状構造とメソポーラス構造を検討し、さらに、白金が厚さ方向に均一に担持されている標準的ケースと、厚さ方向に不均一に担持されているケースを検討した。担持白金の分布の模式図を図8(a)に示す。不均一に白金を担持させたケースでは、触媒層を3つの領域に区切り、電解質膜近傍に白金を多く担持し、中央の領域は均一担持時と同じ担持量とし、ガス

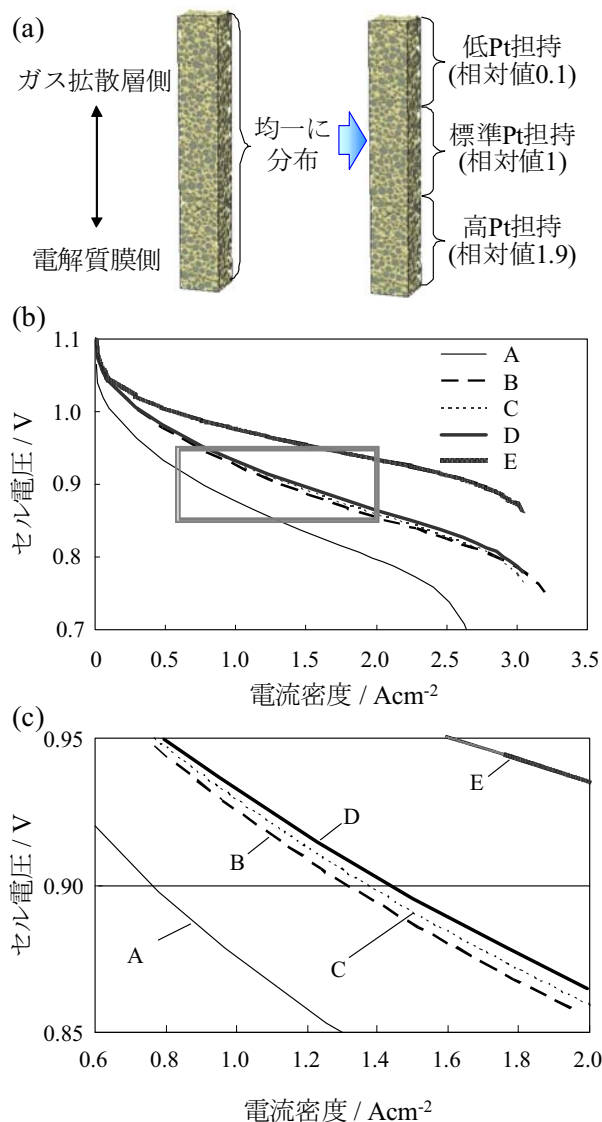


図8 (a)触媒層における白金担持状態に関する模式図, (b)表1の各条件において計算された電流-電圧特性, (c)図8(b)の灰色で囲った領域の拡大図

拡散層側の担持量は低くした。また、プロトン伝導性が向上したケースとして、条件 D および E での検討を行った。条件 D では、高プロトン伝導性材料として、3.1 節で検討した E-Nafion を想定し、E-Nafion を電解質膜にも用いたケースについても条件 E として検討した。

図 8(b)には表 1 に示す 5 つの条件において評価した電流-電圧特性を示す。条件 A および B は前節で担体構造の影響を調べた条件に相当するため、図 7(b)に示す結果に等しく、参照のために示した。白金の分布を不均一にした条件 C では、条件 B と比較して 0.9V における出力が約 $60\text{mA}/\text{cm}^2$ 増加していることがわかる。同様に、条件 D において高プロトン伝導性イオノマーを用いることでさらに $60\text{mA}/\text{cm}^2$ 程度の出力増加が計算された。このときの出力電流密度は 0.9V において $1.48\text{A}/\text{cm}^2$ であり、条件 A で示す標準的な粒子状担体に対して約 2 倍の高い出力が期待できることが示された。さらに、電解質膜にも高プロトン伝導性材料を使用することにより、条件 A に対して約 3.5 倍の高い出力が計算により示された。

4. まとめと今後の展望

本稿では、PEFC の触媒層多孔質場における理論解析の一例として、三次元多孔質シミュレータと分子シミュレーションに基づくマルチスケールシミュレーションを紹介した。著者らが開発した三次元多孔質シミュレータに基づくマルチスケールシミュレーションにより、原子・分子レベルの特性や多孔質微細構造が電池特性に与える影響を解明可能であることを理解いただけたと期待する。

一方で、本稿で紹介した研究例では、空気極触媒層における生成水の凝縮は未考慮であり、凝縮水による電極反応障害の課題が解決された場合にどこまでの出力向上が期待されるか理想的な電池特性を示したものである。今後、理想的電池特性の実現に向けて、凝縮水を考慮した触媒層内の反応・移動現象の解明に大きな期待が寄せられている。その実現のためには、多孔質構造場における凝縮水の流動現象解明のための手法の開発および多孔質場における基礎物性推算のための手法の開発が必須である。前者に対しては、大島ら[16]、井上ら[17]が先駆的な研究を行っており、そのさらなる発展に向けた研究が活発になされている。

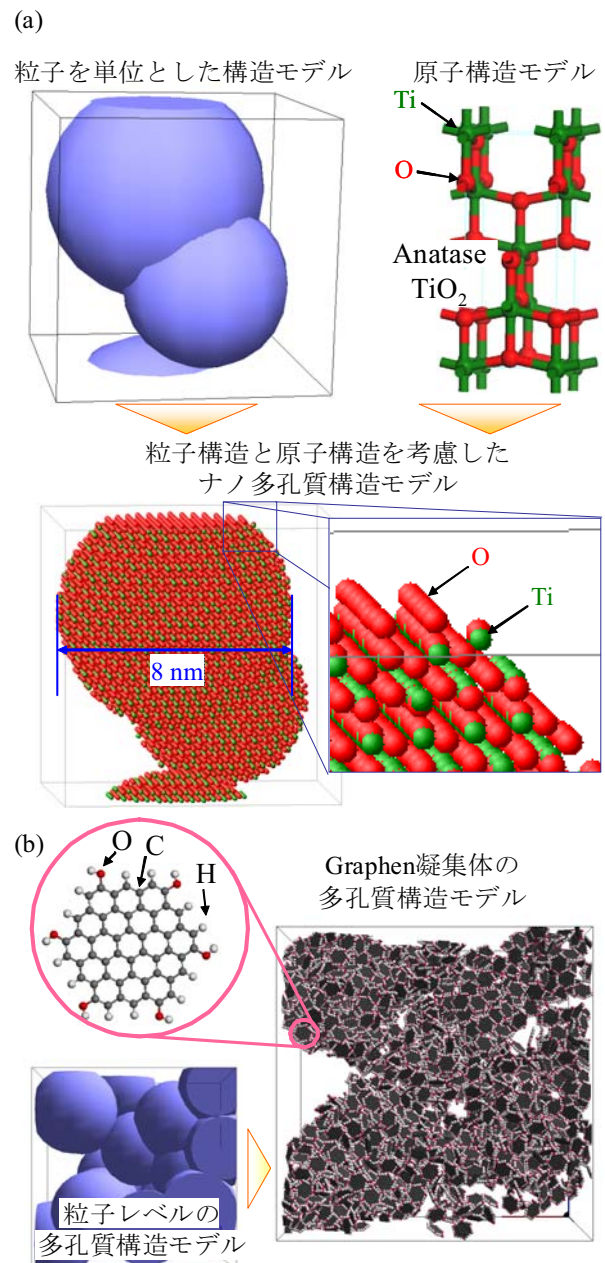


図 9 (a) TiO_2 結晶を例とした大規模ナノ多孔質構造モデル, (b) グラフェン凝集体を例とした大規模ナノ多孔質構造モデル

一方著者らは後者の課題に対して、三次元多孔質シミュレータと分子シミュレーションの融合に基づく研究に着手済みであり、その予備的な取り組みを図 9 に紹介する。図 9(a)には、粒子を単位とした単純多孔質構造とアナターゼ型 TiO_2 の結晶構造に基づき、原子座標を考慮したナノ多孔質構造を作成した例を示す。図 9(b)には、より複雑なグラフェン凝集体からなる多孔質構造のモデル化

例を示す。このような構造モデルに基づき分子シミュレーションを行うことで、複雑多孔質空間の疎水性・親水性など表面物性の理論予測や、反応種・拡散種の細孔内や表面での動的特性の解明が可能となると期待される。今後、複雑多孔質空間における分子論的特性シミュレーションと連続体力学に基づく流動現象シミュレーションとの連携により、触媒層という複雑多孔質場における反応・移動現象の理論解明に基づく革新的触媒層の設計というブレークスルーの実現が期待される。

参考文献

- [1] Koyama, M. et al., Challenge toward Microstructure Optimization of Irregular Porous Materials by Three-Dimensional Porous Structure Simulator, *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, in press.
- [2] Hattori, T. et al., Development of the Overpotential Simulator for Polymer Electrolyte Fuel Cells and Application for Optimization of Cathode Structure, *Appl. Surf. Sci.*, **254-23** (2008) 7929-7932.
- [3] Koyama, M. et al., Development of Porous Structure Simulator for Multi-Scale Simulation of Irregular Porous Catalysts, *Appl. Surf. Sci.*, **254-23** (2008) 7774-7776.
- [4] 古山通久, 扇谷 恵, 服部達哉, 福長 博, 鈴木 愛, Riadh Sahnoun, 坪井秀行, 畠山 望, 遠藤 明, 高羽洋充, 久保百司, Carlos A. Del Carpio, 宮本 明, 不規則性多孔体微細構造最適化のための三次元多孔質シミュレータ POCO²の開発と応用, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **7-2** (2008) 55.
- [5] Ogiya, K. et al., Development of the Multi-Scale Simulator for the Dye-Sensitized TiO₂ Nanoporous Electrode Based on Quantum Chemical Calculation, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47-4B** (2008) 3010.
- [6] Koyama, M. et al., Development of Three-Dimensional Porous Structure Simulator for Optimizing Microstructure of SOFC Anode, *ECS Trans.*, **7-1** (2007) 2057.
- [7] 古山通久, 服部達哉, 鐘 慧峰, 坪井秀行, 畠山 望, 遠藤 明, 高羽洋充, 久保百司, Carlos A. Del Carpio, 宮本 明, 量子分子動力学法と多孔質シミュレータによる固体高分子形燃料電池電極の理論設計, *Electrochem.*, **75-5** (2007) 411.
- [8] 古山通久, 服部達哉, 坪井秀行, 畠山 望, 遠藤 明, 高羽洋充, 久保百司, Carlos A. Del Carpio, 宮本 明, 基礎講座: 統合化計算化学手法による燃料電池材料設計 第6回: 三次元多孔質シミュレータに基づくマルチスケール計算化学への展開, *燃料電池*, **6-2** (2006) 114.
- [9] 古山通久, 坪井秀行, 遠藤 明, 久保百司, Carlos A. Del Carpio, 宮本 明, ものづくりのためのマルチスケール・マルチフィジックスコンビナトリアル計算化学, *新素材マニュアル*, **23** (2006) 20.
- [10] 古山通久, 坪井秀行, 遠藤 明, 久保百司, Carlos A. Del Carpio, 宮本 明, 実践的マルチスケール計算化学のための3次元多孔質シミュレータの開発と応用, *新素材マニュアル*, **23** (2006) 26.
- [11] Schmidt-Rohr, K. and Chen, Q., Parallel Cylindrical Water nanochannels in Nafion Fuel-Cell Membranes, *Nature Materials*, **7-1** (2008) 75.
- [12] Wescott, J. T. et al., Mesoscale Simulation of Morphology in Hydrated Perfluorosulfonic Acid Membranes, *J. Chem. Phys.*, **124-13** (2006) 134702.
- [13] Morita, Y. et al., Development of a New Molecular Dynamics Method for Tribochemical Reaction and Its Application to Formation Dynamics of MoS₂ Tribofilm, *Appl. Surf. Sci.*, **254-23** (2008) 7618-7621.
- [14] Zawodzinski, T. A. Jr. et al., Characterization of Polymer Electrolytes for Fuel Cell Applications, *Solid State Ionics*, **60-1-3** (1993) 199.
- [15] Koyama, M. et al., Multi-scale Simulation Approach for Polymer Electrolyte Fuel Cell Cathode Design, *ECS Trans.*, **16**(2008) 57-66.
- [16] Shia, W. et al., Effect of Capillary Pressure on Liquid Water Removal in the Cathode Gas Diffusion Layer of a Polymer Electrolyte Fuel Cell, *J. Power Sources*, **182-1** (2008) 112.
- [17] Inoue, G. et al., Development of Simulated Gas Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cells and Evaluation of its Structure, *J. Power Sources*, **175-1** (2008) 145.

ナノテクを利用した熱電発電の効率化

Enhancement of Thermoelectric Efficiency by using Nano-Technology

宮崎 康次 (九州工業大学)

Koji MIYAZAKI (Kyushu Institute of Technology)

e-mail: miyazaki@mech.kyutech.ac.jp

1. はじめに

近頃の原油高騰も相まって、エネルギー問題への関心は強まるばかりであり、既に実用化されている風力発電や太陽光発電に代表される自然エネルギーを利用した発電技術が注目を集めている。このように未利用エネルギーの有効利用技術は、今後も益々重要性を増していくことに疑いはなく、その中で廃棄された熱を利用した直接発電も脚光を浴びてもよいと思われる。実際に米国では、熱電発電により自動車廃熱を有効利用する産学連携の大型プロジェクトが米国エネルギー省(DOE)によって強力に進められている。熱電発電は、半導体により熱から直接発電する仕組みであり(図1)、可動部を持たないため動作が安定する上に寿命も長い。このような利点を活かし、光の届かない深宇宙探査機の発電へ応用され、実績も挙がっている[1]。日本では、体温で発電して動作する腕時計[2]が発売されたこともあったように、エネルギーの質が低いすなわち低い温度をもつ熱源からも発電できることが他発電方法には見られない特長でもある。一見、画期的なこの技術が日常生活に姿を現さないのは、ひとえに極めて低い発電効率にある。近年、欧米日を中心として、中国や韓国も加わる競争の激しいナノテクを利用した熱電発電の効率改善[3-8]について紙面を借りて紹介したい。

2. 熱電発電の効率

熱電発電の効率 η は、熱電素子の一端を熱入力 Q に対して得られる電気出力 P の比によって計算される(図2)。

$$\eta = \frac{P}{Q} = \frac{T_h - T_c}{T_h} \frac{(T_h - T_c) \frac{m}{m+1}}{1 + \frac{\kappa(m+1)}{\alpha^2 \sigma T_h} - \frac{1}{2} \frac{T_h - T_c}{T_h(m+1)}} \quad (1)$$

ここで T_h は熱電素子加熱部の絶対温度、 T_c は熱電



図1 熱電発電の様子(牧野研究室(京都大学)にて)。お湯を入れたコップから液体窒素を入れたコップに流れる熱を利用して熱電発電し、小型モーターが回転している。

素子冷却部の絶対温度、 m は熱電素子と外部負荷の電気抵抗の比 R/r (r : 熱電素子の電気抵抗、 R : 外部負荷の電気抵抗)、 κ は熱電素子の熱伝導率、 σ は電気伝導率、 α はゼーベック係数である。詳細は文献[1]をはじめとしてエネルギー変換関連の教科書に詳しいので、詳細な記述は省略し、性能指数 ZT の概略を以下に説明する。熱電発電に外部負荷をかけたとき、最高効率を得られる負荷 m_{opt} を $\partial\eta/\partial m = 0$ から、単純ではあるが、やや煩雑な計算を進めると式(2)が求められる。

$$m_{opt} = \sqrt{1 + \frac{1}{2} \frac{\alpha^2 \sigma}{\kappa} (T_h + T_c)} = \sqrt{1 + ZT} \quad (2)$$

そのときの効率が最高効率 η_{max} である。

$$\eta_{max} = \frac{T_h - T_c}{T_h} \times \frac{m_{opt} - 1}{m_{opt} + \frac{T_c}{T_h}} \quad (3)$$

式(3)は、カルノー効率 $(= (T_h - T_c)/T_h)$ に対して性能指

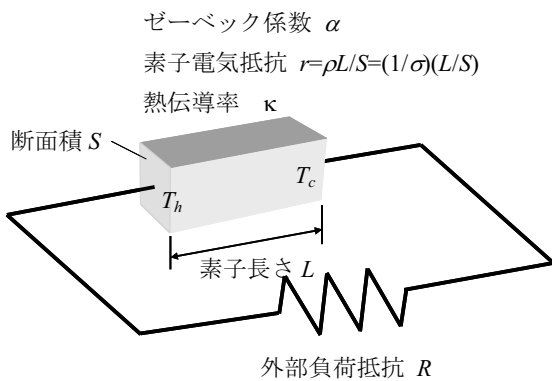


図2 熱電発電効率を考察する際の概略。 T_h (高温) と T_c (低温) の温度差で発電，外部負荷抵抗 R を駆動する。

数と呼ばれる無次元数 ZT ($Z = \alpha^2 \sigma / \kappa$, $T = (T_h + T_c) / 2$) で表わされる関数が掛け合わされている。 ZT が大きいほど効率が向上，無限大のときカルノー効率と等しくなる(図3)。従って， ZT の向上が熱電発電の研究の寄り処となっている。 Z は，分子にパワーファクターと呼ばれる電気的特性，分母に熱伝導率を持つため，パワーファクターが大きく，熱伝導率の小さい材料が効率の観点から熱電発電に適している。効率を度外視して，パワーのみが必要であれば，パワーファクターの大きい材料で十分ということになる。ちなみにこの効率の算出には，いろいろな疑問が投げられかけていることも事実であり，分母の熱収支を考えると，なぜ高温側と低温側にジュール発熱が $1/2$ ずつ分配されるのか(低温側に多く供給されるはず)といった単純な疑問から，式の成り立たない発電デバイス形状や新しい利用形態を考え出せば， Z に関係なく熱電発電の効率は向上できるといった問題提起もなされている[9]。実際にペルチェ冷却(発電と同様の手順でCOPが計算できる)の際に ZT では，デバイスの効率評価ができないとの意見が挙げたことがある[10]。異なる視点では，システム全体としての効率も当然重要であり，最適値を与える外部負荷 m_{opt} が ZT で書き表されているので，稼働させる機器の入力インピーダンスと熱電発電デバイスの内部抵抗とがマッチしている必要がある。さらに熱的にもデバイスの両端に温度差がつくような加熱と冷却がなされているかなど熱電発電の利用が決して容易ではないことが見えてくる。このように ZT を向上させれば，高効率化に関わ

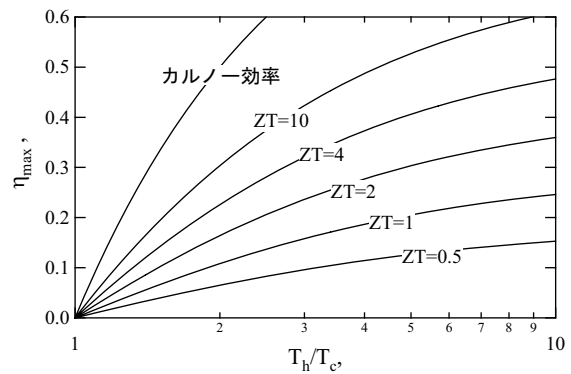


図3 熱電素子の発電効率。式(3)に ZT を代入してプロットした。

る課題がすべて解決できるほど単純ではないものの，実用的には， Z の大きい材料を用いたときに効率の良い熱電発電となることが経験的に示されていることもあって，結局， ZT の向上が熱電研究の大きな柱になっている。

3. 熱電発電の効率向上

式(3)や図2で表現されない熱電発電のあり方や熱電素子の冷却側の熱設計も伝熱に関わる研究者に投げかけられている極めて重要な課題と個人的には思うものの，もう少しわかりやすい課題として，物性で成り行きの決まる Z をナノテクノロジーで理解できるメカニズムで人工的に制御することも伝熱研究において重要と考えている。上記の課題がクリアされれば，新しい材料を発見せずとも，人工的に効率を改善できるためである。そもそもナノテクノロジーが世界的な流行となるきっかけの一つとなった論文が，膜厚が数 nm にしか満たない超薄膜では，電子の状態密度関数がバルクのもつ2次関数的な状態密度関数と異なり，階段状の関数になるため，パワーファクターが巨大になり， Z が物性の壁を越えて向上するといった衝撃的な提案であったと認識している[11]。ちなみに上記論文の提案は，同著者らによって1998年に実験で現象が確認され[12]，2007年にも名古屋大学の研究グループによって，解析結果が実験で示され *Nature Materials* に論文が掲載された[13]ことは記憶に新しい。

その一方で，熱伝導率を低減すること(断熱性を高めること)を通して，物性の壁を越えた熱電発電の高効率化を狙った研究も多く[3-7]，伝熱の

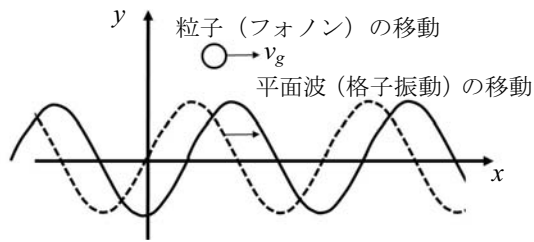


図4 格子振動とフォノンの対応. 角周波数 ω , 波数 k を持つ平面波は, 群速度 $v_g=d\omega/dk$ で移動し, $\hbar\omega$ のエネルギーを輸送する

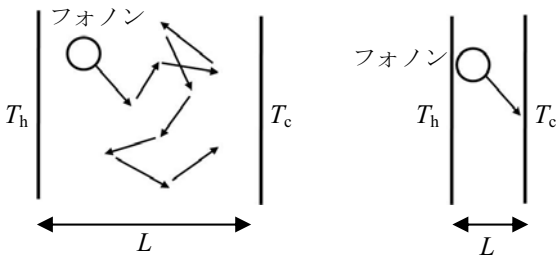


図5 フォノンの拡散的輸送(左)と弾道的輸送(右). 左:フォノンは衝突を繰り返し, 移動がランダムウォークになり拡散的である. 右:他のフォノンと衝突することなく弾道的に薄膜表面から薄膜表面へ到達する

研究者にとっては, 知識をそのまま利用できる点から研究に参入しやすい. そもそも Bi_2Te_3 や PbTe など高い発電効率[14]を示す熱電材料の熱伝導率は低いこともヒントである. $\text{Bi}_2\text{Te}_3\text{-Sb}_2\text{Te}_3$ の超格子構造($ZT=2.4$)[3], PbTeSe の量子ドット構造($ZT=1.4$)[4], Si ナノワイヤー($ZT=0.6$)[6]による熱伝導率の低減などは, ナノテクノロジーによって ZT を熱の観点から向上させた代表例である. 半導体において電子が電気を輸送し, 格子振動が熱を輸送する(半導体において, 電子があまり熱の輸送に寄与していないことは, ローレンツ数を用いると簡単に見積もれる). このことより, 熱を運ぶ格子振動の輸送を解けば, ナノ構造を利用して, 見かけの熱伝導率を人工的にどれだけ操れるか定量的に見えてくることになり, ナノテクノロジーを利用して熱電発電の効率を戦略的に向上できる.

4. ナノ構造における熱伝導計算

以前から材料を薄膜とすると熱伝導率が低減することはよく知られている[15-16]. このような現象をフォノン輸送モデル[17]を用いるとよく説明

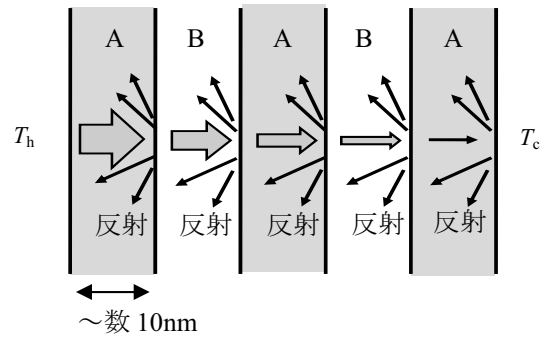


図6 超格子構造の熱輸送, 物質Aと物質Bが数10nm以下といったオーダーで積層されている. 積層された界面でフォノンが次々と反射するため, 大きくその熱伝導率が低下する

できることも知られている[16-18]. 固体力学をはじめとする教科書[19-20]にフォノンの記述は詳しいが, フォノンモデルの概略は, 図4のように x 方向に伝わる平面波 (y - z 平面で作る周波数 ω , 波数 k の波) によって熱が輸送される様を $\hbar\omega$ のエネルギーをもつ粒子が波の群速度 $v_g(=d\omega/dk)$ で移動する様に置き換えて考えるものである. モデルでは粒子と粒子の衝突を考えるので, 粒子の平均自由行程 l がナノ構造の熱伝導に対する影響の強さを考えるときに指標となる. フォノンの平均自由行程 l は, 比較的長いことが知られており, Si で室温であれば 200nm 程度と計算されている[21]. 例えば Si の熱伝導を考えると, Si 結晶のサイズ L (厚み) が 200nm よりも非常に厚いとき(日常の熱伝導), フォノンは激しく衝突を繰り返してエネルギーを放出し, 衝突ごとに方向を変えながら高温 T_h から低温 T_c へ移動, 熱を輸送する(図5左). このようなランダムウォークが基本となる移動は, まさに拡散であり, 熱伝導方程式が拡散方程式であることと矛盾しない. 一方で Si のサイズ L が 200nm よりも薄いとき, フォノンは他のフォノンと全く衝突せずまっすぐ弾道的に薄膜表面から薄膜表面へ移動する(図5右). このような状況では, フォノンとフォノンの衝突より, むしろ表面におけるフォノンの反射が熱輸送の本質となり, 重要となる. 薄膜(自立膜を想定)ではフォノンが空間に放出されない(真空中でなければ空間への熱伝導, 真空中でも熱ふく射による輸送はあるが, それらを見做すと), フォノンの反射率は1となる. どのようにフォノンの弾道輸送を解

くかは、研究者によってそれぞれであるが、ボルツマン輸送方程式にフォノンのもつエネルギー $\hbar\omega$ と群速度 v_g 、状態密度関数 $D(\omega)$ を掛けてフォノン強度 I の式とし、境界条件にフォノンの反射率 1 を仮定して計算すると、薄膜のもつ低い熱伝導率が計算される[16-18, 22, 23]. このようにフォノンの反射が熱伝導率の減少に直結していることをヒントにすると、先の超格子構造[3]、量子ドット超格子構造[4]の物性の壁を越えた(合金限界よりも低い)低い熱伝導率が生み出されるメカニズムが見えてくる. 超格子構造の界面に垂直なフォノン輸送の概略を図6に示す. 物質Aと物質Bの界面で必ずフォノンが反射するため、輸送が弾道的で反射(と透過)が熱輸送の本質である領域では、その輸送が激減する. この現象は、フォノン輸送モデルで定量的に説明でき、実験から得られる超格子構造の構造周期が熱伝導率に与える影響や、超格子構造を構成する物質の組み合わせによる熱伝導率低減の違いがよく示されている[24].

補足となるが、分子動力学計算を用いれば、一個一個の原子の動きを計算しているのだから、格子振動による平面波の輸送、波同士の衝突、界面における反射などすべての現象を意識せずに計算できる. ただし、フォノンの平均自由行程以上の計算サイズを準備しないと、周期境界条件による人工的な衝突が激しく(散乱が激しく)なるため、計算される熱伝導率は計算領域にナノ構造が全く無くとも小さくなる[25]. 分子動力学法の事実上可能な計算サイズを考えると、実験結果と完全に一致する熱伝導率を分子動力学計算のみによって、直接得ようとするのは、あまり現実的ではなく、工夫が必要となる. 我々の研究室では、計算結果に周波数解析をかけることで、フォノン輸送モデルでは原理上得られないフォノンの群速度や状態密度関数とナノ多孔体との関係を調べるのに使っている[26].

5. ナノ多孔体を用いた熱電素子の ZT 向上

超格子構造やナノコンポジットなど、薄膜技術をベースとした熱電素子で、大きな体積を持つ素子を作ることは実用上難しい. その一方で熱電発電の出力は素子体積に比例することを考慮すると、大きな体積は実用上不可欠である. そこで我々研究グループでは、ナノ多孔体を利用した熱電素子

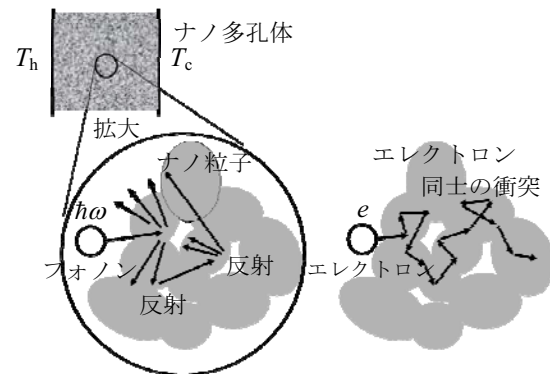


図7 ナノ多孔体を用いた熱電半導体の ZT 向上の概念図(左:フォノン輸送, 右:エレクトロン輸送). 左:ナノ孔構造がフォノンの平均自由行程よりも短い間隔で入りこんでおり、ナノ孔表面でフォノンが反射しながら弾道的に輸送される. 右:エレクトロンにとっては、平均自由行程よりも大きい構造で、輸送は拡散的となる.

の ZT 向上を目指してきた(図7)[22, 23, 27]. フォノンの平均自由行程が比較的長いことに着目すれば、平均自由行程の短いエレクトロン(電子)の輸送が拡散的で、平均自由行程の長いフォノンの輸送が弾道的となるサイズでナノ孔を作れば、電気伝導度よりも熱伝導率を大きく低減できるはずである. 実際、ナノ孔のサイズがフォノンの平均自由行程程度になれば、大幅に熱伝導率を下げられることをフォノン輸送モデルで計算してきた[22, 23]. さらに粉碎技術を用いてナノ粒子を大量に作製できるため、材料を粉碎した後に弱く焼き固めれば、ナノ多孔体を作製でき、大きな体積をもつ素子が作製できる. 現状では、熱伝導率をバルクの $1/10$ 程度にまで下げることができた[28]. ただし電気伝導度の低下を妨げることが依然課題である. ポーラス Si を用いて熱伝導率を低減し、ZT を大きく向上させた報告例[29]もあり、現状の実験結果に対しては、作製手法に改善の余地があると考えている. その一方でフォノンが予想以上に散乱されやすいことを利用して、ナノ結晶による熱伝導率低減で ZT を向上させた報告例がある[7]. 実際、熱電半導体を薄膜で生成するとナノ結晶ができ、それによって大きく熱伝導率が減少し、ZT がバルクよりも若干向上している結果も得られており[30]、もう少しだけナノ多孔構造に期待

して研究を進めていきたいと考えている。

6. まとめ

本稿では、ナノテクの一つの応用先として熱電発電の高効率化について述べ、研究室の活動も少しだけ紹介させていただいた。現象として興味深いナノ構造における熱輸送の応用がなかなか見えない状況にあって、明確な目標のある熱電発電の研究は、欧米日さらにアジアの数多くの研究者が取り組んでいる競争の激しい分野である。太陽光発電が光から電気を直接生み出すように、熱電発電は熱から電気を直接生み出すため、低い効率という致命的な問題さえクリアできれば、現在の太陽光発電のような重要な発電技術に化ける可能性は高い。酸化物材料をはじめとして、日本発の技術が着目を浴びている分野でもあり[31]、なんとか伝熱工学を基礎としたナノテクの研究者が熱電発電の実現に大きく寄与できれば幸いと思って研究を続けている。

謝辞

紹介させていただいた我々研究グループの活動は、高尻雅之博士(小松製作所), Alexandre Jacquot 博士(Fraunhofer 研究所)の献身的な努力により、進められたところが大きく、不可欠であった。フォノン計算については、新潟大学の櫻井篤先生(当時:東北大学博士後期課程)や Chris Dames 先生(Univ. of California, Riverside), Ronggui Yang 先生(Univ. of Colorado, Boulder)との議論により、理解が深まった。本稿で触れた研究の一部は、科学研究費(若手研究(A) No. 18686020), JST 戦略的創造研究推進事業さきがけ(ナノテク融合領域 H.16-H.19)からの助成を受けて行われた。記して謝意を表する。

参考文献

- [1] Rowe, D.M., CRC Handbook of Thermoelectrics, CRC Press (1995).
- [2] Kishi, M. et al., Micro-thermoelectric Modules and Their Application to Wristwatches as an Energy Source, Proceedings of 18th International Conference on Thermoelectrics (1999) 301.
- [3] Venkatasubramanian, R. et al., Thin-film Thermoelectric Devices with High Room-temperature Figures of Merit, *Nature*, **413** (2001) 597.
- [4] Harman, T.C. et al., Quantum Dot Superlattice Thermoelectric Materials and Devices, *Science*, **297** (2002) 2229.
- [5] Hsu, K. F. et al., Cubic AgPb_mSbTe_{2+m}: Bulk Thermoelectric Materials with High Figure of Merit, *Science*, **303** (2004) 818.
- [6] Hochbaum, A. I. et al., Enhanced Thermoelectric Performance of Rough Silicon Nanowires, *Nature*, **451** (2008) 163.
- [7] Poudel, B. et al., High-Thermoelectric Performance of Nanostructured Bismuth Antimony Telluride Bulk Alloys, *Science*, **320** (2008) 634.
- [8] Heremans, J. P. et al., Enhancement of Thermoelectric Efficiency in PbTe by Distortion of the Electronic Density of States, *Science*, **321** (2008) 554.
- [9] 越後亮三, ポーラス系での熱現象 -特に熱電変換に着目して-, 日本機械学会誌, **96-892** (1993) 204.
- [10] 山口作太郎, 半導体素子のペルチェ冷却, *ULVAC*, **52** (2007) 14.
- [11] Hicks, L.D., and Dresselhaus, M.S., Effect of Quantum-Well Structures on the Thermoelectric Figure of Merit, *Physical Review B*, **47** (1993) 12727.
- [12] Hicks, L.D. et al., Experimental Study of the Effect of Quantum-well Structures on the Thermoelectric Figure of Merit, *Physical Review B*, **53** (1996) R10493.
- [13] Ohta, H. et al., Giant Thermoelectric Seebeck Coefficient of a Two-dimensional Electron Gas in SrTiO₃, *Nature Materials*, **6** (2007) 129.
- [14] Majumdar, A., Thermoelectricity in Semiconductor Nanostructures, *Science*, **303** (2004) 777.
- [15] Ju, Y.S., and Goodson, K.E., Phonon Scattering in Silicon Films with Thickness of Order 100 nm, *Applied Physics Letters*, **74** (1999) 3005.
- [16] Cahill, D.G. et al., Nanoscale Thermal Transport, *Journal of Applied Physics*, **93**(2003)793.
- [17] Majumdar, A., Microscale Heat Conduction in

- Dielectric Thin Films, Transaction of the ASME Journal of Heat Transfer, **115**(1993) 7.
- [18]Chen, G., and Shakouri, A., Heat Transfer in Nanostructures for Solid-State Energy Conversion, Transaction of the ASME Journal of Heat Transfer, **124** (2002) 242.
- [19]Kittel, C., Introduction to Solid State Physics, 6th ed., Wiley (1986).
- [20]Ashcroft, N.W., and Mermin, N.D., Solid State Physics, Cornell University (1976).
- [21]Dames, C., and Chen, G., Theoretical Phonon Thermal Conductivity of Si/Ge Superlattice Nanowires, Journal of Applied Physics, **95**(2004) 682.
- [22]Miyazaki, K. et al., Heat Conduction in Microstructured Materials, IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies, **29**(2006) 247.
- [23]Sakurai, A. et al., Three-Dimensional Phonon Transport Simulation for Nano/Micro-Structured Materials, International Journal of Nanoscience, **7** (2008) 103.
- [24]Chen, G., Thermal Conductivity and Ballistic-phonon Transport in the Cross-plane Direction of Superlattices, Physical Review B, **57**(1998) 14958.
- [25]Volz, S., and Chen, G., Molecular-Dynamics Simulation of Thermal Conductivity of Silicon Crystals, Physical Review B, **61**(2000) 2651.
- [26]Miyazaki, K., Nagai, D., and Tsukamoto, H., Molecular Dynamics Simulations of Heat Conduction in Thin Film with Nano-holes, Proceedings of MicroNano08 (2008) MicroNano2008-70327.
- [27]Takashiri, M. et al., Preparation and Characterization of Bi_{0.4}Te_{3.0}Sb_{1.6} Nanoparticles and Their Thin Films, Journal of Alloys and Compounds, **462**(2008) 351.
- [28]Tanaka, S. et al., Thermoelectric Properties of Nano-structured Bismuth Telluride Thin Films, Proceedings of the 2nd IFHT (2008) 176.
- [29]Yamamoto, A. et al., Two Dimensional Quantum Net of Heavily Doped Porous Silicon, Proceedings of 17th International conference on thermoelectric (1998) 198.
- [30]Takashiri, M. et al., Thermoelectric Properties of n-type Nanocrystalline Bismuth-telluride-based Thin Films Deposited by Flash Evaporation, Journal of Applied Physics, **101** (2007) 074301.
- [31]Koumoto, K., Terasaki, I., Kajitani, T., Ohtaki, M., and Funahashi, R., Oxide Thermoelectrics, Thermoelectrics Handbook: macro to nano, D. M. Rowe Ed., CRC Press, (2006).
-

マイクロ熱光発電システムの開発に向けて Toward Development of Micro Thermophotovoltaic System

鈴木 雄二 (東京大学)
Yuji Suzuki (The University of Tokyo)
ysuzuki@thtlab.t.u-tokyo.ac.jp

1. はじめに

近年、小型かつ可搬可能なエネルギー源への要求が高まりつつある。図1は、民生用可搬機器の消費電力と電力量をプロットしたもの[1]である。必要とされる消費電力は、 $10\mu\text{W}$ から 100W オーダーまで幅広い。このような機器のエネルギー源には、従来化学電池、なかでも2次電池が用いられている。例えば、2006年における電池の国内生産高のうち、リチウムイオン2次電池(LIB)は42%を占める[2]。しかし、LIBのエネルギー密度は必ずしも十分とは言えず、今後の大幅な向上も難しい。一方、ブロードバンドの通信可能な携帯電話、高クロックCPU・大画面を持つノートPC、ウェアラブル端末などの情報通信機器だけでなく、電動義手、人工心臓、電動車椅子、人型ロボットなど、医療・福祉分野でも可搬機器が発達していくと考えられ、LIBに替わるエネルギー源の重要性がさらに高まると予想される。

このような背景から、燃料の持つ化学エネルギーの密度が2次電池の数10倍大きいことを利用して、携帯可能なマイクロエネルギー源(電力源)が注目されている。エネルギー密度は、メタノールでLIBの30倍、ブタンで80倍であり、発電効率が低くても、なお、数~10倍の持続時間が期待できる。

マサチューセッツ工科大学(MIT)では、1994年頃からマイクロマシン技術を用いた直径1cm程度のガスタービンを製作する試みが始まった。その後、米国を中心として、燃料を用いるマイクロエネルギー源の研究が盛んに行われた[3-5]。発電方法は、マイクロガスタービン、ロータリーエンジン、固体高分子型燃料電池(PEFC)、メタノール直接型燃料電池(DMFC)、固体氧化物型燃料電池(SOFC)、熱電発電、熱光発電(TPV)など、非常に多岐に渡る。この中で、DMFCが最も実用化に近いとされ、既に幾つかのメーカーから

プロトタイプも発表されている。これに対し、マイクロエンジン、熱光発電などの燃焼型発電器は、燃料の種類を選ばない、単位面積(体積)あたりの発電量が $1\text{W}/\text{cm}^2$ 以上とDMFCに比べ1桁程度大きい、などの利点を有する。

本稿では、燃料電池に比べて発電密度が高く、補機の不要な発電システムとして著者らが開発に取り組んでいる、マイクロTPVシステムについて解説する。

2. 熱光発電システム

図2に、マイクロ熱光発電システムの概念図を示す。熱光発電とは、燃焼器からの放射光を光電素子により電気に変換する発電方式であり、構成要素は、空気供給系、マイクロ燃焼器、選択的放射体、断熱構造、低バンドギャップの光電セルである。本研究では、燃料として、液体

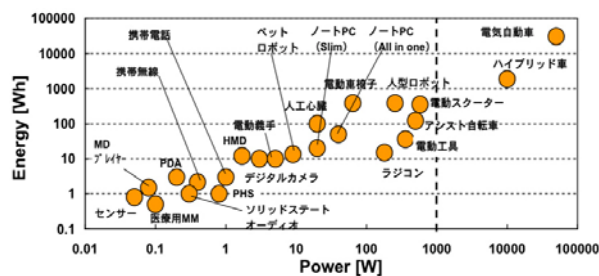


図1. 民生用可搬機器の消費電力と電力量[1]

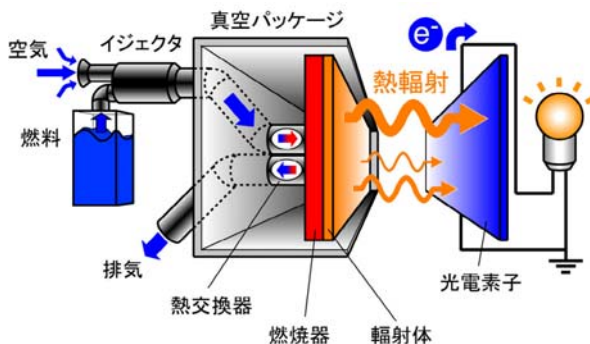


図2. マイクロ熱光発電システムの概念図

として保存が容易であり、毒性のないブタンを用いている。

想定される発電効率であるが、燃料の持つ化学エネルギーから放射エネルギーまでの変換効率が7割程度、放射エネルギーから電気エネルギーへの変換効率が2割程度であり、総合効率は10-15%が目標となる。マクロシステムと比較するとはるかに効率が低いが、前述の燃料のエネルギー密度の議論から、マイクロ発電システムとしてはこの程度の効率でもLIBに対して十分に對抗できる。

2.1 空気供給系

マイクロ発電システムでは、補機をいかに簡単にするかも重要な観点となる。燃料電池では、スタック内部の圧力損失が大きいいため、多くの場合、コンプレッサーなどによる加圧が必須であり、それに伴ってバルブや様々なセンサーが必要となる。一方、熱光発電においては、燃焼器内部の圧損だけに打ち勝てば良い。そこで、受動的な空気供給手法として、イジェクタの利用が考えられている。

イジェクタは、高速噴流の伴流を利用して周囲の流体を吸引するものであり、冷凍サイクルなどで使用されている。しかし、従来のイジェクタでは2次流の流量が噴流の流量と同程度であるのに対し、燃焼器では、燃料を完全に反応させるだけの空気を吸引しなければならない。プロパンでも燃料流量の25倍、ブタンでは32.5倍の空気流量が必要であり、2次流ノズルの面積を噴流ノズルの面積よりも極めて大きくする必要がある[6]。

著者らは、流れに対する側壁の悪影響を抑制するため、3次元軸対称の超音速ノズルを試作した[7]。ステンレス材料の超精密放電加工によりスロート径42 μm 、出口直径60 μm のラバールノズルを製作した(図3)。クヌッセン数は0.002程度であり、希薄気体効果はほぼ無視できる。しかし、粘性の影響は大きく、1次元モデルでは出口マッハ数2となる条件において予備的なCFD解析を行ったところ、境界層の発達によって出口マッハ数が1程度にとどまることが示された[7]。

図4に実験結果を示す。背圧が小さいときにはブタン流量の最大43倍の空気を吸引でき、完全燃焼に十分な空気供給が可能である。しかし、背圧の増加に伴って吸引流量は急激に低下する。

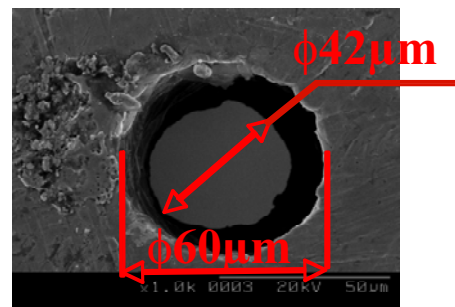


図3. のど径42 μm のマイクロ超音速ノズル[7]

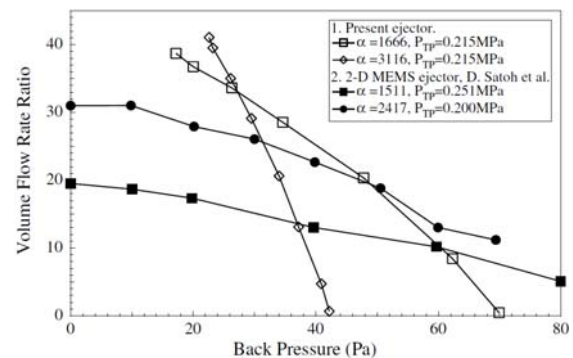


図4. 試作したイジェクタの背圧-流量特性[7]

MEMSプロセスを用いてSi基板上に形成された2次元ノズルによる結果[6]と比較すると、背圧の影響が大きい。今後、より表面粗さを低減させたノズルによる評価などが必要と考えられる。

2.2 選択的放射体

熱光発電の最大の課題は、発電効率が低いことである。これは、InGaAsSbなどの低バンドギャップ光電素子を用いても、2 μm 程度以下の短波長光しか電力に変換できず、燃焼器からの輻射のほとんどが熱として失われるためである。そこで、発電効率を向上させるための解決策として、選択的輻射体を用いることが提案され、フォトニック結晶[8]、マイクロキャビティ群[9]などの適用が検討されている。理想的な条件では変換効率が2倍以上増大し、1200 $^{\circ}\text{C}$ の選択的輻射体、InGaAsSbセルを仮定すると、変換効率は30%以上に向上する。

著者らは、図5に示すような、カーボン被膜を有するマイクロキャビティ群を作成するMEMSプロセスを開発した[10]。Si基板のサブミクロン・リソグラフィを行うことにより、比較的容易に数cm角オーダーのデバイスの試作を可能とした。

図6に、同様のプロセスでTiを被膜としたマ

マイクロキャビティ群の 1100K における輻射率の測定結果を示す[11]。一辺 14.8 μm の大きなキャビティ群では、平滑面に対して輻射率が 2 倍程度となり、表面積増大の効果が現れている。一方、一辺 1.7 μm のキャビティ群を持つ選択的輻射体では、相似な形状にも関わらず、輻射率が 3 μm 付近で大キャビティよりも高く、逆に長波長側では低い。従って、キャビティ内の電磁波モードの共鳴によって、単純な表面積効果以上に輻射率が增大していることが判る。

また、図 6 の結果を用いて、InGaAsSb セルに最適化したキャビティ群を用いた場合の 1200 $^{\circ}\text{C}$ における理想的変換効率を概算すると、黒体放射

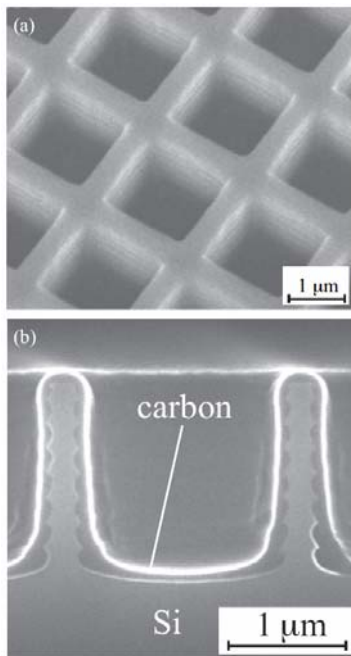


図 5. カーボン被膜を有するマイクロキャビティ群[10]

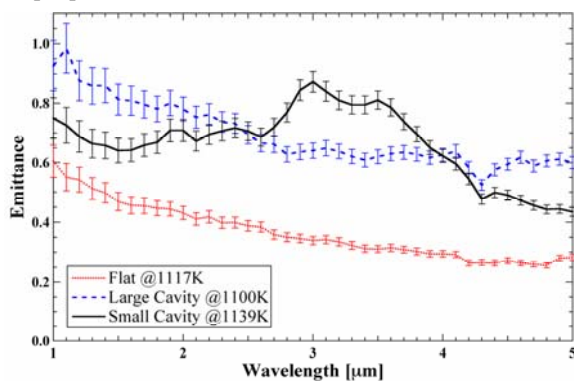


図 6. 1100K における Ti 被膜マイクロキャビティ群の輻射率測定結果[11]

の場合に比べ 50%増加し、大幅な改善が期待できることがわかる。

2.3 マイクロ燃焼器

従来、マイクロ燃焼器の流路寸法は、消炎距離よりも小さいため、触媒燃焼[12,13]、Swiss Roll などの超過エンタルピー燃焼[14,15]、化学的・熱的消炎の抑制[16,17]などが試みられてきた。熱光発電では、単位面積当たりの発電量が 1W/cm² オーダーであるため、数 10W オーダーの燃焼量と同時に、数 W/cm² オーダーの小さな燃焼密度が求められる。また、燃焼器を材料の許容温度以下に保ちながら輻射エネルギーを最大化し、また光電変換の効率を向上させるため、燃焼器表面温度は均一であることが望ましい。そこで著者らは、幅広い動作状態で安定燃焼可能な触媒燃焼に注目した。以下では、マイクロ触媒燃焼器の開発について述べる。

3. マイクロ触媒燃焼器の設計と試作

著者らは、既報において、陽極酸化アルミナ[18,19]を触媒担体とした白金触媒を内径 0.5mm の極細管内壁に形成し、ブタン燃焼に極めて有効であることを示した[20]。

また、Okamasa et al. [21]は、LSI パッケージに用いられる積層セラミック技術によりマイクロ燃焼器を試作した。本技術の特長は、耐熱温度が高いセラミックの積層により、高精度な準三次元構造を製作できること、基板内に点火用ヒータ等の電極を埋め込み可能なこと、である。ブタンを燃料に用い、セラミック流路壁面上にパラジウム/陽極酸化アルミナ触媒層を形成した燃焼器の特性評価を行い、390 $^{\circ}\text{C}$ において 100 MW/m³ オーダーの高い発熱密度を持つことを明らかにした。しかし、流れ方向の発熱密度分布のため大きな温度分布が生じ、熱応力のために約 530 $^{\circ}\text{C}$ で燃焼器が破損した。

そこで、熱応力を低減し、より高い温度において安定動作させるために、CFD 解析を用いて触媒配置の検討を行った[22]。燃焼器の構造としては、図 7 に示す半径流型を採用した。混合気は中心から燃焼チャンバに導入され、半径方向に流下し、下部基板上の触媒層において燃焼反応が生じる。燃焼チャンバ内径、外径をそれぞれ 10 mm、15 mm とし、流路高さを 0.3 mm とした。

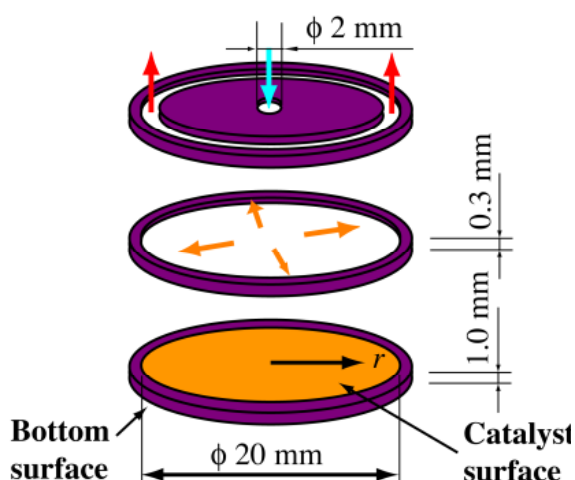


図 7. 半径流型触媒燃焼器の分解図

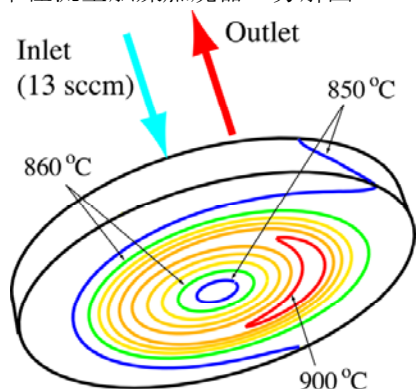


図 8. 燃料流量 13sccm における燃焼器外壁温度分布[22]

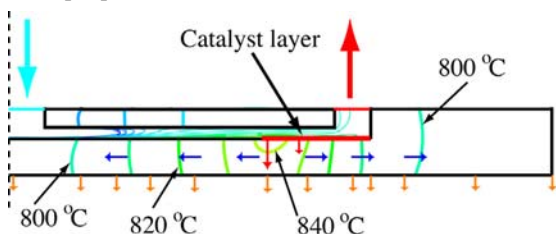


図 9. 燃料流量 13sccm における燃焼器断面内の温度分布, 熱流束[22]

ブタンの表面反応には一段階総括反応を仮定し, また, 反応速度は酸素濃度に関係なくブタン濃度だけに比例する[23]と仮定すると, 反応速度 R_B は, 担持触媒量・触媒厚さに依存する反応速度定数 A , および活性化エネルギー E を用いて,

$$R_B = C_{B,s}(x) \cdot A \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT_c}\right) \quad (1)$$

と表せる. 本研究で形成した触媒層については, $A = 6.18 \times 10^8$ (m/s), $E = 1.16 \times 10^8$ (J/kmol)であり[21], 極めて活性が高く, 約 400 °C以上の温度で

は反応速度が拡散速度よりも速い. そのため, バルク濃度が高い燃焼チャンバ入口付近での燃焼速度が大きく, 大きな温度勾配の要因になっていた.

従って, 触媒配置の最適化により温度分布を平均化することが必要であるが, 燃焼器各部の温度には, 表面反応, 熱輻射, 混合気・壁面間の熱伝達, 燃焼器固体内の熱伝導が関連し, 例えば, 理論的に最適な触媒配置を求めることは困難である. そこで, 特定の触媒配置での温度分布を数値解析により求め, 温度分布の低減を図った.

流動場, 伝熱解析には Fluent 6.2 を用い, 式(1)の表面反応を組み込んだ. 流れ場に関しては, 密度, 比熱, 物質拡散係数の温度依存性を考慮した. 投入燃料は 20 W の発熱に相当する 10 sccm, 等量比を 1.0 とした. この時, 燃焼空間内部での Re 数は 10~120 であり, 層流状態が保たれる. また, 排熱回収熱交換器により吸気を予熱することを仮定し, 混合気の入口温度は 630 °C とした. 一方, 壁面は, 底面が選択的輻射体であると仮定して輻射率 0.3 の熱輻射条件を課し, 輻射シールドを備えた真空断熱チャンバ内での動作を想定して, 簡単のためその他の壁面は断熱とした. セラミック壁の熱伝導率は 14 W/(mK)である.

均一に触媒を配置した場合 ($0 < r < 10$ mm), 混合気が触媒面に吹付ける中心付近で物質伝達係数が高くなるために発熱密度が極めて大きく, 一方, 出口付近では燃料が希薄になるため発熱密度が小さい. 結果として中心と外縁部では約 260 °C の温度差が生じてしまい, 熱応力が過大になる (図省略).

そこで, 中心での反応を抑え温度分布を平均化するため, 触媒を外周のみに配置した場合について検討した. その結果, 図 8, 9 に示すように, 外周 $7 < r < 10$ mm のみに触媒を配置した場合, 発熱密度は不均一であるものの, 外側での燃焼熱がセラミック基板内の熱伝導により中心付近に伝わり, 輻射により放出されるため, 温度差を約 60 °C まで低減できることが判った. この時, 底面からの輻射熱流束分布は 20 %以内であり, 熱光発電に適している. また, 触媒面積は均一に触媒を配置した場合と比べて約半分になるが, 均一に触媒を配置した場合と同様, 反応率は 99 %以上が保たれる[22].

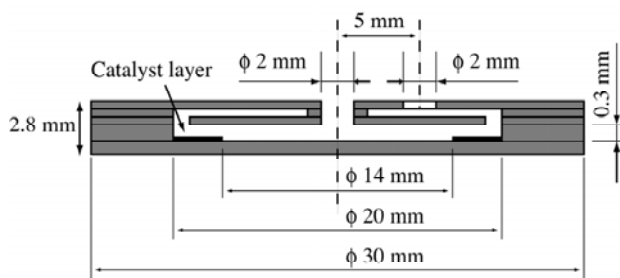


図 10. 半径流型セラミック燃焼器の詳細図

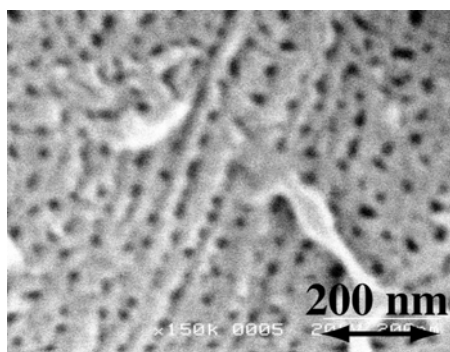


図 11. コールドスプレーで形成したアルミ層を陽極酸化することにより得られたアルミナ触媒担体の SEM 画像[21]



図 12. 試作したマイクロ触媒燃焼器プロトタイプ[22]

図 10 に上記の結果より設計した半径流型セラミック燃焼器の詳細図を示す。中心から流入した混合気は、半径方向に流れた後、燃焼チャンバ上部の流路により出口ポートへと集められる。ポート間の距離を離す必要から、出口は中心から 5 mm ずらして配置した。触媒は $7 < r < 10$ mm に配置した。

図 11 に触媒基板上に溶射技術の一種であるコールドスプレー法で約 100 μ m 厚のアルミニウム層を形成し、陽極酸化することにより形成した、陽極酸化アルミナ触媒担体の SEM 像を示す。表面に約 20 nm 径の細孔が密に分布していることが判る。この担体に、高温下で白金よりも安定で

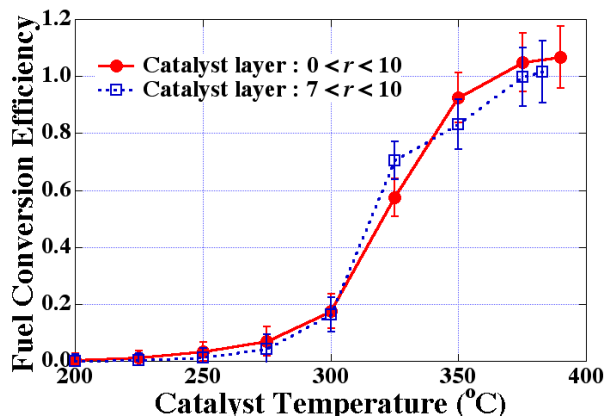


図 13. 反応率と触媒温度の関係[22]

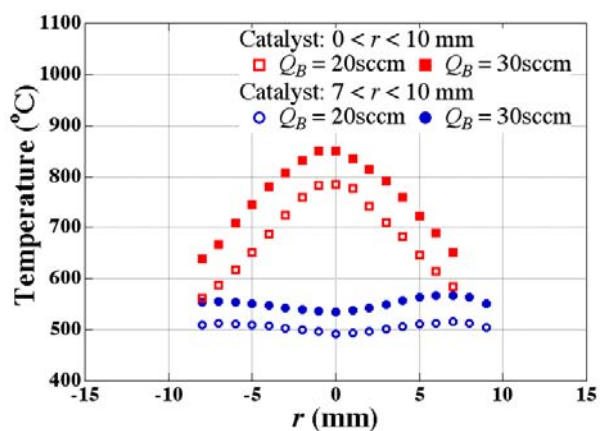


図 14. 外壁温の半径方向分布[22]

あり、900°C程度まで使用可能なパラジウム触媒を担持した。

図 12 に積層セラミック技術を用いて試作した燃焼器を示す。上部の流路基板、下部の触媒基板を別々に形成し、コバル製の厚さ 0.5 mm のリングをロウ付けし、コバルリング同士をレーザー溶接により接合することにより行った。上部の流体継手のうち、片側から混合気が流入し、燃焼器内部に形成された流路により中心に導かれ、燃焼チャンバには中心から導入される。外縁に達した燃焼排ガスは、再び内部流路により中心近傍に集められ、もう片方の流体継手から流出する。

図 13 に反応率と触媒温度の関係を示す。燃料流量は、10 W の発熱に相当する 5 sccm とし、当量比は 0.95 とした。均一に触媒を配置した場合と、 $7 < r < 10$ mm のみに配置した場合共に、250~275 °C で燃焼が開始し、390 °C では完全燃焼しており、触媒面積に関わらず同様の傾向を示し

ている。図 14 は、壁温の半径方向分布であり、外周のみに触媒を配置した場合、均一な配置に比べて温度勾配が抑えられることが実験によっても確かめられた。

4. まとめ

本稿では、携帯可能な電源としてのマイクロ熱光発電システムの開発を目指して著者らが検討を進めている、空気供給系、選択的放射体、マイクロセラミック触媒燃焼器について解説を行った。システム実現には、触媒燃焼などの物理現象の解明、詳細な解析による各部の最適設計とともに、新しい加工技術や材料の導入も極めて重要である。今後、プロトタイプのパフォーマンス向上とともに、高断熱構造や光電素子も含めたシステム評価を進めていきたい。

本研究にあたっては、東京大学笠木伸英教授、大学院生上條隆史氏、岡政敬之氏、范勇氏、高木大氏、光部昌也氏の協力を得た。また、本研究の一部は、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）、および、科学技術振興機構（JST）の援助を受けた。記して感謝の意を表する。

文 献

- [1] NEDO 技術動向調査 NEDO-P-0002, NEDO, (2000).
- [2] (社) 電池工業会, <http://www.baj.or.jp>.
- [3] Epstein, A. H., Millimeter-scale, micro-electro-mechanical systems gas turbine engines, *Trans. ASME: J. Eng. Gas Turbines Power*, **126** (2004) 205.
- [4] Fernandez-Pello, C., Micropower generation using combustion: issues and approaches, *Proc. Comb. Inst.*, **29** (2002) 883.
- [5] Kamarudin, S. K. et al., Overview on the challenges and developments of micro-direct methanol fuel cells (DMFC), *J. Power Sources*, **163** (2007) 743.
- [6] Satoh, D. et al., Micro-ejector to supply fuel-air mixture to a micro-combustor, *Sensors Actuators A*, **119** (2005) 528.
- [7] Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., Development of large-entrainment-ratio supersonic ejector for micro butane combustor, *J. Micromech. Microeng.*, **16** (2006) S211.
- [8] Lin, S. Y., Moreno, J., and Fleming, J. G., Three-dimensional photonic-crystal emitter for thermal photovoltaic power generation, *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2003) 380.
- [9] Sai, H., Kanamori, Y., and Yugami, H., High-temperature resistive surface grating for spectral control of thermal radiation, *Appl. Phys. Lett.*, **82** (2003) 1685.
- [10] Takagi, D., Suzuki, Y., and Kasagi, N., Pyrolyzed parylene structure as selective emitter for high-efficiency thermo-photovoltaic, *Proc. 20th IEEE Int. Conf. MEMS 2007, Kobe*, (2007) 883.
- [11] 鈴木・光部・七枝・笠木, “表面マイクロキャビティを用いた選択的放射体に関する基礎的研究,” 第 13 回動力エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 札幌, (2008) 419.
- [12] Arana, L. R. et al., A microfabricated suspended-tube chemical reactor for thermally efficient fuel processing, *J. Microelectromech. Syst.*, **12** (2003) 600.
- [13] Tanaka, S. et al., MEMS-based components of a miniature fuel cell/fuel reformer system, *Chem. Eng. J.*, **101** (2004) 143.
- [14] Ahn, J. et al., Gas-phase and catalytic combustion in heat-recirculating burners, *Proc. Comb. Inst.*, **30** (2005) 2463.
- [15] Kim, N. I. et al., Flame stabilization and emission of small Swiss-roll combustors as heaters, *Combust. Flame*, **141** (2005) 229.
- [16] Miesse, C. M. et al., Submillimeter-scale combustion, *AIChE J.*, **50** (2004) 3206.
- [17] Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., Experimental study of micro-scale premixed flame in quartz channels, *Proc. Comb. Inst.*, **32** (2009), in press.
- [18] 村田・亀山, 触媒材料としての陽極酸化アルミナ層の調製, 表面技術, **47** (1996) 173.
- [19] Sungkono, I. E., Kameyama, H., and Koya, T., Development of catalytic combustion technology of VOC materials by anodic oxidation catalyst, *Appl. Surf. Sci.*, **121/122**

- (1997) 425.
- [20] Suzuki, Y., Saito, J., and Kasagi, N., Development of micro catalytic combustor with Pt/Al₂O₃ thin films, JSME Int. J., Ser. B, **47** (2004) 522.
- [21] Okamasa, T. et al., Micro catalytic combustor using high-precision ceramic tape casting, J. Micromech. Microeng., **16** (2006) S198.
- [22] Kamijo, T., et al., High-temperature micro catalytic combustor with Pd/nano-porous alumina, Proc. Combust. Inst., **32** (2009) in print.
- [23] Wang, X. et al., Fabrication of micro-reactors using tape-casting methods, Catal. Lett., **77** (2001) 173.
-

家庭用ガスエンジンコージェネレーションシステム「エコウィル」の学習制御の開発 Development of Self-learning Function for Residential Gas Engine Cogeneration System "ECOWILL"

八木 政彦 (大阪ガス株式会社)
Masahiko YAGI (Osaka Gas co., Ltd.)
m-yagi@osakagas.co.jp

1. はじめに

近年、重要な課題となっている地球温暖化問題に対して、エネルギーを効率良く利用するための技術開発を推進することは非常に重要である。

我が国におけるエネルギー消費量は今後も増え続けると予測されており、特に Fig.1 に示すように家庭用部門のエネルギー消費量が大きな伸びとなっている。中でも電気と給湯・暖房用途で著しい伸びを示しており、今後、地球温暖化対策を推進する上で、日常生活におけるエネルギーの有効活用が重要な課題と認識されている^{[1][2]}。

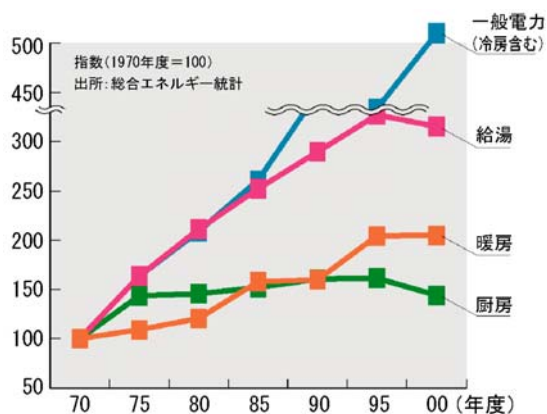


Fig.1 用途別エネルギー消費推移 (家庭用)

そこで弊社は、東邦ガス、西部ガスと共同で平成 15 年 3 月 (東京ガスは平成 17 年 2 月) に世界で初めてとなる 1kW 家庭用ガスエンジンコージェネレーションシステム「ECOWILL」を発売した。

「ECOWILL」は、ガスで発電した電気を家庭内で使用するとともに、発電時に発生した排熱を有効に活用し、給湯や温水床暖房、ミストサウナなどに利用できる、地球にも人にもやさしい暮らしが提案できるシステムである。

平成 15 年 3 月に初代モデルを発売して以降、平成 17 年 4 月、平成 18 年 10 月、平成 20 年 4 月、計 3 回のモデルチェンジを実施し、現在は 4 代目

となるモデルを販売している。その間、モデルチェンジにて性能向上、製品改良を行い発電効率の向上 (20%→22.5%)、総合効率の向上 (85%→85.5%)、小型化・軽量化、補機動力の低減、給湯・暖房性能の向上などを実施し、省エネ性、経済性、施工性、利便性の向上を図ってきた。現在までで弊社管内において 45,000 台以上のご採用をいただいている。

2. システム構成と特徴

2.1 システム構成

ECOWILL は、ガスエンジン発電ユニットと排熱利用給湯暖房ユニットから構成されるシステムである。Fig.2 に ECOWILL を設置した住宅のシステムイメージと Fig.3 に設置状況を示す。

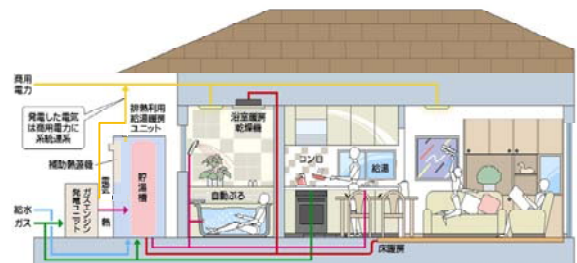


Fig.2 ECOWILL 設置住宅イメージ



Fig.3 ECOWILL 設置状況

ガスエンジンによって発電された電力は、インバーターを介し商用電力へ系統連系することにより、お客さま宅に供給される。発電と同時に発生した排熱は、ガスエンジン発電ユニット内でエンジン冷却水を 80℃前後に加温して、排熱利用給湯暖房ユニット内の熱交換器を介して給湯用の温水として貯湯・利用される。またこの排熱は、床暖房や浴室暖房乾燥にも利用することができる。この場合は、エンジン冷却水と暖房循環水を直接熱交換する構造となっている。さらに貯湯循環回路で回収された、排熱はふろ追いだきにも利用可能である。

発電出力は 1 kW 固定出力で、発電中の家庭内電力負荷が 1 kW 未満の場合は、ガスエンジン発電ユニット内の余剰電力回収ヒーターにて電力を熱に変換し排熱とともに熱回収することで無駄のない効率的なシステムを実現している。

Fig.4 にシステム構成図、表 1、2 に各ユニットの様表を示す。

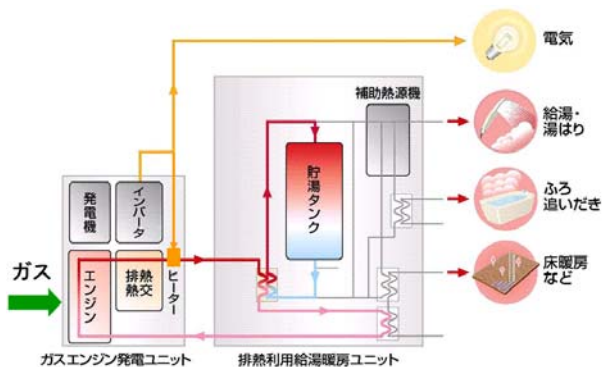


Fig.4 システム構成図

2.2 商品の特徴

2.2.1 省エネ性・環境性

従来のシステム（ガス給湯暖房機+商用電力）に比べ、1 kWh 発電あたり、火力発電ベースでは 1 次エネルギーで約 22%の省エネ性と約 32%の CO₂ 排出量削減が可能である^[3]。

2.2.2 経済性

従来のシステム（ガスファンヒーター使用）に比べ、年間で約 4 万 6 千円の光熱費を削減できる。（試算条件は大阪ガス管内に設置した 4 人世帯床面積 150m²）

2.2.3 低騒音

ガスエンジン発電ユニットについては、

44dB(A)とエアコンなみの低騒音を実現している。

2.2.4 快適性・利便性

ガス給湯暖房機の全ての温水暖房端末（浴室暖房乾燥機、床暖、ミスト、温水エアコンなど）が利用可能である。また、24 号の瞬間式補助熱源機を搭載していることで、湯切れの心配がない。

表 1 ガスエンジン発電ユニット仕様表

発電出力	1.0kW（定格）
効率	発電 22.5% 排熱 63%（LHV）
最大ガス消費量	4.92kW
寸法	W580×D380×H880
重量	82kg（運転時約 83kg）
騒音値	44dB(A)
ガス種	都市ガス 12A, 13A い号 LP ガス

表 2 排熱利用給湯暖房ユニット仕様表

	136-C040 型	136-N040 型
貯湯温度	約 75℃	約 73℃
貯湯容量	137L	140L
暖房能力	17.4kW	
補助熱源	24 号（41.8kW）	
寸法	W700×D400×H1500	W700×D400×H1694
重量	約 87kg	約 96kg
（満水時）	（約 229kg）	（約 241kg）
排熱利用	給湯・暖房・ミスト・浴室暖房乾燥等	
リモコン	省エネルギーナビゲーション搭載	

3. 学習制御の開発

3.1 学習制御の必要性

ECOWILL(以下エコウィル)は産業用コージェネレーションで一般的に用いられる電主熱従運転ではなく、熱主電従運転を採用している。その理由としてエコウィルは発電した電気を有効に利用することに加え、排熱をいかに有効に利用するかが省エネ性を実現する上で大きなポイントとなるためである。

それには貯湯タンクでの放熱ロスを極力低減する必要があり、そのためにはできるだけ家庭内でお湯をつかう時間帯の直前に、使用する量だけ貯湯することが有効となる。

またエコウィルの発電出力は 1kW 固定出力であり、発電時の家庭内電力負荷が 1kW 未満の場合

合、余剰電力をヒーターで回収して熱に変換しているが、より高い省エネ性を実現するにはできるだけ電力負荷の大きい時間帯に発電することが有効である。

ところが家庭の電力需要、熱需要は需要家ごとのばらつきが大きく、また同じ需要家であっても平日と休日の生活パターンは大きく異なる場合が多いため、発電時間帯、発電継続時間、貯湯量を一律で決定することはできない。よってエコウィルでは各家庭の電力負荷、熱負荷を計測、学習することにより各家庭に適した運転パターンを実現する学習制御を採用することになった。

3.2 発電時間を決定する基本的な考え方

前述のようにより高い省エネ性を実現するために以下の条件を満足するよう発電時間を決定することを基本概念とした。

- ・電力負荷の大きい時間帯に発電する
- ・給湯負荷が発生する直前に貯湯する
(貯湯放熱ロスを低減する)
- ・給湯負荷を賄う分だけ貯湯する

また、排熱を暖房に利用する場合は、貯湯タンクを介することなく直接暖房循環水へ伝熱させるため放熱ロスが少なく、暖房需要と給湯需要が同時に発生する場合は暖房需要に優先して排熱を利用している。

3.3 学習制御の開発（第一段階）

まず、エコウィルで電気と熱を賄った場合にどれくらい省エネであるかを判断するために省エネ度という指標を用いた。省エネ度とはエコウィルで賄う電気と熱を従来システム（火力発電所と一般的な給湯器）で賄った場合に必要となる一次エネルギーと比べどれだけ省エネであることを示す指標であり、値が100以上のときに省エネであることを表し、値が大きいほどより省エネ性が高いというものである。

この省エネ度を用い、Fig5に示すように省エネ度が100以上となるところで発電させれば、省エネになると考え、機器に内蔵の演算システムでリアルタイムに省エネ度を算出し、100以上となるところで発電をさせた。

その結果、省エネとなる時間帯で発電すること

には成功したが、午前中の省エネ度106, 107の時間帯に発電して貯湯タンクが満タンとなり発電を停止した。そのため、その後のより省エネ度の高い時間帯110での発電できなかった。またシャワーを使用する就寝前の時間帯は電力負荷が高く、貯湯したお湯は即座にシャワーに使用され、放熱ロスも少なくなる省エネ度の高い時間帯である。しかし夕刻からの電力負荷が上がった時間帯に発電を行い、すでに必要な貯湯量を貯めていたため発電できなかった。

つまり、この制御方法では省エネは実現できるが最適運転とはならないことが判明した。

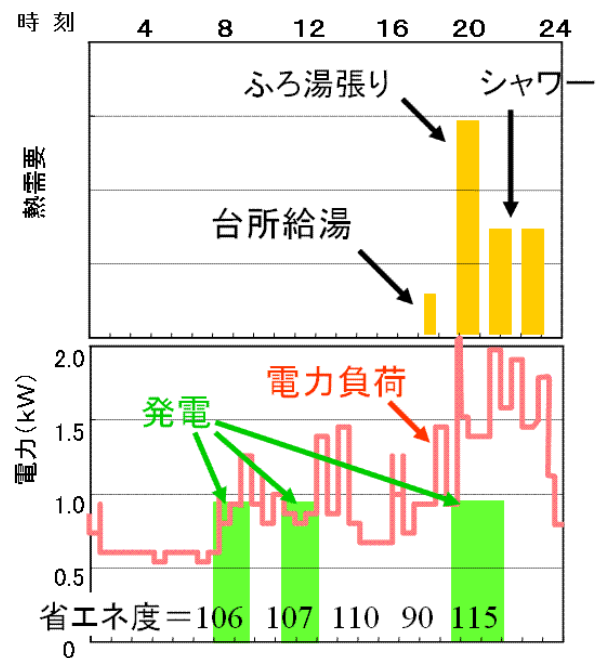


Fig.5 省エネ度 100 以上で発電した場合

3.4 学習制御の開発（第二段階）

次に、より省エネ度の高い時間帯に発電を行うためには家庭内の負荷を過去の使用実績から予測し、省エネ度の高い順に発電時間帯を決定することが有効と考えた。

すなわち Fig.6 に示す各時間帯の電力負荷、給湯負荷の分布から「給湯負荷発生までの時間が長い電力負荷の大きい時間帯」と「給湯負荷発生までの時間が短い電力負荷の小さい時間帯」を比較することで放熱ロスをも考慮に入れて、最も省エネとなる時間帯で発電を行うことに成功した。

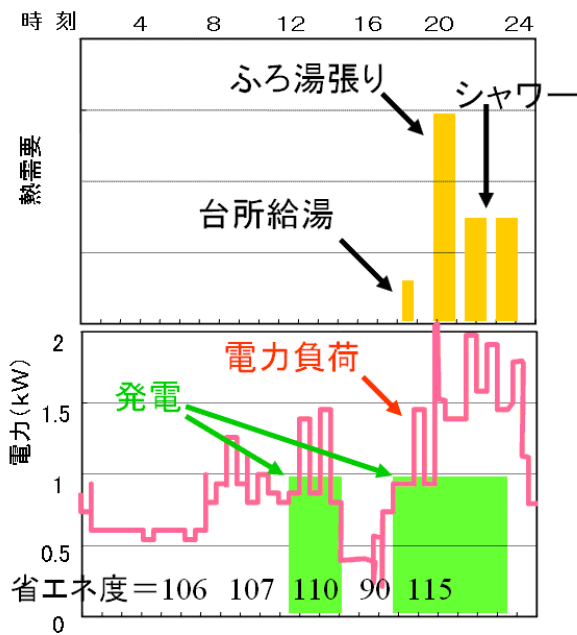


Fig.6 省エネ度の高い順に発電した場合

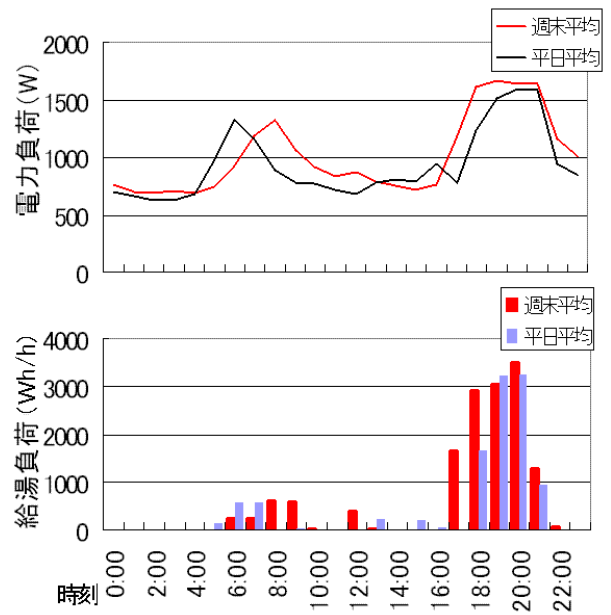


Fig.7 平日と週末の負荷パターン比較

3.5 学習制御の開発 (第三段階)

第二段階において一日の中で省エネ度の高い順に発電時間帯を選定することができたが、上記は電力負荷と給湯負荷が予測どおりに発生することが条件であった。

しかし一般家庭の電力負荷と給湯負荷は日によってばらつきが存在し、たとえばサラリーマン家庭においては平日と休日では生活パターンが大きく異なる。

Fig.7はある家庭での平日と休日(週末)の電力負荷、給湯負荷のばらつきを表したものである。週末は平日に比べ起床時間が遅くなるため、午前中の電力負荷、給湯負荷の発生時間が遅くなる。また昼過ぎまで高い電力負荷が続いていることから昼まで在宅し午後から外出したと考えられる。さらに夕方の需要発生時期も平日と週末では異なることが確認できる。

このように負荷パターンは平日と休日で異なり、また平日の中であっても曜日ごとに用事が決まっている場合など、曜日ごとの負荷のばらつきが存在することが確認できたため、エコウィルの学習制御も曜日ごとにデータを持たせることとした。これにより予測精度が向上し、より省エネ性を向上させることに成功した。

3.6 学習制御の開発 (第四段階)

次に直面した課題は、同じ曜日であっても負荷パターンが日によって異なる場合の対応である。学習制御は基本的に同一曜日の過去の負荷パターンから統計的手法により当日発生するであろう負荷パターンを予測しているが、過去の負荷パターンがばらついている場合には当日の負荷パターンを予測することが難しくなる。

しかもそのばらつき度合いは各家庭によって大きく異なり、規則正しく生活をされる家庭もあれば、その逆の場合も多々存在する。

そこで、それらばらつきに対応するためリアルタイムに発生する電力負荷、給湯負荷、暖房負荷から省エネ度を再計算し、予測負荷パターンから算出した省エネ度と比較することで学習制御をリアルタイムに補正することにした。

さらに Fig.8 に示すように過去の負荷パターンのばらつき度合いにより発電開始時間や発電継続時間に幅を持たせることとし、生活パターンが規則的な家庭ではより厳密に発電開始時間、発電継続時間を予測し、ばらつきの大きい家庭においてはそれらに余裕を持たせることにより、早めに発電を開始する傾向になるようにした。

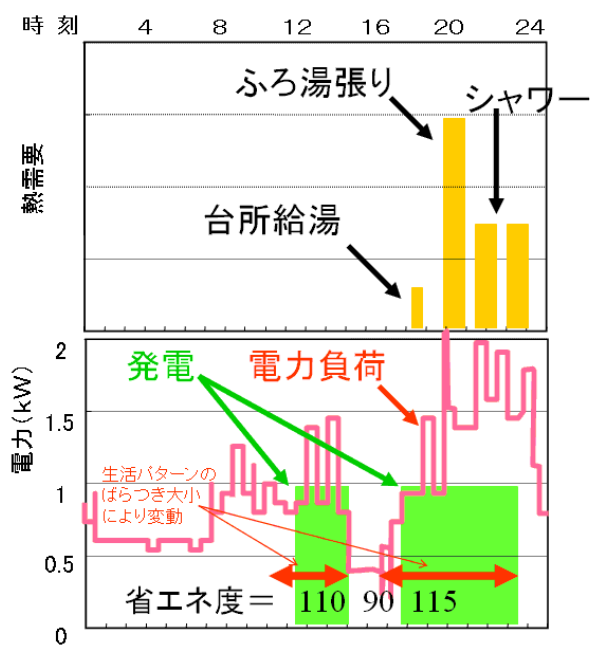


Fig.8 予測に余裕度を持たせた場合

3.7 商品への搭載

以上、学習制御の着手から基本的な制御方法の確立までを述べてきたが、実際の商品にはさらに細かな制御が施されている。

例えば冷房シーズンイン、暖房シーズンインなど一週間前の同一曜日よりも前日、前々日の負荷パターンのほうが相関が強くなる場合の対応や機器を設置してから学習するまでのスピードアップ。ホームパーティーや親戚が泊まりにきたなど通常と明らかに異なる負荷パターンが発生した場合の対応。

風邪をひいたり、家族で銭湯に出かけるなど急遽入浴が取りやめられた場合の対応などである。

また気温や水道水の温度変化や、お風呂のお湯

はり予約や床暖房の予約などによっても学習制御を補正している。

4. おわりに

エコウィルは前述したように、発電した電気を有効に利用することに加え、発電と同時に発生するエンジン排熱をいかに損失なく、有効に給湯、暖房に利用できるかが省エネ性実現において大きなポイントとなる。

その為に学習制御を開発し、貯湯タンクでの放熱ロスを低減することを実現した。今後も更なる学習精度向上に努める必要があるが、そもそも貯湯タンクでの放熱をなくすことができれば、複雑な学習制御から開放され、単純に電力負荷の高い時間帯に発電すればよいこととなる。さらには万一予測が外れたとしても貯湯タンクの放熱がなければ高い省エネ性を確保することができる。

今後さらに省エネ性を向上させていくにはエンジンの発電効率、総合効率を向上させることが重要な課題となるが、それに加えて放熱ロスを低減するための抜本的な機器構造の見直しや、さらなる学習制御の改良が必要となってくる。

参考文献

- [1] 経済産業省総合資源エネルギー調査会需給部会「2030年のエネルギー需給展望」,(2005.3)
- [2] 財省エネルギーセンター「エネルギー・経済統計要覧」(2004)
- [3] 「中央環境審議会地球環境部会目標達成シナリオ小委員会中間取りまとめ」(2003.7)

第2回国際伝熱フォーラム (IFHT2008) (東京)

*The 2nd International Forum on Heat Transfer
(IFHT2008) @Tokyo*

中別府 修 (明治大学)
Osamu NAKABEPPU (Meiji University)
e-mail: onakabep@isc.meiji.ac.jp

はじめに

第2回国際伝熱フォーラムが、2008年9月17日～19日に、東京大学生産技術研究所駒場コンベンションホール（東京）にて開催されました。第2回目を迎えた本フォーラムは、環境・エネルギー技術をメインテーマにし、本会主催、東京大学生産技術研究所、東京工業大学炭素循環素材研究センターとの共催として行なわれました。参加登録者数は182名（内学生69名）、参加国数10ヶ国と盛況な国際フォーラムとなりました。

フォーラム構成は、7件のキーノートレクチャー、6つの一般セッションからなり、前日にはウエルカムレセプションが、中日にはバンケットが駒場エミナースにて催されました。一般セッションは、講演時間2分のショートオーラルプレゼンテーションと続くポスタープレゼンテーションの形式で行なわれ、計120余件の研究発表が行なわれました。全てのセッションがホールとホワイエで行なわれたこともあり、コンパクトに集中したフォーラムとなり、活発な議論、情報交換が行な

われました。また、“Best Presentation Awards”が計11件の発表に対し贈賞されました。

以下、キーノートレクチャー、一般セッション等の様子を各座長より報告します。

キーノートレクチャー

“Fuel cell and CO₂ Sequestration technology for Global Warming”, Shuichiro Hirai (Tokyo Institute of Technology, Japan)

地球温暖化対策として、CO₂ 隔離と水素燃料電池技術が、大量に放出されるCO₂ に対して有効であること、また、物質移動現象の理解と制御が重要であることが講演された。CO₂ 地中隔離は、地上へのリークを防止するためのマイクロ微粒化、海洋隔離は反応を伴う噴出挙動、燃料電池はミクロン領域での可視化技術が重要であるとともに、これらの地球温暖化対策を推進するのに分野融合研究開発が必要であることが示された。

(店橋 (東工大))



Photo 1 Commemorative photograph at closing

“Infrared Near Field Mapping of Thermal Radiation”, Yannick DeWilde (National Center for Scientific Research, France)

DeWilde 先生らのグループが開発した熱ふく射のトンネル現象を利用した顕微鏡 TRSTM (Thermal Radiation Scanning Tunneling Microscope) の講演であり、赤外線のアNSOM (apertureless near-field scanning optical microscope) を研究しているアイデアが生まれた経緯などが紹介された。講演者ご自身が心配されていたように伝熱工学の研究者には馴染みの薄い物理学よりの内容であったが、講演後は活発な議論があり、講演者も大いに満足されていた。

(宮崎 (九工大))

“On the development of Gortler Vortices in Concave Surface Boundary Layers”, S. H. Winoto (National Univ. Singapore, Singapore)

このセッションでは、シンガポール国立大学の S.H. Winoto 教授より、曲率を有する流路上でのゲルトラ渦の発達の様子と、初期渦の間隔による渦列の分割・合体について、詳細な計測結果を基にしたビジュアルな表示でわかりやすく紹介された。これらの結果は、実際の流体機械等における流体の流れとも深く関連しており、講演の後もこれらとの関連を議論する姿が会場のあちこちで見られた。

(佐藤 (東工大))

“Studies on the electrical and thermal transport properties of metallic nanofilms”, Xing Zhang (Tsinghua Univ., China)

カーボンナノチューブなど、今後の応用が期待されるナノ材料に関し、熱物性を精度良く計測しようとする新しい試みが紹介された。金属ワイヤにカーボンナノチューブを T 字型に接触させ、金属ワイヤの周期加熱に対する応答をいわゆる 3 ω 法により計測し、ナノチューブの熱伝導率等を算出する方法であり、注目されながらいまだ評価の定まっていない対象の研究だけに、講演後も活発な議論が行われていた。

(高田 (九大))

“Study On The Efficient Water Purification System Using Microbubbles”, Shu Takagi (University of Tokyo, Japan)

各方面で注目を集めているマイクロ・ナノバブルに関し、伝熱流動解析を正しく適応しその挙動を予測する研究、効果的な生成法とその物理、マイクロバブルを活用する系などが紹介された。質量、運動量、界面活性剤濃度、界面張力効果等を正しく取り扱うことで、複雑な気泡流れの挙動も予測できること、マイクロバブルがベンチュリ管内であたかも衝撃波の生成のように圧力振動で生

成される様子など、着実なアプローチの重要性和興味深い現象が熱意をもって講演された。

(中別府 (明治大))

“The Analysis of Temperature and Phonon Dynamics in Wide Band Gap Semiconductor Materials Using Raman Spectroscopy”, Samuel Graham (Georgia Institute of Technology, USA)

Graham 先生の幅広い研究の中から、キーノート講演ではラマン分光により光学フォノンが音響フォノンになるまでの寿命を実験で測定してきた内容が紹介された。得られた寿命をモンテカルロシミュレーションに導入することで、GaN といった広いバンドギャップを持つ半導体デバイスのジュール発熱や熱の輸送、ホットスポットが生じる詳細なメカニズムを調べていく戦略が説明された。実験ですべての光学フォノンの寿命やその挙動、温度依存性を調べるのか、などの突っ込んだ質問もあり、講演後も議論が盛り上がっていた。

(宮崎 (九工大))



Photo 2 Key note lecture

“Scalable Pods Based Cabinet Arrangement And Air Delivery For Energy Efficient Data Center“, Yogendra Joshi (Georgia Institute of Technology)

発熱量が増加するデータセンターの効率的な冷却方法に関する講演が行われた。サーバーラックを整列させ温・冷流路を形成する従来方法に比べ、冷風噴出口をラックが取り囲みユニットを形成する POD 式が優れていることが大規模な数値シミュレーションにより示された。需要が増加するデータセンターの運営に伝熱技術が貢献していることを明確に伝えていただいた。
(矢沢 (ソニー))

一般セッション

Technical Session 1

Energy Technologies & Environmental Technologies

本セッションでは燃料電池、空調・冷凍技術、環境技術などに関する 20 件の発表があった。燃料電池関係では固体高分子型燃料電池内の電極間水分移動 (Paper ID:219) やカソード触媒層における物質移動解析 (231)、ディフューザー/ノズル型のマイクロポンプ (175) などの発表があった。環境技術関係では、単一マイクロバブルの溶解特性 (136)、深海中に設置された温度・濃度差駆動型のパイプを設置した場合の海洋拡散特性の数値解析 (211)、シベリアにおける CO₂ バランスと森林火災の解析 (146) などがあった。全体を通して、対象とする現象のスケールの多様性と物質移動に関する研究が多い傾向が印象的であった。

(小原 (東北大), 多田 (金沢大))

Technical Session 2

Computational Heat and Mass Transfer

Fundamentals of Heat Transfer and Combustion 1

本セッションでは、シミュレーションによる伝熱研究と伝熱・燃焼の基礎研究にエントリされた 24 件が発表された。シミュレーションでは、食肉の乾燥、ナノポーラスの伝導特性、調理器の自然対流、気液二相流、乱流輸送、脳腫瘍のハイパーサーミアなど多彩な研究対象の発表に伝熱研究の応用の広さを実感した。基礎研究では、リウエッティングや凝縮係数などミクロな視点で現象の本質を解明しようとする研究が印象に残った。ポスターセッションでは、活発なディスカッションが行われ、予定時間を超えてディスカッションが続

けられている姿が見られた。

(鹿園 (東大), 中川 (富山県立大))

Technical Session 3

Fundamentals of Heat Transfer and Combustion 2 Cooling and Heat Transfer Devices 1

本セッションでは、エントリ 23 件中、キャンセルの 2 件 (No. 199 と No.135) を除く 21 件の発表が行われた。他セッションとの比較で見ると、カテゴリが Fundamental から Device, Application まで幅広い範囲であったことから、全体にバラエティに富んだ内容となったこと、企業発表および企業に関連する発表が合わせて 6 件あり、その割合が一番多かったこと、などが本セッションの特徴であったと思う。ポスターセッションでは、活発な質疑応答が行われたが、ノート PC 上で動画を見せるなど、視覚に訴える工夫のあった発表に、より多くの注目が集まったようである。

(鈴木 (日立), 小川 (慶應大))

Technical Session 4

Cooling and Heat Transfer Devices 2

本セッションではヒートパイプ、沸騰による高熱流束除去、電子機器内の熱流動解析など 17 件の発表があった。特に目立ったのはヒートパイプおよびサーモサイフォンに関する研究で、5 件の発表があった。なかでも、CO₂ を作動流体とした鉛直ループサーモサイフンの特性 (Paper ID:134)、蒸気発生器を組み込んだ熱輸送デバイスの提案 (232) があり、関心を集めていた。また、流路寸法が 250 μ m のマイクロチャンネル熱交換器の単



Photo 3 Poster Session

相および凝縮熱伝達の報告(196)があり、単相流で通常の熱交換器の100倍以上の熱伝達率を示し、注目を集めていた。全体的に蒸発・沸騰・凝縮現象の利用とデバイスのマイクロ化に基づいて熱輸送性能の高性能化を追求する方向性が顕著に表れたセッションであった。(多田(金沢大), 宗像(産総研))

Technical Session 5

Bio Thermal-Fluid Science and Engineering

Visualization and Measurement Techniques

本セッションでは、バイオ関係7件、可視化・計測関係14件の計21件の発表があった(他にキャンセル1件)。微細ピン先端を用いたナノ・ピコリットルの液滴生成、マイクロカンチレバーを用いた質量・熱量同時測定法、お灸を模擬する装置の開発、脳腫瘍の加熱治療など多彩な内容であった。2分間の口頭発表は発表技量の差が出やすく、学生は口頭発表に苦しんでいた。一方、ポスターセッションでは(他の全てのセッションと同様に)非常に活発な議論がなされていた。日本人比率が高く、日本語での議論が行われていたことが理由のひとつだが、学生にとっては敷居の低い国際学会として良い刺激を与える場になったと思われる。(村田(農工大), 山田(北大))

Technical Session 6

Molecular and Nano-Scale Thermal Engineering

本セッションでは、16件の講演が行われた。その中で、実験を主とする研究が6件、理論・解析を主とする研究が10件であった。実験に関しては、電気浸透流のマイクロPIV/LIF計測、ナノチューブのCVD合成、フラーレンの燃焼合成、ナノ構

造を有する薄膜の熱電特性、TPV発電のための表面形状の評価、ナノチューブ膜の熱伝導率測定、などの研究があった。理論・解析に関しては、ナノ構造や膜の熱伝導:4件、固液界面熱抵抗へのナノ構造の影響:2件、ナノ粒子の表面吸着:2件、核生成理論ならびに近接場光計測に関する数値解析がそれぞれ1件、であった。

(山田(芝浦工大), 芝原(阪大))

最優秀プレゼンテーション賞

最優秀プレゼンテーション賞を受賞した11件の発表を表1に示します。本賞は、一般セッションにおける講演、ポスター、研究内容、質疑応答などを総合的かつ厳正に評価し、IFHT組織委員会より贈賞されました。受賞者の中から2名の方に、受賞の感想をいただきましたので、紹介します。

この度は大変光栄な賞を頂き、誠にありがとうございます。今回のフォーラムでは、固体高分子形燃料電池の更なる性能向上及びコスト低減に向けた触媒層作成指針を得るため、格子ボルツマン法により触媒層内の物質移動及び電位分布を計算した結果について発表させていただきました。口頭発表が2分間と短く、不慣れた英語で説明しなければならないということもあったため、発表内容を絞る過程で自分の研究の一番のポイントは何か考える大変良い機会となりました。また、自分の考えを他人に分かりやすく説明出来るようになることは学生生活での一つの目標だったので、Best Presentation Awardsという賞を頂けて大変うれしく思っております。これを糧に、今後も研究に励んでいきたいと思っております。(瀧田, 東工大炭素センターM2)

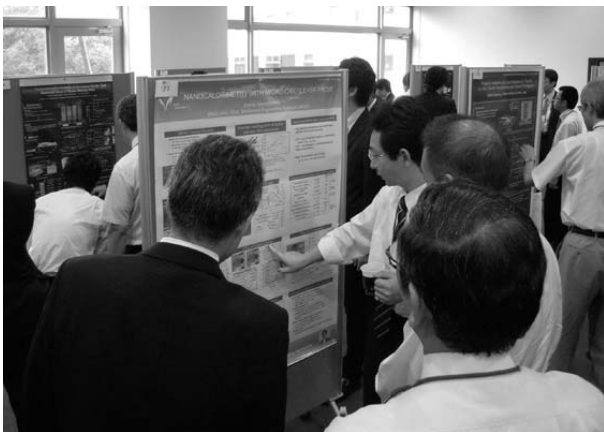


Photo 4 Poster session

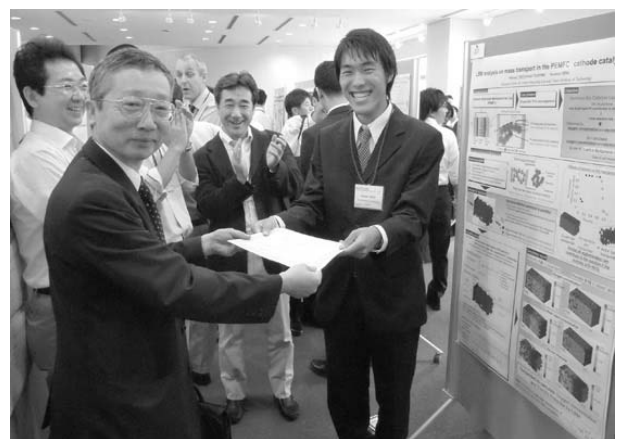


Photo. 5 Award winner

この度、IFHT2008にてBest Presentation Awardsを頂き、大変光栄なことと思う。フォーラムを主催された先生方、関係の皆様は心から感謝の意を表す。私が伝熱に関わる研究に本格的に取り組んだのは、今回がはじめてであったため、大変緊張しつつ、できるだけ多くのことを吸収しようと、著名な先生方の胸を借りるつもりで参加した。Keynote Lectureはいずれも多彩な内容で、興味深く拝聴した。特に、東京工業大学 平井先生の二酸化炭素貯留に関する研究については、CO₂の海洋貯留に関わる研究にも携わっているため、非常に参考となった。一般のセッションについても、ポスターを前に、細かい内容までディスカッションできる点で、自分自身も勉強になる点が多かつ

た。ポスター数とセッションの時間の割合もバランスが良かったと感じた。3日間をたっぷり堪能した。(金子(旧姓藤原)暁子, 筑波大)

おわりに

約2年間をかけて本フォーラムを準備し、成功させた実行委員会を表2に記載します。末筆ながら、フォーラムにご協力いただいた本会会員各位、東京大学生産技術研究所、東京工業大学炭素循環エネルギー研究センターの方々、ご参加いただいた皆様に、実行委員を代表しこの場をお借りして厚く御礼申し上げます。

Table 1 “Best Presentation Award” of IFHT2008

LBM analysis on mass transport in the PEMFC cathode catalyst layer, Shinpei Takita, Shohji Tsushima, Shuichiro Hirai (Tokyo Institute of Technology)
Dissolution characteristics of a single air microbubble in water, Higashi Hideaki, Isihara Isao, Matsumoto Ryosuke (Kansai University)
Microscopic Evaluation of Condensation Coefficient of Water in Dropwise Condensation Heat Transfer, Atsushi Tokunaga, Gyoko Nagayama, Takaharu Tsuruta (Kyushu Institute of Technology)
Study on Mechanism of Rewetting Initiation of Hot Dry Surface, Hiroyasu Ohtake, Shingo Kobayashi, Yasuo Koizumi (Kogakuin University)
Active Fan Heat Sink Development for Desktop PC, Piyawan Boonsin, Masataka Mochizuki, Koichi Mashiko, Yuji Saito, Thang Nguyen, Vijit Wuttijumnong (Fujikura Ltd.)
Development of Micro Superheated-Steam Generator, Takenori Iio, Ryosuke Matsumoto, Mamoru Ozawa (Kansai University), Toshikazu Takemori, Yoshinori Hisazumi, Akeshi Kegasa (Osaka Gas Co. Ltd)
Condensation Behavior in a Microchannel Heat Exchanger, Akiko Fujiwara, Genki Takeuchi, Yutaka Abe, (University of Tsukuba), Yutaka Suzuki (WELCON Inc.)
Nano/pico Liter Droplet Formation by using Small Pin Dispensing, Suguru, Uemura, Kiyoshi Kawamura (Tokyo University of Science)
Nanocalorimetry with Micro-Cantilever Probe, Osamu Nakabeppu (Meiji University)
Effect of Surface Modification Patterning on Electroosmotic Flow in Microchannel Measured by Micro-PIV/LIF, Mitsuhisa Ichianagi, Seiichi Sasaki, Yohei Sato Koichi Hishida (Keio University)
Numerical Simulation for Probe Design in Evanescent Wave Measurement through Near-field Scanning Optical Microscope, Daisuke Hirashima, Katsunori Hanamura (Tokyo Institute of Technology)

Table 2 Organizing Committee (Executive Committee)

Satoh, I. (Chair, Tokyo Inst. Tech.) , Ishizuka, M. (Chair, Toyama Pref. Univ.)
Nakabeppu, O. (Meiji Univ.), Shirakashi, R. (Univ. Tokyo), Tanahashi, M. (Tokyo Inst. Tech.), Kobayashi, K. (Meiji Univ.),
Miyazaki, K. (Kyushu Inst. Tech.), Mimatsu, J. (Gifu Univ.), Munakata, T. (AIST), Murata, A. (Tokyo Univ. A&T.),
Nakabe, K. (Kyoto Univ.), Nakagawa S. (Toyama Pref. Univ.), Nishino, K. (Yokohama National Univ.), Ogawa, K. (Keio Univ.)
Ohara, T. (Tohoku Univ.), Shibahara, M. (Osaka Univ.), Shikazono, N. (Univ. Tokyo), Suzuki, O. (Hitachi Ltd.),
Tada, Y. (Kanazawa Univ.), Takata, Y. (Kyushu Univ.), Yamada, J. (Shibaura Inst. Tech.), Yamada, M. (Hokkaido Univ.),
Yazawa, K. (Sony Corp.)

パーデュー大学原子力熱水力研究室における研究活動について

Research Activities of Thermal-hydraulics and Reactor Safety Laboratory at Purdue University

石井 護, 日引 俊 (パーデュー大学)
 Mamoru ISHII, Takashi HIBIKI (Purdue University)
 e-mail: ishii@purdue.edu, hibiki@purdue.edu

1. はじめに

パーデュー大学は、1869年に創立された米国・インディアナ州にある全米屈指の州立大学で、これまで、人類初の月面着陸者であるニール・アームストロングやノーベル物理学賞を受賞したエドワード・パーセル、ベン・モッテソン、生物学者シーモア・ベンザー等数々の俊英を輩出してきました。パーデュー大学のメインキャンパスであるウエストラフィエット校は、シカゴから約140マイル南東に位置し、全米50州、世界130カ国からの学生約4万人の教育を担っています。

工学部には、著者らの所属する原子力工学科を含め13の専攻があります。不確定性原理でノーベル賞を受賞したハイゼンベルグ博士が1939年にパーデュー大学を訪問した際に、原子核工学における重要な単位の一つであるバーンが生まれたというエピソードも残っています。

原子力工学科には、これまで原子力工学の標準教科書の一つであるNuclear Reactor Engineeringを著わしたセソンスキー名誉教授やMHD分野の無次元数にその名を冠するリクードス名誉教授、原子力安全解析コードRELAP5の開発で著名なランサム名誉教授、ハイゼンベルグ博士の最後の弟子と呼ばれるオットー名誉教授、現在、米国National Science Foundationの長官を務めておられるビメント教授が在籍され、パーデュー大学原子力工学科の名声を不動のものとしてきました。現在、約70名の大学院生、150名の学部生が将来の原子力科学者、技術者を目指して日夜研鑽に励んでいます。

パーデュー大学原子力工学科は、伝統的に原子力熱水力安全研究に強く、著者らの所属する原子力熱水力安全研究室(Thermal-hydraulics Reactor Safety Laboratory, 以下TRSLと記します)は、世界屈指の実力を有するとの評価を受けています。以下に、TRSLの概要と研究活動の一端をご紹介します。

します。

2. TRSLの概要

TRSLは、1988年にアルゴンヌ国立研究所から着任した石井護 Walter H. Zinn 特別教授により創設されました。2006年には京都大学から日引俊教授がメンバーに加わりました。TRSLには、2名の教授のほか約20名の大学院生と数名の博士研究員、訪問研究員が常駐し研究を行っています。

米国の大学の研究室規模(研究室面積、学生数)は、その研究室を組織する教授の手腕に負うところが大きく、現在、TRSLは、国立研究所並みの陣容を整えて、原子力熱水力安全研究を行っています。TRSLは、パーデュー大学飛行場そばに位置する格納庫を改造した通称エアポータラボを拠点としています。図1にTRSL組織図を示します。

1994年には、米国原子力規制局(USNRC)の援助を受け、全米の大学に2基しかない原子炉インテグラル試験設備のうちの一つであるPUMA(Purdue University Multi-Dimensional Integral Test Assembly)が設置されました(図1の青色部分)。インテグラル試験設備とは、原子炉事故時の原子炉システムの熱水力挙動をシミュレーションするための試験装置で、制御室を備え、その装置高さは3階建てビルに相当します(図2をご参照下さい)。

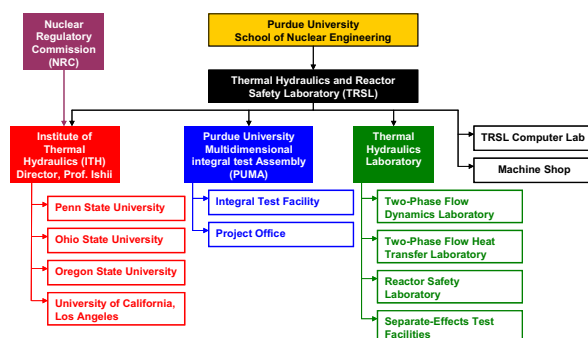


図1 TRSL組織図



PUMA 上面図



PUMA 正面図



PUMA 制御室

図 2 PUMA 設備

1997 年には、石井教授を所長として、パーデュー大学に熱水力研究所が設立されました（図 1 の赤色部分）。本研究所は、原子炉システム安全解析コードの改良・開発を目的として、その基礎となる構成方程式の開発やコード検証のためのデータを提供することを目的としています。現在、本研究所には、ペンシルバニア州立大学、オハイオ州立大学、オレゴン州立大学、カリフォルニア大学ロサンゼルス校の教授陣が参加し、パーデュー大学を通じて USNRC からの委託研究を行っています。

上記の研究以外にも、これまで米国エネルギー

省、ベティス研究所、ウエスティングハウス社、アメリカ航空宇宙局（NASA）、三菱重工業、東京電力、東芝等との共同研究を展開しています（図 1 の緑色部分）。

TRSL には、機械工場が併設され 4 人のフルタイムのマシニストが我々の試験装置を製作しています。また、TRSL コンピュータラボには、50 台以上のコンピュータ、ワークステーションが設置され、シミュレーション、実験に使用されています。さらに熱水力安全解析シミュレーションコードである TRAC-P、-B、-M、RELAP5、TRACE、CATHARE、RAMONA そして汎用 CFD コードである CFX、FLUENT も装備され、多岐に渡る熱水力現象のシミュレーションを可能としています。

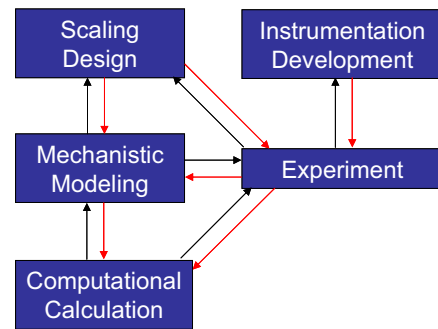


図 3 TRSL の研究の特色

TRSL の研究の特色を図 3 に示しました。TRSL は、原子力分野や様々な産業界で直面する工学的問題を解決することを目的としています。研究の第一段階として、巨大プラント現象（実機レベル）を忠実に再現できる実験室規模の試験装置設計のため、単相流、二相流のスケールアップ則を応用しています。このようにスケールダウンされた試験装置を基にデータを取得し、そのデータに基礎を置く構成方程式を開発し、実機レベルの熱水力現象を予測する手法を開発しています。

実験に際しては、構成方程式開発のために必要となる流動パラメータを予測し、そのパラメータを計測するために必要な計測手法の開発・整備を行っています。例えば、二相流現象シミュレーションに用いられる二流体モデルを閉じるために必要な最重要パラメータの一つである界面積濃度の局所計測を可能とするマルチセンサープローブ等を開発してきました。このような先端計測手法を

用いて得られたデータには、厳格な QA プロセスが適用され、USNRC 原子炉許認可に使用されるような信頼性の高いデータを提供してきました。さらに TRSL で開発された構成方程式は、原子炉許認可用のシミュレーションコードや汎用 CFD コードに装荷されています。

3. TRSL における先端研究・教育の概要

現在、TRSL で行われている先端研究の一部を下記にご紹介します。

- SBWR (Simplified Boiling Water Reactor) 設計および安全研究
- CFD シミュレーションのための 3 次元二流体モデルの開発研究
- 界面積濃度輸送方程式の開発研究
- 二相流計測手法の開発研究
- サブクール沸騰実験・モデリング研究
- 二相流診断システムの開発研究
- 改良型原子炉安全研究
- 二相流動不安定実験・モデリング研究
- 原子炉安全解析に関する先端コンピュータシミュレーションコードの開発研究
- 微小重力条件下における二相流研究
- 開発途上国・遠隔地用小型原子炉設計研究

研究の詳細は、筆者らのホームページでご覧頂けます (<https://engineering.purdue.edu/NE/>)。

また、原子力教育の一環として、石井教授により 1975 年に発刊され原子力熱水力安全解析の標準教科書となっている Thermo-Fluid Dynamic Theory of Two-Phase Flow[1]を 2005 年に改訂し、当該分野の教科書・参考書として出版しています [2]。

4. 若手研究者および大学院生へのメッセージ

TRSL では、21 世紀のエネルギー問題を解決しようとするエネルギー溢れる若手研究者および大学院生を受け入れています。TRSL で学んだ若手研究者および大学院生は、基礎的な研究手法を身につけ、さらに研究者間の国際的なネットワークを構築し、現在、大学、産業界の第一線でグローバルな活躍をしています。また、TRSL の卒業生がオレゴン州立大学、ペンシルベニア州立大学、

オハイオ州立大学等の教授に就任するなど、TRSL の教育システムは高く評価されています。

TRSL での研究を希望する際には、前述の著者らのウェブサイトアクセスすることにより詳細な情報が得られます。また、世界中の主要大学には、図 4 に示すポスターが送付され、その情報を基に世界中から原子力工学、機械工学、化学工学、物理学等を専攻しているトップクラスの学生が TRSL に応募してきています。

図 4 TRSL ポスター

現在、TRSL に所属する大学院生には、我々教授より月額 1600 ドル以上 (博士課程の場合)、或いは 1450 ドル以上 (修士課程の場合) の生活費の補助 (返還義務はありません。援助金額は本人の努力により増加します) と授業料免除等のサポートが与えられ、研究・講義に集中できるような環境が提供されています。さらに毎日 15 時以降、研究室にてこと細かな研究の指導が行われています。

日本在住の学生が TRSL に応募する際には、基礎的な学力を示す GRE 試験のスコアと英語力を

示す TOEFL 試験のスコアが基準値を満たす必要があります。それ以外は、本人の志望理由書と推薦書、成績表が基本的に必要な書類です。具体的な応募方法は下記ウェブサイトをご参照下さい。

(<https://engineering.purdue.edu/NE/Academics/Graduate/HowToApply.html>)

入学時期は、基本的に8月開始の秋学期か1月開始の春学期の2回、卒業時期もフレキシブルで、大学院を修了して、日本での就職を考える場合でも問題はありません。また、世界各国からの大学、国立研究所等の研究者、企業のエンジニアも随時受け入れています。

5. おわりに

本稿では、TRSL の概要、現在行われている研究の概要、若手研究者、大学院生へのメッセージを記しました。今世紀に予想されるエネルギー問題を解決できる実用的な科学技術は原子力において他にはありません。しかし、スリーマイル島原発事故、チェルノブイリ原発事故に端を発した若手研究者、大学院生の原子力離れにより、将来の原子力研究を担う科学者、エンジニアが不足する可能性があります。本稿をお読みになった若手研究者、大学院生の方々が原子力安全研究に興味を持ち原子力エネルギー開発を目指されることを祈念しています。

参考文献

- [1] Ishii, M., *Thermo-Fluid Dynamic Theory of Two-Phase Flow*, Eyrolles (1975).
- [2] Ishii, M. and Hibiki, T., *Thermo-Fluid Dynamics of Two-Phase Flow*, Springer (2005).

著者略歴



石井 護 (いしい まもる)

ジョージア工科大学大学院博士課程修了 (機械工学専攻). Ph. D (1971)

ジョージア工科大学機械工学科博士研究員 (1971-1972)

フランス原子力庁グルノーブル研究センター招聘客員研究員 (1972-1974)

アルゴンヌ国立研究所主任研究員 (1974-1988)

パーデュー大学正教授 (1988-1999)

パーデュー大学 Walter H. Zinn 特別教授 (1999-現在)

米国原子力学会熱流動部門研究業績賞 (1989)

米国原子力学会フェロー (1992)

National Heat Transfer Conference, 論文賞 (1992)

米国原子力学会熱流動部門論文賞 (1997)

日本混相流学会名誉会員 (2001)

日本機械学会動力エネルギー部門功績賞 (2002)

日本原子力学会研究業績賞 (2003)

日本混相流学会業績賞 (2004) など



日引 俊 (ひびき たかし)

大阪大学大学院博士課程修了 (化学工学専攻). 工学博士 (1990)

京都大学原子炉実験所助手 (1990-1997)

パーデュー大学原子力工学科招聘客員研究員 (1996-1997)

京都大学原子炉実験所助教授 (1997-2006)

パーデュー大学正教授 (2006-現在)

大阪大学大学院招聘教授 (2006-現在)

日本原子力学会奨励賞 (1996)

米国原子力学会 Young Member Engineering Achievement Award (2001)

日本混相流学会論文賞 (2001)

日本混相流学会技術賞 (2005)

日本原子力学会熱流動部門業績賞 (2007) など

お湯の 100°Cは熱いが、油の 100°Cは熱くない？

Is it true that boiling water at 100 °C is hot, but oil at 100 °C is not hot?

姫野 修廣 (信州大学)

Nobuhiro HIMENO (Shinshu University)

e-mail: nhimeno@shinshu-u.ac.jp

表題の「お湯の 100°Cは熱いが、油の 100°Cは熱くない？」だが、お湯も油も 100°Cなら両方とも熱いに決まっていると思われるだろう。実は以前、あるテレビ局の番組担当者から次のような問い合わせがあった。

視聴者から「油の不思議」ということで表題のような情報が寄せられた。それによると、かなり昔の記憶なので詳しいことまでは覚えていないが、実際に試したことがあるとのことである。これが本当なら番組で取り上げたいが、さすがに科学的根拠がはっきりしないまま人体を使って実験するわけにもいかず、アドバイスをしてもらえないかということであった。具体的には

- (1) 実際に、油の 100°Cが熱くないということが考えられるか？
- (2) (もし熱くないのであれば) どのような理由が考えられるか？
- (3) (もし熱くないのであれば) 指を入れることによって、やけどの危険性などはないか？

もっともな質問である。常識的に考えて 100°Cの油に指をつけてやけどをしないなどということはありそうにない。しかし大学の授業で伝熱工学を教えている身としては、ややピンとくるものがあった。まんざら嘘というわけでもなさそうに思えたのである。100°Cの油に指をつけた時に熱いと感じるかどうかは、詳細に考えると指の表面温度が何度になるかという問題に帰着する。100°Cの熱い油に指をつけるのだから、当然指の表面温度は 100°Cになり、やけどをすると考えるのがふつうだろう。しかしこれは熱いものにさわってやけどをしたことがある人間の被害者意識から来る発想というものだ。100°Cの油の立場に立って考えると、36°Cなどという低温の人間の指などに触れると冷えてしまうと心配するかもしれない。人間にとっては 100°Cの油は熱いが、100°Cの油にとっては 36°Cの人間は冷たいのである。したがって人間の指が

油に触れた瞬間には、指の表面温度が 100°Cになることは決してない。100°Cと 36°Cの間の温度となり、その温度が何度になるかによって、熱いと感じるかどうか、あるいはやけどをするかどうかが決まるのである。

それでは指の表面温度は、どのようにして求めればよいのか？

ここから先は伝熱工学の知識を活用しよう。油は液体なので、本来、対流の影響を考えなくてはいいけないが、人間の指が油に触れた瞬間には流動が起こらず、油側も指側も熱伝導のみによって伝熱が生じると考えてよいだろう。しかも触れた瞬間には伝熱の影響は油側も指側も表面近傍に限られるため、半無限体の非定常熱伝導問題と捉えることができる。伝熱工学の教科書によれば[1]、図 1 に示すように初期温度 T_i の半無限体の表面温度がある瞬間に T_s となったときの温度分布は、非定常熱伝導方程式を解くことによって、次のように求まる。

$$T - T_s = (T_i - T_s) \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{at}} \quad (1)$$

ここで x は半無限体表面からの距離、 a は温度伝導率、 t は時間、 erf は誤差関数である。この結

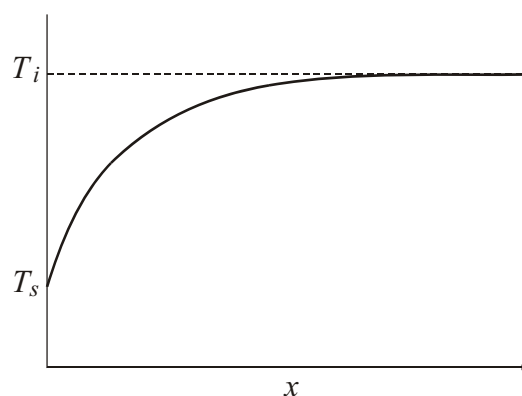


図 1 半無限体の温度分布

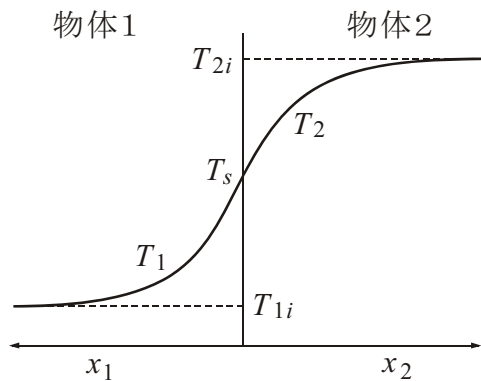


図2 2つの半無限体が接した場合の温度分布

果を利用すると、2つの半無限体が接触した場合の温度分布も求めることができる。

図2に示すように、初期温度 T_{1i} の半無限体1と初期温度 T_{2i} の半無限体2が接触する場合について考える。接触面での条件としては、両方の表面温度が一致する（温度 T_s とする）ことに加え、熱流束の連続性が保たれる必要がある。すなわち半無限体1, 2の温度、熱伝導率、表面からの距離をそれぞれ $T_1, T_2, \lambda_1, \lambda_2, x_1, x_2$ とすると、熱流束の連続条件は

$$-\lambda_1 \frac{\partial T_1}{\partial x_1} = \lambda_2 \frac{\partial T_2}{\partial x_2} \quad (2)$$

となる。式(2)で両辺の符号が異なっているのは、式(1)の結果を各物体にそのまま適用できるように、 x 座標を図2のように物体1, 2それぞれ独立にとり逆向きとなっているためである。式(2)の T_1, T_2 に式(1)を適用し、誤差関数の微分が両辺共通であることを考慮すると

$$-(T_{1i} - T_s) \frac{\lambda_1}{2\sqrt{a_1 t}} = (T_{2i} - T_s) \frac{\lambda_2}{2\sqrt{a_2 t}} \quad (3)$$

という式が得られる。式(3)をさらに整理し、 T_s について解くと

$$T_s = \frac{T_{1i} \frac{\lambda_1}{\sqrt{a_1}} + T_{2i} \frac{\lambda_2}{\sqrt{a_2}}}{\frac{\lambda_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{\lambda_2}{\sqrt{a_2}}} \quad (4)$$

となり、境界面温度 T_s を、両物体の初期温度、熱伝導率、温度伝導率の関数として表すことができる。

このように計算式が求まったので、実際に指の

表1 熱物性値と表面温度の計算結果

	a [m ² /s]	λ [W/(m·K)]	T_s [°C]
ヒトの皮膚	0.12×10^{-6}	0.45	—
水	0.167×10^{-6}	0.676	71.8
潤滑油	0.074×10^{-6}	0.137	53.9
鉄	20×10^{-6}	74	95.3
空気	32.9×10^{-6}	0.0314	36.3

表面温度を計算してみよう。指の温度（ヒトの体温） $T_{1i} = 36^\circ\text{C}$ 、それに触れる物体の温度 $T_{2i} = 100^\circ\text{C}$ とし、式(4)に各物性値を代入して計算した結果を表1に示す。表1には計算した表面温度 T_s の他に、計算に用いた物性値も示してある。ヒトの皮膚の物性値については、個人差があるうえ水分含有量によっても異なるためはっきりしないが、妥当そうな値を採用した。また指に触れる物質としては、水、潤滑油、鉄、空気について計算を行った。これら4つの物性値はいずれも 100°C における値である。油としては、今回の趣旨からすると天ぷら油など食用油が望ましいと思われたが、物性値が不明のため潤滑油で代用した。また鉄と空気については、今回の問題には直接関係ないが、物性値の影響を明らかにする意味から参考のため計算した。

さて表1の計算結果について見てみよう。

表面温度 T_s は、指に触れる物体が水の場合には 71.8°C 、油（潤滑油）の場合には 53.9°C となっており、やはり視聴者の投稿どおり油の 100°C の方が熱くないのである。この大きな原因は、水の熱伝導率が際だって大きいことにある。

式(4)を見ると、表面温度 T_s は、両物体の初期温度 T_{1i}, T_{2i} を λ/\sqrt{a} の重みをつけて内分した形となっている。物理的に考えれば、 λ は温度勾配（の逆数）、 \sqrt{a} は表面の温度変化が内部へ伝わる距離に対応している。図2を見ながらこのことを考えると、表面温度 T_s の決まり方がよくわかると思う。例えば物体2の熱伝導率が一定のまま温度伝導率が大きくなると、温度勾配が一定のまま温度変化領域が深くなるのであるから、表面温度 T_s は低くなる。逆に物体2の温度伝導率が一定のまま熱伝導率が大きくなると、温度変化領域の深さは一定のまま温度勾配が小さくなるので、表面温度 T_s は高くなる。

このように表面温度 T_s は熱伝導率と温度伝導

率によって決まるが、定量的には、温度勾配は熱伝導率 λ の 1 乗に関係するのに対し、温度変化領域の深さは温度伝導率 a の平方根に比例する。したがって熱伝導率 λ の影響は、温度伝導率 a の影響の 2 乗で効くので、熱伝導率の影響が圧倒的に大きいことがわかる。例えば熱伝導率が 5 倍になると、温度伝導率が 25 倍になってようやくその影響をキャンセルすることができる。表 1 の水と潤滑油の物性値を比較すると、水の温度伝導率 a は潤滑油に比べて 2 倍程度大きい、熱伝導率 λ は 5 倍程度大きいので、温度伝導率 a の影響は熱伝導率 λ の $2/25$ となり相対的に無視できるほど小さい。このように表面温度 T_s は、熱伝導率の違いによって大きく支配されることがわかる。

ご存じの方も多いと思うが、水は我々にとって非常になじみの深いありふれた液体であるが、熱物性的には非常に特異な物質である。これは分子量が小さい極性分子であることと関係しており、比熱や熱伝導率の値は他の一般的な液体に比べて非常に大きい。例えば熱伝導率の場合、多くの有機液体では $0.1 \sim 0.2$ [W/(m·K)] 程度であるが、水は 0.6 [W/(m·K)] 以上である。冒頭で書いたように、今回の相談を受けたときに、ややピンとくるものがあり、まんざら嘘でもなさそうに思えたのは、こうした事情が頭をよぎったからだ。

ここから先はやや蛇足となるが、接触する物体によって表面温度がどのように変わるか、さらに明らかにするために、手近な物質として鉄と空気が接触した場合についても計算した。表 1 に示すように、鉄と空気の温度伝導率はヒトの皮膚とは随分違うが、定量的には上述のように熱伝導率の違いの影響が圧倒的に大きい。熱伝導率はヒトに比べて、鉄では 100 倍以上、空気では $1/10$ 以下で

ある。したがって表面温度 T_s は、鉄の場合には鉄の温度、空気の場合にはヒトの体温に近くなる。冬の寒い日に鉄のベンチに腰掛けると非常に冷たく感じたり、サウナ風呂でやけどしたりしないのはこうした理由による。

なお以上の話では、接触物体が液体であっても接触直後では対流が無視できるとして議論を進めてきたが、液体の中にしばらく指を突っ込むなどした場合には、当然、対流の影響は大きくなる。筆者が子どものころ、熱い風呂が好きな父親に褒められたくて、いくら熱くてもじっと我慢して湯船に入っていたが、まさに「じっと」していざるを得なかったのである。少しでも動くとも熱さがピリピリと体を刺すように襲ってきた。これは、動くとも対流境界層が薄くなり、熱伝達率が大きくなるためと納得したのは、大学で伝熱工学を学んだからのことである。

さて冒頭の「お湯の 100°C は熱いが、油の 100°C は熱くない？」の件だが、油は水に比べて熱くないのはわかったが、 53.9°C ではやはりやけどをするだろうし、 100°C の油の中に長時間指を入れた場合には当然これ以上の温度となるので、人体実験をしない方がいいのは言うまでもない。相談があったテレビ番組担当者の方には、数式は省略したが計算値を含めて以上の経緯を説明したところ、十分納得されたようで、テレビ番組で今回の実験を取り上げることはなかったようである。

参考文献

- [1] 例えば, Carslaw, H. S. and Jaeger, J. C., *Conduction of Heat in Solid*, 2nd edition, Oxford (1978).

行事カレンダー

本会主催行事

開催日		行事名	申込締切	原稿締切	問合せ先	掲載号
2009年						
6月	2日(火) ～ 4日(木)	第46回日本伝熱シンポジウム (開催場所: 国立京都国際会館)	2008.1.19	2008.3.16	第46回日本伝熱シンポジウム実行委員会 京都大学 大学院工学研究科 機械理工学 専攻内 E-mail: info@nhts2009.me.kyoto-u.ac.jp Fax: 075-753-5209	No.201 (08.10)

本会共催, 協賛, 後援行事

開催日		行事名	申込締切	原稿締切	問合せ先	掲載号
2008年						
10月 11月	29(木) ～ 1(土)	日本地熱学会平成20年学術講演会 (開催場所: 金沢大学角間キャンパス)	2008.8.16	2008.9.13	行事委員長 有木 和春 〒018-5201 秋田県鹿角市花輪字上中島 140 八幡平地熱株式会社事業部 TEL 0186-23-3861 FAX 0186-23-3100 E-mail: ariki@ink.or.jp	
11月	5(水)	No.08-43 第11回スターリングサイクルシンポジウム (開催場所: 国士舘大学)	2008.6.13	2008.9.26	実行委員長 岸本健 国士舘大学理工学部 TEL 03-5481-3334 FAX 03-5481-3253 E-mail: otaka@kokushikan.ac.jp	
11月	14日(金)	日本機械学会関西支部 ステップアップ・セミナー 2008 わが国企業・技術者・学生のための戦略的 技術経営III (事業を取り巻くリスクとリスクマネー ジメント) (開催地: 大阪市)	2008.11.7		社団法人日本機械学会関西支部 〒550-0004 大阪市西区靱本町 1-8-4 大 阪科学技術センタービル内 TEL 06-6443-2073 FAX 06-6443-6049 E-mail: jsme@soleil.ocn.ne.jp Web: http://www.kansai.jsme.or.jp/	
12月	3日(水) ～ 5日(金)	第46回燃焼シンポジウム (開催地: 京都府)	2008.7.18	2008.9.19	第46回燃焼シンポジウム事務局 〒606-8501 京都市左京区吉田本町 京都 大学エネルギー科学研究科 エネルギー 変換科学専攻内 TEL/FAX 075-753-5230 E-mail: sympo46@combustionsociety.jp	
12月	9日(水) ～ 13日(土)	IUMRS アジア国際会議 2008 (開催地: 名古屋市)	2008.6.30		太田裕道 名古屋市千草区不老町 名古屋大学大学 院光学研究科 化学・生物工学専攻 TEL 052-789-3202 FAX 052-789-3201 e-mail: h-ohta@apchem.nagoya-u.ac.jp	
12月	11(木) 12(金)	講習会『『伝熱工学資料(改訂第5版)』の内容を教材 とした熱設計の基礎と応用』 (開催地: 大阪市)	2008.12.1		(社)日本機械学会 熱工学部門 〒160-0016 新宿区信濃町 35 信濃町煉瓦 館 5階 TEL 03-5360-3505 FAX 03-5360-3509 http://www.jsme.or.jp/ted/yotei.html#08-72	
12月	13(土)	計算力学技術者(CAE技術者)(2級),(1級)認定試験 - 熱流体力学分野の解析技術者 - (開催地: 東京工業大学, 名古屋工業大学, 大阪市, 九州大学)	2008.8.29		社団法人日本機械学会能力開発促進機構 Web: http://www.jsme.or.jp/cee/cmnintei.htm	
12月	17日(水) ～ 19日(金)	第22回数値流体力学シンポジウム (開催地: 東京都渋谷区)	2008.7.12	2008.9.13	シンポジウム実行委員会事務局 金野 祥久 〒192-0015 八王子市中野町 2665 工学 院大学機械工学科 FAX 042-627-2360 E-mail: cfd2008@fluid.mech.kogakuin.ac.jp Web: http://www.nagare.or.jp/cfd/cfd22/ Web: http://www.thetaconf.org/index.htm	
12月	17日(水) ～ 20日(土)	Second International Conference on Thermal Issues in Emerging Technologies Theory and Application: ThETA 2 (開催地: Cairo, Egypt)	2008.6.2			
12月	18日(木) 19日(金)	第17回微粒化シンポジウム (慶應義塾大学矢上キャンパス)	2008.10.10	2008.11.14	講演論文担当事務局 古畑 朋彦 〒376-8515 桐生市天神町 1-5-1 群馬大学 大学院工学研究科 TEL 0277-30-1523 FAX 0277-30-1599 E-mail: furuhata@me.gunma-u.ac.jp	
12月	19日(金) 20日(土)	The 8th International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI-2008) (開催場所: 東北大学)			大竹浩人 東北大学流体科学研究所 流体融合研究セ ンター TEL/FAX: 022-217-5284 E-mail: ohtake@sammy.ifs.tohoku.ac.jp	

行事カレンダー

開催日		行事名	申込締切	原稿締切	問合せ先	掲載号
2009年						
1月	22(木) 23(金)	G T S Jガスタービンセミナー (第37回)「ガスタービンのモニタリング技術および環境対策技術の最新動向」 (開催地: 東京都港区)				
1月	29日(木) 30日(金)	15th Symposium on "Microjoining and Assembly Technology in Electronics" (開催地: 横浜市)	2008.9.4	2008.10.20	(社)溶接学会 Mate 2009 事務局 〒101-0025 東京都千代田区神田佐久間町1-11 TEL 03-3253-0488 FAX 03-3253-3059 Email: s_kogure@tt.rim.or.jp Web: http://wwwsoc.nii.ac.jp/jws/research/micro/mate/Mate2009.html	
9月 10月	27日(日) ～ 2日(金)	第13回原子炉熱流動国際会議 (NURETH13) (開催地: 金沢市)	2008.10.31	2009.1.31	NURETH-13 現地組織委員会委員長 村瀬道雄 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所 TEL: 0770-37-9110 E-mail: murase@inss.co.jp Web: http://www.nureth13.org/	
11月	16日(月) ～ 19日(木)	The 7th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing (PSFVIP-7) (開催地: Kaohsiung, Taiwan, ROC)	2008.10.31	2009.4.15	Dr. Tai, C.H., National Pingtung Univ. of Science and Technology (Taiwan, ROC) E-mail: chtai@mail.npust.edu.tw Web: http://www.tuat.ac.jp/%7Eptf/	

(株) エヌ・ティー・エスに感謝状を贈呈 (本学会事務局の旧所在先)

本学会の事務所は、平成 4 年以来、(株) エヌ・ティー・エスの中に置かせて頂いていましたが、本年 4 月以来、現在の内神田に独立に一室を借りています。この間、(株) エヌ・ティー・エスには、有利な条件でスペースを提供していただくと共に、日頃の業務でもいろいろ便宜を図って頂きました。そのため、本会理事会では、(株) エヌ・ティー・エス殿に感謝の意を表することとし、永年お世話になった本会事務職員の倉水裕子さんと一緒に、河村が吉田隆社長を訪問してお礼を述べると共に、感謝状を贈呈しました。(河村洋記)

(写真は、中央：吉田社長，左：河村，右：倉水)



公益法人制度改革に伴う日本伝熱学会の法人名称について

会員各位

会長 河村 洋
総務担当副会長 森 康彦
企画・財務担当副会長 横堀 誠一

会員の皆様にはますますご清栄のこととお喜び申し上げます。また、当学会の運営にご理解とご協力をいただき、厚く御礼申し上げます。

このたび公益法人制度が改革され、「一般社団法人及び一般財団法人に関する法律」が本年12月1日に施行されます。これに伴い、現在「社団法人」あるいは「財団法人」として“公益法人”に格付けされている当学会を含むすべての団体は、本年12月1日をもって、法律上は「特例民法法人」に名称変更され、さらに、同日より5年の間に（平成25年11月30日までに）、「公益社団・財団法人」または「一般社団・財団法人」のいずれかを選択して申請し、それに移行しなければなりません。この移行申請が認可されないか、または移行申請を行わない場合には、当該法人には解散が義務づけられています。

以上の通り、当学会が今後も存続し続けるためには、今後5年以内に存続の形を選択し、所定の移行申請手続きを行わなければなりません。他方、それまでの期間はこれまでと同様の法人として存在でき、従来通り文部科学省の監督・指導の下で活動することになります。なお、本年12月1日以降、法律上の名称は「特例民法法人」に変更になりますが、新法人に移行するまではこれまでどおり社団法人と称することは認められておりますので、当学会は、従来通り「社団法人 日本伝熱学会」の名称を用いることにいたします。

なお、当学会のような学術団体がいかなる形態の新法人に変更するのが適切なのかは、学術会議でも意見集約中の段階にあります。当学会でも理事会のもとに検討グループを設置して、慎重に調査・検討を進めております。今後も状況の推移を注視しながら、当学会としての方針や判断を皆様にお伝えし、ご意見をうかがいつつ、方向を決定して行きたいと考えております。今後とも、ご理解とご協力をお願い申し上げます。

以上

第 46 回日本伝熱シンポジウム講演論文募集

第 46 回日本伝熱シンポジウム実行委員会

委員長 牧野俊郎

事務局長 中部主敬

開催日：平成 21 年 6 月 2 日（火）～ 6 月 4 日（木）

会場：国立京都国際会館 (<http://www.icckyo.or.jp/>)

行き方 JR 京都駅から地下鉄烏丸（からすま）線で 20 分，国際会館駅下車，徒歩 5 分.

<http://www.icckyo.or.jp/jp/access/access.html>

所在地 〒606-0001 京都市左京区宝ヶ池（Phone: 075-705-1234 / Fax: 075-705-1100）

講演申込締切：平成 21 年 1 月 19 日（月）

講演論文原稿提出締切：平成 21 年 3 月 16 日（月）

事前参加申込締切：平成 21 年 4 月 13 日（月）

ホームページ URL：<http://nhts2009.me.kyoto-u.ac.jp/>

【シンポジウムの形式】

- ・ 講演形式として，
 - a) 一般セッション（口頭発表）
 - b) オーガナイズドセッション（口頭発表）
 - c) 学生および若手研究者を対象とする優秀プレゼンテーション賞セッションを設けます。
- ・ 1 講演あたりの講演時間は，一般セッションについては 15 分（発表 10 分，個別討論 5 分）とし，各セッションの最後に総合討論の時間（5 分×セッション内の講演件数）を設ける予定です。オーガナイズドセッションについては，オーガナイザーの指示に従って下さい。
- ・ 優秀プレゼンテーション賞セッションについては，本号掲載のお知らせ「優秀プレゼンテーション賞について」をご参照下さい。

【講演申込方法】

- ・ 原則として Web による申込に限ります。シンポジウムのホームページから必要なデータを入力して下さい。Web による申込ができない場合には，実行委員会にお問い合わせ下さい。
- ・ 一般セッション，オーガナイズドセッションあるいは優秀プレゼンテーション賞セッションのいずれかで発表するかを選択して下さい。優秀プレゼンテーション賞セッションに申込の場合には，本号掲載のお知らせ「優秀プレゼンテーション賞について」をご参照下さい。
- ・ 講演申込時に，講演論文のアブストラクト（日本語で 200～250 字）を入力して下さい。講演論文集の抄録として科学技術振興機構（JST）のデータベースに登録します。
- ・ 講演申込は，講演者 1 名につき 1 題目に限ります。
- ・ 講演申込は，J-STAGE 上で受け付けます。
- ・ 講演の採否およびセッションへの振分けについては，実行委員会にご一任下さい。

【講演論文集】

- ・ 講演論文集として、オフセット印刷版（白黒）と電子版を作製します。講演論文集（電子版）は Web 上における J-STAGE から公開します。会員にはパスワードを配布して、電子版を Web 上で閲覧できるようにします。なお、会員が当該講演論文をのちに原著論文として学術論文誌等に投稿されることを考慮し、本講演論文集に限られた範囲に配布されるものであることを明確にするために、パスワードは、近い将来には公開しません。
- ・ 講演論文集（電子版）の CD-ROM も作製し、参加者に配布します。非参加の会員にも、希望があれば配布しますので、開催後に実行委員会にお申し込み下さい。
- ・ 印刷版の講演論文の長さは 1 題目あたり A4 サイズで 2 ページとします。講演論文の作成様式は、2 段組×片側 26 字×60 行とする予定です。
- ・ 電子版には、オフセット印刷版と同じものか、または 8 ページ以内のフルペーパーを掲載することができます。様式は印刷版と同じですが、カラーの使用が可能です。ファイル容量は最大で 2 MB までとし、アニメーションは含まないものとします。
- ・ 電子版に掲載された講演論文は、本学会の論文誌“Thermal Science and Engineering”にそのまま投稿することができます。詳細は会誌 1 月号の「お知らせ」に掲載します。ただし、掲載の可否は通常の査読プロセスを経て決まります。
- ・ 執筆要綱は、会誌 1 月号の「お知らせ」および本シンポジウムのホームページに掲載します。
- ・ 講演論文原稿は、講演論文を電子化するために、原則として PDF ファイルで提出するものとします。PDF ファイルで提出できない場合には、変換作業料（1 件につき 3,000 円）を申し受けて、実行委員会が PDF 化を代行します。
- ・ 原稿提出締切までに提出されなかった講演論文は講演論文集（印刷版・CD-ROM）および J-STAGE に掲載されません。J-STAGE の締切は厳密ですので、十分にご注意下さい。

【講演論文の公開日】

- ・ 会員を対象に、シンポジウム開催日の 1 週間程前から J-STAGE 上で公開します。
- ・ したがって、特許に関わる公知日は、シンポジウム開催日よりも早くなりますのでご注意ください。

【参加費等】

- ・ シンポジウム参加費
 - 一般（事前申込：12,000 円，当日申込：14,000 円）
 - 学生（事前申込：5,000 円，当日申込：6,000 円）
- ・ 講演論文集
 - 日本伝熱学会会員： 無料（電子版は、事前に J-STAGE 上で公開します。参加者には当日に印刷版・CD-ROM を配布します。非参加者のうちの希望者には、CD-ROM を事後にお送りします。）
 - 非 会 員： 8,000 円（印刷版）。会場受付にて日本伝熱学会への入会を申し込まれる場合には、無料とします。

【懇親会】

- ・ 開催日： 平成 21 年 6 月 3 日（水）
- ・ 会 場： 国立京都国際会館（宴会場「さくら」）
- ・ 懇親会費
 - 一般（事前申込：8,000 円，当日申込：10,000 円。配偶者無料）
 - 学生（事前申込：4,000 円，当日申込：5,000 円）

【交通と宿泊】

- ・ 交通と宿泊については、本シンポジウムのホームページをご参照下さい。
- ・ 京都は世界からの旅行者が常時、多数、訪れる国際文化都市です。そのため、ホテルの予約は容易ではありません。お早めに手配されることを強くお勧めします。シンポジウム実行委員会でも 250 室程度の部屋を確保しております。本シンポジウムのホームページをお訪ね下さい。

【ご注意】

- ・ 講演申込の取消および講演論文原稿の差替は、準備と運営に支障をきたしますのでご遠慮下さい。
- ・ 論文題目と著者名が、講演申込時と講演論文原稿提出時で相違しないようにご注意ください。
- ・ 口頭発表用として実行委員会が準備する機器は、原則として、液晶プロジェクターのみとします。パーソナルコンピューターは各自ご持参下さい。
- ・ 参加費、懇親会費等は参加取消の場合にもお返ししません。
- ・ その他、ご不明な点がありましたら、実行委員会に E-mail または Fax でお問い合わせ下さい。

【お問い合わせ先】

第 46 回日本伝熱シンポジウム実行委員会
京都大学 大学院工学研究科 機械理工学専攻内
E-mail: info@nhts2009.me.kyoto-u.ac.jp
Fax: 075-753-5209

優秀プレゼンテーション賞（第46回日本伝熱シンポジウム）について

日本伝熱学会 学生会委員会
委員長 堀部明彦

第46回日本伝熱シンポジウムでは、下記の要領で、学生・若手研究者を対象に優秀プレゼンテーション賞セッションを設けます。企業・大学・研究機関等の多数の皆様にご参加いただきたくお願いいたします。

- 日 時：平成21年6月2日（火） シンポジウム第1日
- 講演形式：講演形式は現在検討中です。決定次第、シンポジウムのホームページに掲載します。
- 対象：企業・大学・研究所等の技術者・研究者で、平成21年3月31日現在で28歳以下の者、または、講演申込当日に学生の者（ただし、社会人大学院生を除く）。
- 応募資格：講演時（＝審査時）に、日本伝熱学会の会員（正員・学生員）、または、入会申込中であること。
- 応募件数：指導教員または研究グループ長等あたり、1名（1件）とします。
- 応募方法：第46回日本伝熱シンポジウム講演申込時に、本号掲載の講演申込方法に従って、“優秀プレゼンテーション賞”の項目を選択し、“指導教員または研究グループ長等氏名”および“研究分野の分類記号”を入力して下さい。なお、講演論文原稿の様式については一般セッションと同様のものとします。
- 審査・選考方法：複数名の審査員による評価に基づいて選考し、受賞者を決定します。
- 表彰：表彰はシンポジウム第2日の学会総会で行います。

<詳細は、日本伝熱学会・日本伝熱シンポジウム実行委員会・学生会委員会内で検討中です>
<最新情報はシンポジウムのホームページに公開します>



編集出版部会からののお知らせ

－各種行事・広告などの掲載について－



インターネットの普及により情報発信・交換能力の比類ない進展がもたらされました。一方、ハードコピーとしての学会誌には、アーカイブ的な価値のある内容を手にとって熟読できる点や、一連のページを眺めて全貌が容易に理解できる点など、いくら電子媒体が発達してもかなわない長所があるのではないかと思います。ただし、学会誌の印刷・発送には多額の経費も伴いますので、当部会ではこのほど、密度のより高い誌面、すなわちハードコピーとしてぜひとも残すべき内容を厳選し、インターネット（HP：ホームページ、ML：メーリングリスト）で扱う情報との棲み分けをした編集方針を検討いたしました。

この結果、これまで会告ページで取り扱ってきた各種行事・広告などの掲載につき、以下のような方針で対応させていただきたく、ご理解とご協力をお願いする次第です。

対 象	対 応	具体的な手続き (電子メールでの連絡を前提としています。)
本会（支部）主催による行事	無条件で詳細を、会誌とHPに掲載、MLでも配信	申込者は、総務部会長・編集出版部会長・広報委員会委員長・総務担当副会長補佐評議員に記事を同時送信してください。
関係学会や本会会員が関係する組織による国内外の会議・シンポジウム・セミナー	条件付き掲載 会誌：1件当たり4分の1ページ程度で掲載（無料） HP：行事カレンダーに掲載しリンク形成（無料）	申込者は、まず内容を説明する資料を総務部会長に送信してください。審議の結果、掲載可となった場合には総務部会長より申込者にその旨通知しますので、申込者は記事を編集出版部会長（会誌担当）と広報委員会委員長（HP担当）に送信してください。
大学や公的研究機関の人事公募（伝熱に関係のある分野に限る）	会誌：掲載せず HP：条件付き掲載（無料） ML：条件付き配信（無料）	申込者は、公募内容を総務部会長に送信してください。審議の結果、掲載可となった場合には総務部会長より申込者にその旨通知しますので、申込者は記事を広報委員会委員長（HP担当）・総務担当副会長補佐評議員（ML担当）に送信してください。
一般広告 求人広告	会誌：条件付き掲載（有料） HP：条件付き掲載（バナー広告のみ、有料）	申込者は、編集出版部会長（会誌担当）または広報委員会委員長（HPバナー広告担当）に広告内容を送信してください。掲載可となった場合には編集出版部会長または広報委員会委員長より申込者にその旨通知しますので、申込者は原稿を編集出版部会長または広報委員会委員長に送信してください。掲載料支払い手続きについては事務局からご連絡いたします。バナー広告の取り扱いについては http://www.htsj.or.jp/banner.pdf をご参照下さい。

【連絡先】

- ・総務部会長：原村 嘉彦（神奈川大学）：haramy01@kanagawa-u.ac.jp
- ・編集出版部会長：近久武美（北海道大学）：takemi@eng.hokudai.ac.jp
- ・広報委員会委員長：佐藤洋平（慶應義塾大学）：yohei@sd.keio.ac.jp
- ・総務担当副会長補佐評議員：小川邦康（慶應義塾大学）：ogawa@mech.keio.ac.jp
- ・事務局：倉水裕子：office@htsj.or.jp

【注意】

- ・原稿はWordファイルまたはtextファイルをお願いします。
- ・HPはメンテナンスの都合上、掲載は申込月の翌月、また削除も希望掲載期限の翌月程度の時間遅れがあることをご了承願います。
- ・MLでは、原則としてテキスト文の送信となります。pdf等の添付ファイルで送信を希望される場合はご相談ください。

47期新入会員（2008.7.5～2008.9.25） 学生1名

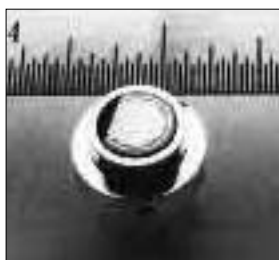
資	氏名	所属	資	氏名	所属
学	相馬 颯子	東京農工大学			



熱流束センサー

熱流束センサーは、熱エネルギーの移動密度 (W/cm^2) に比例した直流電圧を出力します。弊社の製品は米国バージニア工科大学が開発した新しい技術をVatell社で商品化したもので、大変手軽に高速・高精度で熱流量の測定をすることができます。特に応答速度の早いこと、センサーからの出力レベルが高いことが特徴で、熱流束マイクロセンサー (HFM) では、応答速度最高6マイクロ秒を達成しています。

熱流束マイクロセンサー



特徴

- 最高速の応答 (約 6μ 秒)
- 850°Cまで外部冷却不要
- 低雑音 / 高感度
- 熱流束と温度を測定
- 伝導、対流、輻射に等感度

使用例

- エンジン内壁の熱伝達状態観察
- ロケットエンジンのトラバース実験
- タービンブレード熱風洞試験
- 自動車用エアバッグ安全性試験
- ジェットエンジンバックファイヤー試験

ガードン型円形フォイルセンサー



センサー本体の構造は、薄膜フォイル・ディスクの中心と周囲の温度差を測定する、差動型熱電対をとっています。フォイル・ディスクはコンスタンタンで作られており、銅製の円柱形ヒートシンクに取り付けられています。水冷式は取付け場所の自由度が高く長時間の測定が可能です。

使用例

- 焼却炉・溶鉱炉の熱量測定
- 火災実験の際の輻射熱ゲージ
- バーナーなど熱源の校正用基準器
- 着火性・燃焼性試験 (ISO5657, 5658, 5660)
- 米国連邦航空局のファイヤー・スモークテスト

シート状熱流束センサー



センサーは銅とニッケルのサーモパイルから構成されており、測定対象物に貼付けて使います。センサーは厚さが0.2mmと薄いので、柔軟性に富んでおり、直径1インチの円筒形に湾曲させる事が出来ますので、パイプなどに貼り付けてお使いになるには最適です。

使用例

- 電気・電子機器内の発熱・放熱状態測定
- 熱交換器の効率測定
- パイプの放熱状況測定

熱流束センサー 校正サービス

熱流束センサーの校正作業をお引き受けいたします。校正証明書は米国基準局NISTにトレーサブルです。校正設備の物理的な制約で、お引き受けできない場合もあります。ご相談ください。

センサテクノ株式会社

〒106-0031 東京都港区西麻布3-24-17 霞ビル4F
TEL: 03-5785-2424 FAX: 03-5785-2323

URL

www.senstech.jp

E-mail

senstech@td6.so-net.ne.jp

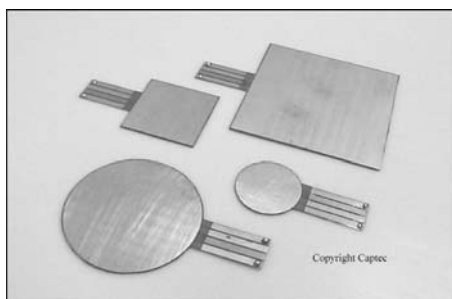
テクノオフィスは、独自の高度技術を持つ海外メーカーの

熱流計／熱流束センサーをご紹介します。

CAPTEC 社 (フランス)

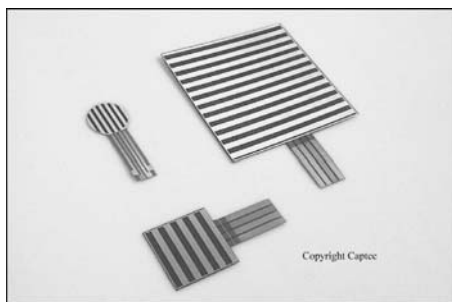
CAPTEC 社は、独自の高度技術により、低熱抵抗で高感度な熱流束センサーを開発・製造致しております。環境温度が変化しても感度は常に一定で、熱流束値に比例した電圧を高精度に出力します。輻射センサーは、輻射熱のみを計測する画期的なセンサーです。特注形状も承っております。

熱流束センサー



サイズ: 5×5~300×300 [mm] (厚み: 0.4 [mm])
 熱抵抗値: 0.00015 [°C/(W/m²)]
 熱伝導率: 2.7 [W/mK]
 温度範囲: -200~200 [°C]
 応答速度: 約 200 [ms]
 柔軟性: フレキシブルー直径 30 [mm] に彎曲
 リジッドー平面用
 オプション: 温度計測用 T 型熱電対内蔵
 特注品: 最高温度 350 [°C]または 380 [°C], 防水加工

輻射センサー



サイズ: 5×5~50×50 [mm]
 厚み: 0.25 [mm]
 温度範囲: -200~250 [°C]
 応答速度: 約 50 [ms]
 柔軟性: 直径 30 [mm] に彎曲
 オプション: 温度計測用 T 型熱電対内蔵
 特注品: 最高温度 350 [°C]または 380 [°C]
 波長領域: 広帯域(可視+赤外)／標準(赤外)

【アプリケーション】

◇伝熱一般 ◇温熱環境 ◇サーマルマネキン ◇食品／調理ー焼成オーブン ◇コンクリート・地中埋設

○当社では、CAPTEC 製品に最適なデータロガーも取扱っております。お気軽にお問い合わせ下さい。

有限会社 テクノオフィス (CAPTEC 社日本総代理店)

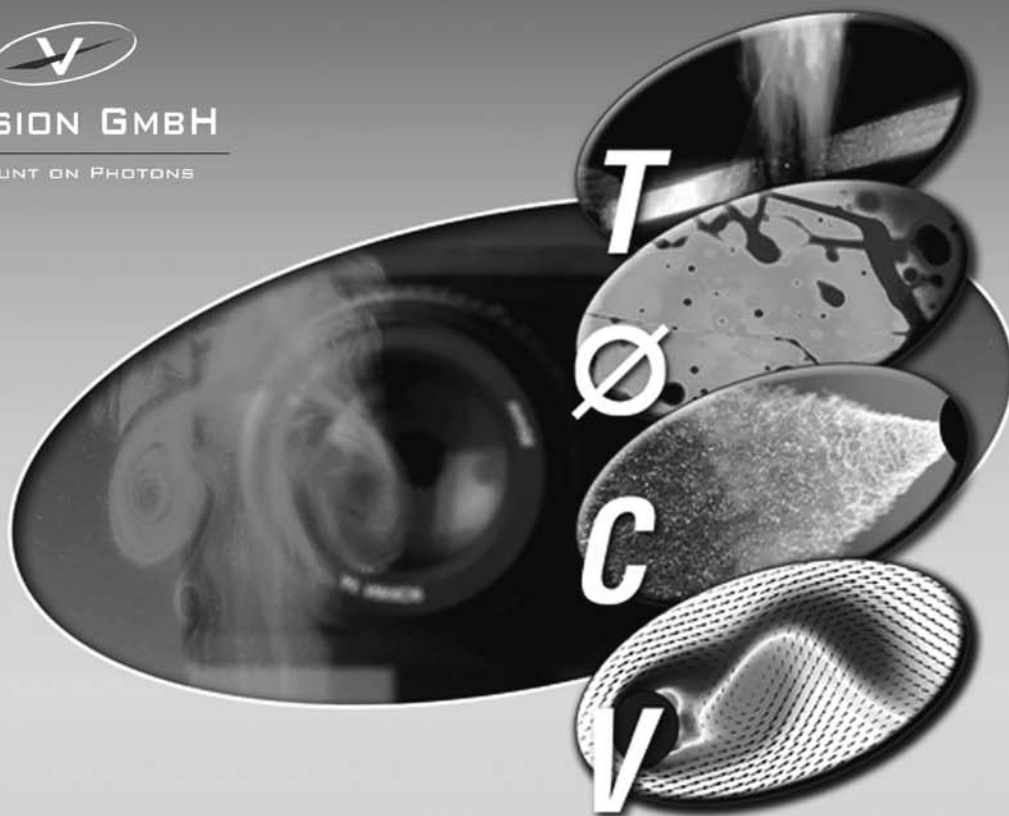
URL: <http://www.techno-office.com/>

本社: 〒225-0011 神奈川県横浜市青葉区あざみ野 3-20-8-B

TEL. 045 (901) 9861 FAX. 045 (901) 9522

LaVision社レーザーイメージング製品の 日本総代理店になりました

PIV、LIF、Raman、Rayleigh、LII、等の技術を組み合わせた複合計測システムを構築し、種々のアプリケーションでのソリューションを提供します。



Laser Imaging Solution

アプリケーション	Laser Imaging Techniques						計測システム
	Mie	LIF	PIV	Raman	Rayleigh	LII	
流れ 流体力学	流れ構造 パターンション	流れの可視化 ミキシング	流れ場	組成 温度	気体濃度 気体温度		FlowMaster FluidMaster
噴霧	液滴 パターンション	液体(燃料)質量 液体/蒸気	流れ場	液体/蒸気 温度			SprayMaster SizingMaster
	プレーナー液滴サイズ計測		質量流束				
燃焼 エンジン	粒子 液滴	ラジカル、燃料 化学プロセス	流れ場	ガス組成 温度	気体濃度 気体温度	すす	FlameMaster EngineMaster
プラズマ	粒子 生成	種 反応画像	流れ場				PlasmaMaster
材料試験 表面変形	高度画像相関						StrainMaster
	2次元&3次元の変形、歪み場、応力						
上記全ての アプリケーション	(超)高速イメージング						High-Speed Master System
	過渡現象、時-空間相関の時系列過程						

本広告の製品仕様は改善のため予告無く変更する場合があります



KANOMAX

日本カノマックス株式会社
流体計測ディビジョン

お問い合わせは、カスタマーサービス窓口へ

Email fluids@kanomax.co.jp

TEL. (03)6825-9090 FAX. (03)5371-7680

URL <http://www.kanomax.co.jp/fgroup.html>

編集出版部会ノート *Note from the Editorial Board*

私が編集出版部会長を担当してから1年が過ぎました。来年7月号までの出版が私の担当となりますので、今後ともどうぞよろしくお願いいたします。編集出版部会ではこれまで数度の会議を開催し、残り1年分の記事計画を既に立案いたしました。特集内容やプロジェクトQなど、皆様に喜んでいただければ幸いです。

本会誌は予算の許す範囲内で、カラーページを多く取り入れております。会員の皆様におかれましては、研究の随想や苦労話、あるいは研究成果の主要部分をまとめた物など、論文集では書けないような記事を「特別寄稿」としてご執筆頂き、ご自身の記録としてもご利用頂ければ誠に幸いです。特に、定年退職前後の会員にはこうした記事をご執筆頂ければ、会員も大喜びです。ご自身による投稿は勿論、身近に該当する方がおられましたら、小職宛、ご連絡頂ければ誠にありがたく思います。会員間の気軽な意見交換の場として、Heart Transfer といった欄も用意しておりますので、お気軽に種々のご意見や記事投稿を頂ければ幸いです。

では、今後ともよろしくお願いいたします。

近久武美 (北海道大学)
Takemi Chikahisa (Hokkaido University)
e-mail: takemi@eng.hokudai.ac.jp

副会長 瀧本 昭 (金沢大)	部会長 近久武美 (北海道大学)
委員	
(理事) 姫野修廣 (信州大学)	橋本律男 (広島大学)
千田 衛 (同志社大)	藤岡恵子 ((株) ファンクショナル・フルイット)
(評議員) 大黒崇弘 (日立国際電気)	角口勝彦 (産業総合研究所)
鹿園直毅 (東京大学)	中別府 修 (明治大学)
吉田篤正 (大阪府立大学)	長谷川達也 (名古屋大学)
花村克悟 (東工大)	一法師茂俊 (三菱電機)
福谷和久 (神戸製鋼)	久角喜徳 (大阪ガス)

TSE チーフエディター 門出政則 (佐賀大学)
編集幹事 岩本 薫 (東京農工大学) 石田賢治 (佐賀大学)

編集出版事務局：
北海道大学大学院工学研究科エネルギー環境システム専攻 近久武美
〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目
Tel: 011-706-6785 Fax: 011-706-7889, takemi@eng.hokudai.ac.jp