学術論文

カーボンナノチューブバルーン浮揚体の創製及び放射伝熱シミュレーション

Fabrication and Radioactive Heating Simulation of the flying Balloon
Based on Carbon Nanotube Freestanding Films高橋 一希^{*1}(学生員), 小林 大起^{*1}, 三井 拓樹^{*1}, 谷口 淳^{*1}, 加藤 悟^{*2}, 藤井 俊治郎^{*3}, 生野 孝^{*1}

Kazuki Takahashi (Stu. Mem.), Daiki Kobayashi, Hiroki Mitsui, Satoru Kato, Syunjiro Fujii, Takashi Ikuno

A light-driven flying balloon has been fabricated using multi-walled carbon nanotube (MWNT) composite films, of which thickness and density are approximately 6 μm and 0.5 mg/cm^2 , respectively. The shape of balloon is a regular tetrahedron with approximately 11 cm length on a side. By irradiating light using a tungsten lamp to the balloon, the balloon can be levitated like a hot-air balloon because the temperature of MWNT film is rapidly increased and the temperature of air inside the balloon is gradually increased. We confirmed that the maximum levitation height is approximately 14 cm during light irradiation. The balloon developed in this study could be utilized for a flying platform of autonomous flying monitoring system.

Keywords: UAVs, Carbon nanotubes, Cellulose nanofiber, Balloon.

(2018 年 10 月 20 日受付, 2019 年 3 月 13 日再受付, 2019 年 3 月 19 日再々受付)

1 緒言

現在, ドローンなどの無人航空機 (Uninhabited aerial vehicles: UAVs) は, 災害の状況や船の積み荷をモニタリングするため屋外空間で用いられている[1]。一方, 近年は, 様々な機関が小型で人に優しいドローンの研究を行っている。このドローンは, 屋内の防犯だけでなく植物工場での作物の成長をモニタリングや, 老朽化したインフラの管理のために, 屋内などの閉じられた空間や, 人に近い空間で用いることができる[2]。

上記の応用に向けて, 少なくとも 2 点の要求仕様が考えられる。第一に, UAV は閉じた空間において, モノや人間との衝突を避け, 万が一の衝突時の損害を最小とするため, 小型かつ軽量でなければならない。第二に, 人間にとって快適な空間を実現するため, UAV から発生する騒音や風は, 最小限でなければならない。

従来のドローンは, 固定翼型, 回転翼型, 羽ばたき翼型に分類される[1]。固定翼型ドローンは, 高度数十キロの領域を飛行するため, 屋内利用には適さない。回転翼型ドローンは, 小型化が進められているが, 原理的に騒音と風の発生が発生する。羽ばたき翼型ドローン[3, 4]は, 騒音や風の問題に加えて, 動作時間が短いという問題がある。

連絡先: 生野 孝, 〒125-8585 葛飾区新宿 6-3-1, 東京理科大学基礎工学部電子応用工学科,
e-mail: tikuno@rs.tus.ac.jp

^{*1} 東京理科大学 ^{*2} 名古屋大学 ^{*3} 兵庫県立大学

Fig. 1 (a) Schematic illustration of levitation mechanism of the proposed carbon nanotube flying balloon. (b) Calculated levitable threshold temperatures of the air inside the balloon as functions of the film densities and geometrical factors of various shaped balloons: sphere, cube, and regular tetrahedron.

そこで我々は, 従来のドローンに代わる上記要求仕様を満たす新規屋内用ドローンを提案する。このドローンは, 従来型ドローンとは異なる"バルーン"型形状をもつ。このバルーンは, 多層カーボンナノチューブ (Multi walled carbon nanotubes: MWNTs) から成る自立膜によって構成されており, 中空構造を有する。Fig. 1 (a) は, 本研究で提案するバルーンの浮揚メカニズム

を示している。バルーンは光照射されたとき、表面温度が急峻に上昇する。これは、MWNT が高い電磁波吸収率[5]と熱伝導率を有するためである。そして、高温の MWNT 自立膜は徐々にバルーンの内部空気を加熱する。この加熱メカニズムについては、第 5 章で詳細に述べる。内部空気が加熱された結果、バルーン内外に密度差が生じ、バルーンは風も音もなく浮揚する。ここで、浮揚が開始するしきい値温度を浮揚しきい値温度と呼ぶ。Fig. 1 (b) に、MWNT 自立膜の膜密度と様々なバルーン形状の幾何学的パラメータに対する浮揚しきい値温度の関係を示す。バルーンの浮揚の可否は、内部空気の質量とバルーン材料の質量のバランスで決定される。これは、アルキメデスの原理に基づいている。したがって、バルーンが浮揚する温度、浮揚しきい値温度 T は、次式によって与えられる。

$$T = \frac{T_0}{1 - \frac{\sigma S}{\rho V}} \quad (1)$$

ここで、 T_0 は室温、 σ [g/cm^2] は膜密度、 ρ [g/cm^3] は室温 T_0 における空気密度、そして S [m^2] は表面積、 V [m^3] はバルーンの体積である。たとえば、膜密度 $0.6 \text{ mg}/\text{cm}^2$ の超軽量の膜で構成され、半径が 8 cm の球体型バルーンは、内部温度がおよそ 100°C で浮揚可能である。

Fig. 2 (a) Scanning electron microscope images at the patched region of the MWNT film. (b) Fabrication

process of regular-tetrahedron-shaped MWNT balloon. Blue thick line indicates patched area.

以上のことから、低温で浮揚するためには次のような条件が必要である：(1) バルーンが軽量の膜(ρ が低い)で構成され、(2) S/V 比(比表面積)が小さい幾何学形状のバルーンが採用される、である。また、加熱された内部空気を外部へ逃がさない膜を採用する必要もある。加えて、バルーンが伸張した際に膜が壊れないように、高い機械強度性も有する必要もある。

2 MWNT 自立膜と MWNT バルーンの作製方法

我々は、バルーンの構成材料である MWNT 自立膜を以下に示す方法で作製した。初めに、平坦なガラス基板をエタノールとアセトンで洗浄した。次に、約 $6 \mu\text{m}$ の膜厚の MWNT 膜をスプレー法によってガラス基板上に堆積させた[6]。塗布は大気中で行い、ガラス基板は、ホットプレートを用いて 150°C に加熱した。塗布に用いた溶液は、MWNT ink (MW-I (2 wt%), 名城ナノカーボン製) とセルロースナノファイバー (CeNF) 水溶液 (1 wt%, 中越パルプ工業製) の混合溶液である。混合溶液中の MWNT と CeNF の質量比は、83:17 である。また、溶液に含まれる MWNT の典型的な直径は約 $10\text{--}40 \text{ nm}$ 、長さは約 $2 \mu\text{m}$ である。続けて、MWNT 膜をガラス基板上から剥離することで、MWNT 自立膜を得た。得られた MWNT 自立膜は、辺の長さが約 10 cm の正方形であり、膜厚は約 $6 \mu\text{m}$ 、膜密度は $0.5 \text{ mg}/\text{cm}^2$ であった。最後に、混合溶液に含まれている界面活性剤を除去するために、得られた MWNT 自立膜を大気中で 30 分間 350°C に加熱した。

バルーンを作製するために、MWNT 自立膜を張り合わせて、 $11.5 \text{ cm} \times 22 \text{ cm}$ の大面積 MWNT 自立膜を得た。この際、有機接着剤や接着テープの代わりに純水を使用し、2 枚の MWNT 自立膜の縁を 5 mm 程度重ね合わせた領域に、純水を付着させることで張り合わせた。その後、湿潤な部分を自然乾燥させ、MWNT 自立膜同士を強固に接合した。接合箇所を走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, SEM: 日立ハイテクノロジーズ S-3000H) を用いて観察すると、Fig. 2 (a) に示したように、2 枚の MWNT 自立膜から、MWNT が相互に貫入している様子が確認された。これは、純水に浸漬された MWNT が、一時的に自由度が上昇して、相互に絡まり合うためである。その状態で、乾燥することで、2 枚の MWNT 自立膜の MWNT が相互貫

入した状態で組織構造が再構築されたと考えている。

我々は、この大面積 MWNT 自立膜を用いて正四面体形のバルーンを作製した。作製は次の方法で行った：まず、Fig. 2 (b) に示すように、MWNT 自立膜の対となる 2 辺を接合し、円筒状にした。次に、四面体の辺を作製するために、円筒の両端の円周を閉じて接合した。このようにして作製し、得られた正四面体の一边は約 11 cm であった。

3 MWNT 自立膜の各種物性評価

作製後、MWNT 自立膜の表面形状、機械特性、ガス透過性、光吸収性を、SEM、機械強度計、自作のガス透過率測定装置、UV-vis-IR（島津製作所 SolidSpec-3700）をそれぞれ用いて評価した。また、MWNT バルーンは、大面積の MWNT 自立膜によって構成されており、MWNT 自立膜は、接合により大面積化されている。そこで、我々は、接合による機械強度性とガス透過性への影響を調査した。さらに、光照射による温度上昇を、光源のタングステンランプと温度測定用のサーモグラフィを用いて測定した。タングステンランプの光は、広い波長範囲の光を含んでおり、広範囲を均一に照射可能なため、光源として採用した。

バルーンは浮揚のために、次のような条件が要求される：(1) 十分な機械強度と (2) 適度なガス透過性を有していること。(1) について、バルーンの内部空気の温度が上昇する時、内部空気の膨張により、バルーンに機械的な負荷がかかるため、MWNT 自立膜が十分な機械強度を有していることは重要である。もしも、MWNT 自立膜の機械強度が低かった場合、破壊を防ぐためには、(2) のように、MWNT 自立膜には適度なガス透過性が必要である。また、ガス透過性が極度に低い場合、気密性が高くなり、内部空気の膨張によって、バルーンは自己破壊してしまう。したがって、適切なガス透過性を有する MWNT 自立膜を用いることが必要である。

まず、MWNT 自立膜の機械強度を測定した。Fig. 3 (a) に、接合あり・なしの場合の MWNT 自立膜の機械強度測定結果を示す。この測定は、室温下で行った。また、接合ありの試料は、接合に対して垂直方向に引き伸ばした。測定に使用した MWNT 自立膜の大きさは、長さが約 5 mm であり、横幅が約 15 mm、膜厚が約 6 μm である。接合のない MWNT 自立膜の機械強度は約 32 MPa であり、接合ありの MWNT 自立膜では約

12 MPa に低下した。一方で、ヤング率は、約 400 MPa で接合の有無により大きな変化は見られなかった。

Fig. 3 (a) Mechanical strength and (b) gas permeability of the MWNT films.

次に、MWNT 自立膜のガス透過係数を測定した。測定装置の概略図を Fig. 3(b)挿入図に示す。シリンジに MWNT 自立膜を接着剤で固定し、そこに窒素ガス (99.999%) を流すことで、流量と圧力の関係を記録した。Fig. 3 (b) に、ガス透過性の測定結果を示した。ガス透過係数 K はグラフの傾きから求めることが可能である。これは、ガス透過係数 K が以下の式で表されるためである。

$$K = \frac{Q \cdot L}{\Delta P \cdot S} \quad (2)$$

上式において、 Q [m^3/s] は流量、 L [m] は膜厚、 ΔP [Pa] は差圧、そして S [m^2] はガス透過部の面積である。(2) 式より、 Q と ΔP は線形の関係であり、Fig. 3 (b) の測定結果においても Q と ΔP は、線形の関係を示した。そして、接合の有無に関わらず、Fig. 3 (b) の直線は同様の傾きを示し、ガス透過係数はどちらも約 $9 \times 10^{-12} \text{ m}^4/\text{N} \cdot \text{s}$ であった。

Fig. 4 (a) Calculated light emission spectrum from a tungsten lump of which temperature is 2170 K. (b) Light absorption spectrum of the MWNT free standing film. (c) Time evolution of the surface temperature of the MWNT film.

次に、MWNT 自立膜の光照射による表面温度の時間変化を測定した。得られた MWNT 自立膜に、タングステンランプ一基を用いて光を照射し、温度の変化をサーモグラフィ (AS ONE, TIM-03) で測定した。この測定を行った際、室温は 25°C であった。Fig. 4 (a) は、本研究で使用したタングステンランプの放射スペクトルの計算結果を示している。このスペクトルは、タングステンランプ内のタングステンフィラメントの温度 (実測値) を、プランクの式に代入することで得られたものであり、主波長は 1.3 μm であった。

Fig. 4 (b) は、MWNT 自立膜の光吸収スペクトルを示している。紫外から赤外の波長帯において、吸収は約 100% である。次に、Fig. 4 (c) は、MWNT 自立膜の表面温度の時間的変化を示している。グラフの縦軸は、室温からの温度上昇、横軸は時間を示している。光照射による表面の温度上昇は、約 2 秒で定常状態に到達した。また、次式の指数関数を用いて昇温の時定数 τ を算出した。

$$\Delta T = A \left[1 - \exp \left(-\frac{t}{\tau} \right) \right] \quad (3)$$

その結果、MWNT 自立膜の表面温度の昇温時定数は、約 0.4 s であると分かった。このように、MWNT 自立

膜の温度は、タングステンランプによって瞬時に加熱される。これは Fig. 4 (b) に示したように、MWNT 自体の光吸収率が高く、MWNT 自立膜の熱伝導率が高いためである。

4 MWNT バルーンの浮揚特性評価

バルーンと電子天秤 (島津, LIBROR AEU-210) をつなげ、500 W のタングステンランプ一基を光源として使用し、浮力を測定した。浮揚実験では、500 W のタングステンランプを二基使用して光照射を行った。

光源-バルーン間の距離に対する浮力の測定結果を Fig. 5 に示す。光源-バルーン間の距離が 15 cm である時、浮力は 0.9 mN を示した。一般的に電磁波の強度は、測定点と電磁波源の間の距離の二乗に反比例する。電磁波により加熱され、加熱によって生じたバルーンの内外密度差でバルーンは浮力を得る。よってその浮力は、測定点と電磁波源の距離の二乗に反比例する。

Fig. 5 Buoyancy of the balloon as a function of the distance from the light source.

Fig. 6 Time evolution of the levitation height when the two tungsten lumps were used for light irradiation.

Fig. 6 に、照射開始以降の経過時間に対する浮揚高度を示す。照射開始後、約 2 秒間は 1.5 cm/s で浮揚した。その後、約 3.5 秒間は 6.6 cm/s で高度を上げ、最高高度に達した。約 3 秒間高度を保ったが、その後、高度を下げた。高度が飽和した理由は、光源-バルーン間の距離が長くなり、光照射強度が低下し、浮揚に必要な浮力が得られなくなったためである。そして、バルーン内部の空気の温度が低下し、高度が下がったと考えられる。落下時に光源-バルーン間の距離が短くなり、再び照射強度は増加するが、落下速度よりも空間加熱速度のほうが遅いため落下したと考えられる。作製した正四面体形のバルーンが本実験のように、Fig. 1(b)に示した浮遊しきい値温度よりも低温で浮揚した理由の一つは、加熱時にバルーンが膨張し、球に近い形状になったからだと考えられる。つまり、球状に近い形状になったことにより浮揚しきい値温度が下がったと考えられる。しかし、詳細は不明である。

浮揚高度と高度の維持時間の改善には、上昇時と下降時において、バルーン内部の温度を長時間保持することが必要である。そして、バルーンを構成する MWNT 自立膜を改良することで気密性・断熱性・電磁波吸収特性を改善する必要がある。

5 放射伝熱シミュレーション

前述のように、バルーンの浮揚は実験的に実証された。しかし、加熱のメカニズムの詳細は分かっていない。また、バルーン内部の空間温度の実測は困難であるため、内部空気の昇温メカニズムを実験的に解明することは難しい。そこで、COMSOL Multiphysics を用い、有限要素法によりバルーンの放射伝熱シミュレーションを行った。

放射伝熱シミュレーションでは、室温 27°C の大気空間内で、バルーンに二基のタングステンランプで 30 秒間光照射し、加熱時と冷却時の温度変化を記録した。大気空間は、Fig. 7 (a), (b) に示す一辺の長さが 100 cm の立方体で、バルーンとタングステンランプの相対位置は、第 4 章に示した浮揚実験を元に Fig. 7 (a) のように設定した。Table 1 にシミュレーションに使用した幾何学情報を、Table 2 に材料のプロパティを示した。

Fig. 7(c)は、バルーンの頂点からの垂直断面における温度の時間経過を示している。また、Fig. 7 (d) は、バルーンの頂点からの垂線 QP における温度分布を示しており、縦軸を温度、横軸を高さとした。シミュレーション結果より、バルーン表面が 1 秒以下で約 180°C

に加熱され、10 秒以下で内部空気の温度が約 220°C に昇温されることが分かった。また、Fig. 7 (c) に示した温度分布の時間変化の画像と (d) に示した各高度における温度の時間変化のグラフから、バルーン表面、バルーン内部の順番に昇温することが分かる。

次に、Fig. 8 に冷却シミュレーション結果を示す。これは、Fig. 7 に示した 30 秒間の加熱の後に、バルーンを室温 27°C の大気中に放置したシミュレーション結果である。

Table 1 Geometries of radiative heating simulation.

Object	Scale
Air (Cube)	One side 100 (cm)
The MWNT balloon (RTE)	One side 11 (cm)
Light sources (Sphere)	Radius 8 (cm)

Table 2 Properties of radiative heating simulation.

Property	Value
Thermal conductivity	6600 (W/m·K)
Heat capacity	8.5 (J/mol·K)
Density	720 (mg/cm ³)

Fig. 7 (a), (b) The image of simulated work environment. (c), (d) Internal temperature distribution of the balloon.

Fig. 8 (a), (b) Internal temperature distribution of the balloon

シミュレーション結果より、バルーン表面が1秒以下で、約170°Cに冷却され、30秒でバルーン表面・内部の温度が約30°Cになった。Fig. 8 (a) に示した、温度分布の時間変化の画像と Fig. 8 (b) に示した各高度における温度の時間変化のグラフから、バルーン表面、バルーン内部の順番に降温することが分かる。

以上のシミュレーション結果から、バルーンの加熱メカニズムを次のように見出した。まず、光源からの放射伝熱により、急峻にバルーン表面が加熱される。次に、表面からの伝導伝熱で、バルーン内部の空間温度が昇温される。

この加熱メカニズムと冷却のシミュレーション結果から、バルーンの表面とバルーン内部・外部の熱伝導は、伝導伝熱が支配的であると考えられる。よって、バルーン内部の温度を保持するためには、前述のようにバルーンの構成材料の断熱性向上が有効であると考えられる。

6 結言

本研究では、光で駆動するバルーンを MWNT と CeNF の複合自立膜を用いて実現した。MWNT 自立膜は、厚さが約6 μm 、膜密度が約0.5 mg/cm^2 である。バルーンの形状は正四面体であり、一辺の長さは約11 cm である。タングステンランプを用いたバルーンへの光照射により、バルーンは熱気球のように浮揚し、連続光照射時の最大浮揚高度が約14 cm であることを確認した。

また、有限要素法による放射伝熱シミュレーションを行ったところ、放射伝熱によって MWNT 自立膜の温度が1秒以内に急激に上昇し、その後伝導伝熱でバ

ルーン内部の空気が昇温されることを明らかにすることができた。本研究では開発した光駆動バルーンは、自律浮揚監視システムの浮揚プラットフォームとして利用できる可能性がある。

謝辞

本研究は、科研費基盤(C)(18K04892)の一部として実施された。

参考文献

- [1] A. C. Watts, V. G. Ambrosia, and E. A. Hinkley, Unmanned Aircraft Systems in Remote Sensing and Scientific Research: Classification and Considerations of Use. *Remote Sens.*, pp. 1671-1692, 2012.
- [2] D. Floreano and R. J. Wood, Science, technology and the future of small autonomous drones, *Nature*, pp. 460-466, 2015.
- [3] K. Y. Ma, P. Chirarattananon, S. B. Fuller, and R. J. Wood, Controlled flight of a biologically-inspired, insect-scale robot, *Science*, pp. 603-607, 2013.
- [4] M. A. Graule, P. Chirarattananon, S. B. Fuller, N. T. Jaeger, K. Y. Ma, M. Spenko, R. Kornbluh, and R. J. Wood, Perching and takeoff of a robotic insect on overhangs using switchable electrostatic adhesion, *Science*, pp. 978-982, 2016.
- [5] Y. Yang and M. C. Gupta, Novel Carbon Nanotube - Polystyrene Foam Composites for Electromagnetic Interference Shielding, *Nano Lett.*, pp. 2131-2134, 2005.
- [6] T. Ikuno, T. Fukano, K. Higuchi, and Y. Takeda, Bimorph micro heat engines based on carbon nanotube freestanding films, *Appl. Phys. Exp.*, p. 115101, 2015.