

令和 2 年 6 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06182

研究課題名(和文) 新しい熱媒体材料を志向したナノ固液界面複合系における熱輸送特性の解明と制御

研究課題名(英文) Elucidation and control of thermal transport characteristics of nanoscale solid-liquid interface complex toward the creation of novel thermal materials

研究代表者

小原 拓 (Ohara, Taku)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：40211833

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：厚さ0.3～10nmの固体層・液体層が重畳した系など、固液界面のみから成るマクロ媒体を構成して、固液界面において生じる特異な(バルク液体・固体とは異なる)熱輸送特性を積極的に利用した新しい熱媒体を創成するための学理を確立する基礎研究として、大規模な分子動力学シミュレーションにより、固液界面や固体壁面に挟まれた液膜の熱輸送特性を解析した。液膜厚さ、固体表面の結晶スケール構造、固体表面近傍に吸着した液体分子の密度など様々な要因により熱輸送特性が大きく変化し、これらをパラメータとして現象を制御する可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体表面間の空隙を埋めて熱的接触を向上させるTIM(熱界面材料)や蓄熱材料など、熱輸送特性を制御できる熱媒体には大きな可能性がある。本研究は、近年急速に注目が集まりつつある固液界面の熱輸送特性を利用して、このような熱媒体を構成しようとするもので、固体層・液体層の重畳によりバルク液体・固体とは異なる特性をもつマクロスケールの媒体を創成しようという新しいアイデアに拠っている。固液界面の特性や支配因子は明らかになっていないことが多いが、本研究はその制御を目指したものである。

研究成果の概要(英文)：This is a fundamental study on establishing novel thermal media utilizing special (i.e., different from bulk liquids and solids) heat transfer characteristics over solid-liquid interfaces, which can be realized by using macro scale media made of solid-liquid interfaces exclusively such as multiple solid and liquid layers having thicknesses of 0.3 - 10 nm. Large-scale molecular dynamics simulations have been performed to analyze heat transfer characteristics of solid-liquid interfaces and thin liquid films sandwiched by two solid walls. It was found that the heat transfer characteristics change much influenced by some factors which include liquid film thickness, lattice-scale structure of solid surfaces, and adsorption density of liquid molecules on the solid surfaces, which leads to a new control technology of the heat transfer media by utilizing these factors as control parameters.

研究分野：熱工学

キーワード：固液界面 熱輸送 界面熱抵抗 分子動力学 固液複合系ナノ材料

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

固液界面では、固体-固体界面とは異なり表面の凹凸による接触実面積の減少がないにもかかわらず、界面熱抵抗が存在することは以前から知られている[1]。近年、分子動力学 (MD) シミュレーションにより固液界面熱抵抗の再現が可能となり[2,3]、これまでに様々な物質の固液界面熱抵抗が MD シミュレーションにより報告され、固・液分子の親和性と熱抵抗値との相関などが議論されている。本応募者は、熱抵抗値を決定する固液間の熱エネルギー伝搬の分子動力学機構に関して、熱エネルギーの伝搬モード (並進/回転、運動方向など、どの運動自由度が熱エネルギーを伝搬しているか) [4,5]や界面近傍の液体中に形成される層状の構造 (吸着層) が熱エネルギー伝搬に与える影響[6]などを明らかにした。これらの結果、固液界面熱伝搬について、以下のような特性が明らかとなっている。

- (1) 液体・固体の組み合わせに応じて、固液間の熱エネルギー伝搬モードに強い選択性が存在する。分子の並進運動エネルギーだけが通過できる界面や、界面垂直あるいは平行方向の分子運動自由度のうち特定のものだけが熱エネルギーを伝搬する界面が存在し、各伝搬モードが一定の割合で熱伝導を構成するバルク液体とは大きく異なる分子動力学機構が存在する。
- (2) 上記の現象や、その結果として観測される固液界面熱抵抗は、固体表面のナノスケールの構造や固体・液体分子の親和性により大きく変化する。

これら固液界面にかかわる特性は、マクロ液体の特性とは大きく異なることや界面の性状により大きく変化することなど、物理現象としては非常に興味深いものであるが、バルク液体がバルク固体に接してその間に単一の界面が存在する系では、系全体の総括的な熱輸送特性に大きな影響をもつものではない。バルク液体の特性が卓越して、界面の特異な特性が隠れてしまうからである。この点を踏まえて、界面熱輸送特性の解明とこれを利用するための方策が求められていた。

2. 研究の目的

半導体集積回路など発熱素子、熱電素子、各種センサーなどのパッケージングにおける加熱・冷却の熱経路や、触感に直結する表面など、熱輸送特性を自在に設定できる材料 (熱媒体) が求められている。固液界面の熱輸送特性を十分に用いたナノ材料によってこれを実現するための基礎を確立するのが本研究の目的である。

厚さ 10 nm スケールの固体層と液体層が多数重なった構造は、バルク固体・液体の熱物性を示す部分をもたず、固液界面の特性をもつバルク体とも言えるものであり、以下のような界面輸送特性の特長を固体・液体のバルク特性に埋没させることなく、広い範囲で熱物性を調整可能な新しい熱媒体・ナノ材料となり得る。

- (1) 液体・固体の分子種や界面の構造、固体表面の分子修飾などにより、様々な熱・物質輸送特性を実現できる。
- (2) 液体の置換や界面活性剤の添加により、使用時に柔軟かつ容易に特性を変化させることができる。
- (3) 熱伝導の異方性などバルク液体には見られない特性を発現させることができる。

これらの特性を解明し、新しいナノ材料・熱媒体の設計を目指した基礎を確立するのが本研究の目的である。単位ユニットである固体-極薄液体-固体について分子動力学計算系を構築し、熱輸送特性の解析を行った。

3. 研究の方法

図 1 に示すような計算系を作製し、分子動力学シミュレーションを行った。2 つの固体壁に液体が挟まれた系で、熱浴を設置して高温側・低温側でそれぞれ一定の温度に保つことにより、温度勾配下の熱伝導状態を再現する。固体壁は白金を模擬した FCC 構造で、原子間ポテンシャルは Morse ポテンシャルにより与える。液体と接する固体壁表面は(110)面で、表面原子の並びが左右壁で対象となり、表面上の格子スケールの溝が平行になっている組み合わせ (PSA) と、片方の固体壁を z 軸周りに 90° 回転させて、表面上の格子スケールの溝が直交する組み合わせ (CSA) とを作製した。

液体分子は Ar を模擬した Lennard-Jones ポテンシャルによるものである。固体壁の一方を可動として一定の圧力を印加する

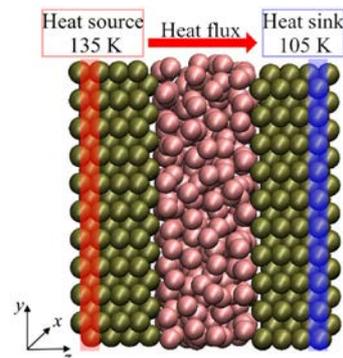


図 1 分子動力学計算系[7]。Elsevier から許可を得て転載

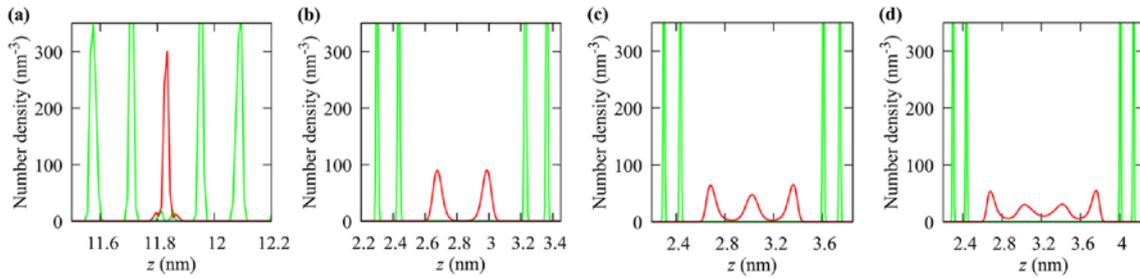


図2 固体壁（緑）間の液体分子（赤）の数密度分布の例[7]。Elsevier から許可を得て転載

方法により、液膜の z 方向圧力を一定に保ちつつ、固体壁間の液体分子を増減させた。液体分子は図2のように層構造を形成する。層の数は液体分子数に応じて増加する。単位 xy 平面における液体分子の面密度と液体分子層の数および固体壁間の距離を図3に示す。

4. 研究成果

2つの固体壁面間で熱抵抗を計測し、それを固液界面熱抵抗と液膜の熱抵抗に分解した。固液界面の熱抵抗を図4に、液膜の熱抵抗を図5に、それぞれ示す。固液界面の熱抵抗は液膜分子層が1層のみの場合には極端に小さくなるが、2層以上の場合では層数にかかわらず同程度であり、液体分子の面密度の増加と共にやや減少する。液膜部分の熱抵抗については、膜厚と共にリニアに増加しており、分子層2~3層の極薄液体膜においても、膜厚に比例して熱伝導率に反比例するマクロな熱抵抗が成り立っていることがわかる。

固体表面 (FCC 110 面)

の原子配列には、吸着した液体分子の運動が影響を受ける比較的大きな溝様の構造が存在する。固液界面の熱輸送においては、この固体表面の溝に直角な方向の分子運動が卓越することが報告されている[5]。固体壁が左右で対称になっており溝構造が平行に存在する場合 (PSA) と直角に存在する場合 (CSA) とで固体壁面間の熱抵抗を比較した結果を図6に示す。左右壁において同じ方向の運動自由度が界面熱輸送に寄与できる PSA の方が CSA より熱抵抗が小さくなっており、対向する固体壁表面構造の組み合わせが固液界面熱輸送の要因となることが示された。

文献

- [1] P. L. Kapitza, *J. Phys. (Moscow)*, 4 (1941), 181.
- [2] S. Maruyama and T. Kimura, *Thermal Sci. Eng.*, 7 (1999), 63.
- [3] T. Ohara and D. Suzuki, *Microscale Thermophys. Eng.*, 4 (2000), 189.
- [4] D. Torii and T. Ohara, *J. Chem. Phys.*, 126 (2007), 154706.
- [5] D. Torii, et al., *ASME J. Heat Transfer*, 132 (2010), 012402.
- [6] A. R. bin Saleman, et al., *Int. J. Heat Mass Transfer*, 105 (2017), 168.
- [7] X. Liu, et al., *Int. J. Heat Mass Transfer*, 147 (2020), 118949.

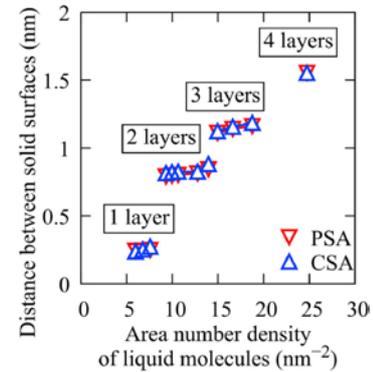


図3 液体分子層数と固体壁間距離[7]。Elsevier から許可を得て転載

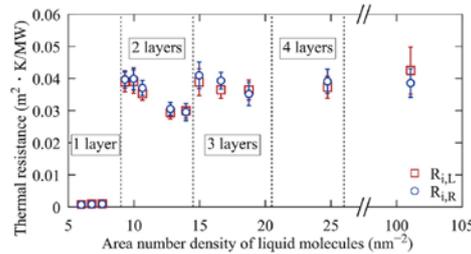


図4 PSA 配置における固液界面熱抵抗 [7]。Elsevier から許可を得て転載

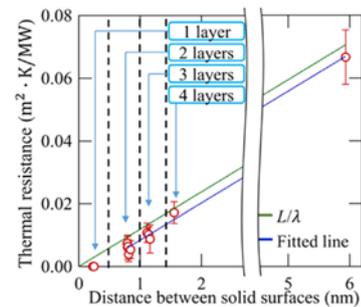


図5 極薄液膜の熱抵抗[7]。Elsevier から許可を得て転載

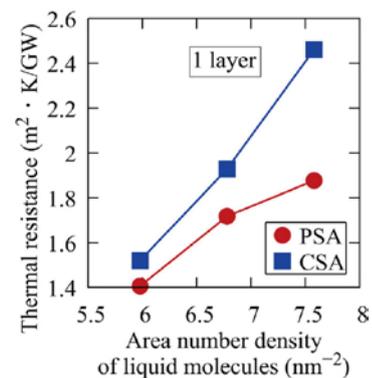


図6 固体壁面間の熱抵抗に及ぼす固体表面の原子配列の影響[7]。Elsevier から許可を得て転載

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Liu Xiao, Surblys Donatas, Kawagoe Yoshiaki, Bin Saleman Abdul Rafeq, Matsubara Hiroki, Kikugawa Gota, Ohara Taku	4. 巻 147
2. 論文標題 A molecular dynamics study of thermal boundary resistance over solid interfaces with an extremely thin liquid film	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 118949 ~ 118949
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118949	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Taku Ohara
2. 発表標題 Molecular-scale view of heat conduction in liquids, softmatters and their interfaces
3. 学会等名 Thermal Engineering Conference of KSME 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taku Ohara
2. 発表標題 Molecular thermal energy transfer in liquids, soft matters and their interfaces
3. 学会等名 Workshop on Thermal and Charge Transport across Flexible Nano-Interfaces（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taku Ohara
2. 発表標題 Thermal energy transfer in liquids, soft matters and over the interfaces: A molecular view
3. 学会等名 2nd Pacific Rim Thermal Engineering Conference（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taku Ohara, Hiroki Matsubara and Gota Kikugawa
2. 発表標題 Analysis of molecular energy transfer in liquids toward the design of thermal medium
3. 学会等名 Korea-Japan Joint Seminar on Heat Transfer VII (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小原拓, 菊川豪太, 松原裕樹
2. 発表標題 ポリマー液体・ソフトマター中の熱輸送と固体接合界面熱抵抗低減
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 劉瀟, Surbllys Donatas, 川越吉晃, Saleman Abdul Rafeq, 松原裕樹, 菊川豪太, 小原拓
2. 発表標題 固体表面間の極薄液膜における熱輸送に関する分子動力的解析
3. 学会等名 第32回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考