

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01385

研究課題名(和文) 固液気異相界面の界面抵抗と界面摩擦機構のマルチフィジックス

研究課題名(英文) Solid-liquid-vapor interfacial resistance related multiphysics of tribology

研究代表者

長山 暁子 (Nagayama, Gyoko)

九州工業大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：60370029

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：固体・液体・気体の異相間接触によって生じた界面抵抗は、系の代表寸法が小さくなるとその効果が相対的に増加し、従来のマクロ系の伝熱理論が成立しなくなる要因になる。本研究では、伝熱は伝熱面積、濡れは濡れ面積、電気化学反応は反応面積に支配されることに着目し、固液気の異相間界面抵抗と熱・濡れ・電気化学特性との相関関係を解明するとともに、スケール効果で顕著となる界面抵抗が摩擦界面の温度や粘性などに著しい影響を及ぼすため、摩擦機構における界面効果を明らかにすることを目的とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまでに界面熱抵抗の評価法は、主に固体表面間を対象としているため、実在の熱輸送系で幅広く応用される固液界面あるいは固液気界面には対象とされてこなかった。本研究で得た成果は、固液気の異相間界面抵抗の学術的解明に加えて、熱の根源的な理解から界面抵抗を評価でき、伝熱技術のみならず、摩擦機構への展開で幅広い分野における省エネルギー技術の進化に貢献できる。

研究成果の概要(英文)：Scale effect of the interfacial resistance at solid-liquid-vapor interface increases as increasing the characteristic length scale of the system, which might induce a significant deviation in microsystems from the classical heat transfer theory for macrosystem (G. Nagayama et al., Sci. Rep., 2017). In this study, the correlation between the interfacial resistance and the thermal/wetting/electrochemical properties at solid-liquid-vapor interface has been studied. The effects of interfacial resistances on thermal elastohydrodynamic lubrication were investigated to clarify the temperature rise and film thickness reduction of tribological surfaces under point contact.

研究分野：熱工学

キーワード：固液気界面 界面抵抗 界面摩擦機構 接触面積 濡れ

1. 研究開始当初の背景

- (1) 「ナノスケール熱動態の理解と制御技術による革新的材料・デバイス技術の開発」が H29 年度文科省戦略目標であり、熱の制御・利活用に向けた基礎的な原理の解明や基盤技術の確立が期待されていた。ナノスケール熱動態の重要課題として、高い熱輸送能力を持つマイクロ・ナノ熱流体デバイスの創出やナノトライボロジー向けの界面摩擦機構の解明が挙げられる。
- (2) 電子機器の冷却に向けた高い熱輸送能力を持つマイクロ・ナノデバイスの需要が高いが、その実現がなかなか思い通りに進まない状況にあった。それは、固体・液体・気体の異相間接触によって生じた界面抵抗が系の代表寸法が小さくなるとその効果が相対的に増加したため、マイクロ・ナノデバイスの熱輸送能力が減少することになっていた。界面熱抵抗の評価法は、主に固体表面間を対象としているため、実在の熱輸送系で幅広く応用される固液界面あるいは固液気界面には対象とされていなかった。
- (3) 摩擦低減技術は自動車分野をはじめ、あらゆる産業分野において重要な基盤となっている。ピストンや軸受など自動車部品で用いる油潤滑、オイルフリー機器で用いる水潤滑における界面抵抗の影響は摩擦低減技術の鍵であるにも関わらず、基礎的かつ理論的に検討するには至っていなかった。

2. 研究の目的

- (1) 固液気異相接触界面の界面抵抗評価法の確立：伝熱は伝熱面積（接触面積）、濡れは濡れ面積（接触面積）、電気化学反応は反応面積（接触面積）に支配されることに着目し、固液気の異相間界面抵抗と熱・濡れ・電気化学特性との相関関係を解明することより界面抵抗を評価する。
- (2) 流体潤滑理論への展開より界面摩擦機構の究明：摺動面の摩擦係数が潤滑液膜の厚みに関連するので、最適な液膜厚みを有する潤滑状態が界面摩擦を低減するのに最も理想的な状態である。摺動面の潤滑液膜の厚みがナノからマイクロオーダーであるため、界面抵抗が流体潤滑特性理論にも展開できる。最適な液膜厚みを正確に予測するため、界面抵抗のスケール効果を考慮することが望ましい。スケール効果で顕著となる界面抵抗が摩擦界面の温度や粘性などに著しい影響を及ぼすため、摩擦機構における界面効果を明らかにする。

3. 研究の方法

- (1) 固液気接触界面の濡れ性計測による真実接触面積の評価
文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」参画機関の設備を活用し、マイクロ微細加工技術でナノ構造面、マイクロ構造面およびナノ・マイクロ階層構造面を作製した。作製した基板表面における純水液滴の接触角をデジタルマイクロスコープより計測し、異なる表面構造によって液滴と基板表面との真実接触面積を濡れの理論モデルより評価した。
- (2) 電気化学インピーダンス計測による異相界面真実接触面積の評価
電気化学インピーダンスの値は固体電極表面と電解質液の接触面積に反比例し、低周波数と高周波数領域における周波数応答性が異なるため、濡れない面と濡れる面の間に流れる電流の周波数に差が生じる。固液・固気・気液間の接触面積割合の変化に伴う界面電気抵抗の変化量から、異相界面における真実接触面積および接触界面抵抗を評価した。

(3) 分子動力学シミュレーションによる異相界面熱輸送解析

分子動力学計算は九州大学情報基盤センターのスーパーコンピューティングシステムの高性能並列計算機を利用して行った。計算系は数千から数万個の液体分子と固体分子からなり、液体分子と固体分子間の分子間相互作用を表すポテンシャルパラメータを調整することにより異なる界面濡れ性を実現した。また、固体面のバルク相の温度を一定にすることによって、等温加熱・冷却の条件を実現し、非平衡分子動力学シミュレーションを行った。

(4) 界面抵抗を考慮した境界条件を用いた流体潤滑特性の解析

典型的な球とデスクとの点接触問題に熱弾性流体潤滑理論を展開して、界面抵抗を考慮した境界条件を用いて流体潤滑の基礎方程式を導出した。新たに導出した修正レイノルズ方程式をエネルギー方程式に連成して、流体潤滑膜内に発生する圧力分布、接触域の温度上昇および潤滑液膜厚さと界面抵抗の等価長さの相関から流体潤滑特性のスケール効果を調べた。

4. 研究成果

(1) 固液気接触界面における部分濡れモデルの構築¹

界面濡れ性の評価には液滴の接触角をよく用いられ、その代表的な表現法として、固・液・気の界面エネルギー(表面張力)のつりあいを表す Young の式, 粗い表面での Wenzel の式, 異なる材質の基板上的 Cassie-Baxter の式がある。本研究では, ナノ・マイクロ構造面における部分濡れ現象に着目し, Wenzel と Cassie-Baxter の間にある中間濡れ状態の理論モデル(部分濡れモデル)を構築した(図1)。これより, 古典理論では十分説明できない実験データについて, 中間濡れ状態の有効濡れ比率というパラメータを用いて合理的に説明できた(図2)。

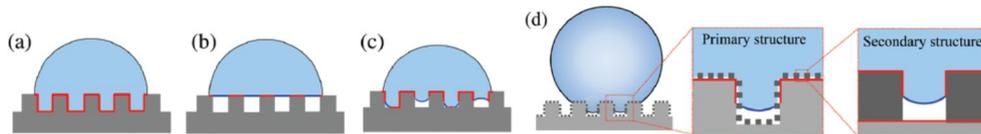


図1 構造面における濡れモデル: (a) Wenzel モデル, (b) Cassie-Baxter モデル, (c) 部分濡れモデル(一次構造), (d) 部分濡れモデル(階層構造)。

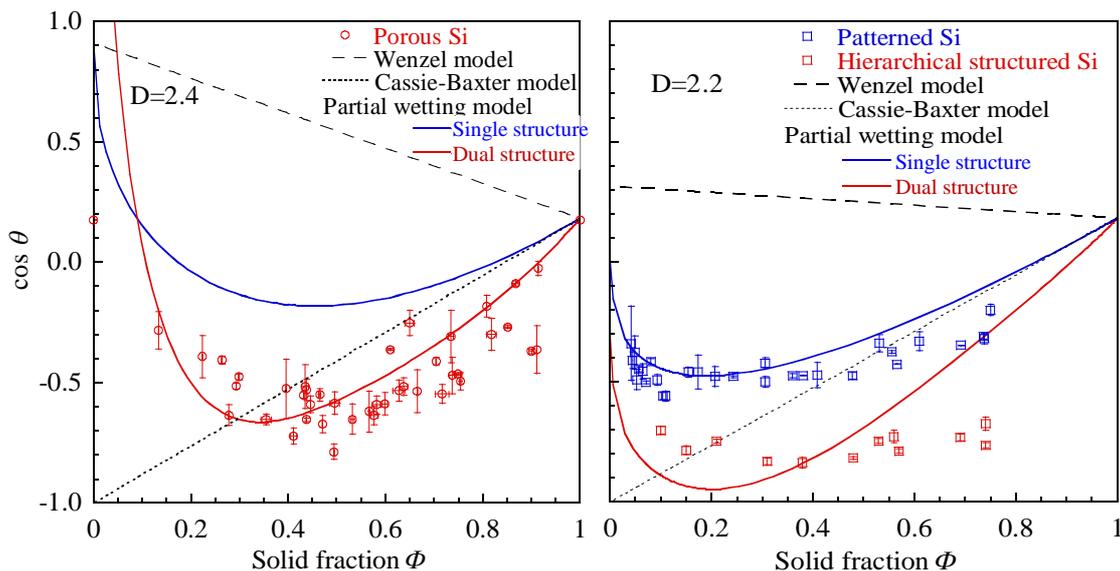


図2 構造面における濡れモデルと実験結果の比較: (a) ポーラス構造面(不規則構造), (b) パタニングしたナノ・マイクロ階層構造面。

(2) 電気化学インピーダンス計測による異相界面真実接触面積の評価^{2,3}

電気化学インピーダンス計測による固液気界面における真実接触面積の評価にあたって,

図3に示す等価電気回路を用いた。

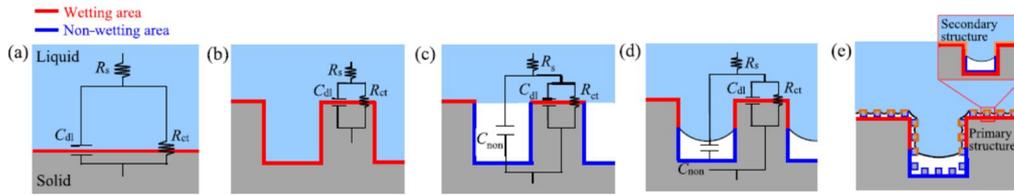


図3 電気化学インピーダンス計測に用いた等価電気回路：(a)平坦な固液界面，(b)構造を有する Wenzel 型固液界面，(c)構造を有する Cassie-Baxter 型固液界面，(d)構造を有する部分濡れ型固液界面（一次構造），(e)構造を有する部分濡れ型固液界面（階層構造）。

固液界面における電気化学インピーダンスの値は固体電極表面と電解質液の接触面積に反比例する。幅広い周波数範囲のインピーダンスを測定することで、界面状態を表す時定数の分離を行うことができる。低周波数と高周波数領域における周波数応答性が異なるため、図3に示すように、固液・固気・気液間の接触面積割合の変化に伴う電気化学インピーダンスが異なる。これより評価した固液気異相界面における真実接触面積を図4に示し、本研究で提案した測定法の有効性を検証した。

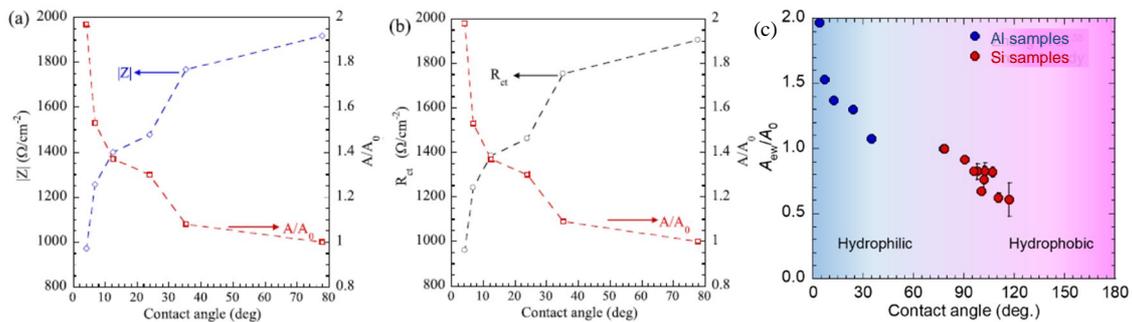


図4 電気化学インピーダンスによる固液気異相界面真実接触面積の測定：(a)インピーダンスの絶対値と接触面積（Al サンプル），(b)電荷移動抵抗と接触面積（Al サンプル），(c)接触面積と接触角（Al & Si サンプル）。

(3) 分子動力学シミュレーションによる異相界面熱輸送解析^{4,5}

ナノギャップを介した二つの固体界面間における熱輸送を解析し、ギャップ距離の減少に伴い熱流束が指数関数的に増加することを明らかにした。波形解析より二つの固体界面層の原子間に熱共振をすることより準カシミヤカプリングによるフォノン熱輸送を確認した。液体吸着層を有するナノギャップに対して、固液界面における準カシミヤカプリングによって、二つの固液界面間に通過する熱流束はギャップ距離の減少に伴い指数関数的に増加した。固体界面層間の間隔が同じ場合、液体吸着層を有するナノギャップを通過する熱流束は真空ナノギャップのそれより1~3桁大きい結果となった。二つの液体吸着層の原子間に生じた熱共振が固体界面層の原子間の熱共振を共起させることを解明した。

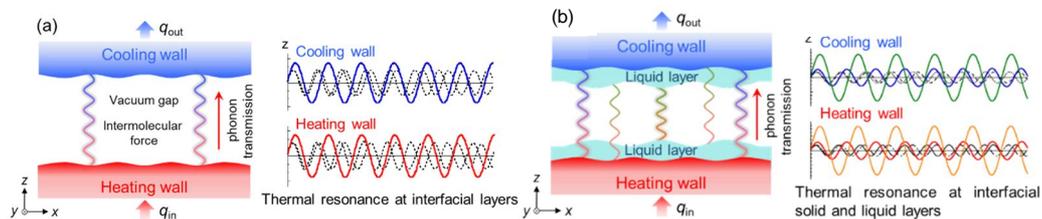


図5 準カシミヤカプリングによるフォノン熱輸送と熱共振現象：(a)真空ナノギャップ，(b)液体吸着層を有するナノギャップ。

(4) 界面抵抗を考慮した境界条件を用いた流体潤滑特性の解析^{6,7}

典型的な球とデスクとの点接触問題に転がり、逆滑り、転がり・滑りの三つの作動条件に対

して、異なる速度スリップおよび熱的スリップ長さを組み合わせたすべり境界条件を適用した。純転がりの条件下において、潤滑液膜厚さは速度スリップで減少するが、熱的スリップの影響をほとんど受けないことを明らかにした。逆滑りの条件下においては、速度スリップが接触域に発生するディンプルを熱的スリップによるディンプルと反対する方向にシフトする。そのため、速度スリップと熱的スリップが同時に発生する場合、それぞれの効果が互いに打ち消すことになり、ディンプルシフトが発生しにくくなった。転がり・滑りの条件下において、スリップ長さが熱的スリップ長さと同程度の場合、速度スリップによる液膜厚さの低下がより顕著に現れるが、引き込み速度あるいは滑り率が大きい場合、熱的スリップによる液膜厚さの低下がより著しくなった。速度スリップと熱的スリップが単一発生するよりも同時に発生する方が、接触域の温度上昇および潤滑液膜厚さの低下を引き起こしやすいことを明らかにした。

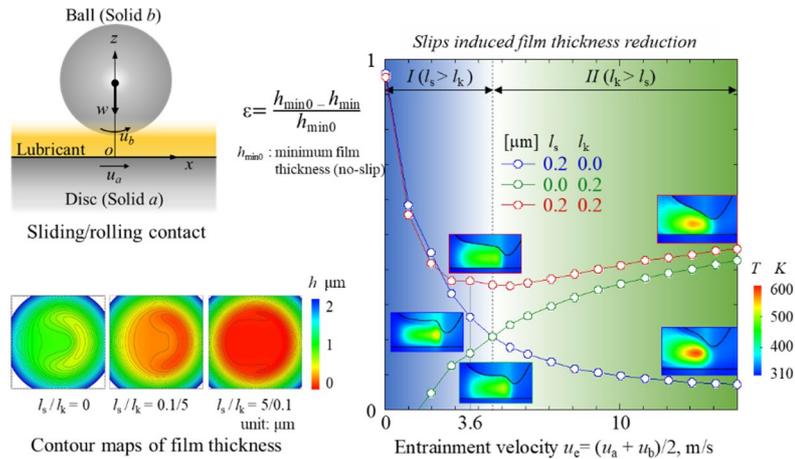


図6 界面抵抗が起因した点接触域における潤滑液膜の温度上昇および膜厚低下。

固液気の異相界面抵抗と熱・濡れ・電気化学特性との相関関係に基づいて真実接触面積により界面抵抗を評価でき、界面抵抗が点接触問題に対する熱弾性流体潤滑特性に及ぼす影響を解明した。速度スリップ・熱的スリップを組み合わせたすべり境界条件が熱弾性流体潤滑特性に及ぼす影響について得た知見は、超低摩擦摺動メカニズムの解明に寄与するのみならず、低摩擦化界面の実現による省エネルギー・低環境負荷効果が期待される。また、分子動力学シミュレーションでは当初予期しなかった準カシミアカップリング誘発したフォノン熱輸送機構を発見できた。本研究で得た知見は、ナノスケールにおける熱輸送の本質への理解を深め、新たなナノエネルギー輸送デバイスの創製への可能性を広げられるものである。

< 引用文献 >

- (1) G. Nagayama, D. Zhang, Intermediate Wetting State at Nano/Microstructured Surfaces, *Soft Matter*, 16, pp. 3514–3521, 2020 (16).
- (2) D. Zhang, G. Nagayama, Effective Wetting Area Based on Electrochemical Impedance Analysis: Hydrophilic Structured Surface, *Langmuir*, 35, 50, pp. 16508–16513, 2019.
- (3) D. Zhang, S. Takase, G. Nagayama, Measurement of Effective Wetting Area at Hydrophobic Solid–liquid Interface, *Journal of Colloid and Interface Science*, 591, pp.474–482, 2021.
- (4) W. Chen, G. Nagayama, Quasi-Casimir coupling can induce thermal resonance of adsorbed liquid layers in a nanogap, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 24 (19), 11758–11769, 2022.
- (5) W. Chen, G. Nagayama, Quasi-Casimir Coupling Induced Phonon Heat Transfer Across a Vacuum Gap, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 176, 121431, 2021.
- (6) X. Meng, J. Wang, G. Nagayama, Boundary Slip-Induced Temperature Rise and Film Thickness Reduction Under Sliding/Rolling Contact in Thermal Elastohydrodynamic Lubrication, *Journal of Tribology*, 144 (7), 071602, 2022.
- (7) X. Meng, J. Wang, H. Nishikawa, G. Nagayama, Effects of boundary slips on thermal elastohydrodynamic lubrication under pure rolling and opposite sliding contacts, *Tribology International*, 155, 106801, 2021.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Gyoko Nagayama, Dejian Zhang	4. 巻 16
2. 論文標題 Intermediate Wetting State at Nano/Microstructured Surfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 3514-3521
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C9SM02513H	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 -
1. 著者名 Dejian Zhang, Gyoko Nagayama	4. 巻 35
2. 論文標題 Effective Wetting Area Based on Electrochemical Impedance Analysis: Hydrophilic Structured Surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 16508-16513
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.langmuir.9b03349	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 -
1. 著者名 Nagayama Gyoko, Gyotoku Shunya, Tsuruta Takaharu	4. 巻 122
2. 論文標題 Thermal performance of flat micro heat pipe with converging microchannels	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 375 ~ 382
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.01.131	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 -
1. 著者名 Meng Xianghua, Wang Jing, Nagayama Gyoko	4. 巻 144
2. 論文標題 Boundary Slip-Induced Temperature Rise and Film Thickness Reduction Under Sliding/Rolling Contact in Thermal Elastohydrodynamic Lubrication	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Tribology	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/1.4053180	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 該当する

1. 著者名 Chen Wentao, Nagayama Gyoko	4. 巻 24
2. 論文標題 Quasi-Casimir coupling can induce thermal resonance of adsorbed liquid layers in a nanogap	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 11758 ~ 11769
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CP01094A	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 -

1. 著者名 Chen Wentao, Nagayama Gyoko	4. 巻 176
2. 論文標題 Quasi-Casimir coupling induced phonon heat transfer across a vacuum gap	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 121431 ~ 121431
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2021.121431	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 -

1. 著者名 Zhang Dejian, Takase Satoko, Nagayama Gyoko	4. 巻 591
2. 論文標題 Measurement of effective wetting area at hydrophobic solid-liquid interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6. 最初と最後の頁 474 ~ 482
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcis.2021.01.056	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 -

1. 著者名 Meng Xianghua, Wang Jing, Nishikawa Hiroshi, Nagayama Gyoko	4. 巻 155
2. 論文標題 Effects of boundary slips on thermal elastohydrodynamic lubrication under pure rolling and opposite sliding contacts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Tribology International	6. 最初と最後の頁 106801 ~ 106801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.triboint.2020.106801	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 該当する

〔学会発表〕 計17件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 16件）

〔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
研究 分 担 者	西川 宏志 (NISHIKAWA Hiroshi) (40208161)	九州工業大学・大学院工学研究院・助教 (17104)	
研究 分 担 者	高瀬 聡子 (TAKASE Satoko) (60239275)	九州工業大学・大学院工学研究院・助教 (17104)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
中国	東華大学		