

令和 3 年 5 月 25 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14909

研究課題名(和文) 1原子スケールの熱流情報に基づく、界面熱輸送状態の根源的解明

研究課題名(英文) Elucidation of thermal transport across interface based on heat flux at single-atom scale

研究代表者

藤原 邦夫 (Fujiwara, Kunio)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：60800852

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、1原子スケールの熱流が巨視的な界面熱輸送状態へ及ぼす影響を明らかにするために、原子スケールの様々な表面構造を有する固液界面における熱輸送に関して分子動力学解析を行った。1原子スケールの熱流を古典分子動力学法に基づき算出する解析技術を構築し様々な原子スケールの表面構造が界面熱輸送に与える影響を明らかにすることで、固体表面原子近傍の1原子スケールの熱流と巨視的な固液界面熱輸送量の関連性を明確にする方法論の基礎が構築できたと考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では1原子のスケールに着目して原子スケールの表面固体構造近傍の熱流束を算出している。古典的な描像ではあるが、表面固体原子近傍の熱流束の描像は原子スケールの熱流の経路を視覚的に理解可能とするものであり、学術的価値だけでなく社会的な意義もあると考えられる。また構築した1原子スケールの熱流の解析技術に基づきマクロスケールの熱流との関連性を明らかにする方法論の構築は特に学術的価値が高いと考えられる。

研究成果の概要(英文)： This study aimed to elucidate effects of the heat flux at single-atom scale on a macroscopic thermal transport across a solid-liquid interface. Classical molecular dynamics analysis was conducted for a solid-liquid interfacial system with atomic-scale structures. Developing a technique to calculate heat flux at single-atom scale, this study revealed a relationship between the heat flux at single-atom scale and the macroscopic thermal transport across a solid-liquid interface.

研究分野：熱流体工学

キーワード：熱流束 界面熱輸送 1原子スケール 固液界面 非平衡分子動力学

1. 研究開始当初の背景

固体と液体間の界面における熱輸送現象は、日常生活から産業現場に至るまで幅広くみられる現象であり、エネルギーの流れを制御する上で重要である。特に近年における微細加工技術の発達により界面における熱輸送制御のさらなる向上が求められている。界面熱輸送特性を決める因子の起源は原子スケールにまでさかのぼって考える必要があるが、原子スケールにおいて複雑である界面において熱輸送状態の詳細は未解明である。

界面熱輸送の研究に対して、これまでに理論・解析・実験を用いた多くの研究がなされているが、近年では界面における熱輸送を詳細に解明することが可能である分子動力学を用いた研究が着目されており、その有用性も認識されつつある。特に固液界面の熱輸送に関する古典分子動力学解析による研究では、原子・分子間に比較的単純であるレナード・ジョーンズのポテンシャル関数を用いた系や、さらにクーロン力も考慮した系で解析が行われている。しかし、界面の1つの原子からの熱流が巨視的な界面熱流とどのように関係しているのかや、1原子スケールの固体表面構造がどの程度巨視的な界面熱輸送を制御できるか等、1原子スケールの熱流に基づく界面熱輸送状態の解明はなされていない。

2. 研究の目的

本研究では、古典分子動力学法に基づき1原子スケールの熱流が巨視的な界面(固体-液体間)熱輸送状態へ及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。特に固体表面構造近傍の1原子スケールの熱流変化を特定し巨視的な界面熱輸送状態に及ぼす影響に関して調査を行った。

3. 研究の方法

12-6 Lennard-Jones(LJ)ポテンシャル関数で相互作用する粒子で構成され、固体壁面間に流体分子が液体として充填されている計算系を用いた。また、表面固体構造の一例として、吸着した固体原子が表面に付着した系(Fig. 1)の結果を本報告書にて示す。計算系内において、界面に対して法線方向(温度勾配方向)を z 方向、接線方向を x, y 方向と定義しており、計算系の大きさは、 $(x, y, z) = (40, 40, 39)$ である。本研究では計算系内の z 方向上部に位置する壁面の温度を低温、下部に位置する壁面を高温になるように Langevin 法で制御することで系内に熱流束を生じさせた。ここで、液体、固体はそれぞれ Ar 分子、Pt 原子で構成され、物理量は Ar 分子の代表長さ($\sigma_{ff} = 3.40 \times 10^{-10}$ m)、エネルギー($\epsilon_{ff} = 1.67 \times 10^{-21}$ J)、質量の値を用いて無次元化を行っている。本研究では固液間の相互作用として、液相-固相間の濡れ性のパラメータ(吸着原子-液体分子間： ϵ_a 、表面原子-液体分子間： ϵ_s)をLJポテンシャル(ローレンツベルテロ則で算出したパラメータを使用)に乗じて用いた。上壁面と下壁面の温度をそれぞれ0.41、1.2とし、局所物理量は x - z 平面上の $dx^* \times dz^* = 0.059 \times 0.059$ の領域で算出した。

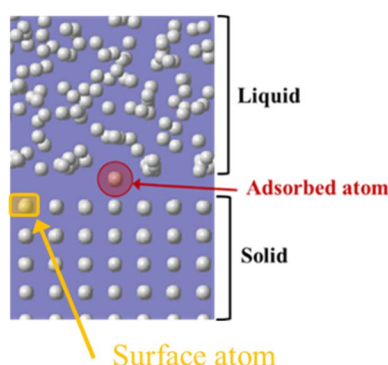


Fig. 1. Calculation model.

特に、下壁面近傍の固液界面に着目し、固液界面内領域の1原子以下のスケールの分解能で定義される局所領域において、以下の式に基づき熱流束を解析した。

$$\begin{aligned} \mathbf{j}(\mathbf{r}) &= \langle \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \rangle, \\ &= \left\langle \frac{1}{\Omega_{\mathbf{r}}} \left[\sum_{i \in \Omega_{\mathbf{r}}} e_i \mathbf{v}_i + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \mathbf{r}_{ij}^* (\mathbf{v}_i \cdot \mathbf{F}_{ij}) \right] \right\rangle. \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ は局所体積 Ω_r における瞬時的なエネルギー流速であり、時間平均した値を $\mathbf{j}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \rangle$ として定義している。式(1)において、 \mathbf{F} と \mathbf{v} はそれぞれ粒子に加わる力と粒子の速度を示している。ポテンシャルエネルギー $e_i = (1/2)m_i v_i^2 + (1/2)\sum_j \phi_{ij}$ は質量 m を用いて定義されており、添え字の i, j はそれぞれ粒子の番号を示している。また、 \mathbf{r}^* は局所体積内の線分の長さを表している。

また、本研究では界面熱輸送量を下記の式を用いて詳細に評価している。

$$\begin{aligned} j_i^{am} &= \langle j_i^{am}(t) \rangle = \sum_{j(\neq i) \in l} \langle \mathbf{v}_i \cdot \mathbf{F}_{ij} \rangle, \quad i \in s, \\ j_{i,xy}^{am} &= \sum_{j(\neq i) \in l} \langle v_{i,x} F_{ij,x} + v_{i,y} F_{ij,y} \rangle, \\ j_{i,z}^{am} &= \sum_{j(\neq i) \in l} \langle v_{i,z} F_{ij,z} \rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)において、 j_i^{am} は i 番目の固体原子からのエネルギー輸送量を示し、 s は固体領域を示している。添え字の xy, z に関しては、 \mathbf{v} と \mathbf{F} の内積の xy 成分、 z 成分を示している。

4. 研究成果

Fig. 2 に、吸着分子を含む固液界面における、固相から液相への熱流束分布の一例を示す。図において、吸着原子は黄色で示してあり、熱流は z 方向下側から上側に生じている。吸着原子 - 液体分子間が $\varepsilon_a = 0.5$ 、かつ吸着原子以外の固体原子 - 液体分子間が $\varepsilon_s = 0.5$ のパラメータの場合であり、吸着原子近傍から特徴的な指向性を有する強い熱流が単原子スケールにおいて確認することができる。吸着原子からの熱流は、まず左右方向に分岐して液相($z^* > 0.7$)に到達し、その後温度勾配方向に均一な熱流となることが分かった。また、液相に接しており $z = 0.0$ に位置する固表面原子からも温度勾配方向に対して均一でない熱輸送状態を確認することができる。しかし、固体表面原子から液相への熱流と比較して、吸着原子から液相への熱流がより顕著であり、吸着分子近傍の液相の構造化と関連がある複雑な熱輸送特性を明らかにすることができた。このように、原子スケールにおいて微視的な観点から熱流を算出し、界面近傍の数 nm の範囲における熱流の非一様性を特定し制御することが、固液界面熱輸送の精密な制御のために重要であると分かった。

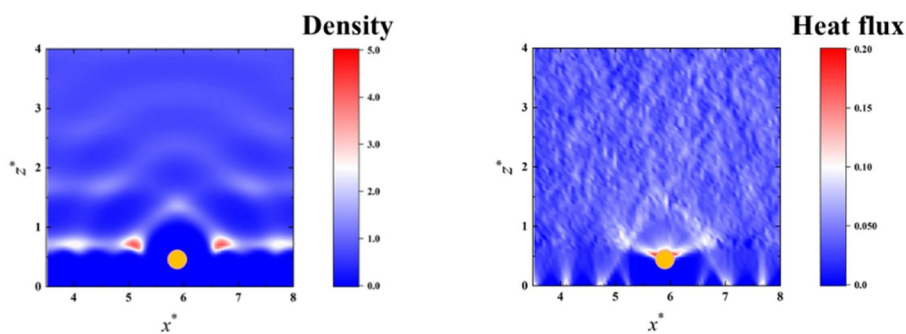


Fig. 2. Heat flux distribution in the vicinity of the adsorbed atom.

本研究で定義した濡れ性のパラメータを変化させて表面原子1つと吸着原子1つからのエネルギー輸送量の比を示した結果を Fig. 3 に示す。結果より、表面原子と吸着原子の濡れ性パラメータ(固液間相互作用強さ)が等しい場合でも、吸着原子からの熱輸送量が表面原子と比較して約5倍大きいことがわかった。また、吸着原子の濡れ性が強い場合は、より顕著に吸着原子の効果が確認できる。

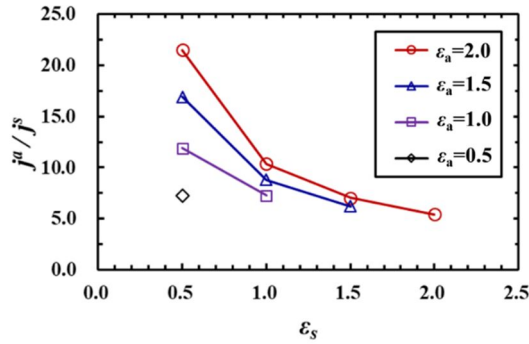


Fig. 3. Thermal transport from surface and adsorbed atom.

次に、吸着原子が固体表面に存在する場合の界面熱コンダクタンス ($ITC=J/AT$) を平滑面に対して比較した結果を示す (Fig. 4) . 本解析モデルでは、吸着原子を固体表面に一列で配置しているのみであるが、界面全体の熱抵抗に対して優位な影響があることが分かった . 界面熱抵抗に関しては、例えば吸着原子であればどの程度原子を付与するかで界面熱抵抗が変化する . よって、さらに表面構造の原子数を変化させることで界面熱抵抗を変化させることが可能である . またその他の表面構造 (ステップ、クラスター、空孔) でも調査した結果、吸着原子が最も界面熱輸送量を増加させることが可能であることが分かった .

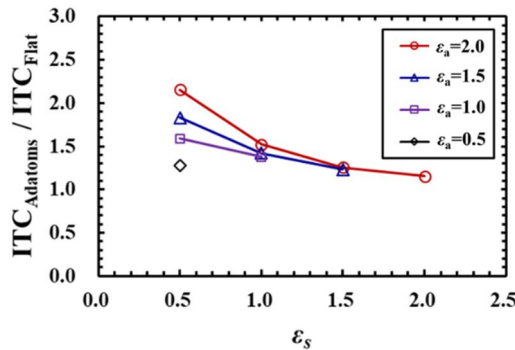


Fig. 4. Interfacial thermal resistance of a flat surface and a surface with adsorbed atom.

最後に、固体表面原子の熱輸送状態の詳細な情報として、式(2)における z 方向の熱輸送量の xy 、 z 成分の寄与を Fig. 5 において示す . Fig. 2 から分かるように、吸着原子からの熱輸送量では xy 成分の寄与が 8 割を占めており、 z 成分の寄与は小さい . 一方で、平滑面を構成する表面原子からの熱輸送においては z 成分の寄与が主であり、 xy 成分の寄与は約 10% ほどである . よって、吸着原子による熱輸送量の増加の原因の一つとして、原子スケールにおける接触面積の増加を考えることができる .

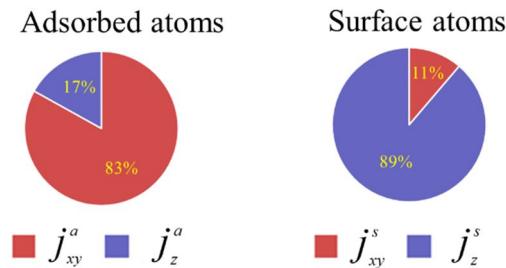


Fig. 5. Details of the thermal transport form surface atom and adsorbed atom.

本研究では 1 原子スケールの表面構造である吸着原子が固液界面熱輸送状態に及ぼす影響に関して、1 原子スケールの熱流に着目して詳細に調査した . その結果、特に 1 原子スケールの表面構造近傍で特有の熱流を特定し、様々な濡れ性のパラメータにおいて吸着原子が空間平均された界面熱輸送に及ぼす影響を明確にすることができた . 本研究で行ったような 1 原子スケールの熱輸送状態の特定と空間平均された巨視的な熱輸送状態との相関性の検討は、今後ますます重要になると考えられる . その際、局所空間で熱流を特定する解析技術が重要な役割を担うことが考えられ、今後の解技術の発展や、複雑な系への展開が期待される .

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 1件）

1. 著者名 K. Fujiwara, M. Shibahara	4. 巻 9
2. 論文標題 Atomic-scale thermal manipulation with adsorbed atoms on a solid surface at a liquid-solid interface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 13202
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-49677-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 固液界面領域内の単原子スケール熱輸送場に関する古典分子動力学解析
3. 学会等名 第57回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 ナノ構造が固液界面の熱輸送機構に与える影響に関するスペクトル解析
3. 学会等名 日本流体力学会年会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西健太郎, 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 固体表面構造が固液界面の局所熱輸送機構に及ぼす影響に関するスペクトル解析
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 谷和明, 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 固体壁面に接する液体分子吸着層のエネルギー輸送特性に関する分子動力学解析
3. 学会等名 第11回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 本川祐輝, 藤原邦夫, 植木祥高, 芝原正彦
2. 発表標題 界面固体構造接点における熱輸送機構に関する分子動力学的研究
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2020年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Fujiwara, M. Shibahara
2. 発表標題 Directional heat flux in a liquid-solid interfacial region based on molecular dynamics
3. 学会等名 The 7th Asian Symposium on Computational Heat Transfer and Fluid Flow (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 1原子以下のスケールで検出される熱流に基づく固液界面熱輸送に関する分子動力学解析
3. 学会等名 第56回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 単原子スケール界面熱輸送場の分子動力学解析
3. 学会等名 日本流体力学会年会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中田尚吾, 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 ナノ構造を有する固液界面の熱輸送機構に関する局所熱流束のスペクトル解析
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂本遼介, 藤原邦夫, 芝原正彦
2. 発表標題 固液界面における熱輸送機構と熱流スペクトルの関係性に関する分子動力学解析
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西健太郎, 藤原邦夫, 植木祥高, 芝原正彦
2. 発表標題 固体表面構造が固液界面の局所熱輸送機構に及ぼす影響に関するスペクトル解析
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2019年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2020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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------