

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 16 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630065

研究課題名(和文) 固液界面における汚れの堆積メカニズムと界面熱抵抗への影響の解明

研究課題名(英文) Study on Deposition Mechanism of Contamination and Its Influences on Thermal Resistance at Liquid-Solid Interface

研究代表者

芝原 正彦 (Shibahara, Masahiko)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40294045

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：伝熱面に付着する汚れを液体中の微粒子が固液界面に付着して堆積する過程として捉え、固液界面に付着する汚れが固液界面熱抵抗に与える影響に関する物理モデルを提案することを最終的な目的として、堆積した微粒子(=汚れ)が堆積した固液界面熱抵抗の実験的測定と固液界面に付着した微粒子層が固液界面熱抵抗に与える影響について分子動力学シミュレーションを行った。濡れ性の良好なナノ粒子が固液界面に堆積することにより界面熱抵抗が低減した測定結果は、分子動力学シミュレーションにより得られた知見と照らし合わせても定性的に一貫性があるものである。

研究成果の概要(英文)：In the present study, wall contamination on a heat transfer surface is considered a process of fine particle accumulation on the heat transfer surface. The final scope of the present study is to build a physical model where contamination accumulated on the solid-liquid interface affects the interfacial thermal resistance. An experiment is performed to evaluate the interfacial thermal resistance with and without nanoparticle accumulation. In addition, molecular dynamics simulations are performed to numerically investigate the interfacial thermal resistance. Experimental results are consistent with results of the molecular dynamics simulations. Based on those results, deeper understanding of the interfacial thermal resistance with the contamination particles on the interface is obtained.

研究分野：機械工学・熱工学

キーワード：ナノマイクロ熱工学 固液界面熱抵抗

1. 研究開始当初の背景

液体を用いた熱機器において伝熱面へ汚れが付着することによって伝熱性能の劣化が生じることがよく知られているが、汚れの固液界面への堆積メカニズムや微細構造の詳細については一般的に明らかにされていない。また、マイクロ熱交換器やMEMSといった小型の機械システムに用いられる流路や Nanofluids といった超微粒子を混在させた液体を用いたシステムにおいては、液体中の微細な汚れの固液界面への付着や超微粒子の伝熱面の付着をどのように防止するかが実用化に向けて重要であると考えられる。

一方で、固液界面では微小ながら接触熱抵抗が存在することが知られている。研究代表者は界面に付着したナノ構造・ナノ粒子によって、固液界面熱抵抗の変化について熱輸送機構と変化量を非平衡分子動力学解析により明らかにしてきた。その研究成果として、固液界面に炭素ナノ粒子が付着した場合には、完全な平滑面と比較して、固液界面熱抵抗が増加する場合と低下する場合があること、ならびに、固液界面熱抵抗の増減は伝熱面ならびにナノ粒子の液体との相互作用強さによって決定されることが分かった。これらの研究から、実際の熱機器においても伝熱面への汚れの付着によって固液界面熱抵抗が低減する場合も増大する場合いずれも起こり得ると考えられるが、その詳細なメカニズムは分かっていないだけでなく、汚れが固液界面熱抵抗へ与える影響に関する一般的な物理モデルも存在していない。

2. 研究の目的

本研究では、「伝熱面に付着する汚れ」を「液体中の微粒子が固液界面に付着して堆積する過程」として捉え、固液界面に付着する汚れが固液界面熱抵抗に与える影響に関する物理モデルを提案することを最終的な目的として、以下の2点を具体的な目的とした。

- (1) 微粒子 (= 汚れ) が堆積した固液界面熱抵抗の実験的測定、
 - (2) 固液界面に付着した微粒子層が固液界面熱抵抗に与える影響を明らかにすること
- 本研究目的の達成により、液体を用いた小型熱流体機器の実用化や耐久性の向上に直接的に繋がる知見を獲得することを狙いとした。

3. 研究の方法

- (1) 微粒子が堆積した固液界面熱抵抗の実験的測定。

本研究で用いた溶融塩は硝酸塩や亜硝酸塩の混合塩の HTS (Heat Transfer Salt) である。液体としての常用温度は 143~500°C であり、界面熱抵抗を測定するのに充分大きな熱流束を生じさせることができるため採用した。ナノ粒子には、HTS との共存性の良く、セラミクスの中では比較的熱伝導率が低いジル

コニア(ZrO_2)を用いた。

本研究では、図1に示す2つのステンレス柱に挟まれる形で円筒容器に封入された流体を用いて実験を行った。本研究では、ベース流体として HTS を、ナノ粒子としてジルコニア(ZrO_2)を用いて、流体に対するナノ粒子の質量分率が 0.5% のナノ流体を作製した。HTS 内に分散せず沈殿したナノ粒子は、下部ステンレス上面にナノ粒子層となって堆積する。実験装置中央の流体に対して、上部からはステンレス柱を介して鑄込みヒーターによる加熱を行い、一方下部からはヒートシンクによる除熱を行い、鉛直方向に熱流束を発生させた。

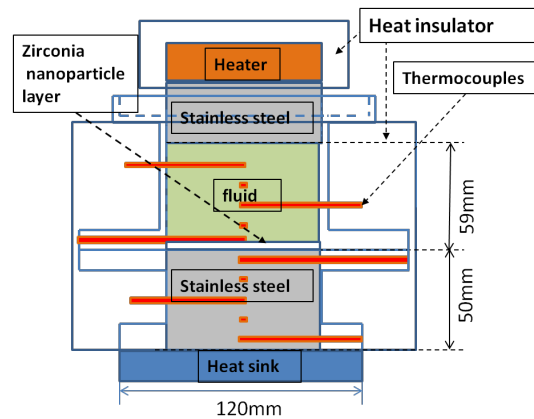


図1 熱抵抗測定装置概念図。

封入された流体は、高さ 59 mm、直径 83.1 mm、下部ステンレス柱の高さは 50 mm、直径 85 mm である。熱電対は、水平方向から流体中心部に対して 5 本、下部ステンレス柱中心部に対して 5 本、合計 10 本が 10 mm 間隔で挿入されている。ヒートシンクの設定温度は 80°C、鑄込みヒーターの設定温度は 560~570°C とし、ステンレス柱最上部及び最下部の温度一定条件を満たすよう制御している。また、実験装置本体と鑄込みヒーターには断熱材を被覆しており、外部への熱逃げを抑えている。

熱流束の計算には一次元のフーリエの法則を仮定して用いた。隣接する各熱電対の温度差と熱電対の配置間隔から、実験装置内の高さ方向の温度勾配を算出した。この値と熱伝導率から、実験装置内の高さ方向の熱流束分布を算出した。熱抵抗は、界面における温度ジャンプを、求めた熱流束で除した値となる。温度ジャンプは、流体側、ステンレス柱側における温度分布を近似した 2 本の近似線と固液界面の座標との交点の値の差として求めた。この手法を用いて、HTS とナノ流体の 2 種類の流体について、界面において求めた温度ジャンプと熱流束から熱抵抗を求め、固液界面でのナノ粒子層の有無が熱抵抗に与える影響について評価を行った。

- (2) 固液界面に付着した微粒子層が固液界面熱抵抗に与える影響

本研究では非平衡分子動力学による数値解析を用いて、伝熱面にナノ粒子層が付着した場合とナノ粒子層が付着していない場合において系内圧力の制御を行ったうえで、系内圧力、ナノ粒子-液体間相互作用強さ、壁面-液体間相互作用強さが固液界面熱抵抗に及ぼす影響がどのように変化するかを調査した。

本研究の計算モデルを図2に示す。ユニットセルの大きさは $3.23 \times 3.23 \times 5.00 \text{ nm}^3$ であり、液体分子とナノ粒子で構成され、上下は二つの平行な固体壁で挟まれている。本研究においては下壁面上部を $z = 0 \text{ nm}$ と定義した。上下の固体壁面は Langevin 法により下壁面は 115 K 、上壁面は 85 K に温度制御した。液体分子、壁面原子、ナノ粒子にはそれぞれ Ar, Pt, C と同等の質量を有する Lennard-Jones 粒子モデルを用いた。ナノ粒子は炭素原子 60 個のフラーレン構造をしており、炭素原子間には Brenner ポテンシャルを用いた。また、ナノ粒子層のユニットセルには 1 層あたり 9 個のナノ粒子が存在するとした。異分子間におけるポテンシャルの計算には 12-6 Lennard-Jones ポテンシャルの式にパラメータ α を挿入した式を用いた。固液界面熱抵抗 R_t の算出には、 ΔT_j はナノ粒子層と液体領域が接する部分 ($z = 1.0 \text{ nm}$) から下壁面までの温度差とし、 Q は系内を通過する熱流束として、 ΔT_j を Q にて除することにより求めた。

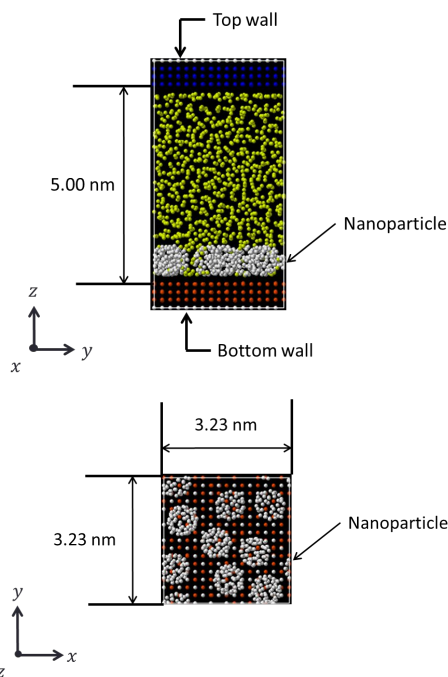


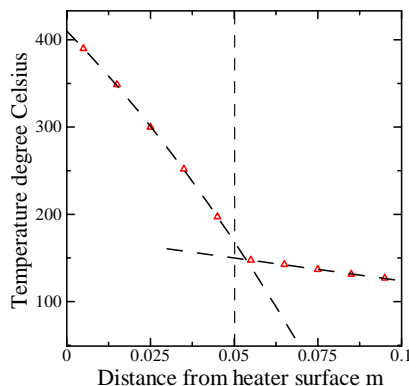
図2 計算モデル。

4. 研究成果

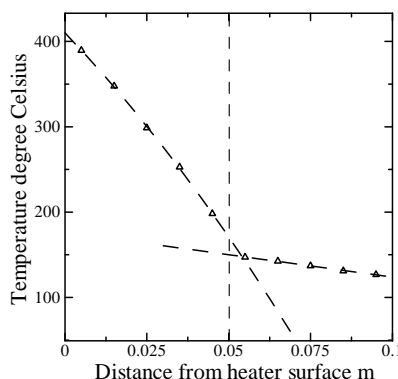
(1) 微粒子が堆積した固液界面熱抵抗の実験的測定。

HTS とナノ流体それぞれの場合について、流体とステンレス柱の鉛直方向の定常状態における温度分布の時間平均を図3に示す。図中の点線は流体側、ステンレス柱側における温度分布を近似した曲線を示す。流体最上

部及びステンレス柱最下部については外界への熱逃げによる誤差があるため除外した。これら2本の近似線と固液界面(図3の横軸における 50 mm 地点)の座標との交点の値の差が固液界面での温度ジャンプとなる。



(a) HTS.



(b) Zirconia-nanoparticles contained HTS.

図3 測定温度分布。

次に、HTS 及びナノ流体それぞれの場合について、流体とステンレス柱の各熱電対の温度差及び各物質の熱伝導率から熱流束を算出した。固液界面における熱流束は、流体側から補外することにし、流体側での近似曲線と固液界面の座標との交点の値を固液界面における熱流束として算出した。

前述の手順で求めた固液界面における温度ジャンプと熱流束から求めた熱抵抗は、HTS の場合は、 $8.4 \times 10^{-3} \text{ K} \cdot \text{m}^2/\text{W}$ となり、ナノ流体を用いた場合は、 $8.0 \times 10^{-3} \text{ K} \cdot \text{m}^2/\text{W}$ となった。HTS の場合に比べて、ナノ流体の場合は熱抵抗が低かったことが分かる。この差異の原因としては考えられることとしては、ベース流体に対して濡れ性が高い材料で構成されるナノ粒子が固液界面に堆積することにより、熱抵抗が低減されたためであるということが一つ考えられる。これらの結果により堆積微粒子により固液界面熱抵抗が変化し得ることが示唆された。

(2) 固液界面に付着した微粒子層が固液界面熱抵抗に与える影響

図4にナノ粒子-液体間相互作用強さ $\alpha_{nl}\epsilon_{nl}$ と固液界面熱抵抗 R_t の関係を示す。また、実線で示しているのはナノ粒子層が付着して

いない場合 (以後, フラット面と呼ぶ) の固液界面熱抵抗を示しており, 系内圧力を変化させた際のプロットを示す. 図 4(a) は $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 6.88 \times 10^{-22}$ J の場合, (b) は $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 1.73 \times 10^{-21}$ J の場合をそれぞれ示す. 図 4 より, 系内圧力に関係なく $\alpha_{nl}\epsilon_{nl}$ と R_t には負の相関があることが確認できる. また, 系内圧力 P_0 が低下するとその傾向は顕著になることがわかった. さらに, フラット面の場合とナノ粒子が付着している場合を比較すると, 壁面 - 液体間相互作用強さが比較的小さい $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 6.88 \times 10^{-22}$ J の場合は P_0 と $\alpha_{nl}\epsilon_{nl}$ に関わらず, ナノ粒子層が付着することで R_t が低くなることわかる. しかし, 壁面 - 液体間相互作用強さが比較的大きい $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 1.73 \times 10^{-21}$ J の場合は, $\alpha_{nl}\epsilon_{nl}$ の値が大きい場合のみナノ粒子層が付着することで R_t は低くなることわかった.

nanoparticle layer	flat
—■— $P_0 = 1.0$ MPa	—■— $P_0 = 1.0$ MPa
—▲— $P_0 = 25$ MPa	—▲— $P_0 = 25$ MPa
—▼— $P_0 = 50$ MPa	—▼— $P_0 = 50$ MPa
—◆— $P_0 = 75$ MPa	—◆— $P_0 = 75$ MPa
—●— $P_0 = 100$ MPa	—●— $P_0 = 100$ MPa

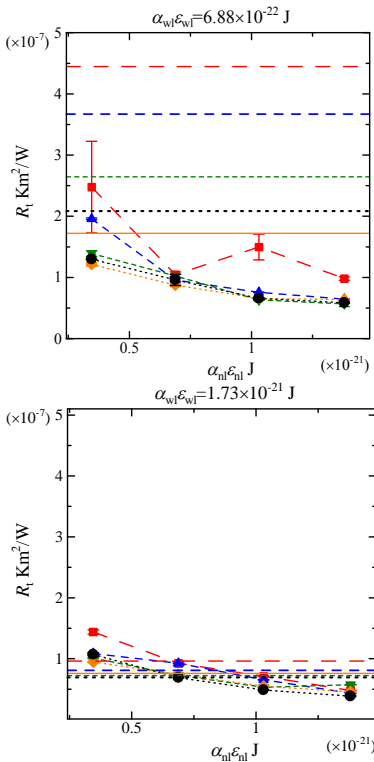


図 4 ナノ粒子 - 液体間相互作用強さ $\alpha_{nl}\epsilon_{nl}$ と固液界面熱抵抗 R_t の関係; 上図: (a) $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 6.88 \times 10^{-22}$ J; 下図: (b) $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 1.73 \times 10^{-21}$ J.

図 5 に $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 6.88 \times 10^{-22}$ J の場合にナノ粒子層が存在する $z = 0.00 \sim 0.72$ nm の領域を z 軸方向に 10 等分した際の液体密度分布を示す. (a) に $\alpha_{nl}\epsilon_{nl} = 3.45 \times 10^{-22}$ J の場合, (b) に $\alpha_{nl}\epsilon_{nl} = 1.38 \times 10^{-21}$ J の場合, (c) にフラット面の場合の液体密度分布を示す. 図 5 より, すべての場合で $z = 0.25, 0.60$ nm 付近に密度ピークがあることがわかる. また, 系内圧力が大きくなると密度ピークが大きくなること

がわかる. ナノ粒子層が付着している場合に関しては壁面に近い $z = 0.25$ nm 付近の密度ピークのほうが $z = 0.60$ nm 付近の密度ピークよりも高くなっている. 一方, 完全平面の場合は $z = 0.25, 0.60$ nm 付近の密度ピークの高さがほぼ同等となっている. しかしながら, (a) と (c) の液体密度分布には大きな差異は確認できないことから, 液体密度の変化以外にもナノ粒子層が付着することにより固液界面熱抵抗が変化するという原因がある可能性が考えられる.

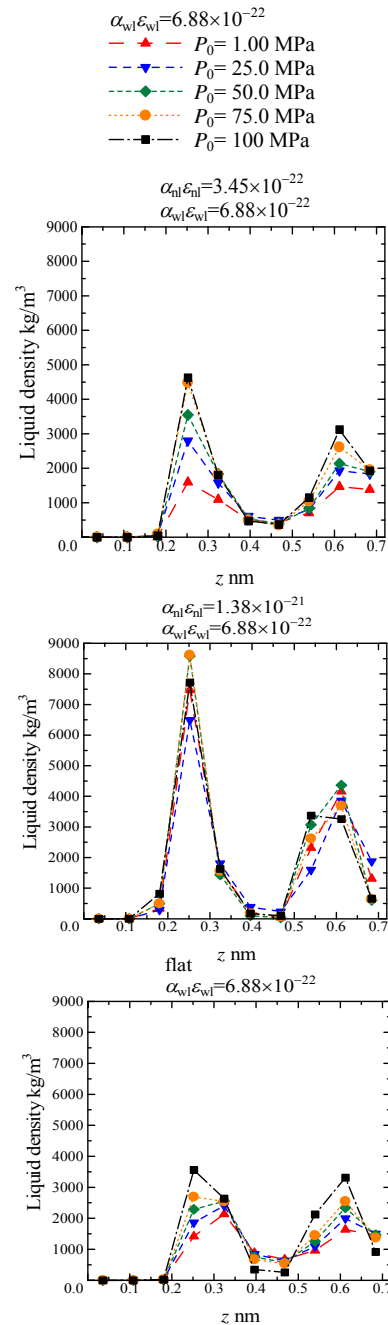


図 5 $\alpha_{wl}\epsilon_{wl} = 6.88 \times 10^{-22}$ J 時の液体密度分布; 上図: (a) $\alpha_{nl}\epsilon_{nl} = 3.45 \times 10^{-22}$ J; 中図: (b) $\alpha_{nl}\epsilon_{nl} = 1.38 \times 10^{-21}$ J; 下図: flat.

上記の一連の数値解析により, 伝熱面にナノ粒子層が付着した系, フラット面を用いた系において, 系内圧力の制御を行った条件下

にて、ナノ粒子 液体間相互作用強さ (= 巨視的には、液体のナノ粒子に対する濡れ性と関係)、壁面 液体間相互作用強さ (= 巨視的には、液体の壁面に対する濡れ性と関係) が固液界面熱抵抗に及ぼす影響を調べた。この調査により、伝熱面にナノ粒子層が付着することにより、フラット面と比べ界面熱抵抗が低下する場合があることを示した。また、壁面 液体間相互作用強さとナノ粒子 液体間相互作用強さにより固液界面熱抵抗の値とその変化の傾向が異なることを明らかとした。また、ナノ粒子層内の流体密度が固液界面熱抵抗に与える影響についても調査し、ナノ粒子層を通過する熱エネルギーについての理解が得られた。そして、巨視的には濡れ性と関係するパラメータに依る固液界面熱抵抗の変化について定性的な傾向の理解が得られたことは、液体中の微粒子が固液界面に付着して堆積する基礎過程の理解に直結する知見である。

堆積した微粒子が堆積した固液界面熱抵抗の実験的測定において、対象流体がナノ粒子材料に対する濡れ性が良好であることを確認している。濡れ性の良好なナノ粒子が固液界面に堆積することにより界面熱抵抗が低減した測定結果は、分子動力学シミュレーションにより得られた知見と照らし合わせて定性的に一貫性がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計7件)

発表者: Y. Ueki, M. Shibahara

発表標題: Molecular dynamics study on the influence of a nanoparticle layer on liquid-solid interfacial thermal resistance (招待講演)

学会等名: 7th Taiwan-Japan Workshop on Mechanical and Aerospace Engineering

発表年月日: 2014年9月12-15日

発表場所: 台北(台湾)

発表者: Y. Ueki, M. Shibahara, Y. Ishida

発表標題: Molecular Dynamics Study on Influence of Nanoparticle Layer on Liquid-Solid Interfacial Thermal Resistance

学会等名: 25th International Symposium on Transport Phenomena

発表年月日: 2014年11月5-7日

発表場所: クラビ(タイ)

発表者: T. Kanda, M. Shibahara, Y. Ueki

発表標題: Molecular Dynamics Study on Adhesion of Nanoparticle on Solid-Liquid Interface

学会等名: 25th International Symposium on Transport Phenomena

発表年月日: 2014年11月5-7日

発表場所: クラビ(タイ)

発表者: 宮崎靖広, 植木祥高, 芝原正彦
発表標題: ナノ粒子層の付着状態が固液界面熱抵抗に及ぼす影響

学会等名: 日本機械学会関西学生会平成26年度学生員卒業研究発表講演会

発表年月日: 2015年3月14-15日

発表場所: 京都大学(京都府京都市)

発表者: T. Kanda, Y. Ueki, M. Shibahara

発表標題: Molecular Dynamics Study on Adhesion of Nanoparticle on Solid-Liquid Interface at Constant Pressure

学会等名: 5th International Symposium on Micro and Nano Technology

発表年月日: 2015年5月18-20日

発表場所: カルガリー(カナダ)

発表者: 倉田晃成, 植木祥高, 芝原正彦

発表標題: 固液界面に付着したナノ粒子層が熱抵抗に及ぼす影響に関する実験的研究

学会等名: 日本機械学会熱工学コンファレンス2015

発表年月日: 2015年10月24-25日

発表場所: 大阪大学(大阪府吹田市)

発表者: 宮崎靖広, 植木祥高, 芝原正彦

発表標題: ナノ粒子層が固液界面熱抵抗に及ぼす影響に関する分子動力学的研究

学会等名: 日本機械学会熱工学コンファレンス2015

発表年月日: 2015年10月24-25日

発表場所: 大阪大学(大阪府吹田市)

[その他]

大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻マイクロ熱工学領域ホームページ

<http://mte.mech.eng.osaka-u.ac.jp/doc/toppage/toppage.htm>

6. 研究組織

(1)研究代表者

芝原 正彦 (SHIBAHARA, Masahiko)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 40294045