

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：13401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17968

研究課題名(和文) 微細流路の壁面特性が内部を運動する水の粘性及び摩擦に対して与える影響の評価

研究課題名(英文) Evaluation of the effect of the wall characteristics of microchannel on the friction force between the nano droplet and the micro channel

研究代表者

福島 啓悟 (Fukushima, Akinori)

福井大学・学術研究院工学系部門・講師

研究者番号：50725322

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では分子動力学を用いて微細流路内に生じた液滴が運動する際に生じる固体壁面との間の摩擦力を評価した。最初にせん断応力の温度上昇を考慮したせん断応力モデルを作成し、分子動力学法を用いた計算と比較することで妥当性を評価した。さらに接触線近傍に働く摩擦力の流路幅依存性を評価した。これにより、流路幅や固体壁面との相互作用により粘性が変化するという現象は見られなかったが、微細流路内部を運動する液滴の温度上昇を予測することが可能になった。また、詳細がわかっていなかった接触線近傍に働く摩擦力の流路幅依存性が明らかになり、ナノスケールにおける液滴の運動を評価する指標を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we evaluated the friction force between a solid wall of a nano channel and the droplet moving inside the channel. At first, the numerical model to represent the shear stress including the temperature rise by the own shear stress and we validate our model by comparing expected values with results of molecular dynamics simulations. Moreover, we clarify the channel size dependence of the friction force on the contact line. As a result, although phenomena such as the change in viscosity due to interaction with the channel were not observed, it is possible to predict the temperature rise of the droplet moving in micro channels. Moreover, we clarify the channel size dependence of the friction force on the contact line, which is not known in detail, and obtain an index for evaluating the moving droplet.

研究分野：熱流体

キーワード：分子シミュレーション 接触線 粘性係数 熱伝達率

1. 研究開始当初の背景

物質輸送現象，特に水の輸送現象は，自然科学の様々な分野で重要な現象である．特に微細な構造の内部における輸送現象は，輸送に参与する水分子が数 100～数 1000 個程度と少なく，その物性値が通常の物質と比べて変化するなど，我々の身近にある流れ場とは大きく異なっていることが知られている．このような現象は，数 nm 程度の非常に微細な構造を持ったデバイスの作成が可能になった事により，工学の分野において重要になってきている．微細な構造の影響で特異な輸送特性を持つ流れ場の一つに燃料電池内の流れ場がある．燃料電池は，高いエネルギー密度や効率の高さといった点から次世代のエネルギーシステムとして期待されている．特に固体高分子形燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell, PEFC) は軽量化が容易であり，かつ作動温度が比較的低温であることなどから起動が早く，電気自動車等の電源として期待され研究が行われている．この固体高分子形燃料電池では，膜電極接合体 (Membrane Electrode Assembly, MEA) と呼ばれる部分で電気化学反応が起こっている．この接合体は，ガス拡散層，撥水層，触媒層及び高分子膜で構成されており，膜内で効率よくプロトンが移動し反応が進むためには，内部に水が存在している必要がある．しかし，低温で湿度が高い場合，触媒層近傍で水が凝縮し酸素ガスの拡散を阻害するフラッディングという現象が起こることが知られており，燃料電池の性能低下や膜の劣化など多くの問題を引き起こしている．一方，高温で湿度が低い場合，水が不足し高分子膜内のイオン伝導性が低下する．その結果，発電効率が低下するドライアウトという現象が起こることも知られている．このように高い発電効率を維持するには膜内部における水分の管理が重要になる．接合体内部の撥水層は，フラッディング及びドライアウトを防止する効果を持ちガスを安定して触媒層に供給するために用いられている．この撥水層の細孔は数十～数百 nm 程度と非常に小さいものである．膜内部の水分を管理するには水蒸気のみならず高湿度下で生成した水滴を細孔から効率よく排除する必要があり，そのためには液滴の輸送メカニズムを解明する必要があるが，このような微細な系では表面張力の影響が大き

くなるなどの影響で，詳細な液滴の輸送メカニズムは明らかになっていない．また，触媒層にはさらに小さい nm オーダーの多孔体も存在しており，この領域では水の液滴を構成する水分子の数が数千個程度と非常に少ない事，Laplace 圧が MPa オーダーの非常に大きな値になる事，nm 以下の厚さの固液界面の存在が微細な系では無視できない事等が水の輸送特性に変化を与えると考えられるが，その詳細は明らかではない．このような微細な空間における液滴の輸送特性に関する知見は，MEA 内 (特に触媒層内) の水分分布の最適化や，効率的な水の排出機構を実現する為に必要であり，燃料電池の更なる効率化において重要な意味を持っている．また，微細な空間における液滴の輸送特性は学術的にも興味深い対象であり，盛んに研究が行われている．

一方，生物学の分野でもタンパク質内における水の輸送現象が，機械材料と比較してさらに小さいスケールの流動現象である事から，特異な流れ場を示すことが知られている．このような流れ場における輸送特性を解析し，物質輸送の高速化を図りたいというのが研究背景である．

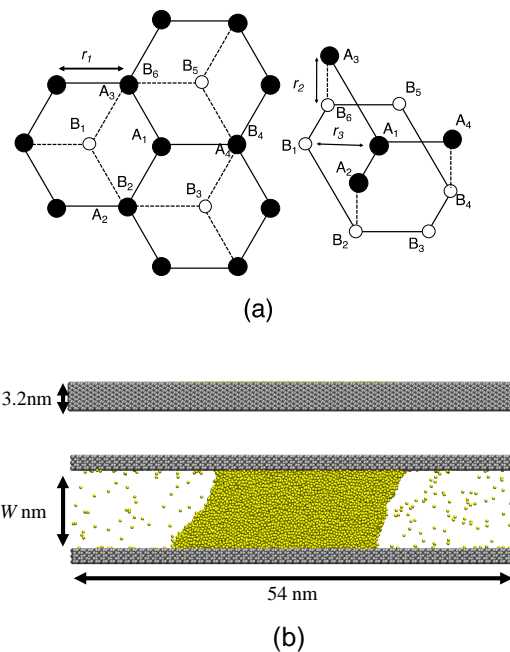


図 1. 本研究で用いた計算モデル．(a)固体壁面の形状．(b)スナップショット

2. 研究の目的

このような工学的及び学術的要請から，著者らはこれまでに分子動力学法を用いて微細な流路内を運動する液滴に働く力の微細流路幅依存性に関する研究を行った．本研究

では、水輸送において重要なパラメータである粘性係数及び水-壁面間の摩擦力及び摩擦力の大きさを決める物理量である粘性係数が流路幅や濡れ性といった壁面特性にどのように依存するのかを明らかにし、その依存性をモデル化する。また、固体-液体-気体が接している接触線近傍における摩擦力の評価も行った。

3. 研究の方法

分子動力学法を用いて液滴の運動を解析した。図1に本研究で使用する計算系を示す。流路を構成する壁は図1(a)に示すような六員環構造を持つ平行平板5層からなる α -グラフアイト型のスラブであり、これら2つを平行に配置する事で流路を構成する。スラブ間の距離を流路幅とした。また、最近接原子間距離 $D_1=0.3\text{nm}$ とし、層間距離 $D_2=0.34\text{nm}$ とした。内部を運動する液滴は Ar 原子で構成されており、液滴のスナップショットを図1(b)に示す。境界条件は x 及び y 方向に周期的境界条件をかし、単位格子の大きさは $3.2\text{nm}\times 54\text{nm}$ である。Ar 原子間相互作用は Lennard-Jones ポテンシャルで表現し、エネルギーパラメータを変更させることで様々な濡れ性を持った固体壁面を再現する。本研究では、

- (1) 液滴のせん断による摩擦力の評価
- (2) 等速で運動する液滴の接触線近傍の摩擦力の評価

を行ったので、それぞれの場合で液体の運動が異なる。

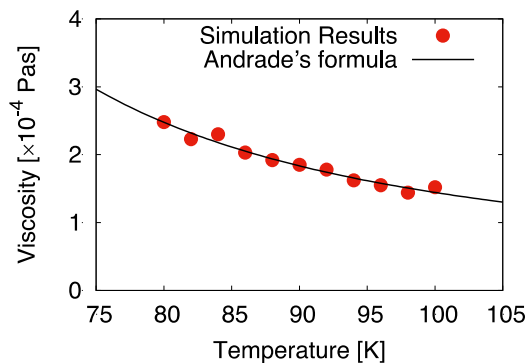


図2. アルゴン液滴の粘性係数と温度の関係。赤点は分子動力学法による計算結果を黒線はフィッティングした結果を表す。

4. 研究成果

- (1) せん断応力の温度依存性を考慮したせん断応力の流路幅依存性のモデル化

固体壁面を気液界面に垂直で上壁面を 10m/s 及び舌壁面を -10m/s で運動させ、その時の液滴中心部に生じるせん断を評価した。

せん断応力により液滴の温度は上昇し、その結果粘性係数は低下する。これにより、せん断応力が低下し生じる熱量も低下する。固体壁面の温度は一定であるとし、固体壁面に流れていく熱量とせん断応力によって生じている熱量が等しくなった状態で液滴の温度が一定になると考えた。そこで、熱流体方程式に基づいて液体内部の温度を求め、液体内部の平均温度に従って粘性係数を決定し、せん断で生じている熱量と固体壁面に流れる熱量が一致しているという条件から温度に関する方程式を導いた。マイクロスケールの解析では、固体壁面と液体間に温度差は生じないが、ナノスケールでは温度差が重要となるため、液体と固体間に温度差を許容するために通常の熱流体解析では用いないパラメータを用いた。このパラメータを以下では熱伝達率と呼ぶ。

得られた式から剪断応力を計算する為に、粘性係数の温度依存性を評価した。液体のみで構成された系を用いて固体-液体間の摩擦係数及び固体-液体間の熱伝達率を分子動力学法によって評価した。液体の熱伝達率は他の研究で求めた値を使用した。流路幅を 10nm とし、気液界面のないモデルを用いて計算を行った。この時、液体内部の圧力が 0MPa となるようにした。図2に粘性係数の温度依存性を示す。横軸は液体の温度を表し、縦軸は液体の粘性係数を表す。赤点は分子動力学法による計算結果を表し、黒線は指数関数によるフィッティングカーブを表す。フィッティングカーブが分子動力学法による計算結果をよく表していることがわかる。図3に熱伝達率の計算結果を示す。液体-固体間に生じている本研究で得られた式によって得られた剪断応力モデルによって得られた予測値と分子動力学法で求めた剪断応力を比較する。点線は内部に温度上昇を考慮しない場合のせん断応力であり、実践は温度上昇を考慮したせん断応力である。赤点は分子動力学法

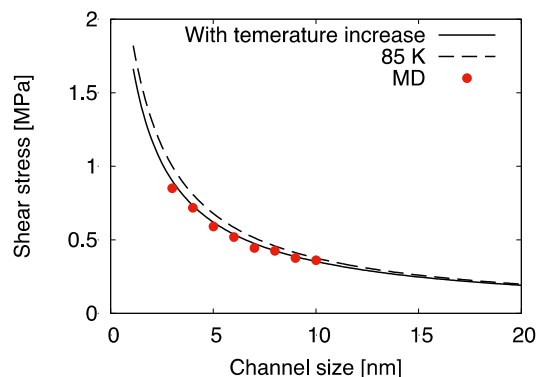


図3. アルゴン液滴の粘性係数と温度の関係。赤点は分子動力学法による計算結果を表す。

によって求めたせん断応力である。温度の上昇により、流路幅が小さくなるほど点線と実践との差が大きくなっていることがわかる。また、今回作った数値モデルを用いて計算した実線の結果は、分子動力学の計算結果である赤点とよく一致していることがわかる。これにより、温度の上昇を考慮したせん断応力を予測できる式を得ることができた。

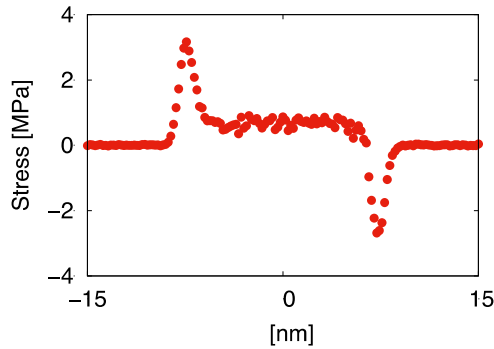


図 4. 液滴-固体壁面間に生じているせん断応力

(2) 接触線に働くせん断応力の流路幅依存性評価

液滴が等速で運動している状態を再現するために、液滴から最も外側にある壁面層を構成する原子の温度を 0 K とし、気液界面に垂直な方向に等速 10 m/s で運動させ、液滴が壁面から受ける摩擦力と同等の大きさで逆方向の力を水分子に均等に分配して付加する事で液滴の加速を抑え、「壁面から見て液滴が一方方向に等速で運動している系」を再現した。系の温度は 85K とした。この液滴が等速に運動している系において固体壁面-液滴間の摩擦力を評価した。スラブ間の距離 W を流路幅と考え、 $W=6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14$ nm と変化させた。内部を運動する液滴は Ar 原子で構成されており、その原子数は流路幅によって変化しそれぞれ、6000, 7000, 8000, 9000, 10000, 11000, 12000, 13000, 14000 と設定した。境界条件は x 及び y 方向に周期的境界条件をかし、単位格子の大きさは $3.2\text{nm} \times 54\text{nm}$ とした。Ar 原子間相互作用は Lennard-Jones ポテンシャルで表現した。Ar 原子-壁面原子間相互作用にも同様の Lennard-Jones ポテンシャルを適応し、相互作用の大きさを決めるパラメータを変更することで、滑り長さの大きさを変化させた。図 4 に Ren らの方法で求めた、流路幅 $W=10$ nm の場合における液滴-個体壁面間に働くせん断応力テンソルの yz 成分の y 方向分布を示す。 $y=0$ は液滴の中心を表している。液滴の中心近傍では一定のせん断応力が生じており、そこから離れた領域にせ

ん断応力のピークがあることがわかる。このせん断応力のピークが生じている領域は、接触線近傍であり、Ren らはこの領域のせん断応力分布を積分し、接触線に働く摩擦力を評価した。本研究でも同様の定義を採用し摩擦力を評価した。その結果両者の関係が線形になっていることがわかった(図 5)。液滴の運動による気液界面の変形やその流路幅依存性は接触角を用いて評価されることが多く、接触線に生じている摩擦力そのものを評価することが少ない。また、摩擦力を評価する場合でもその領域に生じている滑り速度と摩擦係数の積として表現することが多く、流路幅に対する依存性を明確に示す研究は調べた範囲では存在しないが、本研究により接触線に生じる摩擦力は流路幅及び気液界面から離れた中心領域に生じている剪断応力との間に明確な関係性を持っていることが示唆された。

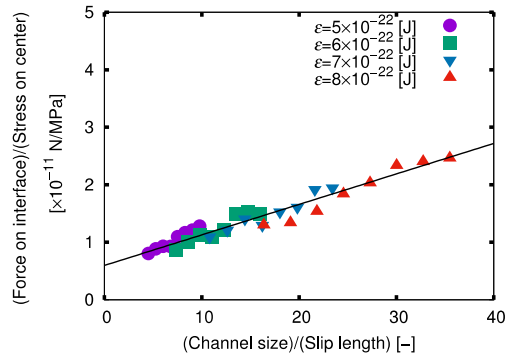


図 5. 接触先に作用する摩擦力の流路幅依存性

現在両方の結果で論文を執筆中であり、近日投稿する予定である。

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)

[雑誌論文](計 0 件)

[学会発表](計 6 件)

1. Akinori Fukushima, Molecular Dynamics Study of Droplet Shearing by Solid Walls, 12th International Conference on Fluid Dynamics, 2016/10/27-30, University of Fukui (Fukui)
2. Akinori Fukushima, Molecular Dynamics Study of Droplet Shearing by Solid Walls, 12th International Conference on Fluid

Dynamics, 2015/10/27-29, Sendai
International center (Miyagi)

3. 福島啓悟, 分子動力学を用いた接触線近傍に働く摩擦力の解析, 熱工学コンファレンス 2015, 2015/10/24-25, 大阪大学吹田キャンパス(大阪)
4. Akinori Fukushima, Transport Phenomena of Nanoscale Droplet in a Nano Pore, 13rd International Conference on Fluid Dynamics, 2015/10/10-12, Sendai International center (Sendai)
5. 福島啓悟, 微細流路内を運動する液滴の接触線近傍に働く摩擦力に関する分子論的研究, 流体力学会年会 2015, 2015/9/26-28, 東京工業大学大岡山キャンパス(東京)
6. Akinori Fukushima, Molecular Dynamics Study of Droplet Shearing by Solid Walls, 42nd Leeds-Lyon Symposium, 2015/9/7-9, Lyon(France)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福島 啓悟 (Akinori Fukushima)

福井大学・学術研究院工学研究部門・講師

研究者番号: 50725322