

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 27 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760153

研究課題名(和文) 分子スケールからの流体 壁面間相互作用の相補的な解明

研究課題名(英文) Investigation by Complementary Approach on Fluid-Surface Interaction from Molecular Scale

研究代表者

山口 浩樹 (Yamaguchi, Hiroki)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50432240

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：マイクロテクノロジーで多用される非金属材料に対する流体 壁面間相互作用を詳細に調べるため、統計的な平均量として分子と固体表面間のエネルギー交換を表す適応係数の計測が行える新しい計測システムの提案を行った。分子線散乱実験の装置に問題が発生したものの、分子動力学法を用いた数値解析により、定性的な傾向を調査することができた。その結果を反映させて適切な条件設定において計測実験を続けることにより、相互作用の特性解明につながっていくと期待できる。

研究成果の概要(英文)：To investigate the gas-surface interaction on non-metal surfaces widely used in the micro-technology, a novel measurement system for the thermal accommodation coefficient, which represents energy transfer between gas and surface, was proposed. Even though there were some troubles on a molecular beam scattering experimental apparatus, numerical analyses by the molecular dynamics method gave a qualitative characteristics on the gas-surface interaction. By setting appropriate conditions obtained from the numerical results, the successive measurements will lead to the understanding on characteristics of the interaction.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：流体工学 表面相互作用 適応係数 分子線散乱実験

1. 研究開始当初の背景

マイクロテクノロジーの進展によりマイクロ流体デバイスの開発が精力的に行われている。ただ、実用化されると大量生産へとつながるため、今後は効率の考慮が求められるようになると考えられる。このようなマイクロスケールの流れにおいては、分子の平均自由行程が系の代表長さに比べて無視できなくなり、分子同士の衝突が頻繁に起こり連続体として扱える通常のマクロな流れとは異なり、分子個々の運動として捉える必要がある。そして、分子の衝突数は分子同士よりも壁面との衝突が支配的になり、境界条件である壁面が流れ場に大きな影響を与えるようになる。そして、通常のマクロな流れでは見られないマイクロ流れ特有の現象が顕在化してくる。そのため、マイクロ流れの理解、さらには分子の観点に基づく流体壁面間相互作用に対する知見が不可欠となる。

壁面近傍における分子の挙動に関してはその重要性から多くの研究が行われており、特に近年は著しく発達した計算機を用いて分子動力学法による数値解析が精力的に行われている。しかし、数値解析結果の定量的な検証に必要な実験データの不足、数値解析における理想的な清浄表面を基本とする表面状態の制約、などにより定性的な議論に留まっており、知見を直接実際の開発設計に生かすほどの信頼性は確保できていないのは否めない。そのため、相互作用に関する精緻な実験データが渴望されている。

実験的には、分子と壁面における運動量やエネルギーなどの統計的な交換割合である適応係数の測定や、入射方向を規定した上で散乱角度方向に分解した強度分布、速度分布などの詳細な情報を得る分子線散乱実験が行われてきた。前者の適応係数は統計的な概略が把握できる点においては非常に実用的である。一方、後者の散乱分布は詳細な相互作用の機構を解明するためには不可欠である。これまでの計測は主に金属材料を対象としてきた。一方で、マイクロテクノロジーにおいて重要な材料は半導体や高分子材料、多孔質体などの非金属材料が多い。金属と非金属では、結晶構造、特性などが大きく異なり、相互作用の知見をそのまま生かすことはほぼ不可能である。そのため、非金属材料に対する新たな測定が必要不可欠であるが、従来の測定手法は非金属材料に適していないという問題もある。さらに、近年では研究報告もあまり見られなくなっており、今後も新しい実験データが提供される可能性はその必要性の割に低いと言わざるを得ない。また、報告が行われている金属材料ですら同じ分子と壁面の組に対する適応係数と散乱分布の両方の測定結果を揃えることは意外に困難であるため、統計量と散乱分布の実験結果から相互作用を解析する試みはほとんど行われておらず、統計量である適応係数に対して支配的である因子も明らかではない。

2. 研究の目的

本研究では特に非金属材料に対して流体壁面間相互作用に関する統計的及び詳細な知見を実験的に取得し、分子スケールの観点から数値解析も援用しながら相補的に解明することを目的とする。具体的には、エネルギーの統計的な交換割合を示すエネルギー適応係数測定実験と、入射と散乱の角度を特定した上で分子の散乱状態を明らかにする分子線散乱実験を実施し、その両極端な情報を分子動力学による数値解析を用いた定性的な議論を参考にしながら、詳細な流体壁面間相互作用を解析し、特にエネルギー適応係数を決定づける因子の解明を試みる。

まず、エネルギー適応係数測定実験では、従来の金属材料に対する手法が利用できないため、真空中における熱伝導量がエネルギー適応係数に依存することを用いた従来の手法を拡張して非金属材料にも適用できる新しい手法を確立する。適応係数は、様々な運動をする分子全体に対して平均化した場合に、分子の持つエネルギーが壁面との相互作用によって変化する効率を表現している。

次に、分子線散乱実験においては、壁面に対して速さと方向が揃った分子線を照射し、散乱してくる分子を特定の散乱角度において検出することにより強度を、また飛行時間法を組み合わせることにより速度分布を取得できる。入射及び散乱角度を変化させることで分布として求めることが可能となる。この結果は特定の速度ベクトルによって入射した分子の散乱速度ベクトル分布を明らかにする。

これらの実験において固体試料のみならず表面状態に影響する温度や真空環境などの条件についても揃えることにより、「統計的情報」と「詳細情報」を直接比較することができるようになる。従来の計測結果においては適応係数の計測と分子線散乱実験が別々に実施されてきたために、共通となる分子と固体表面の組み合わせの知見を見つかることも困難な状態である。また、固体試料の状態も大きく異なるために直接比較が難しい。とはいえ、これらは両極端な情報であるため、簡単に比較することはできない。そこで、分子動力学法による数値解析を援用しながら補完することにより、相補的に流体壁面間相互作用の全体像を解明することを試みる。なお、実験結果同士の関係性の解析には定性的な議論で十分であるため、定量的に検証が行われていない分子動力学法のパラメータを用いても十分有意義な情報を抽出することが可能であると期待できる。

このような詳細な検証を行うことによって、数値解析の境界条件として利用している壁面散乱モデルの検証を行うことが可能になる。さらには実験結果がない場合においても適応係数を支配する因子に着目することで境界条件のパラメータを精度よく推定することが可能になることも期待できる。

3. 研究の方法

(1) エネルギー適応係数測定実験

従来からエネルギー適応係数の測定に用いられている Low-Pressure (LP) 法は、自由分子流となる真空中にある温度差のついた表面間に発生する熱伝導量が圧力とエネルギー適応係数に依存することを利用し、熱伝導量の圧力に対する変化を測定することでエネルギー適応係数を算出する。そこで、ヒーターを用いて固体試料を加熱することで、通電加熱できない非金属材料の温度制御を試みる。金属材料の多くの計測は細線形状を利用してきたが、非金属材料は曲面の加工が容易ではないことも想定されるため、抜本的な系の変更を試みる。なお、エネルギー適応係数を解析的に導出するために、対称性が良い系を選択する。

新規に構築した実験系において、まずは既知となっている金属材料である白金の計測を行い、新しい手法の妥当性を検証する。なお、実験装置の制約から十分な真空環境が得られないことも想定されるため、より圧力の高い条件まで適用できるように LP 法を拡張した手法の適用も検討する。

その後、非金属材料に対する計測を実施する。測定したエネルギー適応係数は、分子種や条件などによって整理し、蓄積する。

(2) 分子線散乱実験

既設の分子線散乱実験装置は、超高真空環境において、別々に回転する固体試料と検出器である四重極質量分析計の組み合わせによって様々な入射及び散乱角度における強度及び飛行時間法を用いた速度分布の計測が可能である。しかし、装置は移設してきたものであり、従来の性能を発揮できる保証はない。そこで、まず装置の再構築を実施し、超高真空の到達度の確認を行う。その後、分子線の状態を直接計測することによって稼働状況を確認する。次に固体試料からの散乱の計測を用いての確認を行う。

その後、エネルギー適応係数の測定で用いられた分子と表面の組み合わせに対して、計測を順次行っていく。入射分子の速さと入射角度を変化させながら、それぞれの条件において散乱分子の強度、速度分布を散乱角度方向に分解した分布として取得し、条件の変化に伴う散乱分布への影響を明らかにする。

(3) 数値解析

分子動力学法による数値解析を行うことで、定性的な傾向によりエネルギー適応係数や散乱分布を決定付ける因子を明らかにしていく。手法としては、分子を一分子ずつ固体表面に照射して、散乱状態を記録する。適応係数測定実験と分子線散乱実験では入射条件が異なるが、どちらでも初期条件を各条件によって与えられる分布に従って変化させながら数多くのサンプルをとることで、統計量や散乱分布を求める。計算コードは開発

済みのものを改良することで対応する。

(4) 流体-壁面間相互作用の詳細解析

エネルギー適応係数は、分子が等方的かつ速度分布を持って運動している状態における統計的な平均量として表現されている「統計的情報」である。一方、分子線散乱実験によって、特定の入射角度と散乱角度で運動する分子の強度と速度分布という「詳細情報」が明らかになる。これらはかけ離れた情報であるため、数値解析の結果を使って補完することで、エネルギー適応係数と散乱角度分布の関係性について相補的に詳しく解析する。

4. 研究成果

(1) エネルギー適応係数の測定実験

ヒーターによる固体試料の加熱と新しい対称性の良い系を用いた、低真空環境にも適用可能な拡張した LP 法による新しい計測手法を開発した。

手法の検証のため、既に計測値の報告のある白金による計測を実施し、得られた結果と文献値を比較することによって手法の検証を行った。その結果、いくつかの仮定を導入しているにも関わらず、非常に高温となる領域を除いて十分な精度で計測できることを明らかにした。

次に、非金属材料に対する実証試験を行った。非金属材料に対する計測はほとんど知られていないが、数少ないデータのあるガラスを対象に計測を実施した。その結果、非金属材料に対しても測定の妥当性があることが示された。さらに、表面の清浄度の影響、気体分子の質量依存性についても検証し、従来通りの定性的な傾向を確認した。

(2) 分子線散乱実験

既設の分子線散乱実験装置に対して、まず装置の再構築を実施し、超高真空の到達度の確認を行った。その後、分子線を直接検出することにより、検出器の性能及び飛行時間分布の分解能の確認、入射分子線の状態の検証を行い、従来と同等の飛行速度が得られており、分解能としても十分であることを確認した。ただし、多少ばらつきが大きくなっている状態が確認された。次に、分子線を固体試料に照射して散乱分子の検出を試みたが、排気系に問題が発生したため、検出には至らなかった。なお、多数の機器を利用しており、その後も別の問題が発生したため、計測可能な状態へと復旧を急いでいる。

(3) 数値解析

分子動力学法を用いて単原子分子気体の白金からの散乱過程を数値的に解析した。特に入射条件を適応係数測定実験と分子線散乱実験それぞれに合わせ、ポテンシャルパラメータや分子質量、分子直径などが適応係数や散乱分布に与える影響を調査した。その結果、様々な要素が同じような程度で影響しあ

うために、確定的な影響を明らかにすることが難しいことが明らかになった。詳細を明らかにするためにはさらに多くの統計量の確保が必要ながことが判明した。

(4) 流体-壁面間相互作用の詳細解析

分子線散乱実験の停滞により直接的な比較は行えなかった。しかし、数値解析結果より様々な因子が影響しあうことが明らかとなったことから、比較するためには条件を精査する必要があることも判明した。また、現在まであまり計測されてこなかった非金属材料に対する適応係数の測定手法が開発できたことにより、今後、分子線散乱実験の実現と大規模数値解析を通して、エネルギー適応係数の性質の解明へとつながることが期待できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

H. Yamaguchi, K. Kanazawa, Y. Matsuda, T. Niimi, A. Polikarpov, I. Graur, Investigation on heat transfer between two coaxial cylinders for measurement of thermal accommodation coefficient, *Physics of Fluids*, 査読有, 24, 2012, 62002.
DOI: 10.1063/1.4726059

[学会発表](計9件)

H. Yamaguchi, T. Imai, T. Iwai, Y. Matsuda, T. Niimi, Experimental Study of Thermal Accommodation Coefficient on Non-metal Surface, The 5th International Conference on Heat Transfer and Fluid Flow in Microscale, 2014.04.22-25, Marseille, France.

岩井正, 山口浩樹, 今井崇雅, 松田佑, 新美智秀, 平板試料を用いたエネルギー適応係数の計測, 日本流体力学会年会 2013, 2013年09月12日-14日, 東京農工大学, 東京.

今井崇雅, 山口浩樹, 白崎信宏, 松田佑, 新美智秀, 平板試料を用いたエネルギー適応係数計測システムの開発, 日本機械学会 2012年度年次大会, 2012年09月12日-15日, 金沢, 石川.

H. Yamaguchi, T. Moriyama, K. Ide, J. Ito, Y. Matsuda, T. Niimi, Measurement of Rotational Temperature in Nitrogen Molecular Beam by REMPI, 28th International Symposium on Rarefied Gas Dynamics, 2012.07.09-13, Zaragoza, Spain.

H. Yamaguchi, Y. Matsuda, T. Niimi, Tangential Momentum Accommodation Coefficient measurements for various materials and gas species, 1st European Conference on Gas Micro Flows, 2012.06.06-08, Skithos, Greece.

H. Yamaguchi, T. Hanawa, O. Yamamoto, Y. Matsuda, Y. Egami, T. Niimi, Experimental Study on Tangential Momentum Accommodation Coefficient in a Single Microtube, 8th JSME-KSME Thermal & Fluids Engineering Conference (招待講演), 2012.03.18-21, Incheon, Korea.

白崎信宏, 山口浩樹, 今井崇雅, 松田佑, 新美智秀, 非金属表面に対するエネルギー適応係数の計測に関する研究, 日本機械学会 2011年度年次大会, 2011年09月12日-15日, 東京工業大学, 東京.

H. Yamaguchi, K. Kanazawa, Y. Matsuda, T. Niimi, Experimental Study on Measurement of Energy Accommodation Coefficient by Low-Pressure Method, The 4th International Conference on Heat Transfer and Fluid Flow in Microscale, 2011.09.04-08, Fukuoka, Japan.

H. Yamaguchi, K. Kanazawa, Y. Matsuda, T. Niimi, Experimental Study on Measurement of Energy Accommodation Coefficient on Platinum Surface, The 3rd GASMEMS Workshop, 2011.06.09-11, Bertinoro, Italy.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山口 浩樹 (YAMAGUCHI HIROKI)
名古屋大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 50432240