ナノ構造が固液界面熱抵抗に与える影響



芝原正彦*

Influenece of nanostructures on interfacial thermal resistance at a liquid-solid interface

Key Words: Interfacial thermal resistance, Liquid-solid interface, Nanostructures

1. はじめに

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 ズムや微細構造が固液界面熱抵抗へ与える影響の詳 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 とよばれる小型の機械 システムに用いられる流路や Nano Fluids とよばれ る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して,伝 熱性能の劣化を防ぐかが実用化の鍵となると考えら 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おり[1,2]、我々は固液界面 に存在するナノ構造の形状や間隔がどのようなメカ ニズムで、どの程度、固液界面熱抵抗に影響を及ぼ すかについて興味を持ち、加熱面にナノメートルス ケールの溝やナノ粒子などさまざまな微細構造が存 在する場合を考えて、微細構造やその間隔が界面熱 抵抗および固液界面における局所非平衡性に及ぼす 影響について非平衡分子動力学シミュレーションを 用いて調べてきた[3-5].本稿では、固液界面に存 在する微細構造やその間隔が固液界面熱抵抗や界面



* Masahiko SHIBAHARA

1969年12月生 東京大学大学院 工学系研究科 機械工 学専攻 博士課程修了 (1997年) 現在、大阪大学大学院 工学研究科 機 械工学専攻 教授 博士(工学) 熱工学 TEL:06-6879-4488 FAX:06-6879-4488 E-mail:siba@mech.eng.osaka-u.ac.jp て,非平衡分子動力学シミュレーションを用いて調 べた結果を概説する.

2. ナノ構造間隔が固液界面熱抵抗に与える影響

液体領域を二つの固体層で挟んだ計算モデルを用 い、下壁面に設ける微細な溝構造物の間隔Lを0.00 (フラット面), 0.70, 1.40, 2.81nm と変化させて シミュレーションを行った [3,4]. 固体層は上下面 とも原子4層からなるとし、液体領域側から3層目 の固体層1層にLangevin 法を用いて温度制御する ことにより、上下壁面間に温度差を設けて、系内に 熱流束を発生させた、液体分子は、並進の自由度の みを有する 12-6 Lennard-Iones 液体分子モデル.ま たは並進・回転の自由度を有する SPC/E 液体分子 モデルを用い、水分子と同等の分子量18.0を有す るとしている.固体(壁面および構造物)原子は, 鉄原子の原子量を有する粒子とし,固体-固体間の ポテンシャルには定性的理解を目的として12-6Lennard-Jones ポテンシャルを用いている. 異種粒子間 のポテンシャルパラメータについては Lorentz-Berthelot 則を用いて定めた。また、固体一液体間の相 互作用強さをαというパラメータで表現し、その影 響も調べた.なお.このパラメータαは固液界面の 濡れ性と関係し、微小液滴の接触角と一意な関係を 持つことが知られている.

本研究ではナノメートルスケールの溝構造を有す る平面と原子スケールまでフラットな完全平面を想 定しているが,溝構造を有する場合には構造最下部 において,完全平面の場合には平面最上部において, 界面での温度ジャンプ ΔT とその界面をz軸方向に 通過するエネルギー流束 Q_z から,次式(1)を用い て界面熱抵抗 R_t を計算した.

$$R_t = \frac{\Delta T}{Q_z} \tag{1}$$

また,下式(2)の分子スケールのエネルギー輸送式 を用いて,固液界面のエネルギー輸送メカニズムの 変化も調査した.式(2)の右辺第1項は分子の移動 の寄与を示し,第2項は分子間相互作用による寄与 を示しており,並進運動の自由度のみを有する分子 に対するエネルギー輸送式である[4,5].ここで, 検査体積Vは,液体相を熱伝導方向に10層に分割 した体積を用い,下壁面側から検査体積1,2,..., 10とした.また,SPC/E液体分子モデルでは,式 (2)の右辺第1項ならびに第2項に回転運動による 寄与が付加される.

$$Q_z = \frac{1}{V} \left[\sum_i E_i v_{z,i} + \frac{1}{2} \sum_i \sum_j z_{ij}^* (\mathbf{v}_i + \mathbf{v}_j) \cdot \mathbf{F}_{ij} \right]$$
(2)

図1に各液体分子モデルにおける構造物間隔Lと 界面熱抵抗の関係を示す.図1より,いずれの液体 分子モデルにおいても、本研究のパラメータの範囲 では構造物が存在する壁面ではフラット面に比べて 界面熱抵抗が低下することがわかる.また、構造物 間隔Lが同一の場合、固体一液体間のポテンシャ ルパラメータαが大きいほど熱抵抗は小さくなるこ とがわかる.



Fig.1 ナノ構造間隔が固液界面熱抵抗に与える影響

図2に、構造物間隔Lと固液界面におけるエネル ギー輸送機構の関係を示す.図2は、検査体積1(下 壁面に最近接領域)における,式(2)の右辺の第1 項ならびに第2項の各粒子間の相互作用による寄与 を示している.図2より、微細構造物が存在する壁 面ではフラット面に比べて液体分子一液体分子間 (Liquid-Liquid)および下壁面原子 – 液体分子間



Fig.2 ナノ構造間隔が固液界面エネルギー輸送機構 に与える影響

(Solid-Liquid)の相互作用による寄与が小さくなり、 構造物間隔 L=0.70 nm においてそれらの寄与は最 小となることがわかる.また、構造物原子一構造物 原子間(Nano-Nano)および下壁面原子一構造物原 子間(Solid-Nano)の相互作用による寄与は、構造 物間隔 Lに依存して変化が観察されており、構造 物間隔 L=0.70 nm においてそれらの寄与は最大と なることがわかる.以上より、構造物間隔 Lに依 存して固液界面でのエネルギー輸送メカニズムが変 化する条件が存在することが示唆される.

3. ナノ粒子付着が固液界面熱抵抗に与える影響

ナノ粒子付着が固液界面熱抵抗に与える影響を調 べるために、前章と同様の非平衡分子動力学シミュ レーションを行った [5]. ユニットセルとして, 4.5 × 4.5×5.0 nm³の液体およびナノ粒子領域が二つ の固体層に挟まれた計算モデルを用いた。本シミュ レーションにおいてナノ粒子は表面上を自由に移動 することができる、本研究では、ユニットセルあた り2個の直径2.0 nm のアモルファスの炭素ナノ粒 子を下壁面に付着させた。また壁面原子ー液体分子 間およびナノ粒子原子ー液体分子間のポテンシャル には、ポテンシャルパラメータ α_{wl} , α_{nl} (w:wall, n:nanoparticle, 1:liquid) を導入し, α_{wl} , α_{nl} を 変化させることで固体原子と液体分子間の相互作用 強さの影響を調べた [5]. 前述のとおり, これらの パラメータは巨視的な濡れ性と一意な関係があるこ とが知られている.

固液界面熱抵抗 Rtの計算については式 (1) と同様 に考えて,固液界面における温度ジャンプ ΔT を系 内の熱流束 Q で除することにより求めた.同様に, ナノ粒子層熱抵抗 R_n はナノ粒子層の温度差を ΔT_n を熱流束Qで除することにより求めた.また,ナノ粒子層が存在しない完全平面の場合では ΔT_n が定義できないため,ナノ粒子層の厚みに相当する温度差を熱流束で除することにより完全平面での相当熱抵抗を求めた.

図3に、炭素ナノ粒子が付着している場合に、相 互作用パラメータ $\alpha_{nl} \geq \alpha_{wl}$ が界面熱抵抗に与える 影響をそれぞれ示す. α_{nl} に対する固液界面熱抵抗 の変化から、ナノ粒子の付着により固液界面熱抵抗 は変化し、ナノ粒子と液体分子間の相互作用が強く なると固液界面熱抵抗は小さくなることが分かる. 他方、 $\alpha_{wl} = 0.12$, 0.24の両条件においてナノ粒子 が付着していない場合よりもナノ粒子が付着してい る場合において $R_t + R_n$ が小さくなる条件が存在し ている.つまり、ナノ粒子付着面の固液界面熱抵抗 が完全平面の固液界面熱抵抗よりも減少する条件が 存在し、この条件は、下壁面と液体分子間の相互作 用が比較的弱く、ナノ粒子と液体分子間の相互作用 が比較的大きい場合であることが示唆されている.



Fig.3 ナノ粒子付着が固液界面熱抵抗に与える影響

4.おわりに

非平衡分子動力学シミュレーションの結果より, ナノメートルスケールの構造物の付着や構造物間隔 によって,固液界面熱抵抗値やエネルギー輸送メカ ニズムが変化することを示した.また,ナノメート ルスケールの微細構造の付着によって,固液界面の 伝熱が良くなる場合と悪くなる場合の両方が存在す ることを示した.現在,分子間エネルギー輸送機構 に基づいた固液界面の伝熱設計に関する研究を継続 して行っている.

参考文献

- S. Maruyama and T. Kimura, "A Study on Thermal Resistance over a Solid -Liquid Interface by the Molecular Dynamics Method", Thermal Science & Engineering, Vol. 7, No. 1 (1999), pp. 63-68.
- L. Xue, P. Keblinski, S. R. Phillpot, S. U.-S. Choi and J. A. Eastman, "Two Regimes of Thermal Resistance at a Liquid-Solid Interface", Journal of Chemical Physics, Vol. 118, No. 1 (2003), pp. 337-339.
- M. Shibahara and K. Takeuchi, "A Molecular Dynamics Study on the Effects of Nanostructural Clearances on Thermal Resistance at a Liquid Water-Solid Interface", Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, Vol. 12, No. 4 (2008), pp. 311-319.
- 4) M. Shibahara and T. Ohara, "Effects of the Nanostructural Geometry at a Liquid-Solid Interface on the Interfacial Thermal Resistance and the Liquid Molecular Non-Equilibrium Behaviors", Journal of Thermal Science & Technology, Vol. 6, No. 2, (2011), pp. 247-255.
- 5) T. Matsumoto, S. Miyanaga and M. Shibahara, "Molecular Dynamics Study on the Influences of Nanoparticle Adhesion on Interfacial Thermal Resistance and Energy Transport Mechanism at a Liquid-Solid Interface", the Progress in Computational Fluid Dynamics, An International Journal, Vol. 13, Nos. 3/4, (2013), pp.162-171.