

ナノスケール・サーマルマネジメント基盤技術の創出
2017年度採択研究代表者

2019年度
実績報告書

小原 拓

東北大学流体科学研究所
教授

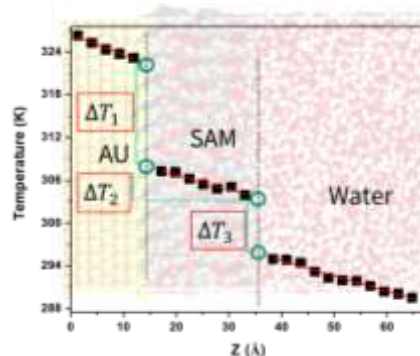
分子界面修飾とナノ熱界面材料による固体接合界面熱抵抗低減

§ 1. 研究成果の概要

パワー半導体など高密度発熱体からの大量の熱を効率的に輸送するため、微細な積層構造で熱の流れを阻害する界面熱抵抗を低減するための学理と技術が求められている。本研究は、固体層表面を特殊な分子で修飾する、固体表面間を分子で接合する、固体表面間にナノ物質層を介在密着させる(熱界面材料=TIM)などの技術により、固体層間に強力な熱的接続を確立するための学理を確立するものである。重要な研究要素は、TIM(液体、ソフトマター、ナノ複合物質)の探索、固体表面へのTIMの密着・濡れ、固体-TIM間界面の熱輸送特性、固体表面の分子修飾・分子接合による熱輸送制御などで、これらを解明するための実験計測法や数値解析法、試料界面の創製法も重要な課題である。

3年目となる2019年度は、解析に必要な数値計算法と実験計測法を確立することを目指して手法の開発を進めた。分子界面修飾が固液界面熱抵抗に及ぼす影響について、数値解析と実験試料創製・熱抵抗計測が並行して大きく進み、同じ解析対象に対する結果を計算・実験の両方向から比較検討する準備が整った。2020年度から本格的な解析が行われる予定である。その他、ナノ～マクロの様々なスケールにおける界面熱抵抗要因の実験計測・数値解析についても手法の開発が進み、一部については基礎研究の解析結果が蓄積されつつある。以下に概要を述べる。

固液界面に対する分子修飾技術の1つである自己組織化単分子膜(SAM)について、液体との界面における熱抵抗低減技術への応用の可能性を模索するため、分子動力学(MD)シミュレーションを用いたSAM界面熱輸送の解析を行った。界面熱輸送を促進する新たなSAMを探索するため、ポリエチレングリコール鎖を持つSAMの熱輸送解析を行い、その輸送メカニズムを明らかにした。これと比較検討するため、特に平滑化を施したAu表面に各種の親水性官能基をもつポリエチレングリコール系SAMを形成し、時間領域サーモフレクタンズ(TDTR)法を用いて界面熱抵抗を計測する実験を行って、分子長さや官能基の影響について系統的な理解が得られつつある。



Au-SAM-水系の分子系と温度分布

TDTR法による計測では、固液界面において、固体中の熱伝導の主役であるフォノン(格子振動)が液体の分子運動に熱エネルギーを伝えるメカニズムを、計測と理論計算の両面から追究している。超高速周期加熱によって固体中の温度振動場を最小で100nm程度に閉じ込めることで熱伝導フォノンを検知する計測装置を開発し、サファイア単結晶等で実測を行った。理論計算では、フォノン分散を考慮したモンテカルロシミュレーションにより、固体材料内におけるフォノン単位での熱輸送を解析するシステムを構築し、実測との比較検討を進めている。

固液界面とTIM内の熱輸送の分子スケールメカニズムを対象としたMD解析では、まず、温度勾配下の非平衡状態において分子の位置・速度の分布関数についての考察や、分子の位置及び速度のデータに基づいてマクロな熱流束を与える新しいMD表現式の導出など、極めて基礎的

な成果を得た。また、界面活性分子の固液界面吸着が熱輸送に与える影響や、TIM 素材として有望なソフトマターの例として、Layer by Layer (LbL)の熱輸送解析やカーボンナノマテリアル(特にナノダイヤモンド)の熱伝導率解析などに成果を得た。LbL については計算と同様の物質による試料創製の実験も進行しており、2020 年以降の早い時期に比較検討を開始したい。また、グラフェン-イオン液体系について試料創製が進んでおり、類似の系に対する MD 解析も開始した。

実機スケールにつながるマイクロスケール熱抵抗要素の研究では、昨年度に構築した表面点加熱側面検知のロックインサーモグラフィによるマイクロスケール界面熱抵抗測定手法の解析モデルを詳細化し、フィッティング精度の向上を図った。また、確立した装置および解析手法を用いて、種基板材料、界面処理の異なる試料の熱抵抗測定を行い、その違いを定量的に明らかにした。さらに、界面にかかる面圧を変化させながら計測できるよう装置改良を図り、界面熱抵抗の面圧依存性についても明らかにした。次に、界面熱抵抗の面内分布計測を実現するため、表面加熱裏面検知手法による測定装置を新たに構築した。

界面の熱輸送特性と並んで本研究の重点となるのは、固体表面の濡れや気泡が熱輸送に与える影響である。開発中の微小隙間内の液体温度分布計測法を発展させ、同時に液体層厚さ分布を計測する手法を考案し、原理検証を経てその有効性を検証した。また、ナノスケールの表面粗さを有するガラス表面に存在する残留気泡を計測し、気泡が占める面積割合が表面粗さと関係付けられることを示唆する結果を得た。

【代表的な原著論文】

1. Donatas Surblys, Hiroki Matsubara, Gota Kikugawa and Taku Ohara, “Application of atomic stress to accurately compute heat flux via molecular dynamics for systems with many-body interactions”, *Physical Review E*, Vol. 99, 051301(R), 2019.
2. Yuting Guo, Donatas Surblys, Yoshiaki Kawagoe, Hiroki Matsubara and Taku Ohara, “A molecular dynamics study of heat transfer over an ultra-thin liquid film with surfactant between solid surfaces”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 126, 185302, 2019.
3. Takuya Ishizaki and Hosei Nagano, “Measurement of 3D thermal diffusivity distribution with lock-in thermography and application for high thermal conductivity CFRPs”, *Infrared Physics and Technology*, Vol. 99, pp. 248–256, 2019.

§ 2. 研究実施体制

(1) 小原グループ

- ① 研究代表者: 小原 拓 (東北大学流体科学研究所 教授)
- ② 研究項目
 - ・固液界面熱輸送特性の解析
 - ・各種材料の TIM 適用性検討

(2) 菊川グループ

- ① 主たる共同研究者: 菊川 豪太 (東北大学流体科学研究所 准教授)
- ② 研究項目
 - ・有機分子修飾界面における熱輸送特性のナノスケール解析
 - ・ソフトな固液界面における界面親和性の分子論的解析

(3) 佐藤グループ

- ① 主たる共同研究者: 佐藤 正秀 (宇都宮大学工学部 教授)
- ② 研究項目
 - ・SAM 修飾表面の構築と高充填性分子接合表面創製プロセス構築への基礎的研究
 - ・ナノ材料分散型ソフトマター系熱界面材料と創製法の探索

(4) 八木グループ

- ① 主たる共同研究者: 八木 貴志
(産業技術総合研究所物質計測標準研究部門 主任研究員)
- ② 研究項目
 - ・界面熱抵抗計測技術の開発
 - ・分子修飾層等による固液界面の熱抵抗の評価
 - ・フォノン熱輸送計算技術の開発

(5) 元祐グループ

- ① 主たる共同研究者: 元祐 昌廣 (東京理科大学工学部 准教授)
- ② 研究項目
 - ・TIM 内温度分布、液膜厚さ分布の同時測定法の開発
 - ・固体表面上の残留気泡面積と表面粗さの関係の計測

(6) 長野グループ

- ① 主たる共同研究者: 長野 方星 (名古屋大学大学院工学研究科 教授)
- ② 研究項目
 - ・微視的スケールにおける局所的界面熱抵抗の計測手法および分布評価法の開発
 - ・実在接触界面における熱抵抗因子を考慮した界面熱抵抗のモデル化