C132

固液間のエネルギー輸送に関する分子動力学的研究

Molecular Dynamics Study of Energy Transfer between Solid and Liquid

○学 大石 英二 (富山大院)

正 岩城 敏博 (富山大工)

Eiji OHISHI and Toshihiro IWAKI, Toyama University, Gofuku 3190, Toyama, Toyama

The mechanism of thermal conduction between solid and liquid of single material was studied with the two-dimensional molecular dynamics method. The relation between the molecular movement and macroscopic thermal conduction was discussed under the assumption of stationary state. It was found that the size and the shape of a region defining a heat flux have little effect on the quantity of heat flux.

Key Words: Molecular Dynamics, Energy Transfer, Heat Flux, Lennard-Jones Potential

1. はじめに

分子動力学は、ナノテクノロジーの進展に伴い、ミクロな熱流体現象の解明に盛んに適応されている。しかし、温度、圧力、熱流速などの物理量はマクロ的な概念に基づくもので、ミクロな粒子の運動方程式を単に重ね合わせることで、マクロ的な物理量を表すことができるのかは大きな問題である。どのような条件でどのような平均化操作(空間平均・時間平均)で、分子運動がマクロな物理量に結びつけられるのか明らかにしておくことが重要である。

小竹は分子運動の式と連続体の基礎方程式(運動方程式⁽¹⁾・エネルギー式⁽²⁾・連続の式⁽³⁾)の関係を理論的に明らかにしているが、具体的な平均化操作、またその平均化操作が物理量に依存するかは明らかになっていない。本研究ではこのような背景をもとに、エネルギー輸送の問題を考える。分子動力学系におけるエネルギーは瞬時に決まり時間平均は含まれず、空間スケールの相違のみが問題になる。ここでいう空間スケールの相違とはどの程度なのか、すなわち分子動力学系におけるエネルギーが連続体のエネルギー式で用いられる熱流速や応力仕事に関して、どのように対応するのか検討しなければならない。

以上の観点から、本研究は固液相間の定常問題におけるエネルギー輸送と熱流速の定義領域の大きさについて検討を行った。

2. モデルと計算方法

2.1 固液粒子系と計算方法

熱伝導現象を計算するために、図1のような粒子系を考える。粒子系は上下に3層からなり、上部から加熱層、伝導層、冷却層とし、それぞれ $T=0.0248$ (Ar 換算 70[K]), $T=0.0163$ (Ar 換算 46[K])に制御し、一定温度差のもとで熱流速を計算する。 x 方向には周期境界条件を用い、 y 方向には、上端、下端の粒子一層を固定した。粒子間には Lennard-Jones(12-6)対ポテンシャルを用い、表1に示す定義領域の大きさが異なるモデルで比較した。データのサンプリングは、系が平衡状態に達してから、無制限時間で $t=50000$ (Ar 換算 22.15[ns])時間を行った。

2.2 分子動力学法による計算⁽²⁾

分子動力学系における熱流速は、

$$Q_k = q_k V = - \sum_{i \in V} \sum_{j' \in V'} \frac{1}{2} x'_{i,k} (v'_{i,l} + v'_{j',l}) F_{ij',l} \quad (1)$$

ここで、 v'_i および $v'_{j'}$ は、それぞれ領域 V 内粒子 i の速度 v_i と領域 V 外粒子 j' の速度 $v_{j'}$ から領域 V 内の粒子集団の瞬間時の質量中心速度を引いた速度であり、 x'_i は同様に求めた粒子での位置である。 $F_{ij'}$ は粒子 j' から粒子 i に作用する

Fig.1 Configuration of particle system and sub region

Table.1 Size of sub region

	l_x	l_y
model 1	94.06 (31.98[nm])	7.33 (2.49[nm])
model 2	35.27 (11.99[nm])	7.33 (2.49[nm])
model 3	7.33 (2.49[nm])	7.33 (2.49[nm])
model 4	14.66 (4.99[nm])	14.66 (4.99[nm])

力であり、 k, l は方向成分である。式(1)は、領域 V 外粒子 j' が領域 V 内粒子 i に寄与する熱流速、すなわち領域内外の粒子の相互作用によるもので、ここでは q^{out} で表す。連続体としての運動を考慮したエネルギー式に帰着するために、時間平均と粒子平均が交換できるような局所一様で

$$\frac{\partial}{\partial t} \sum_{i \in V} (x'_i e_i) = 0$$

が成り立つならば

$$Q_k = q_k V = \sum_{i \in V} e_i v'_{i,k} + \sum_{i \in V} \sum_{j' \in V'} \frac{1}{2} x'_{i,k} (v'_{i,l} + v'_{j',l}) F_{ij',l} \quad (2)$$

と表すことができる。ここで e_i は

$$e_i = \frac{1}{2} m_i v_i^2 + \sum_{j \in V} \frac{1}{2} \phi_{ij} + \sum_{j' \in V'} \frac{1}{2} \phi_{ij'} \quad (3)$$

となり、式(2)は、領域 V 内粒子 i のエネルギー移動と、それに寄与する領域 V 内粒子 j からの仕事との和、すなわち領域内の粒子の相互作用によるもので、これを q^{in} とする。式(2)の右辺第1項は粒子の運動によるエネルギー移動を意

味し、第2項は粒子間力による仕事としてのエネルギー増加を意味する。

3. 計算結果および考察

図2に各モデルでの温度分布、粒子数分布、状態図を示す。なお、制御領域に近接する領域は、その影響を強く受けるため省いた。図3にサンプリング時間に加熱・冷却層に入出力したエネルギーを示す。このエネルギーの時間平均値が、伝熱量(加熱層: 0.00624, 冷却層: -0.00612)に相当する。伝熱量と伝熱面 L_x より熱流速は、熱の流れる方向を正にとると加熱層では 0.000053, 冷却層では 0.000052 となる。

図4から図7に各モデルにおける 50000 時間で平均した熱流速分布 $\bar{q}$ を示す。横軸は領域の中心座標を示す。なお、モデル3に関しては、粒子数が少なく熱流速値が時間平均量によって著しく変動するため、便宜上 50000 時間分の熱流速値の平均を示す。温度勾配のある方向に関して式(1)および式(2)は、モデル1から4いずれの場合も、ある一定の値を示し、マクロと同様の挙動を表しているといえる。また、この結果から本研究で定義した領域の大きさが、熱流速へ与える影響は殆どないと考えられることができる。しかし、式(1)と式(2)を比較するとそれらの結果は異なっており、特に高温で顕著な違いがみてとれる。また、温度勾配がない方向にはマクロ的に熱流速が零にならなければならないが、式(1)の熱流速は零を示していない。

式(2)の右辺第一項の e_i は式(3)で表されるので、式(3)の

第1~3項に対応する項をそれぞれ、 q_k , q_{pin} , q_{pout} とし、式(2)の第2項を q_{work} とする。図8に温度勾配のある方向に関して各項の割合を示す。領域の温度が高くなるにつれて仕事の項 q_{work} が減少し、運動エネルギーによる q_k が増加していることがわかる。また、 q_{pin} および q_{pout} は温度の上昇に伴い増加しているが、その割合自体は小さい。

ここで、温度勾配のない方向に関する熱流速が零にならないこと、および高温領域で特に顕著である $q^{out} < q^{in}$ に注目すると、この程度の領域の大きさでは局所一様性が満足されていないと考えられるので、分子動力学法における熱流体现象と連続体における熱流体现象との関係を明らかにするためには、さらに検討が必要である。

参考文献

- (1) 小竹進, 分子動力学による熱流体方程式の誘導 1. 運動方程式, Thermal Science & engineering Vol.10 No.2 (2002), pp.47-54
- (2) 小竹進, 分子動力学による熱流体方程式の誘導 2. エネルギー式, Thermal Science & engineering Vol.10 No.3 (2002), pp.43-50
- (3) 小竹進, 分子動力学による熱流体方程式の誘導 3. 連続の式, Thermal Science & engineering Vol.10 No.5 (2002), pp.1-8
- (4) Barker, J.A. Henderson, D. and Abraham, F.F. Physica, 106A (1981), 226.

Fig. 2 Temperature, number of molecules and phase diagram

Fig.3 Energies of control regions

Fig.4 Heat flux (model 1)

Fig.5 Heat flux (model 2)

Fig.6 Heat flux (model 3)

Fig.7 Heat flux (model 4)

Fig.8 Contributions of $q_k, q_{pin}, q_{pout}, q_{work}$ (model 1)