OUKA
Osaka University Knowledge Archive

Title	Numerical study on local pressure components and interfacial tensions of liquid film in the vicinity of solid surface by classical molecular dynamics method
Author(s)	藤原, 邦夫
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/52207
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　藤原　邦夫　）	
論文題名	Numerical study on local pressure components and interfacial tensions of liquid film in the vicinity of solid surface by classical molecular dynamics method　(古典分子動力学法による固体壁面近傍に存在する液膜の局所的な圧力成分と界面張力に関する研究)

論文内容の要旨

ナノスケールの構造物を有する固液界面における熱力学的な状態の解明は，半導体洗浄での物質輸送と密接に関係することから重要であり，またナノスケールの構造物近傍のエネルギー輸送，相変化，濡れ等の工学的に重要な現象の解明や精密な制御のためにも重要である．しかし，分子スケールにおける構造物近傍の液体の熱力学的状態は基本的な系においてでさえ明らかでなく，また液体のような凝縮物質がそのスケールでどのような機構で輸送されるかも未解明である．

本論文では，平衡状態において分子スケールの気液界面のみからなる系に主に適用されていた従来の摂動的な方法を拡張させ，固体壁面近傍に存在する流体に作用する局所的な圧力成分と界面張力を求める方法が提案された．さらに，この摂動的な方法を分子シミュレーションの計算手法として利用し，瞬時・局所の圧力成分と界面張力を求める方法が提案された．Lennard-Jones系において，平坦な固体壁面と構造を有する固体壁面の近傍に存在する液膜の局所的な熱力学的状態(主に圧力成分，界面張力)を求めることを目的として，提案された方法を用いて古典分子動力学法による数値解析が行われた．また，構造物上に存在する液膜が構造物内へ輸送される分子論的な機構を局所的な圧力成分・界面張力に基づいて明らかにすることも目的とされた．

まず，平坦な固体壁面近傍に存在する液膜系の解析が行われ，提案された方法と従来の方法を一次元・二次元での結果で比較することにより，提案された方法によって十分な精度で局所的な圧力と界面張力が求まることが示された．

次に，構造物を有する固体壁面近傍に存在する液膜の動的な特性を把握するために非平衡分子動力学解析が行われ，液体が構造物内に一定時間内に浸入するかどうかやまた浸入する特性時間が流体-固体間の相互作用強さに依存することが明らかとなった．

提案された方法を用いて，構造物を有する固体壁面近傍に存在する液膜の密度分布・圧力分布が詳細に求められ，流体－固体間の相互作用が比較的強い場合には，構造物入口近傍の局所的な密度や圧力分布が他の部分と比較して異なることが明らかとなった．また特定の流体－固体間相互作用強さの場合に，構造物入り口近傍の液膜の気液界面が振動する等の分子の時空間スケールで特異な現象が生じることが明らかとなった．このような分子の時空間スケールにおいて凝縮物質が輸送される詳細な機構を解明することを目的として，構造物近傍の液膜に対して，本論文で定義された局所的な界面張力の分布が詳細に求められた．その結果，構造物内側の入口から2，3層目の固体原子近傍での局所的な界面張力値の低下が構造物上の液膜を輸送させる判断指標となることが示された．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（藤原　邦夫）			
	（職）	氏　名	
論文審査担当者	主査	教　授	芝　原　正　彦
	副査	教　授	矢　野　猛
	副査	教　授	赤　松　史　光
	副査	教　授	津　島　将　司

論文審査の結果の要旨

半導体デバイス製造工程における洗浄の基礎過程や固液界面熱抵抗が微細構造により変化するメカニズムをナノスケールにおいて理解するためには、微細構造を有する固体壁面と接する液体のナノスケールで定義される局所的な圧力成分や界面張力を求めることが重要であると考えられる。本論文では、固体表面からの外力が働く液膜系に対して分子動力学解析を実施し、ナノメートルスケールのスリット構造への液浸入過渡過程に関して現象論的な観察を行っている。また、分子動力学解析において、巨視的な圧力成分や界面張力と関係する局所における物理量ならびに瞬時・局所における物理量を流体－固体界面近傍において摂動的に求める方法を新たに提案している。さらに、ナノメートルスケールのスリット構造を有する固体に接する液膜系に対してこれらの物理量を求めて、スリット構造への液浸入の可否を議論可能かについて考察している。その主な成果は以下のとおりである。

（1）本論文で提案した摂動的方法によって求めた、巨視的な圧力成分や界面張力と関係する局所における物理量は、他の既存の方法で求めた局所の圧力成分や界面張力と十分な精度で一致することを数値解析的に示している。
（2）固体表面からの外力が働く液膜系に対して非平衡分子動力学解析を実施し、ナノメートルスケールのスリット構造への液浸入過渡過程に対する流体－固体間相互作用の強さならびに系の温度の影響を定性的に明らかにしている。
（3）ナノメートルスケールのスリット構造を有する固体に接する液膜系において、流体－固体間相互作用が強くなるにしたがって、スリット入口の角近傍における圧力成分の差が大きくなることを明らかにしている。
（4）ナノメートルスケールのスリット構造を有する固体に接する液膜系において、界面張力と関係する局所的な物理量が低下する箇所があることを明らかにしている。さらに、流体－固体間相互作用が強くなるにしたがって、その物理量がスリット構造内に液浸入が生じる場合の値に近づいていくことを示して、本物理量を用いてスリット構造への液浸入の可否の判断ができる可能性を示している。

以上のように、本論文は空間平均または時空間平均を行うと巨視的な圧力成分や界面張力と一致する局所または瞬時・局所における物理量を古典分子動力学解析によって実際に求める方法を新たに提案して、その適用性を数値解析的に検証しており、これらの物理量は微細構造を有する固体と接する液体の状態変化を予測するための指針となると考えられるため、工学的に重要なナノメートルスケールの固液界面現象の予測に利用できると期待できる。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。