

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03172

研究課題名(和文) ナノ細孔アレイからの液体の蒸発により生じる希薄気体流の解析と冷却デバイスへの応用

研究課題名(英文) Analysis of rarefied gas flows induced by liquid evaporation from nanoscale pore arrays and its application to cooling devices

研究代表者

杵淵 郁也 (Kinefuchi, Ikuya)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：30456165

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：細孔表面からの蒸発により生じる非平衡気体流れ(クヌッセン層)に関する知見を得ることを目的に研究を実施し、以下の成果を得た。(1)液体表面から蒸発した直後の気体分子の速度分布を飛行時間法により測定するために、真空環境に液面を長時間に渡って安定的に保持する方法を確立した。適切な寸法の細孔膜を利用して液面を保持することで、蒸発後の気体分子どうしの衝突を抑制できることを示した。(2)細孔表面からの蒸発により生じる気体流れを効率的に数値解析するために、分散低減型モンテカルロ法によりクヌッセン層を取り扱うための手法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

細孔表面からの蒸発は、自然や工学応用の様々な場面において普遍的にみられる現象である。高精度な蒸発モデルを構築するためには、液面から蒸発した直後の気体分子の速度分布を把握することが望まれるが、技術的困難から信頼性の高い計測結果はこれまでに報告されていない。また、細孔表面のように複雑な形状からの蒸発による非平衡気体流れを取り扱うために、効率的な数値解析法が求められている。本研究で得られた成果はこれらの課題の解決につながるものであり、今後、細孔からの蒸発を利用した気化冷却デバイスの開発などへの応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：We focused on nonequilibrium gas flows (Knudsen layers) induced by the evaporation from porous surfaces and obtained the following results. (1) To realize the velocity distribution measurement of gas molecules evaporating from a liquid surface using the time-of-flight method, we developed a novel experimental technique to maintain a liquid-vapor interface in a vacuum environment for a long period. The use of a porous membrane with an adequate pore size can significantly suppress the collisions between gas molecules after the evaporation from the liquid surface. (2) Numerical techniques were developed to efficiently analyze evaporating gas flows from porous surfaces using the low-variance deviational Monte Carlo method.

研究分野：流体工学

キーワード：分子流体力学 希薄気体流 気液界面 クヌッセン層 高熱流束除熱

様式 C - 19, F - 19 - 1, Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、炭化珪素や窒化ガリウムなどを用いた次世代パワー半導体デバイスの研究開発が急速に進展しており、低損失の電力変換素子や高周波・高出力素子の実現が期待されている。これらの次世代デバイスでは、従来のデバイスと比較して発熱密度が飛躍的に増加するため、素子の性能を活かすためには  $1 \text{ kW/cm}^2$  以上の高熱流束を除熱する冷却技術が必要とされている。

このような高い熱流束に対応するために、従来の空冷方式に代わってマイクロ流路を用いた液体による冷却が試みられてきた。特に、流路内において液体を蒸発させて潜熱を利用することにより、単層流の場合と比較して、低い温度差で高い熱流束を得ることが可能となる。しかしながら、マイクロ流路内では相変化に伴う流れの不安定性により、流路内の温度、圧力が大きく変動し、安定した冷却を実現する上での課題となることが指摘されている[1]。

この問題を克服するために、図 1 に示すように、ナノ細孔アレイ膜を用いた気化冷却デバイスが提案されている[2]。毛細管圧を利用することにより、熱流束の空間分布や時間変動に追従して液体が供給されるため、安定した動作が可能であるという利点がある。細孔形状と作動流体を適切に選択することにより、 $1 \text{ kW/cm}^2$  以上の熱流束を除熱できると見積もられている[3]。今後、提案されている冷却デバイスの動作を検証し、性能の最適化を進めていくためには、内部の熱流動現象を詳細に把握する必要がある。

ナノ細孔からの液体の蒸発により生じる気体の輸送現象を理解するためには、気液界面において蒸発・凝縮する分子の微視的挙動と、それによって誘起される高クヌッセン数流れの流動構造についての知見が求められる。

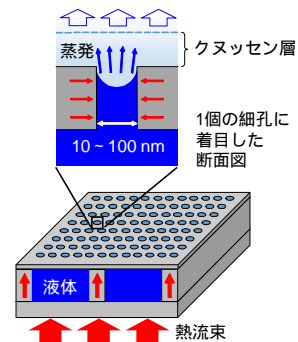


図 1 ナノ細孔アレイ膜を用いた気化冷却デバイス

### 2. 研究の目的

本研究は、ナノ細孔アレイ膜からの液体の蒸発を利用した高性能熱輸送デバイスを実現することを最終目標として、その実現のために必要となる気液相変化を伴うナノスケールの流動現象に関する知見を得ることを目的とした。作動流体としては、熱輸送性能と耐ドライアウト性のバランスが良いと見込まれている[3]水を対象とした。具体的には、以下の課題に取り組んだ。

- (1) 液体表面から蒸発する気体分子の速度分布計測技術の構築
- (2) 液体の蒸発によりナノ細孔アレイ膜に生じる非平衡気体流れの流動特性の評価

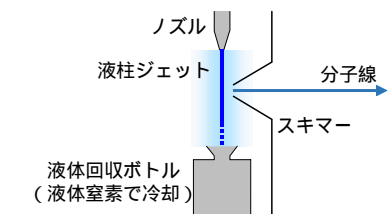
### 3. 研究の方法

#### (1) 液体表面から蒸発する気体分子の速度分布計測技術の構築

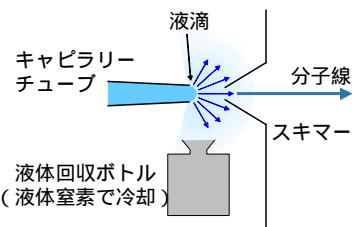
液面から真空中に蒸発する水分子を分子線として抽出し、飛行時間法により分子の速度分布を計測する実験系の構築に取り組んだ。気相の密度が速やかに減少するように分子線を抽出することで、気体分子どうしの衝突を可能な限り抑制し、液面から離れた直後の気体分子のものに近い速度分布が計測できる。

このような発想に基づいて過去に行われた計測の事例として、液体の水を柱状ジェットとして真空容器内に導入し、分子線を生成した例[4,5]が挙げられる。図 2(a)に示すように、円柱表面から水を蒸発させることにより、円柱軸からの距離の逆数に比例して蒸発流束が減少する。しかし、過去に実施された計測では、蒸発直後の水分子が 2~12 回衝突してしまい、蒸発直後の速度分布を計測するには至っていない。

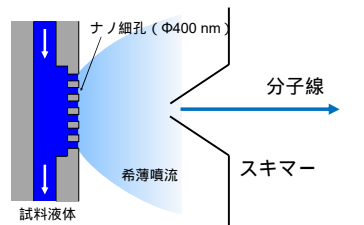
そこで本研究では、蒸発直後の状態により近い速度分布の計測を実現することを目指し、図 2(b)(c)に示す 2 種類の構成による分子線の生成を検討した。図 2(b)では、キャピラリーチューブの先端に保持された直径数  $\mu\text{m}$  の液滴から蒸発する水分子を分子線として抽出する。液滴の中心からの距離の逆数の二乗に比例して蒸発流束が減少するため、過去に柱状ジェットを用いて行われた計測と比較して気体分子どうしの衝突の影響が著しく低減され、蒸発直後の状態がより保たれた速度分布が取得できるものと期待できる。図 2(c)では、サブミクロンスケールの細孔が格子状に多数配列された細



(a) 柱状ジェット (従来の方法)



(b) キャピラリーからの蒸発 (本研究)



(c) 細孔アレイ膜からの蒸発 (本研究)

図 2 分子線源の構成

孔アレイ薄膜を利用する。細孔を配置する領域を気体分子の平均自由行程程度にすることで、キャピラリーチューブを用いた場合とほぼ同様に、蒸発流束が距離の逆数の二乗におおよそ比例して減少するため、蒸発後の衝突の影響を実質的に排除した速度分布の計測が実現される。

(2) 液体の蒸発によりナノ細孔アレイ膜に生じる非平衡気体流れの流動特性の評価

ナノ細孔アレイ膜を用いた気化冷却デバイスでは、水の蒸発により生じる気体流れのマッハ数は高々0.1程度と見積もられる。高クヌッセン数流れの代表的な数値解析法であるモンテカルロ直接シミュレーション (direct simulation Monte Carlo: DSMC) 法は、マッハ数の低い流れでは統計的揺らぎが大きくなり、十分に収束した解を得るために必要な計算量が膨大になってしまうという問題がある。隣接する細孔間の流れの干渉を評価するためには2次元・3次元計算が必要であるが、通常のDSMC法によってこのような低マッハ数の流れを解析することは計算量の観点から現実的ではない。

この問題を解決するために、本研究では、基準となる平衡速度分布からのずれに着目してモンテカルロ計算を実行する分散低減型DSMC (low-variance DSMC: LVDSMC) 法[6]を用いた。マイクロ・ナノスケールデバイス内に生じる流れは、界面近傍の非平衡性の強い領域を除いて大部分の領域において平衡状態からの速度分布のずれはわずかであることから、計算負荷の大幅な低減が実現できる。

4. 研究成果

(1) 液体表面から蒸発する気体分子の速度分布計測技術の構築

はじめに図2(b)に示したキャピラリーチューブを用いた液滴の保持を試みた。その結果、水滴の蒸発に伴いキャピラリーチューブ先端に不純物が蓄積してしまうため、長時間に渡って清浄な液面を保持することが困難であることが明らかになった。この問題を解決するために、図2(c)に示すナノ細孔アレイ膜を用いた構成を考案し、分子線源の構築に取り組んだ。細孔アレイ薄膜は、SOI (silicon on insulator) 基板に対して微細加工プロセスを適用して作成した(図3)。毛細管現象により細孔内に液水が供給され、細孔出口で接触線がピン止めされることにより、液面の安定的な保持が実現される。

細孔膜の厚さを1マイクロメートルまで薄化し、蒸発により細孔内の液水に誘起される流速と、水に含まれる不純物の拡散速度を釣り合わせることで、気液界面への不純物の蓄積を抑えられることを確認した。さらに、細孔膜の裏面に脱気水を供給する循環流路機構(図4)を作成し、本機構を用いた実験により、真空容器内で気液界面を長時間安定的に保持できることが実証された。さらに、光の干渉を利用した計測から、液面が細孔膜の出口付近に保持されていることも確認した。

以上の結果から、提案した手法により、液面から蒸発した直後の非平衡状態にある気体分子の速度分布を計測する目処が立った。

(2) 液体の蒸発によりナノ細孔アレイ膜に生じる非平衡気体流れの流動特性の評価

はじめに、液面からの蒸発により生じる非平衡気体流れ(クヌッセン層)をLVDSMC法を用いて解析する際の、無限遠方における境界条件の定式化を行った。クヌッセン層の外側(無限遠方)では、気体分子の速度分布が平均流速の分だけオフセットしたMaxwell-Boltzmann分布に従うとして境界条件を与える。平均流速、温度、分子数密度のうち、独立なパラメータは1つのみであることが分かっており、DSMC計算において平均流速のみを固定する境界条件の与え方が提案されている[7]。本研究では、同様の境界条件をLVDSMC法で実現するための手法を構築した。また、LVDSMC法において、衝突過程の非線形成分を無視した場合でも、マッハ数が0.5以下であれば流れを十分な精度で再現できることが明らかになった。

次に、LVDSMC法を用いてスリット状細孔からの蒸発を解析した(図5)。細孔表面の開口率は0.5で一定とし、スリット間隔を変化させて解析を行った。LVDSMC法を用いることで、DSMC法では計算コストが過大となり実行することが困難な大きなスリット間隔に対しても解析を行

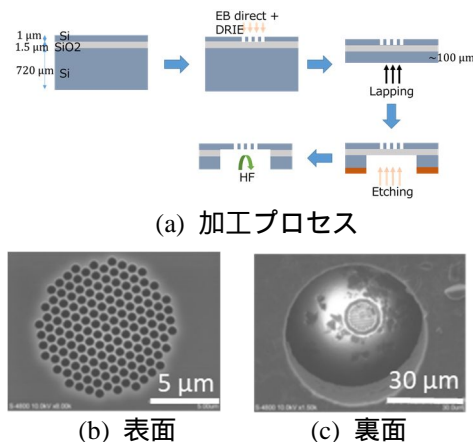


図3 細孔アレイ薄膜

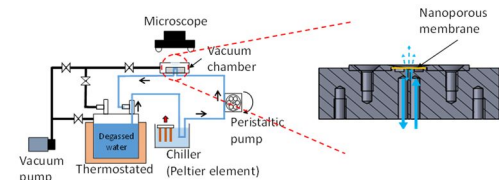


図4 試料液体の供給機構

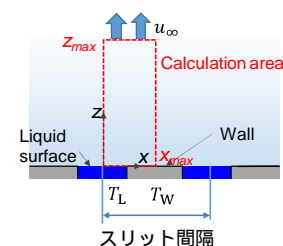


図5 スリット状細孔からの蒸発



うことが可能となった。LVDSMC 法と DSMC 法を用いて、同じ計算コストで得られた流れ場の比較を図 6 に示す。LVDSMC 法の結果はノイズが少ないことから、LVDSMC 法は高精度の結果を少ない計算コストで得られることが分かる。蒸発流束の圧力依存性を図 7 に示す。スリット間隔が十分に狭い場合には、結果は蒸発・凝縮係数が開口率と等しいとした 1 次元クヌッセン層の結果に漸近する。一方で、スリット間隔が平均自由行程と比較して十分広い場合、質量・運動量・エネルギー保存則に基づく巨視的モデルの結果に漸近することが確認された。

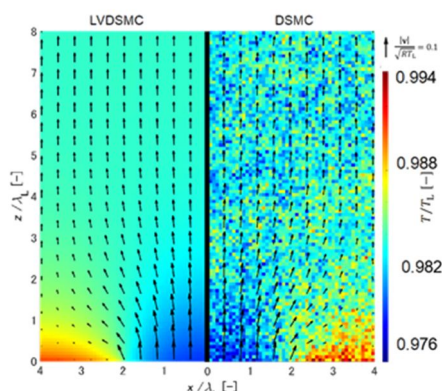


図 6 DSMC 法と LVDSMC 法で得られた計算結果の比較

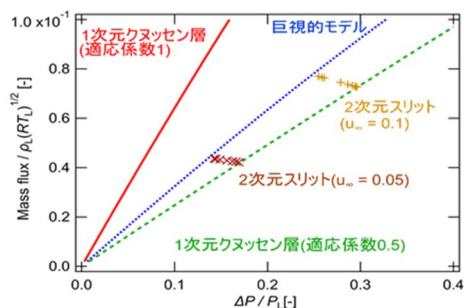


図 7 蒸発流束の圧力依存性

- [1] Y. Won et al., *Proc. IEEE Compound Semiconductor Integr. Circuit Symp.*, 1 (2013).
- [2] R. Xiao et al., *Appl. Phys. Lett.* **102**, 123103 (2013).
- [3] Z. Lu et al., *Langmuir* **31**, 9817 (2015); *IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol.* **6**, 1056 (2016).
- [4] M. Faubel et al., *Z. Phys. D* **10**, 269 (1988).
- [5] C. Hahn et al., *J. Chem. Phys.* **144**, 044707 (2016).
- [6] T. M. M. Homolle and N.G. Hadjiconstantinou, *J. Comput. Phys.* **226**, 2341 (2007).
- [7] A. Frezzotti, *Eur. J. Mech. B* **26**, 93 (2007).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Daniel F. Hanks, Zhengmao Lu, Jay Sircar, Ikuya Kinefuchi, Kevin R. Bagnall, Todd R. Salamon, Dion S. Antao, Banafsheh Barabadi, Evelyn N. Wang	4. 巻 12
2. 論文標題 High Heat Flux Evaporation of Low Surface Tension Liquids from Nanoporous Membranes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 7232-7238
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsami.9b20520	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhengmao Lu, Ikuya Kinefuchi, Kyle L. Wilke, Geoffrey Vaartstra, Evelyn N. Wang	4. 巻 10
2. 論文標題 A unified relationship for evaporation kinetics at low Mach numbers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2368
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-019-10209-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhengmao Lu, Ikuya Kinefuchi, Kyle Wilke, Geoff Vaartstra, Evelyn Wang	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 A Unified Relationship for Evaporation Kinetics at Low Mach Numbers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-019-10209-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhengmao Lu, Kyle L. Wilke, Daniel J. Preston, Ikuya Kinefuchi, Elizabeth Chang-Davidson, Evelyn N. Wang	4. 巻 17
2. 論文標題 An Ultra-Thin Nanoporous Membrane Evaporator	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 6217-6220
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.7b02889	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yuta Yoshimoto, Takuma Hori, Ikuya Kinefuchi, Shu Takagi	4. 巻 96
2. 論文標題 Effect of capillary condensation on gas transport properties in porous media	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 43112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.96.043112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takuma Hori, Takafumi Kamino, Yuta Yoshimoto, Shu Takagi, Ikuya Kinefuchi	4. 巻 97
2. 論文標題 Mutual influence of molecular diffusion in gas and surface phases	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 13101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.97.013101	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計22件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 今井 宏樹, 石原 聖也, 吉本 勇太, 高木 周, 杵淵 郁也
2. 発表標題 多孔体表面からの蒸発による非平衡気体流れの解析
3. 学会等名 第33回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 杵淵 郁也, Zhengmao Lu, 吉本 勇太, Evelyn Wang
2. 発表標題 多孔体表面からの蒸発に伴う非平衡気体流れの数値解析
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今井 宏樹, 松本 浩史, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 高木 周, 杵淵 郁也
2. 発表標題 分散低減型モンテカルロ法による気液界面近傍の非平衡気体流れの解析
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今井 宏樹, 松本 浩史, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 高木 周, 杵淵 郁也
2. 発表標題 分散低減型モンテカルロ法による多孔体表面からの蒸発の解析
3. 学会等名 第56回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本 浩史, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 分散低減型モンテカルロ法における気液界面の境界条件の検討
3. 学会等名 第55回 日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡辺 力, 佐藤 匠, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 水面から蒸発する非平衡気体分子の速度分布計測系の構築
3. 学会等名 第55回 日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ikuya Kinefuchi, Yuta Yoshimoto, Zhengmao Lu, Evelyn N. Wang
2. 発表標題 Analysis of Evaporating Flows of Polyatomic Molecules from Two-dimensional Slit Pore Arrays
3. 学会等名 31st International Symposium on Rarefied Gas Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Chikara Watanabe, Takumi Sato, Takuma Hori, Yuta Yoshimoto, Shu Takagi, Ikuya Kinefuchi
2. 発表標題 Measurement of Non-equilibrium Velocity Distribution of Evaporating Molecules from a Liquid Surface
3. 学会等名 31st International Symposium on Rarefied Gas Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroshi Matsumoto, Takuma Hori, Yuta Yoshimoto, Shu Takagi, Ikuya Kinefuchi
2. 発表標題 Low variance Monte Carlo simulation of the one-dimensional non-equilibrium flow near a vapor-liquid interface
3. 学会等名 31st International Symposium on Rarefied Gas Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杵淵 郁也, Zhengmao Lu, 松本 浩史, 今井 宏樹, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 高木 周, Evelyn Wang
2. 発表標題 二次元スリットアレイからの蒸発により生じる非平衡気体流れの数値解析
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2018
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 渡辺 力, 佐藤 匠, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 気液界面から蒸発する非平衡気体分子の飛行時間分布計測系の構築
3. 学会等名 日本機械学会 2018年度年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松本 浩史, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 分散低減型モンテカルロ法を用いた気液界面近傍1次元流れの解析
3. 学会等名 日本機械学会 2018年度年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ikuya Kinefuchi, Zhengmao Lu, Hiroshi Matsumoto, Hiroki Imai, Takuma Hori, Yuta Yoshimoto, Shu Takagi, Evelyn N. Wang
2. 発表標題 Numerical analysis of nonequilibrium gas flows induced by evaporation from two-dimensional nanoscale slit arrays
3. 学会等名 71st Annual Meeting of the American Physical Society Division of Fluid Dynamics (APS DFD2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杵淵 郁也, 松本 浩史, 今井 宏樹, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 高木 周
2. 発表標題 蒸発に伴う非平衡気体流れの解析への分散低減型モンテカルロ法の適用
3. 学会等名 第32回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 堀 琢磨, 吉本 勇太, 高木 周, 杵淵 郁也
2. 発表標題 表面拡散効果を考慮した多孔体内の気体輸送のモンテカルロシミュレーション
3. 学会等名 第54回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 杵淵 郁也, 本多 拓哉, 松本 浩史, 吉本 勇太, 堀 琢磨, 茂木 克雄, 高木 周
2. 発表標題 環境制御型走査電子顕微鏡を用いた滴状凝縮の可視化
3. 学会等名 可視化情報シンポジウム2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 磯村 浩一, 安 華, 堀 琢磨, 吉本 勇太, 井ノ上 泰輝, 杵淵 郁也, 千足 昇平, 高木 周, 丸山 茂夫
2. 発表標題 水の滴状凝縮・蒸発によるカーボンナノチューブ配向膜の構造変化メカニズムの検討
3. 学会等名 日本機械学会 2017年度年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松本 浩史, 本多 拓哉, 吉本 勇太, 堀 琢磨, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 Si(100)表面における微小水滴の凝縮過程の可視化及び解析
3. 学会等名 日本機械学会 2017年度年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉本 勇太, 堀 琢磨, 杵淵 郁也, 高木 周
2. 発表標題 多孔質材料内部における毛管凝縮が気体輸送特性に与える影響
3. 学会等名 日本機械学会 2017年度年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ikuya Kinefuchi, Yuta Yoshimoto, Takuma Hori
2. 発表標題 Capillary Condensation and Its Impact on Gas Transport in Mesoporous Media: A Numerical Simulation Based on the Three-dimensional Structure of Materials
3. 学会等名 Fourteenth International Conference on Flow Dynamics (ICFD2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yuta Yoshimoto, Takuma Hori, Ikuya Kinefuchi, Shu Takagi
2. 発表標題 Numerical analyses on the effect of capillary condensation on gas diffusivities in porous media
3. 学会等名 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takuma Hori, Yuta Yoshimoto, Shu Takagi, Ikuya Kinefuchi
2. 発表標題 Pore size distribution effect on rarefied gas transport in porous media
3. 学会等名 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	吉本 勇太  (Yoshimoto Yuta)  (90772137)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教   (12601)	
研究 分担者	堀 琢磨  (Hori Takuma)  (50791513)	東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授   (12605)	