

# 卒業論文要旨

## ライデンフロスト状液滴の制御に向けた異種溶媒による液滴挙動に関する基礎研究

システム工学群

川原村研究室 1220175 山田 啓司

### 1. 研究背景

現代まで人類が生み出してきた工業技術の中で、熱機関や液体冷却法、および半導体作製には、ライデンフロスト現象<sup>[1]</sup>が関与している。液体冷却法は液体によって急冷する手法だが、ライデンフロスト現象が意図せず発生することによる急冷阻害や冷却むらの発生などの課題が挙げられている。また半導体作製の成膜工程においても、高温環境にミストが存在することからライデンフロスト現象の関与が提唱されてきた<sup>[2]</sup>。そこで、ライデンフロスト現象を解明することによる産業分野の排熱<sup>[3]</sup>再利用や液体冷却法の効率化、半導体作製における成膜手法の操作性向上など、さまざまな技術革新が予想される。本研究では、各温度帯における異種溶媒液滴の移動速度や蒸発時間、蒸気膜厚さに関する実験を行い、その解析を通して、産業分野への応用を見据えた。

### 2. ライデンフロスト現象

ライデンフロスト現象とは、図1に示すように液滴が高温物体に接触、もしくは近接することで形成される蒸気膜によって液滴と高温物体が非接触状態となり、熱の伝導率が減少することで蒸発時間が増加する現象を指す。この現象は1756年にJohann Gottlob Leidenfrostが報告した。本研究ではライデンフロスト現象によって蒸発時間が最大となる温度をライデンフロスト点と呼ぶ。

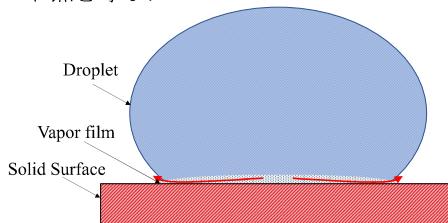


Fig.1 Leidenfrost phenomenon

### 3. 非対称な高温鋸歯面における液滴の自走

液滴を図2に示す高温鋸歯面上に滴下した場合、ライデンフロスト液滴は自走する。この挙動に対し、本論では鋸歯形状による蒸気の整流や接触蒸発による推進力と仮定している。しかし、ライデンフロスト現象による鋸歯面との弹性衝突や蒸気の動粘度を含めた各種物性値などの要因も挙げられるため、今後自走メカニズムの解明に向けた調査をする。

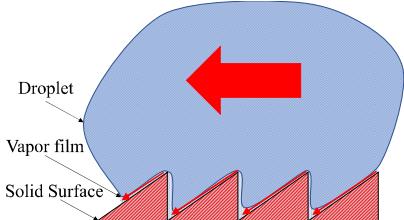


Fig.2 The behavior of a water droplet on sawtooth substrate at the high temperature

### 4. 目的

産業分野の中でも業種によって扱う温度帯は異なり、液体も純溶媒とは限らない。よって幅広い条件下でのライデンフ

ロスト液滴の挙動を把握しておく必要がある。本研究ではライデンフロスト液滴の挙動を解明するための足懸りとして異種溶媒による自走観測実験(C1)、蒸発時間測定実験(C2)、蒸気膜厚さ測定実験(C3)を行い、各実験結果との関連性を調査した。

### 5. 自走観測実験(C1)

ヒーターにより各温度に加熱した鋸歯基板上に液滴を滴下し、滴下後の自走を8倍スローモーションで撮影した。その後、撮影動画をコマ送りにして、0.0625秒ごとの移動距離から速度を算出した。本実験では異種溶媒による液滴挙動の変化を観測するため、超純水とIPA、超純水とIPAを混合比1:1で調節した溶媒を使用した。実験条件を表1に示す。

Table.1 Experimental conditions

Solvent	D.I.water / IPA Mixed solution
Liquid volume[μl]	33.6
Droplet radius[mm]	2
Substrate surface temperature[°C]	200~400 300~400
Measurement temperature interval[°C]	25
Number of trials[times]	5

### 5.1 実験結果・考察

各種溶媒の移動速度測定結果を図3に示す。超純水は基板温度の上昇に伴って減速する傾向が見られた。これは、基板温度上昇による動粘度の上昇が液滴の移動速度を低下させたと推察する。IPAは接触蒸発が無く、300°C付近まで温度上昇による加速が見られ、全体的な速度変化が超純水の場合と比べて小さくなかった。この結果に対して、現時点では接触蒸発の有無や蒸気の動粘度が超純水と異なることが影響していると考察する。混合溶液による測定結果ではIPAと同じ挙動を示したが、これは蒸発初期段階で超純水よりも飽和温度の低いIPAの蒸気が多く発生し、液滴の推進に対して接触蒸発などによる加速よりも十分に厚い蒸気膜が形成しており、蒸気の影響が支配的であることから挙動が近似したと推察する。

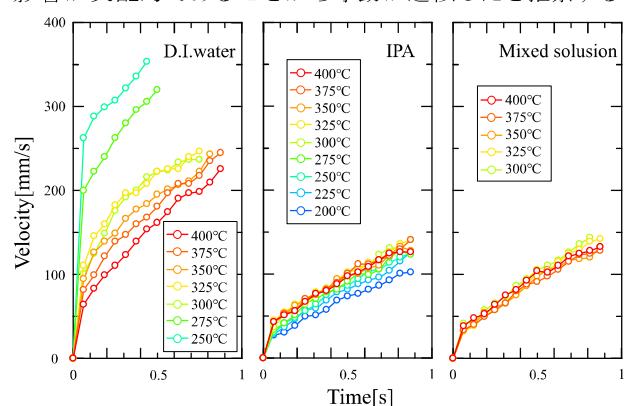


Fig.3 Droplet moving speed

### 6. 蒸発時間測定実験(C2)

ヒーターにより各温度に加熱した基板上に液滴を滴下し、目視で確認しながら液滴が消失するまでの蒸発時間を秒時計

で測定した。実験条件を表2に示す。

Table.2 Experimental conditions

Solvent	D.I.water	IPA	Mixed solution
Liquid volume[μl]	11.4		
Droplet radius[mm]	1.4		
Height to drop[mm]	4		
Measurement temperature interval[°C]	10		
Substrate surface temperature[°C]	100~400		
Number of trials[times]	10		

## 6.1 実験結果・考察

各種溶媒の蒸発時間測定結果を図4に示す。超純水は280°Cでライデンフロスト点に達したが、IPAは160°Cですでにライデンフロスト点を迎えていた。これには、両液種の飽和温度の違いが影響していると推察する。混合溶液は蒸発時間の推移が超純水に近似しており、ライデンフロスト点も同じであるが、各温度での蒸発時間は超純水より短くなった。これは混合されたIPAによって蒸発時間が短くなり、最終的に超純水の蒸発推移に遷移したと考えられる。また、混合溶液で100°C~200°C付近にIPAの推移が見られず、蒸発時間が極端に短いのは、混合された超純水の核沸騰によって気泡が発生し、液滴が蒸散したように思える。加えて混合溶液は純溶媒よりも蒸発時間のばらつきが大きかった。

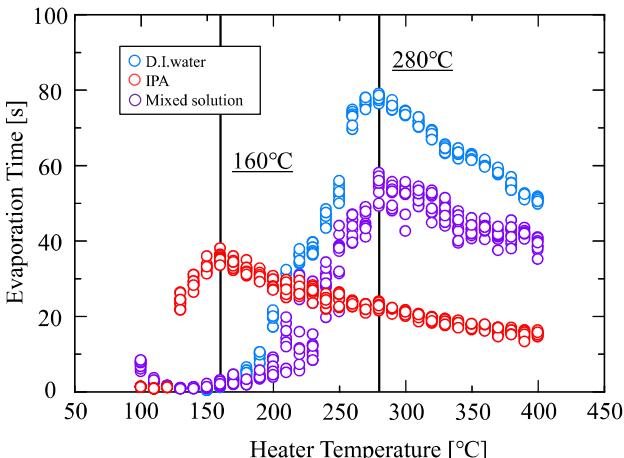


Fig.4 Evaporation time of droplets

## 7. 蒸気膜厚さ測定実験(C3)

ライデンフロスト液滴の下面と固体表面間を単スリットとみなし、そこにレーザー光を通すことによって、光の干渉から蒸気膜厚さを直接的に測定した。実験の概略図を図5に示す。

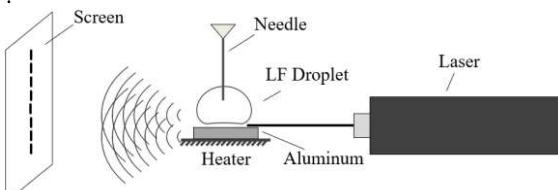


Fig.5 Experimental system for measurement of the vapor film thickness of Leidenfrost droplets

## 7.1 実験結果・考察

各種溶媒の蒸気膜厚さ測定結果を図6に示す。超純水と混合溶液の蒸気膜は液量の増加や基板表面温度が上がるにつれて厚くなっているが、基板温度が上がるにつれて液量に対する蒸気膜厚さの増加の傾きが大きくなる傾向が見られたが、IPAでは350°C時に蒸気膜厚さの増加が見られなかった。また、基板温度225°C時の超純水とIPAのライデンフロスト状態を確認したところ、超純水で接触蒸発が確認された。IPAでは、

140°Cの時接触蒸発が確認され、これは6のまま、ライデンフロスト点の差によるものと予想できる。混合溶液は蒸気膜厚さのばらつきが比較的大きい結果となった。これは、超純水とIPAの蒸気膜厚さの違いやC2において、混合溶液が純溶媒よりも蒸発時間のばらつきが大きかったことから、異種溶媒による混相の不安定さが原因であると推察する。

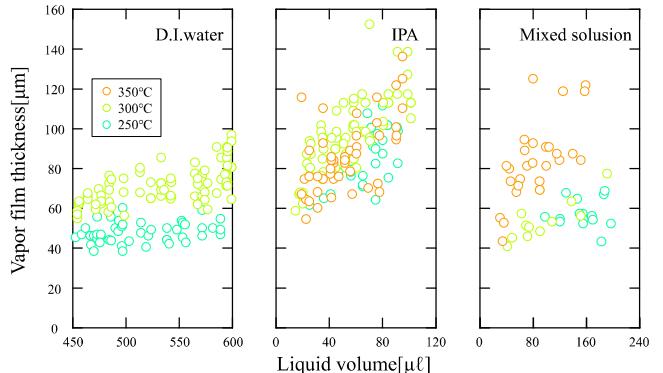


Fig.6 Comparison of measured steam film thickness

## 8. まとめ

液滴の自走について各実験の結果を比較し、関連性をまとめる。C1で超純水が基板温度上昇に伴い速度が低下したのはC3の結果より、基板温度上昇による蒸気膜厚さの増加で接触蒸発による推進力が失われていったと裏付けられる。IPAはC1で扱った温度帯(200~400°C)においてC2の結果からライデンフロスト点(160°C)に達しており、C3の結果から接触蒸発が確認されなかった。つまり、接触蒸発が生じていないことから、超純水に見られるような接触蒸発の減少による速度低下が無く、蒸気膜厚さの増加による蒸気の流出速度の変化が速度を変動させたと推測できる。また、300°C以降に速度上昇が見られなかつたことと、蒸気膜厚さが350°C時に増加していないことから、IPAは蒸気膜厚さによる蒸気の流出速度変化に依存した速度推移であると裏付けられた。混合溶液に関して、C1の結果で速度推移がIPAに近似したのはC2の結果より、溶液に含まれるIPAが超純水よりも蒸発初期段階で盛んに蒸発したためと結論づけられる。

## 9. 結言

本研究では異種溶媒による液滴移動速度や蒸発時間、蒸気膜厚さへの影響や各実験結果との関連性に関して研究した。各実験結果から液滴の移動速度に対して接触蒸発の起こる温度帯や蒸気膜厚さの推移から傾向がある程度把握できる可能性を感じた。混合溶液は液体冷却として導入する際、コストや環境への影響などの弊害が大きく、時間経過による状態変化が激しい。よって液体冷却のように加熱・冷却を繰り返す手法においては用いる溶媒よりも表面加工によってライデンフロスト現象を制御するのが望ましい。本研究の展望としては、基板加工による蒸発時間の短縮、溶媒同士の反応に注目した調査を挙げる。またレイノルズ数の導出や基板パラメータによる流体のシミュレーションなど、液滴自走の解明にも重点を置く。

## 10. 文献

- [1] J.G. Leidenfrost " De Aquae Communis Nonnullis Qualitatibus Tractatus " translation of portions to appear in Intern J Heat Mass Transfer (1756)
- [2] 未利用熱エネルギー革新的活用技術研究組合 "産業分野の排熱実態調査" 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 2019年
- [3] T. Kawaharamura: Ph. D. Thesis, Kyoto University, Kyoto(2008)