

学術論文

マイクロ波局所加熱に関する新規評価方法  
～表面改質に関するパルス照射モードの探索～

New evaluation method for microwave local heating  
-Search for pulse irradiation mode about interfacial modification-

菌部 智史<sup>1</sup>、柴田洋輔<sup>1</sup>、齊内 希幸<sup>1</sup>、朝熊 裕介<sup>1\*</sup>、Anita Hyde<sup>2</sup>、Chi Phan<sup>2</sup>  
Satoshi Sonobe, Yosuke Shibata, Kiyuki Saiuchi, Yusuke Asakuma,  
Anita Hyde, Chi Phan

1. 兵庫県立大学大学院工学研究科化学工学専攻
2. Curtin University, Department of Chemical Engineering
1. 〒671-2280 兵庫県姫路市書写 2167
2. GPO Box U1987, Perth, WA 6845, Australia

1. 2167 Shosha, Himeji, Hyogo 671-2280, Japan
2. GPO Box U1987, Perth, WA 6845, Australia

corresponding author\*, e-mail address : asakuma@eng.u-hyogo.ac.jp

キーワード: マイクロ波、選択加熱、無次元数、表面改質、エネルギー集中

Keywords: microwave, selective heating, dimensionless number, interfacial modification, energy concentration

Abstract

Although interfacial modification by microwave selective heating has been reported in previous study, it was difficult to estimate the thermal energy concentration of the absorption at liquid-liquid interface. In this study, optimum operation of microwave pulse mode was investigated to enhance the effect of surfactant desorption by using our dimensionless number of the local heating. According to the results, it was found that power is an important factor for the quick thermal response of interfacial tension. Finally, dimensionless number is expected to be a good tool for controlling heat transfer at the interface.

1. 緒言

近年、マイクロ波の選択加熱によって水と油を分離するエマルジョンの解乳化が注目を浴びている[1-5]。特に、原油の採掘時の随伴水の解乳化でマイクロ波を使う場合、熱源はその後の精製プロセスでも必要である。そのため、マイクロ波照射による解乳化はエネルギー的にも有利である。解乳化のメカニズムとして、粘度

等の物性値の低下が理由として挙げられているものの、詳しい原因は明らかになっていない。一方で、著者らは、マイクロ波の選択加熱が引き起こす液液界面でのエネルギー集中による表面改質に注目している。前報において[6-8]、マイクロ波が極性の無い油相を通過し、水相との界面に吸収されることによって、照射中および照

射後の界面張力の解析結果から表面改質が達成できることを示唆している。本手法の問題点として、過度にマイクロ波が集中することによるプロセスの不安定化があげられる[9]。特に、高出力で長時間照射すると、突沸を引き起こし、表面改質の効果が小さくなる。一方で、できる限り高出力照射でその効果を高めたいことから、マイクロ波照射時の液液界面での熱収支を定量化し、この非平衡局所加熱を制御し最適化する必要がある。

一般に、熱流体の分野において、物質・熱移動現象を考えると、 $Re$  数や  $Nu$  数等に代表される無次元数を用いる。本研究では、著者らが提案している「マイクロ波局所加熱に関する無次元数」を用いて[9]、表面改質に向けたマイクロ波照射モードの最適化や重要な因子を探索することを目的とする。

## 2. 無次元数の導入

マイクロ波の界面でのエネルギー集中に関して、著者らは下記のような無次元数を提案している[9]。

$$M_w = W / (\alpha \rho H d) = (W C_p) / (\lambda H d) \quad (1)$$

ここで、 $W$  [J/s]は照射出力、 $\alpha$  [m<sup>2</sup>/s] (=  $\lambda / \rho C_p$ ,  $\lambda$ : 熱伝導率,  $\rho$ : 密度,  $C_p$ : 比熱)は熱拡散率、 $d$  [m]はマイクロ波浸透深さ、 $H$  [J/g]は蒸発潜熱である。なお、 $\lambda$ ,  $\rho$ ,  $C_p$ ,  $H$  は温度依存性を示すため、各温度でその変化を考慮した。実際は、 $d$  の温度依存性が極端に大きいため[9]、主に無次元数は  $W, d$  で支配される。界面でマイクロ波がより強く吸収する条件として、値が大きいほど効果的である出力  $W$  を分子に、逆に小さい値ほど集中する効果の熱拡散率  $\alpha$ 、浸透深さ  $d$ 、蒸発潜熱  $H$  を分母に配置する。その結果、この無次元数が大きい方が界面に熱エネルギーが集中し、熱拡散よりも発熱の影響が大きくなる。そのため、発熱が続き、熱拡散を上回る状況が続けば、局所的加熱による沸騰が生じやすくなる。逆に、この無次元数が小さい場合、沸騰が起こりづらくなる。さらに値が小さい場合は、通常加熱の効果に近づき熱伝導が支配的になり、マイクロ波による表面改質に関する特異効果が期待できなくなる。本研究では、種々のマイクロ波照射モードに対して、この無次元数を用いて表面改質の効果を検討する。

## 3. 実験および解析方法

前報で示したように[6]、マイクロ波照射中および照射後の界面張力の算出を行った。まず、界面活性剤 (Triton X-100, 0.2 mM) を含む水溶液 (2 mL) と  $n$ -デカン (5 mL) を光学石英セル (30 x 30 x 30 mm) に挿入する。その後、Fig. 1 に示すように、このセルをマイクロ波照射炉 (2.45 GHz) の中心に静置する。テフロンパイプ (外径  $\phi$  2 mm, 内径  $\phi$  1 mm) により吊り下げたテフロンボール (1/4 インチ) を界面に挿入することで、上層が油相、下層が水相の湾曲したメニスカスが形成される (Fig. 2)。輝度の違いから液液界面を抽出し、テフロンボールと界面の接触角や湾曲度合いからマイクロ波照射前後の界面張力を算出する[10,11]。また、図中左上に示すように、テフロンパイプ及びテフロンボール内を通して貫通した光ファイバーでボール下部の水相の温度を測定する。実際の現象では、パルス照射中の界面での発熱が、インターバル中にゆっくりと水相内部の温度測定点に熱伝導していく。そのため、後の Figs. 3-6 の (b) 右軸で示す温度は、タイムラグがあり、インターバル中に上昇したように見える。従って、実際の界面の温度は、照射中がもっとも高くインターバル中は低下すると考えられる。

照射方法として、前報の低出力 (80 W) で長時間 (1 分) の連続照射では表面改質としては不十分であったため [6]、今回、400 W までの高出力照射を試みた。前述のように、高出力の長時間照射では沸騰するため、エネルギー分散を目的にパルス照射を用いた。

今回、Tables 1-2 に示すように、パルス周期 (25s) と全照射エネルギーを固定し (4800 J)、照射出力変更とサイクル回数変更の 2 つの条件の実験を行った。例えば、各パルス照射の時間  $t_1$  とインターバル  $t_2$  を変更した。すべての条件において、界面から突沸が起こらないことを確認している。

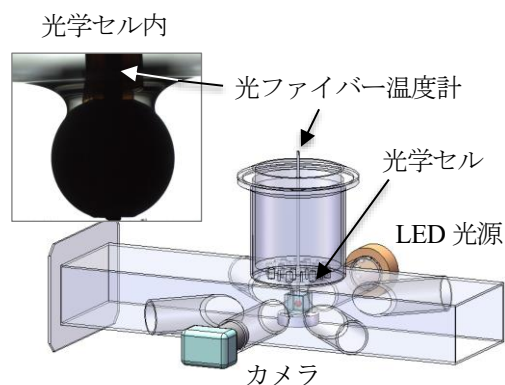


Fig. 1: Experimental apparatus.

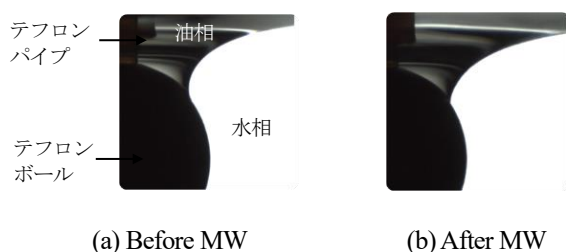


Fig. 2: Examples of image of interface.

Table 1 Experimental conditions for different power.

No.	Power [J/s]	Irradiation time, $t_1$ [s]	Interval, $t_2$ [s]	Cycle number
1-1	60	20	5	4
1-2	120	10	15	4
1-3	240	5	20	4
1-4	400	3	22	4

Table 2 Experimental conditions for cycle number.

No.	Power [J/s]	Irradiation time, $t_1$ [s]	Interval, $t_2$ [s]	Cycle number
2-1	240	4	21	5
1-3	240	5	20	4
2-2	240	10	15	2
2-3	240	20	-	1

#### 4. 結果と考察

Figs. 3-6 に、各条件における界面張力を示す。(a)では経過時間、(b)では温度との関係を示す。また、(a)において、曲線の温度は右軸で、界面張力のプロット(塗りつぶし:パルス照射中、白抜き:照射後)は左軸で示し、実

際の照射は色付きの領域で表す。

まず、Fig. 3 (a)に示すように、低出力(60 W)の照射では、ゆっくりと温度が上昇していく。Triton X-100 が吸着した界面では、温度とともに張力も上昇する。Triton X-100 のような中性で短い界面活性剤は吸着能力が弱い。そのため、水分子の熱振動による張力低下よりも、温度上昇による界面活性剤分子の乱れや脱着の影響が強くなり、張力が大きくなったと考えられる。また、Fig. 3 (b)に示すように、パルス照射後、温度が室温に近づくにつれて、界面張力がゆっくりと初期値に戻っていく。このパルス照射前後でのプロットの差(ヒステリシス)が、マイクロ波の局所加熱によって引き起こされた界面活性剤の乱れや脱着の効果であると考えられる。

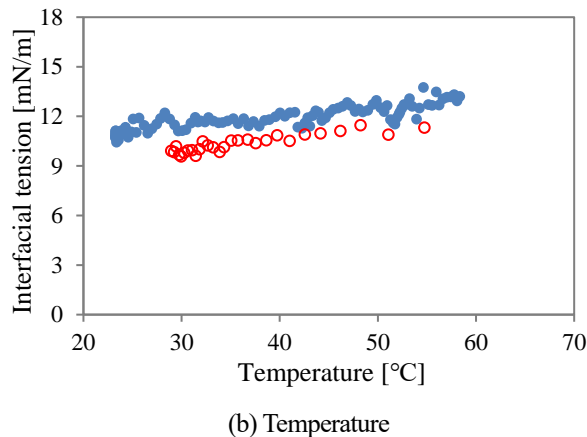
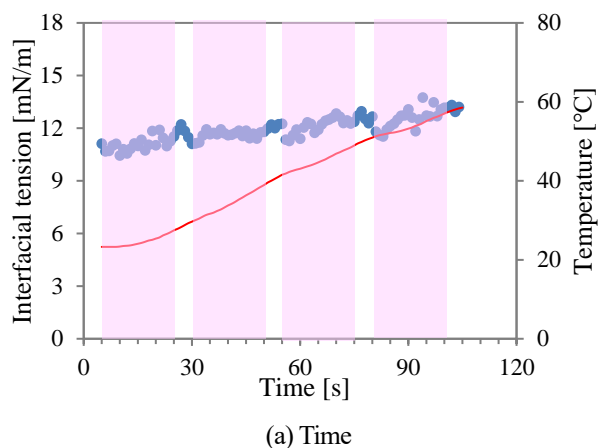
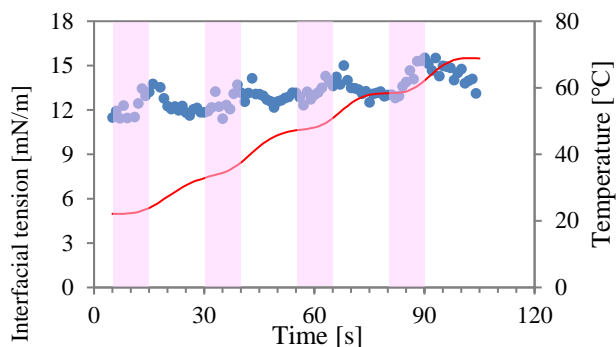
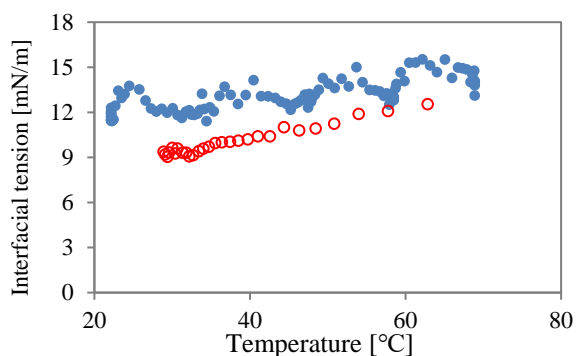


Fig. 3: Interfacial tension profiles at lower power (No.1-1).

次に、Figs. 4, 5 が示すように、高出力になるにつれて、影で示したパルス照射中および照射直後で、界面張力が瞬時に上昇することがわかる。この時、照射前後のヒステリシスの差が 5-7 mN/m と低出力時に比べ大き

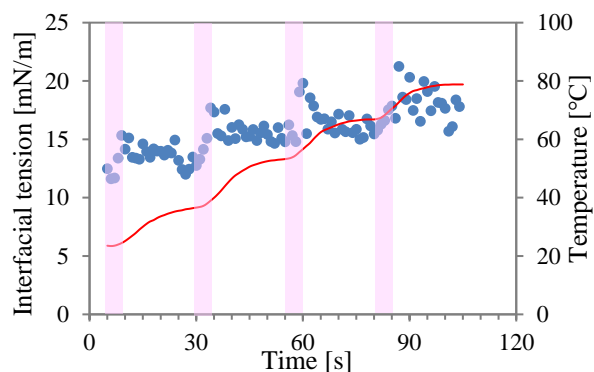


(a) Time

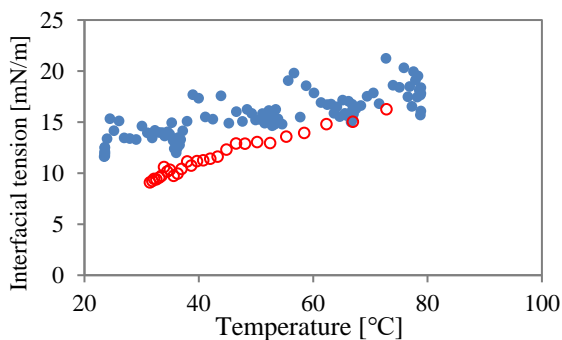


(b) Temperature

Fig. 4: Interfacial tension profiles at medium power (No.1-2).



(a) Time

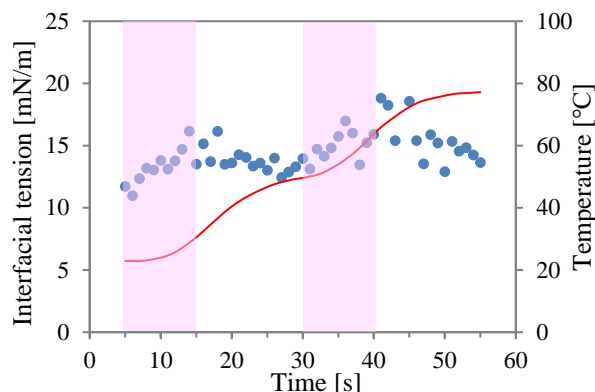


(b) Temperature

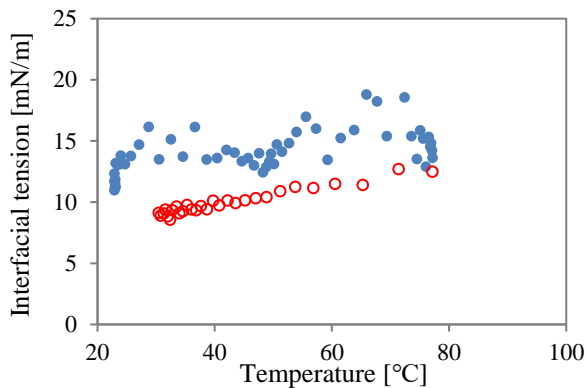
Fig. 5: Interfacial tension profiles at higher power (No.1-4).

くなった。つまり、界面活性剤の脱着現象に関して、同じエネルギーの照射においても、より高出力が効果的であることがわかった。一方、非照射のインターバル中で界面張力は減少する。これは、パルス照射で脱着もしくは乱された界面活性剤分子が、インターバル中に一部再吸着したと考えられる。

最後に、Fig. 6 のサイクル回数を減らしパルス 1 回あたりの照射時間を長くした条件では、Figs. 4,5 と同様に、大きなヒステリシスが見られ、表面改質の効果が高いことがわかる。これらの出力やサイクル回数が界面張力への応答性への効果を検討するために、前項で示した局所加熱に関する無次元数を用いた。



(a) Time



(b) Temperature

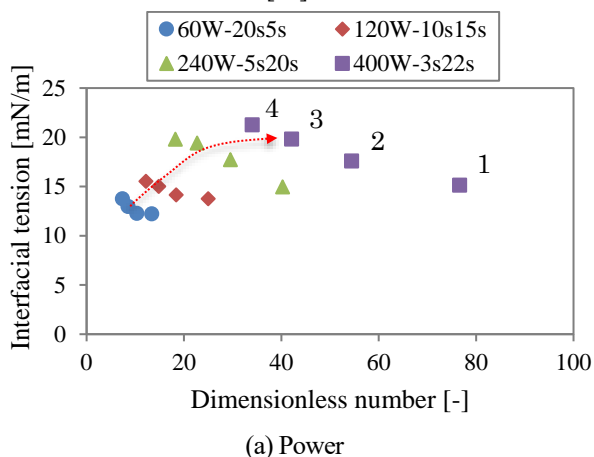
Fig. 6: Interfacial tension profiles for longer cycle number (No.2-2)

Fig. 7 に、無次元数と各パルス照射(図中左上へ 1,2,3, 4 段)によって引き起こされた照射停止前後で得られる界面張力の最大値との関係を示す。まず、(a)の出力の影響では、低出力の 60 W の場合、2-3 mN/m の上昇量

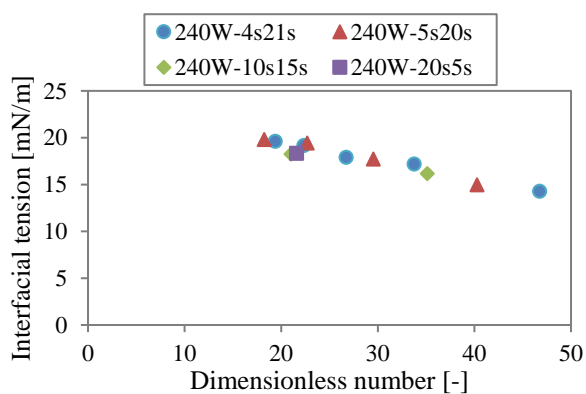
であるのに対し、高出力では 5-7 mN/m と大きくなる。また、同じ段数で比較すると、無次元数が大きくなると界面張力が大きくなった。

一方で、(b)のサイクル回数の影響では、無次元数に対してほぼ同一の相関がみられた。この条件では、異なるサイクル数でも、240 W の総照射時間は 20 s で同じであり、今回のインターバル  $t_2$  の範囲では、エネルギーを分散したとしても表面改質には及ぼす影響は小さいことがわかった。

上記のように、マイクロ波の高出力照射が表面改質に有利であり、パルス照射によってエネルギーが分散したとしてもその効力が維持できることを無次元数に対するプロットから示すことができた。より高出力照射にするためには、沸騰を抑制する観点から、より短時間での照射や各照射間のインターバルを長くすることが求められる。このように、今回示した無次元数は、沸騰抑制を考慮した照射条件の探索や、表面改質を評価する指標として期待できる[12]。



(a) Power



(b) Cycle number

Fig. 7: Relation between interfacial tension and dimensionless number.

## 5. 結論

液液界面にマイクロ波を照射し、照射中および照射後の界面張力を測定した。今回、局所加熱により沸騰を引き起こすことから、エネルギー分散を目的として高出力パルス照射を実践した。照射出力の影響では、より高い出力で界面張力を瞬時に増加させることができた。一方で、同じ出力の場合、著者らが提案の局所加熱に関する無次元数との相関から、パルス照射のエネルギー分散度合いの違いが表面改質に及ぼす影響は小さいことが分かった。さらに、この界面張力の変化は、界面活性剤の乱れや脱着の影響が考えられ、界面でのエネルギー集中に関する無次元数が有効な指標となることを示した。

## 引用文献

1. D.Santos, E.Rocha, R.Santos, A.Cancelas, C.Dariva, Separation and Purification Technology, **18922** (2017) 347-356.
2. R.Palou, R. Camacho, B.Chávez, A.Vallejo, J.burto, Fuel, **113** (2013) 407-414.
3. N.Abdurahman, R.Yunus, N.Azhari, N.Said, Z.Hassan, Energy Procedia, **138** (2017) 1023-1028.
4. L.Xia, S.Lu, G.Cao, Journal of Colloid and Interface Science, **271** (2004) 504-506.
5. C.Kuo, C.Lee, Separation and Purification Technology, **74** (2010) 288-293.
6. S.Sonobe, Y.Shibata, N.Minamishima, Y.Asakuma, A.Hyde, C.Nguyen, C.Phan, Japan Society of Electromagnetic Wave Energy Applications, **3** (2019) 46-52.
7. Y.Shibata, A.E.Hyde, N.Minamishima, Y.Asakuma, C.Phan, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **556** (2018) 127-133.
8. S.Sonobe, Y.Shibata, N.Minamishima, Y.Asakuma, A.Hyde, C.Nguyen, C.Phan, Heat and Mass Transfer, **56** (2020) 1343-1351.
9. S.Sonobe, Y.Shibata, Y.Asakuma, A.Hyde, C.Nguyen, C.Phan, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **591** (2020) 124560.
10. A. Hyde, C. Phan, G. Ingram, Colloids and Surfaces A:

Physicochemical and Engineering Aspects, **459** (2014) 267–273.

11. A.Hyde, M.Horiguchi, N.Minamishima, Y.Asakuma, C.Phan, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **524** (2017) 178-184.

12. S.Sonobe, Y.Shibata, Y.Asakuma, A.Hyde, C.Phan, International Journal of Heat and Mass Transfer, **159** (2020) 120107.

Manuscript received: Apr. 15, 2020

Revised: Aug. 27, 2020

Accepted: Aug. 30, 2020