

学術論文

無次元数を用いたマイクロ波照射中の温度分布予測

Prediction of Temperature Distribution during Microwave Irradiation Using Dimensionless Numbers

矢形凌平¹、菌部智史¹、朝熊裕介^{1*}、Anita Hyde²、Chi Phan²
Ryohei Yakata, Satoshi Sonobe, 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. Department of Chemical Engineering, Curtin University
1. 〒671-2280 兵庫県姫路市書写 2167
2. CDT 250 Miri, Sarawak, Malaysia, 98009

1. 2167 Shosha, Himeji, Hyogo 671-2280, Japan
2. CDT 250 Miri, Sarawak, Malaysia, 98009

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

キーワード: 局所加熱、無次元数、沸騰

Keywords: local heating, dimensionless number, boiling

Abstract

The boiling experiment for a cylindrical vessel was conducted at different operating parameters such as stirring speed, microwave power, and the penetration depth of microwave. The heating rates and the time until boiling were obtained for the heating homogeneity, which is defined as ratio of the local heating within the penetration depth and the heating of the whole vessel. The ratio was estimated by correlation with two dimensionless numbers, the mixing Reynolds number (Re) and our dimensionless microwave number (As) proposed in our previous study. Although the heating ratio is linearly correlated to the simple combination of Re and As. However, it was found that the multiplier of As number depends on microwave power.

1. 緒言

マイクロ波照射には、急速な熱応答、高い加熱効率および選択的な加熱等の特徴があり、加熱プロセスにおいて非常に効果的である。そのため、マイクロ波は、家庭用の電子レンジのような従来の加熱用途に加えて、化学反応プロセスや分離工程等への産業応用が期待されている。しかし、選択的加熱による過加熱や透過厚さ

に起因する不均一加熱は、依然として課題となっている。特に、局所的に引き起こされる過加熱は突沸などを引き起こし、プロセスを不安定化するため防ぐ必要がある。過加熱の例としては、気泡の核生成[1]、熱や化学反応の暴走[2, 3]があげられる。その結果、加熱の制御と温度分布の予測は、マイクロ波の産業用応用にと

って重要な課題である。

水などの極性溶媒にマイクロ波が吸収される場合、その吸収度合いは均質とはならない。例えば、媒質内のマイクロ波の吸収は距離とともに指数関数的に減衰する。その結果、容器壁または気液もしくは液液界面の近く溶液は、その内部よりも速く加熱されるため、透過厚さが重要な因子となる。透過厚さと同サイズ程度の小さな容器の場合、マイクロ波は溶液全体に吸収され、加熱される。一方、より大きな容器の場合、マイクロ波吸収によって容器壁や界面近傍の溶液のみが先に加熱され、内部の加熱は伝導伝熱と対流伝熱となる。このように、透過厚さ内の発熱によって温度勾配が強く生じる場合、均一な温度分布を得るためには攪拌が必要となる[4]。しかし、マイクロ波による局所加熱の度合いや均一な温度分布を得るために必要とされる攪拌条件は定量化されていない。例えば、マイクロ波加熱の分野で数値シミュレーションが多用されているものの[5,6]、流体と熱移動を組み合わせた連成解析は必ずしも十分とは言えず、マイクロ波の産業用に対して必ずしも実用的なレベルとなっていない。また、数値解析では槽内の中心温度を予想できるものの、自然対流や強制対流は含まれていないため精度が問題となる[7]。特に、気液界面付近でのマイクロ波加熱は、界面からの沸騰のために複雑となり[8]、また、様々な対流が界面付近の温度分布を乱す[9]。このように、マイクロ波が引き起こす界面での熱エネルギー集中度合いを正確に評価し、界面近傍での熱収支を厳密に評価する必要がある。今回の研究では、種々の無次元数を用い、攪拌とマイクロ波照射中の温度分布を検討できるモデルを開発することを目的とする。

一般に、流体力学や熱および物質移動の分野では、様々な無次元数が使用されている。無次元数は、計算コストを削減し、必要な加熱量や操作方法を予測できることから、パラメータ入力として簡易モデルや数値シミュレーションで重要な役割を果たす。例えば、流体の境界層内の熱伝達は、対流伝熱と伝導伝熱の比であるヌッセルト数(Nu)[10]として説明できる。また、 Nu 数にはレイノルズ数(Re)とプラントル数(Pr)を含む経験式が提案されており、熱交換器や化学反応器などの設計と最適化に重要な役割を果たしている[11]。一方で、マ

イクロ波加熱の分野では、その吸収レベルに関する無次元数が提案されていなかったため、他の加熱方法にみられるような簡便な相関式はなかった。近年、我々の研究において、マイクロ波局所加熱における熱エネルギー集中の指標として無次元数(As :アサクマ数)を提案した[12]。例えば、 As 数は、このエネルギー集中による界面活性剤の脱着などの界面改質の評価に役立つことが示されている。同時に、攪拌がない場合の沸騰の有無の指標でも有効である[13]。さらに、マイクロ波加熱に関する無次元数と他の熱流体に関する無次元数から、マイクロ波加熱において温度分布を予想できる相関式を導入できている[14]。一方で、マイクロ波加熱システムのスケールアップや設計に向けて、マイクロ波出力の影響が不十分であり、課題が示された。そこで、本研究では、マイクロ波出力を変更し、提案された無次元数を含む相関式の高精度化を図ることを目的とする。

2. 実験装置

本研究では、攪拌速度、マイクロ波照射出力の異なる状態で、水溶液の加熱速度および沸騰までの時間を測定する。まず、マイクロ波導波管(四国計測株式会社製、電界集中型 2.45 GHz)の中心に、円筒形のガラス容器(直径 35 mm、高さ 62 mm)を設置する(Fig.1(a))。発振器の反対側に反射板があり、照射時の溶液の温度上昇が最大となるように、その反射板位置を調整している。導波管の上部に円筒部分があるものの、寸胴の蓋をとりつけ導波管内の矩形のスペースは確保しており、比較的安定な電磁界部分となっている。今回、すべての実験において、沸騰させる水溶液の体積は一定とした($V_f=30$ mL)。導波管の側部に小窓があり、照射中の沸騰挙動を観察することができる[13,14]。Fig.1(b)のように、円筒形の攪拌子($d_s=0.024$ m)を容器の底に置き、回転速度(n_m [rpm], n_s [1/s])を変化させた。この攪拌状態は、次式のように攪拌レイノルズ数で評価できる[14]。

$$Re = d_s(\pi d_s n_s)/\nu \quad (1)$$

ここで、 ν は液体の動粘度[m²/s]である。また、マイクロ波局所加熱のレベルは、次式のアサクマ数 (As)[12]で説明できる。

$$As = W / (Hd_p \alpha \rho) \quad (2)$$

ここで、 W 、 H 、 α 、 ρ は、マイクロ波出力[J/s]、蒸発潜熱[J/kg]、熱拡散率[m²/s]、液体の密度[kg/m³]である。また、 d_p は透過厚さであり、水溶液のNaCl濃度によって変化し、次式から算出する。

$$d = 3.32 \times 10^7 / f \sqrt{\epsilon'} \tan \delta \quad (3)$$

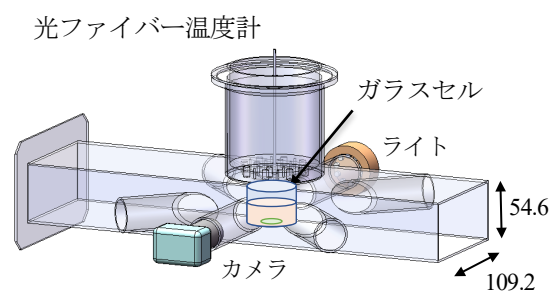
この透過厚さの算出式には、マイクロ波の周波数 f と水溶液の比誘電率 ϵ' 、誘電損失角 δ が含まれている[15]。例えば、室温での水とNaCl水溶液(0.5 mol/l)の透過厚さ d_p は、NaCl水溶液の誘電特性を用いると[16]、それぞれ約12 mmと3 mmであった。

沸騰実験では、Table 1に示すように、各マイクロ波出力 W に対して、回転速度 n_m 、および食塩水濃度 C を変更し、加熱現象を観察する。例えば、溶液内の中心温度と自由表面での沸騰の有無を確認する。溶液の初期温度は室温であり、Fig.1(b)に示すように、光ファイバー(安立計器株)によって照射中の容器中央の溶液の温度を測定し、その履歴から加熱速度 r [K/s]を算出した。容器の底から先端までの距離は25 mmである。沸騰が確認されるまで、100-800 Wのマイクロ波を照射する。なお、Table 1の条件において、(1)式と(2)式で算出した Re 数および As 数は、それぞれ1079~4314、24.81~2094の間で変化する。なお、より低 Re 数の場合は、攪拌子を小さくすることで対応でき、 $Re=60$ 以上での実験の有効性を前報[14]で確認済である。今回は、出力の影響を検討するため、攪拌子の大きさは固定した。

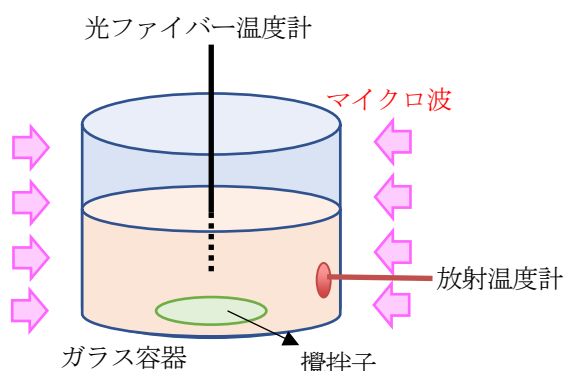
照射中の自由表面付近の様子は、導波管側部のカメラによって確認できる。Fig.2に、動画から抽出された界面付近の画像の(a)照射前、(b)沸騰時の計3例を示す。例えば、(b)左図では、攪拌が強い場合は比較的静かに沸騰する。一方で、(b)右図ではマイクロ波によるエネルギー集中が強い時、自由界面が激しく乱れる。いずれにおいても、沸騰挙動を容易に確認でき、沸騰までの時間 t_b [s]を各条件で計測した。特に、透過厚さが薄い場合、界面近傍での発熱量が大きく、局所的に熱エネルギーが集中するため沸騰が速く起こる。

Fig.3に、マイクロ波照射中の溶液の温度の履歴に関

して2つの例を示す。この加熱速度は、出力、攪拌速度、電解質濃度で異なる。攪拌速度が遅く、高出力および高NaCl濃度の場合、速く沸騰に達する。一方で、攪拌速度が速く、低出力でNaCl濃度が薄い場合は、マイクロ波から加えられる熱エネルギーが均一となり、加熱速度が遅く沸騰までの時間が長くなる。このように、沸騰までの時間や加熱速度は、攪拌速度に依存する。各条件で加熱速度 r [K/s]は、温度上昇開始から沸騰時間までの温度の傾きとして計算される。今回、 Re 数を定義するため攪拌があり、容器が小さく、壁からの放熱量が小さい条件では、加熱速度である傾きは一定となる。なお、 Re 数60以上では、一定の加熱速度が得られることを確認しているものの[14]、攪拌がない条件やより低 Re 数で高NaCl濃度の水溶液を高出力で加熱した場合、バルク温度と自由表面の温度に大きな差がでることが予想される。



(a) Microwave reactor



(b) Glass cell

Fig. 1: Experimental set-up

Table 1 Operating conditions

Microwave power [W]	100, 200, 400, 600, 800
Stirrer speed, n_m [rpm]	100, 200, 300, 400
NaCl concentration, C [mol/l]	0, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1



(a) Before heating (b) After boiling

Fig. 2: Images of interface

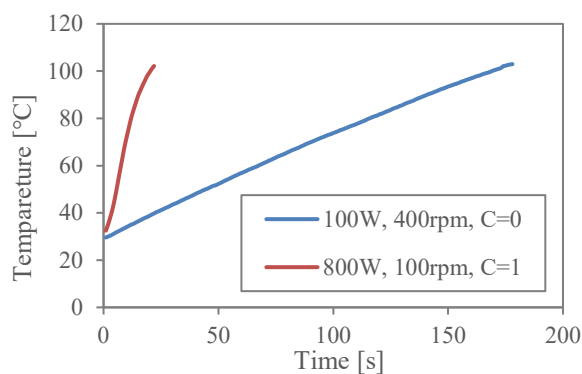


Fig. 3: Temperature profiles during microwave hearing

3. 温度分布の評価

温度分布の均一性を評価するために、2種類の熱エネルギーを計算した。まず、マイクロ波エネルギーは、容器壁と上部の自由界面からの透過厚さ d_p 内の容積 V_p (Fig.4)で消費されると仮定し、総エネルギー q_1 [J]は次式で計算される。

$$q_1 = V_p \rho C_p \Delta T \quad (4)$$

ここで、 ρ , C_p は溶液の密度[kg/m³]と比熱[J/(kgK)]で、 ΔT は沸騰面(100°C)と初期温度の温度差とする。なお、沸騰実験は大気圧下で行われたため、表面の沸点は100°Cとした。

次に、平均マイクロ波吸収エネルギー q_2 [J]を計算する。この q_2 の値は、沸騰までの照射時間 t_b [s]内の容器内の溶液全体の加熱を表し、次式で計算される。

$$q_2 = V_t \rho C_p r t_b \quad (5)$$

V_t と r は、全液量とそれぞれ Fig.3 の直線から求められる加熱速度となる。

この時、比 q_2/q_1 は、マイクロ波照射中の温度分布の不均一性・均一性、つまり、エネルギー集中度合となり、値が大きいうちが不均一加熱を、1に近い場合は、均一加熱を示している。また、Fig.4(a)に示すように、透過厚さが薄い場合、厚さ内の溶液は溶液内部よりも速く加熱される。この場合、溶液内部の温度は100°Cより低いものの、沸騰は自由界面から突沸のように起こる。一方、Fig.4(b)のように、透過厚さ内での発熱領域の熱移動が攪拌によって促進されると、より均一な温度分布が得られる。このように、透過厚さに加えて、温度分布は、攪拌速度等の攪拌条件に強く影響を受けることになる。従って、この温度分布は熱エネルギー集中度合の指標である As 数と、攪拌の指標である Re 数の両方に依存すると仮定し、最近の研究において、次式を提案した[14]。

$$q_2/q_1 - 1 = a Re^b As^c \quad (6)$$

ここで、 a , b , c は、Table 1に示したすべての実験データに対してパラメータフィッティングすることによって得られる。

マイクロ波照射による加熱の場合も通常加熱と同様に熱損失を考慮する必要がある。この熱損失には、容器壁面および自由界面からの放熱の2つがあげられる。壁からの熱損失は周囲の空気自然対流によって引き起こされる。赤外放射温度計を用い、照射中の容器壁の平均温度を測定したところ、壁の温度は常に内部温度 T_b よりも低いことがわかった。垂直面に関する空気自然対流伝熱の熱伝達係数 h_{wall} は約3 W/m²Kであり、壁からの総熱損失($A_w h_{wall} \Delta T$, A_w :円筒側部の面積)はマイクロ波吸収熱量 q_2 の数%程度で十分小さいことがわかる。一方、上部の自由界面からの熱損失は、対流伝熱および後述の蒸発潜熱である[16]。同様に、上部からの対流伝熱は小さいと考えられ、蒸発による熱移動は重要であると考えられるものの、今回は考慮しなかった。

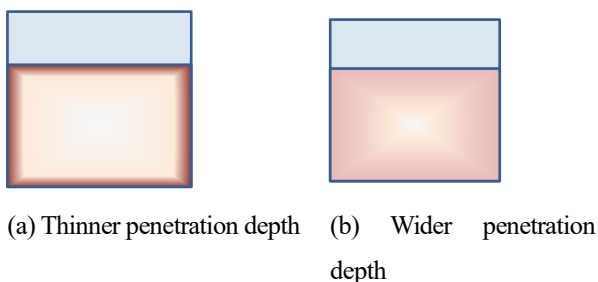
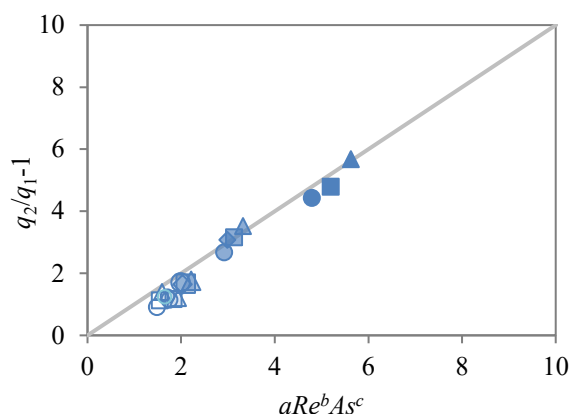


Fig. 4: Images of temperature distribution in solution

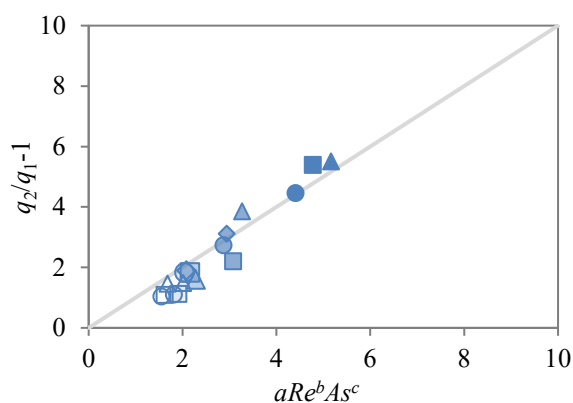
4. 結果と考察

Fig.5 に、例として 200 W および 400 W において、マイクロ波と攪拌の相関関係を示す。プロットの形状は攪拌速度(Δ : 100 rpm、 \square : 200 rpm、 \diamond : 300 rpm、 \circ : 400 rpm)を示している。また、色の濃さは NaCl 濃度 C で、白抜きプロットは純水、塗りつぶしプロットは 1 mol/l を示している。横軸は、それぞれ a, b, c の値を入れ、実験条件および物性値から得られる各 Re 数、 As 数から算出した(6)式右辺の値、縦軸は、実験データから(4)(5)式により q_1, q_2 を求めた(6)式の左辺の値となる。図中の対角の直線にプロットがより近いほうが、パラメータフィッティングできたことを意味している。いずれの出力の条件においても、 $a=0.065, b=-0.15$ において、良好な相関関係を示し、線形関係が得られた。一方で、 c の値は各出力で異なった。Fig.6 に、出力と c の関係を示す。 c は正の値であり、温度分布の均一性に対する As 数の逆の影響を示す。NaCl 濃度が高い場合(1 mol/l)、例えば As 数が高いほど、透過厚さは薄くなり、界面でのマイクロ波の熱エネルギーの集中が強くなり、分布は不均一になる。このとき、比率 q_2/q_1 は 1 よりもはるかに大きくなる。逆に、純水に近く透過厚さが厚い場合は、 q_2/q_1 は 1 に近くなり、均一加熱に近づく。一方、攪拌の効果は均一加熱を促進するため、 b は負となる。なお、今回、比較的高 Re 数における攪拌での沸騰実験を行っており、良好な相関関係が得られた。攪拌が弱い条件ではより局所加熱が顕著になり、直線関係からはずれることが予想され、 Re 数の適用範囲には注意が必要である。特に、 Re 数が 60 以下で 800W のような高出力加熱では、相関関係が得られない可能性がある。例えば、パラメータフィッティングする際に Fig.3 における加熱速度の直線関係が得られることが重要である

と思われる。



(a) 200 W



(b) 400 W

Fig.5: Fitting curve of experimental data and Eq.(5)

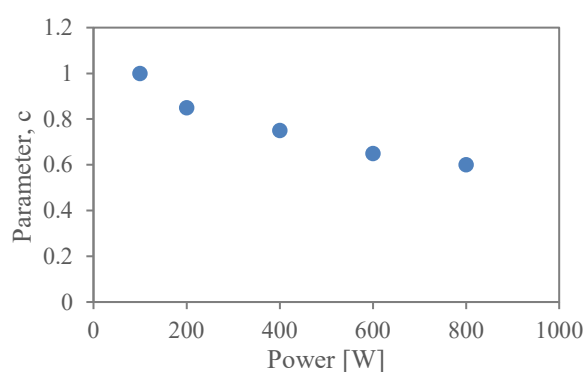


Fig.6: Relation between parameter, c and power

マイクロ波による熱エネルギーは、主に透過厚さ内で消費される。界面での熱エネルギー密度を下げ、温度の均一性を達成するために、攪拌が必要となる。式(6)

は、温度分布の均一性を予想するために有効な相関式である。このように、本モデルは、特定のマイクロ波出力に対して必要な攪拌を推定することができた。一方で、出力とともに、パラメータ c が減少することに注意する必要がある。今回の熱収支の計算の仮定では、容器上部の自由界面からの蒸発(相変化)による熱損失は蒸発量を測定していないことから算出できなかったため考慮していない。一般的に、通常加熱における水の沸騰に関する熱伝達係数 h_{cv} は $2 \times 10^4 \text{ W/m}^2\text{K}$ 程度と、上述の壁からの熱伝達係数 h_{wall} (約 $3 \text{ W/m}^2\text{K}$) よりも極端に大きい。強制対流がなかったとしても、高温の蒸気による比重差のため浮力による自然対流で熱が自由界面から放出されていく。そのため、沸騰した時点での熱損失は無視できないほど大きくなると考えられる。通常加熱においては、自由界面付近での温度は加熱壁面での温度を下回り沸点より低いいため、沸騰開始まで蒸発による熱損失は小さい。一方で、マイクロ波加熱の場合、自由表面上の水分子は振動・回転はバルク内よりも激しく、通常加熱と比べて照射開始時から蒸発しやすいものと考えられる。水の場合、蒸発すれば、マイクロ波のエネルギーが蒸発潜熱(2259 J/g)として消費されることになる。この現象は出力に大きく依存するため、各出力に対してパラメータ c が変化したものと考えられる。つまり、出力が高いほど蒸発量が多く、その潜熱による熱損失の影響が大きくなった。特に、通常加熱と異なりマイクロ波加熱では、照射開始直後から自由界面での蒸発が考えられる。今後、各出力において、時間ごとの蒸発量を算出して、蒸発潜熱による放熱を正確に考慮する必要がある。さらに、マイクロ波照射時の自由表面での蒸発に関する熱伝達係数 h_{MW} は通常加熱の h_{cv} よりもさらに大きいことが想定される。そのため、正確な熱収支を得ることで、この出力で変化すると考えられる係数 h_{MW} を算出し、(6)式の相関式の高精度化を図ることが今後の課題である。つまり、(4)式の q_1 に上部からの相変化(蒸発)を伴う熱損失が $A_s h_{MW} \Delta T$ (A_s :自由界面の面積)として加算され、今回の相関式で可変となったパラメータ c が固定できれば、より便利な相関式となる。

5. 結論

本研究では、マイクロ波出力、攪拌条件と NaCl 濃度

を変化させてマイクロ波加熱の均一性を検討した。攪拌の指標である Re 数とマイクロ波局所加熱の指標である As 数を組み合わせることで、温度分布を予測できた。相関式によると、透過厚さが薄い水溶液を加熱する場合、浴槽内の温度分布を均一にするためには、高 Re 数による攪拌が必要となる。この無次元数を含む相関式は、マイクロ波加熱を工業プロセスに適用する場合、均一な温度分布を得るためのマイクロ波操作条件の選定に役立つと考えられる。一方で、このモデル式に出力の影響、特に、自由表面からの蒸発による熱損失を正確に考慮する必要があり、今後の課題として示唆された。

引用文献

- [1] G.L. Lee, M.C. Law, V.C.C. Lee, Numerical modelling and investigation of microwave heating and boiling phenomena in binary liquid mixtures using OpenFOAM, International Journal of Thermal Sciences, 159 (2021) 106538.
- [2] Z. Tang, T. Hong, Y. Liao, F. Chen, J. Ye, H. Zhu, K. Huang, Frequency-selected method to improve microwave heating performance, Applied Thermal Engineering, 131 (2018) 642–648.
- [3] S. Horikoshi, M. Kamata, T. Sumi, N. Serpone, Selective heating of Pd/AC catalyst in heterogeneous systems for the microwave-assisted continuous hydrogen evolution from organic hydrides: Temperature distribution in the fixed-bed reactor, International Journal of Hydrogen Energy, 41 (2016) 12029–12037.
- [4] H. Zhu, J. Ye, T. Gulati, Y. Yang, Y. Liao, Y. Yang, K. Huang, Dynamic analysis of continuous-flow microwave reactor with a screw propeller, Applied Thermal Engineering, 123 (2017) 1456–1461.
- [5] S.Wu, Y.Song, X.Wang, J.Xu, B.Xiao, K.Qiao, Simulation and optimization of heating rate and thermal uniformity of microwave reactor for biomass pyrolysis, Chemical Engineering Science, 250, (2022) 117386.
- [6] Q.Yi, J.Lan, J.Ye, H.Zhu, Y.Yang, Y.Wu, K.Huang, A simulation method of coupled model for a microwave

- heating process with multiple moving elements, *Chemical Engineering Science*, 231 (2021) 116339.
- [7] V.R. Romano, F. Marra, U. Tammara, Modelling of microwave heating of foodstuff: Study on the influence of sample dimensions with a FEM approach, *Journal of Food Engineering*, 71 (2005) 233 - 241.
- [8] Y. Asakuma, R. Nakata, M. Asada, Y. Kanazawa, C. Phan, Bubble formation and interface phenomena of aqueous solution under microwave irradiation, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 103 (2016) 411–416.
- [9] R. Pasquetti, P. Cerisier, C. Le Niliot, Laboratory and numerical investigations on Bénard-Marangoni convection in circular vessels, *Physics of Fluids*, 14 (2002) 277–288.
- [10] M. Mac Giolla Eain, V. Egan, J. Punch, Local Nusselt number enhancements in liquid-liquid Taylor flows, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 80 (2015) 85–97.
- [11] K. Milani Shirvan, R. Ellahi, S. Mirzakhani, M. Mamourian, Enhancement of heat transfer and heat exchanger effectiveness in a double pipe heat exchanger filled with porous media: Numerical simulation and sensitivity analysis of turbulent fluid flow, *Applied Thermal Engineering*, 109 (2016) 761–774.
- [12] S. Sonobe, Y. Shibata, Y. Asakuma, A. Hyde, C. Nguyen, C. Phan, A dimensionless number for microwave non-equilibrium local heating through surfactant desorption, *Colloids and Surfaces, A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 591 (2020) 124560.
- [13] S. Sonobe, Y. Shibata, Y. Asakuma, A. Hyde, C. Phan, Characterization of the microwave-induced boiling behaviour at oil/water interface, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 159 (2020) 120107.
- [14] R. Yakata, S. Sonobe, Y. Asakuma, A. Hyde, C. Phan, T. Sen, Characterisation of heating behaviour of a microwave reactor during mixing, *Thermal Science and Engineering Progress*, 29 (2022) 101206.
- [15] S. Horikoshi, T. Sumi, N. Serpone, Unusual effect of the magnetic field component of the microwave radiation on aqueous electrolyte solutions, *Journal of Microwave Power and Electromagnetic Energy*, 46 (2012) 215–228.
- [16] T. Meissner, F.J. Wentz, The complex dielectric constant of pure and seawater from microwave satellite observations, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 42 1836-1849 (2004)

Manuscript received: Apr. 15, 2022

Revised: Apr. 27, 2022

Accepted: May 10, 2022