

令和 4 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02074

研究課題名(和文) 赤外線連続照射による気液界面での分子内振動の緩和と溶剤乾燥に効果的な吸収帯の解明

研究課題名(英文) Relaxation of intramolecular vibration generated by continuous infrared radiation at the gas-liquid interface and effective absorption band for solvent drying

研究代表者

戸谷 剛 (Totani, Tsuyoshi)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：00301937

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)：本研究では、(1)溶剤の吸収波長に赤外線を連続照射した時の緩和挙動の把握と(2)分子動力学法とボルツマン方程式解析による溶剤の蒸発挙動の把握を行った。

(1)では、水の変角振動を起こす赤外線を連続照射した場合に、水の蒸発に関与する束縛回転振動の波長域で、熱伝導で加熱した場合よりも、5%程度、蒸発が促進される可能性があることが分った。(2)では、局所加熱による蒸発分子について、法線方向温度は局所加熱温度とほぼ等しくなり、接線方向温度は非加熱状態のバルク液体と近い温度を取る非等方性を有していること、気体中の非凝縮性気体の数が多くなるほど、分子の衝突により、等方的な分布になることが分った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、(1)溶剤の吸収波長に赤外線を連続照射した時の緩和挙動の把握と(2)分子動力学法とボルツマン方程式解析による溶剤の蒸発挙動の把握を行った。

(1)で得られた成果は、乾燥の分野で望まれている可燃性溶剤の着火、被加熱物の熱変性や製品の変形を防ぐために、低温空間(炉内の温度を低く保つ)での乾燥の実現につながる意義を持つ。(2)で得られた成果は、気液界面の分子を局所加熱することによって、蒸発を促進できることを示しており、溶剤の分子内振動を励起し、分子間振動を緩和させて乾燥させる本乾燥方式のメカニズム解明の基礎的知見となる。

研究成果の概要(英文)：In this study, (1) the relaxation behavior of a solvent when continuously irradiated with infrared light at the absorption wavelength of the solvent and (2) the evaporation behavior of the solvent by molecular dynamics and Boltzmann equation analysis were investigated. In (1), it was found that continuous irradiation of infrared light, which causes angular vibration of water, may accelerate evaporation by about 5% compared to heating by thermal conduction in the wavelength range of bound rotational vibration, which is involved in water evaporation. In (2), It was found that for evaporating molecules by local heating, the normal direction temperature is almost equal to the local heating temperature, and the tangential direction temperature is anisotropic taking a temperature close to that of the bulk liquid in the non-heated state. Further, the larger the number of non-condensable gases in the gas, the more isotropic the distribution becomes due to molecular collisions.

研究分野：熱工学

キーワード：振動緩和 蒸発 赤外線 溶剤

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

乾燥分野では、高温で着火する可燃性の溶剤や高温で変性する製品など、乾燥温度に上限がある被加熱物（溶質・溶剤）が増えている。広く普及している熱風乾燥方式では、熱風の温度を下げると乾燥時間が長くなって歩留りが低下する課題に直面している。

気液界面に着目すると、気液界面の液体側の原子や分子は、水素結合などの弱い電気的な力や分子間力によって互いに結びついており、これらの結合に打ち勝つ並進運動エネルギーを獲得すると溶剤の原子や分子は蒸発し、乾燥する。

微細加工技術の発達により、放射面に微細構造を作成することで、溶剤が赤外線を吸収する波長に合わせて赤外線を連続的に放射することが可能になった。溶剤の赤外線の吸収は、分子内の原子による対称伸縮振動、非対称伸縮振動、変角振動などの分子内振動に起因する。分子内振動は、様々な分子内振動を経て、分子間運動に変換（緩和）されることが知られている^[1]。

2. 研究の目的

可燃性溶剤の着火、被加熱物の熱変性や製品の変形を防ぐために、低温空間（炉内の温度を低く保つ）での乾燥を目指し、溶剤の吸収する波長帯に赤外線を放射することで、気液界面の溶剤分子に分子内振動を起こし、分子間の振動へ緩和する際に、並進運動エネルギーを獲得し、蒸発する乾燥方式を提案する。従来の赤外線乾燥とは異なり、溶剤の吸収帯以外の波長の赤外線が反射もしくは透過されて、炉内の温度を上げることが防げることがある可能性がある。そこで本研究では、(1)溶剤の吸収波長に赤外線を連続照射した時の緩和挙動の把握と(2)分子動力学法とボルツマン方程式解析による溶剤の蒸発挙動の把握を目的とする。

3. 研究の方法

(1)溶剤の気液界面に赤外線を連続照射した時の緩和挙動を把握するために、溶剤の吸収波長に赤外線を放射するMIMエミッタで溶剤の分子内振動を励起し、ATR法とFT-IRを用いて励起された分子内振動から分子間振動への緩和挙動を測定する。実験装置の概念図を図1に示す。溶剤として水を用い、赤外線を透過するZnSe窓を水滴に載せることで薄膜化し、上方からセラミックヒータによって加熱されたMIMエミッタから中心波長6.06 μmの赤外線を照射して、水の分子内振動の一つであるOH変角振動を励起する。励起されたOH変角振動の緩和挙動を下部からATRクリスタルを通して赤外線を水膜との界面に当て、反射光をFT-IRでスペクトル処理することで測定する。

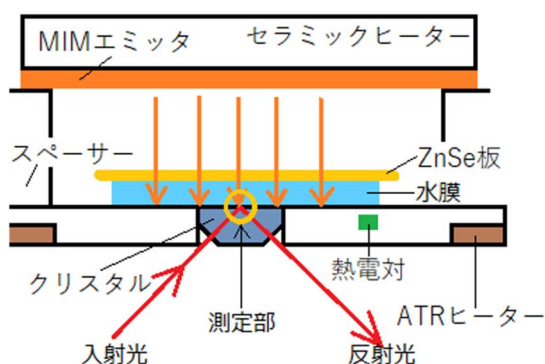


図1 実験装置の概念図

(2)局所的に加熱された液体から蒸発する分子群の振る舞いに対して分子動力学シミュレーション解析を行った。この計算系を図2に示す。中心に液相（液膜）があり、その液膜の両端に気相を設定する。このような設定で、ある温度 T の静止平衡状態を作成する。その後、液体表面の数分子層程度の厚さの領域を局所的に加熱することで、加熱された分子の蒸発過程を解析する。これら分子の運動を解析した情報を基に、Boltzmann方程式に対する境界条件を構築する。本研究を行うことで、解析対象となる実験で起こる蒸発現象の物理の詳細を知ることができる。ここで、まずは簡単な問題を対象とするため、アルゴン分子を用いて分子動力学解析を行った。

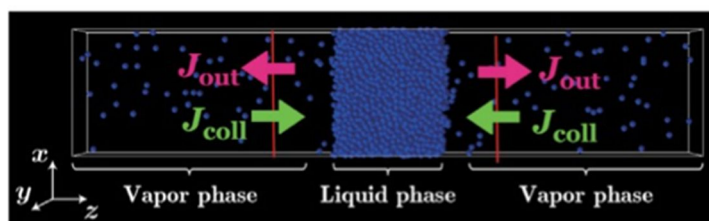


図2 本研究の分子動力学シミュレーションの一例。青丸が分子を示しており、中心に液膜（液相）、その左右に気相領域がある。

4. 研究成果

(1) MIM エミッタで加熱した場合（橙色）と試料台のヒーターによる熱伝導で加熱した場合（青色）における加熱していない 25 °C の水に対する相対反射率の比較を図 3 に示す。図 3 における試料台の表面温度は 48.9 °C である。

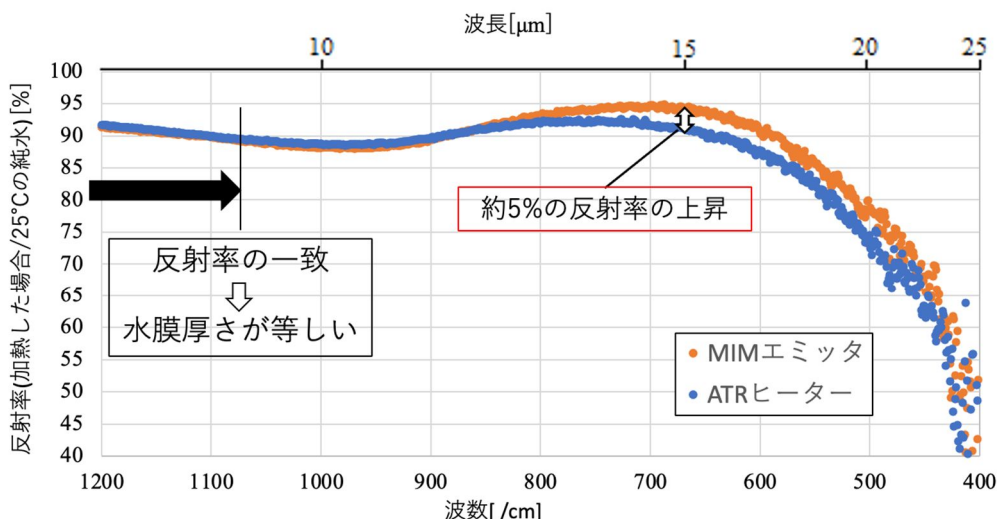


図 3 MIM エミッタと ATR ヒーターにより加熱した場合の相対反射率の比較

水の分子間振動である束縛回転振動の吸収ピーク（14.9 μm ）^[1]付近で、MIM エミッタを使用し加熱した方が、熱伝導で加熱した場合よりも相対反射率が 25 °C の水を基準として 5% ほど高くなっている。この結果は、MIM エミッタから放射された赤外線により OH 変角振動が励起され、励起された OH 変角振動が束縛回転振動に緩和していることを示すとともに、溶剤の吸収する波長帯に赤外線を放射することで、気液界面の溶剤分子に分子内振動を起こし、分子間の振動へ緩和させる乾燥方式が、界面温度を同じにした場合、他の乾燥方式より 5% 程度、蒸発を促進できる可能性を示している。

(2) 分子動力学シミュレーションの特徴的な結果について以下に示す。図 4 に液体表面の数分子層程度の厚さの領域を局所的に加熱した際の蒸発分子の振る舞いの様子を示す。

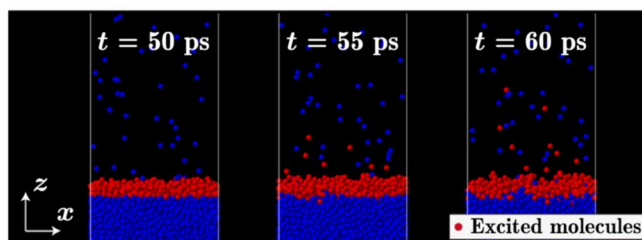


図 4 液体表面を局所的に加熱した直後の分子の振る舞い。赤丸は $t = 50 \text{ ps}$ で瞬間的に加熱された分子であり、青丸は初期の温度の分子を示す。

図 4 より、局所加熱された液体表面の分子が気相側へと移動（蒸発）していることが確認できる。このような計算を複数回行うことで、蒸発分子の統計情報を抽出し、様々な角度から解析を行う。その一例を図 5 に示す。図 5 は蒸発した分子から得られた液体界面法線方向 (z 方向) の気体の温度と界面接線方向 (x 方向) の気体の温度である。

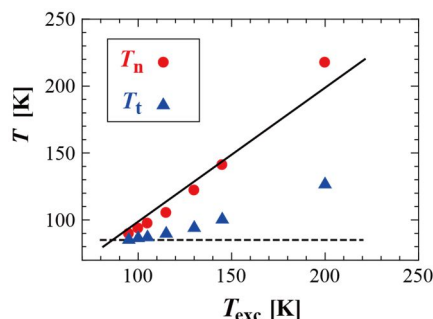


図 5 蒸発分子の界面法線方向温度（赤）と界面接線方向温度（青）。横軸は界面を局所加熱した際の加熱温度を示す。

図5の横軸は液面加熱温度であり、縦軸は蒸発分子の液体界面法線方向温度、および接線方向温度である。この図より、液面を加熱すると、界面法線方向は液面加熱温度とほぼ同じ温度となる。一方、界面接線方向温度は、法線方向温度に比べて温度上昇が抑えられていることがわかる。このように、局所的に加熱した蒸発分子の速度分布は非等方的になることが分かった。更に、このような蒸発分子の統計情報を用いて、Boltzmann方程式の境界条件構築法の確立を行った。これらの結果は、気液界面の分子を局所加熱することによって、蒸発を促進できることを示しており、溶剤の分子内振動を励起し、分子間振動を緩和させて乾燥させる本乾燥方式のメカニズム解明の基礎的知見となる。

< 引用文献 >

[1] S. Ashihara, S. Fujioka, K. Shibuya: "Temperature dependence of vibrational relaxation of the OH bending excitation in liquid H₂O," Chem. Phys. Lett., 502, pp. 57-62, (2011).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tabe Hirofumi, Hiramatsu Kiryu, Kobayashi Kazumichi, Fujii Hiroyuki, Watanabe Masao, Totani Tsuyoshi	4. 巻 212
2. 論文標題 Molecular dynamics study of evaporation induced by locally heated argon liquid	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Thermal Engineering	6. 最初と最後の頁 118472 ~ 118472
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.applthermaleng.2022.118472	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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 平松希隆、田部広風海、小林一道、藤井宏之、渡部正夫、大島伸行、近藤良夫、戸谷剛
2. 発表標題 局所加熱アルゴン液体の蒸発現象に関する分子動力学計算
3. 学会等名 第34回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tsuyoshi Totani, Atsushi Sakurai, Tadaaki Nagao, Yoshio Kondo
2. 発表標題 Infrared ray drying by emitting to the absorption band of solvents
3. 学会等名 The 1st Asia-Pacific Thermofluid Science & Engineering Conference（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tsuyoshi Totani, Atsushi Sakurai, Tadaaki Nagao, Yoshio Kondo
2. 発表標題 Increase of drying rate by wavelength-selective emitter with metamaterial structures in infrared ray drying
3. 学会等名 The 2nd Pacific Rim Thermal Engineering Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平松希隆、田部広風海、小林一道、渡部正夫、藤井宏之、戸谷剛
2. 発表標題 気液界面への赤外線照射による水の蒸発流れの数値計算
3. 学会等名 日本機械学会流体工学部門、第97回講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤洋輔、小林一道、渡部正夫、藤井宏之、戸谷剛
2. 発表標題 非凝縮性気体分子が蒸気分子の蒸発に及ぼす影響に関する分子気体力学解析
3. 学会等名 日本機械学会流体工学部門、第97回講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤洋輔、小林 一道、藤井 宏之、渡部 正夫、戸谷剛
2. 発表標題 蒸気と非凝縮性気体の混合気体に接した液体の蒸発に関する分子気体力学シミュレーション
3. 学会等名 混相流シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 棚田慶崇、戸谷剛、小林一道、近藤良夫
2. 発表標題 連続励起された水の分子内振動から分子間振動への緩和
3. 学会等名 日本機械学会北海道学生会第51回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 棚田慶崇、戸谷剛、小林一道、近藤良夫
2. 発表標題 連続励起された水の分子内振動から分子間振動への緩和
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>マイクロエネルギーシステム研究室ホームページ https://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/mes/ 熱流体物理学研究室ホームページ https://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/fluid/</p>
--

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	小林 一道 (Kobayashi Kazumichi) (80453140)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	

	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
研究協力者	近藤 良夫 (Kondo Yoshio)	日本ガイシ株式会社・NV推進本部・マネージャー	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------