

# 研究トピックス



## 材料から見たマイクロ波加熱とは

### What is the microwave heating from a viewpoint of a material?

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 杉山 順一

〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央第 5

e-mail: sugiyama-j@aist.go.jp

#### 1. はじめに

本報では、物質にマイクロ波を照射した時に起こる現象について、「何の原理に基づけば、物質がどのように振る舞うべきか」および「何の原理に基づけば、マイクロ波がどのように振る舞うべきか」について、関係式を整理する。

#### 2. デバイ緩和

マイクロ波照射による誘電損失はデバイ型緩和式(1)で説明される。この式が何を意味するのか、実際の系ではどのような振る舞いをするのかを考える。

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r(\infty) + \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{1 + j\omega\tau} \quad (1)$$

物質に電界が印加されれば、その場に従って電気双極子は向きを変えようとする。これは単純に、+は-に、-は+に向かって向きを変える現象である。その時の向きを変える度合い、すなわち外場を打ち消そうとする度合いが比誘電率 $\varepsilon_r$ であると考えて良い。ここで式(1)の左辺は、複素比誘電率 $\varepsilon_r^*$  ( $=\varepsilon_r' - j\varepsilon_r''$ )が角周波数 $\omega$ の関数であることを示している。ところがクーロン力として作用する異符号間の引力、同符号間の斥力、という関係だけでは周波数依存性、すなわち時間の概念を入れることはできない。式(1)の右辺に示された $\omega$ および緩和時間 $\tau$ とは何を表すのだろうか。

物質内を電磁波が透過するという事は、ある定点に注目すれば、その点において場の電界が振動していることになる。場（電場）の振動は式(2)を使えば、実部が余弦関数(cos 関数)であることを示している。

$$E(t) = E_0 e^{j\omega t} \quad (2)$$

場の電界  $E(t)$ は十分に以前から振動していたとすると、物質の電気双極子の向きも以前から振動していたことになる。物質の電気双極子の向きが振動するという事は、その点において物質の持つ電束密度が変化していることを意味している。時刻  $t$  で物質の持つ電束密度  $D$  は、

- ・今の電界強度に素早く応答する成分  $D_p$
- ・昔の電界強度で影響を受けた部分  $D_d$

の2つから構成される。ここで「今の」とは現在時刻における印加電界強度に比例して応答できる素早い応答であり、「昔の」とは印加に応答はするものの現在時刻時点で反映できず遅れる応答、つまりは今に影響している昔の影響である。 $D_p$ に時間の概念は入らないが、 $D_d$ には時間の概念が関与する。したがって物質から見れば、応答する電束密度 $D(t)$  ( $=$ 分極 $P(t)$ ) は、外部電界の変化に高速に追従する部分と遅れて追従する部分の二つの応答を併せ持っている。

高速に追従する部分とは“マイクロ波帯の周波数”では影響されない部分であり、例えば電子雲の重心移動（応答周波数はUV帯）や分子の骨格振動（応答周波数はIR帯）のような、マイクロ波帯よりも高周波数帯で応答する現象に基づくものである。これらは応答する周波数帯が異なるので誘電緩和現象とは無関係だが、複素比誘電率の実部に $\varepsilon_r(\infty)$ として関与する。従って $D_p$ は式(3)で示される。 $D_p$ は現在時刻 $t$ の電界 $E(t)$ から位相遅れの無い $t$ の関数、 $\varepsilon_0$ は真空の誘電率である。

$$D_p(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_r(\infty) E(t) \quad (3)$$

これに対して遅れて追従する部分とは、“マイクロ波

帯の周波数”では周波数の影響を受ける部分であり、具体的には分子の電気双極子の配向などが相当する。以前の時刻  $u$  における電界  $E(u)$  の影響を、開始時刻 0 から現在時刻  $t$  まで積分した  $t$  の関数を意味する。

$$D_d(t) = \int_0^t E(u) f(t-u) du \quad (4)$$

式(4)の意味するところは、「昔、時刻が  $u$  だった時、電界は  $E(u)$  だった。それが今、時刻が  $t$  である時、どれだけ電束密度 (=配向度合い) に影響するかは、関数  $f(t-u)$  次第」である。関数  $f(t-u)$  は以前の時刻  $u$  が現在の時刻  $t$  に及ぼす誘電率の関数であり、余効関数と呼ばれる。余効関数を  $f(x)$  として書き直すと式(5)となる。

$$\varepsilon_0 \{ \varepsilon_r^*(\omega) - \varepsilon_r(\infty) \} = \int_0^\infty f(x) e^{-j\omega x} dx \quad (5)$$

余効関数の定め方には種々あるが、均一な液体系で広く適用が可能なデバイ緩和は、その余効関数が式(6)で示される。

$$f(x) = \varepsilon_0 \{ \varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty) \} \frac{e^{-x/\tau}}{\tau} \quad (6)$$

式(6)には時間に携わる物質固有の定数として緩和時間  $\tau$  が 2 回出現している。一つは指数項である  $e^{-x/\tau}$  であり、「昔であるほど影響が小さくなる」ことを意味する。ここで  $\tau$  が小さいほど短い時間で大きく減衰することから、 $\tau$  が小さいほど、昔の影響を受けない。もう一つは係数項としての  $\varepsilon_0 \{ \varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty) \} / \tau$  であり、「大きさは誘電率の変動幅に比例し、また緩和時間  $\tau$  と反比例する」ことを意味する。

式(6)を式(5)に入れて積分し、整理すると式(1)になる。ということは逆に考えれば、対象物質の周波数応答性を次項のボーデ線図、ナイキスト線図で調べた時、応答が式(1)に従うと計測されたなら、その現象は式(6)の余効関数をもった誘電緩和現象である、という事ができる。余効関数が式(6)でないなら、デバイ緩和式には従わない。対象物質の誘電率評価を行うことはマイクロ波の加熱の度合いを調べることでもあるが、広い周波数領域の挙動を見ることによってその対象物質がデバイ緩和現象に従うのかそうでないのかを知る方法でもある。

### 3. ボーデ線図、ナイキスト線図

広い周波数領域の応答挙動を見る時に二つの表記法が多用される。一つは横軸を周波数の対数表記、縦軸に誘電率の実部、虚部を記したボーデ線図である。周波数が対数表記であるという事は、周波数が 0 の時の値は  $\log(0)$  を意味してしまうため、この図では示すことができない。デバイ緩和に従うのであれば、実部は単調減少関数であるので滑り台形となり、また虚部は一つの山形となる。それぞれの形は当然ながらデバイ関数式から誘導されているため、意味もなく滑り台、山、になっているわけではない。正しい書き方としては式(7,8)のように共に双曲線関数であり、実部は点対称である双曲線正接関数 (ハイパボリックタンジェント:  $\tanh$ )、虚部は線対称である双曲線正割関数 (ハイパボリックセカント:  $\text{sech}$ ) になる。

$$\varepsilon_r'(\omega) = \varepsilon_r(\infty) + \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{2} \{ 1 - \tanh(\ln(\omega\tau)) \} \quad (7)$$

$$\varepsilon_r''(\omega) = \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{2 \cosh(\ln(\omega\tau))} = \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{2} \text{sech}(\ln(\omega\tau)) \quad (8)$$

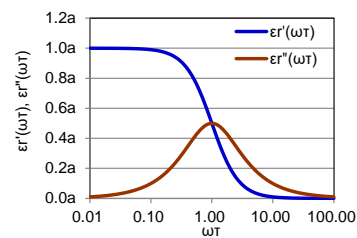


図1 ボーデ線図 (縦横軸の単位は任意)

もう一つの応答表記にナイキスト線図がある。横軸に実部、縦軸に虚部を記すと、デバイ緩和式は半円を示す。これは媒介変数を  $\omega$  として式(1)から得られ、式(9)に変形すれば円の方方程式と同形であることが導かれる。ナイキスト線図では実部に対応する虚部があれば記述できるため、ボーデ線図では記述できなかった、周波数が 0、周波数が  $\infty$  の値も載せることができる。デバイ緩和では  $\omega \rightarrow 0$  の時に  $\varepsilon_r^*(\omega) \rightarrow \varepsilon_r(0) - j0$ 、 $\omega \rightarrow \infty$  の時に  $\varepsilon_r^*(\omega) \rightarrow \varepsilon_r(\infty) - j0$  となるが、これらの点は横軸上の点である。したがって近似半円が求められれば  $\varepsilon_r(0)$ 、 $\varepsilon_r(\infty)$  をそれぞれ外挿することができる。また、半円の頂点は  $\varepsilon_r''$  の極大点であり、その時の周波数の逆数が緩和時間  $\tau$  となる。よってここから  $\tau$  を求めることができる。

$$\left\{ \varepsilon_r'(\omega) - \frac{\varepsilon_r(0) + \varepsilon_r(\infty)}{2} \right\}^2 + \left\{ \varepsilon_r''(\omega) \right\}^2 = \left\{ \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{2} \right\}^2 \quad (9)$$

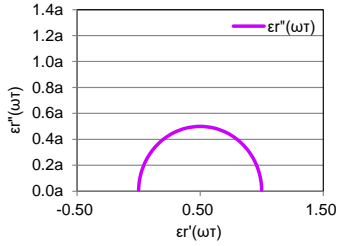


図2 ナイキスト線図（縦横軸の単位は任意）

高分子溶液では周波数応答をナイキスト線図に示した時に半円が歪曲することがある。この補正として「経験的な」補正式がいくつか示された。その一つに式(10)のコール-コール型緩和式がある。これはデバイ型緩和式に対し係数  $\beta$  ( $0 < \beta \leq 1$ ) を用いて補正を行う。

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r(\infty) + \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{1 + (j\omega\tau)^\beta} \quad (10)$$

コール-コール型緩和式による補正は、半円の中心が下に沈む形になる。これは半円と横軸の交点において、傾きが  $\pm\infty$  でないことを意味している。デバイ緩和式を誘導すれば値は常に第一象限になければならない。また  $\omega \rightarrow 0$  の時に  $\text{Im}(\varepsilon_r^*(\omega))/\text{Re}(\varepsilon_r^*(\omega)) \rightarrow -\infty$ 、 $\omega \rightarrow \infty$  の時に  $\text{Im}(\varepsilon_r^*(\omega))/\text{Re}(\varepsilon_r^*(\omega)) \rightarrow +\infty$  となるため、複数の  $\tau$  から構成される物質であっても半円と横軸の交点の傾きは  $\pm\infty$  でなければならない。したがってコール-コール型緩和式は物理学上の理論的な意味を持たない。しかしながら  $\varepsilon_r(0)$ 、 $\varepsilon_r(\infty)$  から離れた周波数領域で、曲線の概形を係数で示すには都合の良い「経験的な」式である。他の経験的な式として式(11)のデビッドソン-コール型緩和式、式(12)のハブリリアク-ネガミ型緩和式がある。

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r(\infty) + \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{(1 + j\omega\tau)^\alpha} \quad (11)$$

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r(\infty) + \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(\infty)}{(1 + (j\omega\tau)^\beta)^\alpha} \quad (12)$$

対象物の周波数応答が測定できれば、ボーデ線図およびナイキスト線図で表現することによって、理論的な値からのずれや周波数応答性の予測を考察できる。デバイ型緩和式でナイキスト線図が正半円を示すのは  $\tau$  がただ一つの値を持っている、すなわち  $\delta$  関数である

からである。例えば高分子溶液を想定した時、高分子近傍の束縛された溶媒分子と遠方の溶媒分子では自由度が異なると考えれば、 $\tau$  は  $\delta$  関数ではなく分散を持った関数で示される。分散性が対称（例えば正規分布）であればそれぞれの  $\tau$  について積分した応答値の軌跡は正円から扁平化し、コール-コール型緩和式と同様な歪曲を示す。分散性が非対称（例えば正準分布）であれば同様にデビッドソン-コール型緩和式と同様な歪曲を示す。したがってナイキスト線図における半円の歪曲は「経験的な」ものではなく、 $\tau$  の分散を用いれば理論的に意味のある緩和式として表現が可能となる。

マイクロ波加熱の観点からは、照射周波数を変えた時に大きく挙動が変わるのか、あまり変わらないのかが重要であるが、これはボーデ線図から読み取れる。温度上昇によって分子の擾乱性が増すことで、一般に  $\varepsilon_r(0)$  は減少するため、ボーデ線図の滑り台（実部）は低くなる。また温度上昇によって分子間の束縛が減少し  $\tau$  が小さくなることから、山（虚部）は高周波側にシフトする。実部と虚部はクラマース-クローニツヒの関係によって結合されているので、これらは同時に起こる。すなわち、温度上昇によってボーデ線図の滑り台（実部）は低くなるとともに高周波側にシフトし、山（虚部）は高周波側にシフトするとともに低くなる。滑り台と山が、照射しようとしている周波数帯でどのように変化するかによって、加熱時の複素比誘電率の変化が予想できる。

#### 4. エネルギー損失式

マイクロ波による加熱の代表的な例として導電損失、誘電損失、磁性損失がある。電磁波のエネルギー損失を単位空間あたりの電力損失  $P[\text{W}/\text{m}^3]$  とすると、式(13)となる。

$$P = \frac{1}{2} \sigma |\mathbf{E}|^2 + \frac{1}{2} \omega \varepsilon'' |\mathbf{E}|^2 + \frac{1}{2} \omega \mu'' |\mathbf{H}|^2 \quad (13)$$

損失は、電磁界に対する物質の性質と、印加する電磁界の性質に影響を受ける。前者の電磁界に対する物質の性質とは物質固有の物性値であり、導電率、誘電率、透磁率などに示される。また後者の印加する電磁界の性質とは印加するマイクロ波の空間分布や強度、周波数であり、電界強度、磁界強度、(角)周波数など

に示される。これらは物理物性ではないので、人為的に変えることができる。

導電率 $\sigma$ [S/m]は導電性物質に電界を印加した時に示される指標である。対象内部に電流が生じる場合、電界の印加によってジュール熱損 $W$ [W/m<sup>3</sup>]が生じる。この時、電界 $E$ [V/m]、導電率（電気伝導度） $\sigma$ [S/m]の関係は式(14)に示される。ここで $|E|$ は電界の最大強度を示している。この式は式(13)の第一項である。

$$W = \frac{1}{2} \sigma |E|^2 \quad (14)$$

これに対し、電流を流さない誘電体に電界を印加した時、どれだけ誘電体の電気双極子が配向するかを示したのが誘電率 $\epsilon$ [F/m]である。誘電体は電気双極子が配向するだけで、電荷が流れるわけではないが、全体としては電荷の分離がある。有限の時間で周期的に変動する電界の印加に対して、見かけ上の電荷の移動があり、これを電流とみなすこともできる。この現象は、物質内で等方的だった電気双極子が特定方向に配向することにより、単位体積で積算された電気双極子の密度が増減することに起因する。電気双極子の単位は[Cm]であり、その体積密度は[C/m<sup>2</sup>]となるため、これは物質の電束密度 $D$ [C/m<sup>2</sup>]が時間で変化したことと等価である。電束密度 $D$ [C/m<sup>2</sup>]の時間微分 $\partial D/\partial t$ は変位電流とよばれ、電流密度 $i$ [A/m<sup>2</sup>]と同次元である。

変位電流は印加電界の時間変化で生じ、印加電界の変化（周波数）が速すぎても遅すぎても損失を示さない。これは周波数が低すぎても高すぎても物質は電磁波を吸収せず、透明であることを示している。誘電体の電束密度が $dD$ だけ変化する時の単位体積あたりのエネルギー変化を $dU$ 、および1周期（ $1/f=2\pi/\omega$ ）の間に誘電体に費やされるエネルギーを $w$ [J/m<sup>3</sup>]とすると式(15)となる。

$$w = \int_0^{2\pi/\omega} E \frac{dD}{dt} dt = \pi \epsilon_0 \epsilon_r'' E_0^2 \quad (15)$$

1秒間ではこの $f$ 倍であるから、単位時間、単位体積あたりの損失 $W$ [W/m<sup>3</sup>]は式(16)に誘導される。ここで $|E|$ は電界の最大強度を示している。この式は式(13)の第二項である。

$$W = \frac{1}{2} \omega \epsilon_0 \epsilon_r'' |E|^2 \quad (16)$$

電気双極子（ダイポール）を磁気双極子（スピン）に置き換え、磁束密度の増減をエネルギー変化として求めると、磁性体に費やされる単位時間、単位体積あたりの損失 $W$ [W/m<sup>3</sup>]は式(17)に誘導される。ここで $|H|$ は磁界の最大強度、 $\mu_0$ は真空の透磁率である。この式は式(13)の第三項である。

$$W = \frac{1}{2} \omega \mu_0 \mu_r'' |H|^2 \quad (17)$$

## 5. まとめ

マイクロ波照射による加熱現象について、デバイ緩和、ボーデ線図・ナイキスト線図、エネルギー損失を述べた。デバイ緩和に基づいた物質の複素誘電率の物理的な意味を元に、それが理論通りの場合に示すべき応答曲線をボーデ線図・ナイキスト線図で解説した。そこから想定される誘電率の温度変化は「滑り台と山」の関係で示され、対象周波数（照射周波数）によってエネルギー損失、すなわち加熱度合がどのように変わるか、その原理を示した。

多くの誘電体液体は混合液であってもデバイ緩和に近い挙動を示すことが測定結果のボーデ線図・ナイキスト線図からわかっている。物質の示す緩和時間がわかれば、加温時に誘電率がどのように変化するかは推定できる。その結果、エネルギー損失傾向、例えば印加後の高温部と低温部でどちらが加熱されやすいかが推定できる。

測定結果のボーデ線図・ナイキスト線図が理論式と傾向が一致しない場合、その物質が特別である可能性もあるが、測定方法が誤っている可能性も考慮すべきである。加熱に用いる周波数が2.45GHzだけだからといってその周波数に対する挙動のみの測定では、簡便ではあるが検証や考察ができない。測定方法が誤っていても測定値の繰り返し再現性は表れる。精度と確度の違いを認識した上で、測定値が基本原理に従っているかの考察が重要である。

## 参考文献

第1回JEMEA若手サマースクール、杉山順一、pp35-80、2016.