

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 24 日現在

機関番号：32675

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K19873

研究課題名（和文）多成分スラリーにおけるケミカルフリーな新規選択凝集・分離技術の開発

研究課題名（英文）Development of a novel separation technique for multi-component slurry without chemical agents

研究代表者

森 隆昌（Mori, Takamasa）

法政大学・生命科学部・教授

研究者番号：20345929

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000 円

研究成果の概要（和文）：多成分スラリーに直流電場を印加することで、特定の成分を濃縮分離できる技術の開発を試みた。まず様々な材質の粒子の水系スラリーに直流電場を印加し、沈降の様子を観察したところ、粒子の材質によって電場による凝集効果が異なることが確認された。さらにアルミナとジルコニアの2成分スラリーに電場を印加したところ、電場による凝集効果が大きいジルコニアはより沈降しやすく底部に濃縮されるのに対して、電場による凝集効果が小さいアルミナはゆっくりと沈降するためジルコニア粒子よりも上部に残りやすいことが示された。適切な流量の水を下部から送ることでアルミナは上部から回収できることも示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多成分スラリーから凝集剤等の薬剤を添加することなく特定の有用成分（粒子）のみを濃縮・回収することができれば様々な廃液からのマテリアルリサイクルを実現できる可能性が拓ける。本研究の結果は、廃液等の多成分スラリーにおいて、有用成分粒子の電場による凝集効果が他粒子と異なる場合には、直流電場を印加しながら適当な大きさの上昇流を生じさせることで、上部と下部に分けて、電場による凝集効果が異なる成分を回収できる、すなわち特定の有用成分を濃縮分離できる可能性を示しており、今後のマテリアルリサイクルの可能性を高めると期待できる。

研究成果の概要（英文）：We tried to develop a novel separation technique for multi-component slurries in which DC electric field applies to the slurry. Firstly it was demonstrated that the aggregation effect by DC application differ depending on the particle type from the observation of settling behavior after DC application. Furthermore, it was found that the zirconia particles which aggregated easily by DC application could settle quickly, resulting in high amount of zirconia at the bottom the slurry container, while the alumina particles which hardly aggregated by DC application still remained the upper part of the slurry. By supplying the appropriate flow rate of water from the bottom of the container, we can collect non-aggregated alumina particles from the top of the container.

研究分野：化学工学、粉体工学

キーワード：選択分離 直流電場 沈降 浮上

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

シリコンウェハの切削過程で排出されるシリコンスラッジをはじめ、様々な研磨・研削スラッジには有用成分の粒子が含まれているが、同時にその他の様々な成分の粒子も含まれており、容易に分離・回収することは難しい。そのため、現状のスラッジ処理においては、凝集剤と呼ばれる化学物質を添加して、全ての成分の粒子を凝集。粗大化させることで沈降分離を促進している。しかし回収される粒子は様々な成分が混ざっているため、有用成分の回収という観点から見れば極めて純度が低いことになり、そのほとんどが廃棄処分されている。

このような現状に対して我々は、水系スラリーを対象として、粒子の沈降方向とは垂直な方向に直流電場を印加することで、凝集剤を使用せずに粒子を凝集させ、効率よく沈降分離できる技術を開発してきた。単成分粒子のスラリーに対しては、バッチ処理はもちろんのこと、スラリーを連続供給しながら清澄な上澄みと濃縮スラリーを連続的に得ることができる装置の試作にも成功している。これら一連の研究の中で、様々な成分の粒子の水系スラリーに対して直流電場を印加すると、電場による粒子の凝集効果が異なる場合があることを見出した。従って、上記のような多成分スラリーに対しても、有用成分の粒子のみが他の粒子とは電場による凝集効果が異なれば、選択的に有用成分のみを凝集させ、濃縮分離することができるのではないかとこの着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では多成分の粒子が懸濁している水系スラリーから、薬剤を添加することなく、目的とする成分の粒子を高効率・高純度で回収できる手法を開発することを目的とする。現状では、凝集剤を添加し、全ての成分の粒子をまとめて凝集させて固液分離し、廃棄するだけとなっているスラリーに対して、リサイクル可能な粒子を成分ごとに分けて回収できるようにする。

3. 研究の方法

まず様々な材質の粒子について、どの程度直流電場による粒子凝集効果が異なるのかを把握するために、単一成分の水系スラリーを調製し、直流電場印加後の粒子の沈降挙動を観察した。試料粉体はアルミナ、シリカ、炭化ケイ素、シリコン、チタン酸バリウム、チタニア、ジルコニア、セリア、イットリアの9種類である。粒子濃度が0.1 vol%となるように各粉体試料とイオン交換水を混合し超音波ホモジナイザーで7min 超音波を照射し分散処理した。得られたスラリーを左右に2枚の炭素板を設置したアクリル製の直方体容器(縦:10 cm,横:4 cm,奥行き:5 cm)に高さ8 cmまで入れ、直流電場を印加した。印加電圧は15 Vとし120 min 電場を印加した後スラリーを攪拌してから直径4 cmのアクリル製沈降管に移し、静置して沈降挙動を観察した。

さらに、図1のような装置を試作し、2成分スラリーの分離実験を行った。

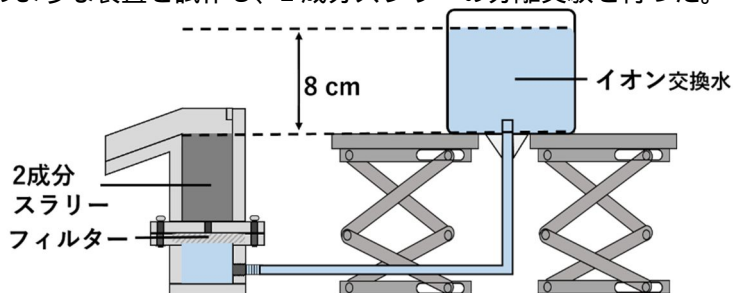


図1 2成分スラリーの分離装置の概要

試料粉体としてアルミナとジルコニアを0.05 vol%ずつ、合計0.1 vol%となるようにイオン交換水と混合し、分散処理した。この2成分スラリーをアクリル製容器に高さ8 cmまで投入し、15 Vの直流電場を120 min印加した。この時、容器下部につないだリザーバータンクからイオン交換水を83 mL/minの割合で供給した(スラリー表面とのヘッド差を8 cmとすることで流量を一定に保った)。容器底部のフィルター上1 cmのところからスラリーをサンプリングし、乾燥させた。得られた粉末をレーザー誘起ブレイクダウン分光法で分析し、混合粉末中のアルミナ及びシリカの割合を求めた。

4. 研究成果

図2に今回実験に用いた粉体のゼータ電位測定結果を示す。0.1 vol%スラリーを調製すると、スラリーのpHは5.0~9.0程度の幅の中で変化するが、今回使用したスラリーについてはいずれも調製直後は十分な絶対値のゼータ電位を有していたこと、並びに、粒子濃度が十分低く、粒子間距離が広いことから、直流電場印加前のスラリーはいずれも粒子は良く分散していたと考えられる。

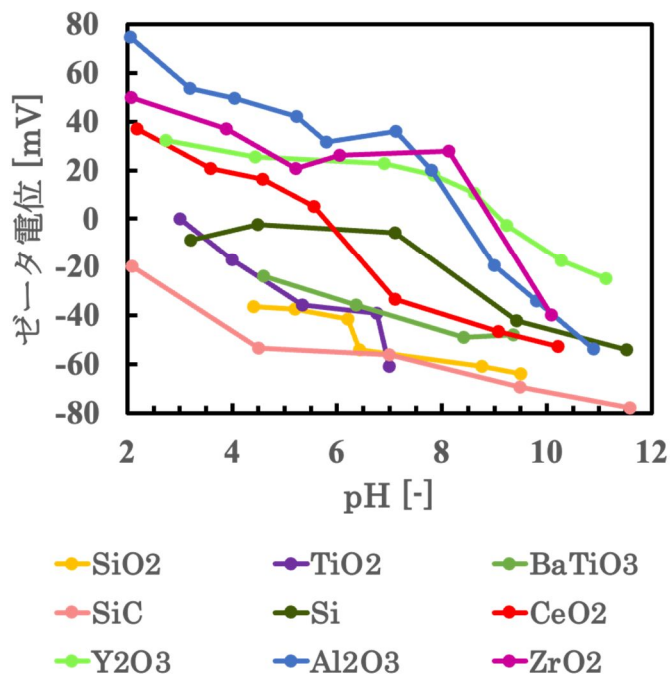


図2 使用した粉体のゼータ電位

直流電場印加時の界面位置の経時変化の観察から、今回使用したスラリーではアルミナ、チタニア、ジルコニア、セリア、イットリアでは界面下降速度の上昇が見られたが、炭化ケイ素、シリコン、チタン酸バリウムでは界面下降速度が電場無印加の時と変化がなかった。このことから電場印加時の沈降促進効果が全ての粒子で見られるわけではないことが分かった。材質の影響についてはゼータ電位の pH 依存性などの観点から考察したが、現在のところ、どの因子が原因で電場印加時の挙動が変化したのかまでは明らかにすることができておらず、今後の課題である。

表 1 に電場印可前と印加後のスラリーを沈降管に移して静置した時の沈降速度を示す。電場印加後のスラリーで沈降速度の増加が見られたのは、アルミナ、ジルコニア、セリアで、電場印加前後で沈降速度がほぼ変化しないのは、シリカ、シリコン、炭化ケイ素、チタニアであった。チタン酸バリウムとイットリアについては、電場印加後のスラリーの方が電場印加前のスラリーよりも沈降速度が遅い結果となった。通常電場印加により粒子が分散することは考えにくい。ため、電場印加後の方が、沈降速度が遅い原因についてはよく分かっていない。しかし、電場によって粒子が凝集し、電場印加後もその凝集体が残っているスラリーと電場によって粒子が凝集しない、もしくは、凝集しても電場印加を止めた後に凝集がほぐれるスラリーとがあることが示された。これは、このように電場印加後の沈降挙動が異なる粒子が混ざった 2 成分スラリーであれば、電場印加によって凝集して沈降が速くなる粒子とそうでない粒子が分離できる可能性を示唆している。

表 1 電場印加前後の沈降速度

粉体	沈降速度 (mm/h)	
	電場印可前	電場印加後
アルミナ	0.67	1.5
ジルコニア	0.67	8.8
セリア	0.42	8.8
シリカ	0.42	0.42
シリコン	0.25	0.25
炭化ケイ素	6.7	6.7
チタニア	0.58	0.58
チタン酸バリウム	9.0	4.2
イットリア	0.83	0.83

図 3 にはアルミナとジルコニアの 2 成分スラリーの沈降の様子を、表 2 には 2 成分スラリーを 10, 60 min 沈降させて得られた堆積層の組成を分析した結果を示している。電場印加有り、なしで比較すると、電場を印加した場合の方が、堆積層中に含まれるジルコニアの割合が多く、スラリー中よりもジルコニアの割合が高いことから、電場によってジルコニアを濃縮・回収できることが示された。

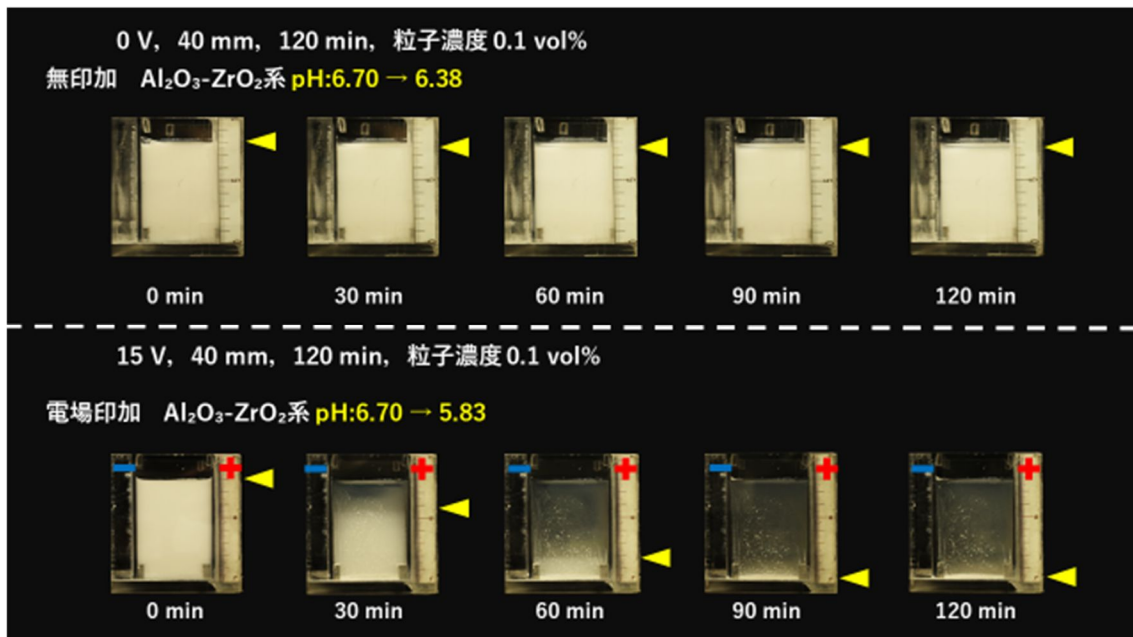


図3 2成分スラリーの沈降の様子

表2 2成分スラリーの沈降堆積層の元素分析結果

沈降時間 (min)	電場の有無	O (mol%)	Al (mol%)	Zr (mol%)	Zr/Al (-)
10	無し	66.7	19.3	14.0	0.73
	有り	68.6	13.2	18.3	1.39
60	無し	71.8	14.0	14.2	1.01
	有り	67.5	15.4	17.2	1.12

さらに表3には図1の2成分スラリーの分離装置において分離回収した粒子の組成を示した。電場を印加せずに底部から水を供給した場合は全ての粒子が上部側から回収されたため、上部から回収された粒子の組成を分析した。表から分かるように、電場印加時に底部から回収された濃縮液には多くのジルコニアが含まれていることが分かり、連続的に底部からジルコニアを濃縮して回収できる可能性が示された。

表3 2成分スラリー分離装置により回収した粒子の組成

電場の有無	O (mol%)	Al (mol%)	Zr (mol%)	Zr/Al (-)
無し	71.1	12.8	16.0	1.25
有り	55.1	13.8	31.2	2.27

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	榎 淳一郎 (Tsubaki Junichiro) (50109295)	公益財団法人名古屋産業科学研究所・研究部・上席研究員 (73905)	

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