

令和 5 年 5 月 4 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2022

課題番号：18K03948

研究課題名（和文）原子核の手法によるウルトラファインバブルの研究

研究課題名（英文）Studies on ultra fine bubbles by using techniques on nuclear physics

研究代表者

谷垣 実 (Minoru, Tanigaki)

京都大学・複合原子力科学研究所・助教

研究者番号：90314294

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：キセノンガスのウルトラファインバブルの内部圧力の直接測定に成功した。キセノンガス中の放射性ヨウ素の線放出非対称度がガス圧に依存することを利用し、気泡内に熱中性子照射で生成したヨウ素125の線放出非対称度を測定した。得られた圧力は従来の泡でよく成立するヤングラプラスの式からの予測よりも低く、何らかの圧力補償機構の存在が強く示唆される結果となった。またウルトラファインバブル水中のインジウムの水和イオンとウルトラファインバブルの相互作用を摂動角相関法により観測し、pH=10付近でウルトラファインバブルが水和イオンの状態に影響を与えていることを示唆する結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ウルトラファインバブルの持つ高い機能性は産業界の幅広い分野で注目され応用が進んでいるものの、基礎特性や機能発現のメカニズムについては、従来の気泡研究で用いられた観測手法の適用が困難になることから十分進んでいなかった。今回の研究はウルトラファインバブルの新たな研究手法を提示しただけでもなく、基礎特性の理解につながる成果でもある。基礎特性の理解が進むことで、ウルトラファインバブルの機能性の活用の原理的裏付けやより適切な活用方法の確立につながる。

研究成果の概要（英文）：Direct measurement of the internal pressures of ultrafine bubbles of Xe gas was successfully performed using the known pressure dependence of the degree of the γ -ray asymmetry of radioiodine in Xe gas. Iodine-125 was induced inside bubbles by thermal neutron irradiation. The obtained pressure was lower than predicted by the Young-Laplace equation, which was well-established for conventional bubbles. The present result strongly suggests the existence of some pressure-compensation mechanism. The interaction between hydrated ions of indium and ultrafine bubbles was also observed by the perturbed angular correlation method. A possible difference was observed around pH=10, suggesting the interaction of ultrafine bubbles with hydrated ions.

研究分野：原子核物理・核物性

キーワード：ウルトラファインバブル 内部圧力 線放出非対称度 超微細相互作用 不安定核

1. 研究開始当初の背景

ファインバブルとは大きさ $100\ \mu\text{m}$ 未満の微細な気泡[1]で、この気泡を含む水が示す高い機能性から化学、半導体産業、環境、食品、医療など幅広い分野で注目され実用化が進められている。特に大きさが概ね $1\ \mu\text{m}$ 未満の気泡であるウルトラファインバブルが様々な作用をすることは経験的に知られており、橋梁の塩分除去、樹脂加工品や半導体基板の洗浄、土壌や工場排水の浄化作用、農作物や水産物の生育促進や品質向上など産業界の幅広い分野で応用や実用化が進んでいる。

その一方でウルトラファインバブルの基礎的な研究は進んでいない。たとえば、ウルトラファインバブルの安定性は重要な問題であった。従来のヤング=ラプラス方程式の予測する内圧では内部の気体が極めて短時間で溶解してしまうため安定に存在することなく消滅するはずであるが、実験的には極めて安定に存在することが確認されており、数ヶ月もの寿命を持つとの報告もある。このウルトラファインバブルの安定性の議論の上ではウルトラファインバブルの実際の内部圧力は極めて重要な問題であるにも関わらず、まだ直接的な測定結果は報告されていない。そもそもウルトラファインバブルの大きさは可視光の回折限界より小さく、これまでの気泡に関する計測手法では観測自体が困難であり、たとえば気泡の数や大きさの測定、他の不純物との弁別といったことでさえ問題がある。このようにウルトラファインバブルの基礎的な特性の理解は十分進んでいるとは言い難い状況であった。

2. 研究の目的

この研究では、ウルトラファインバブルの基礎的な特性の理解を進めるため、以下の二つの目標について取り組むこととした。

- (1) 不安定原子核によるウルトラファインバブル内部の直接観測
原子核反応によりウルトラファインバブルのガス中に不安定原子核を生成、これをプローブとして泡の状態、および溶解過程等の経時変化を観測
- (2) 不安定原子核によるウルトラファインバブルの界面作用の観測
プローブとなる不安定核とウルトラファインバブル水を作用させた時の作用機構について微視的な観点からの新たな知見を得る

3. 研究の方法

ウルトラファインバブルへの適用に困難を抱えている従来の気泡に関する計測手法ではなく、摂動角相関法という原子核物理の手法を用いることとした。励起状態にある不安定な原子核が放出する γ 線が核スピンに対して方向依存性を持つことを活用し、超微細相互作用による原子核スピンの運動を検出する手法である。

ウルトラファインバブルの内部圧力測定では、ウルトラファインバブル内に不安定核を生成する必要がある。このため京都大学複合原子力科学研究所の 5MW 研究用原子炉からの熱中性子をキセノンのウルトラファインバブルに照射し、ウルトラファインバブルの構造に影響を与えることなく内部のキセノンガスに含まれるキセノン 124 の中性子捕獲反応でキセノン 125 を生成した。このキセノン 125 は軌道電子捕獲反応によりヨウ素 125 の励起状態となるため、価数の高い陽イオンとしてガス中に存在し、強い超微細相互作用が発生する。しかし、周囲のキセノン原子との間の衝突等により不足した電子が補填され閉殻状態となる。この補填の速度は周囲のキセノン原子との相互作用の頻度、すなわち圧力に依存することとなる。摂動角相関で観測される γ 線放出非対称度とガス圧の関係は詳しく調べられており、これを元にウルトラファインバブル内の圧力を知ることができる。

また、界面作用については、ウルトラファインバブルの周囲に存在する不安定核の摂動角相関から不安定核の超微細相互作用の有無を観測する。なお、物質表面に不安定核を局在して生成する場合、ウルトラファインバブルに接触しない不安定核が多くなりすぎ、その結果摂動角相関での差異の観測が困難であることが判明したため、方針を変え、ウルトラファインバブルの存在する水に不安定核であるインジウム 111 を導入し、このインジウム 111 が構成する水とイオンとウルトラファインバブルとの間の相互作用を摂動角相関によるインジウム 111 のスピン緩和を観測することで評価することとした。

4. 研究成果

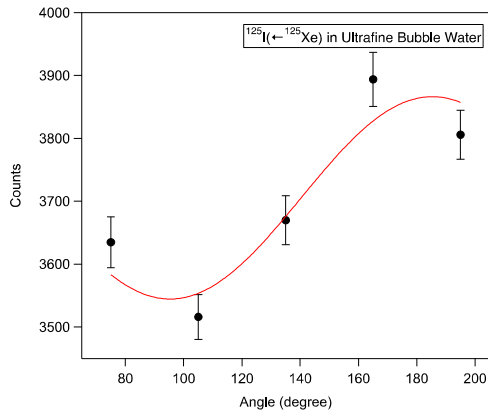


図 1 キセノンのウルトラファインバブル中のヨウ素 125 の摂動角相関

平均粒径 200 nm のキセノンのウルトラファインバブル中のヨウ素 125 の摂動角相関の結果は図 1 のとおりとなり、超微細相互作用のない場合の半分未満の非対称度 $+0.097 \pm 0.020$ を示すこととなった。Berek らはキセノンガス中のヨウ素 127 の圧力依存性について詳しく調べており[2]、原子核の内部構造に起因する放出非対称度の違いを補正するだけでヨウ素 125 の圧力依存性とすることができる。今回得られた非対称をこの圧力依存性に当てはめ、今回のウルトラファインバブルの内部圧力は約 3.6×10^5 Pa とヤングプラスの式から予測される値 1.5×10^6 Pa を大きく下回った。このことはウルトラファインバブルには何らかの圧力補償機構により外圧との差を吸収していることを示唆している。

また、ウルトラファインバブルの周囲との相互作用では、酸素のウルトラファインバブル水にインジウム 111 を含む塩化インジウム塩酸溶液を滴下した試料溶液について pH を調節しながらインジウム 111 の軌道電子捕獲により生成されるカドミウム 111 の摂動角相関によるスピン緩和を観測した。ウルトラファインバブルを含まない水でのカドミウム 111 のスピン緩和は pH=3 程度以下と pH=13 以上では極めて長く単一成分の指数関数的な減衰を示す一方、その中間領域では周囲の変動する構造や相互作用に基づく動的な緩和による減衰振動的な成分とカドミウム 111 の周囲の構造が安定した分子や結晶構造をとる場合に見られるいわゆるハードコア成分の混合した複雑な様相を見ることが知られている。酸素のウルトラファインバブル水においても同様の傾向を示したが、pH=10 付近で動的な緩和の成分が通常の水の場合に比べて大きくなることがわかった(図 2)。インジウム 111 は溶液中で水和イオンとなって存在し、軌道電子捕獲後のカドミウムのこの水和イオンの状態で存在する。上に述べたスピン緩和の pH 依存性は pH=3 未満と pH=13 以上で対称性の良い八面体構造をとる一方、その中間では水和イオンがより対称性の低い構造をとっていることと対応していると考えられているため、この水和イオンに対するウルトラファインバブルの作用の有無による違いが現れている可能性が示唆された。

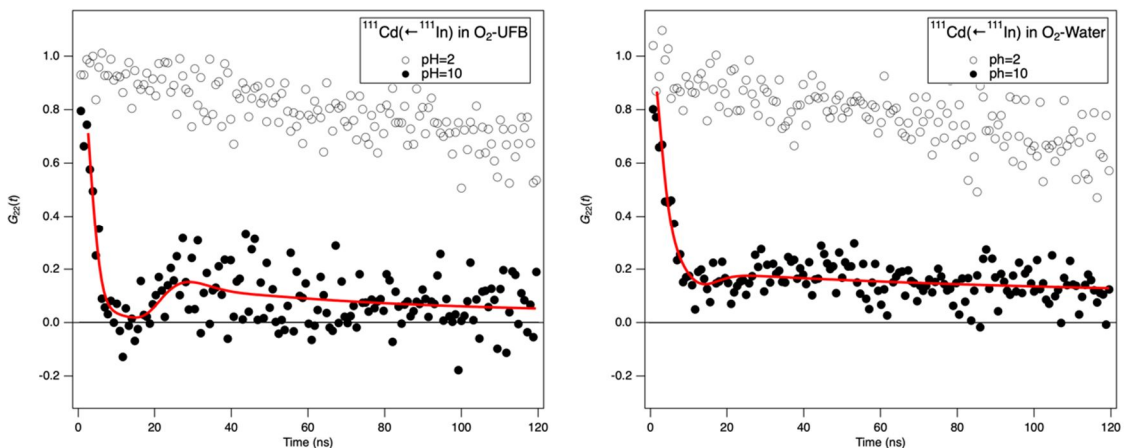


図 2 酸素のウルトラファインバブル水中(左)および水中のカドミウム 111 のスピン緩和

今回の研究では、原子核の研究手法を適用することで、従来の泡研究の手法でなし得なかったウルトラファインバブルの内部圧力の直接測定に成功した。これによりウルトラファインバブルの安定性に関する議論が大幅に進展すると期待される。また、スピン緩和パターンに現れた差異はウルトラファインバブルの機能性発現の素過程を観測している可能性が高く、機能発現の仕組みの理解に大きく貢献すると期待される。

- [1] ISO/TC 281, June 2017, International Organization for Standardization.
- [2] U. Berek et al. Phys. Lett. 53A (1975) 251
- [3] G.R. Demille et al., Chem. Pays. Lett. 44 (1976) 164-168

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 M. Tanigaki, T. Yamakura, Y. Ueda, D. Hayashi, A. Taniguchi, Y. Tokuda, Y. Ohkubo
2. 発表標題 Direct Measurement of the Internal Pressure of Ultrafine Bubbles by Using Radioactive Nuclei as Probe
3. 学会等名 5th International symposium on Application of High-voltage, Plasma & Micro/Nano(Fine) Bubbles to Agriculture, Aquaculture and Food Safety (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Tanigaki, T. Yamakura, Y. Ueda, D. Hayashi, A. Taniguchi, Y. Tokuda, Y. Ohkubo
2. 発表標題 Direct Measurement of the Internal Pressure of Ultrafine Bubble
3. 学会等名 The 3rd International Conference on Hyperfine Interactions and their Applications (HYPERFINE 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 谷垣実、山倉拓也、上田義勝、林大寿、谷口秋洋、徳田陽明、大久保嘉高
2. 発表標題 不安定核をプローブとしたウルトラファインバブルの研究
3. 学会等名 ファインバブル学会連合会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 谷垣実、山倉拓哉、上田義勝、谷口秋洋、徳田陽明、大久保嘉高
2. 発表標題 摂動角相関法を用いたXe-ウルトラファインバブル(Xe-UFB)の内部圧力測定
3. 学会等名 第6回ファインバブル学会連合シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Tanigaki, T. Yamakura, Y. Ueda, A. Taniguchi, Y. Tokuda, Y. Ohkubo
2. 発表標題 Direct Measurement of The Internal Pressure of Ultrafine Bubble Using Radioactive Nuclei
3. 学会等名 The 11th International Symposium on Measurement Techniques for Multiphase Flows (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tanigaki, T. Yamakura, Y. Ueda, A. Taniguchi, Y. Tokuda, Y. Ohkubo
2. 発表標題 Direct measurement of the internal pressure of ultrafine bubble by a technique of nuclear physics
3. 学会等名 Second International Workshop on the Application of Fine and Ultrafine Bubbles (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔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

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