

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03445

研究課題名(和文)超音波キャビテーション制御による液中微粒子の選択霧化分離

研究課題名(英文) Size-specific separation of particles from suspensions by ultrasonic atomization under controlled conditions for cavitation

研究代表者

二井 晋 (NII, Susumu)

鹿児島大学・理工学域工学系・教授

研究者番号：90262865

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：サブミクロン粒子懸濁液に超音波を照射して霧化すると、約100 nmの粒子径を持つ粒子が選択的に移る現象が報告者らによって発見された。この現象は液内での超音波キャビテーションに深く関与しており、生成する気泡の状態すなわち溶存気体濃度と適切な投入電力により分離の選択性と濃縮率が変化することを見出した。さらに超音波霧化が生じている状態でのキャビテーション強度を定量する手法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液体への超音波で生成する霧を、液中から特定粒子を選択的に運ぶキャリアーとして用いる新発想に基づく分離現象の機構を解明することで、より精密かつ効率的な分離現象の制御が可能となり、学術的意義は高い。また社会的には、現在の工業的な課題であるサブミクロン粒子の混合物におけるサイズ選択分離に対して、簡単な操作で分離できる新たな解決法を提案するという大きい意義がある。

研究成果の概要(英文)：Ultrasonically assisted size-selective separation of nanoparticles was developed. Silica particles of around 100 nm were selectively transferred in the ultrasonically prepared mist from the suspension containing various sizes of nanoparticles. The separation is strongly affected by ultrasonic cavitation in the sample suspension. By choosing appropriate conditions, the selectivity and enrichment factors changes dramatically. Furthermore, a novel method to visualize ultrasonic cavitation under the ultrasonic atomization was developed. The method helps us to know the local strength of the cavitation in the ultrasonic atomization.

研究分野：化学工学

キーワード：異相分離 サブミクロン粒子 超音波 霧化

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超音波霧化による物質分離に関する研究の過程で、我々は 50 ~ 700 nm のシリカ粒子の水懸濁液を霧化すると、特定サイズの粒子のみが気相に運ばれて回収される、という特異な現象を発見した。化学産業では高性能トナーや化粧品などで、特定サイズのナノ粒子を簡便に分離する技術が強く求められており、我々の発見により粒子懸濁液の霧化という簡単な操作で選択的に特定サイズの粒子分離法の開発が期待される。分離性能の向上には、特定サイズの粒子が霧に移るメカニズムを解明し、標的物質の選択性と濃縮率を高めるための方策を探索する必要がある。

### 2. 研究の目的

幅広い径をもつサブミクロン粒子懸濁液を超音波霧化すると、特定範囲の粒子径を持つ粒子のみが霧に移る特異な現象を発見し、この現象には超音波照射によるキャビテーションが深く関与すると考えられる。そこで、超音波キャビテーションが液中粒子のサイズ認識と、それらの気相への移動に関するメカニズムを解明するとともに、キャビテーションを制御して分離粒子径を自在に調整する手法の確立を目的とする。

### 3. 研究の方法

試料には主にシリカのサブミクロン粒子の水懸濁液を用いた。この粒子懸濁液の溶存気体の条件を変えるため、溶存気体を空気、窒素、アルゴンに変化させることと、圧力を変化させることで、試料中に溶解する気体の種類と量を変化させた。試料に超音波を照射することで懸濁液を霧化するとともに、生成した霧を取り出して回収する装置を設計・製作した。実験前後の試料懸濁液および霧回収液中の粒子径分布を、ナノ粒子トラッキングシステムを備えた分析装置で測定して、標的の粒子分離と濃縮の挙動を調査した。また、超音波霧化が生じている条件下でのキャビテーションを定量するための新たな手法として、ルミノールによる化学発光法を用いる手法を開発した。以下に検討した項目ごとにまとめて述べる。

#### (1) キャビテーションを変化させる因子が粒子分離挙動に及ぼす影響

液中での気泡生成現象である、超音波キャビテーションは、試料懸濁液への溶存ガス濃度、ガス種、振動子への投入電力により状態が変化することが知られている。シリカ粒子懸濁液として約 100 nm と約 300 nm の粒子を混合した懸濁液を代表的な試料として用い、100 nm 粒子が霧に回収される際の選択性と濃縮率を調査した。

#### (2) 超音波霧化が生じる条件でのキャビテーションの可視化と定量法

これまで、超音波霧化が生じる条件のもとでは、キャビテーションの強さを定量化することが困難であった。代表的な超音波強度の定量法である、カロリメトリ (熱量測定法) では測定値が安定しないため、有効な手段が求められていた。そこで、音響化学発光で用いられるルミノール水溶液を用いて、発光による定量化法を検討した。

### 4. 研究成果

超音波霧化によるシリカのサブミクロン粒子分離において、試料懸濁液で生じるキャビテーションの状態を変化させるために、懸濁液への溶存ガス濃度、ガス種、振動子への投入電力を変化させて霧化を行った。実験で得られた霧回収液の粒子組成の分析から、約 100 nm のシリ

カ粒子が選択的に回収されることがわかり、この粒子を標的として特に 100 nm と 300 nm 粒子間の分離に着目し、種々の条件のもとで分離・濃縮特性を評価して、分離に適した条件と分離メカニズムを考察した。

(1) 空気で飽和された 100, 300 nm シリカ粒子混合懸濁液を霧化すると図 1 に示すように 100 nm 粒子が霧に 2 倍に濃縮され、300 nm 粒子個数濃度は約 1/3 に低下した。300 nm 粒子に対する 100 nm 粒子の選択性の値は 6 となった。この試料懸濁液を脱気すると、100 nm シリカ粒子の選択性の低下だけでなく、仕込液と比べて霧回収液中の粒子濃度が低下した。この事実から溶存気体は粒子の分離と濃縮の両面で大きな影響を与えることがわかった。

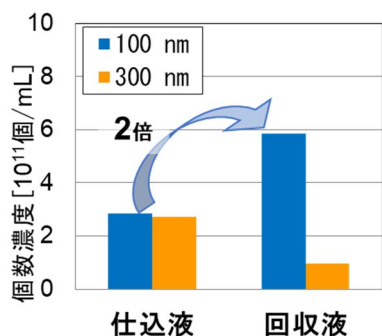


図 1 常圧での空気飽和試料からのシリカ粒子霧化分離

超音波振動子への投入電力について、100 nm 粒子の選択性と濃縮率がピークとなる最適な電力値があることがわかった。キャビテーション強度は投入電力と相関しており、単にキャビテーションを強くすることが分離と濃縮に寄与しない事実は興味深く、今後のさらなる検討が必要である。

試料への溶存ガス種を変えた場合には、種類と気体溶解度の影響の両方が現れる。空気を加圧して溶解度を上げた試料では、図 2 に示すように濃縮率と選択性がともに顕著に増大した。常圧で空気飽和された試料での結果を基準として、加圧空気、窒素、アルゴン、酸素での結果を見ると、選択性について、アルゴンの場合を除き液中の溶存気体濃度が高くなるほど高くなり、加圧空気では溶存気体濃度を高めると、顕著に選択性が増加した。さらに、100 nm の濃縮率は図 3 に示すように溶存気体濃度に比例して増加する関係が明確に表れ、窒素、常圧での空気、加圧した空気、アルゴンの順に濃縮率が高まり、アルゴンでは 5 倍以上の濃縮率が得られた。この事実は分離と濃縮の両方に液中の溶存ガス濃度が大きく関与していることを示している。溶存ガス濃度はキャビテーション気泡の個数と気泡径分布を変化させることから、溶液中もしくは霧としての液体微細化において、液体中の気泡挙動をより深く理解することが、粒子分離メカニズム解明の鍵であるとわかった。

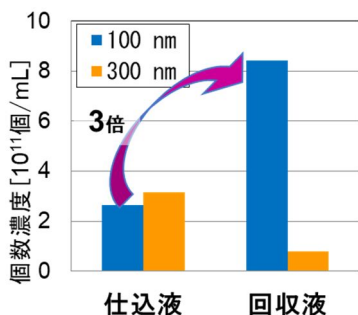


図 2 加圧空気溶解試料からのシリカ粒子霧化分離

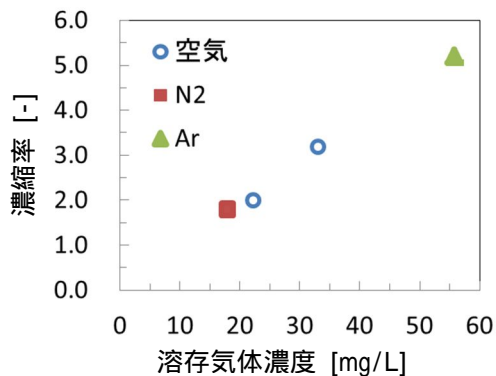


図3 100 nm シリカ粒子濃縮率に対する溶存気体濃度の依存性

(2) 霧化を生じている条件下でのキャビテーション強度の定量化法を検討するために、粒子を含まないルミノール水溶液を超音波霧化して、音響化学発光を観察し、**図4**に示す結果を得た。霧の生成が盛んな噴水（液柱）の内部と底部で発光が見られ、超音波霧化におけるキャビテーションによるOHラジカル生成の証拠を発見した。従来法でのキャビテーション強度定量では、液全体の情報のみであり、発光法により局所的な強度を観測できるようになったことは画期的である。**図5**で示す例のように、得られた画像を処理して発光強度と従来のヨウ化カリウム酸化量との相関をとったところ、高い相関が得られ、超音波霧化時の局所的なキャビテーション強度の定量化法が確立された。これより、霧化による粒子分離場と考えられる、液柱でのキャビテーションを特徴づける方法が確立された。

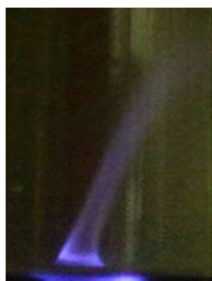


図4 超音波噴水中での音響化学発光

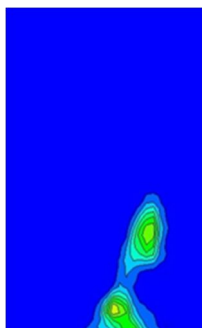


図5 噴水画像の処理結果

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 3件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 作本 祐一郎, 五島 崇, 水田 敬, 二井 晋
2. 発表標題 超音波霧化を用いた水懸濁液からのサブミクロン粒子の選択分離
3. 学会等名 化学工学会第50回秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Susumu Nii
2. 発表標題 Nanoparticles separation and evaporation enhancement using nanodroplet generated by ultrasonic atomization
3. 学会等名 International Conference on Nanomaterials and Nanotechnology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 二井 晋
2. 発表標題 分離における界面の積極的な制御
3. 学会等名 化学工学会第50回秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 作本祐一郎, 二宮大樹, 五島崇, 水田敬
2. 発表標題 超音波霧化による水懸濁液からのサブミクロン粒子選択分離
3. 学会等名 第27回ソノケミストリー討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 二宮大樹, 作本祐一郎, 五島崇, 水田敬, 二井晋
2. 発表標題 超音波霧化によるサブミクロン粒子の濃縮
3. 学会等名 第27回ソノケミストリー討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Susumu NII
2. 発表標題 Recent trends of ultrasonic atomization
3. 学会等名 AOSS-3, Asia-Oceania sonochemical society conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017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
研究分担者	水田 敬 (MIZUTA Kei) (10336323)	鹿児島大学・理工学域工学系・助教  (17701)	
研究分担者	五島 崇 (GOSHIMA Takashi) (90709560)	鹿児島大学・理工学域工学系・助教  (17701)	