

令和 6 年 6 月 28 日現在

機関番号：33934

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04856

研究課題名（和文）霧化メカニズムの解明と大気圧プラズマによるナノマイクロプラスチックの高精度解析

研究課題名（英文）Elucidation of atomization mechanism and high-precision analysis of nano/microplastics by atmospheric pressure plasma

研究代表者

松浦 寛（Matsuura, Hiroshi）

愛知工科大学・工学部・教授

研究者番号：50561411

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、3つのサブテーマに関し以下の成果を得た。超音波による霧化の発生メカニズムの解明：超音波ジェット霧化の発生は、沸騰やキャビテーションではなく、表面張力波が主要因であると結論付けた。超音波霧化を利用した μ -プラスチックの雨滴への混入メカニズムの解明：超音波ジェット霧化により、粒径の異なる多数のアクリル粒子群から、直径1.5 μ m以下の粒子だけを選択的に霧化ミストへ内包し分離できる事を示した。混合ガスの大気圧プラズマによる μ -プラスチック内重金属の高精度解析：霧化ミストに内包されたマイクロプラスチックを解離する為、任意ガスで点灯可能な大気圧型ICPプラズマ発生装置の開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超音波霧化の発生メカニズムは、過去60年間、実験のおよび理論的に解明が進められてきたが、メカニズムの核心部分に未解明な点が残されていた。本研究では超音波ジェット霧化法を開発し、超音波霧化は表面張力波が主要因で発生する事を実験的に結論付けた。また、自然界における砕波を超音波ジェット霧化で模倣し、海や川に分散するマイクロプラスチックの選択的分離方法を考案した。さらに、霧化ミストに内包された μ プラスチックに付着した重金属を高精度分析するため、霧化ミストを含む任意ガスでも点灯可能な大気圧型ICPプラズマ発生装置を試作した。今後、海や川に分散するマイクロプラスチック分析に適用できる可能性が芽生えた。

研究成果の概要（英文）：This study produced the following results on three sub-themes. (1) Elucidation of the generation mechanism of ultrasonic atomization: It was concluded that surface tension wave, not boiling or cavitation, is the most likely primary cause of the generation of ultrasonic jet atomization. (2) Elucidation of the mechanism of micro-plastic incorporation into raindrops using ultrasonic jet atomization: It was shown that ultrasonic jet atomization can selectively encapsulate and separate only particles with a diameter of 1.5 μ m or less from a group of numerous acrylic particles in atomized mist. (3) High-precision analysis of heavy metals in micro-plastics by atmospheric pressure plasma of gas mixtures: An atmospheric pressure plasma generator (ICP) that can be turned on with any gas has been developed to dissociate micro-plastics encapsulated in atomized mist.

研究分野：ナノマイクロ領域における現象解析および装置開発

キーワード：超音波霧化 ナノ・マイクロ粒子 マイクロプラスチック 大気圧プラズマ 装置開発

1. 研究開始当初の背景

本研究は、近年生態系への影響が強く懸念されている、海洋中のマイクロプラスチックに吸収された、重金属の高精度解析に関するものである。現在、海洋中の μ -プラスチック濃度の増加が問題視されているが、実際に生態系へ深刻な被害をもたらすのは、劣化した μ -プラスチックに吸収され、凝集したナノスケールの重金属や有害物質である。このため本研究では、 μ -プラスチックの分散溶液を、超音波霧化により大気圧プラズマへ導入・解離し、分光分析により μ -プラスチックに含まれる重金属に対し、pptレベルの高精度な定性定量解析を実現する事を目指した。本研究は、以下3項目の背景の下で実施した。

- (1) **超音波による霧化の発生メカニズムの解明**：超音波霧化は身近な現象であり、多数の適用例があるにも関わらず、霧化の発生メカニズムの核心部分は未だ不明であり、表面波説・キャピテーション説・沸騰説の3説が唱えられ、早期の学術的解明が望まれている。
- (2) **超音波霧化を利用した μ -プラスチックの雨滴への混入メカニズムの解明**：近年、ナノ・マイクロスケールのプラスチックが、降雨の90%以上に含まれている事が新たに判明し、 μ -プラスチック問題は地球規模の懸念事項になっている。これら機械的除去が困難な、雨滴中の μ -プラスチックの数や大きさや種類、そして雨滴への混入メカニズムおよびルートの解明が強く望まれている。
- (3) **大気圧プラズマによるナノ・マイクロプラスチックに吸収された重金属の高精度解析**：通常、海洋プラスチック問題では、濃度の増加が問題視されているが、実際に生態系への深刻な被害が懸念されているのは、劣化した μ -プラスチックに吸収され、凝集したナノスケールの有害な重金属である事は余り知られていない。現在、海洋プラスチックに吸収されている重金属の種類や含有量は不明であり、迅速かつ高精度な定量的解析手法の確立が強く望まれている。

2. 研究の目的

本研究では、上記3つの背景に対応した、以下3項目の解明を目的とした。

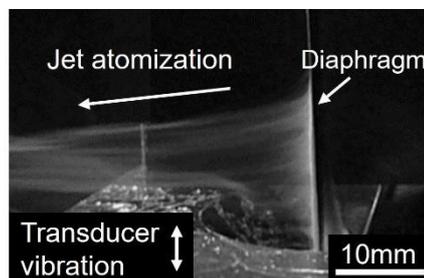
- (1) **超音波による霧化の発生メカニズムの解明**：この研究では、超音波ジェット霧化という新たに開発した霧化法を利用し、100年近く未解明な、超音波による霧化の発生メカニズムの解明を目指した。
- (2) **超音波霧化を利用した μ -プラスチックの雨滴への混入メカニズムの解明**：この研究では、超音波ジェット霧化を利用し、 μ -プラスチックが液滴に内包されるプロセスを再現する事により、 μ -プラスチックが雨滴へ混入するメカニズムを解明する事を目指した。

- (3) **大気圧プラズマによるナノ・マイクロプラスチックに吸収された重金属の高精度解析**：本研究では、磁界共振を利用したプラズマの新しいフィードバック制御を開発し、混合ガスの ICP 型大気圧プラズマを生成する事により、超音波霧化により内包した液滴中の μ -プラスチックを解離し、 μ -プラスチックに吸収された重金属に対して、高精度な分光分析を目指した。

3. 研究の方法

本研究では、上記3つの目的を達成するため、それぞれ以下の実験的アプローチを実施した。

- (1) **超音波による霧化の発生メカニズムの解明**：ジェット霧化は、下図の様に超音波振動子上の溶液が振動板に沿って上昇する際に形成される液膜から発生する。そこで、まず霧化が生じる振動板上にマイクロ熱電対を設置し、霧化温度を直接計測する事により沸騰説およびキャビテーション説を検証した。次に、表面張力波説は、次の仮説に基づいて検証した：表面張力波の効果が優勢な場合には、霧化は振動板上の振動振幅が極大になる特定領域から発生するはずである。この仮説に基づき、振動板の調整に伴うジェット霧化の変化を解析し、表面張力波説を検証した。



- (2) **超音波霧化を利用した μ -プラスチックの雨滴への混入メカニズムの解明**：海洋中のナノ・マイクロプラスチックは、砕波により液滴と共に海面から放出され、雲を経て雨滴として循環するルートが考えられる。このため本研究では、超音波ジェット霧化により、 μ -プラスチックが液滴に内包され液面から放出されるプロセスを再現し、以下の実験を行った：まず、マイクロスケールのアクリル微粒子の分散溶液を作製し、この溶液を超音波ジェット霧化により噴霧し、 μ -プラスチックの数や大きさの分布を光学顕微鏡により計測した。これらの計測結果を統計解析し、 μ -プラスチックの液滴への混入メカニズムを検証した。
- (3) **混合ガスの大気圧プラズマによる μ -プラスチック内重金属の高精度解析**：このテーマに関しては、試作中の ICP 型大気圧プラズマ発生装置に、磁界共振を利用したフィードバック制御を施し、プラズマを安定化させると共にパワーアップした。いくつかの技術的改良を施し、任意ガスを大気圧下でプラズマ点灯が可能な装置を開発した。
- 今後は、規定濃度の重金属を吸収した μ -プラスチック分散溶液をジェット霧化により噴霧する予定である。そして、この霧化ミストを大気圧プラズマに導入し、解離することにより、 μ -プラスチックに吸収された重金属に対し、分光分析による ppt ~ ppb レベルの高精度解析を実現する予定である。

4. 研究成果

今回の研究では、上記3つの研究方法に従い、以下3項目の成果を得た。

(1) 超音波による霧化の発生メカニズムの解明

図1(a)および1(b)は、振動板上の超音波ジェット霧化の発生領域における5箇所の温度計測点(a:赤矢印)と、それぞれの計測点において、先端径50 μm のマイクロ熱電対により計測した测温データ(b)である。

もし、水の沸騰やキャビテーションが霧化の発生メカニズムの主要因ならば、霧化が最も激しい領域の温度が最も高くなるはずであった。しかし実際は、霧化が最も激しい場所の温度は低く、むしろ霧化の発生量が少ない領域の温度が高かった。同様に、もし水の沸騰やキャビテーションが霧化の発生メカニズムの主要因ならば、霧化の発生領域は、振動板の振動面の全域からランダムに、規則性なく霧化が発生するはずである。しかし実際には、霧化の発生領域は、振動板の中心線上に集中しており、かつ振動板の長手方向の上部(h_3 や h_4)が優勢であった。以上の結果から、沸騰やキャビテーションは、超音波ジェット霧化発生的主要原因ではないと結論付けた。

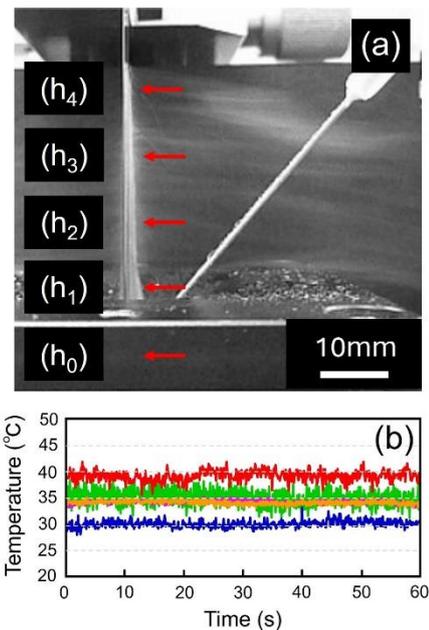


図1. 霧化温度の計測

図2(a)~2(c)は、振動板を利用した超音波ジェット霧化の発生時の様子を準高速度カメラで撮影したものである。また、図2(d)は、発生しているジェット霧化の右側から0.2mmの薄ガラスを液面に接触させた時の様子である(ただし、薄ガラス板は振動板には接触していない)。

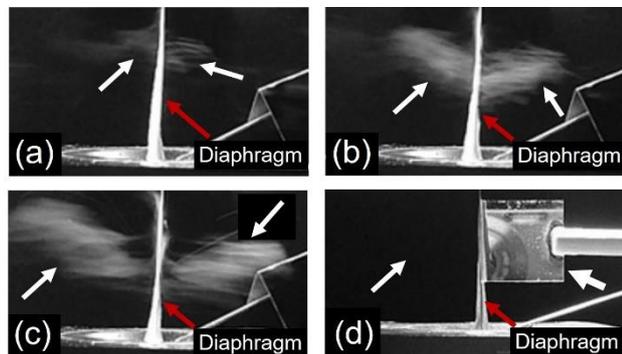


図2. 共振現象に伴う霧化ミストの発生

ジェット霧化の発生は、例外なく、振動板の左右から、ほぼ対称分布かつ同時に発生した(白矢印)。また、片側(図dで

は右側)の霧化を止めると、例外なく、もう一方(図dでは左側)の霧化が停止した。以上の結果から、超音波ジェット霧化は振動板と振動板上の水膜との共振により発生していると考えた。つまり、超音波ジェット霧化発生的主要原因は、表面張力波説が最も有力であると結論付けた。

(2) 超音波霧化を利用した μ -プラスチックの雨滴への混入メカニズムの解明

図3は、超音波ジェット霧化をマイクロプラスチックの選択的分離に適用した1例である。図3(b)に示す粒径分布(直径2~6 μm)をもつ無数のアクリル粒子群(図3a)は、超音波ジェット霧化を経由する事により、直径1.5 μm 以下のアクリル粒子だけが霧化ミストに選択的に内包され(図3e)、水中から大気中へ分離・放出される事を示している(図3d)。

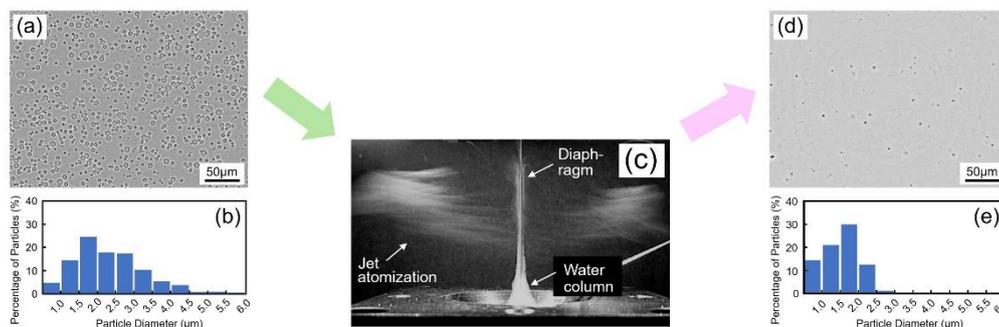


図3. 超音波ジェット霧化を利用したアクリル微粒子の選択的分離

図4は、アクリル微粒子が霧化ミストに内包される実験結果(図3)をもとに、霧化ミストの形成プロセスを定量的に解析したものである。内包されたアクリル粒子の平均径(1.5 μm)を図4(a)の Φd_2 と仮定し、霧化ミストとして放出される液滴の体積(図4b, 白矢印)から、霧化ミストを形成している円錐形の水柱の高さ h_2 (図4a)を推定した(9.6 μm)。

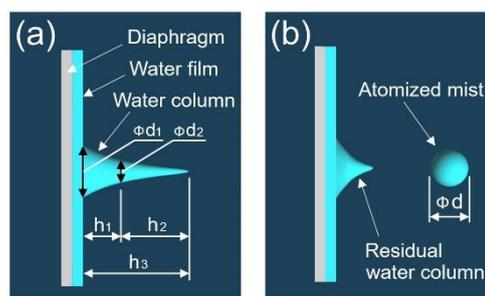


図4. 霧化ミストの形成プロセス

(3) 混合ガスの大気圧プラズマによるマイクロプラスチック内重金属の高精度解析

本研究テーマに関しては、上記霧化ミストに内包されたマイクロプラスチックを解離する為、任意ガスの導入でも点灯可能な、大気圧型 ICP プラズマ発生装置の試作を行った。研究成果は、今後の論文発表および学会発表で公開する予定である。

5. 謝辞

本研究を審査・採択いただいたご担当の方々へ感謝申し上げます。また、諸事情により、研究期間内に上記③の成果を公開できなかった点についてお詫び申し上げます。できるだけ早期に大気圧プラズマ分析に関する成果報告を行い、次なる研究へ向けた足掛かりにする所存です。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Matsuura Hiroshi, Furukawa Hiromitsu, Kondo Atsushi, Tanikawa Tamio, Hashimoto Hideki	4. 巻 132
2. 論文標題 Acoustic analysis of jet atomization for uniform dispersion of nano- and micro-droplets	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 224502-1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0125547	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 -

1. 著者名 Matsuura Hiroshi, Furukawa Hiromitsu, Watanabe Yoshinori, Murakami Shin, Ishihara Yuji, Tanikawa Tamio, Hashimoto Hideki	4. 巻 61
2. 論文標題 Optimal conditions and generation mechanism of jet atomization for uniform distribution of nano- and micro-droplets	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 085501-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac7a7d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsuura Hiroshi, Furukawa Hiromitsu, Kondo Atsushi, Kurita Hiroki, Toyoshi Takuya, Watanabe Yoshinori, Tanikawa Tamio, Hashimoto Hideki	4. 巻 63
2. 論文標題 A selective separation method for microplastics using ultrasonic jet atomization	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 066502-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ad5128	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 松浦 寛, 古川 祐光, 近藤 篤史, 谷川 民生, 橋本 秀紀
2. 発表標題 振動板を利用した霧化メカニズムの解析と霧化に伴うマイクロプラスチックの拡散プロセスに関する研究
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2023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	古川 祐光 (Furukawa Hiromitsu) (00300898)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・ 製造領域・研究チーム長 (82626)	

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
---------	---------