

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560904

研究課題名(和文)帯電エアロゾルを用いた高結晶性微粒子の多次元集積と評価

研究課題名(英文)Multi-dimensional assembly and assessment of high-crystalline fine particles via charged aerosol route

研究代表者

LENGGORO WULED (LENGGORO, WULED)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10304403

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ粒子合成技術と高い選択性をもつ粒子集積化技術を用いて、気相プロセスに液相法の利点を組み込んだ「複合型ナノ材料プロセッシング」を開発した。静電気力を用いて、気中におけるナノ粒子の輸送と基板上的ナノ粒子群の構造を制御し、高感度の環境センサ素子を構成するナノ粒子構造体における最適な幾何学的構造モデルを試みた。材料とする懸濁液を用い、その後のプロセスを気相において行う輸送制御技術を開発した。構造体の形成技術として、安定した懸濁液の調整とエアロゾル化技術、静電気力を用いた気中での粒子の輸送・制御技術、基板の帯電パターンニングによる粒子集積制御技術を開発し、一連の技術の高度化を行った。

研究成果の概要(英文)：We have developed an "integration" method based on liquid phase made particles and nanoparticle assembly technology with high selectivity via a gas-phase (aerosol) route. The method can create a nanostructure based on nanoparticles with the size order between several tens to several hundreds of nanometers. The formation of nanoparticle structure can be "controlled" mainly by electrostatic force. The external force (e.g. electrostatic force) also can control the transport of nanoparticles from the gas-phase on to the target substrate. An example/model application of our method is a chemical/environmental sensor having high-sensitivity, to detect an organic molecule (e.g. pesticide) assisted by an optical measurement (e.g. Raman spectroscopic method)

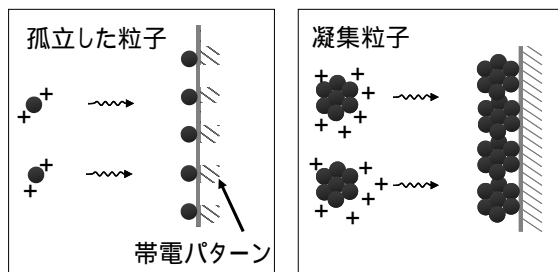
研究分野：化工物性・移動操作・単位操作

科研費の分科・細目：プロセス工学・化工物性・移動操作・単位操作

キーワード：エアロゾル ナノ粒子 付着 沈着 帯電 微粒子 輸送 集積

1. 研究開始当初の背景

ナノ粒子構造体を利用した素子のさらなる精度高度化が求められている。その基礎研究を進める中で、原料となるナノ粒子の合成と（基板等への）固定化技術および構造状態の制御に関する知見が素子の高機能化の鍵となる。一般的にナノ粒子（サイズが 100nm 以下）を合成するために、液相合成法と気相合成法がある。液相合成法によって合成されたナノ粒子は、多成分系材料の創製や球形の形態が容易に作成されるものの、不純物の混入や結晶性の低さという課題がある。一方、気相合成法では高い結晶性のナノ粒子をワンステップで合成可能であるが、気中に漂うナノ粒子の輸送制御が非常に困難である。本応募研究では、ナノ構造体の形成において、気相プロセスに液相法の利点を組み込んだ「複合型のナノ材料プロセッシング」を新規に開発するとともに、気中のナノ粒子の輸送に静電気力等の外力を用いた高精度の「基板上の粒子集積」および「構造化制御技術」の開発を目指す。



気中および基板上におけるナノ粒子の構造体制御

2. 研究の目的

本研究は、これまで研究室で開発してきた、気相法による高結晶ナノ粒子合成技術と高い選択性をもつ液相粒子集積化技術を用いて、気相プロセスに液相法の利点を組み込んだ「複合型ナノ材料プロセッシング」を新規に開発し、数十～数百 nm オーダーの粒子状素子を創製することを目的とした基盤研究である。この目的のため、静電気力等の外力を用いて、気中におけるナノ粒子の輸送と基板上的ナノ粒子群の構造を制御し、高感度の環境センサ素子等を構成するナノ粒子構造体における最適な幾何学的構造モデル（粒子サイズと集合状態等）を試みた。

3. 研究の方法

ナノ粒子構造体の形成に向け、新たに開発されたナノ粒子を材料とする懸濁液を用い、その後のプロセスを気相において行う新規の輸送制御技術を開発した。構造体の形成技術として、安定した懸濁液の調整とエアロゾ

ル化技術、静電気力を用いた気中での粒子の輸送・制御技術、基板の帯電パターンによる粒子集積制御技術を開発し、一連の技術の高度化を行った。これら技術により形成した、多次元（1・2・3次元）の粒子構造体を用いて、高感度の環境センサ等を作製した。

4. 研究成果

以下の手順により「複合型のナノ材料プロセッシング」を確立した。

(1) ナノ粒子の合成と液中分散

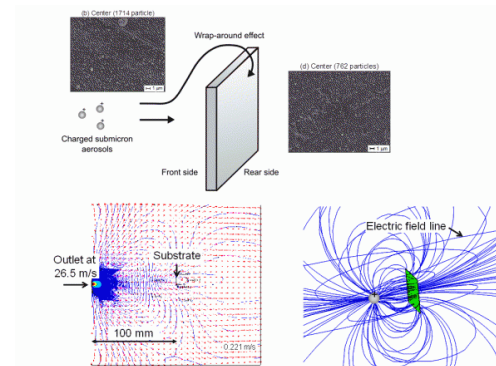
出発粒子として粒子サイズが 10 nm から数 100nm の金属粒子等を合成した。安定な懸濁液を得るために、液中分散処理において、分散剤（界面活性剤）の添加が必要である。既往の文献に報告された粒子表面の情報を調べて、特に水に分散しやすい材料を選定し、界面活性剤の添加を検討した。その後、原料粒子を水中に分散させるが、その分散方法について検討を行った。

(2) 懸濁液の気中分散と粒子構造体の形成

エアロゾル化装置として、主に静電気力を用いたエアロゾル発生器を設計・製作した。ある程度分散性が保持できる粒子分散液（懸濁液）を発生器により気中に分散させて、懸濁液の（液滴）エアロゾルを形成した。これまで開発した技術を用いて、供給流量や液体の物性または印加電圧を変化させることで、エアロゾル液滴の表面の帯電量を変化させることによって、液滴に大きな帯電量を待たせ、液滴が破裂させた。それによって μm サイズの懸濁液の液滴（複数のナノ粒子と溶媒と分散剤）が、nm オーダーの液滴となり、一つの液滴中に一つのナノ粒子という条件を見出した。結果的には、気中に浮遊しながら、ナノ粒子が孤立した一次粒子状態または複数のナノ粒子の集合体（凝集体）の状態の形成が制御できた。

(3) 帯電粒子の輸送を予測する数値シミュレーション

気中に浮遊するミクロン液滴とナノ粒子の輸送、空間の電界分布を数値計算により解析した。さらに、ナノ粒子の集合状態と帯電量および輸送速度との関係を予測し、任意の空間におけるナノ粒子の個数濃度の変化を求めた。ソフトウェアは既存の市販のもの（Comsol Multi-Physics）を使用した。計算により予測された粒子構造体の個数濃度と実際に電子顕微鏡で得られた粒子個数濃度および構造体の形態とを比較した。シミュレーションの結果に従って、実際の粒子を発生・集積させた基板との距離または基板上的粒子の分布を把握できた。



空中に浮遊する帯電微粒子の集積化と数値計算による電界の可視化

(4) 応用分野

本研究で開発された技術は、残留農薬検査システムの構築ならびに植物成長における大気汚染等の大気中微粒子の影響を調べるための植物粒子曝露システムへ適用できることが確認された。

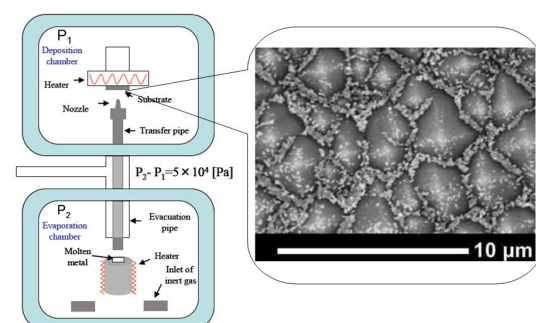


Fig.1 Schematic of particle deposition method consisting chambers for evaporation and deposition. Differential pressure between the two chambers is kept at 5×10^4 Pa.

ナノ粒子構造化の実例： 例残留農薬検査用センサの表面

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 5 件)

1) Simultaneous deposition of submicron aerosols onto both surfaces of a plate substrate by electrostatic forces, M. Gen, S. Ikawa, S. Sagawa, I. W. Lenggoro, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 査読有, 2014.

DOI: 10.1380/ejssnt.2014.238

2) Area-selective deposition of charged particles derived from colloidal aerosol droplets on a surface with different hydrophilic levels, K. Kusdianto, M. Gen, I. W. Lenggoro, Journal of Aerosol Science, 査読有, 2014.

DOI: 10.1016/j.jaerosci.2014.06.001

3) Thermal stability of silica-coated magnetite nanoparticles prepared by an electrochemical method, F. Fajaroh, H. Setyawan, A. Nur, I. W. Lenggoro, Advanced Powder Technology, 査読

有, 24 (2), 507-511, 2013

DOI: 10.1016/j.appt.2012.09.008

4) One-step synthesis of silica-coated magnetite nanoparticles by electrooxidation of iron in sodium silicate solution, H. Setyawan, F. Fajaroh, W. Widiyastuti, S. Winardi, I. W. Lenggoro, N Mufti, Journal of Nanoparticle Research, 査読有, 14 (4), 1-9, 2012

5) A colloidal route to detection of organic molecules based on surface-enhanced Raman spectroscopy using nanostructured substrate derived from aerosols, M. Gen, H. Kakuta, Y. Kamimoto, I. W. Lenggoro, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 50, 1-5 (2011)

DOI: 10.1143/JJAP.50.06GG10

〔学会発表〕(計 19 件)

1) 微粒子の集積による有機薄膜の表面解析 化学工学会第 79 年会(岐阜県) 玄、レンゴロ 2014/03/18

2) Micro-Raman Investigations on the Hygroscopic Behavior in Nanoparticles Filled Ammonium Sulfate Particle, 8th Asian Aerosol Conference (Sydney, Australia), Lenggoro, Herliana, Seki, Gen, 2013/12/05

3) Aerosol-Assisted Characterization of Organic Molecules Adsorbed on a Solid Substrate, 8th Asian Aerosol Conference (Sydney, Australia) Gen, Lenggoro, 2013/12/05

4) Insertion and Immobilization of Pre-Synthesized Particles Into Sub-100 nm Porous Structures By Electrophoresis (Invited), 2013 AIChE Annual Meeting (San Francisco), Kusdianto, Sasaki, Lenggoro, 2013/11/07

5) 電解めっきを伴う電気泳動法による金属粒子膜の形成, 粉体工学会 2013 年度秋期研究発表会, (大阪府) 内藤、レンゴロ 2013/10/08

6) 圧電素子を利用した粗大粒子発生器の開発と評価, 第 30 回エアロゾル科学・技術討論会, 井川、玄、レンゴロ(京都府)2013/08/29

7) External force assisted of nanoparticles synthesized from the gas-phase (招待講演), 9th World Congress of Chemical Engineering (Seoul), Lenggoro, 2013/08/21

8) Hygroscopic Behavior of Inorganic Particles Deposited on Solid Surfaces, 9th Asia Pacific Conference on Sustainable Energy & Environmental Technologies (APCSEET 2013) (千葉県), Herliana, Gen, Seki, Lenggoro, 2013/07/05

9) 樹木の葉に曝露した硫酸アンモニウム粒子の局在と形状の変化, 第 63 回日本木材学会大会(盛岡) 山根, 半, 山口, Nugroho, 黒田, 佐野, 関, Lenggoro, 伊豆田, 船田, 2013/03/27

10) 固体表面における無機塩粒子の吸湿特性評価システムの構築, 第 78 回化学工学会年会, (大阪府) 玄、Herliana, 関, Lenggoro, 2013/03/17

11) 構造体とラマン分光法を用いた残留農薬

- の検出,日本農薬学会第 38 回大会, (茨城県) 玄、角田、上元、レンゴロ、2013/03/14
- 12) 液中ナノ粒子のエアロゾル化と計測への応用 (招待講演),第 24 回散乱研究会, (東京都) レンゴロ、2012/11/16
- 13) A protocol to detect chemical residues using a nanoparticle-based sensor combined with a Raman spectroscopic method, 19th Regional Symposium on Chemical Engineering (Denpasar), Gen, Kakuta, Kamimoto, Lenggoro, 2012/11/07
- 14) Insertion of Particles into Sub-100 nm Porous Structures by Electrophoresis Method, 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2012) (Hyogo), Kusdianto, Sasaki, Lenggoro, 2012/10/30,
- 15) Hygroscopic behavior of inorganic particles deposited on solid surfaces,第 29 回エアロゾル科学・技術研究討論会(福岡県) Seki, Herliana, Gen, Lenggoro, 2012/08/28
- 16) Assembly of Gas-Phase Nanoparticles on a Structural Substrate for Spectroscopic-Based Sensor to Detect a Pesticide, 5th Asian Particle Technology Symposium (Singapore), Gen, Kakuta, Kamimoto, Lenggoro 2012/07/05
- 17) 農薬の飛散分布の把握に向けた粒子構造形成と検出技術の開発,化学工学会第 77 回年会 (東京都) 玄、角田、上元、レンゴロ 2012/03/15
- 18) Nanoparticle assembly by external forces for environmental applications (招待講演) 4th Nanoscience and Nanotechnology Symposium (Denpasar) Lenggoro, 2011/09/23
- 19) 気相合成ナノ粒子の構造体を用いた表面増強ラマン散乱センサーの開発、化学工学会第 43 回秋季大会 (京都府) 玄、角田、上元、レンゴロ 2011/09/14

〔その他〕

ホームページ

<http://wp.me/p10H0a-1Hz>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

レンゴロ ウレット (LENGGORO, Wuled)

東京農工大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：10304403