

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 22 日現在

機関番号：24506

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760724

研究課題名(和文) マイクロ波照射による核化誘導現象の解明～核生成理論の新展開～

研究課題名(英文) Mechanism of nucleation induction by microwave radiation, new development of nucleation theory

研究代表者

朝熊 裕介 (Asakuma, Yusuke)

兵庫県立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：40364038

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：核化誘導による単分散粒子を得る目的としてマイクロ波が導入されているが、その現象は未解明なままである。そこで、さらなる現象の解明やモデル化を目指すために、マイクロ波照射炉内において、アルコール滴下による貧溶媒効果を検討した研究を行った。マイクロ波照射中に結晶化させると、急激な核生成を起こすことを確認した。また、これらが起こる条件(貧溶媒濃度、添加スピード、攪拌速度、マイクロ波出力)を探索した。今回、マイクロ波照射による分子拡散の促進が可能であり、マイクロ波出力が大きい場合、照射による温度上昇からの溶解度の上昇とエタノールの分子拡散、溶媒和クラスターの縮小の効果を考える必要があることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：The nucleation and crystal growth of sodium chloride in aqueous solution during crystallization by ethanol droplet feeding were investigated by determining the suspension density and crystal size distribution. Crystallization was conducted in a microwave reactor, and the effect of the power, stirring speed, and ethanol concentration were investigated to clarify the anti-solvent effect under microwave radiation. Molecular diffusion was accelerated by fine particle production due to microwave radiation when the stirring speed was low and ethanol concentration was high. However, moderate microwave power and stirring speed were required for efficient molecular diffusion.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：化工物性・移動操作・単位操作

キーワード：マイクロ波 核生成 DLS

1. 研究開始当初の背景

核生成の現象解明の困難さは待ち時間の不安定さにある。つまり、自発核生成の場合、同じ実験を繰り返しても、核化時間の測定はばらつくことが多く、測定が長時間となり、核化開始が観察されないこともある。そのため、マイクロ波による強制的な核化誘導が有効である。

2. 研究の目的

マイクロ波は溶質および溶液の極性をもった分子(もしくは置換基)を2.45GHzの振動数で回転させようとするため、溶質に特異的な結晶化制御が可能である。本申請では、観察セルの温度を制御することによって、実際の晶析プロセスに適用し、マイクロ波照射によって核生成を誘導する。同時に、その核生成の現象に関して光散乱や回折をリアルタイムで測定し、クラスターの合体をその場観察しながら、核生成メカニズムの解明やその核化誘導の最適操作条件の探索を試みる。

3. 研究の方法

マイクロ波照射炉を漏洩を考慮しながら、その場観察できるように改良し、核化現象を観察した。観察方法として、DLS(雑誌論文(1))や光学顕微鏡(雑誌論文(2,3))、濁度計(雑誌論文(4))を取り付けた。また、結晶成長現象として、貧溶媒晶析やリーゼガング現象を対象とした。例として下図に、DLS 付きマイクロ波照射炉を示す。

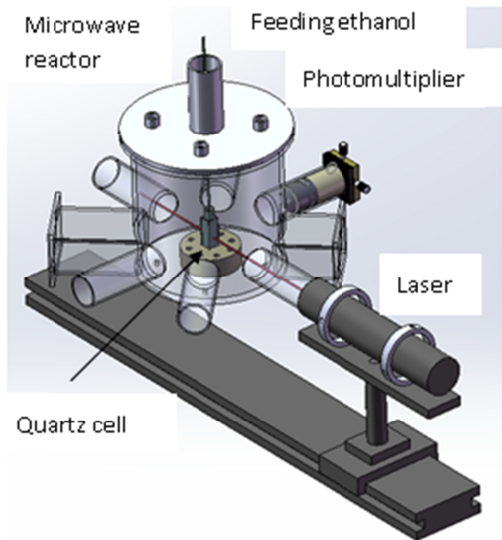


Fig. その場観察対応マイクロ波照射炉

これにより、マイクロ波照射中での、ナノ粒子の運動挙動や粒子径の測定が可能となった。

4. 研究成果

種々の晶析現象を観察することにより、マイクロ波による核化現象や分子拡散現象を確認できた。具体的には、マイクロ波照射によ

り、溶媒分子だけでなく、核化誘導により作成されたナノ粒子の拡散も加速されることを明らかにした(雑誌論文(1))。数にその一例を示す。

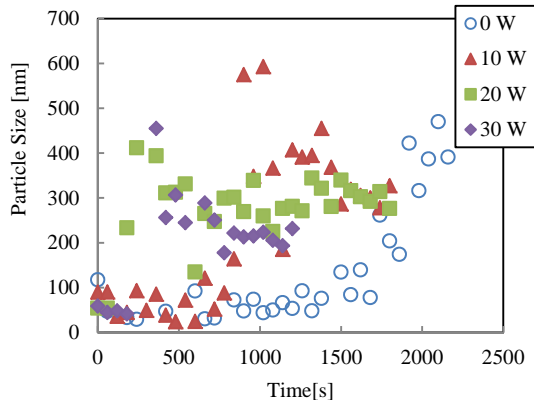


Fig. マイクロ波による粒子拡散の加速現象

マイクロ波出力を増加させると、ナノ粒子の観測が短い時間で行われ、またそのスピードも増加していることがわかる。

また、過飽和現象の容易な開放も達成されることを確認した(雑誌論文(4))。下図にその一例を示す。

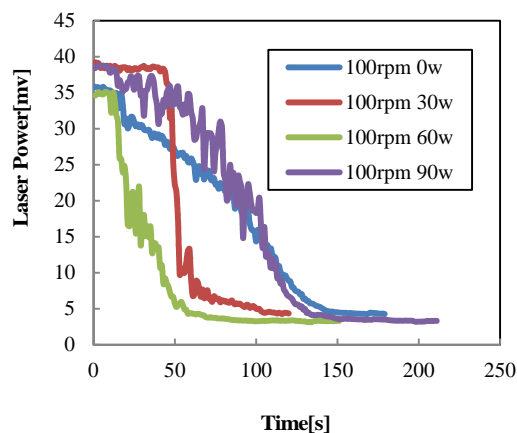


Fig. マイクロ波による粒子析出現象

マイクロ波照射により急激に粒子の析出がおこっていることを示している。マイクロ波出力が高い場合は、溶解との競争反応となり、90Wでは溶解が支配的となる。このように、マイクロ波の効果の定量評価が可能となった。

一方、リーゼガング現象の観察では、結晶成長速度や析出回数(過飽和が解放された回数)などが、マイクロ波照射によって、増加することを示した(雑誌論文(2,3))。以下にその一例を示す。

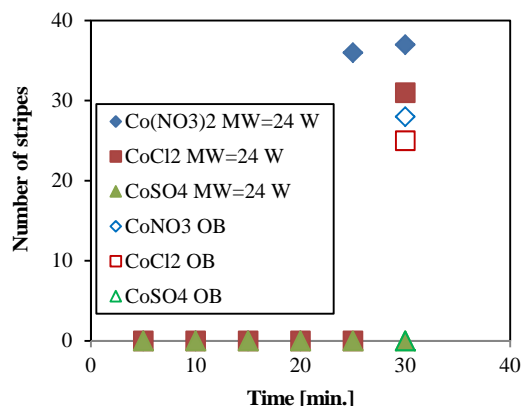


Fig. マイクロ波によるLG現象縞模様の数

リーゼガング現象の縞模様数を、マイクロ波照射とマイクロ波非照射の同温度で行い、マイクロ波の効果を検討した。マイクロ波照射により、縞模様数は増加し、過飽和の頻繁な開放が行われていることを示す。

下記、業績が示すように、概ね研究目的は達成された。学術的なマイクロ波の優位性は示され、学会等で報告された。今後は、その応用を検討していかなければならないと考えている。

現在、上記のマイクロ波の優位性の結果を利用し、さらなる有効利用を進めている。具体的には、極性をもつ分子の分子拡散や分子振動、回転現象を利用し、界面活性剤の無添加系でのマイクロ波による表面張力の低下や、非接触攪拌技術に関する研究を行い、当研究の進展を図っている。また、各非線形現象の制御にマイクロ波を利用することを考えている。

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4件)

(1)Y.Asakuma, M.Miura,

Effect of microwave radiation on diffusion behavior of anti-solvent during crystallization, Journal of Crystal growth, 402, 32-36 (2014) 査読有

DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2014.04.031

(2)Y.Kanazawa, Y.Asakuma,

Periodic Precipitation of Liesegang System under Microwave Radiation, Journal of Chemistry and Chemical Engineering, 8,331-334 (2014) 査読有

(3)Y.Kanazawa, Y.Asakuma,

Precipitation behavior in Liesegang systems under microwave irradiation, Journal of Crystallization Process and Technology, 4, 65-70 (2014) 査読有

DOI:10.4236/jcpt.2014.42009

(4)Y.Asakuma, Y. Murakami, M. Konishi, Anti-solvent effect of crystallization by feeding ethanol under microwave radiation,

Crystal Research and Technology, 49,129-134 (2014) 査読有

DOI: 10.1002/crat.201300327

〔学会発表〕(計12件)

(1)Y.Asakuma, Y.Kanazawa, Y.Murakami, M.Konishi,

Anti-solvent effect of crystallization by feeding ethanol after and during microwave radiation, 19th International Symposium on Industrial Crystallization, Toulouse, France, 2014.9.9.17

(2)Y.Kanazawa, Y.Asakuma,

Diffusion and precipitation in Liesegang systems with two kinds of salts under microwave irradiation,

19th International Symposium on Industrial Crystallization, Toulouse, France, 2014.9.9.17

(3)金澤佑真, 朝熊裕介,

マイクロ波照射中の析出、拡散現象の解明 2014年分離技術会年会、名古屋、2014.5.30

(4)金澤佑真, 朝熊裕介, 村上祐介, 小西将之,

マイクロ波照射が貧溶媒効果に及ぼす影響 2014年分離技術会年会、名古屋、2014.5.30

(5)Y.Asakuma, Y.Murakami, M.Konishi,

Anti-Solvent effect of crystallization by feeding ethanol under microwave radiation, 8th World Conference on Experimental Heat, Transfer, Fluid Mechanics, and Thermodynamics, 2013, Lisbon, Portugal, 2013.6.13

(6)Y.Kanazawa, Y.Asakuma,

Experimental pattern transition in Liesegang system under microwave radiation, 9th World Congress of Chemical Engineering, 2013, Seoul, Korea, 2013.8.19

(7)Y.Kanazawa, Y.Asakuma,

In-situ observation in Liesegang system under microwave radiation, Chemeca 2013, Brisbane, Australia, 2013.10.1

(8)Y.Asakuma, M.Miura, Y.Murakami,

Diffusion behavior of anti-solvent in crystallization process under microwave radiation ICCE 2013, Ottawa, Canada, 2013.9.10

(9)金澤 佑真, 朝熊裕介,

マイクロ波照射時におけるリーゼガングの拡散促進の研究,

2013年第13回化学工学学生発表会 O21、北九州、2013.3.2

(10)Y.Asakuma, M.Konishi, Y.Murakami,

Investigation of nucleation and growth of monoammonium phosphate in aqueous solution containing impurities by electrical conductivity, Chemeca (2012), Wellington, NZ, 0213, 2012.9.24

(11) Y.Asakuma, T.Takayama, K.Kobayashi, Effects of surfactant type and concentration on nanoparticle behavior under microwave irradiation, Chemeca (2012), Wellington, NZ, 0212, 2012.9.24

(12) 村上裕介、小西将之、朝熊裕介、
マイクロ波照射がアルコール滴下の貧溶媒
効果に及ぼす影響、
2012 年分離技術会年会、大阪、2012.6.1

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

朝熊 裕介 (ASAKUMA, Yusuke)
兵庫県立大学大学院・工学研究科機械系工学
専攻・准教授
研究者番号：40364038

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：