

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 23 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630390

研究課題名(和文)カーボンナノチューブ電極を用いた誘電泳動による微粒子高純度化技術の開発

研究課題名(英文)Development of fine particle purification technology by dielectrophoresis with carbon nanotube electrode

研究代表者

佐野 紀彰(Noriaki, Sano)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70295749

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：カーボンナノチューブを表面から直接合成した電極を用いた誘電泳動式粒子分離装置を開発した。この電極表面に合成したカーボンナノチューブの表面には強い電界が存在し、通常の誘電泳動力では分離不可能なナノ粒子の分離に適用できる。電界計算によって、カーボンナノチューブの直径と同程度の粒子を選択的に引き寄せる傾向があることを示した。また、実験的検討により、モデル系として酸化チタンと酸化ケイ素のナノ粒子の相互分離が可能であることを示した。この分離法は、フィルターでは目詰まり等の問題があり沈降法では時間がかかりすぎる等の問題があるほどの小さい粒子の分離に有用である。

研究成果の概要(英文)：Dielectrophoretic particle separators using electrodes on which carbon nanotubes are directly synthesized have been developed. On the surface of carbon nanotubes synthesized on the electrode can generate extremely strong electric field so that fine particles which can hardly be treated by ordinal dielectrophoretic separator can be captured. By an electric field calculation, it was revealed that the particles whose diameter is similar to the diameter of carbon nanotubes tend to be selectively captured. By conducting a model separation experiment, in which nanoparticles of TiO<sub>2</sub> are selectively captured from mixture with SiO<sub>2</sub>, it was revealed that the dielectrophoretic separator with carbon nanotube electrode can be used for such separation. The particle separator developed here can be useful for the particle separation which can hardly be realized by filtration due to some problems such as blockade and by sedimentation due to excessive operation duration.

研究分野：化学工学

キーワード：カーボンナノチューブ 誘電泳動 粒子分離

### 1. 研究開始当初の背景

誘電泳動は不均一電場によって液中の粒子を分極させて動かす操作であり、粒子の誘電率の違いによって分離を行うことができる。この方法により、従来の粒子の大きさや密度の差で分離を行うフィルタや沈降・遠心分離で分けることのできない粒子分離が可能となる。

誘電泳動により生じる力は粒子径の3乗に比例するため、サブマイクロの大きさの粒子を分離することは従来は困難であると言われてきた。そのため、近年ますます要求が高まっているナノ粒子の高純度化に対応するためには特別な工夫が必要である。

### 2. 研究の目的

絶縁体基板表面もしくは金属電極表面にパターンニングした金属膜の上にカーボンナノチューブを直接成長し、誘電泳動を起こすための電極を作製する。ナノレベルで細かいカーボンナノチューブ近傍には極めて強い電界が生じるため、通常の誘電泳動では捕集できないサブミクロン粒子(ナノ粒子を含む)の捕集が可能となる。このような誘電泳動システムは新規であり、実証および理論構築が必要である。本研究の具体的な目的は下の通りである。

様々な種類のナノ材料の高純度化ができることを示す実験的実証。

電極構造(電極膜パターンニング形状、カーボンナノチューブ構造)および作製条件の最適化。

電界シミュレーションを用いた微粒子物性、電極構造、高純度化条件の解析、設計方程式の提案。

### 3. 研究の方法

#### 3.1 電界計算によるカーボンナノチューブ電極誘電泳動装置の粒子捕集特性の解明

カーボンナノチューブ電極の簡単なモデルを想定して、電界計算を行う。カーボンナノチューブの直径、密度、捕集される粒子径等を変化させて誘電泳動力の強さを評価し、どのような粒子径の粒子が選択的に捕集され易いかを解明する。

#### 3.2 カーボンナノチューブ合成の条件とカーボンナノチューブ構造との関係の解明

ステンレス電極表面におけるカーボンナノチューブの合成と、アルミナ板表面に無電解メッキにより作製したニッケル薄膜上におけるカーボンナノチューブの合成を行った。カーボンナノチューブ合成の炭素源としてはエチレンを使用し、合成におけるガス組成、反応温度等の条件を変化させて合成実験を行い、生成物であるカーボンナノチューブの構造(特に直径)の解析を行った。

#### 3.3 カーボンナノチューブ電極を使用した誘電泳動実験

ここでは、ステンレス平板2枚の表面にカーボンナノチューブを合成し、カーボンナノ

チューブが存在する面を向かい合わせてその間に粒子分散液を流した。分散液には二酸化チタンと二酸化ケイ素が分散している。電極間に直流電圧を印加し、分散液中のそれぞれの粒子の濃度比をエネルギー分散X線分析により評価した。

### 4. 研究成果

#### 3.1 電界計算によるカーボンナノチューブ電極誘電泳動装置の粒子捕集特性の解明

図1に電界計算のためのカーボンナノチューブ電極のモデルを示す。捕集される粒子の直径  $r$ 、カーボンナノチューブの直径  $w$ 、カーボンナノチューブの間隔  $a$ 、粒子とカーボンナノチューブとの距離  $L$  を変化させて式1で定義する force factor,  $f$ , を計算した。

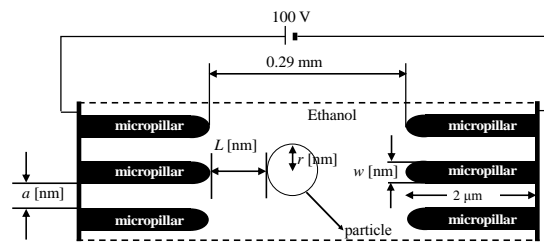


図1 電界計算のためのカーボンナノチューブ電極のモデル (micropillar がカーボンナノチューブに相当する)

$$f = r^3 \nabla E^2 \quad (1)$$

式1では、 $E$ は電界強度を示す。粒子や液の誘電率が同一の場合、この force factor が大きいほど誘電泳動力が強いということになる。

図2に電界計算の結果を示す。ここでは、(1)カーボンナノチューブと同程度の径を持つ粒子が強い誘電泳動力を受ける、(2)カーボンナノチューブと粒子間の距離が小さいほど誘電泳動力は大きい、(3)カーボンナノチューブの直径が大きい方が粒子径を変化させて得られる平均的な誘電泳動力が大きい、等が見取れる。

#### 3.2 カーボンナノチューブ合成の条件とカーボンナノチューブ構造との関係の解明

ステンレス表面におけるカーボンナノチューブ合成実験を行い、合成条件と生成物の直径との関係を調べた。合成では、まずステンレスを空気中で500~1000の温度で酸化処理し、その後700の水素を含んだガス中で還元する。合成時間、温度、前処理条件(酸化時間、酸化温度、等)を含む合成条件の生成物に及ぼす影響を調べた。図3に結果の例を示す。同図では、ステンレス表面の前処理過程の酸化時間が長いほど生成するカーボンナノチューブの直径が大きくなることが示されている。このような合成条件と生成物の構造を知ることは、カーボンナノチューブ電極を用いた誘電泳動装置を設計するうえ

で重要な知見となる。

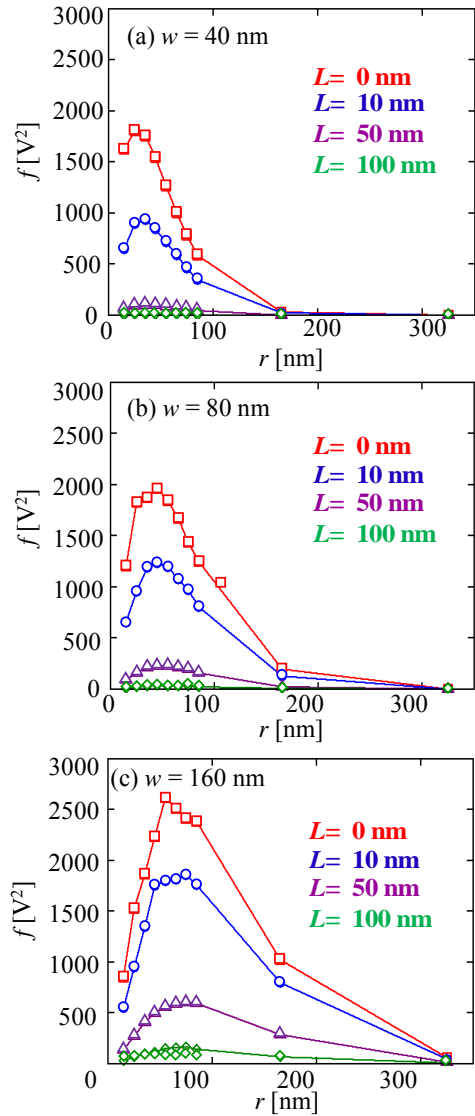


図2 電界計算の結果

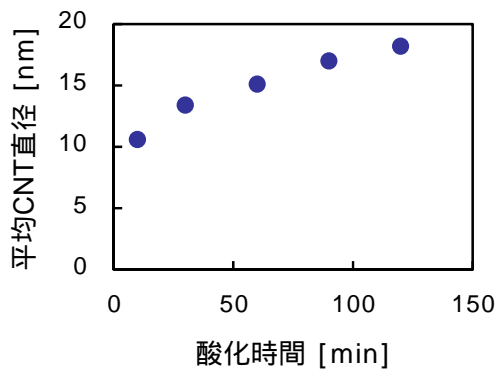


図3 ステンレス表面におけるカーボンナノチューブ合成の条件と生成物直径との関係の例(ステンレス前処理(酸化処理)の時間とカーボンナノチューブ直径との関係)

### 3.2 カーボンナノチューブ合成の条件とカーボンナノチューブ構造との関係の解明

ステンレス電極表面におけるカーボンナノチューブの合成と、アルミナ板表面に無電解メッキにより作製したニッケル薄膜上におけるカーボンナノチューブの合成を行った。カーボンナノチューブ合成の炭素源としてはエチレンを使用し、合成におけるガス組成、反応温度等の条件を変化させて合成実験を行い、生成物であるカーボンナノチューブの構造(特に直径)の解析を行った。

### 3.3 カーボンナノチューブ電極を使用した誘電泳動実験

ここでは、ステンレス平板にカーボンナノチューブを直接合成した電極を使用して誘電泳動装置を作製した。その装置の構造を図4に示す。

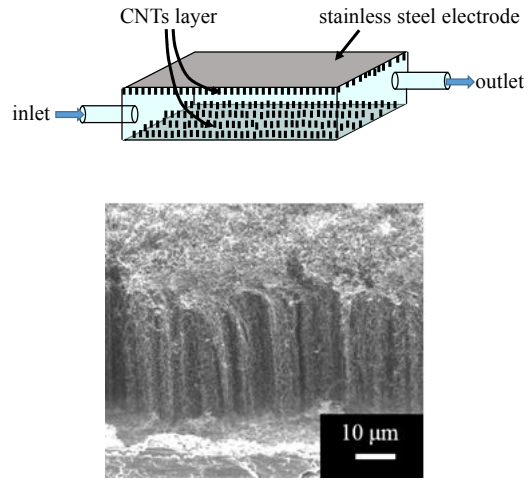


図4 カーボンナノチューブ電極を使用した誘電泳動粒子分離の構造およびそのカーボンナノチューブのSEM像

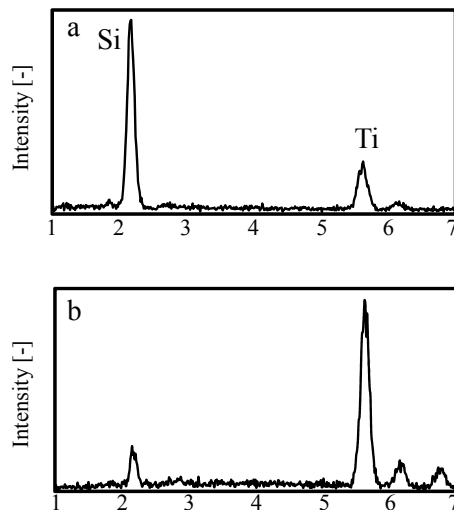


図5 (a)誘電泳動装置に流入する前の分散液中の混合粉末のEDX分析結果と(b)装置内電極に捕集された混合粉末の分析結果

図 5 に示されるように、同装置によって TiO<sub>2</sub> が電極表面に濃縮されることが分かった。この効果は、カーボンナノチューブを合成していない電極を使用すると見ることはできなかった。

#### 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 3 件)

Noriaki Sano, Kosuke Nojima, Takeshi Kodama, Hajime Tamon, Diameter-control in synthesis of carbon nanotubes inside porous stainless steel block and application to glucose fuel cell electrode, Carbon 103 (2016) 151 - 156.

Noriaki Sano, Yuta Tanemori, Hajime Tamon , A selective dielectrophoretic particle separator using flat electrodes covered with vertically aligned carbon nanotubes, Chemical Engineering Science, 144 (2016) 321-325.

Noriaki Sano, Yuta Tanemori, Hajime Tamon, Characteristics of Aligned-Micropillar Electrodes for Size-Selective Particle Capture by Dielectrophoresis: A Model of Dielectrophoresis Using Carbon Nanotube Electrodes. Journal of Chemical Engineering of Japan, accepted.

〔学会発表〕(計 2 件)

Noriaki Sano, Kosuke Nojima, Yuta Tanemori, Hajime Tamon, Synthesis of carbon nanotubes directly on metallic surfaces and their application to dielectrophoretic particle separation and fuel cell catalyst support. The 22<sup>nd</sup> Regional Symposium on Chemical Engineering, Bangkok Sep 24-25 (2015).

Noriaki Sano, Kosuke Nojima, Takeshi Kodama, Hajime Tamon, Synthesis of carbon nanotubes in porous stainless steel block and application to glucose fuel cell. 16<sup>th</sup> International Conference on the Science and Application of nanotubes, Nagoya June 29-July 3 (2015).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

The 22<sup>nd</sup> Regional Symposium on Chemical Engineering, Bangkok Sep 24-25 (2015)で Best Presentation Award

#### 6 . 研究組織

(1)研究代表者

佐野 紀彰 (Sano, Noriaki)  
京都大学・工学研究科・准教授  
研究者番号：70295749

(2)研究分担者

田門 肇 (Tamon, Hajime)  
京都大学・工学研究科・教授  
研究者番号：30111933