

超音波霧化法によって生成したナノ液滴の発生メカニズムの解明
 —蒸発と凝縮の影響についての検討—

Why "Nano" droplets generate by ultrasonic atomization ?
 - Investigation of evaporation/condensation effect -

矢野陽子¹, 松浦一雄², 深津鉄夫², 谷口翔¹, 太田昇³

Yohko F. Yano¹, Kazuo Matsuura², Tetsuo Fukazu², Sho Taniguchi¹, and Noboru Ohta³

¹立命館大学, ²超音波醸造所, ³高輝度光科学研究センター

¹Ritsumeikan University, ²Ultrasound Brewery Co., Ltd., ³JASRI

BL40B2 のビームラインにてカメラ長 26.2cm の広角領域を測定し、超音波霧化法で発生したミストの構造を分子レベルで理解しようと試みた。ミストからの散乱強度は、液体特有の分子間距離に相当するピークは見られず、液体の持つ構造領域よりは小さい数分子からなるクラスターであることがわかった。また、小角散乱強度をパーティクルカウンターの粒径分布や重量減少と比較した。

Small-angle X-ray scattering (SAXS) measurements of liquid droplets in mist generated by ultrasonic atomization were carried out using the BL40B2 beamline with camera length of 26.2 cm. The SAXS profiles for water and ethanol droplets show no specific peaks originated from intermolecular distance, suggesting that the droplet size is less than the size of local structure domain boundary of the liquids themselves.

キーワード : Small-angle X-ray scattering, ultrasonic atomization, mist

背景 : 液体に高周波数の超音波を照射すると霧状の液滴を生じる。この現象は超音波霧化と呼ばれ、小さい投入エネルギーで微細な液滴を生成する手段として、従来から液滴微粒化技術として注目されてきたが、近年、超音波霧化による水溶液からのエタノール分離の報告[1]を契機として研究が急速に進展している。我々は、2005A - 2006A 期に BL15XU において実施した X 線小角散乱測定から、従来超音波霧化法によって発生する液滴径は数 μm であるのにもかかわらず、エタノールでは平均粒径が 1 nm の液滴が発生することがエタノール分離の原因であることを突き止めた[2]。2007A からは小角散乱専用 BL40B2 ビームラインに実験を移し「粒径を決めるファクター」を明らかにし、粒径の制御に発展させることを目的としている。

2009A は、特に広角領域に注目することにより、ミストの構造を分子レベルで理解しようと

試みた。また、キャリアガスの影響、添加物（界面活性剤）の影響についても検討した。

[これまでの経緯]

2007A-2008A には、下のよう霧化条件を変えて粒径分布測定を行った。

1. エタノール濃度 (2007A40B2)
2. 溶液の温度 (2007A45XU)
3. 同伴ガス流量 (2007A45XU)
4. 同伴ガス種 (2007A40B2)
5. 超音波の入力パワー (2008A40B2)
6. 他の霧化法 (2008B40B2)

各条件によってマイクロメータサイズまたはナノメータサイズの液滴数がどう変化するかを小角散乱強度から見積もったところ、「粒径を決めるファクター」は、『気液平衡』『溶液構造』『超音波の作用』の3つがあることがわかった。

実験： 実験は BL40B2 の小角散乱ビームラインで行った。カメラ長 26.2cm、X 線の波長 1.5 Å に設定した。検出器にはイメージングプレートを用いた。バルクの液体（厚さ 1mm のホルダーに入れたもの）と、超音波霧化で発生したミストの散乱強度を測定した。前者の露光時間は 1 分、後者は 10 分とした。同時に測定前後の重量変化と Particle counter で 0.3-10 μm の粒径分布を測定した。

結果と考察： 図 1 に得られた散乱強度を示す。液体（水およびエタノール）は平均分子間距離を表す特徴的なピークが観測されているのに対し、ミストは q に対して単調減少のカーブを描いた。そのカーブは予測される気体の散乱曲線とは異なることから、液体の持つ構造領域よりは小さい数分子からなるクラスターであることがわかる。

一方、小角散乱強度は粒子数×(密度×体積)² に比例することから、 $q = 0.05 \text{Å}^{-1}$ の強度をプロットしたものを図 2(a) に示す。Particle counter で得た 0.3 μm/1 μm の個数比と測定後の重量減少分も同時にプロットした。エタノール 60mol% 以上で、ナノメータオーダーの液滴が急激に増加

しているのがわかる。キャリアガスを He に変えた場合については、バックグラウンド強度の再現性を得るのが難しく、SAXS データの解釈には検討の余地がある。

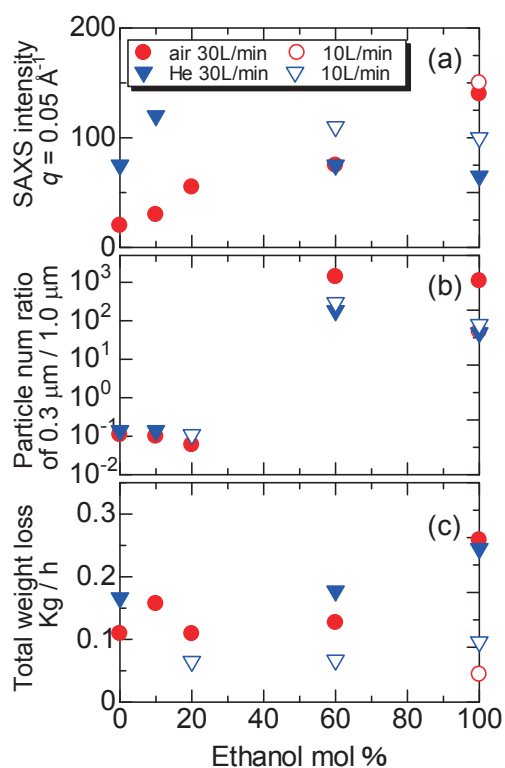


図 2 物性量のエタノール濃度依存性
(a) 小角散乱強度
(b) パーティクルカウンター
(c) 重量変化

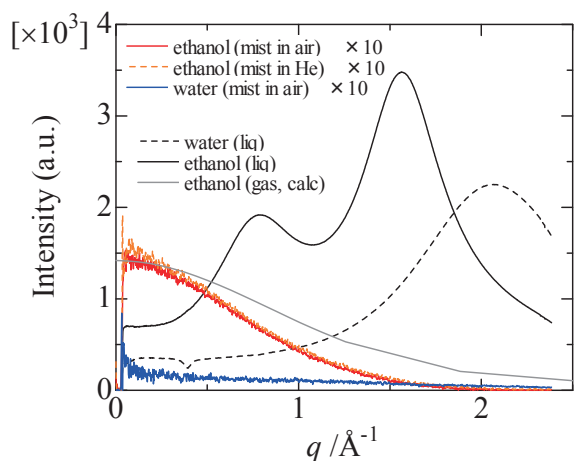


図 1 液体とミストの散乱強度プロファイルの比較
エタノール（実線）と水（破線）

参考文献

- [1] M. Sato, K. Matsuura and T. Fujii, J. Chem. Phys., 114, 2382-2386 (2000).
- [2] Yohko F. Yano, et. al., J. Chem. Phys.(commun.), 127, 031101 (2007).