

粒子状物質含有の排ガス前処理用ソノサイクロン

東北大学大学院環境科学研究科先端環境創成学専攻 教授 コマロフ セルゲイ

1. 緒言：背景と目的

鉄鋼、亜鉛や鉛などの金属製錬、廃棄物の焼却、火力発電での石油や天然ガスの燃焼などといった高温プロセスでは多量のダストが発生する。これらのダストに含まれる数 μm 以下の微小粒子は、大気中に飛散しやすく、呼吸器系組織に沈着して気管支ぜんそくや肺がんなどの疾病の原因となり、動植物の成長を阻害するなど、周囲の人や環境に対して悪影響を及ぼす。また、金属製錬においては、排ガスとともに排出されるダストを回収すれば、それを再資源化する際に生産性向上も達成できる。現在では、バグフィルターなどによるろ過集塵、ミストや水滴による洗浄集塵(スクラバー)、遠心力集塵(サイクロン)、電気集塵(EPS) [1~3]などが、ダストの捕集に用いられている。しかしながら、これらの方法は、単独では粒子の除去能力が不十分であるため、除去効率や運用条件などを考慮し、様々な処理方法を複数組み合わせる使用される。それによって、より安価に運用でき、より効率よくダストを処理・除去できることが期待されているため研究開発が進められている。また、従来の方法では、サブミクロン程度の粒子の除去効率が低下してしまう[3]という欠点があるため、このような微小粒子に対する除去効率を向上させることが求められている。

このような方法の1つとしては音響凝集が検討されている。この方法では、ダストやヒュームなどを含む気相中に音波を直接印加することで、音波の力学的作用によりダストの衝突、凝集を促進させるというものである。凝集して粗大化した粒子は大粒径粒子と同様の挙動を示すので、除去が困難であったサブミクロン粒子をより多く捕集することが可能となる。また、音波発生装置は簡便であるため、既存の装置に付け加えることも可能であり、新しく従来の除去処理装置の前処理装置として導入することも簡単だと考えられる。さらに、従来の除去処理方法では、 500°C 以上の高温ガスに対して適用が困難であったが、音響凝集法では適用が可能であり、ダストの発生源に直接照射する形での適用もできる。加えて、音波の照射により装置壁面への粒子の付着が防げる、凝集によって粒径が大きくなるため、捕集される粒子や、装置内で沈降した粒子の取り扱いが簡単になるなどの利点が期待される。音響凝集法が、実用化されない理由としては、研究者によって実験条件が異なり、統一的な評価が難しい、可聴域の音波では騒音問題が発生する恐れがあり、超音波を用いると大型化した際に音波強度や音波の減衰が問題となってしまうなどの理由がある。

このような背景から、本研究では、騒音問題を避けつつ、比較的小さい音波強度で大きな効果を得ることを目指して超音波定在波場における超音波凝集法に着目し、超音波定在波場を用いた超音波処理チャンバー（以下「音響チャンバー」という）を設計・自作して、粒子の超音波凝集に関する実験を行った。また、超音波による粒子の凝集・除去の効果を

強化するために、粒子を含有したガスはチャンバーの中心軸に対して偏心的に配置された入口から超音波処理チャンバーに流入させてチャンバー内でサイクロン流を発生させた。実験では、亜鉛粒子または酸化亜鉛粒子をモデル粒子として、様々な条件下における粒子のダイナミック挙動、化学成分、形態について調査を行うとともに超音波が粒子の凝集効率に与える影響を明確にした。本研究で亜鉛系粒子を用いた理由は次の2つである。1つは、亜鉛は比較的沸点が低いため、蒸発・濃縮で亜鉛粒子を生成することが容易に行える。それと同時に、亜鉛は他の金属の典型的な性質も持っているため、亜鉛を利用して得られた結果は、他の冶金プロセスでも有効であると想定される。もう1つは、亜鉛系微粒子は、電気炉ダストや RHF(回転炉床法) ダストの主要成分であることから亜鉛系粒子を含有した排ガスの前処理は、既存の排ガス集塵システムの高効率化に有効な手段であると考えられる。

2. 実験装置及び方法

本研究では、2種類の調査を行った。1つ目は、インパクター方式の粒径測定装置を用いて超音波照射の有無で亜鉛系粒子 (Zn or ZnO) の粒径分布に対する超音波強度の影響に関する実験的調査である。2つ目は、高強度 PIV レーザーと高速度ビデオカメラを用いて、超音波定在波場における粒子挙動の観察である。

2.1 超音波定在波場における粒子凝集

2.1.1 実験装置

実験装置の概略図を Fig.1 に示す。装置は大別すると① 亜鉛系粒子の発生装置、② 超音波定在波を形成した音響凝集チャンバー、③ カスケードインパクター方式の粒径測定装置(LP-20, 東京ダイレック)からなる。

亜鉛系粒子の発生には、Fig.1 に示すように、電气管状炉中の石英管内 (内径 41 mm、長さ 1 m) に坩堝を挿入して、その中に亜鉛を入れて、石英管の下部から Ar ガスを流しながら、坩堝を Zn 沸点以上の温度まで加熱した。その際に、坩堝内で発生した Zn 蒸気が Ar ガスとともに石英管低温部に移動し凝縮することによって固体粒子を生成する。また、三方弁を切り替えることで粒子含有 Ar ガスは超音波凝集処理の開始前には水バブラーに吹き込むこと、超音波凝集処理の時には音響チャンバーに供給することができる。後者の場合、カスケードインパクターの真空ポンプにより大気空気を吸引して、カスケードインパクターの入口配管内の圧力を調整しながら、Ar と空気の総流量が 24 NL/min になった条件で超音波凝集実験を行った。

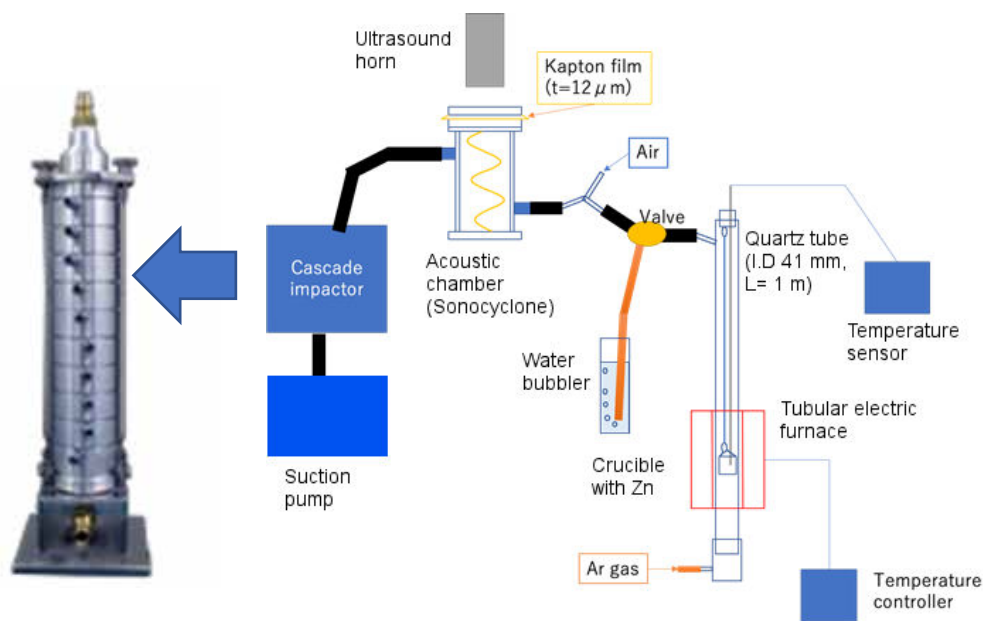


Fig.1 A schematic drawing of setup for particle agglomeration experiments

次に、音響チャンバーの設計・構造について概説する。本研究で提案した超音波処理方法は音響チャンバー内で形成した超音波定在波を有効利用する特徴がある。そのために、粒子の凝集効果が音圧とともに向上するという過去の知見から、粒子の凝集処理を高振幅の条件で行う必要があると考えられる。しかし、本実験では粒子が音響チャンバーから漏れないようにそれを密閉する必要があるため超音波振動源（超音波ホーン）を音響チャンバー内に設置することが不可能であった。このような理由から、超高振幅ダンベル型超音波ホーンを設計・試作して、Fig.1 に示すように音響チャンバーの外側に設置し、チャンバー上部に薄いカプトンフィルム(12 μm)を膜状に張った。このような構造は超音波がフィルムを部分的に透過し、音響チャンバーの底面から反射することによって音響チャンバーにおける定在波を形成すると同時に密閉性を確保する。ホーンを超音波発振器（Hielscher Ultrasonics 有限会社製 UIP1000hd）に接続して、ホーン先端の振動振幅を 45~100 μm (peak-to-peak、以下に p-p)の範囲内で変化させ、周波数 20kHz で実験を行った。音響チャンバーは内径 105 mm,高さ 244mm の筒状であり、粒子挙動を可視化するために透明アクリル樹脂で製作した。また上述通り、粒子の音響チャンバー内における滞留時間が長くなるために粒子を含むガスを音響チャンバー内壁面に斜めから供給してサイクロン流を発生させた。音響チャンバーの外観を Fig.2 に示す。

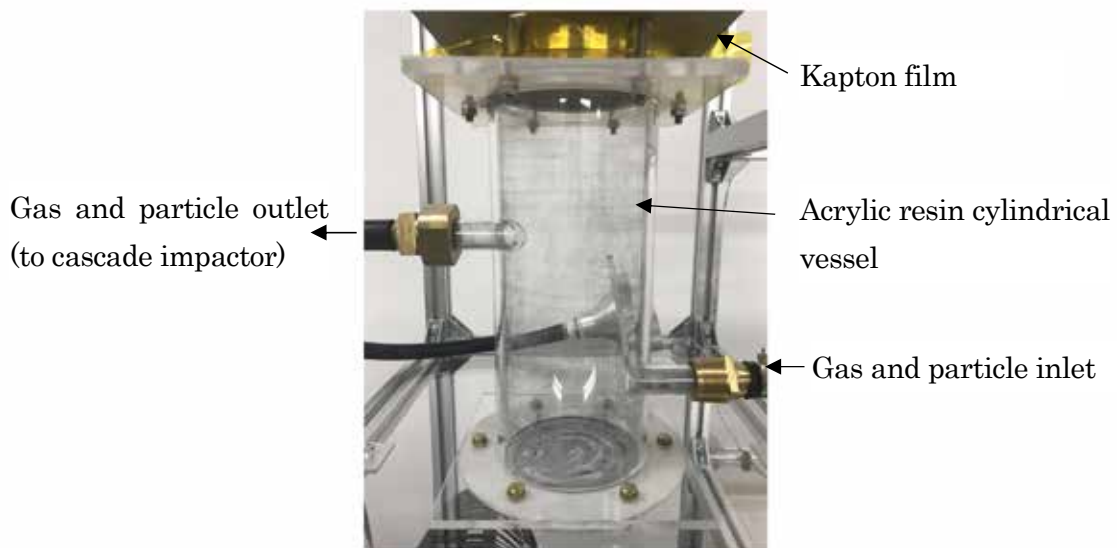


Fig.2 Appearance of acoustic chamber

予備実験では音響チャンバーの底板にマイクロフォンを設置して、精密雑音計 (NA-40, リオン)によりその中の音圧レベル SPL を測定した。SPL 値から以下の式(1)を用いて、音圧振幅 P_s を求めた。その結果を超音波発生出力レベルの関数として Fig.3 に示す。出力レベルは 50%が $45\mu\text{m(p-p)}$, 90%が $100\mu\text{m(p-p)}$ の振幅に相当する。

$$SPL(dB) = 20 \log \frac{P_s}{P_t} \quad (1)$$

ここで P_t は閾音圧 (2×10^{-5} Pa) である。

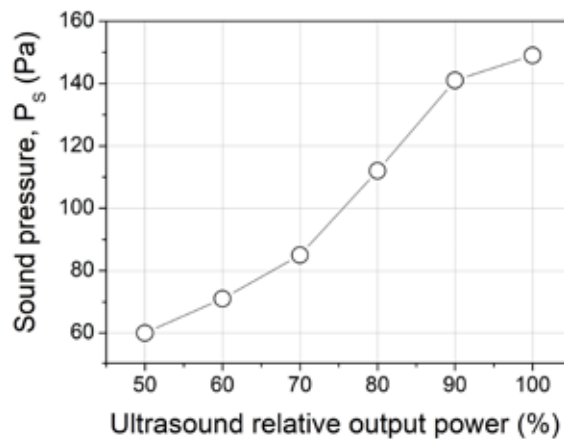


Fig.3 Relationship between ultrasound power and sound pressure

本実験では、粒径分布の測定装置として低圧カスケードインパクト(LP-20, 東京ダイレック)を用いた。カスケードインパクトは、慣性インパクト(捕集板)を直列に複数段重ねたものであり、粒子を含有した気体インパクト面に噴射する際に粘性力と慣性力の関係から、大きな粒子は、インパクト面に衝突付着し、小さな粒子は気体の流線に沿って次の捕集板へ運ばれるという現象を利用して、一定流量でガスが通過することで、それぞれの段で粒子を捕集し、その質量の変化から粒径の分布を求めることができるというものである。本実験条件では、Zn 粒子径を 0.02~4.5 μm の範囲内で測定可能であった。

2.1.2 実験手順

音響凝集に関する実験を以下の手順で実施した。

1. 三方弁を水バブラー側に切り替える
2. 石英管内に Ar ガスを流量 4~8 NL/min で流し、石英管下部を 910~930 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱する
3. ステンレス鋼線の先に吊り下げられたアルミナ坩堝に亜鉛ショット(5~10 g)と K タイプ熱電対の先端を入れて、坩堝を上から下ろし、石英管下部の均熱帯でセットする
4. 亜鉛試料の温度を測定し、その測定結果に基づき加熱出力を調節する
5. 亜鉛温度が 910~930 $^{\circ}\text{C}$ で安定した後、カスケードインパクト装置用ポンプのスイッチと超音波発生装置のスイッチをオンにして、三方弁を音響チャンバー側に切り替えてから実験を開始する

なお、一部の実験では酸化亜鉛の粒子を生成するために Ar ガ스에空気を混合して 1vol% 酸素を含有した混合ガスとして石英管に供給した。

実験条件は以下の通りとした。

- ・カスケードインパクトによる粒子回収時間 : 3 min
- ・超音波出力 : 50%, 70%, 90%

2.2 超音波定在波場における粒子挙動の観察

音響チャンバー内における粒子挙動と気体の流動パターンについて調べることを目的に、PIV レーザー (CW-YAG レーザ、日本カノマックス) と高速ビデオカメラ (FASTCAM Mini Ax50 Photron) を用いて、Fig.4 に示すように、光シートで照明された 2 次元的な粒子群の動きをビデオカメラで撮影しコンピュータでデジタル化して解析した。

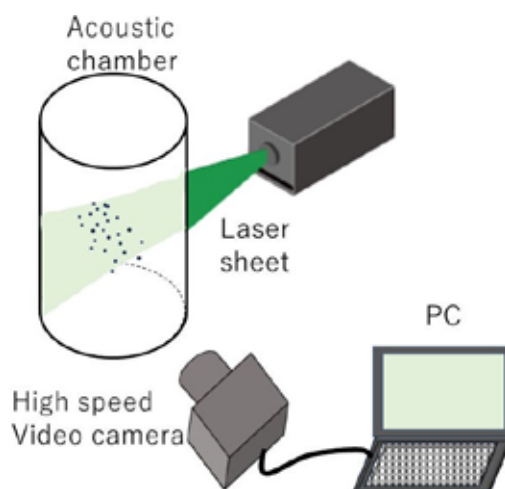


Fig.4 Observation of particle behavior

3. 実験結果

3.1 亜鉛粒子の音響凝集に関する実験

まず、Zn 粒子が発生した粒子凝集の実験を行い、音響チャンバー内の音圧を変化させた条件で粒子径の重量分率と音響チャンバーからの排出量を測定した。それらの結果を Table1 と Fig.5 に示す。

Table 1 Total weight of particles collected by cascade impactor

Sample weight (in crucible), g	5.06	4.99	4.99	4.98
Ar flow rate, NL/min	4	4	4	4
Collecting time, min	3	3	3	3
Sound pressure, Pa	142	90	60	0
Total weight, mg	91.9	98.7	101.9	123.5

Table 1 から、粒子の排出量が音圧の増加に伴い減少することがわかる。たとえば、音圧 142Pa の条件下では排出量が超音波無処理の場合に比べて 26%に減った。Fig.5 には粒子の重量分率と直径との関係を示す。粒径が $1\mu\text{m}$ 以下の範囲では重量分率は超音波を照射すると減少する。その上、音圧の増加につれてさらに減少する。この傾向は、例えば粒径 $0.2\mu\text{m}$ の値で比較するとよくわかる。その一方で、粒径が $1\mu\text{m}$ 以上の範囲では逆の傾向がみられる。即ち重量分率は、超音波なしの場合に非常に小さくなるが、超音波を照射した場合には音圧が高いほど増加する。この現象は音響凝集と呼ばれ、この機構について次章で述べる。Fig.5 に示すデータをもとにして求めた粒子の個数分布を Fig.6 に示す。Fig.5 に示された粒径 $0.2\mu\text{m}$ 以下の重量分率が見られないほど小さいのに対し、粒子の個数頻度

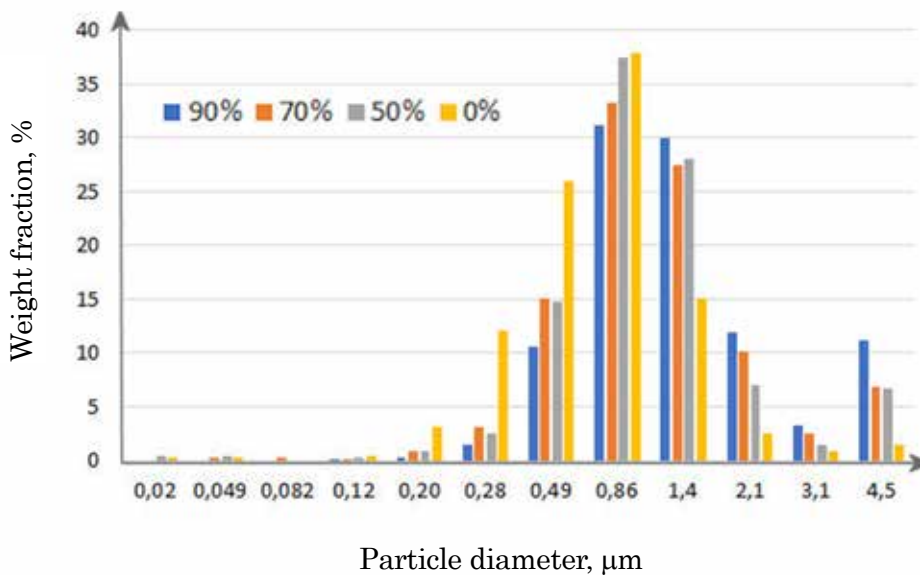


Fig.5 Relationship between Zn particle weight fraction and diameter

分布を算出すると逆に粒径 $1\mu\text{m}$ 以下の粒子の個数割合が著しく増加することが Fig.6 より読み取れる。さらには、超音波出力レベルが 90%まで増加すると直径 $0.12\mu\text{m}$ 以下の粒子がなくなり、その代わりに $0.12\sim 1.4\mu\text{m}$ の直径をもつ粒子の個数頻度が大幅に増加することが確認された。したがって、ナノ・サブミクロンの粒径範囲において粒子の音響凝集が進行することが確認された。

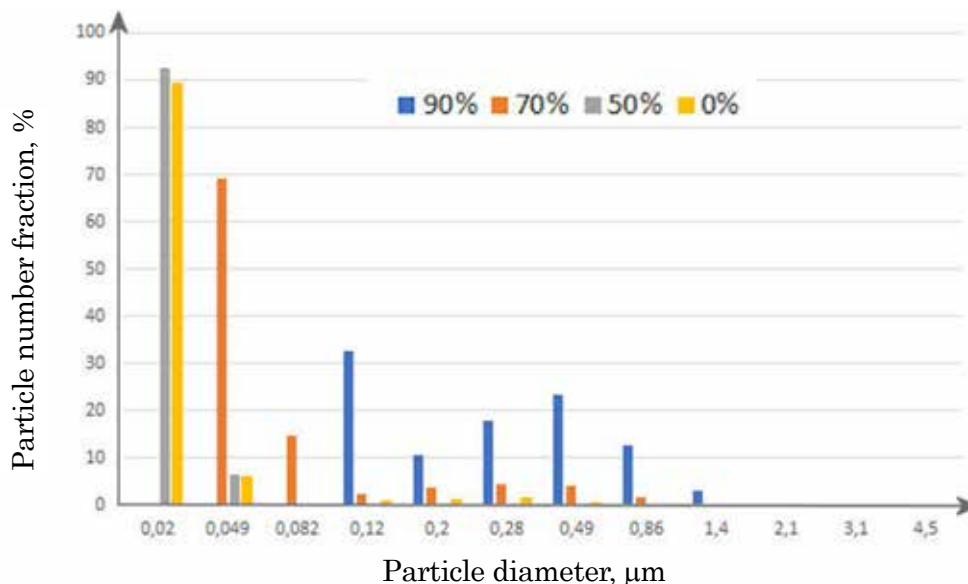


Fig.6 Relationship between particle number fraction and diameter

また、実験後に音響チャンバー底面に付着した粒子を回収して SEM 観察と元素点分析を行った。粒子の代表的な SEM 像を Fig.7(a)に示す。粒子は大部分が球形であり、粒径

0.5~3 μm の滑らかな表面を有する粒子である。しかし、一部の粒子の表面は、複雑な形状のナノ凝集体で覆われており、Fig.7(a)では白い凝集体として観察される。EDX 分析の結果によると球形粒子は Zn で構成されている。ナノ凝集体は Zn を主成分としているが

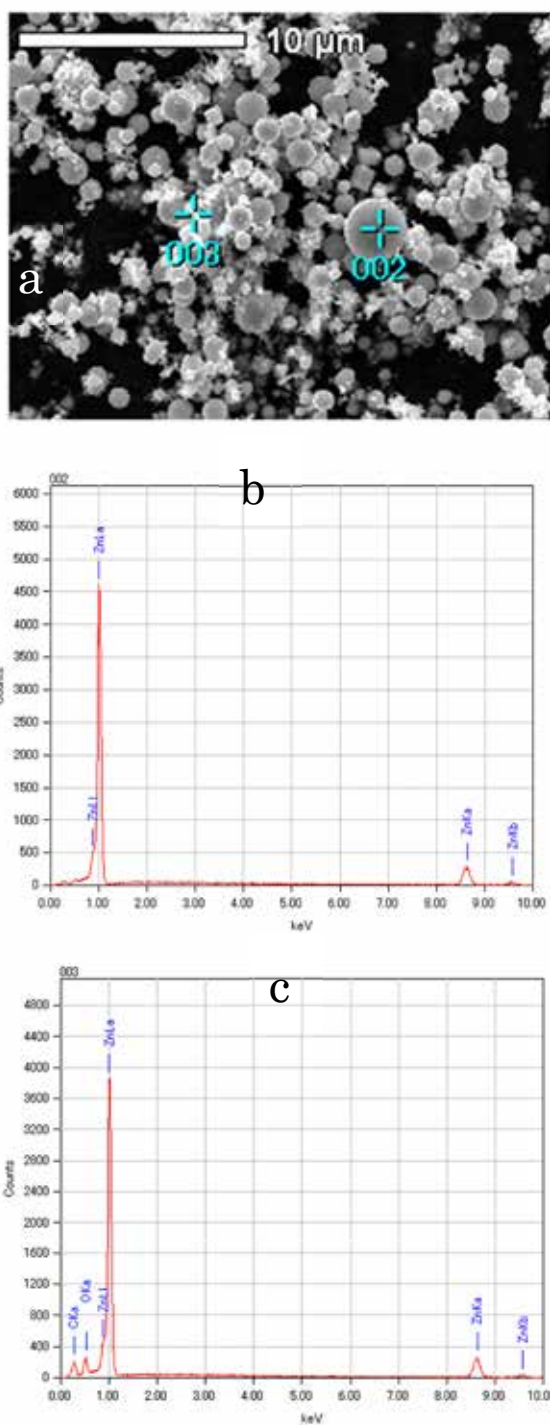


Fig.7 Zn particle SEM image (a) and results of EDX point analysis: point 002 (b) and 008 (c)

酸素も含んでいることがわかった。その原因は、実験に使っていた Ar ガスは純度 99.99% のものであり、その中には数十 ppm 程度の酸素も含まれているため、Zn 粒子の表面上に亜鉛酸化物層を形成すると考えられる。

3.1 酸化亜鉛粒子の音響凝集に関する実験

上述の通り、本実験では約 1vol%O₂ を含有した Ar ガスを石英管に供給することで坩堝から蒸発した Zn 蒸気が O₂ と反応するため酸化亜鉛粒子を発生させて、上記と同様に粒子の重量分布と形態について調査を行った。実験条件と粒子の音響チャンバーからの排出量を Table 2 にまとめる。重量分布を Fig.8 に示す。

Table 2 Total weight of zinc oxide particles collected by cascade impactor

Sample weight (in crucible), g	4.44	4.87	4.81	4.55
Ar flow rate, NL/min	4	4	4	4
Collecting time, min	3	3	3	3
Sound pressure, Pa	142	90	60	0
Total weight, mg	29.8	34.2	26.5	15.7

Table 2 からわかるように、亜鉛粒子と異なり、音響チャンバー内における音圧の増加とともに酸化亜鉛粒子の排出量は大きくなる。また、酸化亜鉛粒子の重量分布において亜鉛粒子と同様な傾向はみられるものの、それほど明確な関係ではないことが Fig.8 からわかる。たとえば、粒径が 0.49~1.4 μ m の範囲において重量分率が音圧の増加とともに減少することから音響凝集が進んだといえる。また、粒径が 3 μ m 以上の範囲においても音響凝集の効果により重量分率が音圧とともに大きくなる。しかし、粒径が 0.3 μ m 以下及び 1~3 μ m の範囲では重量分率が複雑な変化を示す。この原因について音響チャンバーから回収した酸化亜鉛粒子の SEM 観察を行い明確にした。ZnO 粒子は形状が Zn 粒子と異なり球形ではなく、ナノロッドやファイバー、ウィスカー等の比表面積の大きい形状となっており、凝集しやすいものであると推定される。このような粒子の生成メカニズムに関する詳細について従来の文献[4,5]に記載されている。しかしながら、上記のような形状を有する凝集体の評価はカスケードインパクトでは評価が非常に困難である。なぜなら、カスケードインパクトは粒子が球形であるという前提で設計された装置であり、球から大きく外れた形状の場合には確実な測定が不可能である。そのため、Fig.8 に示すデータの定量的な解釈が難しい。

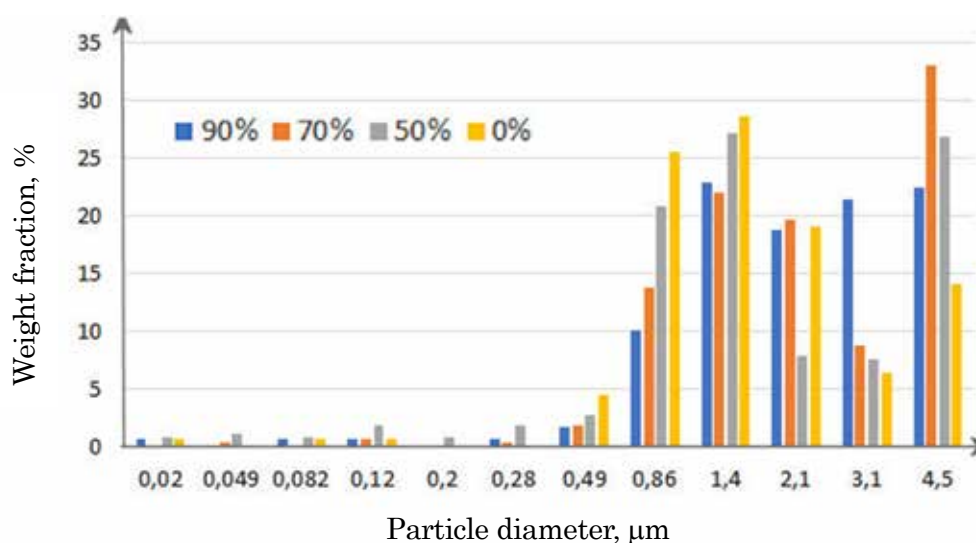


Fig.8 Relationship between ZnO particle weight fraction and diameter

それと同時に、音響チャンバー内における ZnO 粒子凝集体の形成は直接観察で確認された。実験では、超音波を照射した瞬間に粒子が音響チャンバー内に特定の位置へ移動・集中して、サイズ数 mm 程度の凝集体を形成する。これらの凝集体が気体中に浮遊している状態を直接に観察することができた。浮遊している凝集体は特に音響チャンバーの中心部で確認されたのでその代表的な写真を Fig.9(b)に示す。また、多くの凝集体が音響チャンバーの内部壁面に付着した状態も観察された。その一例を Fig.9(a)に示す。なぜ粒子が一定の間隔で離れた状態となっているかについては次の章で述べる。

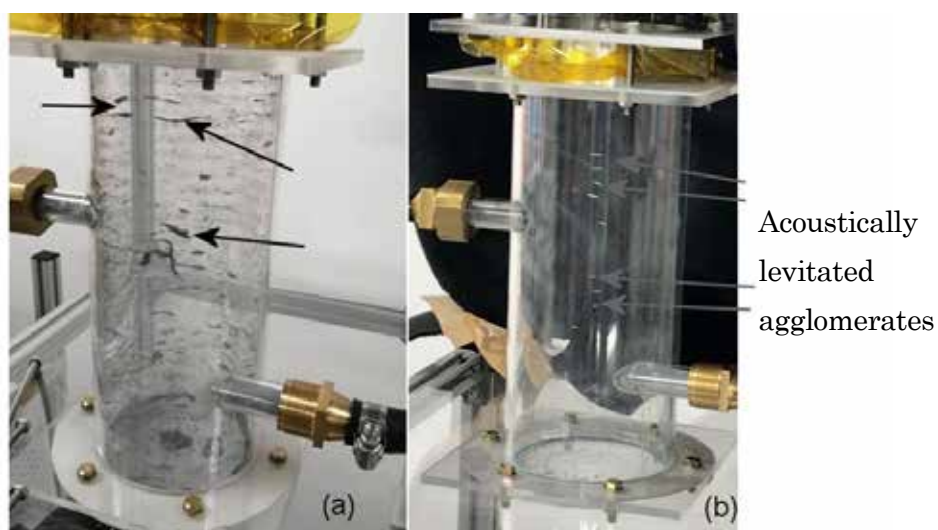


Fig.9 Particle agglomerates adhered on chamber wall (a) and suspended in gas (b)

4. 粒子音響凝集に関する機構についての考察

本実験条件では、ホーン端面から照射される超音波がカプトンフィルムを通過してから音響チャンバー内を伝播しチャンバー底面に入射し反射する。その結果、入射波と反射波の重ね合わせによってチャンバー内に定在波が形成される。定在波には超音波の伝搬方向に $1/4$ 波長間隔で交互に存在する音圧・流体粒子速度の腹と節がある。なお、音圧振動が 0 (音圧の節) で流体粒子速度振動が最大 (速度の腹) となる。つまり、音圧と粒子速度は、定在波では位相が 90 度ずれる。それゆえ、定在波の隣り合う節間の距離 L は半波長であり、式(2)から計算できる。

$$L = \frac{\lambda}{2} = \frac{c}{2f} \quad (2)$$

ここで λ は波長、 c は音速、 f は周波数である。音響チャンバー内における混合気体の主成分が空気であることを考慮し、周波数 20kHz と温度 0°C において L は約 8mm と計算される。以下に、定在波における粒子の音響凝集機構について説明する。

本実験条件下において、粒子の音響凝集は次の 3 つのメカニズムによって引き起こされると考えられる。1 つ目は、異なる直径をもつ粒子間の音波による振動性の差異に基づく凝集機構である。この機構は *Orthokinetic mechanism* として知られている。2 つ目は、超音波に付随する放射圧 (or 放射力) である。3 つ目は、*Acoustic wake* (音響伴流) である。以下に、まず、*Orthokinetic mechanism* (以下 OM と略する) について説明する。

4.1 Orthokinetic mechanism (OM)

Fig.10 に示すように、流体粒子(ガス)の振動運動に対する粒子の移動性は気体と粒子の物性値および粒子の粒径などに依存することから、音波印加に対応して粒径の小さな軽い粒子は振幅の大きな運動をするのに対し、粒径の大きな重い粒子の運動の振幅は小さい。この運動性の差異により粒子間の衝突頻度が増加し、粒子の衝突・凝集が発生するのである。

ここで、本研究で用いた 20kHz 周波数における粒径 d_p と同伴係数 η の関係を推算した。

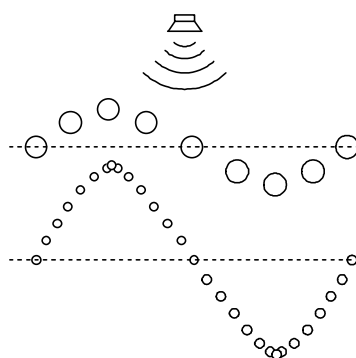


Fig.10 Schematic illustration of behavior of particle in sound wave

ここで同伴係数は(3)式に示すように[6]、雰囲気ガスの速度に対する粒子の速度の比で表現され、流体粒子の運動に対する粒子の応答性を意味し、大きいほど流体粒子の運動に対する応答性が良く、流体粒子の運動と位相差を持たずに運動を示す。

$$\eta = \frac{U_p}{U_g} = \frac{1}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} \quad (3)$$

(3)式中の各変数は、 η は同伴係数、 U_p は粒子の速度、 U_g は雰囲気ガスの速度、 ω は角速度、 τ は緩和時間であり、 τ と ω については以下のように(4)と(5)式で表現される。

$$\omega = 2\pi f \quad (4)$$

$$\tau = \frac{1}{18} \frac{\rho_p d_p^2}{\mu_g} \quad (5)$$

ここで、 f は周波数、 ρ_p は粒子の密度、 d_p は粒子の半径、 μ_g は雰囲気ガスの粘度である。

20kHz 周波数における同伴係数を(3)式により算出して、粒径との関係として Fig.11 に示す。Fig.11 からわかるように、粒径の増加と共に同伴係数が減少し、流体粒子の運動に対する粒子の運動の応答性が低下する。これは、粒径の異なる粒子同士の相対速度が増加することを示し、気体の振動運動によって微細粒子と粗大粒子の衝突確率が増大することを意味する。

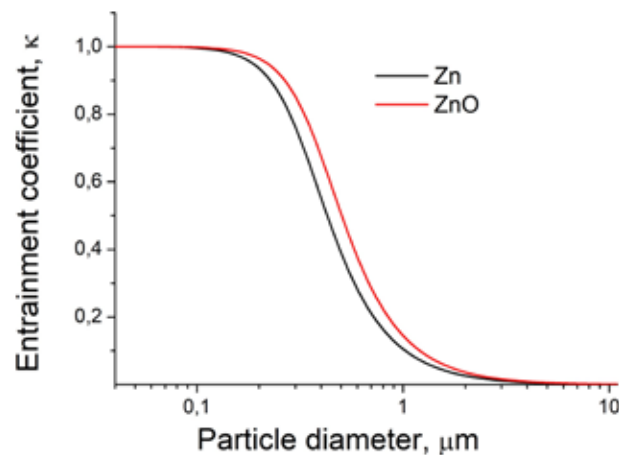


Fig.11 Dependence of entrainment coefficient on Zn and ZnO particle diameter

4.2 音響放射力

流体中に放射された音波は物体に入射すると、その物体を音波の進行方向に押す力が生じる。これを音響放射力という。これは、物体を音場中に置くことによって、その周辺の音波のエネルギー密度が不均一になることに起因している[7,8]。なお、放射力は進行波と定在波の場合に大きく異なるのが特徴である。進行波では音波の放射方向に、定在波では Fig.12 に示すように圧力振幅の節の方向に生じる力である。

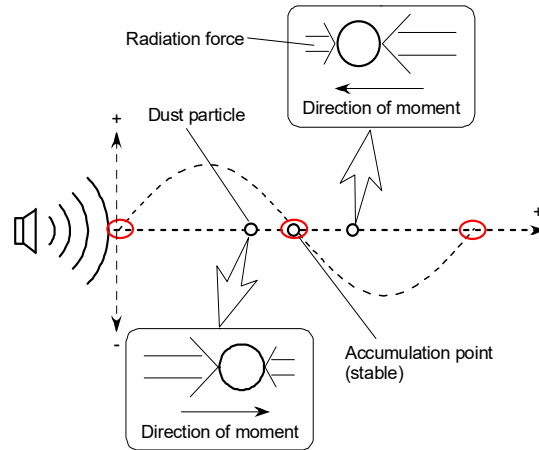


Fig.12 Schematic illustration of particle motion in a sound wave under the action of radiation pressure

進行波での球状粒子に働く音響放射力 F_{Rt} は、次の式(6)で表される。

$$F_{Rt} = \frac{11}{9} \pi r_p^2 (kr_p)^4 \bar{E} \quad (6)$$

また、定常波における球状粒子に働く音響放射力 F_{Rs} は次の式(7)で表される。

$$F_{Rs} = \frac{8}{3} \pi r_p^2 (kr_p) \bar{E} \sin 2kx_0 \quad (7)$$

ここで、 r_p : 粒子の半径、 k : 波数 ($=2\pi/\lambda=2\pi f/c$)、 c : 音速、 \bar{E} : 音響エネルギー密度、 x_0 : 節から粒子までの距離である[6]。

式(6)と(7)を比較すると、微細粒子の場合に $kr_p \ll 1$ であるため $F_{Rt} \ll F_{St}$ となることが分かる。また、式(7)によると音波定在波における粒子に働く音響放射力は粒径が大きく周波数と音響エネルギー密度が高いほど増加する。

本実験で得られた最大音圧(Table 1 : 142 Pa)を用いて、まず、式(8),式(9)で音響エネルギー密度 \bar{E} を求めた。それから、 \bar{E} の値を式(7)に代入して放射力の振幅 ($\sin 2kx_0=0$) を粒子半径の関数として算出した。その結果を Fig.13 に示す。

$$P = \rho c v_0 \quad (8) \quad \bar{E} = \frac{1}{2} \rho v_0^2 \quad (9)$$

ここで P :音圧、 ρ :ガス密度、 c :ガス中音速、 v_0 :流体粒子の振動速度振幅である。

また、比較のために、以下の式(10)で表現される粒子に働く流体抵抗力 F_D も3つの代表的な流体速度 V_g で算出し、粒子半径の関数として Fig.13 に示す。

$$F_D = 6\pi r_p \mu_g V_g \quad (10)$$

ここで g はガス粘性係数である。

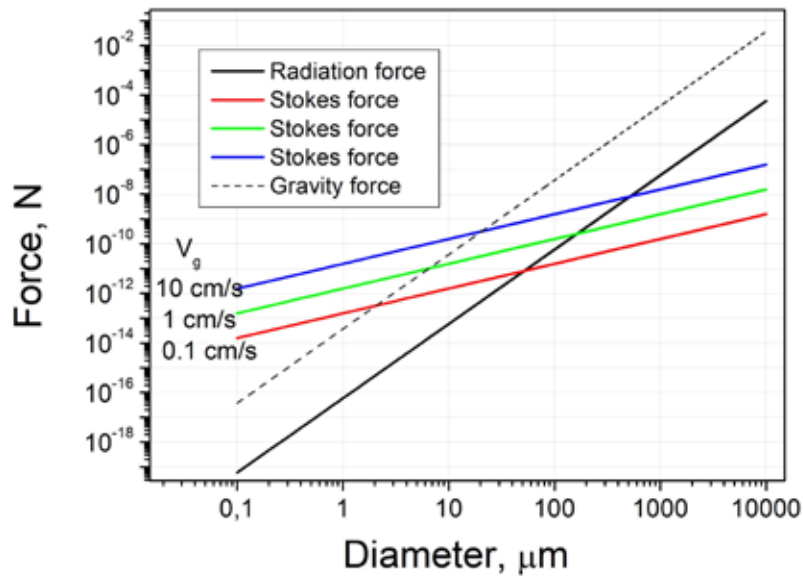


Fig.13 Comparison of radiation force, viscous force and gravity force acting on spherical particle depending on its diameter

4.3 音響後流(Acoustic wake)

音響後流は、前述の3つの超音波凝集機構の中で最も理解されていないものであり、音場中で移動している粒子の周りの流れ場の非対称性に起因していると考えられる[9]。例えば、Fig.14に示すように間隔の小さい2つの粒子を考えると、先行する粒子は流体を乱し、背後に後流を発生させ、背後の領域では圧力が低下する。その結果、後方粒子は先頭粒子に向かって加速度的に移動される。

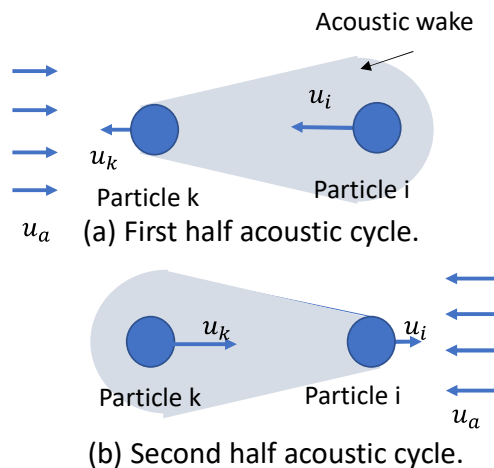


Fig.14 A schematic representation of acoustic wake effect

4.4 本実験結果の考察

上述の機構に基づいて本実験で得られた結果を考察する。Fig.8 に示すデータからわかるように、直径 $1\mu\text{m}$ 以下の粒子が多く発生され、キャリアガスとともに音響チャンバーに移動される。このような微粒子は同伴係数 η (Eq.3)が 20kHz の高周波でも十分に大きいため音場中で大きく振動して、粒子同士の衝突が起きる。つまり、上述の Orthokinetic mechanism が有効であると推定される。このメカニズムでは、特にナノ・サブミクロンの粒子と数ミクロンの粒子の間に凝集が発生すると考えられる。また、粒子同士間距離が大きい場合、または同伴係数が近い場合には、粒子が音響半流の効果を受けて相互に接近していくことで、衝突確率が上昇し粒子の凝集化がさらに進行していく。

それと同時に、実験データは、放射圧が音響半流よりも粒子凝集に重要な役割を果たす可能性を示している。Fig.13 に示すように、球形粒子に働く音響放射力は定在波でもかなり小さい。それでも、粒子が定在波の節の近傍を通るときに、Fig.12 に示すように放射力の影響を受けて相互に接近する。それが音響チャンバー内における粒子挙動の観察から確認できた。レーザーシートを照射し可視化された粒子の動きを観察した結果から次のようなことが明らかになった。本実験条件では、すなわち 4L/min の Ar 流量に相当する石英管内の Ar ガス速度を元にして、音響チャンバーに搬送可能な粒子の最大粒径は約 $14\mu\text{m}$ である。超音波を照射していない場合、このような比較的大きい粒子でも粒子表面からのレーザー反射光の信号強度が弱いため可視化された粒子の個数は極めて少ない。つまり、撮影画像がほぼ真っ暗である。しかし、超音波を照射し始めた瞬間に、放射力により粒子が局所的に集まり疑似凝集を形成することによってレーザー反射光の強度が著しく高まり凝集体が視認できるようになった。動画スクリーンショットの一例を Fig.15 に示す。撮影し

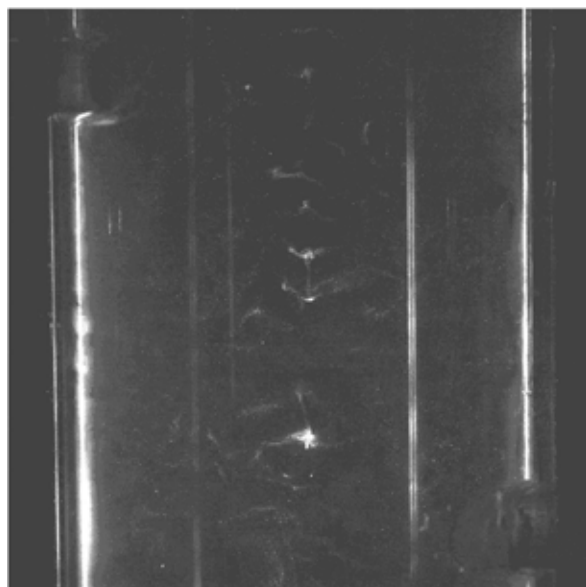


Fig.15 Screenshot of high-speed video during observation of Zn particle motion

た動画から、凝集体は静的ではなく、動的な組織を有することがわかった。具体的に、粒子が定在波の節の近傍を移動するとき超音波の定在場によって捕捉され疑似凝集体に取り込まれる。その結果、粒子同士間距離が著しく短くなり、上述の OM と AW の機構で粒子の衝突と付着が大きく促進されると考えられる。それと同時に一部の粒子は凝集体から分離されガスによって移動される。その中の一部が音響チャンバーの底面に落ちる可能性がある。また、Fig.16 に示す通常のビデオカメラで撮影した動画のスクリーンショットからも、音響チャンバー内における定在波を形成した場合、粒子が定在波の節に濃縮されることを発見した。

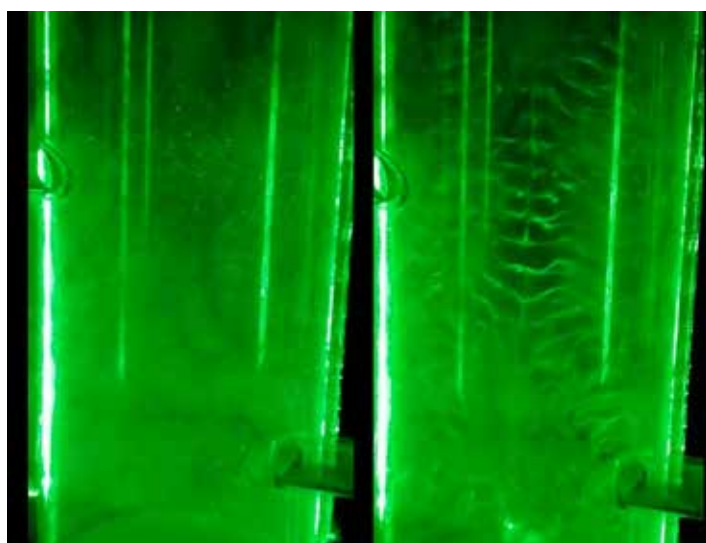


Fig.16 Zn particle distribution in acoustic chamber without (left) and with (right)standing wave (video screenshot)

最後に、なぜ酸化亜鉛粒子が凝集しやすいかについて概説する。酸化亜鉛は半導体として自由電子が金属亜鉛と比べて極めて少ないので酸化亜鉛粒子は装置内壁または粒子同士の衝突によって接触・衝突帯電の電荷を蓄積していく。それで疑似凝集体に取り込まれた際に凝集体が形成されやすいので酸化亜鉛粒子を利用した実験では Fig.9 に示すように、大きな凝集体が形成された。さらに上述の通り、酸化亜鉛粒子は比表面積の大きいナノロッドやファイバーやウィスカー等の形状で生成される粒子であるため遊離凝集体(loose agglomerate)または多孔質凝集体を形成する。そのため、このような密度の低い凝集体粒子は、Fig.9(b)に示すように、音響チャンバー内におけるガス流速が低いかつ音圧が高い中心部では放射力と重力の釣り合い浮遊することもある。また、旋回流(サイクロン流)に巻き込まれた場合、遠心力によって音響チャンバー内壁へ飛ばされ壁面に付着する。付着した凝集体粒子も定在波の影響を受けることは興味深いことである。Fig.9(a)からわかるように、大きな凝集体は約波長の間隔でチャンバーの内面に配列されている。

5. 結論

本研究では、温度勾配を付与した石英管を構成する縦型加熱装置を用いた実験において、Ar または Ar+1%O₂ 雰囲気下で蒸発・凝縮によって生成した亜鉛粒子または酸化亜鉛粒子をキャリアガスとともに音響チャンバーに搬送させ、その中で定在波場により凝集処理を実施した。その後、一部の粒子をカスケードインパクターにより回収して粒子径の重量分率と音響チャンバーからの排出量について調べた。また、高速ビデオカメラとレーザーシートを用いて観察した音響チャンバー内の粒子とその凝集体の挙動から凝集メカニズムを解明した。本研究により、以下の結論を得ることができた。

① 粒子が定在波場を通過することで凝集が進行する。超音波凝集の効果は音圧が高いほど上昇する。それによって、粒径 1 μ m より小さい粒子の重量分率が減少し、それ以上の粒子の重量分率が増加する。また、粒子の排出量が音圧の増加に伴い減少する。

② 回収した粒子の観察を行い、亜鉛粒子は球形であり、酸化亜鉛粒子はナノロッドやファイバー、ウィスカー等の比表面積の大きい形状を有することが明らかになった。そのデータから、酸化亜鉛粒子は金属亜鉛粒子と比べて凝集しやすいことが推定される。

③ 粒子の定在波場における挙動の理論解析と直接観察の結果から凝集機構について解析を行い、次のことを確認できた。粒子が定在波場を移動するときに放射力の影響を受けて、音圧の節に捕捉され疑似凝集体を形成する。その結果、粒子同士間距離が減少し、Orthokinetic mechanism と Acoustic wake (音響伴流)の機構によって粒子の衝突と付着が大きく促進されるため超音波凝集が進行する。酸化亜鉛粒子の場合、接触・衝突帯電の電荷も凝集効率に大きな影響を与えられとされる。

謝辞

本研究は、公益財団法人 JFE21 世紀財団の支援により実施されました。ここに謝意を表します。

引用文献

1. 集塵 工業操作シリーズ 19, 化学工業社(1971)
2. 集塵工学, 井伊谷鋼一著, 日刊工業新聞社(1980)
3. 除じん・集じんの理論と実際, 大野長太郎著, オーム社(1978)
4. Alsultan Abdulkareem Ghassan A.A, Nurul-Asikin Mijan and Yun Hin Taufiq-Yap, Nanomaterials: An Overview of Nanorods Synthesis and Optimization, DOI: <http://dx.doi.org/10.5772/intechopen.84550>
5. P. P. Bolsaitis , J. F. McCarthy , G. Mohiuddin & J. F. Elliott. Formation of Metal Oxide Aerosols for Conditions of High Supersaturation, Aerosol Science and Technology, 6 (1987) 225-246. <https://doi.org/10.1080/02786828708959136>
6. E. P. Mednikov, Acoustic Coagulation and Precipitation of Aerosols, authorized

translation from Russian by Chas V.Larrick, USSR Academy of Sciences Press, Moscow (1965) 180.

7. S.D.Danilov, M.A.Mironov, *Sov.Phys.Acoust.* 30,280(1984)
8. A.A.Doinikov, *J.Fluid.Mech.* 444,1(2001)
9. Hoffmann T L, Koopmann G H. Visualization of acoustic particle interaction and agglomeration: Theory and experiments. *J Acoust Soc*,99 (1996) 2130-2141