

2B12

超音波噴霧によって発生したエタノール/水 nanodroplet の構造研究

(立命館 SLLS¹, 学習院大理², 超音波醸造所³, 産総研⁴, スプリングエイト⁵, 物材機構⁶)

○矢野 陽子^{1,2}, 松浦 一雄³, 深津 鉄夫³, 阿部 房次³, 脇坂 昭弘⁴, 小原 ひとみ⁴,
金子 和亮², 熊谷 篤², 勝矢 良雄⁵, 奥井 真人⁶, 田中 雅彦⁶

液体に高周波数の超音波を照射すると、霧状の液滴が発生する。これは、超音波噴霧と呼ばれる現象であり、身近なものでは加湿器などに応用されている。我々はX線小角散乱によりエタノール/水ミストのサイズ分布測定を行った。その結果、水から発生したミスト径は 100nm 以上であるのに対し、エタノールから発生したミスト径は 1nm 程度しかないことを観測した。またエタノール水溶液からは、水リッチな 100nm 以上の液滴と、エタノールリッチな 1nm の液滴の 2 種類が混在していることがわかった。

INTRODUCTION

近年佐藤らは、エタノール水溶液に高周波数の超音波を照射したときに得られるミストを選択的に回収すると、母液より高濃度のエタノール水溶液が得られることを見つけた¹。図 1 は、超音波照射前後での母液の濃度から算出したミストのエタノール濃度である。母液温度が 50°C 以下では、蒸気圧曲線（実線）を上回っていることがわかる。

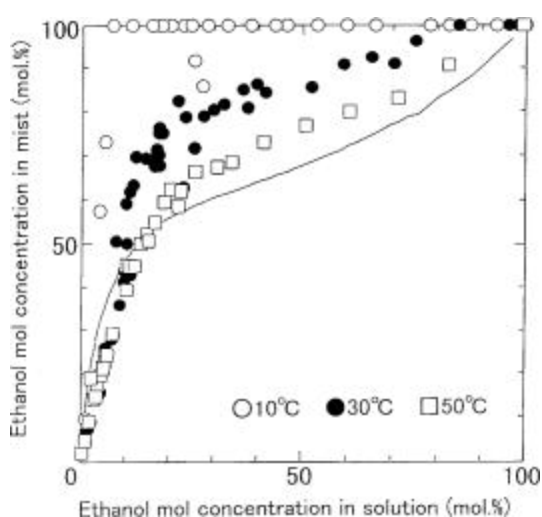


図 1 超音波で発生したミスト中のエタノール濃度

この現象は「超音波霧化分離」と呼ばれ、蒸留法の 10 分の 1 のエネルギーで済むことから、

現在、新しいエタノール濃縮のプロセスとして実用化段階にある。この現象では、図 2 のように高周波数超音波の照射によって噴水のような液柱が立ち、その側面から加湿器のようにミストが発生する。我々は、どこでエタノール濃縮が起こっているかを押さえることで、エタノール濃縮のメカニズムを明らかにしようとしている。前回はこの液柱の X 線回折パターンをその場観測し、超音波照射によってもマイクロな溶液構造は変化しないことを見出した²。今回は、発生したミストに着目し、X 線小角散乱法によって液滴径の分布測定を試みたところ、非常に面白い現象を見つけたので報告する。



図 2 fountain jet

EXPERIMENTAL METHOD

実験は、SPring-8、BL15XU の高分解能粉末 X 線回折装置に超音波霧化システムを設置して行った。超音波振動子には本多電子の HM2412(2.4MHz)3 個を直列に接続し、28V、2A を入力した。ドライエア・ポンプから乾燥空気（キャリアーガス）を霧化槽に送り込み、霧化槽で発生したエタノール/水混合ミストを回折計中心まで誘導してその小角散乱強度を測定した(図 3)。また、測定前後の溶液重量変化とエタノール濃度変化から、ミストのエタノール濃度を算出した。

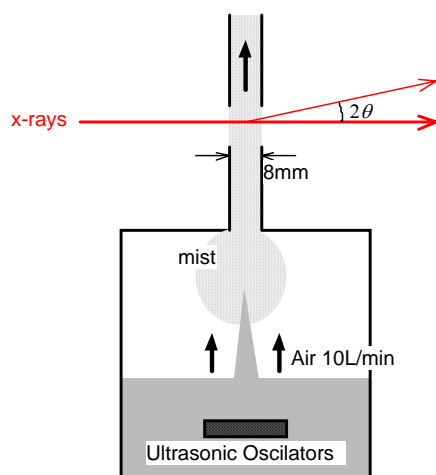


図 3 超音波霧化装置

RESULTS & DISCUSSION

図 4 は X 線小角散乱プロファイルである。低角度測定限界により 100nm 以上のミストは観測できないが、水では少なくとも直径 100nm のミストが発生しているのに対して、エタノールは 1nm 程度しかないことがわかる。水の場合、白煙のようなミストが発生しているのに対し、エタノールの場合は霧化槽内が透明であることも、この結果を支持している。

一方、エタノール水溶液は、低温では 1nm のミストの発生が主であるが、高温になると 100nm 以上の液滴が混在するのが観測された(図 4 下)。このときミストのエタノール濃度

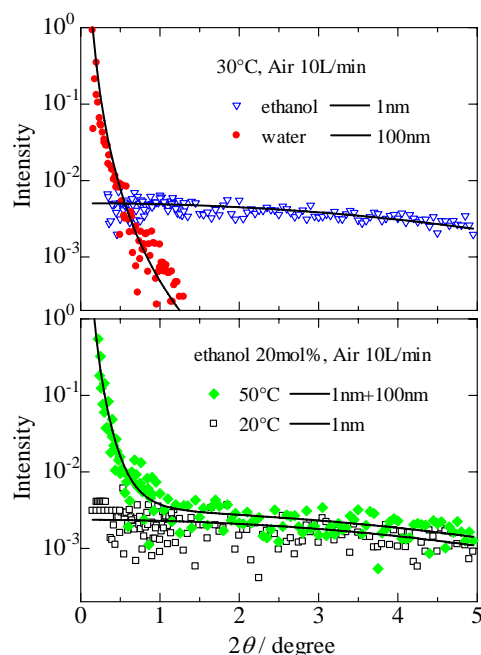


図 4 エタノール/水ミストの X 線小角散乱プロファイル

も 62%から 42%と減少した。この液滴径はそれぞれ純粋な液体から発生するものと同じであること、高温にするほどミストの濃度が下がることを考えると、1nm はエタノールリッチ、>100nm は水リッチな液滴であるとみなすことができる。すなわち、液滴の状態で相分離が起っていることになる。

解釈として、以下の 2 つの可能性を挙げる。エタノール水溶液は巨視的には混合していてもマイクロに相分離している³ことから、水リッチ領域、エタノールリッチ領域からそれぞれ異なる大きさの液滴が発生している『内部ミスト化説』と、低温では表面過剰なエタノール⁴が優先的に液滴化している『表面ミスト化説』が考えられる。

¹ M. Sato, *et al.*, *J.Chem.Phys.*, **114**, 2382, (2000)

² Y. F. Yano, *et al.*, *J.Chem.Phys.*, submitted.

³ M. Matsumoto, *et al.*, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **68**, 1775 (1995).

⁴ Y. F. Yano, *J. Colloid Interface Sci.*, **284**, 255 (2005).