噴霧法による微粒子生成機構の実験的 および数値的解析

07502

助 成 対 象 者 Widiyastuti

広島大学大学院工学研究科物質化学システム専攻 博士課程後期 3 年

研 究 指 導 者 奥 山 喜久夫

広島大学大学院工学研究科物質化学システム専攻 教 授

成果の概要

エアロゾルプロセスによる微粒子材料の合成は、高い生産性、高純度、短い反応時間、連続プロセスといった特徴があり、広く利用されている。目的の微粒子材料を得るためには、エアロゾルプロセスにおける粒子の形成過程を理解することが必要である。本研究では、エアロゾルプロセスによるナノ粒子および微粒子の形態と特性を制御するために、噴霧熱分解法、パルス燃焼噴霧熱分解法と火炎合成法について、操作条件による微粒子特性の変化の実験結果を系統的に得た。一方、エアロゾルプロセスにおける粒子生成の基礎式を数値計算により解き、得られた計算結果を実験結果と比較し、エアロゾルプロセスによる粒子生成を系統的に検討した。

- 1) 噴霧熱分解法によるジルコニア粒子の合成実験を行い、操作条件により、密な粒子、中空粒子、破碎粒子が生成されることを実験的に明らかにした。さらに、これらの実験結果を説明するために、液滴の蒸発、固体反応による粒子形態の変化を、液滴周りの伝熱、物質移動および固相の化学反応の基礎式を連立して数値計算した。得られた計算結果は、粒子の形態に関する実験結果とよく一致した。
- 2) さらに、噴霧熱分解法により合成された $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ シリカコンポジット粒子の蛍光特性を実験

的に検討した。プリカーサー溶液にコロイダルシリカナノ粒子を添加して合成された $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ 蛍光体の特性を調べたところ、シリカナノ粒子の添加は $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ コンポジット蛍光体粒子のサイズ、形態、結晶性および蛍光特性 (PL) に大きく影響することが確認された。

- 3) 噴霧熱分解法における蛍光体粒子の特性制御を詳細に調べるために、 $\text{Y}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ 粒子の結晶子径および粒子径の蛍光特性への影響を調べた。その結果、蛍光体の粒子径と結晶子径の増加に伴い蛍光特性が大きく増加することが明らかとなった。
- 4) パルス燃焼噴霧熱分解法により合成されるナノ粒子の形態制御について検討した。この方法により、平均径で20nmから40nmまでの酸化亜鉛ナノ粒子が合成されることが確認された。このようにナノ粒子が形成されるのは、パルス燃焼で発生する衝撃波の変動圧力によることが明らかとなった。
- 5) 火炎合成法によるナノ粒子の製造を検討した。先駆体として固体のシリカ粉末を選定し、火炎中での蒸発によるシリカ蒸気からの核形成、凝集によりナノ粒子が合成された。このシリカの蒸発からのナノ粒子の合成を、エアロゾルの一般的な動力学方程式 (GDE) の数値計算により明らかにした。メタンガス流量およびキャリアガス流量により火炎の温度が大きく変化し、これがナノ粒子の合成に大きく影響することが、実験および理論の両面

図1 Particle formation illustration of solid-fed flame synthesis.

より明らかになった (図1)。

研究成果

- 1) W. Widiyastuti, Wei-Ning Wang, I. Wuled Lenggoro, Ferry Iskandar, and Kikuo Okuyama, "Simulation and Experimental Study of Spray Pyrolysis of Polydispersed Droplets", *Journal of Materials Research*, 22(7), 1888-1898 (2007).
- 2) Wei-Ning Wang, W. Widiyastuti, I. Wuled Lenggoro, Tae Oh Kim, and Kikuo Okuyama, "Photoluminescence Optimization of Luminescent Nanocomposites Fabricated by Spray Pyrolysis of a Colloid-Solution Precursor", *Journal of the Electrochemical Society*, 154(4), J121-J128 (2007).
- 3) Wei-Ning Wang, W. Widiyastuti, Takashi Ogi, I. Wuled Lenggoro, and Kikuo Okuyama, "Correlations between Crystallite/Particle Size and Photoluminescence Properties of Submicrometer Phosphors", *Chemistry of Materials*, 19(7), 1723-1730 (2007).
- 4) W. Widiyastuti, Wei-Ning Wang, Agus Purwanto, I. Wuled Lenggoro, and Kikuo Okuyama, "A Pulse Combustion-Spray Pyrolysis Process for the Preparation of Nano- and Submicron-Sized Oxide Particles", *Journal of the American*

Ceramic Society, 90 (12), 3779-3785 (2007).

- 5) W. Widiyastuti, Agus Purwanto, Wei-Ning Wang, Ferry Iskandar, Heru Setyawan, and Kikuo Okuyama, "Nanoparticle Formation through Solid-Fed Flame Synthesis: Experiment and Modeling", *accepted to AIChE Journal* (2008).

学会発表

- 1) W. Widiyastuti, Agus Purwanto, Ferry Iskandar and Kikuo Okuyama, Modeling and Experimental Study of Solid-Fed Aerosol Synthesis for Nanoparticle Production, 25th Symposium on Aerosol Science & Technology, Kanazawa, Japan, C08, pp 253-254, Aug. 20-22, 2008.
- 2) W. Widiyastuti, Wei-Ning Wang, Agus Purwanto, I. Wuled Lenggoro, Ferry Iskandar, and Kikuo Okuyama, "Comprehensive Analysis of Particle Formation from Poly-Dispersed Droplets by Spray Pyrolysis Method: Experiment and Simulation", The 3rd Asian Particle Technology Symposium, Beijing China, B12, September 3-5, 2007.
- 3) Wei-Ning Wang, W. Widiyastuti, Takashi Ogi, Agus Purwanto, I. Wuled Lenggoro, and Kikuo Okuyama, "Effects of Crystallite/Particle Size on Luminescence Properties of Submicron Spray Pyrolyzed Phosphor Powders", The 3rd Asian Particle Technology Symposium, Beijing China, A11, September 3-5, 2007.