

超音波霧化によるミスト発生制御とエタノール濃縮分離 —可視化解析とプロセス開発—

Ultrasonic Atomization for Controlled Mist Generation and Ethanol Separation
—Visual Analysis and Process Development—

土屋活美 (同志社大 理工)
Katsumi Tsuchiya (Facult. Sci. & Eng., Doshisha Univ.)

Ultrasonic atomization (USA) can be induced by applying ultrasound of *high frequency*, i.e., on the order of MHz, to a gas-liquid interface from the liquid underneath. It will preferentially occur, due partly to its *high directivity*, in comparison to acoustic cavitation induced favorably under lower-frequency (< MHz, thus technically-easier-to-attain larger-amplitude) conditions. When the liquid is subjected to high-frequency (≥ 1 MHz) ultrasound, the atomization starts almost instantaneously in association with liquid jet formation and breakup. The atomization sequence, including the dynamics of interfacial oscillations, is visually analyzed via high-speed imaging. Selective ethanol separation from its aqueous solution is attempted through USA coupled with mist recovery by *two-stage cooling*. It is found that the USA process could be more closely triggered by sudden increase in the surface roughness of microscale, which would be viewed as localized surface patches of two-dimensional capillary waves, often associated with contraction-expansion sequence of the surface topology. Such surface patches can then lead themselves to further instability to generate a swarm of liquid droplets of microscale around the expanded phase of liquid column. Two separate recoveries, in the 1st and 2nd stages, with lower and higher ethanol contents, respectively, can be realized by optimizing—from an energy-saving perspective—cooling temperatures and carrier-gas flowrate; regarding the latter operating parameter, ethanol-rich mist consisting of small-size droplets tends to be carried selectively in favor of lower gas flowrate. The two-stage cooling process has thus an advantage of obtaining desired product by virtue of *collectivity* and *transportability*, respectively.

1. はじめに

超音波霧化は、低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。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を契機として研究が急速に進展しつつある^{1,2)}。分離技術のみならず、霧化の可視化による現象の理解への試みや微細液滴の反応場としての応用も報告されており、最近では SPring-8 の高輝度 X 線を用いた測定により、エタノール水溶液からはナノサイズの液滴が発生している³⁾ことが示され、ナノ液滴を工学的に応用する技術の展開も期待される。本講演では、基礎研究・実用化の端緒として、最新の研究成果の一端を紹介する。

エタノール水溶液の液内部から液自由表面に向けて照射した高周波数 (MHz 帯) の超音波により、液表面には液柱が形成され、さらに不安定となった液柱波面から微小液滴群 (ミスト) が発生する⁴⁾。特に、エタノール水溶液のような両親媒性溶液では、特定の成分が濃縮されたミストとなるが、その発生量や濃縮率の制御はおろか、発生機構に関しても依然として不明な点が多い^{1,5,6)}。一方、この原理を利用したエタノール濃縮の実用化に向けては、ミストの効率的回収方法の確立が必要となる。

本研究では、①超音波照射時の液柱の様子やミスト発生の前兆等に注目し、液柱挙動のダイナミクス、ならびに液柱制御がミスト発生に与える影響を高速度・高解像度可視化解析を通じて検討すると同時に、②ミストの二段階冷却回収を含めた連続超音波霧化プロセスの開発を目指して、(冷却温度、ミスト輸送気体流量等の) 操作条件がミスト回収効率に及ぼす影響について検討した。

2. 可視化解析

解析方法 霧化現象は、2.4 MHz の超音波振動子 (本多電子 HM-2414) に液柱制御用ノズル設置有無の下、高速度カメラ (REDLAKE Motion-Pro X-4)、光源にメタルハライドランプ (MID-25FC) を背面光または Nd:YAG レーザシート光を側射光として用いて観察した。振動子への印加電圧は 16~20W とし、液相には 0~60wt% エタノール水溶液を使用した。撮影画像は、擬似カラー化により液柱輪郭を強調した。ミスト生成に関与すると考えられる領域内に 3 つの基準位置 (Positions 1, 2, 3) を設け、各位置での変位を測定した。

解析結果 原画像および 擬似カラー化した画像を Fig. 1 に示す。ミストに覆われて不鮮明であった液柱の輪郭が明確になり、液柱表面の微細な波の挙動を詳細に解析可能となった。

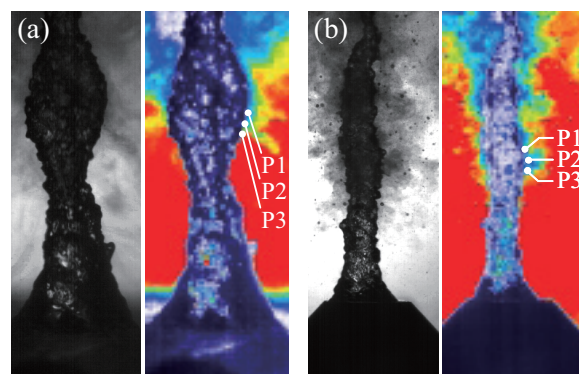


Fig. 1 Enhanced (via pseudo-coloring) images of liquid fountain and mist: (a) without and (b) with nozzle.

ノズルなしの状態での液柱表面各部位の変位を Fig. 2 に示す。時間経過とともに各部位が連

動し、波は液柱を下から上へ伝播する。各部位の動きが正から負に変位する際にミスト生成が確認された。特に、波の変位が大きい場合に顕著なミスト化が周期的に起こり、変位が小さい場合は小規模なミスト生成が不規則に起こる。ノズルを設置した場合、各部位の運動性・液柱波動の周期性が顕著になり、波の変位は均一化した。メインとなるミスト生成が短周期で確認され、ミスト生成効率が向上したと考えられる。

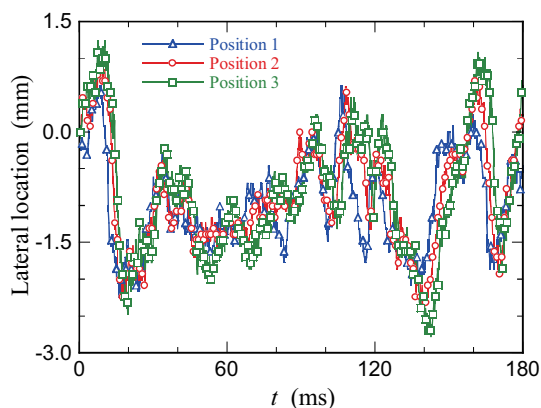


Fig. 2 Variations in lateral location of fountain boundary positions (without nozzle).

液柱表面を接写し、数十 μm オーダーの液滴生成の瞬間を捉えた。この大きさの液滴はミスト発生領域の微小な隆起先端部がちぎれたもので、特に表面張力の低いエタノール水溶液で観察された。液柱表面から数 μm オーダーの大きさで射出される液滴群は、その運動エネルギーから、液柱内部に局在する「クラスター構造」をもつ液要素が放射状に放出されたものと推測される。この現象は水など表面張力の高い溶液で観察された。

3. プロセス開発

実験方法 エタノール水溶液 1L を循環させ、超音波霧化装置内で液面の高さを 45mm に保ちながら 1.5 時間霧化した。発生したミストは窒素ガスにより冷却器へ導入し、凝縮して回収した。冷却器 1、2 の設定温度をそれぞれ本装置における最適条件 $T_{C1} = 5^\circ\text{C}$ 、 $T_{C2} = -15^\circ\text{C}$ ⁷⁾ に固定し、ガス流量 $Q = 3 \sim 18\text{L/min}$ と変え、ミスト回収効率の Q 依存性を定量化した。

実験結果 回収液 1、2 のエタノール濃度と質量を Fig. 3 に示す。流量変化に対する C_{R2} の低下率は C_{R1} に比較して低く、 C_{R2} は本実験条件下では、常圧でのエタノール水溶液の気液平衡を超える高い濃縮率を維持している。この傾向は、 Q の増加に伴ってエタノール濃度の低い比較的大きな液滴も輸送されやすくなるためであり、一段階目でその影響を強く受ける。Fig. 3(b) にガス流単位体積当たり輸送したエタノールの質量 $C_R W_R$ を示すが、 $Q = 6\text{L/min}$ 付近に最適値が存在し、したがって目的とする回収液、すなわち高いエタノール濃縮率かつ収率をもつ回収液は、本ミスト回収プロセスにおいては、

$T_{C1} = 5^\circ\text{C}$ 、 $T_{C2} = -15^\circ\text{C}$ 、 $Q = 6\text{L/min}$ の操作条件下で、効率良く二段階目で回収可能と考えられる。

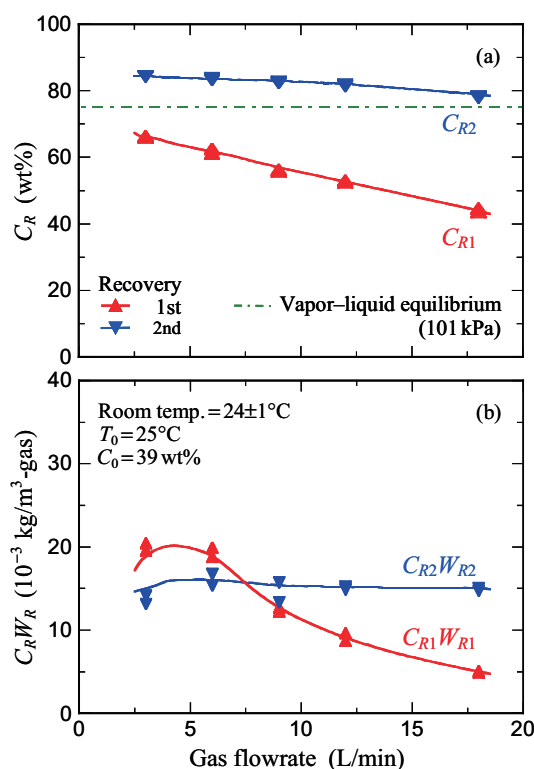


Fig. 3 Effect of carrier-gas flowrate on (a) ethanol concentration and (b) ethanol weight of recovery.

4. おわりに

超音波照射時の液柱挙動のダイナミックスがミスト発生に与える影響を可視化解析し、ミストの「回収されやすさ (collectivity)」と「輸送されやすさ (transportability)」を両立することは、高効率・省エネルギー分離プロセスの構築に向けて、有用な指針を与えるものと信じる。

謝辞

本研究は、NEDO 産業技術実用化開発助成事業「揮発性有機化合物高度分離のための省エネルギープロセスの開発」の一環として実施したものである。

引用文献

1. M. Sato, K. Matsuura and T. Fujii: *J. Chem. Phys.* **114** (2001) 2382.
2. 超音波霧化分離研究会: <https://www.shumurie.co.jp/ultrasound/kenkyuukai.html> (2009).
3. Y. F. Yano, K. Matsuura, T. Fukazu, F. Abe, A. Wakisaka, H. Kobara, K. Kaneko, A. Kumagai, Y. Katsuya and M. Tanaka: *J. Chem. Phys.* **127** (2007) 031101.
4. K. Tsuchiya, K. Fujiwara, H. Hayashi and K. Matsuura: *Proc. 6th Int. Conf. Multiphase Flow* (2007) Paper S4-Tue-A-15.
5. D. M. Kirpalani and F. Toll: *J. Chem. Phys.* **117** (2002) 3874.
6. A. Wakisaka and K. Matsuura: *J. Molecular Liquids* **129** (2006) 25.
7. K. Tsuchiya, Y. Tanaka, Y. Mori and K. Matsuura: *Proc. 8th World Cong. Chem. Eng.* (2009) Paper 01764.