

# 超音波発生機を利用した液滴調製装置の開発 (第1報)

今福達夫\*・幡手泰雄・碓 醇\*\*

(受理 昭和63年5月31日)

## DEVELOPMENT OF A DROPLETS GENERATOR USING AN ULTRASONIC TRANSDUCER I

Tatsuo IMAFUKU, Yasuo HATATE, Atsushi IKARI

An ultrasonic apparatus having the dispersion and emulsification effect was developed for the continuous preparation of fine droplets. This apparatus consists of inner and outer cylinders on the tip of ultrasonic oscillator, into which continuous and dispersed phases were continuously supplied for the preparation of droplets. Polyvinyl alcohol aqueous solution as the continuous phase and toluene as the dispersed phase were used to examine the effect of operating conditions on the size of droplets.

From this experiment, for example, 400 cc/min of 3.5  $\mu\text{m}$  toluene droplets could be prepared under the conditions of polyvinyl alcohol concentration = 0.5 wt%, dispersion volume fraction = 0.1 and ultrasonic output = 60 W.

### 緒 言

懸濁重合で微粒子を製造する場合、液滴調製は、得られる最終粒子径に対して支配的な因子となる。従来、50 $\mu\text{m}$ 以下の微細な液滴の調製法としては、高せん断力を有するホモジナイザー等の機械的攪拌装置により、あらかじめ液滴を調製し、それを反応器内に移し、重合を行ってきた<sup>1),2)</sup>。しかしこの方法は、回分操作における長時間高速運転を必要とするため、一度に調製される液滴の量が少なく、調製に長時間を要するなど、スケールアップを妨げる因子の一つとなっている。

微小液滴を多量に調製する方法として、超音波の利用が考えられる<sup>3),4)</sup>。超音波は、洗浄、溶接、加工、反応促進、集塵、分散乳化、抽出<sup>5)</sup>、工業計測等様々な分野で応用されている。超音波作用の一つである、液体中でのキャビテーション効果、界面攪乱効果による分散乳化作用を応用すれば、連続相中に分散相を効率よく分散乳化させ、微小液滴を連続的に調製することができ、上述の問題を解決するために有効と考えられる。

そこで本研究では、超音波発生機を利用して液滴を連続的に調製する装置開発の基礎研究として、様々な超音波操作条件で液滴を生成し、液滴径に及ぼす操作条件の影響を検討した。

### 1. 実 験

#### 1.1 試 薬

トルエンは市販特級試薬をそのまま使用し、ポリビニルアルコール水溶液 (PVA 水溶液) は、蒸留水に市販 PVA (重合度: 500) を所定量加え、各濃度に調製し使用した。

#### 1.2 実験装置

実験装置の概要を Figs.1(A), 1(B) に示す。実験に用いた系は、分散相をトルエン④、連続相を PVA 水溶液⑤で、それぞれタンク内に貯えられている。流量調整は、ニードルバルブ⑥、及びフローメーター⑧により行った。超音波発生装置⑨の最大出力は 200W で、この先端に 20kHz の電歪型、超音波振動子⑩が装着されている。

超音波振動子先端の詳細を Fig.1(B) に示す。液滴生成装置は、超音波振動子の先端に取り付けられた、

\* 三田工業(株) \*\* 鹿児島工業高等専門学校

振幅拡大のための接続ホーン⑩と、その回りの内部円筒⑫および外部円筒⑬から構成されている。液滴調製は、激しい直進流を伴うため30cmの長さを有している。

### 1. 3 実験操作

タンク内に貯えられたトルエン④、PVA 水溶液⑤は  $N_2$  ガス圧①、②によりそれぞれニードルバルブ⑥、及びフローメーター⑧に送られ、流量を調節された上で、トルエンは内部円筒⑫、PVA 水溶液は外部円筒⑬に供給される。内部円筒に送られたトルエンは、超音波振動により発生したキャビテーション効果及び界面攪乱効果によりホーン先端で瞬時に液滴が生成しPVA 水溶液中に分散される。生成した液滴は流れとともに下方に進み連続的に調整される。(Fig. 2 参照)

得られた液滴の粒径分布は、少量の採取液を5 wt% PVA 水溶液を張ったプレパラート上に落とし、光学顕微鏡によって写真撮影を行い、各サンプルにつき約300個の粒子径をデジタイザーにより読み取り、測定した。

## 2. 条 件

本実験で検討した操作条件を Table 1 に示す。超音波振動子先端の接続ホーンと分散相が供給される内部円筒との隙間をクリアランスとし、接続ホーン先端と内部円筒の先端が平行である位置を0 mmとし、内部円筒がつきでた長さを振動子位置とした。

基準の実験条件は、流速100cc/min、PVA 濃度0.5wt%、分散相分率0.1、超音波出力60W、クリアランス0.5mm、振動子位置0 mmとした。流量を100~500cc/min、PVA 濃度を0.1~4.0wt%、分散相分率を0.05~0.4、超音波出力を40~100W、クリアランス0.25、0.5、1.25mm、振動子位置を0、2、5 mmと変化させ実験を行い、操作条件の液滴径に及ぼす影響について検討した。

## 3. 結果及び考察

### 3. 1 流速の液滴径に及ぼす影響

Fig. 3 に流速の液滴径に及ぼす影響を示す。流速が増加するに従って、わずかに液滴の平均径が大きくなり、分布も広がっている。500cc/min まで流速を高めると、かなりの分布の広がりが認められた。これは、

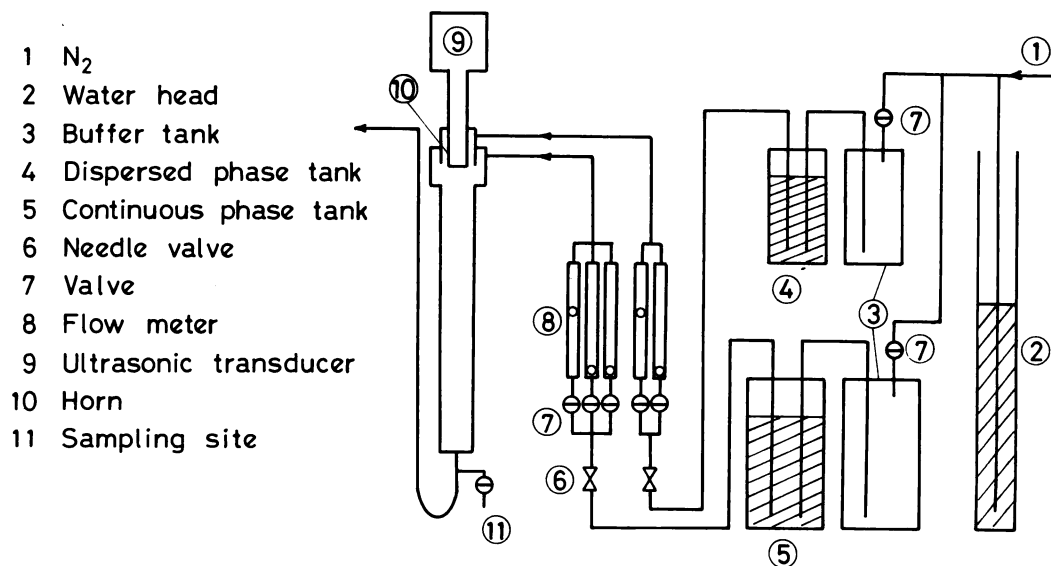


Fig. 1(A) Experimental apparatus

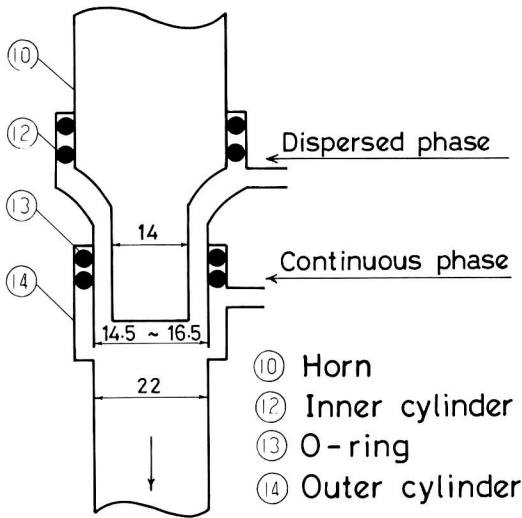


Fig. 1 (B) Detail of horn

Table 1 Experimental conditions

U [cc/min]	P V A [wt %]	$\Phi$ [-]	P [W]	C [mm]	L [mm]	$dp_{32}$ [ $\mu$ m]
100	0.5	0.1	60	0.5	0	2.59
200						2.86
300						3.29
400						3.54
500						3.57
	0.1					4.32
200	0.5	0.1	60	0.5	0	2.86
	1.0					2.66
	2.0					2.12
	4.0					1.98
		0.05				2.57
100	0.5	0.1	60	0.5	0	2.59
		0.2				3.88
		0.4				4.25
			40			5.43
			60			2.59
100	0.5	0.1	80	0.5	0	2.22
			100			2.23
				0.25		2.80
100	0.5	0.1	60	0.5	0	2.59
				1.25		2.76
100	0.5	0.1	60	0.5	0	2.59
					2	2.89
					5	2.65

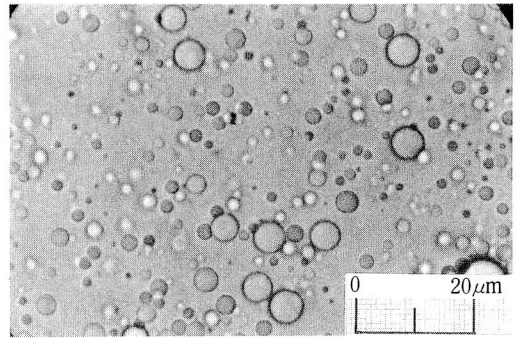


Fig. 2 Droplets of toluene at  $U=300$ cc/min, PVA = 0.5wt%  $\phi = 0.1$ ,  $P=60$ W,  $C=0.5$ mm,  $L=0$ mm

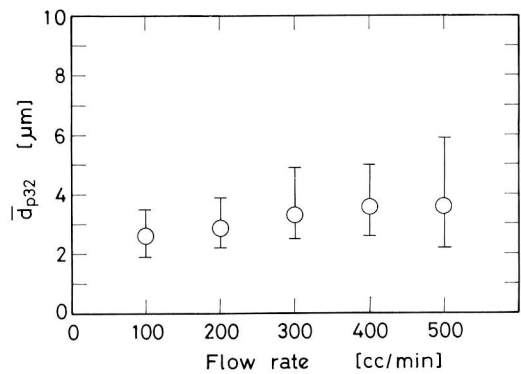


Fig. 3 Effect of flow rate on average size of droplets

流速が速くなるに従って、ホーン先端との接触時間が短くなり、超音波振動による均一な分散を受けにくいと考えられる。

しかし、PVA 濃度0.5wt%、超音波出力60W、分散相分率0.1の条件で400cc/min までの流速ではシャープな分布をもつ液滴を調製することが可能である。

### 3. 2 PVA 濃度の液滴径に及ぼす影響

Fig. 4 に PVA 濃度の液滴径に及ぼす影響を示す。PVA 濃度が高くなるに従って、液滴の平均径は小さくなり、分布もシャープになっている。これは、PVA 濃度が高い程、一度分散した液滴同士の合一が少ないためと考えられる。液の粘度が高いほどキャビテーション効果は低下すると報告されているが<sup>6)</sup>、本

実験では、高 PVA 濃度がもたらす粘度上昇は、キャビテーション低下よりも、液滴合一防止作用の方が、より支配的であったため、上記の結果を得たと考えられる。

### 3. 3 超音波出力の液滴径に及ぼす影響

Fig. 5 に超音波出力の液滴径に及ぼす影響を示す。超音波出力が増加するに従って液滴の平均径は小さくなり 80W 以上ではほぼ一定となり分布もシャープになっている。液滴の分散は超音波照射によって発生するキャビテーション効果及び界面攪乱効果のために起こると考えられている<sup>3)</sup>。

このキャビテーションはある強度以上の超音波出力で発生し始め、出力の増加と共に激しくなり、ある強度以上では一定になると考えられる。ホーン先端形状等、装置条件によって異なるが、本装置では 30W 以上でキャビテーションが発生し始め (閾値)、80W 以上で一定し、液滴の合一と分散の動的平衡に達するため、この様な結果になったと考えられる。

また、閾値付近のキャビテーションほど不安定であるため、超音波出力が低いほど液滴径分布のばらつきが大きくなっており、80W 付近で液滴を調製することが望ましい。

### 3. 4 分散相分率の液滴径に及ぼす影響

Fig. 6 に分散相分率の液滴径に及ぼす影響を示す。高分散相分率になるに従って、液滴の平均径が大きくなり分布もブロードになっている。これは高分散相

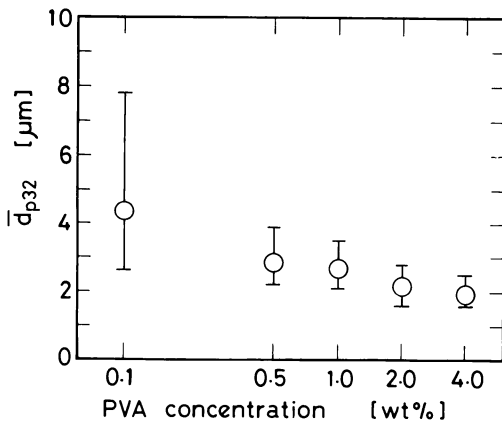


Fig. 4 Effect of PVA concentration on average size of droplets

率になる程、液滴同士の合一が起こりやすくなるためであり、また、同一出力で発生するキャビテーションによって効率よく分散させる分散相分率の限界があるためだと考えられる。

今回使用した分散相であるトルエンの粘性は 0.522cp (at 30°C) と PVA 水溶液に比べかなり低く、高分散相分率による粘度上昇はないにもかかわらず上記の結果を得ており、分散相に高粘度のものを使用す

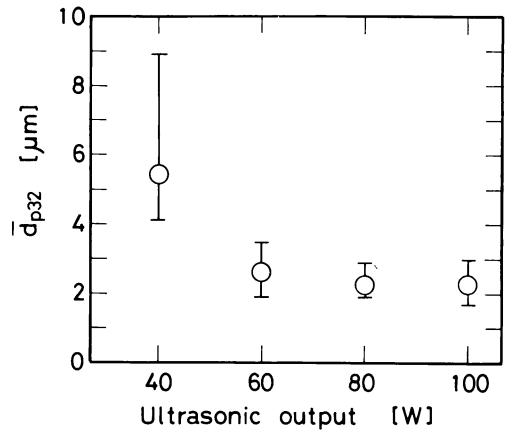


Fig. 5 Effect of ultrasonic output on average size of droplets

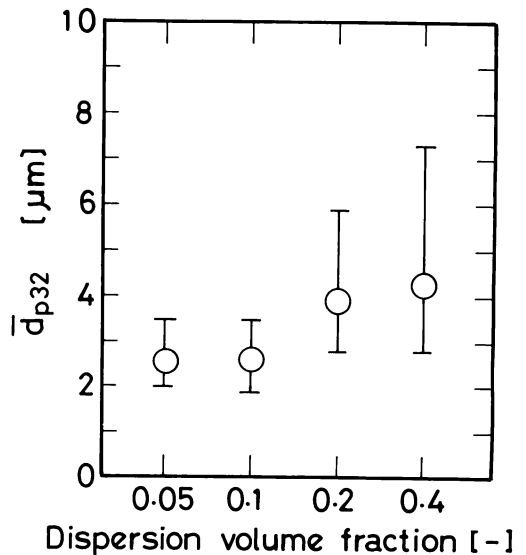


Fig. 6 Effect of dispersion volume fraction on average size of droplets

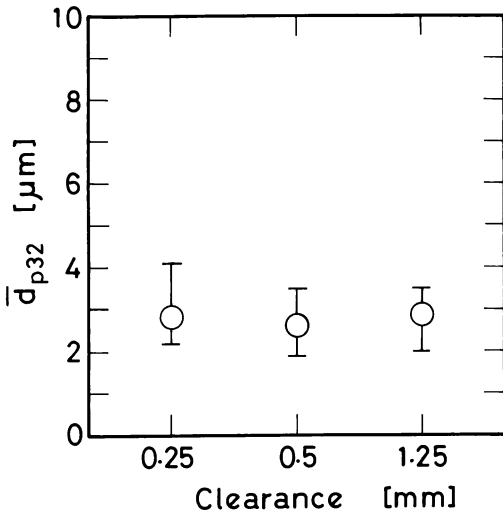


Fig. 7 Effect of clearance on average size of droplets

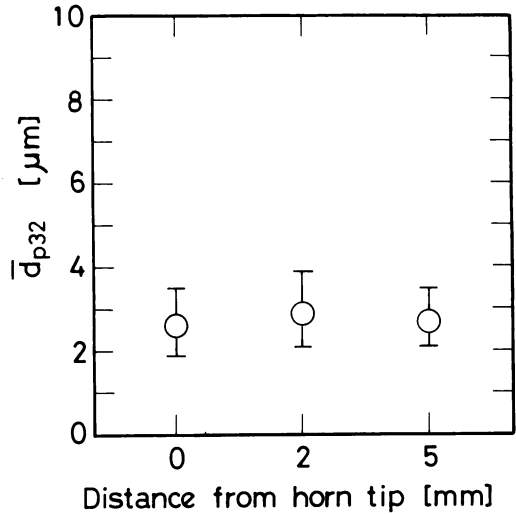


Fig. 8 Effect of distance from horn tip on average size of droplets

る場合注意を要する。

また懸濁重合では連続相に界面活性剤を併用する事が多いが、このことは、界面張力低下によるキャビテーション効果の低下も報告されており<sup>7)</sup>検討を要する。

### 3. 5 クリアランスの液滴径に及ぼす影響

Fig. 7はクリアランスの液滴径に及ぼす影響を示す。クリアランス変化による液滴の平均径及び分布はほぼ一定であり、本実験装置におけるクリアランスは液滴径に影響を及ぼさないことが分かる。

### 3. 6 振動子位置の液滴径に及ぼす影響

Fig. 8に振動子位置の液滴径に及ぼす影響を示す。横軸は振動子位置で、接続ホーン先端より内部円筒が突き出た長さを0, 2, 5 mmと変化させて実験を行った。

振動子位置による液滴の平均径及び分布はほぼ一定であり、本実験装置における振動子位置は液滴径に影響を及ぼさないことが分かる。

## 結 言

本研究で考案した、超音波照射型液滴調製装置を用いて、種々の操作条件により液滴を生成した結果以下

の結論を得た。

1) 500cc/min までの流速による液滴径変化はあまりないが、流速が速くなるとホーン先端との接触時間低下のため滴径分布に広がりが見られた。

2) 連続相である PVA 水溶液の濃度が高くなるにしたがって、液滴の平均径及び分布がシャープになった。これは、機械的攪拌装置による液滴調製と同様の結果を示した。

3) 超音波出力の増加にともない液滴の平均径は小さくなり分布もシャープになるが、80W 以上ではキャビテーション効果の極大にともない安定化する。

4) 高分散相分率では液滴同士の合一の増加するため液滴分布に広がりが見られた。

5) 装置条件であるクリアランス、振動子位置の変化は液滴径に影響を及ぼさないことがわかった。

### Literature cited

- 1) 幡手泰雄：ケミカルエンジニアリング, 32(7), 539(1987)
- 2) 幡手泰雄, 今福達夫, 永田浩子, 川野人志, 碓醇：化学工学協会第52年会講演要旨集, M313(1987)
- 3) 実吉純一, 菊池喜充, 熊本乙彦監修：「超音波技

術便覧」(日刊工業新聞社1978)

- 4) 根岸勝雄, 高木堅志郎:「超音波技術」(東京大学出版会1984)
- 5) 星野照彦, 内山三智男, 油川 博: 化学工学論文集10(3), 351(1984)
- 6) H.B.Briggs, J.B.Johnson and W.P.Mason: J. Acous. Soc. Amer. 19, 664(1947)
- 7) 伊藤公充: 第2回音響化学討論会予稿集18(1957)

#### Nomenclature

U	; Flow rate	[cc/min]
$\Phi$	; Dispersion volume fraction	[-]
P	; Ultrasonic output	[W]
C	; Clearance	[mm]
L	; Distanse from horn tip	[mm]
$\bar{d}_{p32}$	; Sauter average droplet size	[ $\mu\text{m}$ ]
PVA	; Polyvinyl alcohol concentration in water phase	[wt%]