

D216

マイクロリアクターを用いたナノ粒子の制御と反応モデルの検討

(京大院工)○(学)和田知也・(正)牧泰輔・(正)前一廣*

1. 緒言

ナノ粒子は光機能材料や半導体材料など様々な分野で利用されている。しかし、その性質は粒子のサイズや分散の幅、形状に大きく影響され、その用途によってそれらの物性を精密に制御する必要がある。当研究室ではこれまで、滞留時間制御・温度制御・濃度分布制御に優れたマイクロリアクターを用いて、ナノ粒子の粒径制御に成功している。本研究では、数個の迅速混合型マイクロミキサーを直列に接続したマイクロリアクターを用いたナノ粒子の作製について実験とシミュレーションの両面から検討した。特に混合方法について着目し、核生成・粒子成長を分離することで、その精密制御を目指した。

2. 実験方法

マイクロリアクターである KM ミキサーを複数台直列に接続した装置を、ナノ粒子の原料を逐次投入し、それを還元することにより金ナノ粒子を作成した。金原料を塩化金酸、還元剤として THPC (Tetrakis hydroxymethyl phosphonium chloride)、分散剤として PEI (Poly-ethyleneimine)を用い、塩化金酸と PEI の混合溶液を逐次投入して金ナノ粒子を作成した。反応温度は 60℃とし、作成した粒子は TEM で観察し、粒度分布は動的光散乱分布計で測定した。

3. シミュレーション方法

この反応器をモデル化して計算して解くことにより、粒径の制御により有効な操作方法を検討した。反応部の KM ミキサーと sus 管に対して $n_{\max}=50$ の槽列モデルを仮定した。第 n 槽目の CSTR において粒子径が $L \sim (L + \Delta L)$ 間の粒子数を $\Delta N_n(L)$ とし、これを粒子径幅 ΔL で割った個数密度関数 (Population Density Function) $f_n(L) [\text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-1}]$ を導入し、1つの CSTR 内において個数収支を取ることで、

$$f_n(L) = \frac{v}{G_n V} \int_0^L \exp\left(-\frac{v(L-x)}{G_n V}\right) f_{n-1}(x) dx \quad (1)$$

と表せる。ここで、 L は粒子径[m]、 v は流量 $[\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}]$ 、 V は CSTR1 台あたりの体積 $[\text{m}^3]$ 、 G_n は粒子の線成長速度 $[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$ である。これらのパラメーターは実験と同じになるようにし、核の発生数は原料濃度のみに比例するとした。また計算において、核の大きさは 0 とし、粒子の凝集・分裂・消滅はないとし、ある CSTR 槽において、ほとんど成長しなかった粒子は、次の CSTR 槽に入る前に消滅してしまうと仮定して計算した。

4. 実験結果と考察

KM ミキサー 1 台につき金原料を 2mM になるように投入し、図 1 はミキサーの接続数と粒子径・変動係数の関係とシミュレーションにおける計算結果を示す。実験結果より、ミキサーの接続数の増加とともに、変動係数をほぼ一定に保ったまま、粒子径を増加させることができた。また、シミュレーションの計算結果は実験結果とほぼあっていることが分かる。実験結果よりマイクロミキサーの数を増加するか、あるいは精緻混合を併用することでより広範囲に粒子径を変化させることができると考えられる。

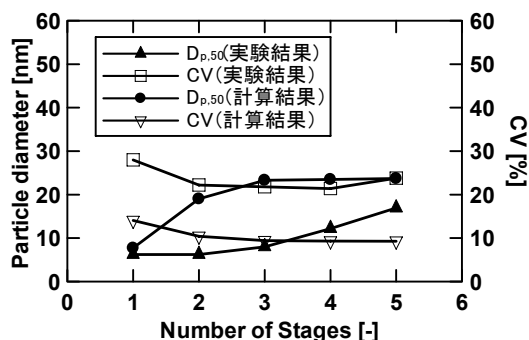


図 1. 実験結果とシミュレーションによる計算結果

5. シミュレーションによる考察

シミュレーションにおいて、5 台の KM ミキサーに投入する原料を均等分割ではなく、様々に変化させたときの計算結果を図 2 に示す。これより、さらに大きく粒子径を変化させ、制御するためには、今回実験した原料の均等分割投入より、始めは原料を少なくし、その後は原料を少しずつ増やしていくことが効果的であると考えられる。

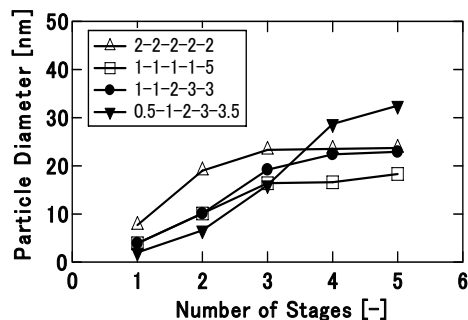


図 2. 原料の投入方法による違い (最終濃度はいずれも 10 mM)

6. 結言

マイクロリアクターを複数接続し、原料を逐次投入することで、核生成と粒子成長を分離することで、より広範囲に粒子径を制御することができることを示した。

*TEL: 075-383-2668 E-mail: kaz@cheme.kyoto-u.ac.jp