

平成 21 年度研究助成報告（兼、終了報告）

研究題名	マイクロ波援用粒子機械化学的処理装置の開発と応用
研究期間	平成 19 年 4 月 01 日～平成 22 年 3 月 31 日
研究機関・所属 研究者名	広島大学大学院 工学研究科 物質化学システム専攻 福井 国博

1. 平成 21 年度研究成果の概要

平成 20 年度に開発したマイクロ波加熱流動層型粉体反応器を用いて、レアメタルの回収実験を行った。即ち、還元剤としてマイクロ波吸収性の極めて高いカーボンを用いて、窒素を供給することで、酸化インジウム粉体を流動化させることで、インジウムの回収を試みた。その結果、約 10 分間のマイクロ波照射で 3 酸化インジウムの約 40%をインジウム塊として回収することに成功した。しかし、照射時間を長くしても、これ以上の回収率を得ることはできなかった。そこで、Maxwell 方程式に基づき、本装置内のマイクロ波電界強度分布・電力密度分布の 2 次元軸対称シミュレーションを行った。その結果、粉体を流動化させた状態でも、試料内では、不均一な温度分布が発生することが明らかとなった。

この知見に基づき、硝酸金属塩水溶液をマイクロ波脱硝することで金属酸化物を創製する研究を行った。その結果、乾式の場合と同様に、中心部付近では高温が得られ、金属酸化物が得られるが、反応器外周部では未反応の中間生成物が残存することが明らかとなった。さらに、硝酸金属塩水溶液から金属酸化物の創製が成功するか否かは、反応過程で生成される中間生成物及び金属酸化物のマイクロ波吸収性、酸化物の生成温度と中間生成物の生成温度の差異が重要であることを明らかにした。

さらに、湿式条件下での粒子生成については、フライアッシュからゼオライトを水熱合成する際にマイクロ波加熱すると同時にボールミル粉砕によるメカノケミカル処理を行った結果、収率を 20%向上させることに成功した。これは、水熱処理によって生成するゼオライトがフライアッシュ表面に析出することで、フライアッシュからのシリケートイオン、アルミネートイオンの溶出阻害を防ぐことができたためであると考えられる。また、酸化チタン、酸化バリウム、水酸化ナトリウム水溶液からのチタン酸バリウム粒子創製においても、同様に、マイクロ波加熱援用粉砕処理を行った結果、反応時間を 30%短縮することに成功した。

## 2. 助成期間内での研究成果の概要

マイクロ波加熱と既存の粉体処理装置とを組み合わせることで、処理性能を向上させることが可能であることを数種類の粉体処理装置について確認した。以下に、その成果の概要をまとめる。

### ・ マイクロ波加熱流動層型反応器による ITO 粒子の迅速創製

酸化インジウム粉体と酸化スズ粉体を原料として、これを流動化させながらマイクロ波加熱することで、従来加熱の 1/30 の反応時間で、電導率の高い均一な ITO 粉体を合成することに成功した。また、流動化させる際の粉体層充填率には最適値が存在し、約 0.13 が最適であることを見いだした。なお、本成果は、「酸化インジウムの製造方法 (仮称)」として 5 月中に特許出願する予定である。

### ・ マイクロ波加熱による金属硝酸塩水溶液からの金属酸化物の創製

金属硝酸塩をマイクロ波脱硝することで金属酸化物粒子を創製することで、生成する金属酸化物粒子が微細化することを明らかにした。また、粒子径を制御するには、中間生成物から酸化物が生成する酸化反応付近の昇温速度を制御すれば良いことが分かった。また、マイクロ波脱硝では生成が困難であった酸化ニッケルについて、コンタミネーションなく、これを成功させる方法を新規に提案した。また、従来加熱とマイクロ波加熱を併用することでエネルギー効率を向上できることを示した。なお、本成果は、「金属酸化物粒子の製造方法」, 特願 2009-39447, 2009. 2. 23、「ハイブリッド加熱法による金属酸化物粒子の製造方法」, 特願 2009-241776, 2009. 10. 20 として特許出願した。

### ・ マイクロ波援用粉砕処理による粒子生成

フライアッシュからゼオライトを水熱合成する際にマイクロ波加熱すると同時にボールミル粉砕によるメカノケミカル処理を行った結果、収率を 20%向上させることに成功した。これは、水熱処理によって生成するゼオライトがフライアッシュ表面に析出することで、フライアッシュからのシリケートイオン、アルミネートイオンの溶出阻害を防ぐことができたためであると考えられる。また、酸化チタン、酸化バリウム、水酸化ナトリウム水溶液からのチタン酸バリウム粒子創製においても、同様に、マイクロ波加熱援用粉砕処理を行った結果、反応時間を 30%短縮することに成功した。本結果については、今後も検討すべき点が多々残っており、引続き、検討を行う予定としている。

### 3. 研究発表

本助成に関し、平成 21 年度に発表したものを下記に示す。

(研究発表)

粉体工学会春期研究発表会 (2009.5)

「流動層マイクロ波加熱反応器による ITO 粒子の合成」

粉体工学会秋期研究発表会 (2009.10)

「MOX 燃料製造のためのマイクロ波脱硝法に関する基礎的研究」

「マイクロ波脱硝法による金属硝酸塩からの酸化物粒子の合成」

粉体工業展 (2009.10)

「粉体材料の性能向上と時間短縮にはマイクロ波の利用を」

粉体に関する討論会 (2009.12)

「粉体層充填率がマイクロ波加熱法による ITO 粒子合成に与える影響」

化学工学会年会 (2010.3)

「マイクロ波加熱固相反応による ITO 粒子の合成に与える充填率の影響」

JST Core to Core Program 第 36 回先進微粒子ハンドリング科学セミナー (2010.2)

「Fundamental Study on the Microwave Heating Denitration Process for the Production of MOX Fuel」

(論文)

Fukui, K., K. Kanayama, M. Katoh, T. Yamamoto and H. Yoshida : "Synthesis of indium tin oxide powder by solid-phase reaction with microwave heating," Advanced Powder Technology, 20(5), 488-492 (2009)