

氏名(本籍)	くさ か やす ゆき 日下靖之(東京都)
学位の種類	博士(環境学)
学位記番号	博甲第5761号
学位授与年月日	平成23年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	生命環境科学研究科
学位論文題目	マイクロ流体技術を用いた単一円柱コレクターに対するコロイド沈着現象の解析

主査	筑波大学教授	農学博士	足立泰久
副査	筑波大学教授	工学博士	中嶋光敏
副査	筑波大学准教授	工学博士	中谷清治
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	野村暢彦

## 論文の内容の要旨

土壌や地下水、また河川、湖沼などの水環境中には粘土や金属酸化物、バクテリアなどの微生物、など様々なコロイド粒子(以下コロイド)が遍在する。これらのコロイドは病原性細菌の拡散(公衆衛生)、栄養塩や汚染物質の拡散(コロイド促進型輸送)など環境問題に関与することが指摘され、しばしば顕在化している。コロイド輸送現象については、その律速要因である沈着現象を物理化学的・流体力学的視点から評価することは全体像を把握する上で重要である。

コロイド沈着現象に関する実験的検討は主にカラム試験を用いて行われてきた。カラム試験は実環境を模倣した条件で検討が可能であるという利点を有するが、カラム内で生じる様々な沈着メカニズムに関する詳細な情報を得ることは難しい。この点を踏まえ、本論文では単一コレクターに限定した実験システムを新規に構築し、コレクターに対するコロイド沈着を直接観察することで沈着過程と形成される沈着体構造を解析した。実験にはソフトリソグラフィーを用いたマイクロ流体技術を導入し、単一の円柱コレクターを直線流路中央に有するPDMS製沈着セルを作製した(第1章)。第2章ではコロイド沈着理論に関するレビューを行い、第3章ではマイクロ流体技術のコロイド科学への応用に関する既往研究を整理している。

第4章では実験結果とその条件を模したシミュレーションを検討している。実験ではPDMSコレクターに供給されるコロイド懸濁液の粒径または流量を増加させると、沈着体はコレクター表面に一様な分布から突起状の構造へと変化することが判明した。

得られた構造の変化は、コレクター上流部のよどみ点から粒子半径だけ上流に位置する点の流速を代表値として定義されるペクレ数により整理された。すなわちブラウン拡散が卓越する場合、沈着体は下流側のよどみ点を除いて一様な分布をもって成長するのに対してインターセプションが支配的な場合は突起構造になり、さらに高レイノルズ数流れにおいては下流側のコレクターのよどみ点周辺で沈着体の成長がみられた。これは剥離渦によって生じた粒子フラックスによるものであり、その結果はシミュレーションで再現された。また、直接顕微鏡観察で得られた映像から沈着体は破壊を受けながら成長し、その破壊パターンはその形状に依存しておおきく異なることが明らかになった。一様な分布を有する沈着体は沈着体外表面での浸食が支

配的であるのに対し、突起状の沈着体は一定程度の成長後、まとめて分裂する現象が観察された。

第5章では様々な条件で沈着体の形成と破壊過程を解析した。解析は、沈着体の投影面積の経時変化を画像から算出し、その増加速度を沈着速度の指標とした。この指標を用いて流量条件とイオン強度の関係を評価し、低流量では臨界凝集濃度と臨界沈着濃度が一致すること、高流量では後者が前者を上回ることが確認された。また、沈着体の破壊強度のイオン強度依存性では、沈着体はより高いイオン強度で高い破壊強度を示し、みかけの臨界沈着濃度は沈着と破壊の両者に支配されることが示された。さらに実環境を模倣するモデルとして異符号荷電を有するコロイド懸濁液の混合系について、さまざまな粒径に対して評価を行った。その結果、同一粒径を有する正負帯電粒子混合系では、混合比1:1の場合にもっとも沈着速度が高く、その値は高イオン強度条件の急速沈着領域における沈着速度の約半分であること、さらに沈着速度は混合比に対し2次関数的に依存することがわかり、これは衝突確率から整理することができた。一方で相対的に小さい粒径の正荷電粒子が共存する場合、最適な混合比で沈着速度は塩添加系の急速沈着領域の場合に比べ約3倍高い沈着速度を示した。この結果は負荷電粒子表面にパッチ状に吸着した正荷電粒子によって促進されたものと考えられ、同様な系における凝集実験で観察される促進効果と同じ傾向を示した。以上より正負荷電混合系の沈着速度は混合する粒子径によって沈着速度を最大化する機構が異なることがわかる。すなわち同じ大きさの正負荷電コロイド混合系では沈着サイトを交互に埋める、いわゆる layer-by-layer 様式で沈着体が成長する場合に最も速く沈着体が成長するのに対し、相対的に小さい正帯電コロイドは負荷電コロイド表面に吸着し、パッチ状のコロイド表面を形成することによって沈着体の成長が促進された。

## 審査の結果の要旨

コレクターへのコロイド粒子の沈着は砂ろ過や地下水環境中でのコロイド輸送現象等における基本的因子である。コロイド沈着現象の実験的解析はこれまで主にカラム試験を用いて行われ、カラム流出液から得られる破過曲線と、充填剤やコロイドの表面特性および溶液条件などの基本的パラメータをつき合わせることで知見が整理されてきた。しかし充填カラム内部で生じる様々な沈着様式はその重ね合わせとして破過曲線に反映され、それぞれの沈着様式の沈着速度に対する寄与およびその結果生じる沈着体の構造に関する詳細な情報を相互に関連づけて評価することは難しかった。本論文は、上述したようなカラム試験で明らかにすることが難しい課題に着目し、コロイド沈着現象をミクロスケールで解明することを目的としている。ソフトリソグラフィーを用いて単一円柱コレクターを有するマイクロ流路を作製することによって、コロイド沈着現象をその場観察する手法を新規に開発し、沈着のダイナミクスと沈着体構造に焦点を当てた実験およびシミュレーションによる解析を行った。PDMS コレクターに対するポリスチレンラテックス粒子の沈着をモデル実験系として採用し、流量条件、化学的条件を変化させることによって形成される沈着体構造が大きく変化することを実験的に明らかにしている。本論文で新たに示された、沈着体構造の形成過程および破壊挙動をそのダイナミクスと併せて明らかにした一連の手法は、従来法では直接的に究明することが難しかったミクロスケールの沈着挙動を解明する有効な手段を提供するもので、今後も大きな展開が予測できる。

論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（環境学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。