

氏名	杉本 卓也		
学位の種類	博 士 ( 農 学 )		
学位記番号	博 甲 第 8 5 8 4 号		
学位授与年月日	平成 3 0 年 3 月 2 3 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	Charging and Aggregation Behaviors of Model Colloidal Particles - Effects of Flow on Aggregation Rates and Hetero-aggregation with Charge Reversal - (モデルコロイド粒子の帯電および凝集挙動 -凝集速度への流れの効果と電荷反転を伴うヘテロ凝集-)		
主査	筑波大学准教授	博士 (農学)	小林 幹佳
副査	筑波大学教授	農学博士	足立 泰久
副査	筑波大学助教	博士 (農学)	山下 祐司
副査	筑波大学助教	博士 (生物工学)	小川 和義

## 論 文 の 要 旨

水中に懸濁した微細なコロイド粒子の帯電ならびに凝集挙動を理解することは、水処理における固液分離や、土壌や水環境中での物質動態を把握する上で、基本的かつ重要な課題である。本研究は、特に、流動場における凝集、吸着性イオンによる粒子の荷電中和と反転、荷電反転をともなう異種粒子同士のヘテロ凝集といった、実環境中でより重要となる現象に焦点を当てたものである。微細粒子の帯電量測定および凝集実験を相補的に用いながら、ミクロな粒子間相互作用を考慮した理論モデルの有効性が検討されている。論文は全体で8章から構成される。

第1章で著者は、本研究の主題となる微粒子の帯電と凝集挙動に関連して、粒子間の物理化学的相互作用、ブラウン運動や流れによる凝集速度、異種粒子同士のヘテロ凝集について、既往研究を整理し、本論文の目的と位置付けならびに構成を述べている。

第2章および第3章で著者は、本研究において実験結果の解析に必要な粒子間相互作用とこれを考慮した凝集速度の理論的な枠組みをまとめている。

第4章で著者は、負に帯電したサルフェイトラテックス粒子について、電気泳動測定とその理論解析により帯電量を評価し、回転二重円筒内に発生させたクエット流中における同粒子の凝集速度の実測値を流体力学的軌道理論に基づいて解析している。その際、対象となる実験系に該当する高表面電位系にも適用可能な静電力の表式を導入し、剪断流中の凝集速度への塩濃度および剪断速度依存性について、実験と理論の定量的な比較をはじめて実施している。解析の結果、塩濃度の増加にともない静電斥力が遮蔽されて凝集速度が増加し、ある臨界濃度を境として一定となること、またこの濃度が剪断速度とともに増加することを、理論的に表現できることを示している。

第5章で著者は、pHの増加にともない表面の負電荷量を増加させるカルボキシルラテックス粒子が、疎水性有機イオンであるテトラフェニルフォスフォニウムイオン（以下TPP）の粒子表面への吸着によって荷電反転することを電気泳動測定により示している。さらに測定結果の吸着モデルによる解析から、TPPの非静電的な特異吸着のエネルギーが表面電荷量に依存しうることを提案している。

第6章で著者は、陰イオン種の異なる種々の電解質溶液中において、負に帯電したサルフェイトラテックス粒子と正に帯電したアミジンラテックス粒子の電気泳動測定の結果をまとめ、動的光散乱法によるこれら粒子のブラウン凝集速度の測定値を報告している。さらに異種粒子間のヘテロ凝集速度の測定結果から、アミジンラテックス粒子同士のホモ凝集の速度よりも、一方の粒子の電荷反転をとまなうヘテロ凝集の速度が低下するという結果を見出している。加えて、1価のリン酸溶液中では、正に帯電した粒子が電荷反転を起こす濃度以下、すなわち、異符号に帯電した粒子間においてもヘテロ凝集速度が遅くなるという特異な挙動を明らかにしている。この特異な挙動が、表面での適切な境界条件を考慮した理論モデルにより表現できることも確認している。

第7章で著者は、攪拌乱流中の異径粒子間のヘテロ凝集速度の粒径比依存性が、既往研究において近似的に使用されている単純剪断流中での理論式よりも、軸対称伸長流中の移流拡散方程式に基づく計算結果により近いことを見出している。微粒子の凝集を支配するマイクロスケールの乱流が、バッチラーが指摘したように単純剪断流よりもむしろ伸長流により近似しうることを主張している。

第8章で著者は、本論文全体を総括し、実測値との比較から、ブラウン運動ならびに流動場における凝集理論の適用性を整理し、今後の発展の方向性を提案している。

## 審 査 の 要 旨

本論文では、凝集速度に与える流れの効果、静電力、ならびに吸着性イオンによる電荷反転の影響を、種々のモデルコロイド粒子を用いた測定と理論解析を通して明らかにしている。流れ場中の凝集速度への静電力の影響について、より厳密な表式を用いた定量的な解析をはじめて実施している。さらに、吸着性イオンの存在下では異符号に帯電した粒子間に電氣的斥力による凝集の阻害が発生するという特異な挙動や、乱流中の異径粒子間の凝集挙動が伸長流における挙動として扱いうることを理論解析に基づき説明している。本論文を通して確立された解析手法や、得られた実測値および解析結果は、環境中でのヘテロな凝集機構を考察する上で重要であり、学術的に高く評価できる。

平成30年1月29日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士（農学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。