

氏名	OKTAVIANI		
学位の種類	博 士 ( 生物資源工学 )		
学位記番号	博 甲 第 8865 号		
学位授与年月日	平成 30年 11月 30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	Effects of Mixing Intensity on the Kinetics of Flocculation Using Model Colloid with Polyelectrolyte (モデルコロイドと高分子電解質を用いた凝集速度における攪拌強度の影響)		
主査	筑波大学教授	農学博士	足立 泰久
副査	筑波大学准教授	博士 (農学)	小林 幹佳
副査	筑波大学准教授	工学博士	梶山 幹夫
副査	筑波大学助教	博士 (生物工学)	小川 和義

## 論 文 の 要 旨

水処理などの液相系の分離操作では、しばしば分離の対象となる懸濁液に高分子凝集剤が添加され凝集の促進が図られる。特に濃厚な懸濁液に対し一定量の高分子電解質を加えて攪拌を行うと、高密度で大きなペレット状のフロックが形成されることが報告されており、実用上注目すべき現象である。一方、高分子凝集剤の作用機構を解析する方法に、二股フラスコの転倒攪拌を用いる方法が開発されてきたが、この方法でペレット凝集を再現しようとしても、大きなペレットが出来ないことが報告されていた。著者は、この疑問の理由が、高分子凝集剤が懸濁液に投入された際の水理学的な攪拌強度の違いによって生じていると考え、ペレット形成の差異が生じる弱い攪拌条件を対象に、攪拌強度の強弱によってコロイド粒子の凝集速度がどのように変化するかを体系的に調べる実験を球状のラテックスコロイドのモデル分散系に行い、実験結果を、粒子間の衝突過程から導いた凝集速度に基づいて解析した。また、その結果に基づいて高分子電解質を用いたコロイドの凝集過程に対する攪拌強度の影響を解析した。

第1章において、著者は、球状コロイド粒子を対象として展開したコロイド粒子の凝集速度論を、古典的なブラウン凝集、せん断凝集、流体力学的相互作用を組み込んだ衝突効率の補正、乱流凝集、高分子電解質凝集剤を添加した系での補正へと展開してきた研究史を整理し、流れ場、特に乱流場の凝集ではブラウン運動とせん断流れ場の拮抗するような弱い攪拌領域の解析が不十分であること、数値シミュレーションで予測されているブラウン運動と流れ場の共存によって凝集速度が増加するいわゆるカップリング作用の存在は、これまで乱流凝集では報告されていないことを述べた。また、高分子電解質を添加した系の実験において、攪拌強度の強弱をパラメータにした実験が報告されていないことを指摘し、高分子電解質による凝集の場合は、高分子鎖の膨潤状態が変化するイオン強度を変数としてコロイド粒子の凝集速度の攪拌強度依存性を調べる必要性と意義を指摘した。

第2章において、著者は、十分量の塩を添加して実現される急速凝集条件下にあるコロイド分

散系の乱流凝集速度を、容量30mlの邪魔板付きの容器にパドル状の4枚羽根の回転翼を装着した攪拌装置内において測定し、その結果を流体力学的相互作用を組み込んだ乱流場の凝集速度論に基づいて解析した。実験は、5種類の異なる径を持つ球状コロイド粒子に対し、凝集速度を回転翼の回転速度の関数としてコールターカウンターを用いて測定することによって行われた。凝集速度は単位質量当たりのエネルギー消散率  $\varepsilon_d$  によって決まる粒子間衝突頻度の関数であるが、特に解析は  $\varepsilon_d$  に着目して行われた。すなわち測定された凝集速度から暫定的にブラウン凝集速度による寄与を差し引き、流れ場による凝集速度とし、その結果に対し水中のポリスチレンラテックスのハマカー定数として  $A=1.0 \times 10^{-21} \text{J}$  を仮定し、凝集速度式を介して得られる  $\varepsilon_d$  を求め、回転速度  $Nr$  の関数として表し、トルクメーターの測定から得られる単位質量当たりのエネルギー投入率  $\varepsilon_i$  と比較した。その結果、高いレイノルズ数領域において、 $\varepsilon_d$  は  $\varepsilon_i$  に対し、一定の割合で低い値を示すのに対し、回転数の小さな低いレイノルズ数領域では、 $\varepsilon_d$  の値は  $\varepsilon_i$  を凌駕する傾向があることを明らかにし、ブラウン運動と流れによる運動のカップリングによる予測と定性的に一致することを確認した。一方、理論的考察から凝集速度から求められる  $\varepsilon_d$  の値は場の不均一性を考慮することにより、平均として小さくなることを明らかにした。

さらに著者は、第3章において高分子電解質の吸着によって誘発される凝集の初期過程に注目し、過剰量の高分子添加によって生じる凝集初期速度の増加現象は、弱い攪拌強度の場合は大きく揺らぐこと、および、ある一定の攪拌強度以上になると安定化すること、またその傾向はイオン強度によらず出現することなどを明らかにした。

以上の結果を踏まえ、著者は、第4章において、攪拌強度の評価を凝集速度の測定から行う方法の有効性を確認すべく、ペレットが生じる攪拌槽の乱流強度  $\varepsilon_d$  を凝集速度で事前に調べ、それと同等の  $\varepsilon_d$  をもつ転倒攪拌を調整すれば、その条件においてペレットが生じることを示した。このことより、比較的弱い攪拌条件下においても、凝集速度に基づいて攪拌条件を定量化できることを確認し、またペレット形成における水理学的機構の重要性を実証した。

## 審 査 の 要 旨

高分子電解質によるコロイド懸濁液の凝集は、水処理などの代表的固液分離操作であり、多くの研究がなされている。一般にコロイドの凝集は不可逆過程であり、イオン強度、pHなどの物理化学的因子と場の水理学的条件によって決定されるものの、高分子電解質が関与する場合の解析は特に後者に対し不十分であった。著者は、凝集操作を行う場の水理学的条件を評価する方法として、基準となるコロイド粒子の急速凝集速度を用いる方法に着目し、ブロック形態が大きく変化する弱い攪拌条件を対象に、コロイドの粒子径と攪拌強度を変数として体系的な実験を行った。実験データの解析の結果、弱い攪拌領域においては、流れ場とブラウン運動のカップリングと攪拌強度の不均一性が凝集速度に寄与することが示唆されるものの、凝集速度から攪拌強度を評価する方法の妥当性が示された。また、高分子電解質による凝集速度は弱い攪拌強度領域において流れ場強度に依存することが明らかになった。これまで弱い攪拌場における凝集に対し、本研究のような体系的な実験を報告した例は殆どなく、今後の研究の方向性に展望を開いている。

平成30年10月2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（生物資源工学）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。