

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料  
〔平成31年度（2019年度）研究進捗評価用〕

平成28年度採択分  
平成31年3月20日現在

フロクキュレーション解析に基づく環境界面工学の展開  
Environmental Interface Engineering Based on Dynamic  
Analysis of Colloidal Flocculation

課題番号：16H06382

足立 泰久 (ADACHI, YASUHISA)

筑波大学・生命環境系・教授



研究の概要

土壌、水環境などに関わるコロイドが不均一な界面特性を持つナノ粒子と多様な有機化合物から構成され、乱流条件下にあることを想定して導かれるモデルコロイドのフロクキュレーションの動力学的結果に基づいて、環境界面工学の体系を構築し、様々なケースにおいてその有効性を実証する。さらにその活動を通して世界をリードする拠点基盤とネットワークを構築する。

研究分野：農学

キーワード：不均一コロイド、凝集、沈降、界面動電現象、生物資源

1. 研究開始当初の背景

粘土、有機物など土壌や水中に遍在する微細なコロイド粒子画分はその表面に各種栄養塩、ミネラル、さらには化学毒性が問題になる汚染物質を吸着濃縮する性質を有している。特にこの傾向は、ダイオキシン類などの疎水性の化合物や放射性核種を含む重金属類など化学種の溶解性が低い時に著しい。一方、微粒子から構成される分散系は熱力学的に不安定であり、粒子同士は互いに凝集しフロクを作易い。従って微粒子そのものより、その凝集体であるフロクの方が運動の単位として重要である。従って、土壌や水環境における化学物質の動態を理解し、汚染対策、生態系の保全や資源管理などを考えて行く上では、種々の化学条件、水理学的条件に対応したフロクキュレーションの動力学に関する体系的知識を整備していくことが有効である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、環境中のコロイドが不均一な界面の状態を伴うナノ粒子と多様な溶解有機物から構成され、乱流の影響を受ける条件下にあることを想定して行われるモデルコロイドによるフロクキュレーションの動力学的解析を深化させ、その結果に基づいて、環境界面工学の体系を構築し展開することにある。また、一連の活動を通して筑波大学に発足したリサーチユニット生物資源コロイド工学の活動を強化し、研究拠点機能の

充実を図る。

3. 研究の方法

①有機分子吸着を伴う流れ場におけるモデルコロイドの凝集過程のダイナミクス、②多孔質複合体の界面動電現象、③フロク群の乱流沈降とレオロジー、の3課題を研究コアとして設定し、凝集速度論とコロイド安定性に関するDLVO理論、および高分子吸着のダイナミクスの枠組に則した理論ならびに実験面での深化を行い、その成果を④濃厚コロイドの沈降分離操作、⑤微生物コロニーにおける凝集と界面動電現象、⑥フィールドにおける水質構造の理解に繋げる形で、土壌汚染、生態系の循環、海洋のマリンスノーの機能など環境面の界面科学の工学展開を行う。

4. これまでの成果

主に研究コア(上記①～③)について解析を進めた。コロイドの材料としてDLVO理論に照らし合わせたコロイド分散安定性の解析を行う目的から球状ラテックス粒子、ヘマタイト粒子、シリカ粒子、また繊維状のセルロースナノファイバーを選定し、また、凝集に関与する有機物としては、コロイド粒子への吸着の緩和過程に関する因子を明らかにする観点から、凝集剤として利用されている高い分子量の高分子電解質、界面活性剤、タンパク、腐植物質を選定し、流れ場の強度因子も合わせて、複数種の吸着分子の相互作用がどの様に

して、コロイドの凝集作用に関わるのかについて、より原理的な速度論に基づいて解析した。得られた主な成果としては、ブラウン運動及び乱流の流れ場の作用において特に両者が拮抗する領域では、両者のカップリング効果により粒子間の衝突頻度が増すことによって凝集速度が増加すること、流れ場の強度が一定以上になると高分子電解質の衝突時の吸着緩和の過程が凝集速度としては検出できなくこと、正負に帯電した2種類の高分子電解質が関与する系では2種類の高分子電解質の会合によって、コロイドの凝集が極端に阻害されること、しかし、片方の高分子の緩和時間を遅くするとある条件を境にその効果が逆転し凝集促進が出現することなどを明らかにした。

また、DLVO 理論の有効性については、球状のラテックスやシリカに加え、土壌中の繊維状粒子を想定し、セルロースナノファイバーの凝集分散安定性を解析し、粒子接近の位置関係が並行になる場合とクロスして接近する場合とで1 pK モデルに基づく両者のポテンシャル計算を行い、実験データとの比較を行った。その結果、粒子の接近はクロスして接近する方がエネルギー的に有利であることが示された。すなわち線維状の粒子は球状粒子よりも容易に凝集し、分散系が安定と判断される領域においても凝集体（土など）の強度保持に重要な役割を果たしていることを明らかにした。さらに、副イオンや多価イオンの吸着と安定度比の観点から DLVO 理論の適合性を検討し、土壌粒子のハマカー定数を高い精度で決定した。

一方、実用的な濾過、沈降、圧密、の場面を想定し、ナトリウム型モンモリロナイトを用いて凝集性のスラリーを形成し、準希薄状態を対象に沈降分離過程の解析を行い、初期の沈降開始までのゲル保持時間の凝集条件依存性から、マクロな分離過程をマイクロなコロイド粒子間の相互作用の観点から明らかにし、引き続くゲルの崩壊過程がフィードフォワードで乱れが増強するいわゆる乱流現象であることを定量化した。

## 5. 今後の計画

研究コアの成果をさらに深化させると同時に、応用展開となる④～⑤についても研究を推進する。特に、微生物を対象にした生体界面化学の問題と①～③の成果の関係について、バイオミメティクスの観点なども取り入れより具体的な検討を行う。

④については、下水処理の活性汚泥法に適用されている微生物造粒法について、無機コロイドのペレット凝集の観点から解析する。⑤については微生物凝集を界面動電現象と高分子電解質による凝集制御の視点から解析する。また、⑥については、地下水汚染に

おけるコロイド担体輸送、ストークス径に着目した濁水の輸送と沈降の問題、化学物質ポンプとしてのマリンスノーにおける凝集と沈降機構を解析する。

これら得られる成果を総括することによって、フロキュレーション解析に基づく環境工学の展開の方法論が明らかにされる。また、一連の活動を踏まえ、筑波大学リサーチユニット生物資源コロイド工学の活動を強化し、起動力のある国際的ネットワークを構築する。

## 6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

- (1) Adachi Yasuhisa, “Aspects of colloid and interface in the engineering science of soil and water placing an emphasis on the flocculation behavior of model particles” Paddy and Water Environment, (2019) 査読有
- (2) Oktaviani, Adachi Yasuhisa, “Effect of mixing intensity on flocculation kinetics of polystyrene latex particles with high-charge density polyelectrolyte at various ionic strengths” Colloid and Polymer Science/ 296(12)/ pp.1945-1951, (2018) 査読有
- (3) Voon Huey Lim, Yuji Yamashita, Yen Thi Hai Doan, Yasuhisa Adachi, “Inhibition of Cationic Polymer-Induced Colloid Flocculation by Polyacrylic Acid” Water/10(9)/p.1215, (2018) 査読有
- (4) Ming-Yu Wu, Yasuhisa Adachi, “Duration of initial flocculation stage in the sedimentation of sodium montmorillonite suspension in the semi-dilute regime” Colloid and Polymer Science, 296 巻, 71-76 (2018) 査読有
- (5) SATO Yusuke; KUSAKA Yasuyuki, Kobayashi Motoyoshi, “Charging and aggregation behavior of cellulose nanofiber in aqueous solution” Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids, 33(44), 12660-12669 (2017) 査読有
- (6) Adachi Yasuhisa, “Sedimentation and electrophoresis of a porous floc and a colloidal particle coated with polyelectrolytes”, Current Opinion in Colloid & Interface Science, .24,72-78 (2016) 査読有

## 7. ホームページ等

[http://www.eng.bres.tsukuba.ac.jp/colloid/JSPP\\_kaken\\_S.html](http://www.eng.bres.tsukuba.ac.jp/colloid/JSPP_kaken_S.html)

<http://www.eng.bres.tsukuba.ac.jp/colloid/research-unit/>

（本研究に関連する、セミナーなどのアウトリーチ活動を掲載）