

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	DLVO理論を用いた液相中での粒子付着に関する基礎的研究
Title(English)	
著者(和文)	佐谷野顕生
Author(English)	Akio Sayano
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12030号, 授与年月日:2021年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:鶴見 敬章,中島 章,生駒 俊之,磯部 敏宏,保科 拓也
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12030号, Conferred date:2021/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	材料工学	専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（ 工学 ）
学生氏名： Student's Name	佐谷野 顕生		指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	鶴見敬章	教授
			指導教員（副）： Academic Supervisor (sub)		

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本研究は、液相中における粒子付着を高い精度でコントロールするために、DLVO 理論の重要な要素であるゼータ電位、及びハマカー定数、さらには DLVO 理論自身について、これらの精度を高めるための基本的な検討を行った。

ゼータ電位に関しては、ステンレス鋼 SUS304L 基材、及び石英ガラス基材上に化学溶液法により Al₂O₃ 皮膜を形成し、流動電位法を用いて Al₂O₃ 皮膜のゼータ電位を測定し、基材の材質がゼータ電位に与える影響について検討した。その結果、SUS304L 基材上及び石英ガラス基材上に形成した Al₂O₃ 皮膜の初期のゼータ電位は、いずれも膜厚 0.2～1.3 μm の範囲で 40～50 mV でありほぼ同等であった。ただし、石英ガラス基材上に形成した Al₂O₃ 皮膜については、測定回数の増加とともにゼータ電位が低減する現象が顕著であった。N₂ ガス吸着法により Al₂O₃ 皮膜の細孔分布を測定した結果、細孔径約 2 nm の連続細孔が存在することがわかった。また、Al₂O₃ 皮膜を深さ方向に D-SIMS（ダイナミック-二次イオン質量分析法）により定量分析した結果、ゼータ電位測定試験前に比較してゼータ電位測定試験後に K 及び Cl の両方が増加していることがわかった。これらのことから、測定回数の増加とともにゼータ電位が低減する現象は、電解質溶液が細孔内に徐々に浸透し石英ガラス基材まで達したため、基材のゼータ電位の影響が現れたためと推定した。ゼータ電位は物質表面の性質であり、通常は物質内部やコーティングの場合は基材によって影響を受けることはないと考えられる。しかし、今回の結果は、化学溶液法のような細孔を有するコーティング層の場合は、内部（今回の場合は基材）の影響を受ける可能性があるということを示している。このことは、新しい知見と思われる。

ハマカー定数に関しては、平均粒径 150 nm のヘマタイト粒子を分散させた水溶液スラリーについて、動的光散乱法により塩濃度と粒子凝集速度の関係を調べ、この結果から臨界凝集塩濃度（CCC）を求めた。さらに、DLVO 理論を用いてヘマタイト粒子の水中におけるハマカー定数を算出した。その結果、未処理の粒子で pH6 場合が 4.2 ×10⁻²¹ J、未処理の粒子で pH10 の場合が 7.8×10⁻²⁰ J、また、粒子を 350℃、1 時間熱処理をしたもので、pH10 の場合が 1.9×10⁻¹⁹ J であり、pH 環境、及び粒子の熱処理によりハマカー定数の値が大きく変化した。ファンデアワールス相互作用は、粒子表面数 nm 層が支配的であること、また、この層は、厳密には組成や構造が内部とまったく同じではないこと、さらに、この層は外部からの刺激に対しセンシティブであり環境の影響を受けやすいことにより、上記のようにハマカー定数が変化したものと推察した。ハマカー定数は材料固有の定数であって、測定環境や製造プロセスによって変化しないと考えられている。今回はこれに対して、ハマカー定数は測定環境や製造プロセスによって変化するという結論であり、これまで言われているものと異なるものである。実際にハマカー定数が変化するかどうかについては、今後さらに多角的な検証が必要と思われるが、もし、このようなことが起こるとすれば、ハマカー定数を制御することによって、粒子の付着をコントロールすることが可能と考えられる。このことは、これまで言われてきていない新しい粒子付着の制御方法につながる。

DLVO 理論に関しては、安定度比-塩濃度の関係において実験値と理論値に大きな食い違いが生じるという DLVO 理論の問題について検討した。未処理のヘマタイト粒子の場合は、測定環境が pH6 であっても pH10 であっても、粒子半径を実際の 74 nm から 13 nm に変更することで、また 350℃、1h 熱処理のヘマタイト粒子の場合は、粒子半径を 74 nm から 11 nm に変更することで、安定度比と塩濃度の Log-Log プロットの傾きを理論値と実験値とで一致させることができることがわかった。次に、それぞれのヘマタイト粒子表面凸部の曲率半径を AFM（原子間力顕微鏡）により実測した。その結果、未処理のヘマタイト粒子の凸部曲率半径は平均で 15 nm であり、変更後の粒径と概ね一致した。また、350℃、1h 熱処理したヘマタイト粒子の場合の凸部曲率半径は平均で約 9 nm であり、この場合も変更後の粒径と概ね一致した。従って、実際に粒子間相互作用を支配しているのは、粒子半径ではなく粒子表面のナノオーダの凸部曲率半径である可能性が示唆された。この考え方については、今後、さまざまな角度からの検証が必要と思われる。

以上、ゼータ電位、ハマカー定数、DLVO 理論に関し、それぞれについて、値または理論式の精度を高めるための検討を行い、その考え方を提案した。これらは、いまだ仮説でありさらなる検証が必要であるが、いずれも液相中の粒子付着の評価をより精度の高いものとする可能性があり、エネルギー、半導体、バイオ等のさまざまな分野における諸問題を解決するために貢献することが期待される。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：	材料工学	専攻
Department of		
学生氏名：	佐谷野 顕生	
Student's Name		

申請学位 (専攻分野)：	博士	(工学)
Academic Degree Requested	Doctor of	
指導教員 (主)：	鶴見敬章	教授
Academic Supervisor(main)		
指導教員 (副)：		
Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)
Thesis Summary (approx.300 English Words)

In this study, in order to control particle deposition in the liquid phase with high accuracy, we investigated a basic study on the zeta potential and Hamaker constant, which are important elements of DLVO theory, and DLVO theory itself. For zeta potential, Al_2O_3 films were coated on SUS304L stainless steel and fused silica substrates using chemical solution deposition method, and the continuous pores with a diameter of approximately 2 nm were observed in the films. Initially, the measured zeta potential of the Al_2O_3 films was same for both substrates. However, the zeta potential of the Al_2O_3 film on the fused silica substrate decreased significantly with repeated measurements. It was considered that electrolyte solution penetrated these pores and reached the fused silica substrate. For Hamaker constant, the values of the Hamaker constant of three type hematite particles measured by CCC (Critical Coagulation Concentration), were 4.2×10^{-21} , 7.8×10^{-20} , and 1.9×10^{-19} J for untreated particles at pH = 6, untreated particles at pH = 10, and heat-treated particles (350 ° C for 1 hour) at pH = 10, respectively. The Hamaker constant changed significantly with the pH environment and heat treatment of particles. Regarding DLVO theory, we examined the problem of DLVO theory that there is a large discrepancy between the experimental value and the theoretical value in the salt concentration-stability ratio relationship. it is suggested that it is not the particle radius but the nano-order convex radius of curvature of the particle surface that actually controls the particle-particle interaction.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).