研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 元 年 6 月 1 9 日現在

機関番号: 12102

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2015~2018

課題番号: 15H04563

研究課題名(和文)土壌・水環境技術の高度化に資する農業工学とコロイド化学の融合域における課題の解明

研究課題名(英文)Studies on colloid science and agricultural engineering toward the development in soil and water engineering

研究代表者

小林 幹佳(Kobayashi, Motoyoshi)

筑波大学・生命環境系・准教授

研究者番号:20400179

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文):持続的な食料生産基盤と農村環境を保全する上では,多様な水質・水理条件における土壌コロイドの界面化学特性と凝集分散特性を解析し農業工学的な対策技術に展開することが鍵になる.本研究では,多種のコロイドの凝集分散と帯電に及ぼすイオン性物質の共存効果を実験と理論解析により系統的に明らかにした.さらに,非外形で表現では、または、日本の名は、1000年の1 たこうに、すらいでは、すらないでは、があることが、高分子複合体の施用が降雨下における土壌侵食を抑制すること、土壌中のコロイド輸送が水分および土壌マトリクスとコロイドの帯電挙動に影響されること、天然有機物凝集体の強度が数から数十nNにあることをはじめて明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義 水食による土壌の微細なコロイド画分の流亡に伴う土壌劣化や栄養塩・汚染物質を保持した粘土・底泥の再移動など,土壌コロイドの輸送が関与する農業・環境上の諸課題の重要性が再認識されている.本研究で得られたコロイドの凝集分散と帯電に及ぼす多種多様なイオンの指環の共存効果の評価や非球形粒子についての帯電と凝集の解析,高分子複合体による降雨下における土壌侵食の抑制,天然有機物凝集体の流れ場における破壊に対する抵抗力の推定は他に類を見ず,学術的に新規な情報を提供している.これらの知見を土壌・環境コロイドの輸送の制御技術に活かすことで,水環境や土壌保全技術をより確かで有効なものに展開させ得る.

研究成果の概要(英文): Aggregation and charging of environmental colloids play an important role when considering the conservation of soil and water. To provide better insights into the properties of environmental colloids and their integration to agricultural and environmental engineering, we have investigated the charging and aggregation of various colloids under different chemical and physical conditions. The inhibiting effect of polymer complex on erosion and colloid transport in soil have been examined. Notable outcomes are the systematic experiments and analysis on the aggregation and charging of non-spherical particles, the charging behavior of model particle with various ionic substances, the evaluation of aggregate strength of natural organic matters for the first time, and the inhibitory effect of polymer complex on soil erosion under simulated rain fall, because these results have never been reported. The outcomes can be useful to develop sophisticated soil and water conservation technology.

研究分野: 農業農村工学

キーワード: コロイド 土壌物理 水環境

様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1.研究開始当初の背景

水食による土壌の微細なコロイド画分の流亡に伴う土壌劣化や栄養塩・汚染物質を保持した 粘土・底泥の再移動など,土壌コロイドの輸送が関与する農業・環境上の諸課題の重要性が再 認識されている.持続可能な食料生産基盤と農村環境を保全する観点から,より高度に土壌コ ロイドの輸送を予測し制御する技術が要求される.コロイドの輸送挙動はコロイドの帯電挙動 と凝集分散に多大な影響を受ける.したがって,多様な水質・水理条件における土壌コロイド の界面化学特性と凝集分散特性を解析し,農業工学的な対策技術に展開することが,農業・環 境の基盤である土壌・水環境の保全技術を高度化する上で鍵になると考えられる.

2.研究の目的

本研究では,土壌・水環境の保全対策技術を高度化する上で求められる,コロイド界面化学と農業工学の融合領域にある学術的課題の解明を目指した.なかでも,土壌・水環境中のように複雑で多様なコロイド種とイオン種,有機物からなるヘテロ系におけるゼータ電位の実体解明,高分子・界面化学の利用による土壌・水環境保全技術の確認と評価,ヘテロな構成要素を持つコロイド分散系であることと流れの作用を受ける状況を踏まえた系における凝集分散理論の高度化に必要な実験データの蓄積と理論の再検討,土壌中のコロイド輸送の理解に必要なデータ取得と解析手法の構築,に主眼をおいた.

3.研究の方法

コロイドとして,実際の土壌コロイドと粘土コロイドに加えて,理論モデルの定量的な評価を実施する観点から,形状・表面電荷の異なる種々のモデルコロイド粒子を採用した.これらコロイドの帯電状況を電位差滴定や電気泳動の測定と実験結果の理論解析に基づいて評価した.また,凝集分散あるいは沈着挙動の実験では,分散凝集の評価に顕微鏡観察と光散乱の方法を併用し,流れ場,ブラウン拡散場,コレクター充填カラムの輸送場を設定して凝集分散実験を行った.さらに人工降雨装置と小型土槽を用いて土壌侵食実験を行うことで,高分子複合体の侵食抑制効果を評価した.得られたデータを可能な限り水力学と静電気学,物質輸送を考慮した理論モデルにより解析した.

4.研究成果

本研究で得られた主要な成果のうち,現段階で,下記の通り査読付き学術雑誌に15件の論文が公表されている.

まず、合成高分子複合体をマサ土に施用したところ、強度の高い人工降雨条件下においても、土壌侵食に対してすぐれた抑制効果を示すことが確認された.また、天然物由来の巨大分子を共存電解質濃度が低い場合に使用しても、土壌保全効果を発揮し得ることがわかった.これらは降雨による土壌コロイドの分散によるクラスト形成が高分子の凝集作用により抑制されたためと考えられた.さらに水分不飽和砂中のコロイド輸送における、水分と pH , 塩濃度の影響を実験により検討した.その結果、土壌の水分に加えて、土壌マトリクスとコロイド粒子の帯電学動がコロイド輸送に大きな影響を与えることが示された.以上の結果は、土壌溶液のような複数イオンの存在下における複雑な土壌コロイドの帯電特性やそこでの分散と凝集・付着の機構の理解を深めることが、土壌・水環境の保全を高度化する上で重要であることを改めて浮き彫りにした.

本研究の中核をなすモデルコロイドを使用した一連の帯電ならびに凝集分散挙動に関する研究として,まず,球形のモデル粒子の電気泳動に及ぼす多様なイオン種の効果を実験ならびに理論モデルによる解析によって検討した.その結果,荷電反転を引き起こす多価イオンの効果は主に加水分解種の形成によること,疎水性のイオンの吸着がコロイド粒子表面の電荷密度に加えて疎水性の変化により決まることが示された.また,有機ナノコロイドの吸着がおよぼすサブミクロン無機コロイドの帯電と凝集への解析において,平均的な量であるゼータ電位に加えて,吸着質の吸着媒表面における被覆率と不均一性に着目することの重要性を指摘することができた.くわえて,ナノファイバー状の有機コロイドの帯電と凝集については,電気二重層の緩和効果が電気泳動移動度の結果の解釈に必要不可欠であることを明らかにした.さらに流れ場における同種粒子のホモ凝集と異種粒子間のヘテロ凝集の速度を測定し,軌道解析による理論解析を行った.その結果,定性的には理論と実験は一致するものの,定量的には不一致が残ることが指摘された.このような報告は他に見当たらず学術的に重要な知見が得られたものと判断する.

また、代表的な天然有機物であり、環境ナノコロイドとも言うべき腐植物質が形成するフロック(凝集体)の流れ場による破壊に対する抵抗力を、独自に設定した収縮流場を用いることにより、はじめて定量的な数値として推定することができた。さらに、破壊抵抗力が腐植物質の疎水性の程度に依存することを示唆する結果が得られた。この抵抗力は流れ場において存在し得る凝集体の最大径を予測する上で重要となり、凝集体径は輸送単位としての凝集体の挙動を決定する。したがって、この成果は今後、天然有機物の輸送が関与する汚染物質や栄養塩の運命予測、さらには炭素循環の評価の面から重要な示唆を与えるものと考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 15件)

以下の雑誌論文はすべて査読有.

- 1. Sugimoto, Takuya; Nishiya, Manami; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charge reversal of sulfate latex particles in the presence of lanthanum ion, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, in press.
- 2. Hakim, Azizul; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Aggregation and charge reversal of humic substances in the presence of hydrophobic monovalent counter-ions: effect of hydrophobicity of humic substances, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 540 1-10 2018.
- 3. Kawasaki, Shogo; <u>Kobayashi, Motoyoshi,</u> Affirmation of the effect of pH on shake-gel and shear thickening of a mixed suspension of polyethylene oxide and silica nanoparticles, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 537 236-242 2018.
- 4. HUANG, Yi; Yamaguchi, Atsushi; PHAM, Tien Duc; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charging and aggregation behavior of silica particles in the presence of lysozymes, Colloid and Polymer Science 296(1) 145-155 2018.
- 5. <u>小林, 幹佳</u>; 杉本, 卓也,コロイド粒子の電気泳動と凝集速度:環境分野への展開に向けて, LS アドバンス光散乱ジャーナル 16 20-31 2017.
- 6. SATO, Yusuke; KUSAKA, Yasuyuki; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charging and aggregation behavior of cellulose nanofiber in aqueous solution, Langmuir: the ACS journal of surfaces and colloids 33(44) 12660-12669 2017.
- 7. SUGIMOTO, Takuya; Nishiya, Manami; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Electrophoretic mobility of carboxyl latex particles: effects of hydrophobic monovalent counter-ions, Colloid and Polymer Science 295(12) 2405-2411 201.
- 8. HAKIM, Azizul; NISHIYA, Manami; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charge Reversal of Sulfate Latex Induced by Hydrophobic Counter-ion: Effects of Surface Charge Density, Colloid and Polymer Science 294(10) 1671-1678 2016.
- 9. <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>; YUKI, Shunzo; ADACHI, Yasuhisa, Effect of anionic surfactants on the stability ratio and electrophoretic mobility of colloidal hematite particles, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 510(SI) 190-197 2016.
- 10. FUJITA, Yosuke; <u>Kobayashi, Motoyoshi,</u> Transport of colloidal silica in unsaturated sand: Effect of charging properties of sand and silica particles, Chemosphere 154 179-186 2016.
- 11. NISHIYA, Manami; SUGIMOTO, Takuya; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Electrophoretic mobility of carboxyl latex particles in the mixed solution of 1:1 and 2:1 electrolytes or 1:1 and 3:1 electrolytes: experiments and modeling, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 504 219-227 2016.
- 12. YAMAGUCHI, Atsushi; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Quantitative Evaluation of Shift of Slipping Plane and Counterion Binding to Lysozyme by Electrophoresis Method, Colloid and Polymer Science 294(6) 1019-1026 2016.
- 13. Takuya, Sugimoto; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>; Yasuhisa, Adachi, Orthokinetic aggregation of charged colloidal particles in the presence of repulsive double layer force: A trajectory analysis with the solution of non-linear Poisson-Boltzmann equation, Colloids and Surfaces A 483 321-327 2015.
- 14. Takuya, Sugimoto; Yuji, Watanabe; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Kinetics of turbulent hetero-coagulation of oppositely charged colloidal particles, Theoretical and Applied Mechanics Japan 63(0) 133-145, 2015
- 15. Kenta, YAMADA; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>; <u>Haruyuki, FUJIMAKI</u>, Inhibitory Effect of Polyion Complex on Soil Erosion under Simulated Rainfall, Irrigation, Drainage, Reclamation Eng. J. 83(2) IV_1-IV_2, 2015.

[学会発表](計 37件)

- 1. Hakim, Azizul; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Strength of Humic Substances Aggregates: Effect of Cationic Surfactant and Divalent, 日本腐植物質学会第 34 回講演会 2018.
- 2. 島袋 智尋; 小林,幹佳;藤巻 晴行,ポリイオンコンプレックスの帯電・凝集分散特性と 土壌保全効果,平成30年度 農業農村工学会大会講演会2018.
- 3. <u>藤巻 晴行</u>; アムラク, マメドフ; <u>小林, 幹佳</u>, Structure Stability of Longterm Cultivated Soils from Guder Watershed, Ethiopia: Effect of Soil Amendments, 平成30 年度 農業農村工学会大会講演会 2018.
- 4. 早川 員也;小林,幹佳,水中のコロイド粒子の底面近傍での拡散係数,平成30年度農業農村工学会大会講演会2018.

- 5. TAKESHITA, Chihiro; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Specific monovalent anion effects on aggregation of allophane nanoparticles, 32nd European Colloid and Interface Society Conference 2018.
- 6. <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>; SUGIMOTO, Takuya; NISHIYA, Manami, Electrophoretic mobility of latex particles: Effect of trivalent ions, 32nd European Colloid and Interface Society Conference 2018.
- 7. YAMAGUCHI, Atsushi; HUANG, Yi; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Experimental and Theoretical Study on Lysozyme Adsorption on Colloidal Silica, 32nd European Colloid and Interface Society Conference 2018.
- 8. SUGIMOTO, Takuya; Lattuada, Marco; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Turbulent hetero-aggregation rates of unequal-sized colloidal particles: Effect of size ratios, 32nd European Colloid and Interface Society Conference 2018.
- 9. <u>Kobayashi, Motoyoshi;</u> Sato, Yusuke; Kusaka, Yasuyuki, An analysis of charging and aggregation of cellulose nanofibers in aqueous solutions as thin cylinders, International Conference of Layers, Films and Membranes for Green, Environmental and Biomedical Sciences 2018.
- 10. Hakim, Azizul; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charge reversal and aggregation of humic substances induced by hydrophobic monovalent counter-ions, The 31st Australian colloid and surface science student conference 2018.
- 11. <u>小林幹佳</u>, コロイド粒子の凝集速度:実験と理論解析, 第 7 回 CSJ 化学フェスタ 2017 2017.
- 12. <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>; Nishiya, Manami; Sugimoto, Takuya; Hakim, Azizul, Charge reversal of latex particles: effect of trivalent and hydrophobic ions, 12th International Symposium on Electrokinetics 2017.
- 13. Sugimoto, Takuya; Cao Tianchi, Szilagyi Istvan, Trefalt Gregor, Borkovec Michal; Kobayashi, Motoyoshi, Homo- and Hetero-aggregation stability between Oppositely-Charged Particles with Charge Reversal, 12th International Symposium on Electrokinetics 2017.
- 14. Yamaguchi, Atsushi; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, The maximum adsorption mass of lysozymes to silica particles: The role of electrostatic interaction, 12th International Symposium on Electrokinetics 2017.
- 15. SATO, Yusuke; Kusaka, Yasuyuki; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Charging and aggregation of cellulose nanofiber: experiments and modeling, 12th International Symposium on Electrokinetics 2017.
- 16. 増田浩太郎; 小林幹佳, アロフェンフロックに対するナノ粒子測定技術の適用, 平成 29 年度 農業農村工学会 大会講演会 2017
- 17. 吸着性アニオンの存在下における異符号帯電コロイドのホ モおよびヘテロ凝集, 杉本卓也; CAO, Tianchi; SZILAGYI, Istvan; T REFALT, Gregor; BORKOVEC, Michal; 小林幹佳, 平成 29 年度 農業農村工学会 大会講演会 2017
- 18. シリカ粒子へのリゾチームの最大吸着量に静電的な力が与える影響,山口敦史; 小林幹佳, 平成29年度 農業農村工学会 大会講演会 2017.
- 19. 黄逸;山口敦史; 小林幹佳, リゾチームがシリカに吸着することによる電荷不均一が凝集学動に与える影響とその理論解析, 平成 29 年度 農業農村工学会 大会講演会 2017.
- 20. 佐藤雄介;日下靖之;小林幹佳,セルロースナノファイバーの帯電および凝集挙動,平成29年度 農業農村工学会 大会講演会2017.
- 21. SUGIMOTO, Takuya; Tianchi Cao; Istvan Szilagyi; Grgor Trefalt; Michal Borkovec; Kobayashi, Motoyoshi, Transport and deposition of colloidal silica in unsaturated Toyoura sand, The 7th Asian Conference on Colloid & Interface Science 2017.
- 22. NISHIYA, Manami; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Electrophoretic mobility of carboxyl latex particles: Effects of counter-ions on charge reversal, International Symposium, 67th Divisional Meeting on Colloid & Interface Chemistry 2016.
- 23. AMAGUCHI, Atsushi; <u>Kobayashi, Motoyoshi</u>, Yield stress of the suspension of silica particles with lysozymes, YThe 30th Conference of the European Colloid Interface Society (ECIS2016) 2016.
- 24. <u>Kobayashi, Motoyoshi;</u> FUJITA, Yosuke, Initial deposition rate of colloidal silica in unsaturated sand column, The 30th Conference of the European Colloid Interface Society (ECIS2016) 2016.
- 25. 西谷, 麻菜美; 杉本, 卓也; 小林, 幹佳, モデルコロイド粒子の電気泳動移動度: 疎水性イオンの効果, 平成 28 年度 農業農村工学会 大会講演会 2016.
- 26. 藤田, 洋輔; 小林, 幹佳, 豊浦砂中のコロイド輸送 : 不飽和条件下での初期 及び後期沈 着挙動, 平成 28 年度 農業農村工学会 大会講演会 2016.
- 27. HUANG, Yi; 山口, 敦史; 小林, 幹佳, リゾチーム存在下におけるシリカの帯電および凝集学動, 平成 28 年度 農業農村工学会 大会講演会 2016.

- 28. 山口、敦史、小林、幹佳、シリカ・リゾチーム混合懸濁液の降伏値:ゼータ電位および吸 着量の影響、平成 28 年度 農業農村工学会 大会講演会 2016.
- 29. YAMAGUCHI, Atsushi; Kobayashi, Motoyoshi, Yield stress of mixture of silica and Ivsozyme: effect of zeta potential and adsorption mass. The XVIIth International Congress on Rheology (ICR2016) 2016.
- 30. FUJITA, Yosuke; Kobayashi, Motoyoshi, Colloid Transport in Sand Column: Expanding Colloid Filtration Theory into Water Unsaturated Condition. Asian Conference on Colloid and Interface Science 2015.
- 31. SUGIMOTO, Takuya; Kobayashi, Motoyoshi, Turbulent Aggregation Rates between Oppositely-Charged Particles: Insensitivity to Charge Density, The 29th Conference of the European Colloid and Interface Society 2015.
- 32. Kobayashi, Motoyoshi; YUKI, Shunzo; Adachi, Yasuhisa, Effect of anionic surfactants on the stability ratio and electrophoretic mobility of colloidal hematite particles, The 29th Conference of the European Colloid and Interface Society 2015.
- 33. 藤田, 洋輔: 小林, 幹佳, 豊浦砂中のコロイド輸送: 不飽和条件下での初期沈着挙動, 平 成 27 年度農業農村工学会大会講演会 2015.
- 34. 杉本, 卓也; 小林, 幹佳, Couette 流中における帯電コロイド粒子の凝集速度: 静電斥力 と剪断速度の影響, 平成 27 年度農業農村工学会大会講演会 2015年.
- 35. 山口, 敦史; 小林, 幹佳, タンパク質の吸着によるコロイド粒子のゼータ電位の変化. 平成 27 年度農業農村工学会大会講演会 2015.
- 36. 山田, 健太; 小林, 幹佳; 藤巻, 晴行, 土壌コロイドの界面化学特性が表面流出に及ぼ す影響, 平成 27 年度農業農村工学会大会講演会 2015.
- 37. 西谷, 麻菜美; 杉本, 卓也; 小林, 幹佳, モデルコロイド粒子の電気泳動移動度の測定と 解析:2 価対イオンによる影響, 平成 27 年度農業農村工学会大会講演会 2015.

[図書](計 1 件)

1. 小林幹佳(分担),土壌と界面電気現象 基礎から土壌汚染対策まで ,63-110,博友社, 2017.

[産業財産権]

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

https://researchmap.jp/7000001012/

https://trios.tsukuba.ac.jp/researcher/0000003047

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 藤巻晴行

ローマ字氏名: Haruyuki Fujimaki

所属研究機関名: 鳥取大学

部局名: 乾燥地研究センター

職名: 教授

研究者番号(8桁):90323253

(2)研究協力者

研究協力者氏名:足立泰久

ローマ字氏名: Yasuhisa Adachi

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。