様　式　C－19、F－19－1、Z－19　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　６年　６月１４日現在

機関番号：１２１０２
研究種目：若手研究
研究期間：2021～2023
課題番号：２１Ｋ１４９３９

研究課題名（和文）マイクロ流路を活用した間隙構造中におけるコロイドの目詰まり・破壊現象の解明

研究課題名（英文）Elucidating clogging and breakage of colloids in porous microchannel

研究代表者
杉本　卓也（Sugimoto, Takuya）

筑波大学・生命環境系・助教

研究者番号：７０８９９５０９

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,600,000円

研究成果の概要（和文）：土壌や水環境中のコロイドによる目詰まりや破壊現象は，土の透水性や受食性の変化を介して化学物質動態や移動現象を左右する。本研究では，目詰まりや破壊現象の解明に資するために，①マイクロ流路を活用した目詰まりの形成－破壊過程の評価系の構築と実験データの取得，②コロイドの帯電・凝集特性評価，③マクロな沈着速度を評価するためのカラム輸送実験とその解析を相補的に用いながら，系統的に明らかにした。さらに，目詰まりと本質的に類似した実験系である濃厚なコロイド懸濁液に関するシミュレーションを用いた解析を行い，実験データと良好な一致を得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
土壌中で起きているミクロとマクロなスケールの現象を接続し，体系的な理解と理論を深化させていくために，マイクロ流路を活用した直接観察系の構築と測定，帯電量評価の評価と凝集解析，マクロなカラム実験と解析を行い，学術的に新規な成果を得た。得られた成果は環境中のマイクロプラスチック動態，土中の微生物の動態や目詰まりなど，より発展的な課題への応用の基礎となる。

研究成果の概要（英文）：Clogging and breakdown phenomena caused by colloids in soil and aquatic environments can affect the dynamics and transport of chemicals through changes in soil permeability and erodibility. This study systematically elucidated these phenomena by: (1) constructing an experimental system for the formation and breakdown of clogs using microfluidic channels and acquiring experimental data, (2) assessing the charging and aggregation characteristics of colloids, and (3) conducting column transport experiments to evaluate macroscopic deposition rates and analyzing the results. Furthermore, simulations related to dense colloidal suspensions, which are experimentally similar to clogging, were employed to analyze the system, successfully achieving good agreement with the experimental data.

研究分野：環境コロイド界面工学

キーワード：沈着　コロイド　輸送現象　流動現象　界面電気現象　凝集　破壊

※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、研究者個人に帰属します。

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９（共通）

１．研究開始当初の背景

（1）粘土鉱物や有機物などの微細なコロイド粒子画分は，その表面に重金属や栄養塩，有機系化合物といった汚染物質を吸着し，それらとともに環境中を移動する。コロイドの輸送単位とそれに付随する移動現象は，コロイド粒子同士が衝突・付着（凝集）し，その集合体を形成していく凝集過程や，コロイド粒子が土壌マトリクスに捕捉される沈着過程に強く依存する（図 1）．すなわち，凝集体サイズの増大にともなう輸送特性（拡散，沈降）の変化や，沈着による間隙構造（目詰まり）の変化がコロイドの移動性を左右する．同時に，コロイド粒子の移動とそれに続く間隙内への集積による目詰まりは，土壌の透水性の低下を引き起こし，浸透できなかった降雨や灌漑時の余剰水が表面流となり，水食による土壌流亡を引き起こす原因となる（図 1）．

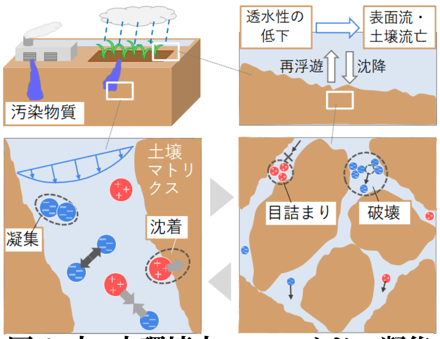

図１ 土・水環境中のコロイドの凝集や輸送動態と透水性の低下および表面流・土壌流亡の発生の関係．

（2）しかしながら，通常コロイドの輸送研究に用いられるカラム実験では，目詰まりに起因する土壌コロイド画分のカラムスケールでのマクロな輸送特性や透水性の変化は評価可能な一方で，間隙スケールでのコロイドの移動を測定することが難しい．そのため，間隙内へのコロイドの集積による目詰まり層の形成やその破壊ダイナミクスを支配する素過程は不明な点が多く，水質・水理学的条件の変化に応答するコロイド粒子の帯電・凝集特性との関係を明確化し，体系的に明らかにしていくことが重要である．

２．研究の目的

（1）本研究では，土壌や水環境中のコロイドによる目詰まりや破壊現象の解明に資するために，近年発展してきたマイクロ流体技術を導入し，目詰まりの形成－破壊過程の評価系の構築と実験データの取得を軸としつつ，これまで培ってきたコロイドの帯電・凝集特性評価，マクロな沈着速度を評価するためのカラム輸送実験とそれらの理論解析を相補的に用いながら，これらを体系化していくことを主目的とした。

（2）さらに，目詰まりと本質的に類似した実験系である濃厚コロイド懸濁液に関するシミュレーションを用いたレオロジー解析をおこない，目詰まりや破壊現象の理論解析へのフィードバックを志向しながら，その有効性を確認することを目指した。

３．研究の方法

上述した目的を実現するために，先行研究およびこれまでの代表者（杉本）の研究で培ってきた知見とノウハウを最大限活用できるように，研究期間内で達成を目指す主な研究項目として相互に関連した次の 4 項目を設定し，その推進を図った。

（1）目詰まりの形成－破壊過程の評価系の構築と実験データの取得
（2）コロイド粒子の帯電量評価および凝集特性評価とその理論解析
（3）マクロなカラム輸送実験による沈着特性評価とその解析
（4）濃厚コロイド懸濁液に関するシミュレーションによるレオロジー解析

以上の研究項目に渡って共通する概念であるコロイド粒子界面による相互作用と帯電量特性の評価とその制御が，概ねこれらの研究項目で得られた結果を説明する上で有効であることを示した。

４．研究成果

（1）目詰まりの形成－破壊過程の評価系の構築と実験データの取得

マイクロ流路を用いた顕微鏡直接観察系として，微細な流路内に円柱を配置した流路をフォトリソグラフィにより作製した鋳型を用いて，PDMS 樹脂により作製した（図 2）。ここに一定の流動条件で凝集しやすいコロイド懸濁液をシリンジポンプにより注入し，顕微鏡下において円柱へのコロイド粒子の沈着による沈着複合体の形成過程と流動条件の変化によるその破壊過程を直接観察することに成功した。形成した沈着複合体の大きさを画像解析により抽出し，流動条

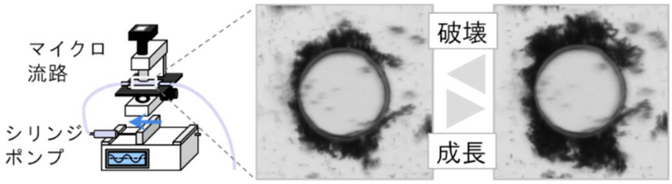

図 2 マイクロ流路中の沈着複合体の顕微鏡直接観察系と流動条件に応じた成長と破壊のスナップショット．

件の変化による破壊に伴う沈着複合体のサイズ変化を定量化した。これにより，沈着複合体の形成と破壊条件を抜き出した。現在，単一粒子のサイズや流動条件の影響を詳細に検討中であり，近く公表予定である。

（2）コロイド粒子の帯電量評価および凝集特性評価とその理論解析

これまで流れ場中の凝集研究で広く用いられてきたせん断流モデルではなく，本研究で初めて適用した乱流の統計的性質とブラウン運動を考慮したランダム変動流モデルの方がイオン種や価数によらず実験値とよく適合することを示した。特に，流れの無い場合よりも流れが有る場合の臨界凝集濃度(CCC)の方が高くなることを表現することに成功した（図 3）。これは凝集が起こる最小渦スケールの流れをいかに近似するかという長年見落とされていた問題を提起する実験的証拠である。これまで広く用いられてきたせん断流モデルでも，流れを強くすると CCC が増加するという計算結果が得られる。この結果は流れの有無における CCC の差異と定性的に一致することから，せん断流モデルで実験結果が説明できると考えられていた。しかしながら我々は，同じ帯電量ではせん断流モデルから予測される CCC は，流れのない場合の CCC の計算値よりも小さくなるという実験との不整合を見出した。この問題に対して，これまで見逃されていたランダム変動流モデルを用いることで，同じ帯電量でも流れのある場合の方が，CCC が大きくなるという結果が得られることを示し，流れの有無における CCC の実測値と理論値の不整合を解決した。

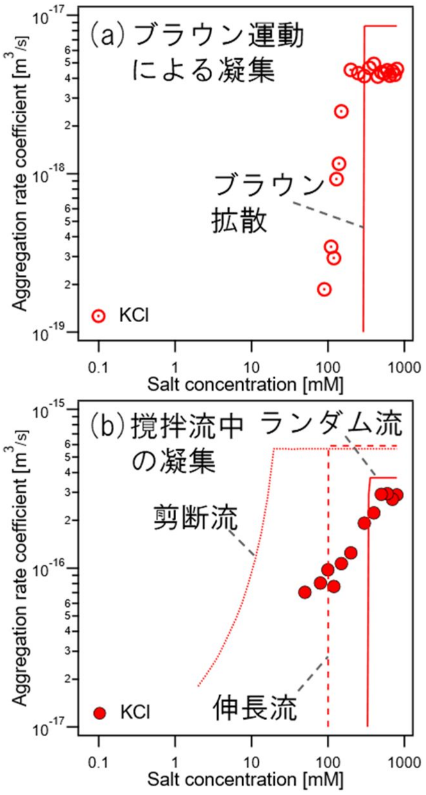

図 3 流れの有無における凝集速度の実験値と理論値の定量的な比較. 既存の流れ場中の凝集理論では説明できなかった流れによる臨界凝集濃度の増加をランダム変動流モデルによって説明可能にした.

（3）マクロなカラム輸送実験による沈着特性評価とその解析

沈着されるコレクター粒子表面の電荷不均一性を考慮した流体力学的な軌道解析に基づく沈着シミュレーション結果と充填豊浦砂にマイクロプラスチック粒子のモデルであるポリスチレンラテックス粒子を注入したときの沈着速度の実測値との比較を行い，不均一性の考慮によりシミュレーション結果の実験値に対する予測性が向上するという結果が得られた. 特に，平均的には負に帯電している表面に対して，これまで反対符号の電荷の不均一性を導入していたが，電荷のない中性の表面を不均一な部分として導入するだけでも予測性がかなり向上することを示した。これは反対符号の電荷の大きさをパラメータとして導入する必要がないという優位性がある。既にこの内容を投稿論文としてとりまとめ，共同研究者であるユタ大学の Johnson 教授と議論を重ねながら，投稿作業を進めている.

加えて，形状の効果を検討するために，非球形棒状ナノ粒子であるセルロースナノクリスタル粒子を用いたカラム輸送実験もおこなった。ブロッキングを考慮した移流分散モデルで解析することで，実験データから沈着速度を抽出することに成功した。この成果について既に学会で発表し，今後は院生と協力してデータを蓄積し，国際学会での発表および論文として投稿予定である。

（4）濃厚コロイド懸濁液に関するシミュレーションによるレオロジー解析

中国温州科学院・瀬戸亮平教授との国際共同研究として，濃厚なコロイド懸濁液の非ニュートン流動特性に粒子の電気的斥力が与える影響について，流体相互作用と離散要素法を組み合わせたシミュレーションによる解析をおこない，実験結果と比較検討をおこなった。その結果，流動曲線の塩濃度依存性，濃厚系でみられるせん断速度の増加にともなう粘度上昇が開始する臨界せん断応力が小さくなるという実験データが再現でき，良好な定量的な一致を確認することができた。今後は，大学院生および共同研究者と共著で学術論文として投稿する準備を進めている。

以上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 10 件の論文が公表されている。期間内に公表できなかったものも随時公表していく。したがって，研究期間内に充分な成果が得られたものと判断できる。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計11件（うち査読付論文　10件／うち国際共著　0件／うちオープンアクセス　0件）

１．著者名 Li Maolin、Sugimoto Takuya、Yamashita Yuji、Kobayashi Motoyoshi	４．巻 649
２．論文標題 Aggregation and charging of natural allophane particles in the presence of oxyanions	５．発行年 2022年
３．雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	６．最初と最後の頁 129413～129413
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.colsurfa.2022.129413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Kobayashi Motoyoshi、Sato Yusuke、Sugimoto Takuya	４．巻 300
２．論文標題 Effect of pH and electrolyte concentration on sol-gel state of semi-dilute aqueous cellulose nanofiber suspension: an interpretation based on angle-dependent DLVO theory	５．発行年 2022年
３．雑誌名 Colloid and Polymer Science	６．最初と最後の頁 953～960
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00396-022-04999-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Geonzon Lester C.、Kobayashi Motoyoshi、Sugimoto Takuya、Adachi Yasuhisa	４．巻 300
２．論文標題 Interaction between silica particles with poly(ethylene oxide) studied using an optical tweezer: insignificant effect of poly(ethylene oxide) on long-range double layer interaction	５．発行年 2022年
３．雑誌名 Colloid and Polymer Science	６．最初と最後の頁 1179～1186
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00396-022-05020-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Geonzon Lester C.、Kobayashi Motoyoshi、Sugimoto Takuya、Adachi Yasuhisa	４．巻 630
２．論文標題 Adsorption kinetics of polyacrylamide-based polyelectrolyte onto a single silica particle studied using microfluidics and optical tweezers	５．発行年 2023年
３．雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	６．最初と最後の頁 846～854
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcis.2022.10.067	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Kobayashi Motoyoshi、Sugimoto Takuya、Sato Shunsuke、Ishibashi Ryouichi	4．巻 3
2．論文標題 Climbing Colloidal Suspension	5．発行年 2023年
3．雑誌名 Liquids	6．最初と最後の頁 40～47
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/liquids3010004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Gao Jiahui、Sugimoto Takuya、Kobayashi Motoyoshi	4．巻 638
2．論文標題 Effects of ionic valence on aggregation kinetics of colloidal particles with and without a mixing flow	5．発行年 2023年
3．雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6．最初と最後の頁 733～742
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcis.2023.02.019	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Feng Lili、Duan Lifan、Zhuang Yiran、Sugimoto Takuya、Adachi Yasuhisa	4．巻 655
2．論文標題 The comparison of adsorption kinetics of polystyrene particles with two polyelectrolytes near the isoelectric points	5．発行年 2022年
3．雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6．最初と最後の頁 130297～130297
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.colsurfa.2022.130297	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 杉本卓也、小林幹佳	4．巻 23
2．論文標題 コロイド分散系の基礎	5．発行年 2023年
3．雑誌名 オレオサイエンス	6．最初と最後の頁 153～158
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5650/oleoscience.23.153	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Sugimoto Takuya、Hamamoto Shoichiro、Nishimura Taku	4．巻 242
2．論文標題 Inhibited nanobubble transport in a saturated porous medium: Effects of deposited colloidal particles	5．発行年 2021年
3．雑誌名 Journal of Contaminant Hydrology	6．最初と最後の頁 103854～103854
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jconhyd.2021.103854	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Sugimoto Takuya、Adachi Yasuhisa、Kobayashi Motoyoshi	4．巻 632
2．論文標題 Heteroaggregation rate coefficients between oppositely charged particles in a mixing flow: Effect of surface charge density and salt concentration	5．発行年 2022年
3．雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6．最初と最後の頁 127795～127795
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.colsurfa.2021.127795	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

1．著者名 Geonzon Lester C.、Kobayashi Motoyoshi、Sugimoto Takuya、Adachi Yasuhisa	4．巻 642
2．論文標題 Study on the kinetics of adsorption of poly(ethylene oxide) onto a silica particle using optical tweezers and microfluidics	5．発行年 2022年
3．雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6．最初と最後の頁 128691～128691
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.colsurfa.2022.128691	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

〔学会発表〕　計12件（うち招待講演　2件／うち国際学会　2件）

1．発表者名 杉本卓也，高家輝，小林幹佳
2．発表標題 臨界凝集濃度への流れの効果
3．学会等名 第73回コロイドおよび界面化学討論会
4．発表年 2022年

1．発表者名 Li Maolin, Sugimoto Takuya, Yamashita Yuji, Kobayashi Motoyoshi
2．発表標題 The effect of various oxyanions on the charging and aggregation of natural allophane particles
3．学会等名 第73回コロイドおよび界面化学討論会
4．発表年 2022年

1．発表者名 Tian Zhengjian, Sugimoto Takuya, Kobayashi Motoyoshi
2．発表標題 Effect of lysozyme on the aggregation of oxidized carbon nanohorn (CNHox) in aqueous solution
3．学会等名 第73回コロイドおよび界面化学討論会
4．発表年 2022年

1．発表者名 Gao Jiahui, Sugimoto Takuya, Kobayashi Motoyoshi
2．発表標題 Effects of counter-ionic valence on aggregation kinetics of colloidal particles with mixing flow
3．学会等名 第73回コロイドおよび界面化学討論会
4．発表年 2022年

1．発表者名 小林 幹佳，杉本 卓也，佐藤 駿介，石橋 諒一
2．発表標題 シリカと水の濃厚分散系の挙動について
3．学会等名 第73回コロイドおよび界面化学討論会
4．発表年 2022年

１．発表者名
石橋 諒一，杉本 卓也，小林 幹佳

２．発表標題
高濃度シリカ分散液のシェアシックニング

３．学会等名
第73回コロイドおよび界面化学討論会

４．発表年
2022年

１．発表者名
張 夕瑜，杉本 卓也，小林 幹佳

２．発表標題
準希薄なセルロースナノクリスタル懸濁液のゾル-ゲル状態

３．学会等名
第73回コロイドおよび界面化学討論会

４．発表年
2022年

１．発表者名
杉本卓也，佐藤 駿介，石橋 諒一，小林 幹佳

２．発表標題
振動下における濃厚懸濁液のクライミング現象

３．学会等名
第10回ソフトマター研究会

４．発表年
2022年

１．発表者名
石橋 諒一，杉本卓也，小林 幹佳

２．発表標題
濃厚なシリカ-PEG懸濁液のシェアシックニング

３．学会等名
第10回ソフトマター研究会

４．発表年
2022年

1．発表者名 Sugimoto Takuya
2．発表標題 Effect of flow on critical coagulation concentration of colloidal microplastic particles
3．学会等名 International Congress on Pure & Applied Chemistry Kota Kinabalu（招待講演）（国際学会）
4．発表年 2022年

1．発表者名 杉本 卓也
2．発表標題 コロイドの臨界凝集濃度：同種・異種粒子と流れの効果
3．学会等名 東京理科大学ウォーターフロンティア研究センター(WaTUS) 第7回イブニングセミナー（招待講演）
4．発表年 2022年

1．発表者名 Sugimoto Takuya, Kobayashi Motoyoshi
2．発表標題 Heteroaggregation rates of oppositely charged colloidal particles in a mixing flow: effect of charge density
3．学会等名 The 8th Asian Particle Technology Symposium（国際学会）
4．発表年 2021年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

－

6．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究協力者	小林　幹佳 (Kobayashi Motoyoshi)		

6．研究組織（つづき）

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究協力者	瀬戸　亮平 (Seto Ryohei)		

7．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

8．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
中国	国科温州研究院			