

氏名	ヒラノ マユコ 平野 万柚子
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博 1 2 0 5 号
学位授与の日付	令和 8 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 物質・材料化学専攻
学位論文題目	動的超音波散乱法によるナノ・ミクロン微粒子懸濁液の拡散 および沈降ダイナミクス
審査委員	(主査) 教授 則末 智久 教授 中西 英行 教授 藤原 進

論文内容の要旨

本論文は、液中微粒子に超音波を照射して得られる散乱波の時間変化を解析することで、新たな粒子サイジング手法を提案し、その基盤となる微粒子運動ダイナミクスの解明を目的とした研究成果をまとめたものである。論文は全 6 章で構成されている。

第 1 章では、研究の背景と目的が述べられている。動的超音波散乱 (DSS) 法は、懸濁液中の粒子の運動をリアルタイムで評価可能な粒径解析技術である。申請者はこの手法の適用範囲を、ナノサイズ領域かつ高濃度・多分散系へと拡張し、その過程で顕在化するミクロン粒子の運動ダイナミクスの理解にも挑戦している。

第 2 章では、DSS 法および音速などの物性値を決定するための超音波スペクトロスコピー (US) 法の実験手法を詳述するとともに、本研究で用いたポリマー粒子の合成方法および物性評価法について記載している。

第 3 章では、DSS 法および US 法の理論的背景と解析手法を整理している。前者においては、粒子運動によって生じる散乱波の時間揺らぎを解析する二種類の手法として、相関関数法と位相法を体系的に説明している。US 法では、透過法および反射法の原理が明確にまとめられている。

第 4 章では、DSS 法を用いたミクロンサイズの粒子懸濁液の速度揺らぎ解析を示している。光学的手法と比較して長波長である超音波の特性を活かした運動計測により、可視光の波長を超えたミクロン粒子の解析の実現に加えて、ミリメートルにも及ぶ粒子の集団運動 (協同運動) を伴う階層的空間構造の形成を示唆する多角的で定量的な知見を得ている。

第 5 章では、高濃度かつ多分散な粒子懸濁液に対する DSS 法による粒径評価を検討している。新たに提案した波動の干渉性を考慮したモーメント展開法により、粒子濃度 40 wt%、多分散度 20% での粒径解析を実現しており、濃厚・多分散系に特有の粒子間相互作用を取り込んだ有効な手法として高く評価できる。

第 6 章では、本研究の成果が総括されている。本論文で得られた知見は、微粒子分散系の動的現象に関する理解を一層深化させるものであり、波動物理学や流体力学の学術的発展に寄与するとともに、化学産業における新たな材料評価技術としての応用展開も期待される。

論文審査の結果の要旨

液体中の粒径分布を定量的に測定する手法として、動的光散乱（DLS）法や X 線光子相関分光（XPCS）法が広く用いられている。しかし、実用材料の評価では、光の透過が困難な高濃度条件や、凝集によりミクロン粒子を含むナノ粒子系を扱う必要が多く、既存手法の適用範囲には限界がある。大型施設を要するこれらの課題を克服する代替手段として、超音波を線源とする計測法は有力である。

本論文ではまず、サブミクロンからミクロンサイズ粒子において流体力学的相互作用に起因する、速度揺らぎの研究成果が示されている。従来、この種の研究は粒子画像流速（PIV）法や数値シミュレーションによって行われてきたが、主にマクロスケールでの評価にとどまり、協同運動の内部構造に関する理解は限定的であった。本研究で用いた動的超音波散乱（DSS）法は、超音波の波長スケールで粒子運動を捉えることができ、協同運動領域内部のダイナミクスを解析できる点に特長がある。実際に、本手法により協同運動領域（ブロッブ）の可視化と速度揺らぎの定量評価が可能となり、ミクロン粒子に加えて、ブラウン運動と沈降運動が競合するサブミクロン粒子についても体系的解析が行われている。さらに、沈降方向に形成されるわずかな濃度勾配が速度揺らぎに及ぼす影響を明らかにし、ナノからミクロンにわたる広範な粒径スケールで協同運動の階層的空間構造を示唆する多面的かつ定量的知見を得た。これらの成果は、微粒子分散系ダイナミクスの理解を深化させる上で重要な意義を有している。

続いて、濃厚多分散系における新たなナノ粒子サイジング手法の開発について検討している。従来は濃厚単分散系における粒径評価が中心であったが、実用的観点からは濃厚多分散系に対応する手法の確立が求められていた。本論文では、多様な分布形状のうち最も基本的な単峰性分布をもつ試料を対象とし、新たに提案したモーメント展開法によって解析を行っている。本手法により、粒子濃度 40 wt%、多分散度 20%までの条件下で粒径評価を実現しており、これは特筆すべき成果である。本解析では、濃厚系特有の粒子配置を反映する構造因子 $S(q)$ と流体力学関数 $H(q)$ を考慮し、協同拡散係数 D_c に加えて、多分散性に起因する自己拡散成分 D_s の寄与も取り入れている。従来、濃厚多分散系の粒径測定は光学的手法では困難であり、X 線や中性子散乱による測定には大型施設が必要で容易に実施できなかったが、本研究の超音波法はラボベースで実現可能な実用的手法として高く評価できる。

総じて、申請者はナノからミクロン粒子に至る幅広いサイズ領域で粒子運動の定量評価を達成し、新たなサイジング技術の提案とともに、微粒子ダイナミクスの理解を大きく前進させた。

本論文は以下に示す 2 編の主論文から構成されている。いずれも査読制度のある国際学術雑誌に掲載されており、申請者が筆頭著者になっている。

1. “Velocity fluctuations of submicron- and micron-sized particles in suspension studied by dynamic ultrasound scattering”, Mayuko Hirano, Tomohisa Norisuye, *Physics of Fluids*, **36**(11), 113370, 2024.
2. “Particle sizing in highly concentrated polydisperse particle suspensions by dynamic ultrasound scattering”, Mayuko Hirano, Misaki Tani, Mao Yamada, Manami Yamane, Kana Kitao, Tomohisa Norisuye, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **727**(1), 138200, 2025.