

氏名	ヤマダ マオ 山田 真央
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博 1 2 0 6 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	電気泳動超音波散乱法によるナノ・ミクロン微粒子のダイナミクスと表面状態解析
審査委員	(主査) 教授 則末 智久 教授 中西 英行 教授 山雄 健史

## 論文内容の要旨

本論文では、外部電場下で溶液中の微粒子に超音波を照射し、粒子からの散乱波の時間変化を解析することで、粒子の電気泳動速度およびゼータ電位を評価し、表面特性を明らかにしている。さらに、既存手法では測定が困難であった高濃度・着色試料への適用可能性を示し、産業応用の観点からも本手法の有用性を示している。本論文は、全 6 章で構成される。

第 1 章では、研究背景と目的を述べている。ナノ～マイクロメートルスケールの微粒子の電気泳動速度を超音波散乱により評価する独自手法に関して、申請者は既存の光学的手法との比較検証を行うとともに、産業界で用いられる高濃度系や着色試料への応用を目的として研究を進めた。

第 2 章では、超音波散乱実験および関連する実験手法について説明している。ゼータ電位測定には、本手法のように電気泳動速度を利用するアプローチに加え、粒子表面電荷密度に基づく滴定アプローチも存在することから、本論文で用いた複数のゼータ電位測定法の原理と特徴を概説している。

第 3 章では、電場下における動的な超音波散乱解析法と、電気泳動速度とゼータ電位を結びつける理論モデルについて述べている。超音波散乱波の位相または振幅変化から粒子速度を抽出する解析手法を整理し、それぞれの特長と利点を示すとともに、低周波交流電場を用いて電気泳動速度と沈降速度を分離する AC ロックイン解析法についても説明している。

第 4 章では、電気泳動超音波散乱法に適した実験条件の検討、既存手法との定量的比較、および高濃度試料への適用について述べている。本手法で得られたゼータ電位が既存手法の結果と良好に一致することを示すとともに、沈降を伴う粒子試料であっても高精度で電気泳動速度を評価できる点を明らかにした。また、高濃度分散系の測定と理論モデルとの比較により、体積分率 30% までのミクロン粒子に対してゼータ電位評価が可能であることを示した。

第 5 章では、超音波散乱法を用いた粒子表面に局在するイオノマー被覆環境の解析について述べている。まず、汎用の高分子微粒子およびシリカ微粒子を用いて被覆濃度に関するモデル解析

を行い、その上で、2種類のカーボンブラック微粒子および白金触媒担持カーボンブラック微粒子についてイオノマー被覆濃度を評価し、粒子表面特性に起因する被覆量の差異を明確にしている。

第6章では、得られた知見を総括し、今後の展望を示している。本手法により、従来技術では測定が困難であった高濃度系や着色試料においても表面特性の評価が可能であることが示された。これにより、本手法は学術的な基礎研究にとどまらず、インク、化粧品、電極スラリーなど多様な産業分野への展開が期待される。

## 論文審査の結果の要旨

液体中に微粒子を分散させた懸濁液は、インク、化粧品、電池の電極材料、医療など幅広い分野で活用されている。これらで用いられる微粒子のサイズは、一般にナノメートルからマイクロメートルの範囲にあり、その機能を十分に発現させるためには、分散状態の適切な制御と評価が不可欠である。特に、光学的に乳濁・着色した材料を、無希釈で測定する場合には、超音波を線源に用いた測定手法が有効である。

本論文では、外部電場の印加下における溶液中の微粒子からの超音波散乱波の時間変化を解析し、粒子の電気泳動速度、ゼータ電位、および表面状態を定量化した。この電気泳動超音波散乱(ESS)法は、散乱波の位相情報を利用することで、セル内部の流速分布、すなわち速度の位置依存性を考慮した電気泳動速度解析を実現し、既存のゼータ電位測定手法と定量的に一致する結果を得た。また、ミクロンオーダーの微粒子における沈降の影響を除去するため、低周期交流電場を印加し、電場に同期した運動成分のみを抽出するACロックイン解析を導入した。この手法により電気泳動速度の独立評価が可能であることを実証した。

さらに、濃厚懸濁液やカーボンブラック(CB)など、光学的に不透明な試料への応用を試みた。超音波が透過する限り電気泳動速度は算出可能であるが、ゼータ電位解析には濃厚系特有の粒子間相互作用を考慮する必要がある。濃厚系におけるゼータ電位理論は古くから提案されているものの、実測例は限られている。本研究では、ESS法により最大30 vol%の高濃度まで電気泳動速度を測定し、既存理論との比較を通じて濃厚系のゼータ電位評価が可能であることを示した。

また、燃料電池触媒として用いられるCB微粒子では、分散性向上のためにイオン性高分子分散剤(イオノマー)の添加が行われる。粒子表面のイオノマー被覆は分散安定性に密接に関与するため、その被覆量評価は重要である。従来はX線や中性子散乱など大型施設を用いるのが一般的であったが、本研究ではラボスケールで実施可能なESS法により被覆環境の定量化を試みた。解析を単純化するため、まず高分子粒子およびシリカ粒子を用いて被覆量のモデル解析を行い、疎水性の強いポリマー粒子ほどイオノマー被覆量が大きいことを明らかにした。この知見を基に、2種類のCB粒子および白金触媒担持CB粒子の被覆濃度を比較し、表面特性に起因する被覆量の差異を定量化した。

以上のように、申請者は ESS 法の開発と応用を通じて、溶液中の微粒子の電気泳動速度・ゼータ電位およびイオノマー被覆状態を定量的に解明し、高濃度・着色試料への適用可能性を示した。

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. “Electrophoretic dynamic ultrasound scattering”, Mao Yamada, Kazuki Sugita, Shuzo Kaji Tomohisa Norisuye, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **690**, 133806, 2024.
2. “Dynamics of carbon black particles stabilized by ionomers in catalyst ink by electrophoretic ultrasound scattering”, Mao Yamada, Tomohisa Norisuye, *Materials Chemistry and Physics*, **339**, 130777, 2025.