

氏名	とらん たお うえん TRAN THAO NGUYEN
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第826号
学位授与の日付	平成29年3月24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 生命物質科学専攻
学位論文題目	Studies on Structures and Elastic Properties of Microparticles Probed by Ultrasound Scattering Techniques (超音波散乱法によるマイクロ粒子の構造と弾性に関する研究)
審査委員	(主査)准教授 則末智久 教授 宮田貴章 教授 浦山健治

論文内容の要旨

超音波スペクトロスコーピー (US) 法は、低エネルギーの超音波を用いるため、力学的なコントラストを伴った微細構造を非破壊かつ非接触で解析可能な有用な技術である。そのうち透過法については2つのセンサーを向かい合わせに配置し、その中間に設置して測定する。試料の信号をリファレンスのそれと比較することによって超音波減衰率 α と音速 c をそれぞれ信号の振幅比と位相差から評価することができる。超音波ブロードバンドパルスは様々な周波数成分を含んでいるので、これらは一度の測定で得ることができる。

第1章では、懸濁溶液中の微粒子の大きさと弾性率を、超音波減衰と音速測定という音響物性解析により決定する研究を行った。この解析は、超音波弾性散乱理論と多重散乱分散関係のモデルを組み合わせて行った。同様の解析はこれまで剛体球については様々な研究がなされているが、中空粒子についての検討例は見られない。本研究では、中空粒子のシェル厚みとシェル部分のみの弾性率の定量的評価を超音波スペクトロスコーピー法により実現した。特に、ポリスチレン、ポリジビニルベンゼン粒子、ホウケイ酸ガラス中空粒子、フェノール樹脂の中空粒子について検討した。本技術は、硬い材料のみならず柔らかい材料について、試料の希釈乾燥を行うことなく、コアシェル粒子のオンラインモニタリングへの応用も可能である。

次に、第2章では、界面重合により合成したケイ酸ガラスについて研究した。計測には超音波スペクトロスコーピー法を用い、同じく超音波減衰率と音速を解析した。実験により得られたこれらのデータは Goodman と Stern によって提唱されたコアシェル粒子の散乱関数論と、Waterman-Truett の分散関係を用いて解析した。その結果、粒子径分布やシェル厚みを定量的に求めることができ、その結果は、電子顕微鏡 SEM で計測したものとよく合致した。さらに、水/オイル/水系のエマルジョンをテンプレートとするケイ酸ガラスのマイクロカプセルの生成過程のモニタリングにも成功した。

最後に第3章では、超音波解析を Pickering エマルジョンに応用した。Pickering エマルジョンは、オイルと水相の界面に微粒子を局在安定化させたエマルジョンの一種である。前述のコア

シェル粒子のモデル系として本系を考え、エマルションの表面をコーティングした固体粒子の構造を超音波を用いて研究した。本研究では、コアシェル粒子の散乱モデルを適用して超音波解析を行った。

論文審査の結果の要旨

本論文では超音波スペクトロスコピー（吸収）法を用いた微粒子の構造と物性評価を行っている。実用の材料の多くは乳濁・着色していることが多く、光が透過しない材料の解析法として超音波が有効である。試料の希釈、乾燥、前処理が不要で、液体中に浮遊する微粒子そのままの状態でも解析できる点が大きな長所と言える。さらに超音波は力学的変位を伝搬する波であるので、液中の微粒子の弾性率評価も可能である。

申請者は、高分子微粒子分散液の精密な超音波解析を行い、中空カプセル、コアシェル粒子といった様々な形態を有するマイクロ粒子についてその有効性を示した。実験は、超音波を発信するデバイスを二個向かい合わせて配置し、この間にセルに注入したサンプルを設置する。全ての実験は超音波の損失が比較的小さい水中で行う。精密に温度制御され、丁寧に軸調整された実験系により、高精度な実験を実現した。得られたデータを粒子サイズや構造に適したモデルを用いて解析し、前述のサイジングや物性評価を行っている。

はじめに走査型電子顕微鏡で校正された粒子で当該手法の有効性を確認し、その後自身で合成した微粒子やカプセルについて研究した。その結果、超音波法が液体中の粒子の構造および物性解析に非常に有効であることを示した。加えて、剛体粒子とシェルを有する粒子の識別を可能にしたことを受け、液体粒子の表面に局在化する固体粒子の有無を調べる方法論について検討した。当該研究成果は、インクや塗料等を代表とする幅広い分野における特性解析に応用されることが期待される。この吸収法は古くから知られている手法であるが、剛体球のみならずシェル構造をも特定する詳細な解析方法へと発展した。これにより、単なる粒子サイズ評価法ではなく、力学的情報を解析でき、微粒子の安定性解析にも活用できるようになったことが学術的にも実用性の観点でも新しい。

本論文は以下に示す3編の主論文から構成されている。申請者はこれらの論文のうち1編が筆頭著者になっている。

1. Kohjiro Kubo, Tomohisa Norisuye, Thao Nguyen Tran, Daisuke Shibata, Hideyuki Nakanishi, Qui Tran-Cong-Miyata, “Sound velocity and attenuation coefficient of hard and hollow microparticle suspensions observed by ultrasound spectroscopy”, *Ultrasonics*, 62 (2015) pp. 186–194
2. Thao Nguyen Tran, Daisuke Shibata, Tomohisa Norisuye, Hideyuki Nakanishi, and Qui Tran-Cong-Miyata
“Determination of particle size distribution and elastic properties of silica microcapsules by ultrasound spectroscopy”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 55, 07KC01(2016)
3. Thao Nguyen Tran, Tomohisa Norisuye, Hideyuki Nakanishi, and Qui Tran-Cong-Miyata, “Ultrasonic Investigation of Localization of Solid Particle at Oil/Water Interface of Droplet”, to be published.