

## 論文の内容の要旨

博士後期課程 先端融合科学専攻

オプティクスバイオデザインプログラム

氏名 岡村 諭

界面活性剤は、食品や洗浄剤、医薬品などに産業分野で広く用いられており、人々の生活に欠かせない化合物である。さらに近年では微生物制御などのバイオテクノロジーの分野でも界面活性剤を用いた研究が行われている。界面活性剤が引き起こす現象を目的に応じて自在に制御するために、界面活性剤の機能と吸着状態との関係を詳細に理解することが求められている。スルホコハク酸型の界面活性剤は、優れたぬれ性を示すことが以前から知られているが、これまでの研究は、ぬれという巨視的な観点で行われた研究が多く、界面現象を支配する因子の一つである界面エネルギーや、その界面エネルギーの由来となる界面での界面活性剤の吸着状態や吸着膜構造については未解明な部分が多く残されている。そこで本研究では、代表的なスルホコハク酸型の界面活性剤である bis(2-ethylhexyl) sulfosuccinate sodium salt (AOT) と疎水鎖構造の異なる2つのスルホコハク酸ナトリウム型界面活性剤、および最も代表的な陰イオン性界面活性剤の一つであるドデシル硫酸ナトリウム (SDS) を比較しながら、疎水性固体と水の界面での油滴のぬれの現象を評価し、界面エネルギーの測定および算出や界面の吸着膜の構造解析を通して、ぬれの現象と界面活性剤の分子構造や吸着膜構造との関係を分子レベルで解明することを目的として行われている。

本論文は全5章から構成され、各章の概要は次の通りである。

第1章は、本研究の緒言である。日常生活や産業分野における界面活性剤の利用やぬれ性に関する先行研究などについて述べられている。本研究で着目したスルホコハク酸型の界面活性剤の研究例を踏まえて、本研究の目的について述べられている。

第2章では、本研究で用いた界面活性剤の合成法、疎水性固体表面の作製法、界面エネルギーの算出に用いた表面張力計と接触角計、界面構造の解析に用いたフーリエ変換赤外分光法と中性子反射率法について、概要や原理、測定条件、解析法などが述べられている。

第3章では、AOT と疎水鎖構造が異なる類縁体、および SDS の水溶液に対して、濃度を変化させた際の、水溶液表面エネルギー、水溶液/液体油 (トリオレイン) 界面エネルギー、および疎水性固体表面に対する接触角の測定結果が述べられている。これらの測定結果に基づき、Young の式を用いて、界面活性剤水溶液と疎水性固体や液体油との界面エネルギーが算出されている。臨界ミセル濃度 (CMC) の 8 倍までの濃度範囲での界面エネルギーの比較から、液体油/水の界面エネルギーについては、本研究で用いた全ての界面活性剤の水溶液で濃度増加に伴う大幅な低下がみられるものの、疎水性表面/水溶液の界面エネルギーに関してはスルホコハク酸型の界面活性剤を用いた場合でのみ大きく低下し、その傾向は特に AOT で顕著であることを明

らかにしている。またその理由について、分子の形状や界面での充填構造の点から考察し、スルホコハク酸型界面活性剤の2本疎水鎖構造、特に枝分かれした AOT の疎水鎖構造が、疎水性固体／水溶液界面での吸着膜における分子密度を増加させ、界面エネルギーの低下を生じさせるものと推察されている。また、界面エネルギーの値を用いて、ぬれ現象の指標となる拡張係数が算出され、AOT 水溶液に対しては、その符号の変化に対応して、界面活性剤水溶液中での油滴の疎水性固体からの脱着が起こることが見出されている。これらの結果から、界面活性剤水溶液中での油滴のぬれ現象の制御には、疎水性表面／水溶液の界面エネルギー低下が重要な因子であると結論されている。

第4章では、疎水性表面／水溶液の界面における界面活性剤の吸着状態や構造について検討されている。疎水性固体表面上における界面活性剤水溶液のぬれ性や、固体／水溶液界面での吸着分子の運動性、吸着膜の構造について評価が行われている。各界面活性剤の濃度を CMC の8倍の濃度まで変化させて大気中での水溶液の接触角を評価したところ、SDS 水溶液よりも AOT の水溶液の方がいずれの濃度においても接触角が低く、疎水性表面／水溶液の界面エネルギーも低いことが示されている。この結果の解明のために、疎水性固体／水溶液界面に対して赤外分光-多重全反射法測定および中性子反射率測定を行っている。赤外分光測定により、臨界ミセル濃度以下の低濃度領域で、界面活性剤のアルキル鎖中のメチレン基の伸縮振動に由来するピーク波長から、AOT の方が SDS よりもアルキル鎖の運動性が高いことが示唆されている。また、中性子反射率プロファイルのフィッティング解析から、AOT の方が密な吸着膜を形成することが示唆されている。これらのことから、疎水性固体／水溶液の界面エネルギーの低下と、吸着分子の運動性や吸着密度の関係が考察され、第3章で述べた分子構造と吸着膜での分子充填構造の妥当性が示されている。

第5章は総括であり、本研究で得られた結果や知見についてまとめられ、研究の将来展望について述べられている。