

(様式11)

論文審査の要旨 (課程博士)

生物システム応用科学府長 殿

審査委員 主査 神谷秀博 (印)

副査 Wuled Lenggoro (印)

副査 錢 衛華 (印)

副査 赤井伸行 (印)

副査 富永洋一 (印)

学位申請者	<u>物質機能システム学 専修 平成 21年度入学 学籍番号 09701104</u> 氏名 花田 洋子
申請学位	博士 (工学)
論文題目	表面修飾した微粒子の液中分散性制御法のコロイドプローブ AFM 法による解析

論文審査要旨 (2,000字程度 or 500words)

固体の微粒子化は、粉体製品の性能や機能向上を目的に、様々な分野で検討されている。しかし、微粒子化は付着・凝集性、飛散性等を増加させ、その取り扱いが困難になりトラブルが発生しやすく、粒径が小さくなるほど、顕著となる。その結果、インクや化粧品などには、微粒子は水や油剤に、粒子表面と分散媒とのなじみ、親和性を改善することで、様々な微粒子の異なる溶媒中への分散性制御が重要な課題となっている。この課題解決のため、微粒子表面をシランカップリング剤や、界面活性剤や分散剤などの表面処理で分散安定化が図られているが、その作用機構は明確になっていない本研究は、水や油といった任意の分散媒に対して、様々な材質、粒子径の固体微粒子の組み合わせで対応可能な分散・凝集現象の制御のための分散剤、界面活性剤等による界面構造設計法の確立を最終的な目的としている。この目的のため、異なる分子構造の分散剤を用い、添加量等の添加条件により粒子表面修飾状態と粒子表面間相互作用の変化を、コロイドプローブ AFM 法により測定した表面間相互作用や他の手法による界面状態評価法を組み合わせ考察することにより、スラリーの流動特性などマクロ挙動等との関係の解明に取り組んでいる。具体的には、水中での疎水性炭素微粒子、油中での親水性無機微粒子、及び、疎水性有機微粒子の組み合わせにおいて、異なる構造の表面修飾剤を用いた場合の流動特性、凝集状態と粒子間力の変化の関係を体系的に評価・解析し、表面修飾剤に必要な構造因子の解明に取り組んでいる。第一章では、本研究のこうした背景と既往の研究をレビューし、課題と目的を鮮明とした。

第二章では、疎水性炭素微粒子(ファーネスブラック)は、カチオン性の高分子分散剤であるポリエチレンイミン(PEI)で水中分散が可能であるが、酸性では凝集する。表面間相互作用力解析より、酸性では高分子分散剤による立体斥力が減少して

いることが明らかになった既往の研究を紹介した。この背景に基づき本章では、PEIに疎水基であるトルオイル基を導入した分散剤を合成し用いると、酸性でも炭素微粒子が安定分散すること、および、相互作用力解析から大きな立体斥力が発現することを確認した。水中での疎水性粒子の分散制御において、分散剤の構造としては、静電相互作用を利用した吸着基だけでなく、疎水性相互作用を利用した吸着基も有効であることを明らかにしている。

第三章では、親水性無機微粒子である酸化チタン微粒子は、パーフルオロアルキル基を分散基として有する表面修飾剤で処理することにより、低極性の油であるシリコンオイルに分散させることが可能であることを示した。酸塩基相互作用を利用したパーフルオロアルキルリン酸塩(PF)処理よりも、化学反応を利用したパーフルオロオクチルトリエトキシシラン(FHS)処理のほうが分散性は良好であるという事実に基づき、各剤で処理した酸化チタン間の相互作用力解析を行っている。酸塩基相互作用を利用した物理吸着では、多層吸着が起りやすく、発現する立体反発力は不均一で、吸着力も大きくなり凝集がほぐれ難いため分散性が低いこと明らかにした。一方、化学吸着では、吸着の均一性が高いので凝集を抑制する立体反発力は小さいが、凝集の再分散を阻害する吸着力も小さくなり、分散性が良好となることを求めている。以上、油中における親水性無機微粒子用表面処理剤の吸着基としては、酸塩基相互作用による吸着は不均一になりやすく、その結果、吸着力が大きくなり分散性が向上しないが、化学反応による吸着は均一になりやすく分散性が向上することを明らかにしている。

第四章では、疎水性のポリエステル樹脂からなる微粒子を低極性油である流動パラフィンに安定分散させるため、吸着部となるPEIと、分散部となる12-ヒドロキシステアリン酸の自己縮合物とを、それぞれの分子量と吸着部/分散部比率を変えて合成し、分散性能を評価している。その結果、低分子量のPEIと低分子量の12-ヒドロキシステアリン酸縮合物をモル比1/2で反応させた低分子量分散剤が最も高い分散安定性を示すことを明らかにした。この低分子量分散剤と同じ分散部(酸縮合物)で吸着部が高分子量PEIである楕形の高分子量分散剤について、分散性と相互作用力解析を行った結果、高分子量分散剤は、分散剤1本による粒子間の橋かけに由来する引力が高頻度で検出され、この粒子間の橋かけにより分散性が悪化していることが確認している。一方、低分子量分散剤ではそのような引力は検出されなかった。この結果から、静電相互作用の働きにくい油中においては、高分子量分散剤はトレインループ構造で吸着しやすいこと明らかにした。油中における疎水性有機微粒子用表面処理剤としては、高分子量のものでは粒子間架橋を起こして凝集し易く不適當であること、吸着部が低分子量の分散剤が適することを明らかにした。

以上の結果を5章として、各系における表面処理、修飾法や分散剤構造が分散・凝集状態に及ぼす機構を表面間相互作用の変化から解析・考察を行い、適切な表面修飾基、修飾法を明らかにしている。また、表面修飾剤の構造が分散状態に及ぼす機構解析としてコロイドプローブAFM法の有効性を明らかにした。

以上の成果は、原著論文2報、数編の特許としてまとめられており、博士(工学)の論文として十分認められる。