

論文審査の結果の要旨

氏名： 長尾 道弘

水、油、界面活性剤からなる三元系マイクロエマルジョンは水、油界面に両親媒性分子が吸着することにより、様々なメゾスコピックスケールの構造を自発的に形成することが知られ、自己組織化、パターン形成の観点から興味をもたれている。長尾道弘氏の論文は、このマイクロエマルジョンのメゾスコピック構造の形成要因を明らかにするため、希薄系として取扱いのできない等量の水と油に約20%程度の陰イオン性界面活性剤AOTを混合した系における圧力及び温度をパラメータとした構造相転移を中性子小角散乱、X線小角散乱及び中性子スピネコー法を用い、静的及び動的観点から研究した結果を纏めたものである。

この論文は8章から構成され、第1章は序論でこれまでのマイクロエマルジョン系の研究が紹介されており、本論文の目的が明記されている。第2章では各々の実験データを解析するために使用されたモデルとそこから求められる物理的パラメータが説明されている。第3章は実験方法に関する章であり、試料調整、本研究の主要な実験方法である中性子小角散乱実験及び新しく開発された圧力容器、そして圧力印加に伴う厚み補正が説明されている。

第4章では中性子小角散乱実験によって初めて得られた圧力誘起構造相転移の静的描像が記されている。常圧で濃厚dropletの一相構造を形成していたAOT系マイクロエマルジョンは、圧力上昇に伴い、試料下部にlamellar構造が出現し、試料上部には、AOT膜により隔てられているが水相及び油相がそれぞれ三次元的ネットワークを組むbicontinuous構造が現れる二相分離を示す。この相転移過程において、特に水（油）ドメインの繰返し周期と相関距離の比で記述できるdisorder parameterは転移開始圧力で規格化した圧力 $P-P_s$ で記述することにより、組成に依存しない普遍的な振る舞いを示すことが明らかになった。

第5章では上記の圧力誘起構造相転移の結果が温度誘起転移の結果と比較されている。濃厚droplet系における温度誘起構造転移は、lamellar単相構造への転移と考えられていたが、この中性子小角散乱実験による測定から、圧力誘起構造相転移と同様、lamellar及びbicontinuous構造から成る二相構造への転移であることが明らかにされた。しかし圧力上昇では、高圧の二相は相分離構造を保つ一方、温度上昇で

はさらに高温では新たな構造相転移が観測され、それに伴う周期の大きな変化が見られた。更に、転移開始温度及び転移開始圧力で規格化した温度及び圧力を定義することにより、メソスコピックスケールの構造から得られる特徴的長さが両規格化変数に対してスケールできることを明らかにした。

第6章では高圧下におけるX線小角散乱実験が説明され、そこから得られた圧力誘起構造相転移の実験結果が議論されている。その結果圧力上昇に伴いdroplet間引力の増加が見られるのに対し、温度上昇ではこの引力ポテンシャルに大きな変化は無いことが明らかになった。

第7章では中性子スピンエコー法による実験結果が記述されており、温度上昇及び圧力上昇による膜の弾性率変化の様子が初めて中性子スピンエコー実験で測定された。それによると高温相、高圧相共にlamellar構造とbicontinuous構造に相分離している領域では、高温相では常温相に比較してAOT膜は柔らかくなっているが、高圧相では常圧相にくらべて硬くなっていることが判明した。このように圧力誘起構造相転移と温度誘起構造相転移は見かけ上似たような相転移を示し、転移過程の振る舞いも似ているが、いくつかの特徴が異なっていることが結論づけられている。

第8章では全体の要約が述べられ、温度効果と圧力効果の微視的描写が提唱され、最後に今後の展望が記されている。

本研究はマイクロエマルジョン系において従来から盛んに行われてきた温度変化の研究に加え、圧力変化による構造形成変化に着目し、圧力下の中性子及びX線小角散乱実験手法を開発、確立し、それを用いた丁寧な実験で三元系マイクロエマルジョン系における圧力誘起構造相転移と温度誘起構造相転移に関して数々の新しい知見を導出したものとして高く評価できる。

なお、本論文は好村滋洋、武田隆義、瀬戸秀紀、彦坂正道、武野宏之、中山良秋、長谷川博一、橋本竹治、今井正幸、奥原大輔、岡林博文、松下裕秀、川端庸平、鈴木次郎、上久保裕生、雨宮慶幸諸氏との共同研究の部分を含むが、上記の主要部分について論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断した。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。