

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 13122 号
------	---------------

氏 名 北畑 雅弘

論 文 題 目

All-Atom Molecular Dynamics Study on Interfacial Tension at Amphiphilic Aggregates/Solution and Solid Polymer/Solution Interfaces

(全原子分子動力学シミュレーションを用いた両親媒性分子会合体/溶液および固体高分子/溶液間に働く界面張力の分子論的研究)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	岡崎 進
委員	名古屋大学	准教授	篠田 渉
委員	名古屋大学	教授	関 隆広
委員	慶應義塾大学	教授	泰岡 顕治

論文審査の結果の要旨

北畑雅弘君提出の論文「All-Atom Molecular Dynamics Study on Interfacial Tension at Amphiphilic Aggregates/Solution and Solid Polymer/Solution Interfaces (全原子分子動力学シミュレーションを用いた両親媒性分子会合体/溶液および固体高分子/溶液間に働く界面張力の分子論的研究)」は、界面を含む不均一系の自由エネルギーを記述する場合に非常に重要な役割を果たす界面張力(界面過剰自由エネルギー)の解析手法として、分子動力学(MD)シミュレーションと統計力学的・熱力学的な解析手法を組み合わせた方法論を提案し、これを球状ミセル/水および固体高分子/良溶媒・非溶媒混合溶液界面に適用することにより、両親媒性分子や高分子、溶媒の化学的な特徴を考慮した界面張力の分子論的起源を解明している。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、GENERAL INTRODUCTIONとして、両親媒性分子の自己組織化や高分子溶液の相変化、相分離が産業技術的視点から重要であることを述べ、これらの現象が共通して界面過剰自由エネルギーに強く支配されていることを論考し、その微視的描像を理解することの重要性を述べている。

第2章では、統計力学に基づいた界面張力の記述について述べ、これを踏まえた微視的解析がMD計算により実施可能であることを示した上で、球状ミセル/溶液と固体高分子/溶液界面系に対して実際に実行した計算についての詳細な説明を与えている。

第3章では、代表的な界面活性剤であり水溶液中で球状ミセルを形成するsodium dodecyl sulfate (SDS)ミセルに対して、典型的な油滴であってSDSミセルの疎水コアに相当するドデカン液滴と比較しながら解析を行っている。具体的には、動径方向と接平面方向の圧力テンソル差の分布の積分から界面過剰自由エネルギー340および1331 kJ/molを得た。即ちSDSミセルは親水基から991 kJ/molもの安定化を得ることが示された。より詳細には、ドデカン液滴の大きな界面張力は正の圧力テンソル差に由来する一方、SDSミセルは負の圧力差を示す領域が存在するため界面張力が小さくなること、また相互作用解析からSDSミセルの小さな界面張力の大部分は静電相互作用に由来することを明らかにしている。これらは、界面活性剤により形成されるミセルが示す小さな界面張力の微視的起源を示す重要な知見を与えている。

第4章では、典型的な疎水性表面を形成するポリフッ化ビニリデン(PVDF)の結晶表面と非晶表面に対して、非溶媒である水のぬれ性を議論するために水滴のぬれ角をMD計算により評価し、ぬれ角からYoungの式を用いて界面張力を得ている。結果は、結晶表面の大きな界面張力と非晶表面の小さな界面張力に代表され、これらの差異が構造の異なる表面の高分子と水との相互作用の違いから生じていることを明らかにしている。これらは、結晶性の異なる高分子のぬれ性を理解する上での、重要な知見を示している。

第5章では、非溶媒誘起相分離を引き起こす非溶媒である水、良溶媒であるN-Methyl-2-pyrrolidone (NMP)混合溶液と結晶性、非晶性PVDF表面とで形成される界面張力について考察し、特に良溶媒であるNMPは非晶表面において高分子側を膨潤させるなど、この親和性が混合溶媒との界面過剰自由エネルギーを決定していることを示している。この結果も界面張力の理解に有用な知見を与えている。

第6章では、本研究の結論を与えている。

以上のように本論文では球状ミセルにおける界面張力の低下と結晶性、非晶性高分子表面と非溶媒、良溶媒の混合系が生成する界面過剰自由エネルギーの分子論的起源を解明したものであり、材料設計の指針を与えうる重要な知見として工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である北畑雅弘君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。