

学位論文の審査結果の要旨

本論文では、エマルションの調製に用いられている界面活性剤などの両親媒性物質の自己組織体（ミセル）形成に及ぼす水溶性物質の影響、また、両親媒性物質が形成する自己組織体の形態とエマルションの安定性との相関性、さらには、水中油滴型（O/W）エマルションの分散安定性に及ぼす水溶性物質の直接的影響について明らかとした。

第1章では、スキンケア、ヘアケア、医薬品などのエマルション製品の概要と、エマルション製品の処方における課題について概説した。

第2章では、両親媒性物質であるポリエチレンオキシド-ポリプロピレンオキシド（PEO-PPO）ブロックコポリマーの水中でのミセル形成に及ぼす水溶性物質（グルコース、グリセリン、エタノール）の影響について検討した。PEO-PPOブロックコポリマー水溶液にグリセロール、グリセリン添加すると、ミセル形成温度が低下することが明らかとなった。一方で、PEO-PPOブロックコポリマー水溶液にエタノールを添加すると、ミセル形成温度が上昇することが明らかとなった。この水溶性物質の種類の違いによるミセル形成の違いについて熱力学的に解析を行い、水溶性物質存在下でのミセル形成機構を提案した。さらに、水溶性物質の存在下ではPEO-PPOブロックコポリマー水溶液がある温度以上で急激に粘度が上昇することから、ミセル形状が変化したものと考察した。

第3章では、第2章で明らかとなったミセル形状の変化について、中性子小角散乱を用いて詳細に検討した。その結果、PEO-PPOブロックコポリマー水溶液中にグルコース、グリセリンなどの水溶性物質が存在すると、ある温度以上において球状ミセルが葉巻型楕円状ミセルへ転移することを明らかとした。中性子小角散乱結果の詳細な解析により、このミセル形状の転移は、ポリエチレンオキシドからなるミセルコロナ部の脱水和に起因していることを明らかとした。

第4章では、PEO-PPOブロックコポリマー、キシレン、水の3成分系エマルションの分散安定性に及ぼす相構造、乳化経路の影響について検討した。その結果、PEO-PPOブロックコポリマー、キシレン、水の混合過程においてO/Wゲルが形成する場合にエマルション中の油滴の粒子径が小さくなることを明らかとした。小角X線散乱測定によりO/Wゲ

ルはラメラ液晶であることが明らかとなった。分子量の異なるPEO-PPOブロックコポリマー、種々の組成、経路で乳化した場合でもO/Wゲルが形成する経路で乳化するとエマルション中の油滴の粒子径が小さくなることを確認した。すなわち、乳化経路内にラメラ液晶が形成することによりエマルション中の油滴の粒子径が小さくなり、分散安定性の高いエマルションが調製できることを明らかとした。

第5章では、水中油滴型（O/W）エマルションの分散安定性に及ぼす水溶性物質の直接的効果を明らかとするため、界面活性剤などの乳化剤を使用しないエマルション（乳化剤フリーO/Wエマルション）の分散安定性に及ぼす水溶性物質の影響について検討した。O/Wエマルションの分散安定性に影響する水溶性物質と影響しない水溶性物質が存在することが明らかとなった。特に、エタノールはミセル形成を阻害し、O/Wエマルションの分散安定性を低下させる水溶性物質として知られていたが、界面活性剤を使用しないO/Wエマルションの場合には、分散安定化に寄与することが明らかとなった。

第6章では、得られた結果を総括し、水溶性物質存在下での両親媒性物質の自己組織化挙動やエマルションの分散安定性への両親媒性物質の自己組織体、水溶性添加剤の役割を理解することは、今後のエマルション製品の処方開発に極めて重要であると提案し総括した。

以上の研究成果は、両親媒性物質の自己組織化機構やエマルションの生成機構に関する有益な学術的知見が多数含まれている。また、これらの知見は、実用レベルでのエマルション処方においても有益な情報となりえる。以上のことから、本博士論文は、博士（工学）の学位論文として十分な価値を有していると認める。

公表主要論文名

・ Kazuhiro Kaizu, Paschalis Alexandridis, Glucose-induced sphere to ellipsoid transition of polyoxyethylene-polyoxypropylene block copolymer micelles in aqueous solutions, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, Vol. 480, No. 5, pp. 203-213 (2015)

・ Kazuhiro Kaizu, Paschalis Alexandridis, Micellization of polyoxyethylene - polyoxypropylene block copolymers in aqueous polyol solutions, *Journal of Molecular Liquids*, Vol. 210, pp. 20-28 (2015)

・ Kazuhiro Kaizu, Paschalis Alexandridis, Effect of surfactant phase behavior on emulsification, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol. 466, pp. 138-149 (2016)

・酒井俊郎，稲場大介，高橋望，海津一宏，乳化剤フリー水中油滴型（O/W）エマルションの分散安定性：水溶性物質の影響，*Journal of the Japan Society of Colour Material*, Vol. 90, No. 11, pp. 1-8 (2017)