

氏名(本籍)	イレネ カテリナ ブトロン フジュウ (ペルー)		
学位の種類	博士(学術)		
学位記番号	博甲第5731号		
学位授与年月日	平成23年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	生命環境科学研究科		
学位論文題目	<b>The Effect of Temperature on Microchannel Emulsification</b> (マイクロチャネル乳化における温度影響の解明)		
主査	筑波大学教授	工学博士	中嶋光敏
副査	筑波大学教授(連携大学院)	博士(農学)	五十部誠一郎
副査	筑波大学教授(連携大学院)	農学博士	河野澄夫
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	市川創作
副査	筑波大学講師	博士(農学)	清水直人

### 論文の内容の要旨

エマルションは連続相と呼ばれる液体の中に微小液滴が分散している状態のことをいう。エマルションは、食品、医薬品、化粧品または化学工業など多様な用途に利用されている。従来の乳化技術では、機械的なせん断力や衝撃力を利用して分散液滴を段階的に細かくすることで、微小液滴が分散しているエマルションを製造している。単分散食品エマルションはいくつかの乳化技術を用いて、1滴ずつの形で製造することが可能である。多孔質膜を利用して変動係数10%程度の準単分散なエマルションを製造できる膜乳化法はその一つである。マイクロチャネル(MC)乳化は、数センチ程度の大きさの基板に微細加工された平板溝型、貫通孔型マイクロチャネルを介して分散液滴の材料である分散相を連続相となる液体中に押し出すだけで、変動係数5%未満のサイズの揃ったエマルションが製造できる優れた乳化技術である。これまで、MC乳化において、温度依存性は指摘されていたが、正確な温度制御のもとで、操作温度が液滴作製特性に与える影響については検討されていなかった。そこで本研究では、MC乳化の汎用化をめざして、MC乳化における温度影響について検討した。

まずMC乳化による水中油滴(O/W)システムをコントロールとして用い、液滴形成における温度の効果について調べた。MCアレイチップを備えた乳化モジュールの温度は10℃と70℃に設定し、精製大豆油を分散相とし、1wt% SDSを溶解した純水を連続相として用いた実験により、広範囲の温度領域で変動係数が5%未満の単分散O/Wエマルションを作製可能であることがわかった。次に分散相の接触角をMCを用いて計測する新しい技術を開発した。この接触角の新規測定技術は一つの実験において多重接触角データが得られるため、従来の測定技術より優れている。すなわちこの方法を用いて、異なる温度におけるMCアレイを介して単分散液滴を安定的に作製できる条件下で接触角を求めた。分散相の流速を高めた系でのMC乳化実験を行い、いくつかの重要な液滴形成特性を明らかにした。二相の粘度は温度の上昇に伴い大きく低下したため、MC乳化の液滴生産性は高温で大幅に向上することが示された。また、接触角の影響を考慮した調整キャピラリー数を用いることにより、異なる温度でのMC乳化における分散相の流れ状態を統一的に説明で

きた。

次に、異なる乳化剤を用いて温度制御下でMC乳化特性を調べた。MC乳化温度は10℃と70℃とした。乳化剤として、オレイン酸ナトリウム、ポリグリセリン脂肪酸エステル (PGM) とポリソルベート (Tween 20) を用いた。ブレイクスルー圧力において生成した液滴径は乳化剤のタイプによる影響がなかったが、温度に依存した。得られた接触角データからチャネルから単分散液滴の生成が示された。オレイン酸ナトリウム系では井戸部とテラス部において油水界面は安定した移動がみられ、界面の形状はチャネル中心から対称形であった。これに対してPGM系では、テラスおよびチャネル壁に濡れがみられ、油水界面に一部非対称形状がみられた。各々の処理温度において、オレイン酸ナトリウム系では、Tween 20やPGM系と比較すると連続流出が起こる臨界流速が高く、最大液滴生成率も高かった。高い液滴生産性はチップ表面と強い静電反発相互作用のある乳化剤を用いて高温条件でのMC乳化により得られることがわかった。

さらに、MC乳化における油中水滴 (W/O) 型エマルションの作製における温度影響について検討した。疎水化したMCアレイチップを用い、温度は10℃と55℃に制御した。連続相は5 wt% のテトラグリセリン縮合リシノレート (TGCR) をデカン溶液に溶解したものをを用いた。分散相は1 wt% の塩化と5 wt% のポリエチレングリコールを純水に溶解したものをを用いた。変動係数を5%未満の平均液滴径を17~20 μmの単分散W/O型エマルションが作製された。チャネル壁における分散相の接触角は152°より大きく、温度の上昇と共に増大した。55℃を超えたチャネルからの最大の液滴生成頻度は10℃の4.5倍であった。W/Oエマルションにおいて、狭い範囲の臨界Ca<sub>0</sub><sup>\*</sup>数がオーバーすると液滴径が著しく変化した。

以上まとめると、MC乳化において、広範囲の温度領域で変動係数が6%未満の単分散油と水液滴エマルションを作製可能であること、高温MC乳化により高い液滴生産力のO/W型およびW/O型エマルションが得られること、提案した接触角の測定技術はマイクロスペースにおいて定量的なデータを得ることができ、一つの実験において多重接触角データが得られるため、従来の技術より優れていること、MC乳化における分散相の流れの遷移は調整キャピラリー数により統一的に説明可能であることが示された。

## 審査の結果の要旨

申請論文は、マイクロチャネル乳化における液滴作製への温度影響について、分散相および連続相の粘度、両相間の界面張力、接触角、また得られる油滴、水滴の平均サイズとサイズ分布などの物理的、物理化学的パラメータを精緻に計測し、液滴作製プロセスとパラメータとの関係を明らかにしたものであり、マイクロチャネル乳化技術の応用性を高めた研究である。また接触角測定に関しては、マイクロチャネルを利用した新たな計測手法を提案した。

よって、著者は博士(学術)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。