

氏名	李 然		
学位の種類	博 士 (生物資源工学)		
学位記番号	博 甲 第 8369 号		
学位授与年月日	平成 29年 9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	Microchannel Emulsification Processes for Monodisperse Water-in-Oil Emulsions (単分散油中水滴エマルジョン作製のためのマイクロチャネル乳化プロセス)		
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)	等々力 節子
副査	筑波大学准教授	博士 (農学)	マルコス アントニオ ダス ネヴェス
副査	筑波大学准教授 (協働大学院)	博士 (農学)	小林 功

論 文 の 要 旨

著者は、単分散油中水滴エマルジョンの安定かつ高効率作製を目指して、新たなマイクロチャネル (MC) 乳化プロセスの開発および特性評価に関する研究を実施した。

乳化は、連続相となる液体の中にそれと混じり合わない微小液滴が分散しているエマルジョンを製造するプロセスである。エマルジョンには、水中油滴 (O/W) 型と油中水滴 (W/O) 型があり、いずれも食品エマルジョン等として応用されている。また、エマルジョンの液滴径と液滴径分布は、エマルジョン製品の保存安定性や呈味性等の諸性質に大いに影響を与える重要な因子である。たとえば、エマルジョンの保存安定性は、液滴径を小さくし、液滴径分布を狭くすることによって高めることができる。エマルジョンの液滴径と液滴径分布を自在に制御できれば、食感、呈味、安定性等が高度に設計された乳化食品の開発が可能になると期待されている。しかしながら、従来型の乳化デバイスを用いて製造されるエマルジョンは液滴径分布が非常に広く (変動係数 (CV) は通常 30%以上)、なおかつ液滴径を精密に制御することも困難である。また、上記の乳化デバイスは強力なせん断力や衝撃力により微小液滴を作製するため、せん断や熱に敏感な食品素材の品質劣化を引き起こす可能性がある。

MC 乳化は、微細流路であるチャネルが多数加工された MC アレイ基板を用いて、CV が 5%未満の単分散エマルジョンを作製可能な先進技術である。主に単結晶シリコン製の MC アレイ基板が用いられているが、耐アルカリ性と耐衝撃性が低いこと、MC アレイ基板の繰り返し使用は可能であるが、長期間保存した MC アレイ基板を用いた場合に、微小液滴の安定作製が困難になることが知られている。また、MC 乳化を用いた W/O エマルジョンの生産性が低いことも問題である。そこで、著者は、従来のシリコン MC 基板と耐アルカリ性と耐衝撃性が高いステンレス鋼製の MC アレイ基板の表面特性の解明、特にステンレス鋼基板を用いた W/O エマルジョンの作製特性の解明、さらに、従来の MC 乳化より大量生産が期待される新規なプレミックス MC 乳化プロセスの特性解明を目的とした。すなわち、新たな基板素材および液滴作製プロセスを利用した MC 乳化による単分散 W/O エマルジョンの安定かつ高効率作製に関わる一連の研究を実施した。

まず、疎水性 MC 基板の保存条件が基板表面の表面特性に与える影響、ステンレス鋼 (SUS304) 製 MC アレイ基板を用いた W/O エマルジョンの作製特性、およびプレミックス MC 乳化による W/O エマルジョンの作製特性について検討した。具体的にはシランカップリング疎水化処理直後における MC アレイ基板 (シリコン製、ステンレス

鋼製)の表面における純水の接触角を測定した。また、空気もしくは油中で異なる温度化で30日間保存した基板表面の接触角を測定し、基板表面の疎水性の経時変化について検討した。疎水化処理前のステンレス鋼製基板表面の疎水性はシリコン基板より高かった。一方、疎水化処理後では、油中で保存していたMCアレイ基板の方が高い疎水性を維持可能であることが示された。また、適度に加温した状態で保存した方が、疎水性の低下が抑えられることを明らかにした。

著者はまた、MC乳化プロセスの汎用化を図るために、ステンレス鋼製MCアレイ基板を用いてW/Oエマルションの作製特性を検討した。連続相として疎水性乳化剤を添加した低粘性油を用い、分散相として塩化ナトリウムと粘度調節剤(ポリエチレングリコール)を添加した水溶液を用いた。疎水化処理を施したステンレス鋼MCアレイ基板の利用により、平均液滴径が100~300 μm の均一径微小水滴($\text{CV}<5\%$)を安定的に作製することができた。均一径微小水滴の最大生産性は1 mL h^{-1} であり、さらなる液滴生産性の向上が必要である。

著者はさらに、単結晶シリコン製MCアレイ基板を用いたプリミックスMC乳化によるW/Oエマルションの作製基礎特性について検討した。連続相と分散相の混合分散系であるプリミックスは、プリミックスMC乳化を実施する前に緩やかな攪拌乳化を行って得られた。プリミックスの連続相として、濃度が疎水性乳化剤を添加した中鎖脂肪酸トリグリセリド(MCT)を用いた。また、分散相として塩化ナトリウムと粘度調節剤(ポリエチレングリコール)を添加した水溶液を用いた。プリミックスMC乳化操作は、プリミックスを非対称貫通型MCアレイ基板(チャンネル直径:10 μm)に圧入させて行った。プリミックスMC乳化を利用して、サイズ分布が狭いW/Oエマルションの作製を安定かつ高流速で作製できた。作製されたW/Oエマルションの平均液滴径はチャンネル直径の1.5倍程度であり、直接MC乳化により作製されるW/Oエマルションのサイズの半分以下であることも明らかとなった。また、プリミックスMC乳化における操作条件やエマルション組成の影響についても、本乳化プロセスの最適化に有用な知見が得られた。

以上、著者は、MC乳化における乳化安定性の向上および汎用化を目的として、疎水化処理を施したMCアレイ基板の表面特性の解析および最適保存条件の提案、ステンレス鋼製MCアレイ基板によるW/Oエマルションの作製特性の把握、ならびに生産性の面で有利なプリミックスMC乳化を用いたW/Oエマルションの作製に関する有意義な知見を得た。新たに開発されたプリミックスMC乳化プロセスは、食品や医薬品への応用に向けてさらなる研究開発が必要である。

審 査 の 要 旨

著者は、本研究において、単分散W/Oエマルションの安定かつ高効率作製を目的として、新たな基板素材および液滴作製プロセスを利用したマイクロチャンネル乳化に関する検討を行った。エマルションの液滴径と液滴径分布は、エマルションの保存安定性や呈味性等の諸性質に大いに影響を与える重要な因子である。目的および用途に応じて、前述の因子の自在制御が実現されれば、食感、呈味、安定性等が高度に設計された乳化食品の開発が可能になるとともに、機能や諸特性が精密に制御された化粧品、医薬品、および化成品の開発にもつながる。これまでに、MC乳化技術を利用した単分散エマルションの作製と応用に関する種々の研究開発がなされてきた。しかしながら、MC乳化技術の汎用化には、MCアレイ基板の素材およびMC乳化プロセスにおけるブレイクスルーが必要であった。本研究では、ステンレス鋼製のMCアレイ基板を利用した直接MC乳化による単分散W/Oエマルションの作製を実現したとともに、新たなMC乳化プロセスであるプリミックスMC乳化を利用したW/Oエマルションの作製に関する基礎特性についても明らかにした。また、MC乳化によるW/Oエマルションの作製に不可欠なMCアレイ基板表面の疎水化および疎水性の維持についても有意義な知見が得られている。著者による以上の研究成果により、MC乳化の実用化および汎用化に繋がる多くの知見が得られている。

平成29年7月21日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士(生物資源工学)の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。