

氏名(本籍)	こばやし いさお 小林 功(群馬県)
学位の種類	博士(農学)
学位記番号	博甲第3080号
学位授与年月日	平成15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	農学研究科
学位論文題目	Development and Characterization of Microchannel Emulsification Devices for Monodisperse Emulsions (単分散エマルション作製用マイクロチャネル乳化デバイスの開発と特性評価)
主査	筑波大学教授(併) 工学博士 中嶋光敏
副査	筑波大学教授 農学博士 木村俊範
副査	筑波大学教授 農学博士 前川孝昭
副査	筑波大学教授 工学博士 向高祐邦

論文の内容の要旨

エマルションは、互いに不溶な二つ以上の液体の一方が他方の液体中に微小液滴として分散している系であり、食品、医薬品、化粧品など各種産業で幅広く利用されている。なかでも、分散液滴径の揃った単分散エマルションは、安定性が高く、諸物性の制御や予測が容易であることに加え、その特長を活かした種々の高機能材料の出発原料としても注目されている。ところが、機械的な剪断力により分散相となる液体を段階的に微小な液滴にする一般的な乳化機では、得られるエマルションが多分散であり、液滴径も経験的に制御しているのが現状である。

フォトファブリケーションを基盤とする半導体微細加工技術は、サブミクロン～数ミクロンのサイズの精密加工が可能な技術であり、近年における電子産業の目覚ましい発展に貢献している。この技術を利用して単結晶シリコン基板上に加工されたマイクロチャネル(MC)を用いたMC乳化が数年前に提案され、平均液滴径10～100 μm 、変動係数5%以下の単分散エマルションを作製することが可能となった。このMC乳化に関して、作製可能なエマルションの液滴径範囲の拡張および生産性の向上が課題として挙げられる。本研究では、液滴径数ミクロンの単分散エマルション作製用シリコン微細MCの開発を第一の目的とした。また、単分散エマルションの生産性向上を目指した貫通型MC乳化の開発およびその特性評価を第二の目的とした。本研究において、分散相として大豆油、連続相として(生理食塩)水を用いた。

チャネル幅4.7 μm 、チャネル深さ1.2 μm の標準型微細MCを新たに開発し、このMCを用いることで、平均液滴径3～5 μm で変動係数7%以下と液滴径数ミクロンの単分散水中油滴型(O/W)エマルションの作製が可能となった。また、界面活性剤としてペンタグリセリンモノウラレート(PGM)を用いて作製された食品用単分散O/Wエマルションのサイズとその分布は、40日間有意な変化は見られず、この単分散エマルションが合一に対して高い安定性を有していることが示された。

サイズの均一な微細貫通孔(貫通型MC)がシリコン基板上に高密に配置されている貫通型MC基板および貫通型MC乳化システムの開発に成功した。相当直径17.3 μm の歪んだ断面を持つ矩形貫通型MCを用いた場合に、平均液滴径32.5 μm 、変動係数2%以下の単分散O/Wエマルションを自発的に作製できることが分かった。また、矩形貫通型MCを有する基板は、本研究では最大で6.5ml/hの単分散エマルションを作製でき、貫通型MC乳化が単分散エマルションの生産性の向上に有効であることが示された。

相当直径 $18\ \mu\text{m}$ 程度でチャンネル長短辺比が異なる矩形貫通型MCを用いた場合に、長短辺比が3以上の矩形貫通型MCから変動係数2%以下の単分散O/Wエマルジョンを安定的に作製できることが明らかとなった。矩形貫通型MCにおいて、輪郭線が歪んでいる方が分散相のせん断と基板表面からの離脱を促進することを見出した。また、貫通型MC乳化における界面活性剤の影響についても検討を行い、陰イオン系と非イオン系界面活性剤を用いた場合は、変動係数3%以下の単分散O/Wエマルジョンを作製できることが示された。一方、陽イオン系界面活性剤を用いた場合は、負の電荷を有する基板表面と正の電荷を有する界面活性剤の親水基との間に強い親和力が働くために、単分散エマルジョンの作製は困難であった。

本研究でシリコン微細MCとシリコン貫通型MCの開発に成功したことにより、MC乳化デバイスを用いて作製可能な単分散エマルジョンの液滴径範囲が $3\ \mu\text{m}$ 以上へと拡張し、単分散エマルジョンの生産性も大幅に向上した。微細およびラージ貫通型MCの開発による単分散エマルジョンの液滴径範囲の拡大および貫通型MC基板の拡張、集積、積層によるスケールアップを実現することが、MC乳化デバイスを実用レベルのシステムとするために必要であると考えられる。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究は、単分散エマルジョンを広範囲な液滴径で効率的に作製できるマイクロチャンネル (MC) 乳化デバイスの開発を目的に、平板型微細MCを用いた液滴径数ミクロンの単分散エマルジョンの作製特性、単分散エマルジョンの効率的な作製を目指した貫通型MC乳化装置の開発、種々の矩形貫通型MCを用いた乳化特性が検討された。チャンネル相当直径が $1.7\ \mu\text{m}$ と従来の3分の1の大きさを有する微細MCの加工に成功し、このMCを用いることで液滴径数ミクロンの単分散エマルジョンの安定的な作製を可能とし、かつ作製された単分散エマルジョンが合一に対して長期間安定であることを実験的に明らかにした。また、著者はシリコン基板上に均一なサイズの微細貫通孔 (貫通型MC) が高密に配置される貫通型MC基板を考案し、歪みを有する矩形貫通型MCを含む基板を用いることで、連続相の流れのような外的なせん断応力を必要としない単分散エマルジョンの効率的な生産システムの開発に成功したことも評価される。さらに、単分散エマルジョンの作製が可能な矩形貫通型MCの長短辺比に閾値が存在することを明らかにした。これにより、矩形貫通型MCの形状の最適化に向けた指針が示されたと思われる。

以上、MC乳化により作製可能な単分散エマルジョンの液滴径範囲の拡張、単分散エマルジョンの効率的な生産システムとしての貫通型MC乳化装置の開発とその特性評価を行ったことは、今後の食品・化粧品・医薬品産業における単分散エマルジョン、マイクロデバイスの利用技術の発展において大いに貢献するものである。

よって、著者は博士 (農学) の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。