博 士 論 文 の 内 容 の 要 旨

氏名	武井和音
学位名	博士（工学）
学位授与年月日	2022 年 3 月 20 日
論文題目	乳化剤フリー水中油滴型（O/W）エマルションの実用化検討

（博士論文の内容の要旨）

エマルションは水と油のような互いに混ざり合わない液体の一方の液体が他方の液体中に液滴となり分散したコロイドである。そのため，エマルションは熱力学的に不安定であり，静置しておくと最終的に分離する。その要因は，例えば，油が水中に油滴となって分散して水中油滴型(O/W)エマルションになると，油/水界面積（S）が増大して，油/水界面張力（γ）と油/水界面積（S）の積で表される界面自由エネルギー（$G = \gamma S$）が増大するためである。そこで，一般に，エマルションは界面活性剤などの乳化剤を使用して油/水界面張力（γ）を低下させて，界面自由エネルギー（$G = \gamma S$）を低下させることにより分散安定化されている。一方，近年では，エマルション製品の高付加価値化のため，乳化剤を使用しないエマルション製品が求められるようになってきた。そこで，本論文では，乳化剤を使用しない O/W エマルション，すなわち，乳化剤フリー(Emulsifier-free； EF-） O/W エマルションの実用化を目標として，EF-O/W エマルションの調製方法，量産方法，食品や化粧品に用いられている油である植物油を分散質とした EF-O/W エマルションの分散安定性と分散安定化機構について検討した。

本論文は計 5 章から構成され，第 1 章の緒論では本研究の背景や目的を示し，本論文の構成について記載した。

第 2 章では，EF-O/W エマルションの調製方法について検討し，EF-O/W エマルションの実用化の可能性について論述した。低出力バス型（間接照射型）超音波照射器（Bath-US），高出力バス型（間接照射型）超音波照射器（HPBath-US），ホーン型（直接照射型）超音波照射器（Horn-US），ローターステーターホモゲナイザー（RS-HG）の 4 種の乳化機を用いて EF-O/W エマルションを調製し，乳化性能を検証した。その結果，高出力の乳化機（HPBath-US，Horn-US，RS-HG）が効率的に乳化できることを明らかとした。さらに，高出力超音波照射機（HPBath-US，Horn-US）が EF-O/W エマルション中の油滴を微細化することができ，その結果，EF-O/W エマルションの分散安定性が向上することを明らかにした。特に，HPBath-US は EF-O/W エマルション全体に超音波を照射することができるため，EF-O/W エマルション中の油滴の微細化に有効であることが明らかとなった。さらに，EF-O/W エマルションの実用化のため，HPBath-US を用いた EF-O/W エマルションの量産方法について検討し，HPBath-US にフローチャンバーを接続させた連続式乳化システムの乳化性能について論述した。その結果，HPBath-US とフローチャンバーを 5 台連結することにより，バッチ式と同等の乳化性能を発現するとともに，バッチ式による EF-O/W エマルションの約 40 倍の生産効率であることが明らかとなった。これらのことから，HPBath-US にフローチャンバーを接続させた連続式乳化システムにより EF-O/W エマルションの量産化することができ，実用化の可能性が示された。

第 3 章では，食品や化粧品などのエマルション製品で使用されている植物油を分散質とした EF-O/W エマルションの分散安定性を検討し，EF-O/W エマルションの実用化の可能性について論述した。植物油を分散質とした EF-O/W エマルションの分散安定性は，炭化水素油や高級脂肪酸を分散質とした EF-O/W エマルションよりも高いことが明らかになった。植物油を分散質とした EF-O/W エマルションの高い分散安定性は，植物油の高い粘度，高い密度，小さい油/水界面張力，低い水への溶解度に起因していることを明らかとした。植物油の小さい油/水界面張力による粒子径の小さな油滴の形成や界面自由エネルギーの低下，植物油の大きな密度によるクリーミングの抑制によって EF-O/W エマルションは分散安定化されることがわかった。また，植物油の低い水への溶解度のためオストワルドライプニングが抑制されて EF-O/W エマルションは分散安定化されることがわかった。これらのことから，エマルション製品で用いられている植物油を分散質とした EF-O/W エマルションは高い分散安定性を維持することができ，実用化の可能性が示された。

第 4 章では，EF-O/W エマルションの分散安定性に及ぼす温度の影響について検討し，EF-O/W エマルションの実用化に必要な EF-O/W エマルションの製造・保管温度について論述した。植物油に

多く含まれるトリグリセライドの 1 種であるトリオレイン（TO）を分散質とした EF-O/W エマルション(EF-TO/W エマルション)は，調製・保存温度が 15 ℃から 25 ℃では分散安定性が低下，25 ℃から 40 ℃では向上し，40 ℃以上では高い分散安定性を維持することが明らかとなった。EF-TO/W エマルションの 40 ℃以上における高い分散安定性は,TO 中のミクロドメイン(TO 分子の会合体)構造が温度上昇により変化して，TO/水界面張力が低下することに起因していることが明らかとなった。これらのことから，EF-TO/W エマルションの分散安定性には油滴内部の分子の状態（分子の会合や会合体の構造など）が関与していることが明らかとなった。また，EF-O/W エマルションの製造・保管には，油の種類により適した温度が存在することが明らかとなった。

第 5 章では，乳化剤フリーエマルションの実用化の方向性や本論文で得られた知見の活用方法などについて論述し，総括した。