

(第5号様式)

## 学位論文審査の結果の要旨

氏名	脇坂 聡
審査委員	主査 合谷 祥一 副査 吉井 英文 副査 小川 雅廣 副査 渡部 保夫 副査 受田 浩之

論文名

Study of O/W Nano-Emulsion Formation Using an Isothermal Low-Energy Emulsification Method in Food System

(食品系における一定温度下での低エネルギーな乳化方法を用いた O/W ナノエマルジョンの調製に関する研究)

審査結果の要旨

ナノエマルジョンは様々な方法によって調製でき、それらの調製方法は通常、高エネルギーあるいは低エネルギーな方法のどちらかに分類される。しかし、一定温度下での低エネルギーな乳化方法を用いた、植物油のような食品素材由来のナノエマルジョンの調製に関する報告はあまりない。一方、ポリグリセリン縮合リシノレート(PGPR)とポリグリセリンラウレートの混合物はすぐれた乳化能を有し、結果として、微細な O/W エマルジョンをホモジナイザーのような機械力なしで、調製することが可能という報告がある。しかし、O/W エマルジョンの調製のために PGPR が使用されるという報告は、特許を除いて見られない。また、微細エマルジョンの調製において、ポリグリセリン脂肪酸エステル(PGFA)を伴う混合系に対する PGPR の役割も明らかとなっていない。

本研究では、混合系における PGPR の乳化のメカニズムを明らかにすること、さらには、食品系における一定温度下での低エネルギーな乳化方法として、本方法が O/W ナノエマルジョンの調製に応用可能かどうかについて調べることを目的としている。その内容は以下のようにまとめられる。

まず、先に述べた微細エマルジョンを調製するための適切な過程を明らかにするために、水/PGPR-PGFA 混合乳化剤/植物油系の相図を構築した。この研究で調べたすべての系において、液晶相(Lc)およびスポンジ相(L<sub>3</sub>)を含む相が、PGFA 単独の場合より相図全体に広がった。各相から調製したエマルジョンの粒子径を調べたところ、L<sub>3</sub>単独相あるいはL<sub>3</sub>とLcの2相を含む領域のどちらかから乳化することにより、平均粒子径 50 nm 以下の O/W ナノエマルジョンを調製することができた。それらの結果から、乳化剤として PGPR と PGFA の混合物を用いたとき、平均粒子径 50 nm 以下の O/W ナノエマルジョンの形成に重要な要素は、Lc、L<sub>3</sub>、あるいはそれらの両方であることが示された。ここで先に述べた、特許論文における PGPR の役割が明らかになった。

次にこれをより実用的に発展させるため、水/PGPR およびヘキサグリセリンモノラウリン酸エステル (HGML)の混合物 (混合乳化剤 HLP) /植物油系において、水をグリセリンに置き換えることにより相挙動がどのように変化するかを調べ、一定温度下での低エネルギーな乳化方法を用いた O/W ナノエマルジョンの形成におけるグリセリンの影響について明らかにすることを試みた。相挙動に関する研究では、混合乳化剤 HLP 系における水をグリセリンに置き換えることで、 $L_c+L_3$  が低乳化剤濃度領域に向かって拡大することがわかった。O/W ナノエマルジョンは  $L_c+L_3$  から乳化することにより形成した。水をグリセリンに置き換えることは、グリセリン/混合乳化剤 HLP/植物油系における低濃度領域への  $L_c+L_3$  の拡大に関与し、結果として、同系における一定温度下での低エネルギーな乳化方法を用いた O/W ナノエマルジョンあるいはエマルジョンの調製可能領域を拡大させた。得られたエマルジョンの平均粒子径は、水/混合乳化剤 HLP/植物油系から得られるエマルジョンの平均粒子径より小さかった。それ故、グリセリンは混合乳化剤 HLP 系からのナノエマルジョンの調製を促進させることが確かめられた。

最後に、混合乳化剤 HLP を伴う一定温度下での低エネルギーな乳化方法を用いて、 $\beta$ -カロテン O/W エマルジョンの調製を試みた。本研究において調製された  $\beta$ -カロテン O/W エマルジョンは 40~100 nm の粒子径であったことから、本乳化方法を用いることで、高圧ホモジナイザーを用いることなく、 $\beta$ -カロテンを含有するナノエマルジョンの調製が可能であることが確認された。油に対する乳化剤の重量割合が高いほど、調製される  $\beta$ -カロテンナノエマルジョンの平均粒子径は小さく、外観は透明であった。より低い乳化剤濃度を用いて調製されたナノエマルジョンであっても、比較的小さな平均粒子径(約 100 nm)であり、粒度分布が狭く(PDI < 0.1)、そして、モノモーダルな粒度分布であった。さらに、 $\beta$ -カロテンナノエマルジョンの安定性に及ぼす保存時間と温度の影響について調べたところ、本乳化方法を用いて調製された  $\beta$ -カロテンナノエマルジョンは比較的、高い保存安定性を有することが確認された。

それらの結果から、混合乳化剤 HLP を伴う一定温度下での低エネルギーな乳化方法は  $\beta$ -カロテンナノエマルジョンの調製に適しており、いくつかの工業用アプリケーションにとって重要となる可能性があることが示唆された。

このように本研究では PGPR-PGFA 混合乳化剤を用いた場合にナノサイズのエマルジョンが形成される理由を明らかにしたのみならず、水をグリセリンに置換することの有用性を明らかにした。さらに、より実用的観点から、 $\beta$ -カロテンを含むナノエマルジョンの調製及び安定性について検討し、本研究での方法が安定な  $\beta$ -カロテンナノエマルジョンの調製に適していることを明らかにした。これらの内容は非常に高く評価できる。

論文の公開審査会は平成 27 年 2 月 7 日に愛媛大学農学部において開催され、論文発表と質疑応答がなされた。引き続き開催された学位論文審査委員会で審議した結果、審査委員全員一致して博士 (農学) の学位を授与するに値するものと判定した。