

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月13日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560757

 研究課題名（和文） 溶融分散冷却法での芯材滴離脱・合一の速度論的解析と
高含有単核マイクロカプセル調製

 研究課題名（英文） Kinetic analysis of leakage and coalescence of core droplets and
preparation of Core shell microcapsules with high content by melting
dispersion method

研究代表者

田口 佳成 (TAGUCHI YOSHINARI)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：30293202

研究成果の概要（和文）：複エマルジョン系を利用した溶融分散冷却法において、液滴調製時の高せん断過程や動的に物性が変化するマイクロカプセル化過程での芯材滴/壁材滴の離脱等の分散挙動を流体力学的、界面科学的検討を行った。また、分散挙動に関する相関式をもとにマイクロカプセルの最適高含有化・単核化操作プロセスを検討した。そして、マイクロカプセルの構造制御への分散挙動に関する速度式の応用の可能性が示唆された。

研究成果の概要（英文）：In the Melting dispersion method of multiple emulsion, dispersion behaviors of core and shell droplets such as leakage in the microencapsulation process were examined with hydrodynamics and interface chemistry. The suitable preparation process of microcapsules with high content and single core examined by using an equation for the dispersion behaviors was considered. Application of the equation for controlling microcapsule structure was suggested.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・反応工学・プロセスシステム

キーワード：マイクロカプセル，複合材料・物性，表面・界面物性

1. 研究開始当初の背景

複エマルジョン系を利用したマイクロカプセル化方法において、高含有化や単核化を指向した最適操作プロセス設計のためには、マイクロカプセル化過程で動的に変化する素材の物性と芯材滴/壁材滴の分散挙動との速度論的解析が不可欠である。しかしながら、ほとんどのマイクロカプセル化方法では工

学的体系化がなされていないため、経験的かつ試行錯誤的な検討が繰り返されている。そこで、工学的体系化を目的に検討を行った。

2. 研究の目的

溶融分散冷却法において、高含有化や単核化に直接関係する芯材滴/壁材滴の分散挙動とマイクロカプセル化過程で動的に変化する

る素材の物性ととの関係を界面科学的、流体力学的検討をもとに速度論的に解析すること、一般化した液滴の分散挙動に関する速度式を導出し、高含有化、単核化に指向した最適操作プロセス設計へ応用すること、さらに、溶融分散冷却法を工学的に体系化することである。

3. 研究の方法

本研究の目的を達成するための計画は以下のとおりである。平成22年度は、芯材滴/壁材滴の分散挙動を界面科学的、流体力学的に解析し、その依存性を明らかにする。平成23年度は、マイクロカプセル化過程とともに動的に変化する素材の物性と芯材滴/壁材滴の分散挙動との関係を速度論的に解析するとともに、離脱速度と合一速度に基づきマイクロカプセルの高含有化、単核化を試みる。平成24年度は、分散挙動に関する速度式を導出し、この速度式に基づき高含有化と単核化を指向したマイクロカプセルの調製をシミュレートし実験結果と比較検討することで、分散挙動モデルの再構築を行う。また、これまでの結果をもとに工学的手法を用いて溶媒分散冷却法を体系化するとともに、その他の複エマルジョン系を利用したマイクロカプセル化方法へも応用しその有効性を実証する。

4. 研究成果

(1) 含有率およびカプセル構造の終末速度への依存性と相関式

① シェル材の熱特性

溶融分散冷却法は、マイクロカプセル化過程では、滴径および構造を調整するためにシェル材はまず融解しており、その後、冷却し固化することでマイクロカプセルを調製する

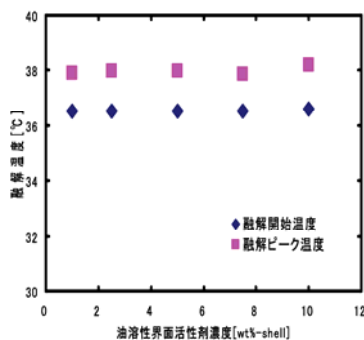


図 1

る方法である。そこで、基本的は物性として、図1にシェル材中の油溶性界面活性剤濃度(1~10 wt%) がシェル材の熱特性に及ぼす影響を示す。なお、熱特性は熱流速示査走査熱量計 (DSC-50 ; 島津製作所) により、室温から 3 °C/min で 50 °C まで加熱することで測定した。

図より、シェル材中の油溶性界面活性剤濃度によらず生成したマイクロカプセルはいずれも約 36 °C で融解が開始し、融解開始温度、融解ピーク温度は変化しないことが確認された。これらのことより、シェル材中の油溶性界面活性剤の添加は生成カプセルの融解性に影響を及ぼさないことがわかった。

② シェル材粘度と沈降速度

芯材の離脱・合一はシェル材滴中での芯材の移動のしやすさが1つの要因である。そこで、図2に油溶性界面活性剤濃度がシェ

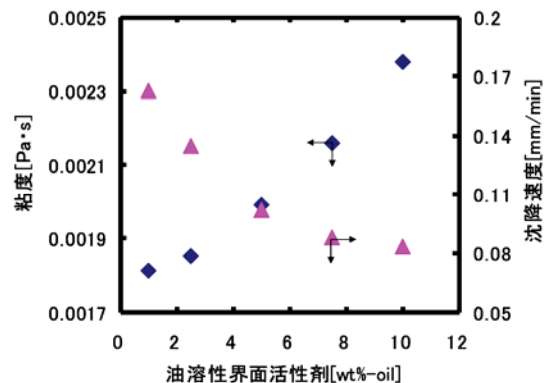


図 2

ル材粘度および沈降速度に及ぼす影響を示す。なお、粘度は振動型粘度計 (ビスコメイト VM-1A ; 山一電気工業株式会社) により測定した。また、沈降速度はシェル材中での実際の沈降速度を測定することにより求めた。

図より、油溶性界面活性剤濃度の増加とともにシェル材粘度は増加している。その結果、沈降速度は減少していることがわかる。

同様の測定を、シェル材中の可塑剤濃度を変化させ評価した。図3に、シェル材濃度がシェル材の粘度および沈降速度に及ぼす影

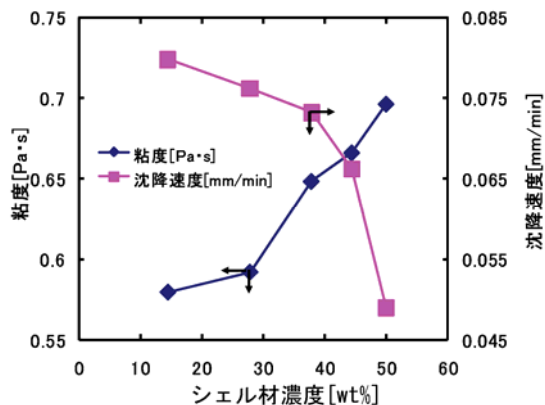


図 3

響を示す。図より、シェル材濃度が増加 (可塑剤濃度が減少) するほど粘度は増加している。その結果、沈降速度は減少していること

がわかる。

③沈降速度と含有率

図4に油溶性界面活性剤濃度が生成カプセルの平均粒子径およびカプセル化効率に与える影響を示す。図より、油溶性界面活性剤濃度が増加するほど生成カプセルの平均粒子径およびカプセル化効率が増加している。このことから、油溶性界面活性剤の添加による粘度増加による沈降速度の低下、すなわち、移動抵抗の増加と、溶性界面活性剤添加による芯物質と壁材との親和性の向上によりカプセル化効率、すなわち含有率が増加したと思われる。

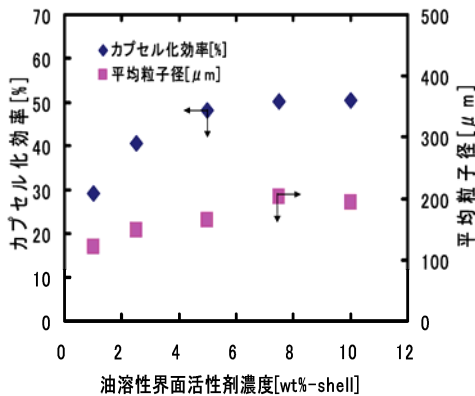


図4

図5にシェル材濃度がマイクロカプセルの熱特性および含有率に与える影響を示す。図よりシェル材濃度が増加するほど融点が上昇している。また、シェル材濃度が増加（可塑剤濃度が現象）するほど含有率が増加している。このことから、沈降速度の抑制することで含有率が向上していることがわかる。

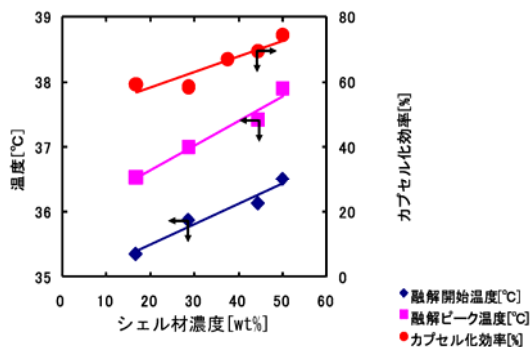


図5

④含有率の終末速度への依存性

図6にシェル材濃度がL/dpとカプセル化効率に及ぼす影響を示す。終末速度Lはストークスの式から算出し、この式に本研究で用いた物質の各物性値を代入することで算出した。このLをマイクロカプセルの平均粒子径dpで割ることにより、単位時間当たり

シェル材滴径にたいして芯材がどの程度移動するかを表すL/dpを算出しカプセル化効率との関係を示した。また、図7にはカプセル化効率のL/dpへの依存性を示す。

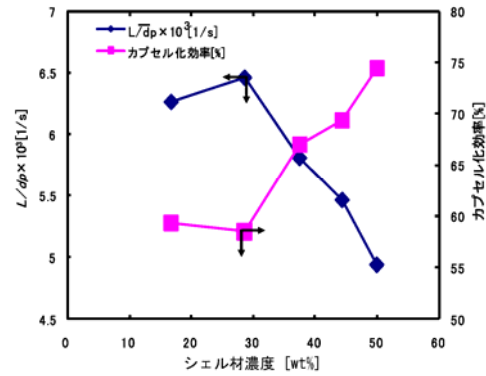


図6

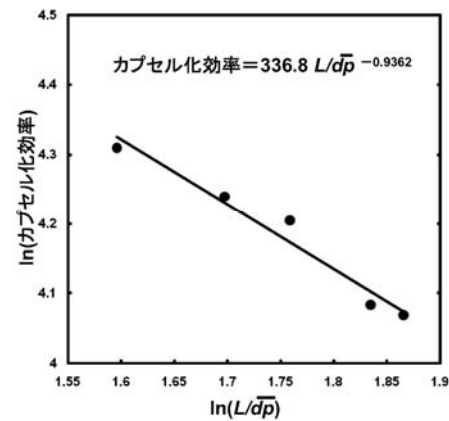


図7

図6より、シェル材濃度が増加するほど粘性抵抗が増加し、Lが小さくなっていること、その結果、壁材滴径に対する芯材の移動距離が小さくなり、離脱が抑制されカプセル化効率が増加していることがわかる。また、図7より、L/dpとカプセル化効率の依存性は

$$\text{カプセル化効率} = 337 L/dp^{-0.936}$$

であることがわかった。

このことより、カプセル化効率、すなわち含有率は、平均粒子径と単位時間当たりの芯物質の移動距離とから制御可能であることがわかった。

(2) 意義と今後の展望

①成果の意義

- ・導出した相関式をもとに芯材の合一と離脱を制御することで、溶融分散冷却法による高含有や単核型といったある特性を指向した操作プロセスが効率的に設計できるようになる。
- ・溶媒分散冷却法は人体や環境に安全なマイ

クロカプセルを調製する優れた方法であることから、医薬品分野や食品分野での新規カプセル化製剤や機能性食品の開発などが低コストで短期間に開発されることとなり、飛躍的に研究開発が進行する可能性がある。

・芯材/壁材滴の分散挙動に関する速度式や関連する知見は、その他の複エマルジョン系を利用したマイクロカプセル方法にも適用可能であることから、その他のマイクロカプセル化方法においてもある特性を指向した最適操作プロセスの設計が可能となり、また、様々なマイクロカプセル化方法の工学的体系化にも貢献する。

②今後の展望

芯材滴間および芯材滴とシェル材との合一挙動を今後さらに明らかにし、複エマルジョン系を利用した様々なカプセル化方法の最適操作条件確立と工学的体系化を目指す。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田口 佳成 (TAGUCHI YOSHINARI)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：30293202

(2) 研究分担者

田中 真人 (TANAKA MASATO)

新潟大学・自然科学系

・フェロー

研究者番号：40018495