



岡山大学記者クラブ

文部科学記者会

科学記者会

御中

令和 3 年 12 月 24 日

岡 山 大 学

## 自己多層乳化を用いたマトリョーシカ微粒子の調製 ～油と水を混ぜてすぐ固めるだけ～

### ◆発表のポイント

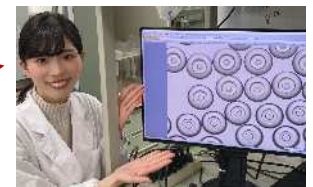
- ・マイクロ流路<sup>(1)</sup>と呼ばれる細い流路内で、油と水を混ぜた後、液滴を固化することで、マトリョーシカのような構造の多層マイクロカプセル<sup>(2)</sup>を調製しました。
- ・実験によって、カプセルの直径や膜の層数を制御する条件を明らかにしました。カプセルの構造を維持したまま、膜の膨潤特性<sup>(3)</sup>や分子透過性も制御できることを示しました。
- ・本技術は、高分子微粒子材料の構造制御に関する研究成果で、化粧品、化成品、医薬品などの多様な分野において、内包物の徐放挙動<sup>(4)</sup>を高度に制御する技術として応用が期待されます。

岡山大学学術研究院自然科学学域（工）の渡邊貴一研究准教授と同大学院自然科学研究科博士前期課程の安原有香大学院生と同学術研究院自然科学学域（工）の小野努教授は、マイクロ流路と呼ばれる髪の毛ほどの細い流路内で油と水を混合した後、液滴を紫外光で固めるという簡便な手法を用いて、大きさのそろった多層構造のマイクロカプセルを連続的に調製する技術を開発しました。また、原料の送液速度や初期組成、膜物質の化学構造を変えることによって、マイクロカプセルの直径や膜の層数、分子透過性などを精密に制御できることも示しました。

これらの研究成果は 12 月 22 日、アメリカ化学会の「*ACS Applied Polymer Materials*」誌に掲載されるとともに、アメリカ化学会(ACS)が発行する全雑誌から編集委員の推薦に基づき 1 日 1 論文のみが選出される ACS Editor's Choice に選ばれました。今回見いだした研究成果は、高分子微粒子の新たな構造制御法として、化粧品、化成品、医薬品などの分野で応用展開が期待されます。

### ◆研究者からのひとこと

自己多層乳化現象に関して、膜の層数を制御する手法の確立、形成過程の観察やカプセル化の実現に価値があると思います。ACS Editor's Choice にも選ばれ、膨大な実験条件に挫けず研究を続けて本当に良かったと思います。支えてくださった研究室の皆様に感謝します。



安原 大学院生

サラダ用ドレッシングを混ぜるような簡単な操作で、従来法では作りにくい複雑な構造を作ることに取り組んだ研究です。研究室の有する高度なマイクロ流体工学技術と安原さんの絶え間ない努力の融合によって、非常に興味深い現象を解析・制御することができました。



渡邊 研究准教授



## PRESS RELEASE

### ■発表内容

#### <現状>

マイクロ流路と呼ばれる髪の毛1本ほどの細い流路内で分散相の油と連続相の水を混ぜる（乳化する）と、分散相が連続相によって周期的にせん断されて、大きさのそろった液滴が連続的に生成されます。この乳化操作を2回繰り返すと液滴の中に液滴が存在する複合液滴が得られます。さらに、その外側のみを重合し固化すると、化粧品・化成品・バイオ医薬品などに幅広く応用されるマイクロカプセルが得られます。近年、マイクロカプセルに含まれる内包物の放出特性を制御するために、膜の構造や層数を制御する技術の開発が進んでいます。しかし、従来の方法では、多段階の煩雑な乳化操作が必要で、得られる液滴も不安定といった課題がありました。

#### <研究成果の内容>

本研究では、分散相に疎水性モノマー<sup>(5)</sup>、水、それらを溶解する共溶媒を混合した溶液、連続相に分散剤を含む水溶液を使用した場合、それらをマイクロ流路内で混合すると、2液合流部で分散相液滴が形成されるとともに、分散相に含まれる共溶媒が連続相に放出されることによって、液滴内で自発的にモノマーと水が交互に層構造を形成する自己多層乳化現象<sup>(6)</sup>が起これ、従来法では調製が困難な多層構造の複合液滴が1段階の乳化で形成されることを見いだしました（図1）。続いて、流路下流で液滴内のモノマー濃厚相を紫外光で重合すると、液滴の構造を反映した多層構造のマイクロカプセルが得られました（図2）。また、自己多層乳化現象で得られる複合液滴の層数は、初期の分散相組成から予測できるだけでなく、初期の液滴直径から、各層の直径も精度良く予測できることも実証しました。さらに、膜材料として高分子イオン液体<sup>(7)</sup>を適用した場合、多層マイクロカプセル調製後にイオン液体部位のアニオン交換反応<sup>(8)</sup>によって、高分子イオン液体を疎水性から親水性に変えることで、膜の膨潤特性や分子透過性が制御できることも示しました（図3）。

#### <社会的な意義>

今回観察された自己多層乳化現象は、これまでにいくつかのエマルジョン調製で報告されています。しかし、この現象で得られる多層構造の液滴は不安定なため、材料調製に応用することが困難でした。本研究では、自己多層乳化現象をマイクロ流路内で精密に解析・制御し、多層マイクロカプセルの鋳型として利用した初めての事例です。この研究成果は、従来法では調製が困難であった複雑な構造も高分子微粒子の構造設計に応用できる可能性を示しており、今後、高分子微粒子材料のさらなる高機能化に貢献することが期待されます。

## PRESS RELEASE

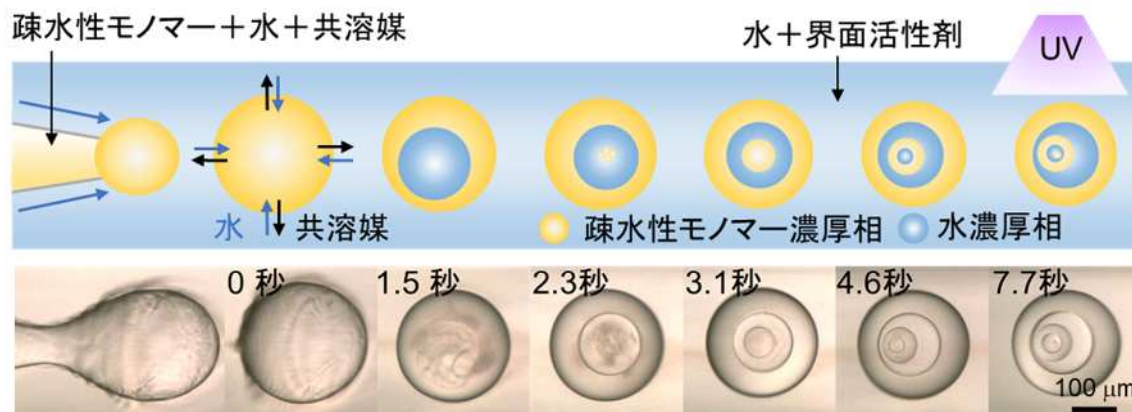


図1. マイクロ流路内での多層マイクロカプセルの形成過程

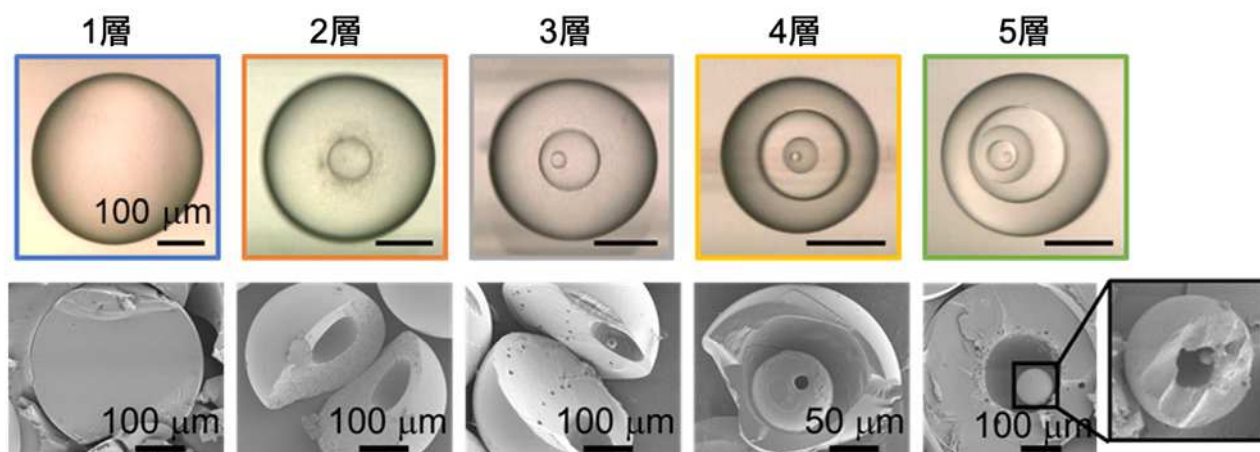


図2. 液滴の構造を反映した多層マイクロカプセル

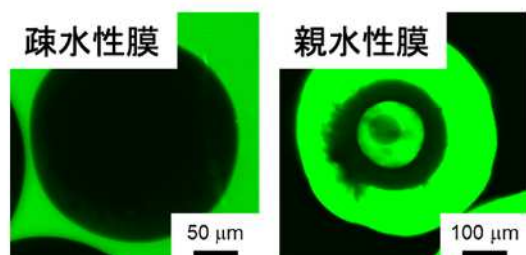


図3. 膜材料として高分子イオン液体を用いた場合の膜物性制御  
(親水性膜のみ親水性物質(緑)を透過)

### ■論文情報

論文名 : Multilayer Poly(ionic liquid) Microcapsules Prepared by Sequential Phase Separation and Subsequent Photopolymerization in Ternary Emulsion Droplets

掲載紙 : *ACS Applied Polymer Materials*

著者 : Takaichi Watanabe, Yuka Yasuhara, Tsutomu Ono

DOI : 10.1021/acsapm.1c01315

URL : <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acsapm.1c01315>



## PRESS RELEASE

### ■研究資金

本研究は、JSPS 科研費 JP21K04749 の支援を受けて実施しました。

### ■補足・用語説明

1. **マイクロ流路**：微細加工技術を利用して作製された、マイクロサイズの微小容器の総称です。近年、化学工学や有機合成、生物工学などへの応用が盛んにおこなわれています。
2. **多層マイクロカプセル**：マイクロサイズの液滴表面が膜で覆われた微粒子をマイクロカプセルと呼びます。なかでもマトリョーシカ人形のように、カプセルの中にカプセルが含まれる多層構造微粒子は多層マイクロカプセルと呼ばれ、新規機能性材料として注目されています。
3. **膨潤特性**：ゲル状材料が液体を吸収し、膨らむ性質のことです。本研究では、カプセルを調製後、膜の親水性／疎水性を変化させることで、各種溶媒に対するカプセルの膨潤特性を調節できます。
4. **徐放挙動**：カプセルの内包物がカプセルの外に徐々に放出される挙動のことです。多層構造のカプセルでは、より内側の層に含まれる内包物を外側の層に含まれるものよりも遅いタイミングで放出するといった多段階の放出を実現できます。
5. **モノマー**：高分子を構成する低分子の単位分子で、単量体とも呼ばれます。これを熱や光によって重合すると、高分子が得られます。
6. **自己多層乳化現象**：液滴内で自発的に次々と新たな液滴が生じて、多層構造の液滴が形成される現象です。液滴の内外で溶媒の移動が促進されることで誘起されると考えられています。
7. **高分子イオン液体**：イオン液体は、不揮発性や二酸化炭素吸収能、イオン伝導性、デザイン性などの性質を示す 100°C 以下で液体の有機塩の総称です。イオン液体を重合することで得られる高分子樹脂を高分子イオン液体と呼びます。高分子イオン液体はイオン液体の性質と高分子の成形加工性を併せもつ材料です。
8. **アニオン交換反応**：イオン液体または高分子イオン液体を構成するアニオン種を交換する反応です。この反応によってイオン液体材料の物性（たとえば親水性／疎水性）を調節できます。



<お問い合わせ>

岡山大学学術研究院 自然科学学域

研究准教授 氏名 渡邊 貴一

(電話番号) 086-251-8072

(FAX) 086-251-8083



岡山大学は持続可能な開発目標 (SDGs) を支援しています。