

氏 名	ボク 朴	シュン 俊	ケイ 奎
学位(専攻分野)	博 士 (農 学)		
学 位 記 番 号	農 博 第 1540 号		
学位授与の日付	平成 18 年 3 月 23 日		
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当		
研究科・専攻	農 学 研 究 科 食 品 生 物 科 学 専 攻		
学 位 論 文 題 目	Enzymatic synthesis of monoacyl sugar alcohols and their surfactant properties (糖アルコール脂肪酸モノエステルの酵素合成およびそれらの界面活性剤特性) (主 査)		
論文調査委員	教 授 安 達 修 二	教 授 井 上 國 世	教 授 村 田 幸 作

論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、*Candida antarctica* 起源の固定化リパーゼを用いたアセトン中での糖アルコールと脂肪酸の縮合による糖アルコール脂肪酸エステル的高效的な合成法の確立と、生成物の界面活性剤としての特性を明らかにすることを目的としている。本論文は、糖アルコール脂肪酸エステルの酵素合成法と食用界面活性剤としての特性をまとめたもので、2部6章よりなっている。

第1部は、回分式反応器を用いたエリスリトールオレイン酸エステルの合成に関する第1章、各種のエリスリトール脂肪酸エステルを連続的に合成する反応器システムの構築に関する第2章、及び前章で構築した反応器システムを用いた各種糖アルコール脂肪酸エステルの連続合成に関する第3章の3章からなっている。

第1章では、固定化リパーゼを用いたアセトン中での回分式反応について、エリスリトールとオレイン酸の縮合によるエリスリトールオレイン酸モノ及びジエステルの合成における各エステルの収率に及ぼす両基質のモル比と、脱水剤であるモレキュラーシーブの添加量の影響について検討し、モノエステルを高収率で得るには、オレイン酸/エリスリトールのモル比を2から3程度に抑え、かつモレキュラーシーブを添加しないほうがよいことを示した。

第2章では、エリスリトールを充填したカラムと固定化リパーゼを充填したカラムを直列に連結し、アセトンに溶解した脂肪酸溶液を順次、通液することにより、対応するエリスリトール脂肪酸エステルを連続的に合成する押し出し流れ型反応器システムを提案し、約1.3kg/(L-反応器・日)という高い生産性で、少なくとも2週間にわたって安定に操作できることを検証した。

第3章では、4種の糖アルコール(アラビトール、リビトール、キシリトール及びソルビトール)と3種の飽和脂肪酸(ラウリン酸、ミリスチン酸及びパルミチン酸)から、前章で構築した反応器システムを用いて、対応する12種の糖アルコール脂肪酸モノエステルを合成し、アセトンへの溶解度の低いソルビトールの脂肪酸エステルの合成を除いて、1.3~2.0kg/(L-反応器・日)という高い生産性を達成した。

第2部は、各種糖アルコール脂肪酸モノエステル水溶液の表面張力を種々の濃度で測定した第4章、同エステルを用いて調製した水中油滴(O/W)型エマルジョンの安定性に関する第5章、及び同モノエステルの耐熱性芽胞菌に対する静菌性に関する第6章の3章からなっている。

第4章では、アシル鎖の炭素数が8~14(偶数のみ)の各種糖アルコール飽和脂肪酸モノエステル水溶液の表面張力をWilhelmy法により種々の濃度で測定し、臨界ミセル濃度(CMC)、CMCにおける表面張力 γ_{CMC} 、及び界面占有面積を算出した。いずれの糖アルコール脂肪酸モノエステルもアシル鎖が長いほどCMCが低く、またほとんどの糖アルコール脂肪酸モノエステルではアシル鎖が長くなると、 γ_{CMC} が大きくなる傾向を認めた。しかし、キシリトール脂肪酸エステルは γ_{CMC} がアシル鎖の炭素数にほとんど依存しないことを見出した。また、界面占有面積は糖アルコール脂肪酸モノエステルの種類にほとんど依存しないことを示した。

第5章では、油相及び水相としてそれぞれ大豆油と各種糖アルコール脂肪酸モノエステルの水溶液を用いて O/W 型エマルジョンを調製して、各種糖アルコール脂肪酸モノエステルの乳化能を評価し、いずれのモノエステルも優れた乳化能をもつことを示した。また、O/W 型エマルジョンを室温に保存、または 121°C で 10 分間処理したときの安定性を測定し、各種糖アルコール脂肪酸エステルの乳化安定性を比較したところ、エリスリトール脂肪酸モノエステルが高い乳化安定性を有することを見出した。

最終の第6章では、数種の耐熱性芽胞菌に対する最小生育阻害濃度を測定することにより、各種糖アルコール脂肪酸モノエステルの静菌効果を比較し、エリスリトール及びキシリトールのミリスチン酸またはパルミチン酸モノエステルは、現在汎用されているジグリセロールやショ糖の脂肪酸モノエステルと同等またはそれ以上の静菌効果を有することを見出した。

論文審査の結果の要旨

モノアシルグリセロールやショ糖脂肪酸モノエステルなどの非イオン性界面活性剤は、食品工業では、エマルジョンの調製、脂溶性物質の可溶化、抗菌などの目的で広く用いられている。糖アルコールはグリセロールと類似した構造をもつが、グリセロールより水酸基の数が多い。また、水酸基の数が同じでも配向の異なる異性体が存在する。そこで著者は、各種糖アルコールに脂肪酸を付加したモノエステルは食用界面活性剤として有望であり、既存の食用界面活性剤とは異なる特性を有する可能性を推量した。そこで、一級水酸基に対して比較的高い選択性をもつ *Candida antarctica* 起源の固定化リパーゼによるアセトン中での縮合による各種糖アルコール脂肪酸エステルの合成について、反応条件の検討と連続合成用の反応器システムの構築、並びに各種糖アルコール脂肪酸モノエステルの界面活性剤としての特性の評価、水中油滴 (O/W) 型エマルジョンの調製への利用、及び数種の耐熱性芽胞菌に対する静菌性を検討した。成果として評価すべき点は次のとおりである。

1. 回分式反応器を用いてエリスリトールオレイン酸モノ及びジエステルの収率に及ぼす反応条件の影響を検討して、モノエステルを高収率で合成する条件を明らかにした。
2. 各種の糖アルコール脂肪酸モノエステルを連続的に合成する押出し流れ型反応器システムを構築し、1.3~2.0kg/(L-反応器・日)という高い生産性を実現した。
3. 各種糖アルコール脂肪酸モノエステル水溶液の表面張力を測定し、臨界ミセル濃度などの界面活性剤としての特性値を評価した。また、糖アルコールの炭素数が同じ場合、水酸基の向きは界面活性剤特性に顕著な影響を及ぼさないことを明らかにした。
4. エリスリトール飽和脂肪酸モノエステルを用いて調製した O/W 型エマルジョンは室温及びレトルト処理条件下で優れた乳化安定性を有することを示した。
5. エリスリトール及びキシリトールのミリスチン酸またはパルミチン酸モノエステルは耐熱性芽胞菌に対して優れた静菌性を有することを見出した。

以上のように本論文は、有機溶媒中での固定化リパーゼを用いた界面活性剤の合成に対して、反応条件及び大量生産法の確立、並びに生成物の特性と用途について新たな知見を得たものであり、生体触媒工学、食品界面科学及び食品加工学に寄与するところが多い。

よって、本論文は博士（農学）の学位論文として価値あるものと認める。

なお、平成18年1月19日、論文並びにそれに関連した分野にわたり試問した結果、博士（農学）の学位を授与される学力が十分あるものと認めた。