

(様式2)

学位論文の概要及び要旨

氏 名 大橋 哲也 印

題 目 エタノール結晶変換法による新規構造体結晶粒子の創製と応用

学位論文の概要及び要旨

トレハロース(α, α -トレハロース)およびマルトースは広く自然界に存在し、古くから日常的に食されてきた糖質であるが、現在では澱粉を原料として工業的に大量生産されている。トレハロースは冷蔵、冷凍、乾燥時にタンパク質を保護したり、脂質の酸化を抑制するなど多くの機能を有しており、食品や化粧品原料として国内で年間約3万トンが消費されている。トレハロースは2含水結晶として工業生産されているが、無水結晶の多形が存在する。

トレハロースの生体保護機能を解明するため、示差走査熱量計(DSC)による結晶変換の研究が数多くなされているが、結晶粒子の物理的な構造変化に関する報告は少ない。本研究では、2含水結晶を無水結晶に変換する方法および変換条件を検討した結果、エタノールを結晶水脱水の媒体として使用する結晶変換(エタノール法)により、微細結晶からなる多孔性の無水結晶を創製することに成功した。得られた無水結晶は比表面積が約 $3 \text{ m}^2/\text{g}$ で平均径 $0.3 \mu\text{m}$ の細孔を持ち、空隙容積は 0.3 mL/g であり、糖質の結晶としては例の無い多孔性の構造体粒子であった。エタノール法での結晶変換過程をAvrami式で相関した結果、従来からの乾燥等による結晶変換と著しく異なる特異的な反応であることが分かった。

エタノール法を1含水結晶 β -マルトースから無水結晶への変換に応用した結果、空隙容積が 1.1 mL/g の無水結晶粒子が得られた。さらに、この無水結晶はアノマー分析、粉末X線回折の結果、全く新しい結晶構造の無水 β -マルトースであることが明らかとなった。この新規な結晶形の吸湿性は低く、含水結晶とアノマー形が同一であるため、吸湿する場合も速やかに1含水結晶 β -マルトースに変換した。吸湿して得られた1含水結晶 β -マルトースの空隙容積は 0.8 mL/g で多孔性の構造を保っており、多孔性の含水結晶の創製も可能となった。

得られたトレハロースおよびマルトースの多孔性結晶粒子は溶解性に優れており、空隙を有するため粉末化基材に適しており、亜麻油の粉末化を行った結果、揮発成分を閉じ込めるなどの機能を有していることが明らかとなった。また、無水結晶トレハロースやマルトースは、吸水して含水結晶に再変換する。この特性を利用して、酵素等の粉末化基剤として応用し、その有用性を明らかにした。

エタノール法は糖質をはじめ、有機酸など多くの含水・無水結晶を持つ物質の結晶変換に応用することで新たな粒子が生まれる可能性を持っていると共に、結晶変換の反応機構の解明、多孔性粒子の用途など今後の研究の展開が期待される。