

学位論文要旨

植物種子および葉由来成分を含む消臭剤開発に関する研究

邊見 篤史

著者が所属するリリース科学工業（株）では、カキ (*Diospyros kaki*) の果実部に含まれるカキタンニンを製剤化し、さまざまな消臭剤に利用されている。カキタンニンはカテキン類と同様の機序で臭気成分を消臭(化学的消臭)していると推定される。化学的消臭は、悪臭に対して選択的に利用できることが利点であるが、多種類の悪臭成分を同時に消臭できないことが欠点でもある。つまり、カキタンニンでは消臭できない臭気成分があり、消臭の目的を果たせられない場合がある。本研究では、カキタンニンでは消臭が難しい臭気成分に対して消臭効果を有する天然素材を探査し、その消臭成分を明らかにするとともに、その有効利用方法を検討した。

第1章では、カキタンニンでは消臭が難しいアリルメチルスルフィドに対する消臭効果を示す物質の探索を目的として、109種類の植物からスクリーニングを行い、フユアオイ (*Malva verticillata* L.) の葉からの抽出物が一番高い71.9%の消臭効果を示したため、シリカゲルを用いたクロマトグラフィーで活性画分の分画を繰り返し、消臭成分として1,8-シネオールを同定した。1,8-シネオールは2-ノネナール、スカトール、およびジメチルトリスルフィドなどの疎水性の臭気成分に対して消臭効果を示し、その消臭メカニズムは活性炭のようにファンデルワールス力を介していること明らかにした。

第2～5章では、ビワ (*Rhaphiolepis bibas*)、ヤマモモ (*Myrica rubra* SIEB. et ZUCC.VC.) およびブラジルナツツ (*Bertholletia excelsa*) の種子からヘキサンで抽出して得た種子油に着目し、酸価、けん化価などの化学的性状、種子油の組成、脂肪酸組成、および12種類の臭気成分に対する消臭活性を確認し、その消臭剤としての有効利用方法を検討した。ビワ種子油は淡黄色の固形油であり、酸価は50.6、ケン化価は277.2、よう素価は42.0を示し、グリセリドに含まれている脂肪酸や遊離脂肪酸の平均分子量は小さく、不飽和脂肪酸量が少ない酸化されにくい不乾性油であることがあきらかになった。ビワ種子油中には、ベンズアルデヒド(70.3%)、安息香酸(0.4%)、および遊離脂肪酸(12.9%)が含まれていることが分かり、その遊離脂肪酸の組成は、パルミチン酸、リノール酸、ベヘン酸、およびリグノセリン酸などが含まれていることを確認した。またビワ種子油は、アンモニア、トリメチルアミン、硫化水素、イソ吉草酸、および2-ノネナールに対して消臭率90%以上の強い消臭効果を示し、同じ臭気成分に対するベンズアルデヒドの消臭効果と比較したところ同様の消臭効果を示した。また、ビワ種子油に含まれるパルミチン酸とリノール酸が、アンモニア、トリメチルアミン、硫化水素、ジメチルジスルフィド、およびジメチルトリ

スルフィドの消臭に関与していることが明らかになった。ヤマモモ種子油は淡黄色の液状の油脂であり、その油脂組成は、トリアシルグリセリド（80.5%）、ジアシルグリセリド（5.4%）、遊離脂肪酸（14%）を含む油脂であり、ビワ種子油と異なりトリアシルグリセリドを多く含む。遊離脂肪酸には、リノール酸、およびオレイン酸の不飽和脂肪酸量が多い。化学的性状は、酸価が25.9、けん化価は189.4、ヨウ素価は118.2を示し、ヤマモモ種子油はビワ種子油より脂肪酸の平均分子量は大きく不飽和脂肪酸量が多いという性質をもつ半乾性油であることを明らかにした。ヤマモモ種子油は、2-ノネナールあるいはイソ吉草酸などに対して90%以上の消臭効果を有し、アンモニア、ジメチルトリスルフィドに対して80%以上を示し、ヤマモモ種子油の成分についても種子油と同様に消臭効果を測定した結果、アンモニア、およびイソ吉草酸に対する消臭効果は、リノール酸およびオレイン酸が関与しており、2-ノネナールおよびジメチルトリスルフィドに対しては、これらの遊離脂肪酸とトリアシルグリセリドによるものと推定した。また、ヤマモモ種子油はタンパク質を含むことから乳化剤としての利用も考えられ、また、体臭として問題となる臭気成分に対する消臭効果が高いことから、石鹼や乳液などの化粧品原料としての利用が期待される。さらに、異なる性質をもつビワ種子油とヤマモモ種子油の混合油を調製し消臭効果を評価したところ、ビワ種子油とヤマモモ種子油を1:3の割合の割合で混合した混合油は、トリメチルアミン、硫化水素、アリルメルカプタン、アリルメチルスルフィド、およびジメチルジスルフィドに対する消臭効果が単一種子油よりも向上した。ブラジルナッツ種子油の化学的性状を調べた結果、酸価は5.5、よう素価は91.5、けん化価は191.6であり、ヤマモモ種子油に似た化学的性状を示し、酸化が起こりにくい不乾性油に分類された。種子油の組成は、トリアシルグリセリド（96.9%）、およびジアシルグリセリド（2.4%）を含み、微量成分としてアラキドン酸、Cis-8-エイコセン酸、およびヘンエイコセン酸が含まれているが示された。一方、トリアシルグリセリドを構成する脂肪酸の組成は、リノール酸（37.8%）とオレイン酸（35.9%）、パルミチン酸（14.8）、およびステアリン酸（9.5%）であることを明らかにした。ブラジルナッツ種子油は、イソ吉草酸、および2-ノネナールに対して80%の消臭活性を示し、体臭用の消臭剤として有効利用できることを明らかにした。

遠見 篤史より提出された博士学位論文の論文審査及び試験結果

博士学位申請者の邊見篤史氏が勤務するリリース科学工業（株）は、カキタンニンの消臭効果に着目し、消臭剤原料としてカキタンニンを製造、販売している。同社では、カキタンニンでは消臭が難しい臭気物質に対する消臭作用を有する天然素材の探索に取り組んでいる。邊見氏は植物の葉及び種子に含まれる成分に着目し、消臭作用を有する物質の単離と消臭効果、その消臭メカニズムについて検討した。その結果、フュアオイ (*Malva verticillata L.*) の葉の抽出物にアリルメチルスルフィドに対する消臭作用を有し、その消臭成分が 1,8-シネオールであることを明らかにした。さら、1,8-シネオールは疎水性の臭気物質に対して消臭作用を有し、その消臭メカニズムはファンデルワース力による相互作用であることを示した。また、ビワ (*Raphiolepis bibas*)、ヤマモモ (*Myrica rubra Sieb. Et Zucc. vc*) 及び (*Bertholletia excelsa*) の種子から得られた種子油について、化学的特徴、種子油の組成や遊離脂肪酸の組成など各種子油の特徴、及び 12 種類の臭気成分に対する消臭作用を持つことを明らかにした。各種子油は特に体臭の原因となる臭気成分に消臭剤としての付加価値があることを示し、化粧品用消臭剤原料として利用の可能性を示した。

以上の研究成果を 6 編の学術論文（欧文誌 2 編、和文誌 3 編）にまとめて発表すると共に、6 件の特許を取得している。これらの研究業績は天然素材を有効活用し、新しい産業分野の創出に大きく貢献するものである。外国語（英語）の筆記試験は、欧文誌に投稿し採択された学術論文の第一著者が邊見氏であることから、それをもって合格と判定した。また本論文に関する口頭諮問を令和 6 年 2 月 22 日（月）に開催した博士論文公聴会において行い、出席者から出された多くの質問に適切に回答したことから、合格と判定した。

よって、審査員一同は邊見篤志氏が博士（生命科学）の学位を授与されるのに十分な資格を有していると判断するものである。