

を明らかにした。一方、分解率 70% 以上の大豆リゾリン脂質の透過率は pH や食塩濃度に影響されにくいことから、耐酸性、耐塩性に優れた親水性の乳化剤であることがわかった。

第 3 編では、穀物種子の澱粉粒に含まれる脂質（リゾリン脂質、モノグリセリド、脂肪酸）と大豆リゾリン脂質について澱粉複合体形成能を比較検討した。その結果これらの脂質はその構成脂肪酸の種類に関係なく、いずれもアミロースおよび澱粉と複合体を形成することが明らかにされた。

しかし、不飽和脂肪酸モノグリセリドについては相反する報告があり、さらに詳細な研究を行なった。その結果、不飽和脂肪酸からなるモノグリセリドの澱粉複合体形成能の相違は、水溶液で分散させる方法の違いから生じることが分かった。以上の結果から不飽和脂肪酸エステルでも飽和脂肪酸エステルと同じく澱粉複合体を形成することが明らかになった。

しかしながら、飽和脂肪酸と不飽和脂肪酸では立体構造が異なるために、澱粉複合体形成に必要な最小単位の澱粉分子の研究を行なった。その結果、C18:0 の飽和脂肪酸であるステアリン酸モノグリセリドを包接するアミロースの重合度は DP33 であり、C18:1 の不飽和脂肪酸であるオレイン酸モノグリセリドのそれは DP35 であっ

た。この結果から、飽和脂肪酸と不飽和脂肪酸の澱粉複合体は包接するのに必要なアミロース鎖長が異なることがはじめて明らかになった。

第 4 編では、大豆リゾリン脂質の小麦澱粉ゲルのレオロジー特性および糊化に及ぼす影響をブラベンダーアミログラフで検討した。その結果、大豆リゾリン脂質は小麦澱粉の糊化温度を上昇させ、澱粉と複合体を形成することが確認された。また、大豆リゾリン脂質と複合体を形成した小麦澱粉ゲルの物性変化は長期にわたり安定していることから、大豆リゾリン脂質は優れた澱粉の老化抑制作用があることがわかった。

以上の研究結果から大豆リゾリン脂質は、大豆リン脂質と異なり澱粉と複合体を形成し、従来のステアリン酸モノグリセリドなどの合成系乳化剤よりも優れた老化抑制作用があることが明らかになった。本研究でなされた研究成果は、食感を改良した麺類、ポテト菓子、ビスケットなどの澱粉加工食品分野において新商品開発の基礎となった。更に、大豆リゾリン脂質は、耐酸性、耐塩性に優れた親水性乳化剤であることから、醤油や酢を配合した調味料、ドレッシング、マヨネーズやさらに過酷な加熱殺菌工程においても乳化安定性が要求される缶コーヒー飲料などの商品開発にも応用された。

氏名	宮原 由行
学位記番号	生博 乙 23 号
学位記授与の日付け	平成 13 年 12 月 19 日
学位論文題目	ゴマ油製造工程における未利用資源の有用化に関する基礎研究 ーリグナン類の調整とその抗腫瘍機能ー
論文審査委員	主査 教授 小宮 孝志 教授 古市 幸生 教授 今井 邦雄 本学医学部 教授 樋廻 博重

## 要 旨

ゴマ油製造時に生ずる副産物の有効利用法を検討することを目的として、脱脂粕と脱臭固形分からリグナン化合物を単離すると共に、ヒト白血病細胞に対する増殖抑制作用について検討した。ゴマ油は圧搾法により得られており、種子の約半分が脱脂粕として得られる。この脱脂粕の主成分はタンパク質であり、現在では家畜の飼料原料として利用されているにすぎない。しかし、脱脂粕

中には微量成分としてリグナン化合物やリグナン配糖体が含まれており、それらの物質の調製とその利用について検討した。

ゴマ脱脂粕を湿らせて放置すると、微生物が生育したため、脱脂粕成分に何らかの影響を与えているものと考え、成分変化を検討した。脱脂粕を加湿して室内に放置し、3 週間後脱脂粕をメタノールで抽出し、微生物培養前の脱脂粕メタノール抽出物と HPLC 分析によりリグ

ナン類の組成を比較したところ、それらに変化が見られた。そこで、脱脂粕に生育した菌を単離し、コロニーの観察、顕微鏡による菌体の観察から、本菌を *Absidia corymbifera* と同定した。本菌は、空气中、土壌、穀物などに生育することが知られている。

次に、変化したりグナン化合物を同定するため、大量培養法の検討を行ない、菌体の液体培養法について検討した。菌体を麦芽エキス-酵母エキス培地に植え、振盪培養することで菌を増殖させた。培養条件は 30°C、24 時間が最も菌体の生育が良いことが判明した。

次に液体培養法によって培養したゴマ脱脂粕をメタノールで抽出し、変化した成分の単離、構造決定を試みた。変化した成分を HPLC 分取し、精製した。その結果、原料の脱脂粕中に大量に存在したセサミノールトリグルコシドが微生物との接触によりセサミノールに変換されることが示唆された。一方、脱脂粕中のセサミンおよびセサモリンはこの培養時間ではほとんど変化を受けないことがわかった。さらにセサミノールへの変換の消長を経時的に分析したところ、培養時間が 84 時間でセサミノール生成量が最大になることがわかった。また、このセサミノールの生成効率は  $\beta$ -グルコシダーゼ等の酵素反応を利用した方法よりも良いという結果が得られた。したがって、ゴマ脱脂粕を *A. corymbifera* と 84 時間接触させ培養することでセサミノールを効率良く生成させることができた。

次にゴマサラダ油の精製工程中に得られる副産物中からリグナン化合物の精製を行った。油の脱臭工程において、固形分が得られる。しかし、現在のところセサミン以外の成分については知られておらず、有効利用がなされていなかった。しかし、現在のところセサミン以外の成分については知られておらず、有効利用がなされていなかった。そこで、この固形分中からリグナン類を精製し、その成分を明らかにすることにした。

固形分をシリカゲルクロマトグラフィーに供し、酢酸エチルで溶出された画分をさらに逆相 HPLC による分取で 13 の画分に分離し、<sup>1</sup>H、<sup>13</sup>C-NMR により構造決定

した。その結果、固形分中の成分としてセサモール、セサミン、セサミノール、2-エピセサミノール、6-エピセサミノール、セサミン、エピセサミンおよびセサモリンを同定した。

得られたリグナン化合物の新たな機能を検索することを目的として、リグナン化合物としてセサモール、セサミン、エピセサミン、セサモリンおよびセサミノールを用い、ヒト白血病 Molt 4B 細胞の増殖抑制作用について検討を行った。

まず、それぞれの Molt 4B 細胞増殖抑制能について検討したところ、いずれも細胞増殖抑制を示すことがわかった。しかし、その抑制能には差が見られ、強い順にセサミノール、セサモリン、セサミン、エピセサミン、セサモールであった。また、それぞれのサンプル処理を行った細胞が顕微鏡観察下で小さく凝縮している様子が見られたため、この細胞増殖抑制にアポトーシスの関与が考えられた。そこで、各サンプル処理細胞を蛍光顕微鏡で観察し、細胞の形態変化について検討したところ、アポトーシス小体が観察された。さらに、それぞれの培養細胞から DNA を抽出してアガロースゲル電気泳動を行なったところ、いずれの場合も DNA 断片化が見られることがわかった。また、それらは濃度依存のおよび経時的に断片化した DNA が増加することがわかった。

さらに、これらのリグナン化合物について、ヒトリンパ球に対する影響を検討したが、DNA 断片化がなされず、リンパ球に対してはアポトーシスを誘導しないことがわかった。

以上本研究により、ゴマ脱脂粕中などに含まれるリグナン化合物は、ヒト白血病 Molt 4B 細胞にアポトーシスを誘導することによって細胞増殖を抑制することがわかった。脱脂粕および脱臭工程時に生ずる固形分中には、このような機能を有するリグナン化合物が多く含まれていることがわかった。今後の研究課題として、廃棄物の有効利用につなげるため、より効果的なリグナン化合物の調製法を検討して行きたいと考えている。