# 科学研究費助成事業 研究成果報告書



平成 26 年 6 月 25 日現在

機関番号: 1 4 5 0 1 研究種目: 挑戦的萌芽研究 研究期間: 2011~2013

課題番号: 23658203

研究課題名(和文)屈曲性分子の誘電特性を利用した油脂分別技術の開発

研究課題名(英文) Development of an oil fractionation method by using the dielectric properties of kin ked molecules

研究代表者

豊田 淨彦 (TOYODA, KIYOHIKO)

神戸大学・(連合)農学研究科(研究院)・教授

研究者番号:30144603

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文):脂肪酸組成に基づく油脂の分別は様々な用途で広く行われている。不飽和脂肪酸の分子はcis二重結合部位で屈曲した形態を有し、ラジオ波域の誘電特性は分子回転に基づくため不飽和度の影響を強く受ける。また、緩和周波数付近で損失係数は大きく変化することから適当な周波数の電界下での誘電泳動力と内部発熱を利用した分別法開発の着想を得た。不飽和度の増加に伴い誘電定数は増加し、緩和周波数が低周波側に遷移する傾向が見られた。同様に温度の低下とともに緩和周波数が低周波側への遷移することから、適当な温度、印加周波数の設定により、選択的な誘電加熱と誘電泳動が可能であり、脂肪酸・油脂の分別の可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文): Fractionation of fats and oils based on fatty acid composition is widely used in v arious applications. Unsaturated fatty acid has kinks at cis-bond. Unsaturation degree of fatty acid stron gly affects its dielectric property at radio frequency range at which molecule rotation is caused. Loss fa ctor changes near the relaxation frequency largely. The author got an idea of developing a fractionation m ethod by control of internal heating and dielectrophoretic force under an electric field at an appropriate frequency. Measured dielectric constant increased and relaxation frequency shifted to lower frequency side with an increase in the unsaturation degree. Temperature decrease resulted in the shift of measured relaxation frequency toward the lower frequency side. An appropriate condition of temperature and frequency may enable selective dielectrophoresis and dielectric heating, which suggested the possibility of the fractionation of fatty acids, oils and fats.

研究分野: 農学

科研費の分科・細目: 農業工学・農業環境工学

キーワード: 不飽和度 誘電定数 損失係数 緩和周波数 脂肪酸組成 温度依存性

### 1.研究開始当初の背景

食用油脂の主成分であるトリアシルグリセロール(TG)は構成脂肪酸の種類により、多様な栄養面・生理面の特性、物理的特性、酵機能性を示すため、用途に応じて、酵素や化学触媒を用いたエステル交換や水素やにより脂肪酸のような健康危害が懸ったの治療を生じる場合もある。そのため、られる物質を生じる場合もある。そのためられるの治療をは精度の高い分別技術が求められた。従来の分別方法には、ウィンタリしたるといわれる冷却による結晶化を利用したがあるが、それらには、分別精度やコストの面でそれぞれ一長一短がある。

筆者は、過去の研究において、食用油脂と脂肪酸の誘電スペクトルを測定し、それらは、誘電定数は約3と低い値を示すものの、分子鎖長や不飽和度により、誘電定数、損失係数、緩和周波数が異なること、食用油脂の誘電特性は構成脂肪酸の影響を強く受けることを明らかにした。脂肪酸では炭素の cis 結合部位で分子鎖が屈曲し、不飽和度が高いほど誘電定数が大きくなる傾向がある。

電界下の分子は、電気双極子モーメントが 誘起され分極を生じる。誘電定数はこの分極 の強さを示し、不均一な電界下で分子にに誘電 京動力は誘電定数に関係する。誘 電家動力は誘電定数に関係する。 で数は緩和周波数の前後で大きく変化、誘 で数は緩和周波数の前後で大きく変化、 適当な周波数を選ぶことにより、 会といるでは、 の誘電定数に応じた誘電泳動力を発生を の誘電定数に応じた誘電泳動力を発生を が基本的にでは、 緩数の異なる分子を選択的に加熱と にないできる。 とが期待 できる。

したがって、交流電界下の油脂や脂肪酸では、誘電特性の相違により、誘電泳動力や誘電損失による発熱に差異が生じ、それを利用し、油脂を物理的に操作し、分別する手法の着想を得た。

## 2.研究の目的

本研究では、脂肪酸の不飽和度、すなわち、分子鎖の屈曲度合、および分子鎖長に起因する誘電特性に着目した。触媒や外部加熱操作を用いない環境負荷の少ない油脂の分別方法を開発するため、次の事項を明らかにすることを目的とした。

- 1) 脂肪酸および油脂の誘電スペクトルの特徴と傾向
- 2) 脂肪酸の不飽和度の誘電特性への影響
- 3) 温度、周波数の誘電特性への影響
- 4) 選択的励起に適した温度、周波数、電 界強度等の処理条件
- 5) 励起した油脂分子の誘電泳動操作条件

## 3.研究の方法

- ・測定試料に、構成脂肪酸(飽和・不飽和脂肪酸)の異なる食用油、不飽和度と分子形態の異なる TG 試薬およびそれらの混合試料を供試した。
- ・誘電特性の測定に、プレシジョン LCR メータ(Agilent, 4284A)および液体テストフィクチャ(Agilent 16452A)を用いた。測定周波数 100Hz~1MHz、印加電圧 0.05~1.0V の範囲で測定を行った。
- ・油脂の脂肪酸組成をガスクロマトグラフィ 法により測定した。
- ・高電界下での誘電特性を調べるため、電極間隔  $5 \mu m$  の Au 製微小くし型電極を用い、高電界 (1kV/cm) での油脂の誘電スペクトルを測定した。標準試料としてシリコン油を用い測定法を検証した。
- ・誘電特性への温度の影響を明らかにするため、ペルチェ素子による精密な温度制御下での温度の誘電特性への影響を調べた。標準物質としてグリセリンを用いた。
- ・上記の測定により得られた損失係数、誘電 定数および周波数依存性から誘電泳動力、誘 電加熱量を推算し、選択的加熱および誘電泳 動の可能性を検討した。

#### 4. 研究成果

(1) 不飽和度の異なる脂肪酸の誘電特性の解析

不飽和度の異なるステアリン酸(C18:0)、オレイン酸(C18:1)、リノール酸(C18:2)等の主要脂肪酸について、誘電スペクトルを測定し解析した。500kHz 以下の周波数域では、誘電定数は 2.25~2.42 の範囲でほぼ一定値を示した。500kHz 以上では誘電緩和による誘電定数の減少傾向が認められた。特に、500kHz 以下での誘電定数の値は脂肪酸の不飽和度の増加に対応して高くなることを確認した。500kHz 以上での誘電定数の減少傾向も不飽和度による僅かな差異が見られた。損失係数は 500kHz 以上で誘電緩和による増加傾向が見られたが、誘電定数に比べ明確ではなかった

以上より、不飽和度の相違に伴い、脂肪酸の誘電定数、損失係数に差異が生じることから、印加周波数の設定により、不飽和度に応じた脂肪酸の選択的な加熱が基本的に可能であることを確認した。

(2) 不飽和度の異なる脂肪酸から構成される TG の誘電特性の解明

トリオレイン(C18:1c)、トリリノレイン(C18:2)、トリエライジン(C18:1t)の誘電スペクトルを測定し解析した。試料が微量であることから微小電極を用いた。誘電定数は42で2.79~2.82の範囲であり、構成脂肪酸の誘電定数より若干高い傾向を示した。それらの誘電定数にはトリエライジン<トリオレイン<トリリノレインの関係が見られ、構成脂肪酸分子の屈曲度合が高いほど、高い誘電定数を示した。誘電定数の変化が大

きい緩和周波数付近では、不飽和度の異なる TGの誘電定数の差は拡大するため、誘電率の 相違による選択的加熱の可能性が示唆され た。

#### (3) 食用油脂の誘電特性の解明

リノール酸を多く含む大豆油と短鎖脂肪酸から構成されるパーム油の誘電特性を調べた。誘電定数の周波数依存性は、脂肪酸と類似の挙動を示したが、500kHz以上での誘電緩和の影響は脂肪酸と比べ明確ではない(図1)。一方、損失係数は50kHz以上で顕著な増加傾向を示した(図2)。また、両者を一定割合で混合した試料の測定から、誘電定数への混合割合の影響を明らかにした。

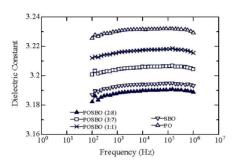


図 1 大豆油(SBO)、パーム油(PO)の誘電 定数の周波数特性

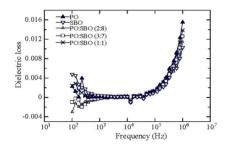


図 2 大豆油(SBO)、パーム油(PO)の損失 係数の周波数特性

#### (4) 食用油脂誘電率の温度依存性の解明

食用油脂の冷却に伴う相変化を利用した 分別のために、食用油脂の誘電率の温度依存 性を調べ、パーム油、大豆油、ゴマ油、ヒマ ワリ油の誘電率の温度依存性を脂肪酸組成 の違いから考察した。構成脂肪酸の成分比に 依存して、分子鎖長の短いパーム油は高い誘 電定数(3.238,25)を示し、不飽和の最も高 いヒマワリ油は低い値(3.164、25)を示し た。不飽和度が高くなるにつれて各油脂の誘 電定数は大きい値を示した。各油脂の誘電定 数は温度増加に対して直線的に減少する傾 向を示したが、その脂肪酸組成の相違による 誘電定数の減少への影響は明確ではなかっ た。また、損失係数は 10kHz 以上で急激な増 加を示し、緩和現象の影響が認められたが、 脂肪酸組成による相違は明確ではなかった。

### (5) 微小電極による誘電特性測定法の確立

電極間隔 5 μm の微小くし型電極の高精度かつ安定な測定条件を明らかにするため、周波数 100Hz ~ 1MHz におけるシリコン油の誘電特性を調べた。電界強度 1kV/cmとなる印加電圧 0.5V において安定な測定が可能であった。

# (6)脂肪酸組成の異なる植物油脂での温度の 誘電特性への影響評価

オリーブ油、ひまわり油、大豆油、ゴマ油、 コーン油の誘電定数は、温度低下と共に増加 する傾向を示し、また、損失係数は緩和周波 数側に遷移する傾向を示した(図3)。

精密な温度制御の下での損失係数の調節と それによる選択的な加熱の可能性が示され た。この傾向は、基準試料として用いたグリ セリンにおいてより顕著であった(図4)。

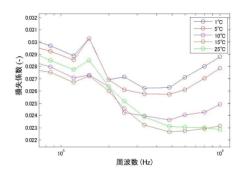


図3 損失係数の温度依存性(大豆油)

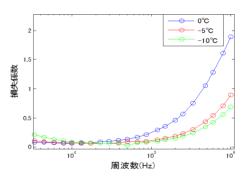


図 4 損失係数の温度依存性(グリセリン)

微小電極を用いた高電界下での誘電特性 測定では、温度、印加周波数の影響が明瞭に 検出され、極性の低い油脂の測定に適してお り、誘電加熱・泳動への利用の可能性が示唆 された。

以上より得られた損失係数をもとに、各温度、周波数での誘電加熱量を推算し、選択的加熱に適した温度、印加周波数の検討を行った。しかし、測定周波数の上限が低いことから、供試した脂肪酸の不飽和度の範囲では明確な選択的加熱条件を見いだすことは困難であった。今後、測定周波数域上限の拡大と、より広範な不飽和度の脂肪酸について、緩和現象全体の範囲を含む誘電特性に基づいて選択的加熱条件を検討する必要がある。

#### 5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計 0件)

## [学会発表](計 4件)

豊田淨彦、井原一高、樫根秀、食用油脂分別のための分子種誘電特性の分析、農業食料工学会関西支部、第 131 回例会、2014年3月4日、大阪府立大学、農業食料工学会関西支部報、第 116号、p.50豊田淨彦, Novia Erfiza、胡立志, 井原一高、食用油脂および構成脂肪酸の誘電特性の解析、日本食品工学会第 13 回(2012年度)年次大会、2012年 08月 09日、北海道大学

Novia M. ERFIZA, <u>Kiyohiko TOYODA</u>, Ikko IHARA, Effect of temperature on dielectric properties of palm oil, sunflower oil and their binary Blends, 農業環境工学 関連学会 2012 年合同大会, 2012 年 09 月 11 日、宇都宮大学

Novia M. Erfiza, <u>Kiyohiko Toyoda</u>, Ikko Ihara, Permittivity of Palm Oil Blended with Vegetable Oils and Its Temperature Dependence, CIGR International Symposium 2011 Sustainable Bioproduction, - Water, Energy, and Food (WEF 2011), 2011.9.20, Tower Hall, Funabori, Edogawa, Tokyo, Japan

[図書](計 0件)

# 〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称: 発明者: 権利者: 種類: 番号:

出願年月日: 国内外の別:

取得状況(計 0件)

名称: 発明者: 権利者: 種類: 番号:

取得年月日: 国内外の別:

〔その他〕 ホームページ等

6.研究組織 (1)研究代表者 豊田 淨彦(TOYODA KIYOHIKO) 神戸大学・大学院農学研究科・教授 研究者番号:30144603

(2)研究分担者

( )

研究者番号:

(3)連携研究者

)

(

研究者番号: