



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Development of extraction and concentration method for phenolics from tomato leaf residue using aqueous crude glycerol solution [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	LI, Xiaojue
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(農学)
Dissertation Number	甲第16093号
Issue Date	2024-09-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/93428
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	LI_Xiaojue_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（農学） 氏 名 LI Xiaojue

審査担当者	主査	准教授	清水 直人
	副査	教 授	岩渕 和則
	副査	教 授	松浦 英幸

学位論文題名

Development of extraction and concentration method for phenolics from tomato
leaf residue using aqueous crude glycerol solution
(粗製グリセロール水溶液を用いたトマト葉残渣からのフェノール類の抽出と濃縮方法の
開発)

本論文は、英文 94 頁、図 17、表 15、5 章からなり、参考文献 3 編が付されている。

トマト (*Solanum lycopersicum*) は、年間生産量が 1 億 5 000 万トンと、世界で最も親しまれている作物の一つである。果実の収量向上のために、つるから定期的に除去されるトマトの葉残渣 (TLR) は、フェノール類やフラボノイドなどの抗酸化作用が高いファイトケミカルが豊富に含まれることが知られ、幅広い用途への再利用が期待される。近年、再利用方法の一つとしてグリセロールによる抽出が注目されている。粗製グリセロール (CG) はバイオディーゼル生産の主な副産物であり、安価なバイオマスであることから、本研究では、粗製グリセロールを用いた抽出と濃縮方法の開発を目的とし、(1) 水性 CG 溶液を用いた水熱抽出による TLR からフェノール類の回収、(2) ナノろ過 (NF) によるフェノール類の濃縮、(3) 全プロセスシステムのライフサイクルアセスメント (LCA) の結果を取り纏めたものである。

水性 CG 溶液を用いて TLR からフェノール類を回収する手法を検討した。抽出パラメータを CG 濃度、液固比、および抽出温度として、応答曲面法 (RSM) を用いてフェノール類、フラボノイド抽出量と抗酸化能 (DPPH 法) を目的変数とする抽出条件の最適化を行った。回帰分析の結果、総フェノール含有量 (TPC) は抽出温度によって有意に影響を受けることを明らかにした ($p < 0.001$)。TLR が高温にさらされることで大量のフェノール類が放出されることが示された。CG 濃度と液固比の相互作用 ($p < 0.05$) が TPC に寄与し GC が水の極性を増加させ、それによってフェノール類の溶解度を増加させると考察している。また、フィッティングの結果から、最適条件を次の通りに設定した：CG 濃度 39.14%、温度 130.87℃、液固比 152.65 mL/g。RSM リッジ分析により予測された条件で検証実験を行ったところ、フ

フェノール類、フラボノイド抽出量と抗酸化能の実測値が予測値に非常に近いことが示され、予測モデルの妥当性と適用性が確認された。実測値と予測値の高い相関性から、フェノール類とフラボノイドの抽出を最適化し、全抗酸化活性を最大化する二次多項式モデルを使用できることを示している。

NF は、熱に敏感なフェノール類を天然抽出物から濃縮するために使用されている圧力駆動型膜技術の一つである。透過型膜圧 (TMPs) 0.5、0.6、1.0、1.2、1.5、1.8、および 2.0 MPa において、クロスフロー濾過モードで運転し、膜の透過性能とその低下率を評価した。また、粗抽出物、リテンテート、および透過物の個々のフェノール類 (アシル酸、カフェ酸、フェルラ酸、クロロゲン酸、ナリンゲニン、ルテイン、およびケルセチン) の含有量を、高性能液体クロマトグラフィー (HPLC) を用いて定量した。その結果、ケルセチンが抽出液中の主要な成分であり、その濃度は 1.5 MPa の圧力で 113.74 mg/L と最も高く、0.5、0.6、および 1.0 MPa で得られた値と比較しても有意差が確認されている ($p < 0.05$)。

TLR の低温真空乾燥と機械的粉碎、TLR の水熱抽出と NF 濃縮の潜在的な環境影響を体系的に評価するために LCA を行った。ISO 14040 and ISO 14044 に基づいて各プロセスが産業レベルにまで応用される前に、エネルギー使用量や、環境負荷物質の排出量があらかじめ得られる。ヒト発癌毒性、ヒト非発癌毒性、鉱物資源の枯渇、および水消費の全体的な影響に関して、低温真空乾燥の寄与は 15 %以上であった。一方、機械的粉碎プロセスの寄与は、すべてのカテゴリーで無視できるほど小さかった。水熱抽出プロセスの電力投入が全体環境負荷の約 64 %を占めることが明らかとなり、全てのパラメータの中で最も高い環境影響を示し、海洋富栄養化と土地利用に対する影響の 90 %以上を占める可能性を示している。また、NF は圧力によって駆動され、加熱が不要であることから、電力使用による海洋の富栄養化や土地利用にほとんど影響を与えず、オゾン層破壊と水の枯渇への影響は約 7.5 %であった。さらに、再生可能エネルギー源による電力生産と、低電圧レベルで利用可能な石炭と天然ガスのエネルギーミックスによる電力生産との間での不確実性分析を行った。ほとんどの環境影響カテゴリーにおいて、電力係数は敏感なパラメータであり、再生可能エネルギー源からの電力供給は将来の生産においてより環境にやさしい手法となることを明らかにしている。

以上のように本論文では、粗製グリセロールを用いた抽出と濃縮について、最適条件による TLR からフェノール類を回収する手法の可能性、新しいプロセスシステムの LCA が実施され、将来の研究開発に資する知見が提供されている。

よって審査員一同は、Li Xiaojue が博士 (農学) の学位を受けるのに十分な資格を有するものと認めた。