

# 博士論文公聴会

## ご案内

下記の要領で博士論文公聴会を開きますのでご来聴下さい。

### 記

日時 : 2019年2月7日(木) 16:20~17:50

場所 : 理学研究科F棟6階会議室 (F608号室)

発表者 : 中屋 佑紀  
宇宙地球科学専攻  
大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻 後期課程

題目 :  
Time scale evaluation for formation processes of humic-like  
substances simulated by the Maillard reaction  
(メイラード反応により模擬した腐植様物質生成過程の時間スケールの評価)

宇宙地球科学専攻 大学院教育教務委員  
長峯 健太郎

学位申請者：中屋佑紀

論文題目：Time scale evaluation for formation processes of humic-like substances simulated by the Maillard reaction

(メイラード反応により模擬した腐植様物質生成過程の時間スケールの評価)

論文要旨：

腐植物質とは、生体有機分子の部分的な分解や重合によって生じた不定形有機高分子の総称であり、生成機構や速度は複雑でよくわかっていない。そこで本論文では、グリシン・リボース混合水溶液のメイラード反応により腐植様物質生成過程を模擬し、独自に開発した水熱その場分光測定システムにより追跡・解析した。また、水酸化鉄（ゲーサイト）との相互作用についても検討した。

高濃度（ $0.5 \text{ mol l}^{-1}$ ）でのグリシン・リボース混合水溶液の  $60-80^\circ\text{C}$ におけるその場赤外・紫外可視分光測定では、反応物の減少と試料溶液の褐色化について  $90-100 \text{ kJ mol}^{-1}$ の活性化エネルギーおよび  $1.2 \times 10^9-4.8 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ の頻度因子が得られた。低濃度（ $0.1 \text{ mol l}^{-1}$ ）でのグリシン・リボース混合水溶液の  $60-80^\circ\text{C}$ におけるその場紫外可視分光測定では、フルフラール様中間生成物、腐植様生成物の増加についてそれぞれ  $87 \cdot 88 \text{ kJ mol}^{-1}$ の活性化エネルギーおよび  $1.2 \times 10^9 \cdot 4.8 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ の頻度因子が得られた。

ゲーサイト添加有・無の  $0.1 \text{ mol l}^{-1}$ グリシン・リボース混合水溶液を  $60-80^\circ\text{C}$ で加熱したバッチ試料の褐変過程を解析したところ、ゲーサイト添加による反応の促進が見られた。また、高濃度（ $0.5 \text{ mol l}^{-1}$ ）での解析結果との比較から、初期濃度が高いほど反応が早く進むことがわかった。さらに、減衰全反射赤外分光法により反応物（グリシンとリボース）と生成物（ $80^\circ\text{C}$ 196時間加熱）がゲーサイトへ室温で迅速に吸着することが示され、ゲーサイト表面での反応過程が律速している可能性が示唆された。

メイラード反応による腐植様物質の生成模擬過程の時間スケールを代表する指標として褐変過程の半増期を用い、高濃度・低濃度（ゲーサイト添加有・無）での結果をアーレニウスの式により低温へ外挿し、 $15^\circ\text{C}$ での半増期を見積もると、最小で5年、最大で2000年程度となった。これは英虞湾水底堆積物の蛍光強度増加（腐植様物質増加に対応）の数十年の時間スケールと調和的であった。今後は、本研究で開発した水熱その場分光測定システムを様々な反応条件でのメイラード反応に用いることができ、腐植様物質生成時間スケールのより詳細な理解につながると考えられる。