

(様式第5号)

## X線CTによる油脂の結晶組織の観察 Study on microstructure of fats by X-ray microtomography

根本大地、田沼萌、藤崎聡美、大西清美、藤田尚也、上原秀隆、吉本則之  
Nemoto Daichi, Tanuma Moe, Fujisaki Satomi, Onishi Kiyomi, Fujita Naoya, Uehara  
Hidetaka, Yoshimoto Noriyuki

岩手大学理工学部、日清オイリオグループ株式会社  
Iwate University, The Nisshin OilliO Group, Ltd.

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後2年以内に研究成果公開（論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表）が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より1人以上）。

### 1. 概要（注：結論を含めて下さい）

トリアシルグリセロール（TAG）は食用油脂の主成分であり、特にチョコレート等の油脂製品の特性は主にTAGの結晶構造、組織及び物性によって決定される。そのためTAGの微細組織や温度にともなう相挙動を知ることは、油脂製品の品質制御のために極めて重要な情報となる。今回は食用油脂の微細組織の解明を目的として、X線CT法による油脂組織の観察を試みた。結果として測定中の試料の温度変動による画像のずれが大きく当初の目的を達成することはできなかったが、次回に向けての課題が明確となった。

#### （English）

Triacylglycerol (TAG) is a major component of edible fats and oils, and properties of chocolate in particular are mainly determined by the crystal structure, microstructure, and physical properties of TAG. Therefore, knowledge of the microstructure and temperature-dependent phase behavior of TAG is extremely important for quality control of fat and oil products. In this study, we attempted to observe the microstructure of fats and oils by X-ray computed tomography (CT) in order to elucidate the microstructure of fats and oils. As a result, we could not achieve our initial goal due to large image deviations caused by temperature fluctuations of the sample during the measurement, but we have clarified issues to be addressed in the next study.

### 2. 背景と目的

チョコレートの主成分はトリアシルグリセロール(TAG)と呼ばれる油脂であり、チョコレート全体の融点や口溶けなどのテクスチャーは主にTAG結晶の構造、組織及び物性によって決定される。TAG結晶には少なくとも6種の結晶多形が知られており、チョコレート製品は第5番目の多形（準安定多形）の状態販売されている。チョコレートの貯蔵過程における温度変動などの要因により、TAG結晶の融解と再結晶化、または最安定相への相転移が起こると、ブルーミングと言われる不良が発生する。ブルーミングが発生するとチョコレートの表面の白化とともに口溶けが悪くなり商品としての価値を失うため、ブルーミングを抑制する技術の開発が必要であるが、その発生のメカニズムは明らかになっていない。

チョコレートに使われる油脂は、TAG分子を構成する3本の脂肪酸鎖の二重結合数や鎖長が異なった混合物であり、融点の低いTAG分子成分が常温で液体として多結晶中に含まれている。この結晶組織中に含まれる液体成分は30℃で20%程度存在することがNMRの測定により明らかになっているが、その存在状態や組織構造は全く不明である。組織中の液体が固体（結晶）の相転移に深く関与していると考えられ、

その存在状態と温度依存性をX線CTを用いて明らかにすることによりブルーミングなどの油脂製品の抱える問題を解決できると考えている。

申請者らはこれまでに行った光学顕微鏡やAFMによる表面形状の温度変化を観察より、油脂中に含まれる液体成分は毛細血管のように網の目状に配置し、石垣状の固体成分の隙間に存在しているものと推測している。ブルーミングは液体と固体の界面で起こる結晶相間の相転移（固相転移や溶液媒介相転移）によることがX線回折実験によりすでに判明しており、組織中の液体成分の分布構造の解明により、チョコレートに起こるブルーミングのメカニズムが解明されることが期待できる。

本課題は、X線CTにより油脂試料の内部構造を観察して表面観察より示唆された油脂試料内の組織構造（例えば低融点TAG分子の凝集構造）と融解挙動の観察により、ブルーミング発生メカニズムを明らかにすることを目的としている。この実験によって得られる知見は、チョコレートおよびチョコレートを含む菓子食品や油脂製品一般の品質制御のために、極めて重要な情報となる。

### 3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

食用油脂の組織構造の研究は、材料組織内の液相と固相の電子密度の差が小さくX線の線吸収係数の差も極めて小さいため計測が難しい。したがって、これまで実験的に明らかにした例はない。今回、放射光のX線CTを用いることで、油脂試料の組織構造の空間分布を初めて明らかにしようとするものである。放射光を必要とする理由として、1) 顕微鏡等の観察から油滴径は10 μm程度と考えられるため、3 μm程度の空間分解能が必要であること、2) これまでに実施、報告されている食品分野の実施例が示すとおり試料内のX線線吸収係数の差が少なく、通常の実験室系の白色光源を用いたX線CT装置では識別が難しいが、高輝度単色X線光源を用いた放射光X線CTでは、より小さなX線吸収係数差を検出できることが挙げられる。さらに、今回は、X線吸収係数の高いヨウ素を含む造影剤を用いて検討を行い、詳細な組織の観察の可能性を検討した。

#### 3.1. 試料

油脂試料として天然油脂であるココアバター(CB)と代替油脂(CBR)、モデル系であるODO/PPPの3種類に対しそれぞれに造影剤濃度の異なる試料を用意した。

#### 3.2. 実験方法

実験はSAGA-LS, BL07に自作の試料温調ステージ(図1)を持ち込んで実施した。試料はφ2 mmカプトンチューブに挿入し架台に固定した。使用したX線のエネルギーは10~15 keV、CT計測時間は約1 h/1サンプル(2秒露光×1500枚)であった。

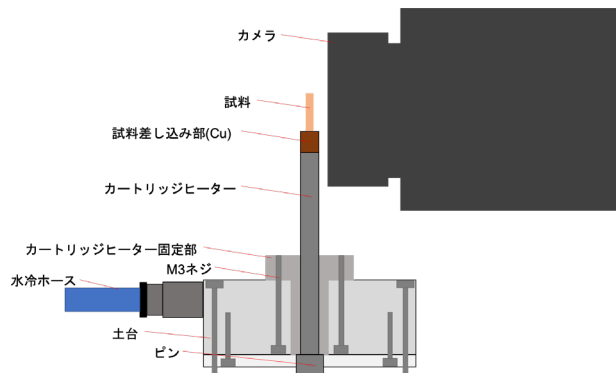


図1 CTステージの概略図

### 4. 実験結果と考察

得られた典型的なCT像を2に示す。内部の空隙による明瞭なコントラストが得られたが、試料の液体成分と固体成分の違いを示す明確な像は得られなかった。これは測定中の試料温度変化による試料の融解と空隙の強い散乱によるものと考えられる。したがって、温調ステージを改良し、測定時間中の試料の温度変動を極力少なくすると同時に気泡の入らない試料調整、充填法を検討する必要があることが明らかとなった。

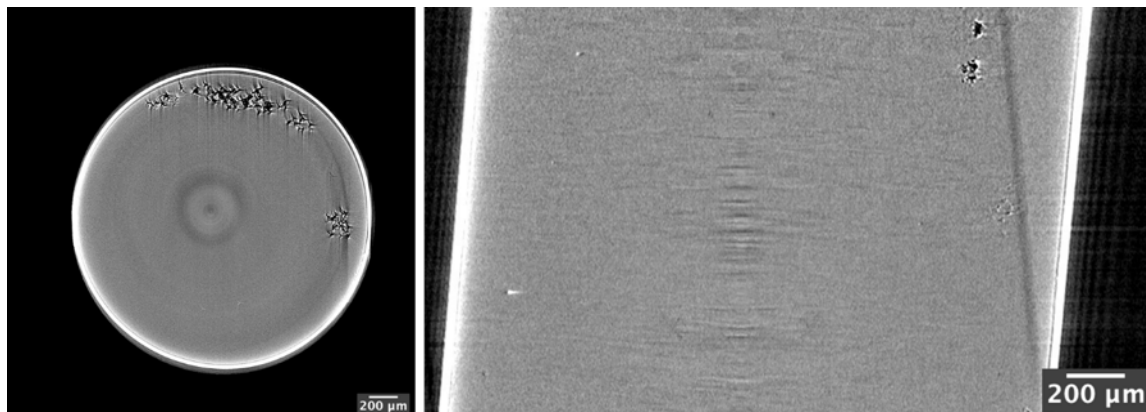


図2 ODO/PPPのCT像。xy断面(左)とxz断面(右)

## 5. 今後の課題

CT 実験において油脂試料内の微細組織に由来する明瞭なコントラストを得ることはできなかった。このことは、測定中の試料の温度変化によるものであり、今後試料温調ステージの温度安定を改善する必要がある。一方で、温度の安定性が得られれば、所定の目的を達成できることが今回の実験で明らかになったので、改良した試料ステージを用いて、均質性の高いビームを利用した高感度な位相コントラスト法や、時間分解能 1 秒以下の高速 CT の活用に向けた基礎的な検討を行い、次回の実験に万全を期して臨みたい。

## 6. 参考文献

- ・ Yusei Sasaki, Kazuo Yamamoto, Satoshi Anada, Tsukasa Hirayama and Noriyuki Yoshimoto, Direct visualization of electric potential distribution in organic light emitting diode by phase-shifting electron holography , Appl. Phys.Express **14** 075007, 2021.
- ・ 八瀬清志, 吉本則之ら、分子の薄膜化技術 -有機 EL, 有機トランジスタ, 有機太陽電池などの有機薄膜デバイス作製技術に向けて-, コロナ社 (2020) .

7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)  
なし。

8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を 2~3)  
油脂、微細組織、X 線 CT

9. 研究成果公開について (注: ※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後 2 年以内です。例えば 2018 年度実施課題であれば、2020 年度末(2021 年 3 月 31 日)となります。)  
長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文(査読付)発表の報告

(報告時期: 2023 年 4 月)