

( 続紙 1 )

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	KENNETH TEO SZE KAI
論文題目	Harnessing lignin-degrading fungal peroxidases to enhance the valorization of lignocellulosic biomass (リグノセルロース系バイオマスの高価値化に向けた リグニン分解ペルオキシダーゼの活用)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、酵素ペルオキシダーゼを用いた草本・木本系バイオマスの利活用法の開発を論じた結果をまとめたもので、5章からなっている。</p> <p>第1章は序論で、草本・木本系バイオマスの三大成分であるセルロース、ヘミセルロース及びリグニンの化学構造と高次構造が説明されている。その上で、リグニンを分解する事が当該バイオマスの有効な利活用には欠かせない事が述べられている。木材腐朽菌由来の酵素ペルオキシダーゼを用いてリグニンを分解すれば、高温・高圧や強酸・強塩基に依らない環境に優しい木本・草本系バイオマスの利活用が実現できる事が述べられている。そこで本学位論文では、ペルオキシダーゼをリグニンに作用させた際の構造変換とリグニン除去への効果を解析すると共に、これがバイオマスの利活用に及ぼす優れた効果を検証している。</p> <p>第2章では、リグニンのモデル2量体にマンガンペルオキシダーゼ(MnP)を作用させると、芳香環の5-5'結合を介したリグニン4量体が生成する事が、サイズ排除クロマトグラフィーとNMR法によって示されている。また、リグニン5量体、6量体、7量体が生成する事も示されている。さらに、パルプの製造工程で生成するクラフトリグニンにMnPを作用させると、重合が引き起こされる事も両法によって示されている。</p> <p>第3章では、MnPないしはリグニンペルオキシダーゼ(LiP)を、反応溶液を連続膜分離する手法と組み合わせて実バイオマスであるブナ材に作用させたところ、ラジカルの再結合が抑制されてリグニンが効果的に分解・除去される事が示されている。一方反応溶液の分離を行わないバッチ式の反応槽を用いた場合には、ラジカルの再結合が生じてしまい、リグニンの効果的な分解・除去は達成されない事が示されている。また、連続膜分離によって得られたリグニンの分解物中には、バニリン等の高付加価値物質が含まれている事も分かった。さらに、リグニンを効果的に除去できた残渣(セルロース及びヘミセルロースが主成分)からは、セルラーゼ・ヘミセルラーゼによる酵素分解によって糖を高い収量で獲得できる事が示されている。</p> <p>第4章では、実バイオマス稲わらにバーサタイル(万能)ペルオキシダーゼ(VP)を作用させてリグニンを分解・減少させると、セルラーゼを用いた酵素処理によって得られる糖の収量が増大する事が示されている。また、稲わらにVPを作用させると、酵母を用いた同時糖化・発酵によって得られるエタノールの収量が増大する事も示されている。さらに電顕と赤外分光法によって、VP処理によって脱リグニンされた稲わらの形状・性状等を解析し、上記の結果が得られたメカニズムを考察している。</p>			

第 5 章は結論で、ペルオキシダーゼ MnP、LiP 及び VP がモデルリグニン及び実バイオマス中のリグニンの構造・形状・性状に及ぼす効果がまとめられている。またペルオキシダーゼ処理によって糖とエタノールの収量の増大と、バニリン等の高付加価値物質の獲得がもたらされる事が述べられている。以上よりペルオキシダーゼの活用は、草本・木本系バイオマスの有効な利活用に資するものであると結ばれている。

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

草本・木本系バイオマスの三大成分はセルロース、ヘミセルロース及びリグニンである。リグニンを分解すると、他の2成分の利活用が促進されると共に、リグニン由来の高付加価値物質の獲得も期待される。木材腐朽菌由来の酵素ペルオキシダーゼを用いてリグニンを分解すれば、高温・高圧や強酸・強塩基に依らない環境に優しいバイオマスの利活用が実現できると期待される。本論文は、酵素ペルオキシダーゼを用いた草本・木本系バイオマスの利活用法の開発を研究した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. リグニンのモデル 2 量体にマンガンペルオキシダーゼ(MnP)を作用させると、芳香環の5-5' 結合を介したリグニン 4 量体が生成する事を、サイズ排除クロマトグラフィーと NMR 法によって明らかにした。また、リグニン 5 量体、6 量体、7 量体が生成する事も見出した。さらに、パルプの製造工程で生成するクラフトリグニンに MnP を作用させると、重合が引き起こされる事を明らかにした。

2. MnP ないしはリグニンペルオキシダーゼ(LiP)を、反応溶液を連続膜分離する手法と組み合わせることで実バイオマスであるブナ材に作用させたところ、ラジカルの再結合が抑制されてリグニンが効果的に分解・除去される事を見出した。一方反応溶液の分離を行わないバッチ式の反応槽を用いた場合には、ラジカルの再結合が生じてしまい、リグニンの効果的な分解・除去は達成されない事が示された。また、連続膜分離によって得られたリグニンの分解物中には、バニリン等の高付加価値物質が含まれている事を明らかにした。さらに、リグニンを効果的に除去できた残渣からは、セルラーゼ・ヘミセルラーゼによる酵素分解によって糖を高い収量で獲得できる事を明らかにした。

3. 実バイオマス稲わらにバーサタイル(万能)ペルオキシダーゼ(VP)を作用させてリグニンを分解・減少させると、セルラーゼを用いた酵素処理によって得られる糖の収量が增大する事を見出した。また、稲わらに VP を作用させると、酵母を用いた同時糖化・発酵によって得られるエタノールの収量が增大する事も見出した。さらに電顕と赤外分光法によって、VP 処理によって脱リグニンされた稲わらの形状・性状を解析し、上記の結果が得られたメカニズムを考察している。

以上本論文では、ペルオキシダーゼをリグニンに作用させた際の構造変換とリグニン除去の効果を明らかにすると共に、ペルオキシダーゼがバイオマスの利活用に及ぼす優れた効果を明らかにしている。よって、本論文は博士(エネルギー科学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和6年1月24日に実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

論文内容の要旨、審査の結果の要旨及び学位論文の全文は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。ただし、特許申請、雑誌掲載等の関係により、要旨を学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日： 年 月 日以降