

報告番号	※ 乙 第 7089号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 気相反応及び減水系反応における生体触媒の利用

氏 名 森川 豊

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、近年の環境問題、安全安心問題に関わる産業創生に不可欠なバイオプロセスの中でも、気相及び減水系反応に関する研究について述べた。一般に酵素、微生物などの生体材料を触媒に用いるバイオプロセスは、多量に水を使用する水系反応が主流である。これら生体触媒を用いた様々な技術開発が行われる中、水をほとんど使用しない系で生体触媒反応が有効に働くことが見出され、より多くの産業に寄与する可能性が広がっている。

まず第1章は序章であり、バイオプロセスの有効性と気相及び減水系反応の可能性及び本研究の概要、目的について述べた。本研究の気相反応では、空気中の湿度を酵素反応に利用する手法を検討した。減水系反応では、有機溶媒及び有機溶媒と微量水の混合系溶媒を酵素反応に用いる手法を検討した。

第2章から第4章までは、気体の酸素を電子受容体として用いることが出来るオキシダーゼに注目し、居住空間の空気及び排水の汚染物質として分解除去が望まれるホルムアルデヒドを生体触媒で分解する研究を行った。

そのうち第2章では、愛知県の170ヶ所の土壌及び排水試料より新規に取得したホルムアルデヒド耐性カビについて調べた。取得した9株のホルムアルデヒド耐性カビの中でも、*P.variotii* IRI017株は最も高いホルムアルデヒド耐性を示したことから、その無細胞抽出液の諸性質と休止菌体によるホルムアルデヒド排水処理特性について調べた。その結果、IRI017株は殺菌性の高いホルムアルデヒドが0.5%という高濃度で含まれる培地中で増殖し、ほぼ完全に分解するという、これまでのカビでは報告の無い高い性能を有していることが分かった。さらにその休止菌体は0.03 g-formaldehyde/L/h (0.03 g-formaldehyde/5 g-cell/h) という、実産業で利用可能性のある高分解速度を有していることを示した。

第3章では、IRI017株由来のアルコール酸化酵素(AOX)の精製を行い諸性質について調べた。AOXはエタノール、メタノール以外にもホルムアルデヒドを基質として酸化することを示した。また、AOXとして多くの研究が行われてきたメチロトロフ酵母由来の酵素と比較して、熱安定性と至適pHの広さにおいて優れており、産業への利用の可能性が大きいことを示した。

第4章では、IRI017株由来の AOX をシリカゲルに固定化した固定化酵素を作成し、空気清浄機用のフィルタを開発した。平均細孔径 50nm のシリカゲルの中でもアミノ基修飾を行ったものを用いた固定化酵素は、高い AOX 保持率とホルムアルデヒド分解活性を示した。この固定化酵素を用いた試作フィルタは湿度 20%以下という、日本の冬の低湿度を想定した気相環境下でもホルムアルアルデヒドを連続分解することを示した。従来のホルムアルデヒド除去を目的とした固定化酵素開発例は、高価な補酵素を用いるホルムアルデヒド脱水素酵素によるものであったが、本研究の開発フィルタは電子受容体に気中の酸素を用いるため低コスト化の可能性が高い。また、光触媒など他の触媒に比べ基質特異性が高い酵素を用いるために想定外の反応による 2 次汚染の可能性が低く、さらには反応に電気エネルギーを要しないため、今後の産業利用へ期待されるものとなった。

第5章及び第6章では、セルロース系バイオマス資源からバイオエタノールを生産するバイオプロセスについて検討した。特に、バイオエタノール生産の課題となっている前処理・糖化工程と蒸留工程について効率化を行った。

第5章では、酵素糖化を目的としたセルロース系バイオマスの連続粉碎技術について検討した。従来、試料の蒸気処理及び微粉碎化をバッチ処理で行っていた前処理工程を高温、高圧の連続式のジェットミル（吉田機械興業社製）に換えることで前処理効率の向上を図った。ジェットミルに加熱機構を設けた試作装置を用いて、結晶性のセルロースを粉碎した。温度を 180℃にすることにより未加熱の試験区に比べ結晶性セルロースの平均粒子径が小さくなることが確認された。5回粉碎後の結晶性セルロースを電子顕微鏡観察したところ、未加熱の結晶性セルロースは板状であったが 180℃で加熱した結晶性セルロースは細い繊維状であった。180℃加熱条件で加工した結晶性セルロースは原子間力顕微鏡で 10 - 20nm のナノファイバー形状にまで加工できることが確認された。そのために、粉碎後の結晶性セルロースは、高分散かつ高比表面積となり、酵素糖化効率が 2-4 倍向上することを示した。

第6章では、非水系の有機溶媒中での酵素反応を行い、セルロース系バイオマス由来の高濃度糖化液の取得を行った。バイオエタノール生産の 50%を占めると言われる蒸留工程に持ち込まれる水の体積を減少させるために、有機溶媒中で酵素糖化を行い、微量の水で抽出する技術について検討した。その結果、有機溶媒系でも従来の水系に比べて若干高い酵素糖化率が得られ、回収する糖液は最大で 1/8 に減少することを示した。得られた結果は、装置の小規模化および蒸留コストの大幅削減に繋がることが示唆された。これまでの開発例では、有機溶媒中の酵素糖化速度向上や酵素の活性低下に関する検討を行ったものはあるが、蒸留水を減らすための減水系反応として糖の抽出効率まで検討されたものはない。本研究の成果は、酵素の減水系反応がバイオマス利活用の課題となっている生産過程での熱エネルギー使用量を減らす可能性を示唆しており、今後の実用化が期待される。

今後、さまざまな分析、解析が急速に進む中、遺伝子関連技術や糖鎖関連技術さらには、動物細胞など微生物以外のバイオプロセスの開発が目覚ましく発展することが予想される。生体反応は、低温かつ有害性の低い物質を用いることが一般的である。親水性の高い生体材料を取り扱うバイオプロセスは水系反応を中心に産業利用が進んでいるが、本研究の様な気相や減水系でのプロセス開発が行われることで、バイオプロセスがより一層多くの産業で活用されるようになることを期待する。