T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	高圧二酸化炭素中での生体触媒反応：リパーゼの触媒活性の向上
Title(English)	Pressurized carbon dioxide in biocatalysis: Enhanced catalytic activity of lipase
著者(和文)	HOANG NAM HAI
Author(English)	Hoang Nam Hai
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10971号, 授与年月日:2018年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:松田 知子,中村 聡,小林 雄一,占部 弘和,福居 俊昭
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10971号, Conferred date:2018/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第　　号		学位申請者氏名	Hoang Nam Hai	
論文審査 審 査 員		氏　名	職　名	氏　名	職　名
	主査	松田 知子	准教授	福居 俊昭	教授
	審査員	中村 聡	教授		
		小林 雄一	教授		
		占部 弘和	教授		

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Pressurized carbon dioxide in biocatalysis: Enhanced catalytic activity of lipase」と題し,英語で書かれ,６章より構成されている。

第１章「Introduction」では,微生物や酵素を有機合成反応の触媒として用いる生体触媒反応,および有機溶媒などの非水系溶媒中での生体触媒反応について述べている。また,生体触媒反応に特に重要な加水分解酵素である *Candida antarctica* 由来の lipase B(CALB)の反応機構や立体構造,および CALB を用いる生体触媒反応の利点や欠点について概説している。さらには,超臨界流体もしくは液体の二酸化炭素や,高圧二酸化炭素と有機溶媒の混合物である CO_2-expanded liquid などの溶媒の性質とその有用性について概説している。高圧二酸化炭素存在下での生体触媒反応について説明し,本研究の目的と意義について述べている。

第２章「Liquid carbon dioxide: Broadening substrate scope of lipase catalysis」では,液体二酸化炭素中でのリパーゼの反応について述べている。これまでに報告例がない液体二酸化炭素中でのリパーゼによる速度論的分割反応に成功したことを示している。基質として *rac*-1-phenylethanol,アシル供与体として vinyl acetate を用い,CALB(CALB を樹脂上に固定化した Novozym 435) による液体二酸化炭素中での反応を行い,通常の種々の有機溶媒中での反応と比較したところ,二酸化炭素中での活性が最も高いことを見出している。また,通常の有機溶媒中ではほとんど進行しない基質の反応が, 液体二酸化炭素中では進行することを明らかにしている。フロー系での反応にも成功し,さらに酵素の再利用も試み,安定して光学純度が非常に高い生成物が得られたことを示している。また,本反応系を用いる合成反応では,生成物の量に対する廃棄物の量が非常に少ないことを示している。

第３章「CO_2-expanded bio-based liquids: Modulating lipase activity by controlling physicochemical properties of solvent」では,バイオマス由来の液体 (bio-based liquids)を高圧二酸化炭素により体積を増加させて溶媒として用いた生体触媒反応の成功について述べている。近年,持続的に供給可能で生分解性が高く毒性が低い代替溶媒として bio-based liquids 例えば 2-methyltetrahydrofuran (MeTHF)などが注目されている。しかし,MeTHF などの bio-based liquids は極性が高いためリパーゼの反応溶媒として利用すると活性が低下する問題がある。本章では,MeTHF に二酸化炭素を溶かし込むとリパーゼの活性が向上し,MeTHF のみではほとんど反応しない基質の反応が進行することを見出している。さらに,CO_2-expanded bio-based liquids の溶媒特性を圧力や温度により変化させることでリパーゼの活性を制御することに成功している。

第４章「Molecular behavior of *Candida antarctica* lipase B in pressurized carbon dioxide」では,通常の有機溶媒中では進行しないCALBの反応が,高圧二酸化炭素を反応溶媒として用いると進行する理由の解明を行っている。CO_2がどのように CALB の活性向上に寄与しているかを解明するために,二酸化炭素中と通常の有機溶媒中での酵素の特定の部位の構造や柔軟性の違いについて,実験的手法および分子動力学シミュレーションにより検討し得られた知見を述べている。

第５章「Conclusion」では,本研究の結果を総括し,今後の展望について述べている。

第６章「Experimental methods」では,本研究の実験方法について述べている。

以上これを要するに,本論文は,高圧二酸化炭素を生体触媒反応に効率的に利用し,リパーゼの活性の向上に成功したものであり,工学上および工業上貢献するところが大きい。よって本論文は,博士（工学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は,東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので,公表可能な範囲の内容で作成してください。