The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Design and Development of Cellulose Saccharification Process Based on Ionic Liquid Aqueous Two-Phase System
Author(s)	谷村, 和彦
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/76224
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（谷村　和彦）	
論文題名	Design and Development of Cellulose Saccharification Process Based on Ionic Liquid Aqueous Two-Phase System (イオン液体水性二相系を利用するセルロース糖化プロセスの設計開発)

論文内容の要旨

化石燃料の効果的な代替品になり得るバイオエタノール生産については，産官学が協働して様々な研究が進められている．本研究では，イオン液体水性二相系(IL-ATPS)を活用して，セルロースの非晶化と酵素加水分解するプロセスの開発について検討した．

第1章では，セルロース系バイオマス利用に関する動向について，既存の研究を体系的に整理しIL-ATPSを用いたプロセス設計開発の基本概念を示した．第2章では回分式反応系における，IL濃度制御が糖化効率に及ぼす影響定量的に評価した．更に，速度解析に基づくセルロース溶解に対するセルロース溶解に対する[Amim] [Cl]と[Bmim] [Cl]の効果を比較し，前者の非晶化能に起因する糖化反応の優位性を示した．第3章では，IL-ATPSはイオン液体([Amim] [Cl]または[Bmim] [Cl])と塩水溶液(K_2CO_3またはK_2HPO_4)を混合して調製し，それらの物理的特性を相図に基づいて評価した．異なる条件で相分離挙動を決定し，代表的なIL-ATPSにおける疎水性の異なるアミノ酸の分配係数の解析結果に基づいて，IL-ATPSの疎水性指数を決定した．また，温度降下に伴い相分離範囲が拡大するUCST型の挙動を示し，5℃の温度条件下で最も広い相分離を示し，系内ILの95%以上が上相(IL相)に分離できることを明らかにした．4章では，2章で得られた最適IL濃度に関する知見および，3章で得られたIL-ATPSの相分離挙動ならびにその特性に関する知見に基づいて，IL-ATPSを用いた基礎的な糖化プロセスについて検討した．セルロース非晶化プロセス，IL回収，酵素反応から成るプロセスを提案し，相図に基づく各操作におけるIL濃度を推算した．また，酵素の至適pH(4.8)を維持した上で，適切なIL濃度を呈する混合塩組成(NaH_2PO_4 / Na_2HPO_4 = 5/1)を明らかにし，結晶セルロースを用いた糖化プロセスを検証した．従来型のプロセスに対して，前処理基質の洗浄や反応系におけるpH調製を簡略化できることを提示し，生産プロセスにおける設備費用およびランニングコストへの優位性を示した．

本論文では，IL-ATPSは相分離特性に応じてILの分離回収が可能であり，セルロースの酵素的加水分解に応用可能であることを示すだけでなく，IL-ATPSを用いた糖化プロセスは，将来のバイオエタノール生産技術の向上に繋がる可能性があることを示した．

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（谷村　和彦）			
論文審査担当者	（職）	氏　名	
	主 査	教　授	馬越　大
	副 査	教　授	平井　隆之
	副 査	教　授	松林　伸幸
	副 査	准 教 授	吉本　誠　（山口大学　大学院創成科学研究科）

論文審査の結果の要旨

既存バイオプロセスの設計・開発においては，多くの場合，試行錯誤的な戦略が採用される．効率のよい既存プロセスの基本骨格はそのままにして転用し，プロセスを構成する一部の単位操作に関する条件の最適化を通じて，新たに設定した対象を回収するプロセスを設計・開発するのが現状である．申請者 谷村 氏は，所属企業の開発ニーズにもマッチする木質バイオマスからのバイオエタノール生産を対象として設定し，イオン液体水性二相系(IL-ATPS)という学術的にも注目されている新規な分離系を基盤としたバイオプロセスを設計・開発するための方法論について，体系的に検討した．

第1章では，セルロース系バイオマス利用に関する動向について，既存の研究を体系的に整理し「セルロース前処理，イオン液体，水性二相系，酵素反応」などのIL-ATPSを用いたプロセス設計開発の基本概念を示した．第2章では，回分式反応系における，IL濃度制御が糖化効率に及ぼす影響をLangmuir吸着モデルおよびMichaelis-Menten型モデルを統合したモデル式を提案し，その速度論的な解析により，酵素吸着量，および，転化能を定量的に評価し，IL共存下における酵素反応を最適化する方法を示した．第3章では，IL-ATPSはイオン液体([Amim] [Cl]または[Bmim] [Cl])と塩水溶液(K_2CO_3またはK_2HPO_4)を混合して調製し，それらの物理化学的な特性を相図に基づいて評価した．異なる条件で相分離挙動(Binodal曲線，Tie-line length (*TLL*)，Slope of the Tie Lines (*STL*))から分配平衡を定量的に評価する手法を示した．さらに，代表的なIL-ATPSにおける疎水性の異なるアミノ酸(Gly, Val., Trp)の分配係数K_{aa}の解析結果に基づいて，IL-ATPSの疎水性指数(*HF*)を決定し，併せて対象物質の分配挙動を予測する方法を示した．2章で得られた最適IL濃度に関する定量的指標および，3章で得られたIL-ATPSの相分離挙動ならびにその特性に関する定量的指標に基づいて，IL-ATPSを用いた基礎的な糖化プロセスを，基礎的な解析データに基づいて合理的に設計・開発する戦略を明らかにした．第4章では，前章でまとめられた設計戦略に基づいて，そのケーススタディとして，セルロース非晶化プロセス，IL回収，酵素反応から成るプロセスを提案した．最適化されたプロセスでは，従来型のプロセスに対して，前処理基質の洗浄や反応系におけるpH調製を簡略化できることを提示し，生産プロセスにおける設備費用およびランニングコストへの優位性を示した．

本論文では，酵素反応の速度論的な解析，ならびに，IL-ATPSの平衡論的な解析を通じて，必要最小限の基礎データを解析し，それに基づいて，セルロースなどの木質バイオマスからエタノールを生産するためのバイオプロセスを設計・開発する戦略を確立した．ケーススタディの結果は，上記戦略の妥当性を示しており，今後，上述の戦略を工業的に応用するための端緒となる研究成果である．よって，博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める．