

## 審査の結果の要旨

氏名 徐 東準  
(ソドンジュン)

本論文は、「Effects of Lignocellulose Pretreatment Using Surfactants on Enzymatic Saccharification (界面活性剤を用いたリグノセルロースの前処理が酵素糖化に及ぼす影響)」と題し、リグノセルロース系バイオマスの酵素糖化において、非イオン性界面活性剤である Tween20 を用いた全く新しい前処理法を提案し、そのメカニズムを一連の実験と数理モデル解析によって定量的に明らかにするとともに、実用化のための具体的プロセスの提示までを行なったものであり、全 5 章からなる。

第 1 章は緒論であり、リグノセルロース系バイオマスの酵素糖化において、これまでに提案されている種々の前処理法について、それらの物質収支、エネルギー収支、環境負荷、経済性等を詳細に調査分析し、問題点を整理している。従来の前処理においては、リグノセルロースからのリグニンおよびヘミセルロースの除去、セルロースと糖化酵素の吸着平衡にのみ注目されており、複雑な構造を有するリグノセルロース中のセルロースへのバルク中からの糖化酵素の物質移動についてはほとんど研究がなされていない。そこで、リグノセルロースを高効率に酵素糖化するためには、セルロースに対する酵素のアクセシビリティを改善すること、すなわち円滑な物質移動を実現することがブレークスルーになると着想し、非イオン性界面活性剤 Tween20 を用いてリグノセルロースの高次フィブリル構造を改変させるという全く新しい前処理法を提案している。そして、本論文の目的を、提案する前処理法において、糖化酵素のセルロースへのアクセシビリティ改善の定量的評価、糖化速度および糖化率を向上させるメカニズムの解明と定量的記述、そして実用プロセスの提案であるとし、本論文の構成を示している。

第 2 章では、リグニン含有量が異なるリグノセルロース試料を木質バイオマスから調製し、酵素糖化および酵素吸着に対する Tween20 添加の影響を実験および数理モデルにより検討している。まず、本論文では 3 種類の酵素の混合物であると言われる糖化酵素セルラーゼを、単成分酵素として扱う簡便化について述べた後に、Tween20 およびセルラーゼの種々のリグノセルロース試料への吸着平衡と吸着速度を、それぞれの単成分系および混合系で測定している。そして、Tween20 がリグニン表面に吸着することによってセルラーゼの吸着を阻害するブロッキング効果を確認する共に、Tween20 の添加の影響はむしろセルラーゼの吸着速度により大きく現れることを実験的に明らかにしている。そして、これまでに提案されている複数の半経験的酵素糖化数理モデルを組合せ、さらに糖化の進行によ

るセルロースの減少の影響を新たに組込んだ数理モデルを構築し、それを用いた計算結果と実験結果と比較することにより、**Tween20** の添加による糖化速度の向上の主要因は、リグノセルロース内部のセルロースに対するセルラーゼのアクセシビリティの向上であると結論づけている。

第3章では、第2章で結論付けたことを証明するために、第2章で調製した各種のリグノセルロース試料や市販の結晶性セルロースについて、**Tween20** 添加によるセルロースファイブリルのナノ構造変化とセルラーゼの吸着平衡および吸着速度との関係を体系化している。構造分析としては、セルロースファイブリルの水に浸った状態における比表面積と細孔分布の分析評価、セルロースの還元末端濃度分析などを行なっている。そして、50%程度以上のリグニンを除去したリグノセルロース試料においては、**Tween20** の添加によりセルロースファイブリルが細分化され、細分化された新しいファイブリル間にセルラーゼが侵入可能な10~50nmの空隙が形成されること、ならびにセルロース還元末端濃度が高くなることを確認している。

第4章は、**Tween20** 添加によるセルロースファイブリルのナノ構造変化を考慮した酵素糖化の数理モデルを新たに構築し、それを用いた計算結果と実験結果との対比からその妥当性を検証した上で、種々の操作条件における糖化速度の予測を行い、当該前処理法の有効性を定量的に論じている。つまり、一定量のリグニンの除去が行われたリグノセルロースにおいては、当該前処理法によって酵素投入量を著しく低減し、かつ糖化時間を短縮することが可能であることを定量的に示している。また、一定量のリグニンをあらかじめ除去する必要性を確認した上で、当該前処理法の実用化のためには経済的な脱リグニン法との組み合わせが不可欠であると結論づけている。

第5章は結論であり、本論文の内容を総括した上で、得られた知見に基づいて生物的脱リグニン法と当該前処理法を組合わせた複合前処理プロセスを提案しており、今後の研究課題の整理と将来展望を行っている。

以上要するに本論文は、リグノセルロースの酵素糖化の全く新しい前処理法を提案し、そのメカニズムと有効性を定量的に明らかにしたものであり、リグノセルロース系バイオマスの利活用を飛躍的に高効率化する工学的に高い価値を有し、吸着工学および化学システム工学への貢献は大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。