



高分子生合成・生分解の過程解析

今井友也, 田所大輔, Shiqi Zhu, Yuna Kan
京大大学生存圏研究所

キーワード： 持続可能高分子材料、生合成、生分解、木材、セルロース、PET

1. 背景と研究目的

高分子は身近な生活を支える材料である。天然高分子には、生物由来であり再生可能性がある、一般に生分解性を有するため低環境負荷であるなどのメリットがある一方、天然由来故に物性に揺らぎがあり、その制御も難しいなどの短所もある。一方で合成高分子には、様々な物性制御の方法が存在する一方で、石油という枯渇資源由来である、低い生分解性ゆえに環境負荷が高いなどの問題点がある。これらの複合的な問題を解決するために、多様な高分子材料における生合成と生分解の研究が重要であると考え、本研究では、木材と PET を対象にその生分解における構造変化の過程、セルロースについては生合成における構造形成の過程を解明することを目的として、あいちシンクロtron光センターで実験を行った。

2. 実験内容

以下4点の試料を準備し、あいちシンクロtron光センターの BL8S3 にて広角 X 線回折実験に供した。

- 褐色腐朽菌 *Gloeophyllum trabeum* による腐朽を受けたマツおよびトウヒの辺材を準備し、約 1 mm の厚みで切り出した柁目スライスに垂直に X 線を入射した (X 線は木材の接線方向に透過)。
- 熱処理で作製した非晶性 PET のフィルム試料に、精製した PET 加水分解酵素 (Fast_PETase¹⁾) を加えて所定の時間 50°C で処理し、残ったフィルム試料を水洗、気乾し、広角 X 線回折に供した。
- 国際宇宙ステーションで合成したバクテリアセルロースのフィルムを洗浄後に凍結乾燥し、広角 X 線回折に供した。
- セロデキストリンホスホリラーゼ (CDP) による試験管内合成系を使って得たセルロース^{2,3)}を、水で洗浄後に凍結乾燥し、広角 X 線回折に供した。

広角 X 線回折測定は BL8S3 にて、波長 0.92 Å、カメラ長 20.9 cm、検出器として Pilatus 2M を使用して行った。実験 A では、繊維軸に直交方向の散乱強度を pyFAI を用いて求めた分析に供した。

3. 結果および考察

実験 A では、褐色腐朽では腐朽処理によるセルロースの結晶幅は大きく変化しないが、腐朽処理 10 週で 200 反射が大きく高角側にずれる現象を確認した (図 1)。

実験 B では、酵素処理による結晶構造の変化は認められなかったが、回折強度の変化について詳細な検討を現在進めている。

実験 C では、地上対照実験と宇宙実験の間に結晶構造の大きな変化は認められなかった。セルロースの場合、分子の凝集は重力の影響を受けないことを示唆している。

実験 D では、天然型結晶構造であるセルロース I を作るとされる条件³⁾で合成したセルロースが、我々の実験ではセルロース II を含むことを確認した。その原因について現在検討を進めている。

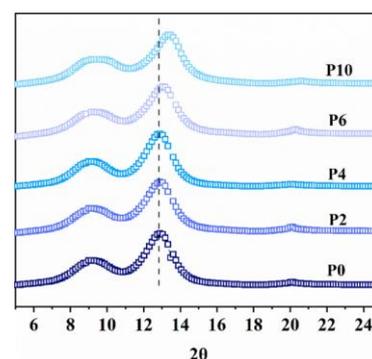


図 1 褐色腐朽を受けたマツ材の広角 X 線回折プロファイル (赤道方向)。木材中のセルロース結晶構造の変化が見えている。P0: 分解前の木材; Px: x 週間処理した木材

4. 参考文献

- 1) Lu, H., et al. *Nature*, **604**, 662-667, 2022; 2) Hiraishi, M., et al. *Carbohydrate Research*, **344**, 2468-2473, 2009; 3) Yataka, Y., et al. *Langmuir*, **32**, 10120-10125, 2016 s