

(様式7)

学位論文審査結果の要旨

氏名	安倍 良和
審査委員	委員長 _____ 伊藤 敏幸 委員 _____ 齋本 博之 委員 _____ 川面 基 委員 _____ 委員 _____
論文題目	Ionic Liquid Mediated Activation of Enzymatic Reactions (イオン液体を用いた酵素反応活性化)
審査結果の要旨	<p>酵素は究極の環境調和型触媒であり、今日では医薬や機能材料の中間体合成に酵素反応が広く利用されるようになった。しかし、有機合成の現場で使いやすくデザインした非天然基質を酵素で化学変換しようとするとき既存酵素が利用できないことも多く、酵素のエナンチオ選択性や反応速度を制御する必要がある。第3の液体といわれるイオン液体をリパーゼの溶媒に利用すると、酵素を反応溶媒に固定化して再使用でき、従来利用されてきた有機溶媒や水中で行う場合と異なる反応性を示すことがわかった。筆者はイオン液体を反応溶媒とするリパーゼ触媒反応において、イオン液体を利用するリパーゼの活性化をテーマに研究を行い、下記に要約する先駆的な成果を挙げた。</p> <p>1) イオン液体とアミノ酸の協調によるリパーゼ活性化 アルキル PEG 硫酸を対アニオンにもつイミダゾリウム塩イオン液体でリパーゼをコーティングすると、酵素本来のエナンチオ選択性を保持したまま、顕著な反応加速が起こること、特に、アミノ酸と一緒にコーティングすると活性化されることを発見した。ついで、もっともよい結果が得られたアミノ酸であるプロリンに着目し、プロリンの本体であるキラルピロリジン環を導入したキラルイオン液体を合成し非天然プロリンから誘導したR体イオン液体でリパーゼタンパクをコーティングすると極めて大きな反応活性化が起こることを見いだした。</p> <p>2) イオン液体コーティング酵素に適したイオン液体の開発 イオン液体中でリパーゼを使用すると、イオン液体という溶媒にいわば酵素を固定化して酵素のリサイクル使用が可能となることを明らかにしている。従って、イオン液体コーティング酵素がイオン液体溶媒で利用できると、反応活性化と酵素のリサイクルができることになることと期待された。ところが、イオン液体コーティング酵素はイオン液体溶媒の種類でその反応性が大きく変化することがわかり、広く使用されているイオン液体[bmim][Ntf₂]では、反応速度、エナンチオ選択性ともに不十分であり、既存のジイソプロピルエーテル溶媒より劣っていることがわかった。そこで、イオン液体コーティング酵素に適したイオン液体のデザインを検討し、既存の有機溶媒やイオン液体を凌駕する機能を持つ新規ホスホニウムイオン液体の開発に成功した。</p> <p>これらの研究成果は、権威ある国際的学術誌である Adv. Synth. Catal. ならびに Green Chemistry に掲載され、世界的に高く評価されている。よって、本論文は博士（工学）を授与するに相応しい論文であると判定する。</p>