



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Enhanced adsorption and enzymatic hydrolysis of polyethylene terephthalate in cutinase with an N-terminal hydrophobic tether
Author(s)	SHUV0, Md Sadikur Rahman
Description	この博士論文の全文は利用可能日以降に公開されます。
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(環境科学)
Dissertation Number	甲第16575号
Issue Date	2025-09-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16575
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/98185
Type	doctoral thesis
File Information	SHUV0_Md_Sadikur_Rahman_review.pdf, 審査の要旨 https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/



学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士（環境科学）

氏 名 SHUVO Md Sadikur Rahman

審査委員 主査 教授 小野田 晃
副査 教授 八木 一三
副査 教授 中島 清隆

学 位 論 文 題 名

Enhanced adsorption and enzymatic hydrolysis of polyethylene terephthalate in cutinase
with an N-terminal hydrophobic tether

(N末端に疎水鎖を導入したクチナーゼにおける吸着および
PETの酵素加水分解の特性向上)

PET（ポリエチレンテレフタレート）は、機械的強度、耐薬品性を備えた材料として包装や繊維として広く実社会で用いられている。一方で、PETは化学的に安定で自然解では分解されにくいいため、プラスチック廃棄物として深刻な環境問題となっている。従来の化学的リサイクル手法に加えて、持続可能かつ効果的にリサイクル・機能化する手法として酵素の利用が精力的に研究されている。本学位論文では、N末端に疎水鎖を導入したクチナーゼを用いてPETへの吸着を向上することによって酵素加水分解の効率を向上することに成功し、その吸着特性を明らかにした。

第1章では、PETの化学構造、環境への影響、現行のリサイクル手法について包括的に概説している。PETをテレフタル酸とエチレングリコールへと加水分解する代替法としての酵素利用がある。有望な酵素として、クチナーゼなどが挙げられる。これらの酵素による加水分解を効率化する既報として、酵素と基質の相互作用に関する課題や、酵素活性を高めるための表面工学の必要性についても論じている。

第2章では、アルキル鎖を有する1*H*1,2,3-トリアゾール-4-カルバルデヒド誘導体を用いたクチナーゼのN末端特異的修飾によるPET分解の促進について述べている。*Thermobifida cellulosilytica*由来のクチナーゼ（Thc_Cut1）のN末端に疎水性部位を位置特異的に導入することで、PETの酵素加水分解を向上する新たな戦略を開発した。まずDimroth転位反応を用いて合成したアルキル鎖長の異なるトリアゾール系アルデヒド誘導体（C3, C6, C9）を酵素のN末端アミノ基に結合させた。修飾クチナーゼは、速度論的解析において触媒性能が大きく変化しないことを示した。PETのオリゴマー基質やアモルファスPETフィルムを用いた加水分解試験では、アルキル鎖長の長い修飾クチナーゼにおいて分解促進効果が確認され、特にC9-Cutでは未修飾酵素に比べてTPAの生成量が最大69%増加した。SEM、XPS、水接触角解析による表面評価では、アルキル鎖の長さに応じてクチナーゼの吸着量の増加と基質表面の加水分解が観察された。以上より、N末端への疎水性部位の位置特異的な化学修飾が、酵素と疎水性

基質の相互作用を増強し、触媒効率を向上させる有効な手段であることを明らかにした。

第3章では、クチナーゼとPET表面の相互作用をさらに増強することを指向して、芳香族部位をクチナーゼのN末端に連結し、PETの加水分解を評価した。芳香族部位として、フェニルプロピル基やナフチル基を含むトリアゾール誘導体を合成し、それぞれクチナーゼのN末端に連結させた。これらの芳香族部位をN末端に連結した修飾クチナーゼは、酵素とPET表面との吸着を増強し、非晶質PET粉末およびPET繊維に対して加水分解を加速した。TPA生成量をHPLCで定量した結果、ナフチル基を連結したクチナーゼが最も高い分解効率を示し、未修飾酵素を上回った。SEMによる処理後のPET表面観察においても、顕著な加水分解によって粗い構造であることが確認された。以上の結果より、芳香族部位のN末端連結によって、アルキル鎖を連結した場合よりも、クチナーゼとPET表面への吸着を増強し、PET加水分解に対して高い活性を示すことを明らかにした。

第4章では、クチナーゼで表面処理したPET繊維の新たな応用として、静電特性や色素の吸着に取り組んだ。クチナーゼによる表面の変換によって、PET表面に親水性かつ負に帯電した極性基が導入され、静電特性が変化した。メチレンブルーを用いた染色試験では、処理布における染料吸着量が増加し、カチオン性染料に対する親和性が向上する。特に疎水性部位をN末端に連結したクチナーゼは最も顕著な効果を示した。以上の結果は、酵素修飾によるPETの加水分解に加えて、表面機能の改質への応用を実証したものである。

本学位論文は、タンパク質の位置特異的な化学修飾の利用により、PETへ表面吸着の増強と加水分解効率の向上を実証している。加えて、PETの表面改質にも活用できることを示した。以上の成果は、酵素を利用した効率的なPETリサイクルおよび新たな表面改質材料応用における新たな指針を与えるものである。

審査委員一同は、以上の成果を高く評価し、また研究者として誠実かつ熱心であり、大学院博士課程における研鑽や修得単位などもあわせ、申請者が博士（環境科学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものと判定した。