



令和5年7月13日

報道関係各位

国立大学法人弘前大学
国立大学法人長岡技術科学大学
国立大学法人北海道国立大学機構 帯広畜産大学

化学とバイオが連携してリグニンからの芳香族ポリマー合成に成功

リグニンからバニリン酸を選択的に生産しポリマー合成に適用できることを実証

<発表のポイント>

- 非可食バイオマスの主成分であるリグニンの化学分解物からバニリン酸を生産
- リグニンから生産したバニリン酸を原料としたポリエチレンバニレートの合成を実証
- リグニン活用の障害であった化学構造の不均一性を解決する技術として期待

<発表の概要>

弘前大学の園木 和典 准教授、竹内 大介 教授、樋口 雄大 助教、坂本 千穂、長岡技術科学大学の政井 英司 教授、上村 直史 准教授、帯広畜産大学の吉川 琢也 准教授（以下、「本研究グループ」）は、リグニンから耐熱性芳香族ポリマーを合成することに成功しました。本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構（JST）未来社会創造事業の支援を受けて行われました。

非可食バイオマスの主要成分であるリグニンは、芳香族素材の原料として注目されていますが、その構造の不均一さに対応できる技術の開発が課題でした。本研究グループは、*Sphingobium* sp. SYK-6 株^{注1)}の代謝を利用することで、サルファイトリグニン^{注2)}を化学的に分解して生成する芳香族化合物の混合物を、バニリン酸^{注3)}へと均一化できること、そしてこのリグニン由来のバニリン酸を用いて、耐熱性芳香族ポリマーの一つであるポリエチレンバニレート^{注4)}を合成できることを明らかにしました（図1）。

本研究成果は、ポリマーに熱安定性や剛直性などの機能を与える芳香族化合物をリグニンから生産し、エンジニアリングプラスチック^{注5)}の原料として活用することが期待されます。

本研究成果は、令和5年7月3日に国際科学誌「Bioresource Technology」のオンライン版で公開されました。

(URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0960852423008787>)



弘前大学



国立大学法人
長岡技術科学大学
Nagaoka University of Technology



国立大学法人北海道国立大学機構

帯広畜産大学

本研究成果は、以下の事業・研究領域・研究課題によって得られました。

J S T 未来社会創造事業 探索加速型

研究領域：「地球規模課題である低炭素社会の実現」

研究開発課題名：「リグニンからの芳香族ポリマー原料の選択的生産」

研究開発代表者：園木 和典 弘前大学 農学生命科学部 准教授

研究開発期間：令和元年10月～令和6年3月

グラント番号：JPMJMI19E2



弘前大学



国立大学法人
長岡技術科学大学
Nagaoka University of Technology



国立大学法人北海道国立大学機構

帯広畜産大学

＜研究の背景と経緯＞

化石資源由来のポリマーを、再生可能で食糧と競合しないリグノセルロース^{注6)}から作り出すことができるポリマーに置き換えることは、環境に与える影響を緩和し、持続可能な社会の発展に貢献する有望なアプローチです。

リグノセルロースの主要な構成成分である天然芳香族高分子リグニン^{注6)}は、芳香族素材製造の原料として活用することが期待されているものの、その剛直で不均一な化学構造から均質な化合物を効率的に製造することは容易ではありませんでした。近年この障害を克服するために、リグニンを化学的に低分子化して生成する芳香族化合物の混合物を、代謝能を改変・増強した微生物株により、特定の有用物質に変換する方法が世界的にも検討されています。しかし、リグニンの化学分解によって生成する多様な芳香族化合物の混合物から特定の芳香族モノマーを選択的に生産すること、そして生産された芳香族モノマーから芳香族高分子素材を合成することは世界的にも十分に研究されていません。

＜研究の内容＞

本研究では、工業リグニンの一つであるサルファイトリグニンから、アルカリ酸化分解と代謝改変微生物による変換を組み合わせ、リグニン由来の代表的な化合物であるバニリン酸を製造し、リグニン由来のバニリン酸からポリエチレンテレフタレート (PET) と同等の性能が期待されているポリエチレンバニレート^{注6)}を合成する処方^{注6)}を確立しました(図1)。

本研究グループは、針葉樹サルファイトリグニンを $\text{Cu}(\text{OH})_2$ 触媒を用いたアルカリ酸化分解により低分子化し、続いて *Sphingobium* sp. SYK-6 株の代謝経路を利用してバニリン酸に変換しました。使用した微生物株は、リグニンを構成する様々な芳香族化合物の中からバニリン酸のみを蓄積させるようにデザインされた本研究グループオリジナルの代謝改変微生物です。この微生物株により生産されたリグニン由来のバニリン酸から、メチルエステル化、ヒドロキシエチル化、蒸留、重合から成るステップを経て、ポリエチレンバニレートを得ることに成功しました。

今回、合成に成功したポリエチレンバニレートの重量平均分子量は 13,000、融点は 261℃であり、着色が抑えられた特徴をもちます。本研究で実証したポリエチレンバニレートの合成処方では、クロマトグラフィーによる精製を行うことはなく、またヒドロキシエチル化と重合反応では反応溶媒も必要としません。

本研究は、リグニンの酸化分解（化学プロセス）と分解物の微生物変換（バイオプロセス）が連携してサルファイトリグニンから選択的にバニリン酸を生産すること、生産したリグニン由来のバニリン酸を用いてエンジニアリングプラスチックの一つであるポリエチレンバニレートの合成に成功した最初の報告です。



弘前大学



国立大学法人
長岡技術科学大学
Nagaoka University of Technology



国立大学法人北海道国立大学機構

帯広畜産大学

<今後の展開>

本研究では、化学とバイオが連携してサルファイトリグニンから特定の芳香族化合物を生産できること、そしてその芳香族化合物を用いてポリマー合成ができることを実証しました（図1）。

今後、裸子植物や被子植物、そして草本類由来の様々なリグニンに対して低分子化反応条件や微生物株の代謝経路の最適化を進めていきます。本研究成果の活用は、これまで燃焼させてエネルギーへと転換することが主たる用途であったリグニンを、芳香族高分子素材の原料として活用することを可能にします。

社会実装に向けた今後の取り組みとして、本研究グループは日鉄エンジニアリング株式会社と連携し、同社事業のバイオエタノール製造プロセスにて発生するリグニンを原料として、芳香族ポリマーを合成する研究開発を計画しています。

（参考情報URL：<https://www.eng.nipponsteel.com/news/2023/20230602.html>）

<参考図>

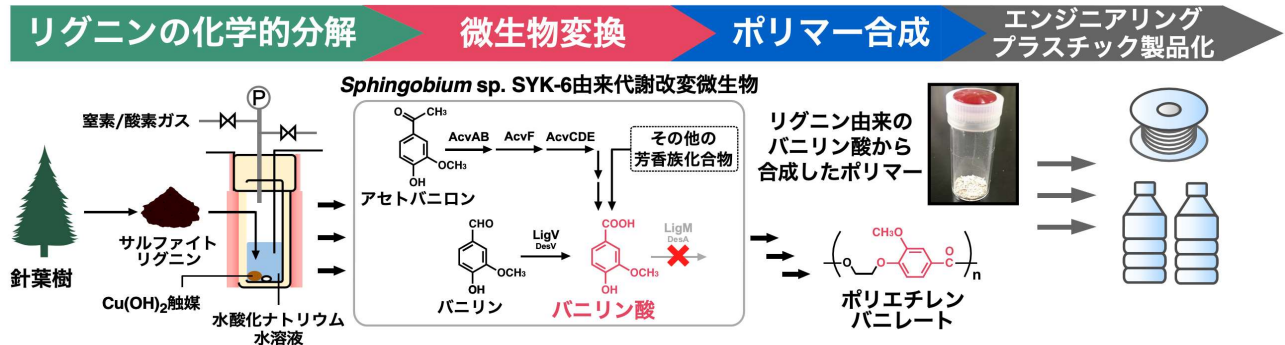


図1 リグニンからのバニリン酸生産とそれを原料としたポリマー合成の概略図

今回実証したリグニンを原料とした芳香族ポリマー合成の概略図です。工業的に入手可能なサルファイトリグニンを原料として使用し、目的物のリグニン由来バニリン酸（赤字）を、代謝改変微生物を用いて生産することに成功しました。リグニン由来バニリン酸を利用したポリマーは、エンジニアリングプラスチックの原料として期待されています。

<用語解説>

注1) *Sphingobium* sp. SYK-6 株

リグニン由来の多様な芳香族化合物の分解能力を保持している細菌。

注2) サルファイトリグニン

パルプを製造するために、木材チップを亜硫酸で処理することで可溶化してパルプ画分と分離されたリグニン。

注3) バニリン酸

4-ヒドロキシ-3-メトキシ安息香酸、 $\text{HO}_2\text{C}_6\text{H}_3(\text{OCH}_3)\text{CO}_2\text{H}$ 、CAS 121-34-6

注4) ポリエチレンバニレート

4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-メトキシ安息香酸（バニリン酸をヒドロキシエチル化した化合物）を多数連結させた高分子。

注5) エンジニアリングプラスチック

汎用プラスチックに比べて、耐熱性や機械的強度に優れたプラスチックの総称。

注6) リグノセルロース

セルロース、ヘミセルロース、リグニンが結合した物質の総称。



弘前大学



国立大学法人
長岡技術科学大学
Nagaoka University of Technology



国立大学法人北海道国立大学機構

帯広畜産大学

<論文タイトル>

“Successful selective production of vanillic acid from depolymerized sulfite lignin and its application to poly(ethylene vanillate) synthesis”

(和訳：サルファイトリグニン分解物からの選択的なバニリン酸生産と、生産したバニリン酸からのポリエチレンバニレート合成)

doi : 10.1016/j.biortech.2023.129450

<お問い合わせ先>

【研究に関すること】

園木 和典 (ソノキ トモノリ)

弘前大学 農学生命科学部 准教授

Tel : 0172-39-3585 E-mail : sonoki@hirosaki-u.ac.jp

政井 英司 (マサイ エイジ)

長岡技術科学大学 技学研究院 物質生物系 教授

Tel : 0258-47-9428 E-mail : emasai@vos.nagaokaut.ac.jp

吉川 琢也 (ヨシカワ タクヤ)

帯広畜産大学 環境農学研究部門 准教授

Tel : 0155-49-5541 E-mail : yoshikawa@obihiro.ac.jp

【報道担当】

渡部 雄太 (ワタナベ ユウタ)

弘前大学 研究・イノベーション推進機構 東京事務所

Tel : 03-3519-5060 E-mail : j-tokyo@hirosaki-u.ac.jp

長岡技術科学大学 大学戦略課企画・広報室

Tel : 0258-47-9209 E-mail : skoho@jcom.nagaokaut.ac.jp

加藤 優馬 (カトウ ユウマ)

帯広畜産大学 企画総務課 基金・広報係

Tel : 0155-49-5219 E-mail : kouhou@obihiro.ac.jp

以上