

持続可能な材料設計に向けた確実な結合とやさしい分解
2021 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

土屋 康佑

京都大学 大学院工学研究科／科学技術振興機構
特定准教授／さきがけ研究者

酵素によるポリアミド合成／分解のオルソゴナル制御

研究成果の概要

材料としての長期安定性と即時分解性を併せ持つ高分子材料の開発が、石油由来材料からの脱却と持続可能社会の構築に向けて急務となっている。本研究では、産業利用されている高性能芳香族ポリマーの主鎖骨格構造を周期的に導入したポリペプチドを設計することにより、酵素を利用した合成及び分解をそれぞれ独立に制御する系を確立し、ケミカルリサイクルが可能な新規ポリアミド材料の創製を目指す。本年度は、前年度に引き続き芳香族ポリマーとしてポリベンゾオキサゾール(PBO)の単位ユニットを導入したポリアミドの合成を行った。PBO ユニットの天然アミノ酸であるグリシン、アラニン、セリン残基で修飾した配列の異なるトリペプチドエステルモノマーを合成し、酵素触媒としてパパインを用いた重合を試みた。前年度に確立した最適条件下において重合を行った結果、C 末端側にグリシンを含む配列を有するモノマーのみ重合が進行してポリアミドが得られた。パパインを用いた酵素重合において、非天然構造を導入したモノマーにおいても配列選択的な重合が進行することを見出した。また、芳香族ユニットにおいてパラ型およびメタ型の構造を有するポリアミドを酵素重合により合成し、X 線散乱実験による二次構造解析を行ったところ、パラ型の構造を有するポリアミドでは結晶性ピークが観測されたのに対して、メタ型のポリアミドは非晶性を示した。一方、同じモノマーから熱重合により合成した構造の不明瞭なポリアミドでは、パラ型の構造を有するポリアミドでも非晶性が高くなった。このことから、主鎖構造を適切に分子設計することでポリアミドの構造や物性を制御できる可能性を示した。

【代表的な原著論文情報】

1) K. Terada, T. Kurita, J. Gimenez-Dejoz, H. Masunaga, K. Tsuchiya, K. Numata, “Papain-catalyzed sequence-dependent polymerization yields polypeptides containing periodic histidine residues” *Macromolecules* **2022**, 55, 6992-7002.