

(様式第3号)

論文要旨

論文題目

Biotransformation of organic compounds by biocatalysts

生体触媒による有機化合物の変換反応

Biotransformation of bromosquiterpenes was investigated with two kinds of fungi, *Rhinoctadiella atrovirens* NRBC 32362 and also *Rhinoctadiella* sp. K-001, isolated from the Okinawan brown alga *Styopodium zonale*. *R. atrovirens* NRBC 32362 converted aplysiastatin (1) into three compounds 5 α -hydroxyaplysiastatin (4), 5 α -hydroxyisoaplysiastatin (5) and 9 β -hydroxyaplysiastatin (6). Transformation of 1, palisadin A (2) and 12-hydroxypalisadin B (3) by *Rhinoctadiella* sp. K-001 gave two compounds, 3,4-dihydroaplysiastatin (7) and 9,10-dehydrobromopalisadin A (8).

Biotransformation of androst-4-ene-3,17-dione (1) and pregnenolone (2) was investigated with fungus of *Gelasinospora retispora*. Transformation of 1 was converted to 11 α -hydroxyandrost-4-ene-3,17-dione (3) in a good yield. Compound 2 was converted to three compounds, androst-5-ene-3,17-diol (4), dehydroepiandrosterone (5) and 15 β -hydroxydehydroepiandrosterone (6).

Biotransformation of α -haloacetophenone derivatives was investigated with alga of *Nostoc minutum* NIES-29. It was found that biotransformation of 2-haloacetophenone derivatives gives the corresponding hydroxyl compound. In the case of 2-bromoacetophenone derivatives, substitution to hydroxyl group of bromine occurred preferentially. For 2-chloroacetophenone derivatives, a carbonyl group was reduced to hydroxyl group as major products.

氏名 越村 匡博

22年 2月 19日

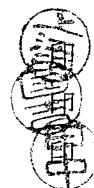
琉球大学大学院
理工学研究科長 殿

論文審査委員

主査 氏名 上江田捷博

副査 氏名 国吉 正之

副査 氏名 田中 淳一



学位（博士）論文審査及び最終試験の終了報告書

学位（博士）の申請に対し、学位論文の審査及び最終試験を終了したので、下記のとおり報告します。

記

申請者	専攻名 海洋環境学 氏名 越村 匡博 学籍番号078551C
指導教員名	上江田 捷博
成績評価	学位論文 (合格) 不合格 最終試験 (合格) 不合格
論文題目	Biotransformation of organic compounds by biocatalysts (生体触媒による有機化合物の変換反応)
審査要旨 (2000字以内) 1) 提出された博士論文の概要は以下のとおりである。 現在有機化合物の合成は有機溶媒や金属触媒などを使用した、化学的方法で行われている。しかし近年では、その過程において生じる廃液などが様々な環境汚染の問題となっており、物質の合成において環境面に配慮したエコフレンドリーな物質変換法（グリーンケミストリー）が考えられてきた。このような背景より、有機溶媒などをほとんど使用しない生体触媒を利用した物質生産が新たな有機合成法の一つとして注目を集めている。	

(次頁へ続く)

審査要旨

本研究では沖縄由来のカビおよび藻類を生体触媒として反応を行い、その有効性について検討を行った。

本論文は第1章の序論を含む4章によって構成されている。

第2章では、紅藻 *Laurencia luzonensis* より単離された3つの含臭素セスキテルペンを基質として、*Rhinocladiella atrovirens* および *Rhinocladiella* sp. K-001 の2種類のカビによる変換反応を検討している。その結果、5つの新規化合物を代謝生成物として得ている。*R. atrovirens* による反応においては位置選択的な水酸基の導入さらにメチル基の転位が起こっている。一方、*Rhinocladiella* sp. K-001 を用いた反応においては炭素-炭素二重結合が還元および脱HBr化された代謝生成物が得られている。これまでに海洋天然物を基質として生体触媒反応に応用した報告は殆どなく、本研究は海藻の物質代謝とカビとの関係について有益な情報を与えた。

第3章では *Gelasinospora retispora* による2種類のステロイド化合物の変換反応について検討を行っている。ステロイド化合物については古くから様々なカビなどによる生体触媒反応が行われてきた。本研究ではこれまでほとんど使用されることのなかった *G. retispora* の生体触媒としての利用を試みている。その結果、位置及び立体選択的に水酸基が導入された化合物を得ている。特に androst-4-ene-3,17-dione を基質とした反応においては C_{11} の α 位に水酸基が導入された化合物を高収率で得られている。これらの反応はいずれもステロイド化合物の反応において重要なものであり、本研究により *G. retispora* のステロイド化合物に対する生体触媒としての有用性が示唆された。

第4章では藍藻 *Nostoc minutum* を用いた2-ハロアセトフェノン誘導体の変換反応について検討している。生体触媒反応においてはこれまでに酵母やカビなど様々な微生物について実験が行われてきたが、藻類を用いた報告はそれほど多くはない。その為実験データの蓄積という観点からモデル化合物として2-ハロアセトフェノン誘導体が基質として用いられている。反応に使用された *N. minutum* は沖縄県石垣島にて採集された株であり、これまでに生体触媒反応に殆ど利用されていない。2-プロモアセトフェノン誘導体を基質とした反応においては、臭素の水酸基への置換反応が優先的に起こっている。一方、2-クロロアセトフェノン誘導体においてはカルボニル基が還元された2-クロロアルコールが高収率で得られている。現在、本反応の代謝生成物として得られた2-ヒドロキシケトン、2-クロロアルコールは各種医薬・農薬の重要な合成原料であり、簡便な方法でこれらの化合物を得ることが重要となっている。従来法と比較して *N. minutum* による反応は基質選択性が高いことが示された。本研究によって *N. minutum* を2-ハロケトンの反応に利用できる可能性が示唆された。

2) 学位論文の審査及び最終試験

平成22年2月15日(月)9時より理学部複合棟202教室において口頭発表と質疑応答による最終試験を行った。さらに提出された博士論文の審査を行い、博士論文として十分な内容であると判断し、最終試験および博士論文をそれぞれ合格とした。