

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	新規な側鎖構造をもつ微生物ポリエステル の 生合成と熱物性
Title(English)	
著者(和文)	水野匠詞
Author(English)	Shoji Mizuno
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10508号, 授与年月日:2017年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:柘植 丈治,阿部 英喜,北本 仁孝,和田 裕之,福居 俊昭
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10508号, Conferred date:2017/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	水野 匠詞	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	柘植 丈治	准教授	福居 俊昭	教授
	審査員	阿部 英喜	教授		
		北本 仁孝	教授		
	和田 裕之	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「新規な側鎖構造をもつ微生物ポリエステルの生合成と熱物性」と題し、全五章から構成されている。

第一章「序論」では、本研究の背景として、生分解性プラスチック素材であるポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) の特徴や微生物を用いた生産方法について概観している。また、実用的な材料物性を示す PHA は、異なるモノマーから構成される共重合体であり、融解温度 (T_m) やガラス転移温度 (T_g) などの熱物性はモノマー組成比に依存していることについて言及している。一方で、PHA においては T_g を高くするための設計指針がなく、このことが PHA の用途が拡大しない一因であると述べている。そして本論文の目的として、PHA 側鎖の構造に着目して熱物性との相関を調べることで、側鎖構造と熱物性に関する新たな知見を得ることと述べている。

第二章「芳香族 3-ヒドロキシ酸を含む 3HB 共重合体の生合成」では、これまで合成例のない 3-ヒドロキシブタン酸 (3HB) と 3-ヒドロキシ-3-フェニルプロパン酸 (3H3PhP) との共重合体、もしくは、3HB と 3-ヒドロキシ-4-フェニルブタン酸 (3H4PhB) との共重合体の生合成を行っている。具体的には、基質特異性が幅広いことが知られている PHA 重合酵素を生産宿主において発現させ、前駆体を添加することで共重合体の生合成を行っている。この結果、3H3PhP ユニットを 18 mol% 含む共重合体を得ている。一方、3H4PhB ユニットを含む共重合体においては、種々の改変を加えることで 11 mol% まで増加させており、モノマー組成比を幅広く制御することに成功している。

第三章「2-ヒドロキシ酸を含む 3HB 共重合体の生合成」では、3HB とかさ高い側鎖をもつ 2-ヒドロキシ酸 (2HA) からなる新規な共重合体の生合成を検討している。2HA 前駆体としてアミノ酸を利用することに着目し、生産宿主である大腸菌の代謝経路を改変することでそれを可能にしている。実際に培地にアミノ酸前駆体を添加することにより、2HA が主体となった共重合体を生合成している。また、 ^{13}C 標識前駆体を使用したトレーサー実験を行い、添加した前駆体が炭素骨格を維持したまま 2HA ユニットとして取り込まれることを明らかにしている。

第四章「2-および 3-ヒドロキシ酸を含む 3HB 共重合体の熱物性評価」では、均質で、かつ、異なる組成比からなる共重合体を取得するために、第二章および第三章で生合成した共重合体サンプルを溶媒分画法に供している。この結果、共重合組成の異なる画分を得ることができ、生合成されたサンプルはポリマーブレンドであることを明らかにしている。分画したサンプルの熱的特性を評価し、3H3PhP 分率の高いサンプルは非晶性ポリマーであるのに対して、3H4PhB 共重合体の分画した全てのサンプルで結晶性ポリマーであることを示している。これらの共重合体の T_g は、3H3PhP および 3H4PhB 分率が増加するに伴い上昇し、側鎖の芳香環により自由体積が減少したことで主鎖の分子運動性が抑制されることを示している。同様に、2HA 共重合体を溶媒分画し熱物性を調べているが、2HA 分率の増加に伴う T_g 上昇が観察されないことを示している。これは、2HA ユニットの導入により主鎖の内部回転ポテンシャルが減少したのに対して、側鎖のアルキル鎖により自由体積が増大したため、 T_g 上昇の効果が相殺されたためと考察している。

第五章「総括」では、本研究で得られた結果を総括し、今後の展望を述べている。

これを要するに本論文は、実用的な環境低負荷型高分子材料を創成する観点から、PHA の側鎖構造に着目して研究を行い、新規な PHA の生合成法を確立し、これらのポリマーを解析することで側鎖構造と熱物性に関する新たな知見を得たものであり、工学上貢献するところが大きい。よって、本論文は、博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。