

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	3-ヒドロキシ-2-メチル酪酸含有ポリエステル生合成および諸物性に関する研究
Title(English)	Study on Biosynthesis and Properties of 3-Hydroxy-2-Methylbutyrate-Containing Polyesters
著者(和文)	古舘祥
Author(English)	Sho Furutate
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10824号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:柘植 文治,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10824号, Conferred date:2018/3/26, 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	古舘 祥	
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	特任教授		
		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”Study on Biosynthesis and Properties of 3-Hydroxy-2-Methylbutyrate-Containing Polyesters” (3-ヒドロキシ-2-メチル酪酸含有ポリエステルの生合成および諸物性に関する研究) と題し英文で書かれ、全5章から構成されている。

Chapter 1 “General Introduction” 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、PHA の更なる高性能化に向けては、結晶化速度や熱安定性を改善できるモノマーユニットの探索が必要であることについて言及している。そして本研究の目的として、活性汚泥中の微生物が生合成する PHA の構成モノマーとして知られる 3-ヒドロキシ-2-メチル酪酸 (3H2MB) に着目し、3H2MB のホモポリマーおよびコポリマーを生合成しその諸物性に関する知見を得ることで、速い結晶化速度と高い熱安定性を有する新規な PHA を開発することと述べている。

Chapter 2 “Biosynthesis and Properties of Poly(3-Hydroxy-2-Methylbutyrate) Homopolymer” では、脂肪酸β酸化系を欠損させた大腸菌に PHA 生合成遺伝子群を導入し、前駆体を添加することで P(3H2MB) の生合成を行い、その熱的物性について調査している。得られた P(3H2MB) を核磁気共鳴分析に供し、各炭素に帰属されるピークが単一成分で構成されることからアイソタクティック性が高いポリマーであることを示している。そして、P(3H2MB) を示差走査熱量計により分析し、融点およびガラス転移点が既存の PHA よりも高温であることを示している。さらに、等温結晶化解析から P(3H2MB) は短い半結晶化時間を有することを示し、冷却過程における結晶化温度と第二昇温過程における融点の差を基準に結晶化速度を評価することで、P(3H2MB) は汎用プラスチックに匹敵する結晶化挙動を示すことを明らかにしている。また、熱重量分析から P(3H2MB) は既存 PHA よりも高い熱分解温度を有することを示している。以上のことから、P(3H2MB) は既存 PHA に比べて速い結晶化速度と高い熱的安定性を有すると述べている。

Chapter 3 “Biosynthesis and Properties of Poly(3-Hydroxy-2-Methylbutyrate-co-3-Hydroxy hexanoate)” では、3H2MB と 3-ヒドロキシヘキサノ酸 (3HHx) からなる共重合体を生合成し、その熱的性質について調査している。共重合化することで、3HHx の取り込み量に応じて融点およびガラス転移点の低下が見られ、3HHx が 25 mol% 以上では融点が観察されないことを示している。一方で、結晶性を有する共重合体においても十分に速い結晶化速度が得られることを観察しており、この速い結晶化速度は 3H2MB の構造的な因子に起因することを議論している。

Chapter 4 “Application of 3-Hydroxy-2-Methylbutyrate-Containing Copolymer” では、3H2MB 含有 PHA の速い結晶化速度を利用して結晶核剤として応用することを検討している。まず、3H2MB 含有 PHA を生合成し、相溶性を高めるため低分子量化を行い、モノマー組成比や分子量が異なる数種類の 3H2MB 含有オリゴマーを調製している。この 3H2MB 含有オリゴマーを既存の PHA と混合することで結晶化が促進されることを観察しており、このことから結晶核剤としての応用の可能性について述べている。

Chapter 5 “Summary” では、本研究で得られた結果を要約するとともに、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 のモノマー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一次構造と結晶化挙動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。