

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Study on biosynthesis and characterization of polyhydroxyalkanoates with γ -carbon side-chain
著者(和文)	マルグブ ミリザティ
Author(English)	Mierzati Maierwufu
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12230号, 授与年月日:2022年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:柘植 文治,北本 仁孝,曾根 正人,林 智広,福居 俊昭
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12230号, Conferred date:2022/9/22, 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	Maierwufu Mierzat	
		氏名	職名		氏名	職名
論文審査 審査員	主査	柘植 丈治	准教授	審査員	福居 俊昭	教授
	審査員	北本 仁孝	教授			
		曾根 正人	教授			
		林 智広	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は "Study on biosynthesis and characterization of polyhydroxyalkanoates with α -carbon side-chain" (α 炭素に側鎖を有するポリヒドロキシアルカン酸の生合成と特性評価に関する研究) と題し英語で書かれ、全 5 章から構成されている。

Chapter 1 "General introduction" では、プラスチックの社会的背景や生分解性プラスチック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。なかでも、 α 炭素に側鎖を有する PHA に着目し、現時点では生合成可能な種類が限られていること、また、材料物性についても系統的に評価されていないことに言及している。そして本論文の目的として、 α 炭素に側鎖を有する PHA の生合成法を確立し、その材料特性を調査することで、新たな物性を備えた PHA を探索することと述べている。

Chapter 2 "Biosynthesis and characterization of PHA containing 2HA units" では、アミノ酸に由来する 2-ヒドロキシアルカン酸 (2HA) ユニットを含む PHA を遺伝子組換え大腸菌を用いて生合成し、その材料物性について調査している。2HA ユニットの主要なモノマーとして 2-ヒドロキシ-4-メチルバレリン酸 (2H4MV) に着目し、分岐アミノ酸であるロイシンを 2H4MV 前駆体として培地に添加することで、PHA 共重合体および単重合体を合成している。種々の 2HA 分率で PHA を生合成し、熱的および機械的性質を系統的に調べた結果、2HA 分率が約 20 mol% で物性に大きな変化が生じることを明らかにしている。また、P(2H4MV) 単重合体は非晶性で、ガラス転移温度が一般的な PHA よりも約 10°C 高い 15°C に観察されることを示している。

Chapter 3 "Biosynthesis and characterization of PHA containing 3H2MP units" では、 α 炭素がメチル化された 3-ヒドロキシ-2-メチルプロピオン酸 (3H2MP) ユニットを含む PHA を、遺伝子組換え大腸菌を用いて生合成し、その材料物性について調査している。前駆体として (S)-3H2MP および (R)-3H2MP、それらの混合物を用いて PHA を合成すると、(S)-3H2MP を用いた場合にイソタクチックな P[(S)-3H2MP] が合成され、その他の条件ではラセミ体のモノマーから構成されるアタクチックな P(3H2MP) が合成されることを示した。これは、重合酵素における (R)-3H2MP の重合速度が遅いため、大腸菌細胞内で (R)-3H2MP が (S)-3H2MP へと異性化されたことによるものと考察している。さらに、P(3H2MP) および 3H2MP 共重合体におけるモノマーの立体規則性は、それらのポリマー物性に大きな影響を及ぼすことを示している。すなわち、P[(S)-3H2MP] は結晶性のポリマーで 450% の破壊伸びであるのに対して、アタクチックな P(3H2MP) では 880% まで破壊伸びが増加することを示している。

Chapter 4 "Biosynthesis and characterization of PHA containing 3HPi units" では、 α 炭素にジメチル側鎖を持つ 3-ヒドロキシピバリン酸 (3HPi) ユニットを含む PHA を、遺伝子組換え大腸菌を用いて生合成し、その材料物性について調査している。生合成によって得られたポリマーは、重量平均分子量が 300 万を超える超高分子量体であり、優れた機械特性を備えたエラストマーの性質を示すことを示している。3HPi 前駆体 1 g/L を培地に添加すると 32 mol% まで 3HPi 分率が増加し、破壊伸びが 1900% まで増加することを示した。さらには、引張試験の途中において荷重を除荷するとほぼ元の形状に戻ることを示した。このような優れたゴム弾性を有する PHA は、本研究においてはじめて見出されたものである。

Chapter 5 "Summary" では、本研究で得られた知見をまとめ、本論文の結論とともに今後の研究の展望を述べている。

これを要するに本論文は、実用的な生分解性バイオマスプラスチックを創成する観点から、 α 炭素に側鎖を有する PHA に着目して研究を行い、生合成法を確立するとともに系統的な物性解析を実施し、モノマーの化学構造と材料物性に関する新たな知見を得たものであり、工学上および工業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。