

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	微生物分泌オリゴエステルの生産と材料化に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	櫻井徹生
Author(English)	Tetsuo Sakurai
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12452号, 授与年月日:2023年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:柘植 丈治,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12452号, Conferred date:2023/3/26, 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	櫻井 徹生	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	柘植 丈治	准教授	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「微生物分泌オリゴエステルの生産と材料化に関する研究」と題し日本語で書かれ、全五章から構成されている。

第一章「序論」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) の特徴および微生物を用いた生産方法について概観している。一般に PHA は微生物細胞内に顆粒状のポリエステルとして生産されている。しかしながら、近年、PHA 合成微生物の培養時に大量のアルコール化合物を培地に添加すると、PHA の一部がオリゴエステルとして分泌されることが報告されており、本章ではその分泌生産法における利点および課題について言及している。そして本論文の目的として、分泌オリゴエステルの利用において課題となる効率的生産法の確立、また、オリゴエステルをマクロモノマーとして利用した材料化の可能性、および、その材料物性や海洋生分解性について調査することで、オリゴエステル生産および利用の発展性を検証することと述べている。

第二章「種々ジオール化合物を用いた微生物分泌オリゴエステルの生合成と生産能強化」では、分泌生産を誘導するために培地に添加する低分子ジオール化合物の種類および高生産化のための培養条件について検討を行っている。種々ジオール化合物を添加して培養を行った結果、ジエチレングリコール (DEG) を添加した場合に最も高いオリゴエステル生産量が得られることを明らかにしている。また、構造解析により 3HB ユニットのカルボキシ末端が DEG によって修飾されている構造 (3HB0-DEG) を有することを確認している。さらには、菌体外に分泌されたオリゴエステルは 2~7 量体の重合度を有していることを明らかにしている。そして流加培養における条件検討を行い、オリゴエステル生産量を 34.8 g/L まで増加させることに成功している。これらの結果から、両分子鎖末端に水酸基を有するオリゴエステルを効率的に分泌生産することが可能であることを示している。

第三章「微生物分泌オリゴエステルを用いたウレタン材料の合成と特性評価」では、第二章で合成した 3HB オリゴマーおよび各種ジイソシアネートを用いて重付加を行い、ウレタン材料の合成を試みている。得られた生成物について構造解析を行うと共に、各種物性の評価を行っている。3HB0-DEG と 4,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート (MDI) の重合により得られたウレタン共重合体 (3HB0-DEG-MDI) は、室温を超える約 40 °C 付近にガラス転移点 (T_g) を有し、一方で融点は観察されず、非晶性の材料であることを明らかにしている。他のジオール末端オリゴエステルを用いたウレタン材料も同様に非晶性であり、1,2-プロパンジオールを添加して合成したオリゴエステルと MDI との重合物では、 T_g が約 56 °C まで上昇することを示している。続いて引張試験の結果、3HB0-DEG-MDI は 3HB 単独重合体 [P(3HB)] とは異なり伸びのある粘り強い材料となることを明らかにしている。

第四章「重合ウレタン材料の海洋生分解性評価」では、静岡県駿河湾から取水した海水を用いて生分解性試験を行い、PHA 材料および重合ウレタン材料が生分解性を示すかを検討している。各種ポリマー材料の重量減少を観察した結果、PHA 材料およびウレタン材料共に重量減少が観察され、海水環境下で生分解が進行した可能性が示唆された。また、海水に浸漬していたウレタン試験片の走査型電子顕微鏡観察では、試料表面に細かい凹凸が新たに形成している様子を確認しており、フィルム重量の減少が生分解によるものであることを示唆している。このことから、分泌生産オリゴエステルから得られた重合ウレタンは、導入された 3HB オリゴエステルが生分解起点として機能する可能性を示している。

第五章「結論」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、環境低負荷型の生分解性バイオマスプラスチックを創成する観点から、PHA 由来オリゴエステルの分泌生産の確立とその材料化に着目して研究を行い、オリゴエステルの高生産化と重合ウレタン材料の特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。