

主 論 文 要 旨

報 告 番 号	甲 乙 第	号	氏 名	小 山 内 靖
主論文題名				
生体触媒による生分解性ポリエステル合成と ケミカルリサイクルに関する研究				
内容の要旨				
<p>近年、高分子化学の分野では合成高分子材料に起因する様々な環境問題の解決策として、自然環境中にて微生物により分解される生分解性高分子材料の開発が注目されている。一方で、製品の全ライフサイクルを環境低負荷型に導くことがグリーンケミストリーという新しい概念のもとで注目されている。そこで、本研究では環境親和型触媒である酵素を触媒に用いた生分解性ポリエステル合成とケミカルリサイクル法開発を目的とした。</p> <p>本論文は以下の6章から構成されている。</p> <p>第1章では、生分解性高分子材料に関する背景及び過去の研究例について述べ、本研究の目的を明らかにした。</p> <p>第2章では、酵素触媒重合機構を詳細に解析し、酵素が生成したポリマーをも認識して中間体を形成し、中間体内での分子内エステル交換反応で環状型構造体を生成することを見出した。</p> <p>第3章では、循環型ケミカルリサイクルを指向した生分解性ポリエステルの酵素分解について検討し、疎水性有機溶媒中にて酵素は効果的に生分解性ポリエステルを分解して環状オリゴマーを選択的に与えることを見出した。また、本分解反応機構を詳細に解析し、環状型オリゴマー生成機構を明らかにした。さらに本反応で得られた環状オリゴマーを原料に用いた再重合反応及びエステル化反応について検討し、得られた環状オリゴマーが有用であることを明らかにした。</p> <p>第4章では、先に開発した酵素分解法の原理を用いた連続分解法開発を行った。すなわち、固定化酵素を充填した酵素カラムに3種の生分解性ポリエステルのトルエン溶液をHPLCポンプで連続的に通過させる検討を行い、いずれのポリマーも迅速に分解して環状オリゴマーへ変換されることを見出した。その際、超臨界二酸化炭素が酵素の分解活性を上昇させることを見出し、本反応が使用する有機溶媒量及び酵素量の大幅な削減に成功した。</p> <p>第5章では、微生物が試料を分解・資化する際に消費する酸素量を測定するBOD法による高分子材料の生分解性評価を検討した。その結果、測定用フラスコ内に形成させたポリマー薄膜を試料に用いた場合、28日後で塊状サンプルより明らかに高い生分解率を示し、本方法が新規に合成した高分子材料の短期間における生分解性評価に適していることを明らかにした。</p> <p>第6章では、各章で得られた内容をまとめ、本研究の成果及び展望を述べた。</p>				