

# 主 論 文 要 旨

報告番号	① 乙 第	号	氏 名	添田 泰之
主 論 文 題 目： 酵素触媒による新規グリーンポリマーの創成に関する研究				
(内容の要旨) グリーンケミストリー構築が求められるなか、ポリマー分野では有限炭素資源の有効利用と環境負荷物質低減の立場から、再生可能資源を原料に用い、バイオプロセスを利用した環境低負荷ポリマーの創成と持続型ケミカルリサイクルの構築が求められている。近年、酵素を重合触媒に用いる試みが活発になされており、ポリマー分野でもバイオプロセスは実用的技術として展望が開けつつある。本研究では、新規グリーンポリマーの創成を目的に、リパーゼやプロテアーゼなど加水分解酵素の触媒作用を利用した酵素触媒重合の開発を行い、ポリグリシドール、ポリアスパラギン酸及びウレタン系ポリマーを合成した。これらのポリマーの生分解性及びケミカルリサイクル性の評価を行った。 第1章では、環境に与える負荷を最小限にするグリーンポリマーについて述べた。ポリマーの新規合成法として酵素触媒重合、さらに資源循環型ポリマーを志向した生分解性ポリマー及びケミカルリサイクル性ポリマーについて紹介した。 第2章では、エポキシドヒドロラーゼ活性を有する酵素によるエポキシドの開環重合を行い、得られたポリエーテルの生分解性評価を行った。 第3章では、プロテアーゼによるポリアスパラギン酸の合成と生分解性について検討を行った。従来、ポリアスパラギン酸は200 程度の高温条件下で熱重合によって得られているが、バクテリア起源 <i>Bacillus subtilis</i> 由来のプロテアーゼを触媒に用い、含水アセトニトリル中でL-アスパラギン酸ジエチルの重合を行うことにより、常温で分子量 3000 程度のポリ( L-アスパラギン酸エチル)が約 80%の収率で得られた。このポリマーのけん化によって調製したポリアスパラギン酸は下水処理場から採取した活性汚泥によって完全に分解され、易分解性であることが示された。 第4章では、リパーゼによるケミカルリサイクルが可能な新規ポリ(カーボネート ウレタン)(PCU)を分子設計し、合成、分解及び再重合について検討を行った。 <i>Candida antarctica</i> 由来の固定化リパーゼCAを触媒に用い、ジウレタンジオールとジエチルカーボネートの重縮合を行うことによって合成したPCUは、アニソール溶液中、希釈条件下でリパーゼCAにより環状オリゴマーにまで分解された。環状オリゴマーはリパーゼCAによって分子量4万程度の高分子量化されたPCUへ高収率で再変換され、酵素法によるPCUのケミカルリサイクルが実証された。 第5章では、リパーゼによるケミカルリサイクルが可能な新規ポリ(エステル ウレタン)(PEU)の合成、分解及び再重合について検討を行った。再生可能資源であるコハク酸やアジピン酸のジエステルとジウレタンジオールから調製した環状モノマーの開環重合によって分子量5 ~ 10万程度の高重合度のPEUを合成した。合成した13種類のPEUのなかでアジピン酸ユニット及びヘキサメチレンジウレタンユニットで構成されたものが酵素分解性に優れ、迅速に環状オリゴマーへ変換された。PCUと同様にPEUも酵素法によるケミカルリサイクルが実証され、次世代型グリーンポリマーとして期待される。 第6章では、本研究を総括し、今後の展望について述べた。				