

審査の結果の要旨

氏名 翟 汶佳

近年、石油資源の枯渇、石油合成プラスチックが環境中で分解されないことから生じる環境破壊など、石油合成プラスチックが及ぼす様々な問題の解決が重要視されている。カードランは、再生産可能資源であるグルコースから微生物が生合成する多糖類の一つである。これまでカードランは食品添加剤などとしての利用例はあるが、プラスチックとしての利用は行われてこなかった。しかし最近、当研究室の研究により、カードランの分子鎖中に存在する 3 つの水酸基に直鎖状のエステル基を導入することにより、熱可塑を付与することができ、プラスチックとしての利用が可能となった。本論文では、カードランエステル誘導体のさらなる高機能化を目指して、直鎖状エステルのみならず、末端が 2 分岐と 3 分岐のカルボン酸を用いて、一連のカードラン分岐エステル誘導体及びカードラン分岐・直鎖混合エステル誘導体を合成して、バイオマスプラスチックとしてのさらなる高機能化を検討した。

第 1 章は、バイオマスプラスチックおよび生分解性プラスチックの既往の研究について整理するとともに、高分子多糖類を用いたプラスチック材料研究について詳細に報告した。さらに、現在のバイオマスプラスチックの抱えている課題についても言及し、本論文の目的を明確に記載した。

第 2 章では、末端 2 分岐（4 種類）と末端 3 分岐（1 種類）の分岐状エステル誘導体を合成し、その基礎物性を評価した。また、比較のため、同じ炭素数を持つ直鎖状エステル誘導体も合成した。分岐状エステル誘導体の融点とガラス転移点は、それぞれ 120 °C～339 °C と 41 °C～173 °C であり、同じ炭素数の場合ではカードラン直鎖状エステル誘導体より高いことがわかった。さらに、石油合成プラスチックであるポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、ポリエチレンテレフタレート (PET) の全ての熱的性質を網羅できることが分かった。特に、カードランイソブチレート (CDiBu) とカードランピバレート (CDPi) の融点が非常に高く、高耐熱性素材として非常に有用であることが分かった。

第 3 章では、カードラン分岐状エステル誘導体とカードラン直鎖エステル誘導体について、X 線回折測定を行い、分子鎖構造および結晶構造の解析を行った。その結果、分岐状エステル誘導体の方が直鎖状エステル誘導体より結晶性が高いことが分かった。さらに、す

すべてのカードラン分岐状エステル誘導体の分子鎖構造は、5回らせん構造をとることわかった。また、末端2分岐の分岐エステル誘導体は直鎖エステル誘導体と同じ結晶系を持ち、擬六方晶であることがわかった。

第4章では、カードラン分岐状エステル誘導体である CDiBu と CDPi の熱成形加工性を上げるために、長鎖の直鎖状エステルの導入とその物性評価を行った。CDiBu と CDPi は非常に高い融点をもつことは分かったが、その値が高すぎるため熱成形加工において熱分解が生じていることが判明した。そこで、融点を少し下げ、熱流動性も上げるために、カードラン分岐・直鎖混合エステル誘導体の合成を行い、その熱物性の評価を行った。長鎖の直鎖状エステル基の導入することで、混合エステル誘導体の融点が単一エステルに比べて低下することが分かった。さらに、その温度は置換基の割合により、自在にコントロールできることもわかった。その結果、熱成形加工に成功し、強度と伸びを制御した熱成形プレスフィルムの作製にも成功した。

第5章では、第4章と同様の方法を用いて、さらに長い直鎖状エステル基を導入し、より精密な物性のコントロールを行った。その結果、分岐状エステル基と長鎖の直鎖状エステル基の置換度をコントロールすることにより、熱物性のみならず、機械的特性をも調整することに成功した。

第6章では、得られた結果を総括し、今後の展望について述べた。分岐状エステルを用いた一連の本研究の成果は、他の高分子多糖類の高性能プラスチック化にも応用することが期待でき、バイオマスプラスチック全体の発展に大きく貢献することができたと考えられる。

これらの研究成果は、学術上応用上寄与するところが少なくない。よって、審査委員一同は本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。