

豊橋技術科学大学長 殿

平成 18 年 2 月 27 日

審査委員長 木曾 祥秋



論文審査及び最終試験の結果報告書

このことについて、下記の結果を得ましたので報告いたします。  
記

|         |   |         |                 |
|---------|---|---------|-----------------|
| 学位申請者   | Swapan Kumar Saha   | 学籍番号    | 第 0 3 9 4 0 2 号 |
| 申請学位    | 博士(工学)  | 専攻名     | 環境・生命工学専攻       |
| 論文題目    | Hydrolytic Degradation of L-lactide Homo- and Copolymers<br>(L-ラクチドのホモポリマーおよび共重合体の加水分解) |         |                 |
| 公開審査会の日 | 平成 18 年 2 月 24 日  |         |                 |
| 論文審査の期間 | 平成 18 年 1 月 25 日～平成 18 年 2 月 27 日   | 論文審査の結果 | 合格              |
| 最終試験の日  | 平成 18 年 2 月 24 日  | 最終試験の結果 | 合格              |




論文内容の要旨

本論文は、医用材料および環境保全材料として用いられているL-ラクチドのホモポリマーおよび共重合体の加水分解挙動の制御を目的として、分子構造および高次構造（構造パラメータ）が加水分解挙動に与える影響を検討したものである。第1章では、生分解性高分子の分類と用途、生分解性ポリエステル重合と加水分解特性、および本論文の目的と概要を記述している。第2章では、非晶化処理をしたL-ラクチドホモポリマーであるポリ(L-ラクチド)(PLLA)を用いて、リン酸緩衝溶液における加水分解に与える分子量や少量のD-ラクチド単位の影響を検討し、少量のD-ラクチド単位は加水分解速度を著しく上昇させるが、分子量依存性は強くないことを明らかにした。第3章では、非晶化処理をしたPLLAおよび共重合体を用いてリン酸緩衝溶液内の加水分解挙動に与えるモノマーの種類の影響を検討し、それらの加水分解速度定数は、吸水率、ガラス転移温度、およびL-ラクチド単位の連続長に依存することを示した。第4章では、非晶化処理をしたポリ(L-ラクチド-ε-カプロラクトン)フィルムを用いて、リン酸緩衝溶液内での加水分解挙動に与える結晶化の影響、および加水分解および乾燥状態での貯蔵における物理的特性に与える結晶化の影響について検討した。加水分解および保存したポリ(L-ラクチド-ε-カプロラクトン)フィルムにおけるL-ラクチド連続単位の初期結晶化は、弾性率および強度を大幅に上昇させることを見出した。第5章では、PLLAフィルムの、プロテナーゼ Kを含んだトリス緩衝液、アルカリ溶液およびリン酸緩衝液における加水分解挙動に与える二軸延伸の影響を検討した。酵素的加水分解においては、結晶化度より二軸延伸による影響が強いこと、および分解に伴う結晶領域の脱落現象を見出した。第6章では、本研究の成果を総括している。

審査結果の要旨

本論文は、L-ラクチドのホモポリマーおよび共重合体を医用材料および環境保全材料として用いる際に必要不可欠な加水分解挙動の制御を目的として、種々の構造パラメータの加水分解挙動に与える影響を、構造が厳密に制御された試料を用いて検討したものである。PLLAの加水分解の分子量依存性は弱い、少量のD-ラクチドの添加が劇的な加速効果を引き起こすという結果は、新規に見出した現象であり、特に本材料を医用用途に用いる際に重要かつ有用な知見である。また、PLLAおよびL-ラクチド共重合体の加水分解速度定数は、吸水率、ガラス転移温度、およびL-ラクチド単位の連続長に依存することを見出し、これらのパラメータを制御することが加水分解速度を制御するための簡便かつ新規な手法となることを示した。さらに、ポリ(L-ラクチド-ε-カプロラクトン)フィルムの加水分解溶液中および乾燥保存中では、短い時間における急速な結晶化が起こり、物性が著しく変化することを明らかにしたが、本材料を医用用途に用いる際に留意すべき重要な知見である。また、PLLAフィルムの酵素的加水分解速度に対する二軸延伸の影響は、結晶化度の影響よりも強いという知見、および二軸延伸したPLLAフィルムでは酵素的加水分解時に、結晶領域が残存しないという知見も新規かつ重要なものであり、環境保全用途に用いる際に有用な情報である。本論文は、L-ラクチド系高分子の加水分解挙動に関する基礎的かつ独創的な研究であり、得られた結果は、多くの重要かつ有用な知見を含んでいる。さらに、加水分解制御に対する新しい手法も提案しており、工学的に高く評価できる。また、得られた研究成果は国際的な学術雑誌に4件の原著論文として報告している。以上により、本論文は博士(工学)の学位論文に相当するものと判定した。

審査委員

木曾 祥秋  金 熙濬  辻 秀人 

印 印 印

(注) 論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。