	なかの　しげゆき
氏　　名	中　野　　恵　之
学位(専攻分野)	博　　士（工学）
学位記番号	博乙第　１１０　号
学位授与の日付	平成14年11月27日
学位授与の要件	学位規程第３条第４項該当
学位論文題目	Basic studies on weight-decreasing and related treatments of natural and biodegradable fibers.
	(主査)
審　査　委　員	教　授　木村　良晴
	教　授　功刀　滋
	教　授　上田　充夫

論文内容の要旨

綿や絹のような天然繊維は生分解性を有する再生可能資源として再評価されるようになった。また、生分解性材料として開発されているポリ乳酸などの脂肪族ポリエステルも再生可能資源から合成される持続性材料として注目されている。本論文は、これら持続性繊維材料の有効利用を目的として、その表面処理や酵素分解による減量加工を検討したものである。論文は、研究の位置づけを述べた序章と７章からなり、内容ごとに第１部から第３部に分けて記述されている。

第１部では、綿やレーヨン、テンセルのようなセルロース系繊維生地へのセルラーゼによる酵素減量加工について検討した。酵素減量加工は一般的に広く行われているが、減量の制御が困難であり、この問題の解決を目的として、申請者は、まず、綿繊維へのセルラーゼによる酵素分解に対する詳細な検討を行った。そして繊維の重量減少とグルコース生成量に相関関係があることを確認し、この結果を基に、ケミルミネッセンス法を用いたグルコース測定法を組み合わせることにより、綿繊維の減量率が容易に決定できることを示した。そして、酵素処理時における綿繊維の分解状態をモニタリングする簡便なシステムの開発に成功した（第１章)。さらに、綿繊維以外の各種セルロース系繊維の酵素減量にも検討を加え、それらの重量減少とグルコース生成量の間に一本の直線関係が成立することを初めて見いだした。すなわち、セルロース系繊維は、その天然起源や再生方法の違いにより酵素分解速度は異なるものの、重量減少率とグルコース生成量の関係には、統一的な関係が存在していることが明らかとなった。この結果は、セルラーゼ処理においてグルコース、セロビオース、およびそれらの縮合した多糖類の間に一定の平衡状態が存在することを物語っている（第２章)。

第２部では、ポリブチレンサクシネート(PBS)系の各種脂肪族ポリエステル繊維を紡糸し、Pseudomonascepacia 由来のリパーゼによる酵素分解を検討した。そして、共重合成分の組成と構造の違いや繊維の結晶状態などにより、分解性および強度低下が異なることを確認した。分解挙動の違いは、主として共重合成分の極性に依存しており、その影響は酵素の吸着性やポリマーの親水性の変化となって現れてくる。これらの結果から、PBS 系繊維の分解性を制御するための基礎的知見を得た（第３章)。一方、同じリパーゼによる PBS フィルムの酵素分解を詳細に検討して、主たる分解生成物がコハク酸モノ-4-ヒドロキシブチルであること

を見出し、この結果から酵素分解がポリマー末端から優先的に進んでいくと推定した。また、酵素のフィルム表面への吸着にも検討を加え、酵素の作用機構について考察を行っている（第４章）。

第３部では、天然繊維のリサイクルに関連して、繊維の物理的加工、特に絹繊維に対する酸素低温プラズマ表面処理、綿繊維の微粉砕化に検討を加えた。絹繊維のプラズマ処理の初期段階では、比表面積が徐々に減少し、その後増大するが、この変化は微少な表面構造の変化に基づく事を明らかにした（第５章）。一方、乾式粉砕機を用いて行った綿繊維の粉砕では、粉砕機に取り付けた篩径の違いによって粉砕繊維の形状や比表面積、表面の細孔容積が変化することを確認した。また、綿粉砕物の表面のゼータ電位も変化することを見いだし、使用目的に応じて形態や表面性状を制御できることを明らかにした（第６章）。さらに、この粉砕された綿粉末に対してセルラーゼを作用させて酵素処理を施すことにより、粉砕時に発生した繊維表面のケバが効率よく取り除かれ、高品位なセルロース微粉末が得られることを見出した。この酵素処理に伴って微粉末の結晶化度が増大すること、比表面積や表面細孔が酵素処理の初期では減少して、その後増大に転ずることも明らかにした（第７章）。

論文審査の結果の要旨

申請者は、兵庫県立工業技術センター・繊維工業技術支援センター（旧繊維工業指導所）で、地場産業である播州織の技術指導に従事すると共に新しい繊維加工の技術開発に努力している。平成１１年度には、本学繊維学部の研究生として１年間在学し、生分解性の繊維材料の研究に参画した。本論文は、そのような活動の中から生まれた成果をまとめたものである。

内容的には、播州織の中心となる綿を対象としたものと、新しい再生可能持続性材料として期待されているポリ（コハク酸ブチレン）(PBS)系の生分解性繊維に関するものに分かれる。種々のセルロース繊維の酵素減量加工に詳細な検討を加えて、繊維の減量率と生成グルコース量が一つの直線関係にあることを見出し、それに基づいてグルコース量の測定による簡便な減量モニタリング装置の開発に成功した。この装置は現在市販されるようになっている。さらに、織りの過程で副生する綿繊維のリサイクルを目的として、その機械的な粉砕と酵素処理による微粒子化にも成功した。一方、各種 PBS 繊維の物性評価、酵素減量にも検討を加えると共に、PBS の酵素分解機構を明らかにした。このように本論文は繊維の酵素処理、生分解、リサイクル等、新しい取り組みを提案するものであり、工業化技術の基礎として高く評価される。

本論文の内容は次の７報に報告されており、そのうち申請者を筆頭著者とするものは６報である。

公表論文

（１）　中野恵之、礒野禎三、古谷稔、仙崎俊明、鈴木道隆, 酸素低温プラズマ処理による絹の比表面積変化.　繊維学会誌, Vol.50, No.3, 136-141 (1994).

（２）　中野恵之、小紫和彦、木村良晴, 乾式粉砕による綿繊維の構造変化.　繊維機械学会誌, Vol.49, No.6, T154-T158 (1996).

（３）　S. Nakano, K. Komurasaki, and Y. Kimura, Effect of Enzymatic Treatment on

Morphology of Cotton Fibers Shattered by Dry Process. *Sen'I Gakkaishi*, Vol.53, No.3, 101-106 (1997).

（4） S. Nakano, A.EL Salmawy, T. Nakamura, and Y. Kimura, Properties and Enzymatic Degradability of Melt-Spun Fibers of Poly (butylene succinate)and Its Various Derivatives. *Sen' I Gakkaishi*, Vol. 58, No.6, 209-215 (1997).

（5） S. Nakano, R. Hirase, K. Komurasaki, A.EL-Salmawy, and Y. Kimura, Stoichiometric Analysis of the Weight-Decrease in the Enzymatic Treatment of Cotton Fiber:A Guide to Real-Time Monitoring System for the Treatment. *Sen'I Gakkaishi*, Vol.56, No.9, 456-461 (2000).

（6） S. Nakano, R. Hirase, K. Komurasaki, A.EL-Salmawy, S. Kunugi, and Y. Kimura, A Universal Stoichiometric Relationship between Weight Loss and Glucose Formation in the Enzymatic Treatment of Cellulosic Fibers with Cellulase from *Filamentous Fungi. Sen'I Gakkaishi*, Vol.57, No.10, 279-284 (2001).

（7） I. Taniguchi, S. Nakano, T. Nakamura, A.EL Salmawy, M. Miyamoto, and Y. Kimura, Mechanism of Enzymatic Hydrolysis of Poly (butylene succinate) and Poly (butylene succinate-co-L-lactate) with a Lipase from *Pseudomonas cepacia. Macromol. Biosci.*, in print.