

フジシール財団 研究助成事業
成果報告書

公益財団法人フジシール財団
理事長 岡 崎 裕 夫 殿

報告日 2026 年 5 月 30 日

研究課題	バイオマス成分を用いたエステル交換樹脂の開発とリサイクル特性の付与	助成金額
		300 万円
助成名	特別長期研究助成・研究助成・若手研究助成	
ふりがな	みちのぶ つよし	研究助成申請年度
研究者氏名	道信 剛志	2024 年度
所属機関	東京科学大学	研究期間
		2024 年 11 月-2026 年 3 月
役 職	教授	

下記の通り、研究成果を報告いたします。

記

1. 研究成果の概要

化石燃料に依存した二酸化炭素排出型社会からの脱却を目指し、カーボンニュートラル社会への提言がなされて久しい。特に、最近ではナフサの不足に代表されるように石油資源の安定供給に大きな問題が生じている。そのため、バイオマス由来の技術体系の確立が求められている。また、石油から製造される高分子材料に目を向けると、マイクロプラスチックによる海洋汚染問題が大きく注目されている。この問題を解決するための方法論の一つとして、バイオマス由来の高分子を開発することが提案されている。バイオマス由来の成分は自然界で循環しているため、生分解性を有することが多いためである。そのような観点のもと、本研究では、木質バイオマス由来の重合用モノマーである 2-ピロン-4,6-ジカルボン酸（PDC）を基盤としたバイオマスポリマーの性能向上とパッケージ用途への展開を目指した。現在の石油由来プラスチックがもたらす温室効果ガス排出やマイクロプラスチック汚染を背景に、我が国のカーボンニュートラル目標達成に寄与するため、リグニン由来資源を活用した持続可能な材料技術の確立が急務である。我々のグループでは既に PDC 由来のポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、エポキシ樹脂など多様な PDC ポリマーを開発している。得られた PDC ポリマーは金属・ガラス・木材に対する優れた接着性を有することを明らかにしている。また、環境水中で生分解性を有することも分かっている。しかしながら、これら PDC ポリマーの精密合成や精製操作にかかるコストは無視できないものがある。

そこで、本研究では、PDC ポリエステルの持つエステル交換反応機能を活用し、加熱によって結合交換が起こることを利用した複数回の成形加工を実証するとともに、ビトリマー的な再成形性・リサイクル性を有する架橋バイオマスポリマーの創製法を確立することを目的とした。

まず、二つのカルボキシル基をもつ PDC と二つのエポキシ基をもつ共モノマーを反応させることでポリエステルを含む架橋バイオマスポリマーを合成した。エポキシモノマーの構造とモノマー仕込み比、触媒や加熱条件等を最適化して架橋バイオマスポリマーの機械強度を調節することに成功した。さらに、これまでに合成したことがある直鎖状の PDC ポリエステルにジエポキシモノマーを反応させることで、同様に架橋バイオマスポ

リマーを得ることに成功した。今回採用した合成方法は、PDC（あるいはPDC ポリエステル）とエポキシモノマーを単純に反応させるというものであり、PDC 部位における副反応を抑制しつつ特定の化学反応を選択的に起こさないといけないという従来の合成法が有していた制約に捉われる必要がない。したがって、極めて合理的かつ簡便にバイオマスポリマーを得ることができる経路である。

続いて、エステル交換反応を用いた再成形性およびリサイクル性を評価した。ビトリマーの特性を強調するため四官能性エポキシモノマーで高度に化学架橋した試料に対し、適切な条件下で熱処理を施すことによりトランスエステル化反応を誘起し、ネットワーク構造の再構築を促した。具体的には 150℃、10MPa、30 分の条件でホットプレスすることでフィルムサンプルを再加工することが可能であった。再加工した試料は初期状態よりも機械強度や弾性率が向上しており、架橋密度が増加したためと判断した。再度フィルム成形（2 回目の再加工）したところ、機械強度や弾性率は 1 回目の再加工とほぼ同じレベルであり、安定した性能が維持されていることを確認した。エステル交換反応の速度を見積もったところ、無触媒のヒドロキシル-エステル交換反応であるため比較的遅く、活性化エネルギーは 104kJ/mol、高温での応力緩和時間は数千秒桁であった。

さらに、得られた試料の海洋生分解性を評価した。海水中における生分解性は標準 BOD 試験により実施し、JIS K6950 および ISO 14851 に従った。具体的には 200 μ m 以下の粒径に調製した粉末試料を採取直後の海水中に分散させ、60 日間測定した。バイオマスポリエステルは海水中の微生物により生分解され、試料の一定量が二酸化炭素にまで変換されることを明らかにした。60 日間では架橋樹脂の完全生分解は難しく、理論式より長期的生分解挙動を予測した。すると、一次反応速度定数 $k = 0.00200$ /day に基づき、90%の生分解は約 1,148 日（約 3.1 年）と推定された。この結果は、架橋樹脂が比較的安定であり、使用している間に分解が起こることはほぼないことを示唆している。一方で、環境中に流出して最終的に海に行きついたとしても、長期的な生分解の挙動としては、数年単位で完全生分解に向かう時間スケールを見積もることができた。

以上より、バイオマス由来のフィルムが繰り返し成形可能であり、かつ使用中は再成形品であっても性能が保持されていることを明らかにした。また、環境中に流出した場合でもバイオマスの循環能が機能し、数年単位で完全生分解されるという知見を得た。

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性

本研究で開発されたビトリマー様架橋ポリマーは、木質由来のバイオマスを原料とするため、再加工可能・海洋分解性を兼ね備えた材料であり、包装材や保護コーティングなどのパッケージ産業へ応用できると考えられる。我が国の木質バイオマスは豊富であり、ナフサなどの石油資源への依存から脱却し、再生可能資源を基盤とした原料循環システムの構築が実現できるはずである。

今回開発した架橋ポリマーは繰り返し再成形が可能であり、材料寿命の延長を通じて原料消費量の削減に貢献することが期待される。また、人工的な循環システムから逸脱して環境中に流出した場合でも約 3 年で海洋生分解することは環境負荷が低いことを意味する。

今後、実際のパッケージ産業分野での実用化を検討するためには、フィルム厚や試料形態で分解速度が大きく変わることが予想されるため、実験により生分解挙動を網羅的に調査する必要がある。PDC 由来の再成形可能なバイオポリマーは、従来の使い捨て型フィルムに代わる循環型パッケージ材料として社会実装が期待される。

3. 学会発表、学会誌等への論文掲載、産業財産権出願などの実績（現時点で未発表・未掲載・未出願のため、上記「1. 研究成果の概要」、「2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性」の当財団ホームページ上の公開の延期を希望される場合、その旨 記載してください。）

【論文】

1. X. Chen, Y. Hata, H. Matsumoto, T. Serizawa, T. Michinobu, *ACS Appl. Polym. Mater.* **2025**, *7*, 8245-8253. Synthesis of Water-Soluble Cyano-Containing Polymeric Additives and Their Application to the Preparation of Ag⁺-Loaded Hydrogels.
2. Y. Jin, K. Yoshida, S. Kimura, A. Isobe, K. Kuboyama, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, M. Nakamura, T. Michinobu, *NPG Asia Mater.* **2025**, *17*, 47. Effects of Alkylene Spacer Length of 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid Polyesters on Biodegradability and Metal Adhesive Properties.
3. A. Isobe, K. Jimbo, M. Joshi, Y. Jin, Y. Suzuki, M. Fujita, T. Araki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, T. Michinobu, *Polym. Degrad. Stab.* **2026**, *250*, 112159. Novel Biodegradable Polyesters based on Lignin-derived 3-Carboxymuconolactone.
4. Y. Jiao, Y. Jin, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, T. Michinobu, *Polym. J.* in press. Synthesis and Biodegradation Behavior of Polyelectrolytes Based on Poly(vinyl alcohol) and 2-Pyrone-4,6-dicarboxylic Acid.
5. Y. Jin, W. X. Tan, M. Joshi, Y. Kuwahara, S. Michida, A. Isobe, M. Tanaka, T. Katashima, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, T. Michinobu, *Polym. Sci. Technol.* in press. Atom-economic Synthesis and Morphology-dependent Marine Biodegradation Behavior of 2-Pyrone-4,6-dicarboxylic Acid-based Polyesteramide.

【学会発表】

1. Y. Jin, K. Yoshida, S. Kimura, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, M. Nakamura, T. Michinobu, The 19th Pacific Polymer Conference (PPC19) (2025.7.6-10, Kitakyushu, Fukuoka, Japan). Biodegradable Polyesters Based on Lignin Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid (PDC) for Sustainable Metal Adhesion.
2. P. Puneet, Y. Jin, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, M. Hayashi, T. Michinobu, 第 74 回高分子討論会 (2025.9.16-18、関西大学) 「Biomass Derived 2-Pyrone-4,6-dicarboxylic Acid (PDC)-Based Sustainable Vitrimers」
3. T. Michinobu, Y. Jin, K. Jimbo, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, The 8th International Conference on Bio-based Polymers (ICBP2025) (2025.11.6-8, Numazu, Shizuoka, Japan). Synthesis and Degradability of Lignin-derived Bio-based Polyesters.
4. Y. Jin, K. Yoshida, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, T. Michinobu, The 8th International Conference on Bio-based Polymers (ICBP2025) (2025.11.6-8, Numazu, Shizuoka, Japan). Biodegradation of Polyesters Based on Lignin Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid (PDC) in Seawater.
5. P. Puneet, Y. Jin, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, M. Hayashi, T. Michinobu, MRM2025 (2025.12.8-13, Pacifico Yomohama North). Development of Vitrimers from Lignin-Derived 2-Pyrone-4,6-dicarboxylic Acid (PDC) Building Blocks.
6. P. Puneet, Y. Jin, A. Isobe, M. Fujita, T. Araki, Y. Suzuki, Y. Otsuka, N. Kamimura, E. Masai, M. Hayashi, T. Michinobu, 第 75 回高分子討論会 (2026.9.2-4、東京理科大学) 「Marine Vitrimers from Dual Biomass Valorization with Lifecycle-Matched Design: Anticorrosion Coatings that Self-Heal, Reprocess, and Potentially Biodegrade」