

Inherent Surface Properties and Their Functionalization of Cellulose Nanofibers Imparted by Aqueous Counter Collision

坪井, 国雄

<https://hdl.handle.net/2324/1544035>

出版情報：九州大学, 2015, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏名	坪井 国雄
論文名	Inherent Surface Properties and Their Functionalization of Cellulose Nanofibers Imparted by Aqueous Counter Collision (水中カウンターコリジョンにより付与されたセルロースナノファイバーの固有表面特性とその機能化)
論文調査委員	主査 九州大学 教授 近藤 哲男 副査 東京大学 教授 磯貝 明 副査 九州大学 教授 北岡 卓也 副査 九州大学 准教授 巽 大輔

論文審査の結果の要旨

最近、バイオマス由来の新素材としてのセルロースナノファイバーが注目されており、基礎から実用化に向けた応用研究が精力的に行われている。高強度・高弾性率を有する透明プラスチック補強材としての用途に始まり、種々の分野において活発に市場創成をめざした用途探索がされている。

直径 100 nm 以下のセルロースナノファイバーの製造方法として、すでいくつかの方法が提案されているが、本申請論文においては、その中で水中カウンターコリジョン (ACC) 法に着目している。この方法では、試料懸濁水を高速で対向衝突させる際に生じる水のせん断応力をドライビングフォースとして試料のナノ微細化が進行する。

本論文は、この ACC 法を用いるセルロースナノファイバー (ACC-ナノセルロース) 製造の実用化とそれを基にする新たなバイオマス産業の創成をめざしたものである。

まず、出発原料の違う ACC-ナノセルロースの示す両親媒特性に着目し、それに起因する物理化学的挙動から素材による表面物性の違いを示している。すなわち、マイクロファイバーとして同様の性質を示す木材と竹の晒クラフトパルプから調製された ACC-ナノセルロースが異なる特徴を示すことを明らかにした。ACC-ナノセルロースをシート化した場合、調製条件により木材由来と竹由来で異なるシート密度および力学的挙動 (特に伸長挙動) を示すこと、さらに、*n*-ヘキサンとの乳化において異なる様相のミセルを形成すること、また、それらの挙動から竹由来の ACC-ナノセルロース表面に付与された疎水性部位の割合が木材由来よりも高いことを示した。

次に、2つ以上の原料を同時にその場で微細化する on-site ACC 法を提案している。この on-site ACC プロセスにより、有機物の ACC-ナノセルロースを足場とする、炭酸カルシウム無機物とのミネラルゼーション現象を見出した。すなわち、on-site ACC プロセスにより、ACC-ナノセルロース表面に 50~100 nm の直径を有する炭酸カルシウム・ナノ球状粒子が数珠状に吸着したナノ複合体を得た。この on-site ACC 法は、微細化、自己組織化、複合化の 3 現象をナノスケールで同時に行うことが可能で、産業にも適用可能な手法であることを示した。

さらに、ACC-ナノセルロースを用いる機能性シート製造を試みた。ろ過器にプレートを鉛直に設置するという簡便な装置を用いることによる ACC-ナノセルロースの配向シート

作製法を提案した。設置プレート表面のナノファイバーへの壁面効果と鉛直方向へのろ過水流効果の 2 重の効果が与えられるとき、セルロースナノファイバーの配向が促進されることを見出した。この手法は、ナノファイバーの配向を有する大型シートの簡便な製造法のための基盤技術とみなすことができる。

以上要するに、本論文は、再生可能な資源であり、独特の特性を示す ACC-ナノセルロースを用いて階層構造を意識した機能化を検討した結果、**on-site ACC** ミネラルゼーションやナノファイバーの簡便な配向化などを新たに見出した。この成果は、生体高分子学のみならず、生物産業創成に寄与する価値のある業績と認める。

よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。