

Visualization of Surface Characteristics in an Amphiphilic Janus-Type Cellulose Nanofibril Generated by Aqueous Counter Collision

辻田, 翼

<https://hdl.handle.net/2324/4475201>

出版情報 : 九州大学, 2020, 博士 (農学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



氏 名	辻 翼
論 文 名	Visualization of Surface Characteristics in an Amphiphilic Janus-Type Cellulose Nanofibril Generated by Aqueous Counter Collision (水中カウンターコリジョンにより付与される両親媒性“ヤヌス型”セルロースナノファイバーの可視化法による表面特性解析)
論文調査委員	主 査 九州大学・農学研究院 教授 近藤 哲男 副 査 九州大学・農学研究院 教授 北岡 卓也 副 査 九州大学・工学研究院 教授 田中 敬二 副 査 九州大学・工学研究院 教授 三浦 佳子

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

極めて親水性が高いとされる従来のセルロースナノファイバー（CNF）に対し、試料懸濁水を高速で対向衝突させてナノ微細化する水中カウンターコリジョン(ACC)法が与えるセルロースナノファイバー（ACC-CNFs）は、疎水面への顕著な吸着・被覆現象を容易に示すことから、水中での両親媒性の発現が推定されてきた。本論文は、このナノサイズ繊維材料に対し、蛍光プローブでマッピングする蛍光顕微鏡可視化法により、一本の繊維表面が、繊維軸方向に疎水面と親水面の性質の異なる二面を有する両親媒性(=両親媒性ヤヌス型)が発現されることを明らかにするとともに、ACC-CNFs の汎用疎水性ポリマーとの吸着挙動を検討し、ヤヌス型表面構造を活かした機能材料展開の可能性を見出している。

まず本論文は、ナノサイズの本物の CNF 表面を親水性表面に対して特異的に吸着するカルコフロールホワイト（CFW）で標識し、蛍光顕微鏡観察による可視化を行った結果、電子顕微鏡手法によるサイズ評価と統計的に一致しており、本可視化手法の妥当性を証明している。

次いで、非セルロース成分を含まない微生物由来 ACC-CNF（=ACC-BNC）に対し、天然セルロース結晶の疎水性表面に対して特異的に吸着するセルラーゼ中の糖質結合モジュール(CBM)に蛍光タンパク質（GFP）を結合させた CBM-GFP を蛍光プローブとして用い可視化を行った。さらに親水性表面に対して特異的に吸着する CFW を用いて二重染色し、ACC-BNC の表面特性を同様に可視化した。その結果、一本の CNF の繊維軸方向に沿って、疎水性サイトと親水性サイトが別々にマッピングされたことから、この ACC-CNF が疎水面と親水面の両方を有する両親媒性ヤヌス型表面構造を有することを立証している。また、安価で工業的にも使用可能なコンゴーレッド（CR）も疎水性表面への代替試薬として使用可能なことも示している。併せて、CR および CFW の単層吸着量を定量し、ACC-BNC の両親媒性ヤヌス型表面の疎水面と親水面の相対比（以下、ヤヌス比）も算出している。

さらに、非セルロース成分を含む植物原料由来の ACC-CNFs も、両親媒性ヤヌス型の表面構造を有することを同様な方法で立証している。同時に、疎水面／親水面のヤヌス比は原料種により異なり、竹由来の ACC-CNF が ACC-BNC に次いで高く、キシランなどの非セルロース多糖成分が影響していることを見出している。

本論文の最後では、両親媒性ヤヌス型の ACC-CNFs において、疎水性高分子粒子に対する吸着挙動を検証している。その結果、ACC-CNFs が各種ポリマー粒子の中でも特に汎用ポリプロピレン（iPP）粒子に対して強い吸着特性を示したことから、熱力学的手法により相互作用エネルギーを定量化している。この吸着現象を介した疎水性ポリマーと CNF の新たな融合複合化は、今後のセルロースナノファイバーの材料科学の発展のみならず、生物産業創成に寄与できるものと期待される。

以上要するに、本論文は、循環可能なセルロース原料の ACC 法で得られるセルロースナノファイバーが両親媒性ヤヌス型表面を有することを可視化により立証するとともに、これに起因する吸着による他物質との複合材料設計への新たな方向を与えることから、生物材料設計学のみならず、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。