

学位論文要旨 Dissertation Abstract

氏名： 日浅 祥
Name

学位論文題目： 柑橘系未利用資源からのセルロースナノファイバー製造及
Title of Dissertation び材料利用技術の研究

学位論文要旨：
Dissertation Abstract

本研究では、みかん搾汁残渣からセルロースナノファイバー (CNF) を製造する方法と、CNFを樹脂の補強繊維として利用する新しい方法の開発を目指した。

第2章では、みかん搾汁残渣から製造したCNFの特性解析を行った。みかん搾汁残渣に対して漂白処理、水熱処理、アルカリ処理を行うことで、高純度のセルロースが得られた。次いでみかん搾汁残渣由来セルロースに対して解繊処理を行うことでCNF分散液を調製した。その際、僅か1回のみ解繊処理で繊維幅2-3 nmのCNFが得られた。これは木材パルプ由来セルロースから製造したCNF (幅3-8 nm) に比べて細かった。走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察を行ったところ、みかん搾汁残渣由来セルロースは、セルロース繊維間の結合が緩いことが確認され、このことが低回数での解繊処理で、微細かつ均一なCNF分散液が得られた原因であったと考えられる。みかん搾汁残渣由来セルロースを用いた場合、僅かな解繊処理でCNFが製造可能であるため、解繊処理によるセルロースの結晶構造の損傷を抑えられた。

第3章では、みかん搾汁残渣からセルロースを精製する際に、ペクチンを残留させ、残留ペクチンによるCNFの凝集抑制について検討した。漂白処理後のサンプルに対して酸添加水熱処理を行う際、処理時間を制御することで、含有ペクチン量の異なるペクチン含有セルロースを調製した。このペクチン含有セルロースに対して高圧ホモジナイザー処理を行い、ペクチン含有CNFを調製した。原子間力顕微鏡観察を行ったところ、ペクチン含有CNFの表面はペクチンに覆われていることが明らかになった。ペクチン含有CNFをオープン乾燥後、SEMで観察したところ、繊維の凝集が抑制されていた。これは、ペクチンがCNF表面に存在することで、物理的にセルロース繊維同士の接近が抑制され、乾燥工程での繊維の凝集が抑制されたことが原因だと考えられる。さらにペクチンを適量含むペクチン含有CNFは、オープン乾燥後も水への再分散が可能であった。みかん搾汁残渣から製造したペクチン含有CNFは、ペクチンによって物理的にCNFの接近が抑制されるだけでなく、ペクチンがもたらす電子的反発によりセルロース繊維間の水素結合が弱められるため、ペクチン含有CNFのオープン乾燥物の再分散が可能であったと考えられる。しかし、市販のペクチンをCNF分散液に添加しただけでは、乾燥後のCNFの凝集を防ぐことはできなかった。みかん搾汁残渣から調製したペクチン含有CNFには、CNFとペクチンの間に相互作用が見られたが、市販ペクチンを添加したものには相互作用は見られなかった。みかん搾汁残渣由来のペ

クチン含有 CNF に見られるこのペクチンと CNF 間の相互作用により CNF 表面はペクチンに覆われ、CNF の凝集が抑制されたと考えられる。

第4章では、疎水性の樹脂に親水性の CNF を均質に分散させるための新たな樹脂/CNF 複合体の作製方法の開発を試みた。乾燥による CNF の凝集を防止するため、CNF 分散液を粒度の細かいポリプロピレン (PP) 粉末と共に混合した後、オープン乾燥させた。尚、CNF には標準 CNF として木材パルプ由来 CNF を用いた。その結果、PP の粒度が細くなるにつれ CNF の凝集は抑制され、PP/CNF 複合体中の CNF 凝集物のサイズも小さくなる傾向が見られた。このことから PP の粒度が細かいほど、乾燥時の CNF の凝集が抑制され、CNF の分散性の良い複合体が作製可能になることが明らかになった。実際、粒度 106 μm 以下の PP と共にオープン乾燥させた CNF を SEM で観察したところ、数十 μm の CNF 凝集物が確認されたが、その繊維間には空隙が見られ、ナノサイズの繊維形状が維持されていた。このことから、粒度の細かい PP 粉末は、セルロース繊維同士の接近を物理的に防ぐことができ、乾燥過程の CNF の凝集を抑制したのだと考えられる。また、粒度の細かい PP 粉末を用いた場合、CNF の添加量を 5% まで増やしても CNF の凝集は抑制され、CNF の添加量に応じた樹脂の補強効果が得られた。この粒度の細かい PP を用いた樹脂/CNF 複合体の作製方法をみかん搾汁残渣から製造したペクチン含有 CNF に適用したところ、木材パルプ由来 CNF を用いた場合と同様に樹脂補強効果が得られた。

本研究では、CNF にペクチンを残留させることで、乾燥時の凝集を抑制可能な CNF の製造方法を確立し、粒度の細かい樹脂を用いることで、乾燥後の CNF の凝集を抑制し、樹脂中への CNF の分散性の高い樹脂/CNF 複合体の作製方法を開発した。CNF の実用化における課題のひとつは、その凝集性の高さであることから、本研究で開発した CNF の凝集抑制技術は CNF の実用化に貢献する技術になりうる。