

(第5号様式)

学位論文審査の結果の要旨

氏名	Agustu Sholeh Pujokaroni
審査委員	主査 市浦 英明
	副査 藤原 拓
	副査 伊藤 和貴
	副査 鈴木 利貞
	副査 深堀 秀史

論文名

Characterization of cellulose recovered from palm fiber waste and its derivatives

(パームファイバー由来廃棄物から抽出したセルロースのキャラクタリゼーションとそのセルロース誘導体)

審査結果の要旨

本論文は、申請者の出身国であるインドネシアのパームオイル産業から排出される廃棄物の有効活用に関するものである。パームオイルは、インドネシアの輸出産業で 12%を占めているが、その結果、大量のパームオイル産業由来の廃棄物が産み出されている。そのため、廃棄物を活用した製品開発が求められる状況にある。

本研究は、廃棄物であるパームファイバー中に含まれるセルロースの活用に焦点を当てた論文である。パームファイバーからのセルロースの抽出方法および抽出したセルロースを用いてセルロース誘導体を製造する方法を検討し、廃棄物であるパームファイバーの付加価値化の手法を提案するものである。

本論文は 6 章からなり、1 章ではパームオイル産業の現状、リグノセルロースの材料としての特徴およびその応用、セルロース抽出方法、セルロース誘導体の調製方法および本論文で検討したセルロース誘導体の一つであるカルボキシメチルセルロースについて論じた。

2 章では、3 章から 5 章で行った研究の背景およびその具体的な目的について、記述している。6 章は、本論文の結論である。以下、3 章から 5 章について説明する。

3 章では、パームファイバーからセルロースを抽出する方法を論じた。セルロースを抽出する方法の一つ目として、ASTM 法 (American Society for Testing and Materials) に次亜塩素酸を組み合わせたパルプ化法を検討した。二つ目は、リン酸による前処理、クラフト法および O (酸素) -H (次亜塩素酸ナトリウム) -P (過酸化水素) 漂白を組み合わせた溶解パルプ化法を行った。そして、その 2 種類の抽出法の比較検討を試みた。その結果、ASTM 法と次亜塩素酸処理を組み合わせた手法で処理時間 3 時間の条件の場合、 α -セルロースの収率は 82.5%であった。また、溶解パルプ化法の場合、前処理として 3%のリン酸を用いて加水分解した後、硫化度 11%で処理したクラフトパルプ化法が最も高い α -セルロース回収率 (89.0%) を得ることができた。これらの結果を総

合的に検討した結果、ASTM 法と次亜塩素酸処理を組み合わせた手法で処理時間 3 時間の条件の場合、最適な条件であることを明らかにした。その条件を用いて、回収したリグノセルロース中のホロセルロース、 α -セルロースおよびリグニン量は、それぞれ 88.0 %、81.9 %および 8.75 %であった。

4 章では、3 章で抽出したリグノセルロースにオゾン処理を行い、オゾン処理時間がリグニン量の変化およびセルロース溶解性におよぼす影響を検討した。オゾン処理を 3%クエン酸中で 40°C、5 時間処理を行った場合、リグニン量は 8.75%から 2.71%に減少した。オゾン処理を行ったセルロースを 5 M の水酸化ナトリウムで 1 時間溶解処理した場合の残存セルロース量を調べた。オゾン処理したセルロースの場合の残存量は 0.43 g、無処理の場合の残存量は 0.76 g であった。また、使用した水酸化ナトリウム溶液を中和して得られる再生セルロース量を調べた。その結果、オゾン処理を行った場合の再生セルロース量は 0.54 g、無処理の場合の再生セルロース量は 0.18 g であった。また、オゾン処理したセルロースを水酸化ナトリウムで処理した場合、オゾン処理時間が長くなるにつれて、溶解量が増加した。これらの結果より、オゾン処理によりセルロースの溶解性が向上することを明らかにした。オゾン処理を 5 時間行ったセルロースの重合度は 160 から 29 に減少した。また、その場合のカルボキシル基量は、2.05 mmol/g となり、無処理のセルロースのカルボキシル基量 0.5 mmol/g から増加していた。これらの結果から、セルロースの溶解量の向上は、カルボキシル基量の増加および重合度の減少が要因であることを明らかにした。

5 章では、オゾン処理を行ったセルロースを用いて、セルロース誘導体であるカルボキシメチルセルロースの調製を行った。カルボキシメチルセルロースの調製の際に使用する水酸化ナトリウムおよびモノクロ酢酸ナトリウム添加量が、溶解性、純度および置換度におよぼす影響を検討した。水酸化ナトリウムおよびモノクロ酢酸ナトリウム添加量が増加するにつれて、置換度が増加した。その結果、カルボキシメチルセルロースの溶解性および純度が向上した。また、オゾン処理時間が長くなるにつれて、置換度が向上し、その結果、溶解性および純度が向上する傾向であった。これらの結果より、オゾン処理がカルボキシメチルセルロースの性能の向上において、重要であることを明らかにした。また、オゾン処理時間が長くなるにつれて、粘度が減少した。また、水酸化ナトリウムおよびモノクロ酢酸ナトリウム添加量も粘度に影響をおよぼすことを明らかにした。これらの結果より、カルボキシメチルセルロースの粘度の調整する方法を確立することができた。

本論文は、インドネシアの産業であるパームオイル製造由来の廃棄物の高付加価値化に寄与するものである。さらに、カルボキシメチルセルロースの製造により、食品産業への貢献も可能であることから本論文は価値あるものであり、学位に値するものと判断した。

本論文に関する公開審査会は、令和 2 年 8 月 1 日にリモートシステムを使用して開催され、論文発表と質疑応答が行われた。引き続き行われた学位論文審査委員会で、本論文の内容を慎重に審議した結果、審査委員全員一致して博士（農学）の学位を授与するに値するものと判定した。