

未来社会創造事業 探索加速型
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
終了報告書(探索研究期間)

令和3年度
研究開発終了報告書

平成29年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：齋藤 継之]

[所属（国立大学法人東京大学大学院農学生命科学研究科・准教授）]

[研究開発課題名：多段階ボトムアップ式構造制御によるセルロースナノファイバーの高度特性
発現]

実施期間：平成29年11月1日～令和4年3月31日

§1. 研究実施体制

(1)「セルロースナノファイバーの結晶性解析と断熱性多孔体の形成」グループ(東京大学)

- ① 研究開発代表者: 齋藤 継之 (東京大学大学院農学生命科学研究科、准教授)
- ② 研究項目
 - ・蒸発乾燥法による多孔体形成と物性解析
 - ・凍結乾燥法による多孔体形成と物性解析
 - ・CNF の結晶性解析

(2)「断熱性 CNF 多孔体の形成と応用」グループ(北越コーポレーション株式会社)

- ① 主たる共同研究者: 中俣 恵一 (北越コーポレーション株式会社機能材開発室、室長)
- ② 研究項目
 - ・凍結乾燥法による大型多孔体の形成
 - ・凍結乾燥プロセスの最適化

(3)「セルロースナノファイバーの形状解析」グループ(京都大学)

- ① 主たる共同研究者: 小林 加代子 (京都大学大学院農学研究科、助教)
- ② 研究項目
 - ・CNF の局所欠陥構造の解析
 - ・CNF の統計的形状解析

(4)「表面修飾ナノファイバーの成膜プロセスとフィルム物性の評価」グループ(大阪大学)

- ① 主たる共同研究者: 能木 雅也 (大阪大学産業科学研究所、教授)
- ② 研究項目
 - ・成膜プロセスと性能の相関解析
 - ・成膜の高速化
 - ・機能性の開拓と機構解明
 - ・耐水性・耐熱性の対策

(5)「表面修飾ナノファイバーを用いた電子デバイス用絶縁性封止フィルム開発」グループ(第一工業製薬株式会社)

- ① 主たる共同研究者: 後居 洋介 (第一工業製薬株式会社研究カンパニー部、レオクリスタ開発グループ長)
- ② 研究項目
 - ・絶縁封止材に適した CNF の製造
 - ・絶縁性封止材への CNF 複合化
 - ・CNF 複合絶縁性封止材の物性評価

(6)「表面修飾 CNF/樹脂均一マスターバッチ開発」グループ(東京大学)

- ① 主たる共同研究者: 藤澤 秀次 (東京大学大学院農学生命科学研究科、助教)

② 研究項目

- ・CNF 含有量の制御
- ・CNF 表面修飾のプロセス開発
- ・修飾基選定による脆性対策

(7)「表面修飾 CNF/樹脂均一マスターバッチの樹脂製造条件検討」グループ(東亜合成株式会社)

① 主たる共同研究者:後藤 彰宏 (東亜合成株式会社 R&D 総合センター応用研究所、主査)

② 研究項目

- ・乳化重合プロセスのスケールアップ検討
- ・熔融混練による複合材料の調製と特性評価

§2. 研究実施の概要

本研究は、2017 年度公募のボトルネック課題 B24「次世代セルロースナノファイバー (CNF) 材料を創製するための高次構造制御技術」に対応し、「TEMPO 酸化 CNF を用いた多段階ボトムアップ式構造制御プロセス」を確立するものである。当該プロセスの目的は、CNF の分散・表面・配列・集積の各段階を精密制御し、優れた CNF 特性を高度に発現した構造体を形成することである。すなわち、現状高価な CNF 材料を「(質を落としても)安く簡単に作る」ことを志向した従来の方針ではなく、精密制御により実現する「効率(例えば構造用途で使用量 1/10 に低減)」や「付加価値(コスト吸収できる機能用途を開拓)」を重視した研究開発である。

対象とする構造体は、CNF 固有の優れた機能・性能を活かした「①強化樹脂マスターバッチ用 CNF 粉体」や「②電子デバイス用 CNF フィルム」、「③透明断熱性 CNF 多孔体」(3 点全て当グループが予め技術シーズを独自開発したもの)であり、実用化するプロセスで各々の構造や特性を精密制御する技術開発を進めた。また、CNF は新素材であるため、精密な構造解析が進んでおらず、特に CNF 固有の機能・性能に係わる結晶性や表面構造の解明は急務とされている。本研究では、上記の応用技術を整備するだけでなく、CNF 構造の精密解析にも取り組み、「④CNF 研究の基盤形成」に資する知見を蓄積した。

「①強化樹脂マスターバッチ用 CNF 粉体」を担当する藤澤 G(東大)と後藤 G(東亜合成)の産学連携チームでは、高濃度 CNF 含有かつ均一な樹脂マスターバッチの調製法を開発した。本手法は、乳化重合を応用した水系プロセスであり、CNF 表面の選択的修飾も連続して行えるため、実用性は極めて高いものである。また、熔融混練で得られる CNF 強化樹脂の靱性向上に適した CNF 表面の修飾基を見出した。「②電子デバイス用 CNF フィルム」を担当する能木 G(阪大)と後居 G(第一工業製薬)の産学連携チームでは、CNF フィルムの成膜条件を精査し、プロセスの効率化だけでなく、CNF フィルムを付加価値の高い機能膜として展開した。CNF フィルムをデバイス基材として活用するだけでなく、コンデンサ誘電層やマイグレーション防止膜等のデバイス素子として機能することを実証した。「③透明断熱性 CNF 多孔体」を担当する齋藤 G(東大)と中俣 G(北越コーポレーション)の産学連携チームでは、CNF ゲルの蒸発乾燥条件を精査し、高強度で透光性があり、断熱性と自己消火性を示す多機能な CNF 多孔体を開発した。また、凍結乾燥にも着手し、超断熱性と透明性を兼ねそなえた CNF 多孔体の開発にも成功した。「④CNF 研究の基盤形成」を担当する齋藤 G(東大)と小林 G(京大)の大学間連携チームでは、1) CNF の結晶性は分散性が支配すること、2) CNF1本は分子鎖 18 本で構成されること、3) 分散により結晶性が低下しても、CNF1本を構成する分子鎖の充填密度は不変であること、4) CNF の長軸方向には局所的に分子鎖が欠損した領域が存在することを解明・提案し、CNF 研究の基盤形成に資する知見を蓄積した。

論文等の主要な成果:

1. Kasuga, T.; Yagyu, H.; Uetani, K.; Koga, H.; Nogi, M. “Return to the Soil” Nanopaper Sensor Device for Hyperdense Sensor Networks” *ACS Applied Materials & Interfaces*, 11(46), 43488–43493 (2019)
2. Sakuma, W.; Yamasaki, S.; Fujisawa, S.; Kodama, T.; Shiomi, J.; Kanamori, K.; Saito, T. “Mechanically Strong, Scalable, Mesoporous Xerogels of Nanocellulose Featuring Light Permeability, Thermal Insulation, and Flame Self-Extinction” *ACS nano*, 15, 1436–1444 (2021)
3. Daicho, K.; Kobayashi, K.; Fujisawa, S.; Saito, T. “Recovery of the Irreversible Crystallinity of Nanocellulose by Crystallite Fusion: A Strategy for Achieving Efficient Energy Transfers in Sustainable Biopolymer Skeletons” *Angew. Chem. Int. Ed.*, 60, 24630–24636 (2021)