

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 30 年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：宇山 浩]

[大阪大学大学院工学研究科・教授]

[研究開発課題名：変性 CNF を用いる機能複合材料の階層構造制御]

実施期間：平成 30 年 11 月 15 日～令和 4 年 3 月 31 日

## § 1. 研究実施体制

### (1) 「宇山」グループ(大阪大学)

①研究開発代表者:宇山 浩 (大阪大学大学院工学研究科、教授)

②研究項目

- ・クエン酸変性セルロース (CAC)の導入するクエン酸量制御と解繊による CNF (CACNF)化
- ・CAC へのステアリン酸修飾と疎水化変性 CNF と PP の複合化
- ・CAC のチューニングと構造解析
- ・CACNF の二次変性による他樹脂への適用

### (2) 「寺本」グループ(京都大学)

①主たる共同研究者:寺本 好邦 (京都大学大学院農学研究科、准教授)

②研究項目

- ・セルロース系フィラーと PO マトリックスの共存スケールの数値的評価
- ・界面構造の実像の評価の方法論
- ・CAC および CACNF の評価法の開発
- ・フィラーの分散性評価手法の開発と複合材料の物性発現のメカニズムの解明

### (3) 「高島」グループ(大阪大学)

①主たる共同研究者:高島 義徳 (大阪大学高等共創研究院・理学研究科、教授)

②研究項目

- ・CACNF/超分子ヒドロゲル複合体の合成
- ・CACNF/疎水性超分子エラストマー複合体の合成
- ・ホスト-ゲスト相互作用で架橋された超分子エラストマーに CACNF を添加したエラストマー作製
- ・超分子ヒドロゲル/CACNF 複合体への無機塩添加による強靱化
- ・可動性架橋超分子材料と CACNF との複合化による機能創製
- ・ホストポリマー/ゲストポリマー/ CACNF との複合化による機能創製

### (4) 「櫻井」グループ(大阪大学)

①主たる共同研究者:櫻井 英博 (大阪大学大学院工学研究科、教授)

②研究項目

- ・CACNF 表面への合金ナノクラスターの固定化
- ・上記金属触媒を用いた環境触媒の開発
- ・Au:CACNF による空気酸化反応の検討
- ・CACNF 担持 Au/Pd 合金ナノクラスターの調製検討

## § 2. 研究実施の概要

宇山グループ (大阪大学)では、クエン酸変性セルロース (CAC)と疎水化変性セルロースを作製する技術を確認した。反応条件を制御することで、カルボン酸の導入量を 0.2~2.4 mmol/g の範囲で制御できた。クエン酸変性セルロースを物理的に解繊することで、直径 75 nm の CNF が得られることを明らかにした。また、CAC の階層構造を明らかにするための分子量測定や、繊維径を変化させたときの表面解析に取り組んだ。疎水化変性については、ステアリン酸二価塩を用いて、疎水化変性セルロースを粉末で得る手法を開発し、疎水化変性 CNF を PP と混練により複合化したところ、曲げ強度が向上した。オレフィン樹脂に加えて、ポリ乳酸やポリウレタン、エポキシ樹脂のフィラーとして CAC を設計し、強靭化を達成した。

高島グループ (大阪大学)では、研究期間中に CACNF と超分子材料の複合化を試みた。超分子材料にはシクロデキストリン (CD)を用い、種々のゲスト分子を高分子側鎖に修飾し、ホスト-ゲスト包接錯体形成と CACNF がもつカルボン酸との水素結合形成を組み合わせ、可逆的結合を駆使した CACNF 複合材料の従来の 10 倍以上の強靭性と自己修復機能の付与に成功した。CD を用いた可動性架橋と水素結合を組み合わせた高靭性材料の作製にも成功した。超分子ヒドロゲル/ CACNF 複合材料では、無機塩として、カルシウム塩を添加により、10 倍以上の高靭性化が認められた。

櫻井グループ (大阪大学) では、クエン酸変性 CNF (F-CAC) への金属ナノ粒子の担持および調製した金属ナノ粒子触媒の触媒活性評価を検討した。金ナノ粒子を担持した触媒 (Au:F-CAC) が、アルケンに対するアミンの分子内付加環化反応や、ベンジルアルコールもしくはヒドロシランの酸化反応に対して、従来の触媒を凌駕する高い活性を示すことを見出した。また、F-CAC の特性を生かした銅イオン-Pd ナノ粒子からなる二元金属触媒の調製に成功し、クロスカップリング反応触媒として利用できることを見出した。

寺本グループ (京都大学)では、CAC および CACNF の階層的な構造を評価する技術の開発を進めるとともに、これらをフィラーとする樹脂複合材料の物性発現のメカニズムの解明に取り組んできた。CAC および CACNF のモデルとして、キチンナノファイバーと表面脱アセチル化キチンナノファイバーを用い、脱アセチル化度の分布を評価できることを実証した。複合材料については、熱分析による界面接着性の簡便評価法を提案し、蛍光標識法によるフィラー分散性の定量的評価法を確立した。有限要素解析により、力学物性向上に効果的なフィラー性状を提案し、分散性の影響をシミュレーションすることができた。