

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
年次報告書(探索研究期間)

令和3年度 研究開発年次報告書

令和3年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：田島 健次]

[北海道大学大学院工学研究院・准教授]

[研究開発課題名：微生物ナノセルロースを用いた
高強度環境循環型高分子材料の開発]

実施期間：令和3年10月1日～令和4年3月31日

§1. 研究開発実施体制

(1)「田島」グループ(北海道大学)

① 研究開発代表者: 田島 健次 (北海道大学大学院工学研究院、准教授)

② 研究項目

- ・ポリマーグラフトによる NFBC の表面修飾
- ・HP-NFBC をマクロ開始剤とした **Grafting from** 法によるグラフト化 NFBC の調製
- ・表面修飾 NFBC とグリーンプラの複合体の調製と物性測定

(2)「折原」グループ(北海道大学)

① 主たる共同研究者: 折原 宏 (北海道大学大学院工学研究院、教授)

② 研究項目

- ・粘弾性測定による NFBC の詳細構造解析

(3)「甲野」グループ(研究機関名)

① 主たる共同研究者: 甲野 裕之 (苫小牧工業高等専門学校 創造工学科、教授)

② 研究項目

- ・シランカップリングによる NFBC の表面修飾
- ・表層修飾 NFBC のライブラリーの構築
- ・表面修飾 NFBC とグリーンプラの複合体の調製と物性測定

(4)「小瀬」グループ(研究機関名)

① 主たる共同研究者: 推進 太郎 (東京農工大学大学院農学研究院、准教授)

② 研究項目

- ・NFBC 単体成形体(シート、繊維、バルク)の調製と構造・物性の確認

(5)「瀬野」グループ(研究機関名)

① 主たる共同研究者: 瀬野 修一郎 (北海道立総合研究機構 工業試験場、研究主任)

② 研究項目

- ・バッチ式混練機を用いた表面修飾 NFBC と樹脂の溶融混練方法の探索
- ・混練条件(バッチ式混練機)の最適化および物性に影響を及ぼす因子の解明

§2. 研究開発成果の概要

再生可能資源からボトムアッププロセスによって調製されるナノフィブリル化バクテリアセルロース(NFBC)は、分散性、均一性、混和性、成形性、安全性に優れており、繊維が非常に長く(>15 μm)、優れた機械的特性を有している。本探索研究では、この NFBC の特長を活かした高

強度環境循環型高分子材料の大量製造技術の確立を目標としている。

走査型プローブ顕微鏡による観察、繊維解析ソフト「FiberApp」による画像解析の結果、NFBC の断面は扁平（楕円）で、CM-NFBC および HP-NFBC の長さ加重平均繊維長は 16.3 μm 、17.3 μm 、繊維径は 9.68 nm、13.8 nm と求められた。

レオメーターを用いて回転測定を行った結果、NFBC はせん断速度の増加に伴い粘度が低下するシェアシンニング流動挙動を示した。NFBC は TOCN と比較して繊維長が長いこと、低濃度においてもネットワーク構造を形成していると推定された。

NFBC 懸濁液から減圧ろ過によって湿潤シートを作製後、脱水プレス、熱プレス乾燥によってバルク材料の一つである NFBC シートを作製した。シート作製時の熱プレス圧力、温度を低圧、低温にすることによって、シートの透明性と光学的な均一性が向上することを明らかにした。高圧高温で作製されるシートの弾性率は低圧低温の時よりも大きくなる一方、シートの引張強さと伸びは低下する可能性を示した。

シランカップリング剤である(3-アミノプロピル)トリメトキシシラン (APTMS) および 3-メタアクリルキシルピルトリメトキシシラン (MPTMS) を用いて NFBC 繊維表面の化学修飾を検討し、調製した表面修飾 NFBC を用いたナノコンポジット材料の作製を行った。溶媒キャスト法により PMMA と複合化したナノコンポジットの強度は未添加の PMMA と比較して 2 倍以上へ増強された。

HP-NFBC をマクロ開始剤として開環重合を行うことにより表面修飾を行った。分子量約 2 万のグラフト化した HP-NFBC とホモポリマーを用い、溶媒キャスト法によってナノコンポジットを作製した。グラフト化 NFBC の添加によって機械的物性の改善が確認された。

樹脂との均一な複合化がより困難とされる水分散状態の表面修飾 NFBC において均一な複合化が可能となる好適な前処理による溶融混練方法を決定することができた。

【代表的な原著論文情報】

[1] H. Kono, H. Tsujisaki, and K. Tajima: Reinforcing poly(methyl methacrylate) with bacterial cellulose nanofibers chemically modified with methacryloyl Groups. *Nanomaterials*, **12**, 537 (2022). DOI: 10.3390/nano12030537.

[2] H. Kono, E. Tsukamoto, and K. Tajima: Facile post-carboxymethylation of cellulose nanofiber surfaces for enhanced water dispersibility. *ACS Omega*, **6**, 34107–34114 (2021). DOI: doi.org/10.1021/acsomega.1c05603.