

[ 別紙 2 ]

## 論文審査の結果の要旨

申請者氏名 **FARAH FAHMA**  
ファラー ファーマ

---

インドネシアではオイルパームは2009年の統計によると750万ヘクタールのプランテーションがあり、1980万トンのオイルパームを生産している。1トンのオイルパームを生産すると1.1トンのOPEFB（パーム油の空の果房）が発生する。この一部は肥料等に使用されるが、ほとんどが使用されず、大規模な公害問題を引き起こしている。OPEFBは44.4%のセルロース、30.9%のヘミセルロース、および14.2%のリグニンを含有しており、これらの有効利用は地球環境にとっても有益なものである。オイルパーム以外にもココナッツパームの殻、シュガーパームの繊維などもロープやブラシに利用されているものの、多くは廃棄されている。本研究は上記のインドネシア産の農産廃棄物からセルロースナノファイバーを単離し、キャラクタリゼーションを行い、それらを用いたナノコンポジットを調製することを目的としたものである。

第2-4章では各種農産廃棄物から調製されるセルロースナノファイバーについて検討した。硫酸による加水分解を、様々にファクターを変えることにより行い、最適条件の検討をした。時間、温度、硫酸基の中和の有無、前処理の有無、セルロースナノファイバーの物性、熱的性質、化学構造、ナノファイバーの性状にどのような影響を与えるかを検討した。各種廃棄物とセルロースナノファイバーのAFMによる検討では、前処理、中和の有無によるナノファイバーの性状に差異はあまり見られなかった。一方加水分解時間が長くなるとナノファイバーが良く分散するが、結晶化度および重合度が低下することを明らかにした。また、硫酸の濃度が上がると低い温度でもナノファイバーは低分子化する。ヘミセルロース、リグニン、硫酸基を取り除いたナノファイバーの熱分解温度は上昇する。アルベン抽出やアルカリによる前処理を行った場合、ナノファイバーの結晶化度、重合度、熱分解性は最も高くなった。セルロースナノファイバーのフィルムは引張り強度、引張り弾性率はそれぞれ98.1MPaと5.2GPaであった。以上のように、ナノファイバーの調整条件と得られる物性の関係について有用な情報を得た。

第5章ではPVA（ポリビニルアルコール）とのセルロースナノコンポジットについての検討を行った。セルロースナノファイバーはセルロース鎖間の水素結合によって凝集や絡み合いを起こしやすい。従って水酸基同士の相互作用を減少させるためセルロースナノファイバーは水のサスペンションの形で維持される。従ってセルロースナノファイバーをコンポジットとして使用するとき、相手のマトリックスは水溶性ポリマーに制限される。ここでは水溶性ポリマーであるPVAを使用し、PVA/セルロースナノファイバー分散水溶液の超音波処理時間を変化させることにより調製したキャストフィルムをSEM、TEM、FT-IR、ラマン分光分析、WAXD、DSC、TGAにより解析した。その結果、9分の超音波処理時間が最も高

い引っ張り強度を示し、この時に結晶化度や耐熱性が最も高かった。また、20 分以上の超音波処理時間では耐熱性が悪くなることを明らかにした。

第 6 章では PMMA (ポリメタクリル酸メチル) とのセルロースナノコンポジットについて検討した。上述したように、一般にセルロースナノファイバーはコンポジットを調製する際、水溶性ポリマーに限定されるが、ここでは非水溶性ポリマーであり、汎用ポリマーとして幅広く使用されている PMMA と複合化した。溶媒としては PMMA を溶解させる DMAc (N,N-ジメチルアセトアミド) を利用した。セルロースナノファイバーを水から DMAc に溶媒置換した後に分散させた。セルロースナノファイバーは DMAc によく分散することが分かった。DMAc に分散したセルロースナノファイバーは PMMA の DMAc 溶液と混合し、混合物を水やアルコール中で沈殿させフィルム化する湿式法によりコンポジットフィルムを調製した。この方法ではフィルム中にセルロースナノファイバーが非常に良く分散し、半透明のフィルムが出来ることが分かった。このセルロースナノコンポジットは結晶性を示さず、ナノファイバー含有量が増えるに従って、引っ張り強度、引っ張り弾性率ともに上昇した。また動的粘弾性の貯蔵弾性率もナノファイバー含有量が増加するに従って、測定温度領域では高くなることが分かった。熱重量測定ではナノファイバー含有率が増えるに従い、熱分解温度が上昇した。以上、PMMA とのセルロースナノコンポジットの性状について多くの知見を得た。

第 7 章では PCR (ポリクロロプレン) とのナノコンポジットについて検討した。ゴムを利用したナノコンポジットもタイヤの接着等では重要な分野である。様々な溶剤を試したが、PCR 溶液にセルロースナノファイバーを良好に分散することは難しいと分かった。そこでセルロースナノファイバーの表面を僅かにアセチル化することにより改質し、PCR 溶液に分散させることが出来るかを検討した。その結果、表面アセチル化セルロースナノファイバーは PCR 可溶のジクロロメタンに良く分散することが分かった。アセチル化ナノファイバーを複合した PCR はオリジナルの PCR に比べて、引っ張り強度が 340% も向上し、ヤング率は 7 倍になった。これはナノファイバーとマトリックスの界面接着性が向上したことに起因すると考えられる。動的粘弾性による測定ではナノファイバーを 5% まで増やすと  $T_g$  は  $3^{\circ}\text{C}$  ほど上昇し、貯蔵弾性率は  $-100^{\circ}\text{C}$  では 1.4 倍、 $25^{\circ}\text{C}$  では 14.8 倍と大幅に向上した。また、耐熱性も向上した。以上のようにゴムのガラス転移点を大きく変化させることなく、物性の大幅な向上が期待できることを明らかにした。

以上のように、本研究はインドネシア産農産廃棄物をセルロースナノファイバーとして有効利用を目的として、新たな特性を付与した複合材料の可能性を示唆した点で、学術上ならびに応用上に重要な知見を得たと認め、審査委員一同は博士 (農学) の学位論文に値するとの結論に至った。