

2024 年度年次報告書

分解・劣化・安定化の精密材料科学

2022 年度採択研究代表者

齋藤 継之

東京大学 大学院農学生命科学研究科
教授

植物細胞壁のナノ分解と再会合の精密制御

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)

能木 雅也 (大阪大学 産業科学研究所 教授)

藤澤 秀次 (東京大学 大学院農学生命科学研究科 准教授)

研究成果の概要

本研究では、植物細胞壁をナノ分解した新素材“セルロースナノファイバー (CNF)”の構造理解を進め、CNF を要素とする材料の高次な階層構造を、各階層において精密に構造制御する技術体系を確立する。この体系確立に向けて、本研究では連続する3つの研究領域を設けた。1)「ナノ分解制御」領域では、これまで未解析であった CNF の欠陥や副生成物を理解し、低欠陥・高純度な CNF 生産法の提案へと繋げる。2)「配列制御」領域では、CNF の配列を自在制御する技術確立し、CNF 単独からなる会合体あるいは樹脂等との複合体の形成へと繋げる。3)「再会合制御」領域では、CNF 会合体中における CNF 間結合の制御、あるいは CNF 複合体中における樹脂との界面構造の制御により、各構造体の物性を最適化する。

2024 年度は各領域で以下の成果が得られた。領域1では、前年度までの研究により、CNF 上に生じる「凹み」が欠陥生成の起点であることを明らかにしており、本年度は調製条件を見直すことでその抑制を試みた。その結果、規則的なねじれ構造を有する低欠陥 CNF の調製に成功した。また、CNF 分散液に混入する副生成物の解析が完了した。副生成物の主骨格は、グルコース/グルクロン酸の交互共重合体であり、分子量が 1 万程度の水溶性ポリマーであることを同定した。副生成物の分子鎖長は凹欠陥の長さに対応しており、副生成物は、CNF の表面分子鎖が剥離したものという仮説を裏付けた。(小林グループ・齋藤グループ)。領域2では、昨年度に引き続き電圧印加法による CNF の配向メカニズムの解明に取り組んだ。CNF の配向変化は電極上に堆積したゾル-ゲル界面形状に起因し、ゾル-ゲル界面形状の変化は界面近傍の CNF の欠乏に起因する可能性が高いことが示唆された。界面付近の CNF の欠乏に関しては、電気浸透による CNF ハイドロゲルからの脱水が影響していると考えられる。また、得られた知見を基に電圧印加法の脱水技術への展開について検証を行った。その結果、電圧印加法を応用することによって、本来脱水が困難な CNF/水分散液を高速かつ効率的に脱水することに成功した(能木グループ)。領域3では、昨年度に引き続き CNF/ポリメチルメタクリレート (PMMA) 複合材料の製造手法の最適化に取り組み、160°C の熱成形によって CNF の熱分解が抑えられ透明な複合材料が得られることを確認した。また、CNF/PMMA 複合材料の分子モデルも構築し、計算科学を用いた物性予測にも取り組んだ。さらに、表面改質パルプとポリカプロラク톤の直接混練による複合化にも取り組み、強靱化に成功した(藤澤グループ)。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Ito, T.; Daicho, K.; Fujisawa, S.; Saito, T.; Kobayashi, K. “Defectless and Uniform Single-Crystallite Dispersions of Sustainable Wood Nanocellulose with a Regulated Right-Handed Twist Periodicity” *Nano Lett.* **2025**, 25(15), 6085–6091.
DOI: 10.1021/acs.nanolett.4c06483
- 2) Daicho, K.; Fujisawa, S.; Doi, Y.; Suzuki, M.; Shiomi, J.; Saito, T. “Uniform Elementary Fibrils in Diverse Plant Cell Walls” *PNAS*, **2025**, 122(15), e2426467122.
DOI: 10.1073/pnas.2426467122
- 3) Kasuga, T.; Mizui, A.; Ishioka, S.; Koga, H.; Nogi, M. “Rapid and Efficient Dehydration of Cellulose Nanofiber Hydrogels via Electroosmosis”, *Sustain. Mater. Technol.* **2024**, e01215.

DOI: 10.1016/j.susmat.2024.e01215