



Title	Development of Multifunctional Composite Materials Using Green Tea Extract
Author(s)	温, 晗玉
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/88025">https://doi.org/10.18910/88025</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 論文内容の要旨

氏名 (WEN HANYU)

論文題名

Development of Multifunctional Composite Materials Using Green Tea Extract  
(緑茶抽出物を用いた多機能性複合材料の開発)

## 論文内容の要旨

In this thesis, the author aimed at developing efficient methods for multifunctional composite materials using GTE provides a fresh and universal route in diverse applications.

In Chapter 1, an active food packaging film using GTE biomass compounded with PVA was successfully developed. The SEM images obtained indicated that PVA, GTE, and glycerol were homogeneously mixed in the GTE-PVA biocomposite films established in this study. The tensile strength and surface hydrophobicity of the biocomposite films was found to increase with an increasing concentration of GTE. The increased concentration of GTE caused a significant reduction in the water solubility, water vapor permeability, and elongation at break of the established films. The GTE-PVA biocomposite films showed superior UV-vis light barrier properties compared to those exhibited by pure PVA control film. This characteristic may be attributed to the UV absorption ability of the phenolic compounds in GTE, a property that can be used to protect food from UV light. Owing to the abundant phenolics found in GTE, the GTE-PVA biocomposite films showed high levels of antioxidant activity and pH-sensitive abilities.

In Chapter 2, a simple, one-step green approach was developed for the synthesis and immobilization of AgNPs using GTE, which acted as the reducing agent. TC, which was obtained from tea residue, was converted into TTC via TEMPO-mediated oxidation that was subsequently employed as a substrate and a stabilizer to immobilize AgNPs onto the flexible and transparent Ag-TTC-PVA composite film. The Ag-TTC-PVA composite film featured improved mechanical and thermal properties. In addition, the presence of TTC inhibited the fast release of AgNPs from the TTC-derived films, thereby reducing the cytotoxic effects of the AgNPs. Ag-TTC-PVA composite film possessed high antioxidant activity and photocatalytic performance, which is beneficial for decreasing the agglomeration of nanoparticles and simultaneously improving the photocatalytic efficiency.

In Chapter 3, a functional film with good protein adsorption prevention properties was developed using GA as a linker molecule to combine poly(2-ethyl-2-oxazoline) (PEtOx) and poly(methyl methacrylate) (PMMA). Firstly, bio-based polymer (PEtOx-GA) was synthesized via a simple and convenient method for the direct esterification of GA with PEtOx using  $\text{Yb}(\text{OTf})_3$  as the catalyst. And then, it reacted with the poly(ethyleneimine)-modified PMMA substrate (PEI-S) to form the functional film (PEtOx-GA-PEI-S) via Schiff-base and Michael addition reactions. The morphology, surface chemical structure, and composition of the PMMA substrate, PEI-S, and PEtOx-GA-PEI-S functional films were characterized by scanning electron microscopy (SEM), atomic force microscopy (AFM), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), respectively. The PEtOx-GA-PEI-S functional film prevented protein adsorption and the mass of adsorbed BSA was reduced by ~70%. Therefore, this bio-based polymer plays a fresh and universal route to construct antifouling surface applying for multifunctional composite materials.

In Chapter 4, a new membrane with superhydrophobicity was synthesized by a facile, green, and low-cost method. First, cellulose non-woven fabric (CNWF) was modified by poly(catechin) (pCA), which has good antioxidant and antibacterial activities, to make it unaffected by ultraviolet light and improve the stability of the structure. Then, hydrolyzed polydimethylsiloxane (PDMS) was coated on the pCA@CNWF surface via chemical bonding to make the composite hydrophobic. This durable superhydrophobic fabric can be used to separate various oil/water mixtures by gravity-driven forces with high separation efficiency (over 98.9%). Additionally, the PDMS-pCA@CNWF possesses the advantages of flexibility, high efficiency, and outstanding self-cleaning performance and demonstrates significant potential for applications in various environments, which make it very promising for the treatment of oil pollution in practical applications.

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( WEN HANYU )		
		(職) 氏 名
論文審査担当者	主査	教 授 宇山 浩
	副査	教 授 桑畠 進
	副査	教 授 佐伯 昭紀
	副査	教 授 林 高史
	副査	教 授 中山 健一
	副査	教 授 南方 聖司
	副査	教 授 櫻井 英博
	副査	教 授 今中 信人
	副査	教 授 藤内 謙光
	副査	教 授 能木 雅也
	副査	教 授 古澤 孝弘

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、緑茶廃棄物から抽出したバイオマス材料として有効利用するために緑茶抽出物 (GTE)を用いて多機能化複合材料の開発に関する研究をまとめたものであり、序論と本論 4 章、総括からなる。その内容を要約すると以下のとおりである。

第 1 章では、GTE とポリビニルアルコール (PVA)を複合することにより機能化バイオコンポジットフィルムを開発した。バイオコンポジットフィルムの引張強度および表面疎水性は、GTE 濃度の増加とともに増加し、水溶性、水蒸気透過性は、GTE 濃度の上昇とともに低下した。さらに、GTE-PVA バイオコンポジットフィルムは、PVA フィルムと比較して、優れた UV-可視光バリア性と抗酸化活性を示した。

第 2 章では、GTE を還元剤として使用した銀ナノ粒子 (AgNP)固定化ワンステップグリーン技術を開発した。茶残留物を TEMPO 酸化し、GTE を含んだ茶セルロースナノファイバー (TTC)を作製して AgNP を固定し、PVA と複合することにより、Ag-TTC-PVA 複合フィルムを作製した。Ag-TTC-PVA 複合フィルムは、優れた機械的および熱的特性を持ち、TTC により AgNP を固定することで AgNP の放出を防ぐことができる。さらに、Ag-TTC-PVA 複合フィルムは高い抗酸化活性と光触媒性能を備えている。

第 3 章では、バイオマスリソース分子として没食子酸 (GA)を使用してポリ (2-エチル-2-オキサゾリン) (PEtOx)を合成することにより、ポリ (メチルメタクリレート) (PMMA)を基盤としたタンパク質吸着防止特性を備えた機能性フィルム (PEtOx-GA-PEI-S)を開発した。PEtOx-GA-PEI-S 機能性フィルムはタンパク質の吸着を防ぎ、吸着された BSA 量は PMMA より約 70 %減少した。

第 4 章では、ポリ (カテキン) (pCA)で修飾したセルロース不織布 (CNWF)により超疎水複合フィルムを開発した。ポリジメチルシロキサン (PDMS) を化学結合を介して pCA @ CNWF 表面に複合することで超疎水性を作製した。この超疎水複合フィルムは、抗酸化作用と抗菌作用が優れ、油/水混合物を高い分離効率 (98.9%以上)で分離できる。さらに、PDMS-pCA @ CNWF は、高効率、優れたセルフクリーニング性能を備え、油汚染の処理に非常に有望である。以上のように、本論文は緑茶廃棄物から抽出した GTE、またその含有物をバイオマス材料として有効利用するため、様々な材料と複合して新たな手法と応用を提案した。GTE に含んだ豊富なフェノール化合物は UV 吸收性、抗酸化活性と pH 感受性を示すため、作製したバイオマス複合材料は食品を紫外線と酸化作用から保護するためにも使用できる。持続可能な社会を実現するためのバイオマス複合材料の新たな設計指針を与えるものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。