

Title	Design of Fiber Network Structures for Functionalization of Cellulose Paper
Author(s)	Huang, Yintong
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/93054
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

Abstract of Thesis

Name (HUANG YINTONG)	
Title	Design of Fiber Network Structures for Functionalization of Cellulose Paper (繊維ネットワーク構造制御によるセルロースペーパーの機能化)
<p>Abstract of Thesis</p> <p>This doctoral thesis summarized the research results on preparation methods of cellulose fibers-based fiber network structures and their applications for functionalizing cellulose papers. This thesis was consisted of an introduction, a body with 3 chapters, and a conclusion. The contents were summarized as follows.</p> <p>In the introduction, the background and target of this thesis were described. The distinguished existence of fiber network structures was mentioned. Paper, the most traditional and widely used fiber network structures, showed continuous developments. The raw materials for paper, cellulose fibers, varied from microscale to nanoscale in width, which resulted in unique characteristics and thus broadened the applications for papers. The characteristics, advantages, and challenges of designing fiber network structures and functionalization for papers were outlined in this introduction part.</p> <p>In Chapter 1, a cellulose paper with dual-layered nano-microscale fiber network structures consisting of gold nanoparticles (AuNP)-anchored cellulose nanofibers and AuNP-free cellulose microfibrils (pulp) was prepared for photothermal heating and solar vapor generation. The light absorption of the anchored-AuNPs, a typical photothermal material, was enhanced by the efficient light transport within the dual-layered structures. In the AuNP-anchored cellulose nanofibers layer (the top layer), the AuNPs were well dispersed on the surface of cellulose nanofibers. While in the pulp fiber layer (the bottom layer), the light transmitted from the top layer was reflected by the pulp-derived microstructures and retransferred back to the anchored-AuNPs, which improved their light absorptivity. Thus, the paper with dual-layered structures demonstrates superior performance in photothermal heating and solar vapor generation compared to those of the state-of-the-art AuNP-anchored porous materials under the same AuNP content and light irradiation. This strategy enables the efficient use of precious plasmonic nanoparticles for further development of solar vapor generation.</p> <p>In Chapter 2, a cellulose nanopaper with nanoscale porous fiber network structures is developed. The customized porous nanopaper enables water-assisted deformation for skin-conformability, thereby realizing outstanding skin-adhesion force, along with high skin-breathability and compatibility, superior to those of conventional substrates reported for on-skin electronics. By mounting gold electrodes on the porous nanopaper and adhering them to human skin, the real-time monitoring of biosignals for diagnosing the human physiological state is successfully achieved. Furthermore, the gold-electrode-mounted porous nanopaper affords unique characteristics, including durability against skin deformation, reusability, and even sterilizability, owing to its high mechanical endurance, and thermal stabilities. Thus, the as-prepared porous nanopaper serves as a fascinating platform for human- and environment-harmonious on-skin electronics.</p> <p>In Chapter 3, a clearly transparent and air-permeable nanopaper with elaborate nanoscale porous fiber network structures was prepared from TEMPO-oxidized cellulose nanofibers. A solvent exchange process, in which high-surface-tension water was exchanged to low-surface-tension ethanol and hexane, was applied to prepare the nanopaper to suppress the aggregation of cellulose nanofibers during drying. The resulting hexane-exchanged nanopaper had a porous structure with individually dispersed and thin nanofiber networks and interlayer pore spaces. Due to the tailored porous structures, the hexane-exchanged nanopaper provides similar clear transparency and 10^6 times higher air permeability than the nanopaper prepared without solvent exchange treatment. This study will facilitate the development of clearly transparent and air-permeable nanopapers to extend their functional applications.</p> <p>In the conclusion, the above-mentioned research results were summarized. In this thesis, three distinct types of cellulose papers with diverse fiber network architectures were meticulously prepared to attain specific functionalities, paving the way for the functionalization of cellulose paper in advanced applications.</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (HUANG YINTONG)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	能木 雅也
	副 査	教授	櫻井 英博
	副 査	教授	今中 信人
	副 査	教授	宇山 浩
	副 査	教授	桑畑 進
	副 査	教授	藤内 謙光
	副 査	教授	林 高史
	副 査	教授	南方 聖司
	副 査	教授	佐伯 昭紀
	副 査	教授	中山 健一
	副 査	教授	古澤 孝弘
	副 査	教授	古川 森也

論文審査の結果の要旨

本論文は、セルロースファイバーを用いた繊維ネットワーク構造の制御、及び、繊維ネットワーク構造の制御によるセルロースペーパーの機能化に関する研究成果をまとめたものである。主な成果を以下に要約する。

第 1 章では、光熱変換特性を示す金ナノ粒子をセルロースファイバーに担持させ、さらに紙抄き成型することにより、光熱変換機能を有するセルロースペーパーを調製している。この際、2 段階の紙抄きプロセスにより、金ナノ粒子担持セルロースナノファイバーからなる光熱変換層（上層）、及び、金ナノ粒子無担持セルロースマイクロファイバーからなる光反射層（下層）のナノ-マイクロ 2 層繊維ネットワーク構造を持つセルロースペーパーを設計している。そして、上層を一度透過した光が下層で反射し、上層の金ナノ粒子へ再輸送されることによって、光吸収率ひいては光熱変換性能が向上することを見出している。すなわち、繊維ネットワーク構造制御により、金ナノ粒子の実効的な光熱変換性能を向上させることに成功している。さらに、海水の淡水化に向けた太陽熱蒸留機能も実証している。

第 2 章では、セルロースナノファイバーネットワーク由来のナノポーラス構造を持つセルロースペーパーを調製し、生体信号計測に応用している。まず、セルロースナノファイバー水分散液を原料に、高表面張力の水を低表面張力のターシャリーブチルアルコールで置換してから乾燥させることで、ナノポーラス構造を持つセルロースペーパーを得ている。そして、設計したナノポーラス構造によって、セルロースペーパーの皮膚密着性と水蒸気透過性が大きく向上することを見出している。また、優れた皮膚適合性も確認している。さらに、本セルロースペーパーに金電極を実装して皮膚に貼り付けることで、人の脳波・心電・筋電といった微弱な生体信号を計測することに成功している。

第 3 章では、第 2 章で得られた知見を基に原料と乾燥プロセスを改良し、高透明性と高空気透過性を両立したセルロースペーパーを調製している。まず、より細い幅 3-4 nm の 2,2,6,6-テトラメチルピペリジニル-1-オキシラジカル (TEMPO) 酸化セルロースナノファイバー水分散液を原料に、高表面張力の水を低表面張力のエタノールとヘキサンで段階的に置換してから乾燥させることで、TEMPO 酸化セルロースナノファイバーが良く分散したナノポーラス構造を持つセルロースペーパーを得ている。そして、本セルロースペーパーが、高可視光透過率 (92.9%)・低ヘイズ (7.22%) のクリアな透明性、及び、高い空気透過率 ($7.8 \times 10^6 \text{ ml } \mu\text{m}^{-2} \text{ day}^{-1} \text{ kPa}^{-1}$) を示すことを報告している。

以上のように、本論文では、セルロースファイバーを用いた繊維ネットワーク構造制御戦略に基づき、セルロースペーパーの高機能化に成功している。本成果は、伝統的な紙材料であるセルロースペーパーの新機能・用途開拓に向けた重要な知見になる。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。