

	グエン テ
氏 名	NGUYEN DE
学位(専攻分野)	博士(学術)
学 位 記 番 号	博 1 1 8 4 号
学 位 授 与 の 日 付	令和 7 年 3 月 21 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専 攻	工芸科学研究科 物質・材料化学専攻
学 位 論 文 題 目	Nanofilm Fabrication and Porous Material Design via Nonsolvent-Induced Phase Separation-Jet Spinning (非溶媒誘起相分離ジェットスピニング法によるナノフィルム の作製と多孔質材料設計)
審 査 委 員	(主査)准教授 木梨 憲司 教授 坂井 瓦 教授 山田 和志 准教授 岡久 陽子

### 論文内容の要旨

エアロゲルは、ソル・ゲル法に凍結乾燥、超臨界乾燥、真空乾燥を組み合わせることで得られる多孔質材料であり、極めて低い密度、優れた透明性、低熱伝導率を兼ね備え、触媒、分離、断熱材など多岐にわたる分野で利用してきた。しかしながら、従来型エアロゲルは脆弱性や製造コストの高さが課題であり、その実用化は依然として限定的である。このため、機械的特性の向上を目的として、無機・有機ハイブリッド化や繊維材料との複合化が検討されてきたが、コスト面や柔軟性の面から、ナノファイバー由来エアロゲルが新たな代替材料として注目されている。近年の材料開発は、従来の組成改質に依存する手法から、構造設計を中心としたアプローチへと転換し、軽量高強度や高エネルギー吸収性といった従来達成が困難であった機能の実現が可能となっている。製造技術においても、湿式・乾式法やエレクトロスピニングにより高配向ナノファイバーを連続生成できるほか、マイクロ流体技術により粒径や内部構造を精密に制御した中空ファイバーやコアシェル粒子の作製が可能となっている。これにより、空隙率や細孔構造を自在に制御可能な高比表面積・低密度構造の発泡体やエアロゲルの創製が実現しつつあり、断熱材、エネルギー貯蔵、組織工学などの先端応用が期待されている。

本研究では、従来のナノファイバー製造法とは一線を画す乱流・高速流条件下におけるマイクロ流体制御を活用し、非溶媒誘起相分離 (NIPS) とジェット紡糸 (JS) を融合した新規製造技術「NIPS - JS 法」を開発した。セルロース系の生分解性材料および低毒性溶媒を用いることで、ナノフィルムを構成単位とする 3 次元多孔質構造体を、効率的かつ環境負荷の低い手法で製造可能とする技術基盤の確立を目的とした。

本論文は全六章で構成され、各章の内容は以下のとおりである。

第 1 章では、材料構造設計と高度製造技術の融合による新機能材料創製の必要性を述べ、NIPS-JS 法の提案と基本構成について説明した。乱流条件下におけるセルロース系 2D ナノ構造体の効率的な生成と、それによる環境調和型材料への展開可能性について展望を示した。

第 2 章では、非溶媒誘起相分離 (NIPS) および同軸ジェット混合の基礎理論と応用例について整理し、NIPS-JS 法の構築に必要な科学的背景を明確にした。とくに溶解度パラメータや熱力学

的解析に基づいた NIPS の設計指針、同軸流による剪断混合制御の原理について先行研究(89 報)を総括した。

第 3 章では、開発した NIPS-JS 法を用い、高速乱流環境下において高アスペクト比・高均一性を有するセルロース系ナノフィルムの製造に成功した。生成物はゲル、薄紙、多孔質体としての応用可能性を持ち、持続可能な構造材料への展開が期待されることを示した。

第 4 章では、NIPS-JS 法により作製したセルロースアセテートナノフィルムを用いて、凍結テンプレート法により化学架橋剤を用いずに超軽量多孔質スポンジを作製した。少量のエタノールを共溶媒とすることで凍結過程を制御し、99%以上の高多孔性と優れた構造安定性を有するスポンジの作製に成功した。

第 5 章では、得られたナノフィルム構造体を構成単位とするスポンジの構造および力学特性を詳細に評価した。非架橋構造でありながら高い弾性と復元性を示し、その起源を Gibson-Ashby モデルおよび Maxwell モデルにより解析した。これにより、構造設計を基軸とした環境調和型多孔質材料創製の有効性が明らかとなった。

最終章では、各章の成果を総括するとともに、本研究で確立した NIPS-JS 法の意義と、今後の展開可能性について論じ、本論文を締めくくっている。

## 論文審査の結果の要旨

軽量かつ高機能な多孔質材料としてセルロース系スポンジが注目されている。特にセルロースナノクリスタル (CNC) やセルロースナノファイバー (CNF) を用いた材料は、生分解性、軽量性、高比表面積を併せ持ち、環境負荷の低い代替材料として期待されている。しかし、従来のエアロゲルやスポンジは構造的連続性や構成単位間の相互作用が弱く、化学架橋剤を用いないと構造安定性に欠けるという課題があった。申請者はこの問題を解決するため、ナノフィルムという 2 次元構造体に着目し、非溶媒誘起相分離 (NIPS) とジェット紡糸 (JS) を組み合わせた独自の NIPS-JS 法を開発した。本手法により、セルロースアセテートから厚さ約 40–50 nm の連続ナノフィルムを作製し、凍結テンプレート法と凍結乾燥を通じて高多孔性 (>99%) かつ超軽量 ( $\leq 10 \text{ kg/m}^3$ ) のスポンジ構造を環境負荷なく製造可能とした。さらに、凍結過程での形態制御のためエタノールを添加剤として利用し、細孔構造や収縮率の調整に成功した。構造解析では X 線 CT や電子顕微鏡観察を用いて、スポンジ内部の連続的かつ階層的な細孔構造を 3 次元的に明らかにした。機械特性については、繰り返し圧縮および応力緩和試験により、弾性率、エネルギー散逸、残留ひずみ、応力緩和特性を定量化し、Gibson-Ashby モデルおよび一般化 Maxwell モデルに基づく物理モデルと対応させた。特に、化学架橋剤を用いずにナノフィルムの層間滑りや剥離により優れた回復性と粘弹性応答が得られることを示した。

これらの成果により、申請者は構造設計によって強度と柔軟性を両立する持続可能な多孔質材料の実現に成功し、断熱材や吸収材、さらにはウェアラブル素材など幅広い応用に道を拓いた。

本学位論文の基礎となった学術論文 2 編は、査読制度の確立した学術雑誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、参考論文として特願 1 件があり、本論文に関連した内容

が記述されている。

[主論文]

1. De Nguyen, Kenji Kinashi, Yukihiro Nishikawa, Wataru Sakai, Naoto Tsutsumi, “Nonsolvent-Induced Phase Separation–Jet Spinning: An Innovative Technique for Producing Cellulosic Nanofilms, Suspensions, and Nanofilm-Based Sponges”, *ACS Omega*, 10(31), 34389 (2025).  
DOI: 10.1021/acsomega.5c02353.
2. De Nguyen, Kenji Kinashi, Yukihiro Nishikawa, Wataru Sakai, Naoto Tsutsumi, “Mechanically Tunable Nanofilm-Based Cellulose Acetate Sponges via Crosslinker-Free Cryo-Templating”, *Polymer Journal*, in press, (2025).

[参考論文]

3. Kenji Kinashi, De Nguyen, “Nonsolvent-Induced Phase Separation–Jet Spinning Technique”, *Japanese Patent Application No. 2024-156525*.