

氏名	ファン コック フン PHAN NGOC HUNG
学位(専攻分野)	博士(学術)
学位記番号	博 1 2 2 2 号
学位授与の日付	令和 8 年 3 月 23 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 先端ファイブ科学専攻
学位論文題目	Nanoscale Modification on Mechanical and Thermophysiological Properties of Dehydrated Bacterial Cellulose by Electron Beam Irradiation (脱水バクテリアセルロースの機械的および熱生理学的特性に対する電子線照射によるナノスケール改質)
審査委員	(主査) 教授 奥林 里子 教授 山田 和志 准教授 岡久 陽子

論文内容の要旨

バクテリアセルロース (BC) は、従来の繊維および皮革素材に代わる持続可能な代替品として大きな可能性を秘めているが、その固有の硬さ、限られた熱生理学的快適性、最終用途に求められる特性が不十分であることなどが課題となっている。申請者らは初期の研究において、様々なマクロスケールでの化学修飾法を検討し、BC の特性を向上させることに成功したが、長い処理時間、廃水処理、添加剤の大量消費、不十分な耐久性などの課題が残り、これらを解決する革新的で効率的なアプローチが求められていた。本研究では、電子線照射 (EBI) 技術を用い、硬くて脆い脱水 BC を、繊維や皮革用途に適した柔軟で高機能な材料に変換するための包括的な枠組みを確立するとともに、脱水 BC のナノスケール改質における、基礎的メカニズムを解明することを目的としている。本論文は 6 章から成り、各章の要旨は次の通りである。

第 1 章では、BC の包括的な概要を示し、脱水 BC の従来のマクロスケールな改質方法とそれぞれの課題について説明し、その解決策として EBI 技術を紹介するとともに、本研究の背景、目的や意義について述べている。

第 2 章では、EBI が BC の表面形態、機械特性、熱生理学特性に与える影響を調べ、BC 表面ではナノスケールでフィブリルが崩壊し、多孔性のエアロゲル層が生成すること、これにより表面機能特性が変化することを報告している。

第 3 章では、可塑剤であるポリエチレングリコール (PEG) やグリセロールを、脱水 BC に注入して EBI 処理することで、相互浸透ポリマーネットワーク (IPN) の形成を通じて、柔軟で熱的に快適な BC 材料が調製できることを実証している。

第 4 章では、超臨界二酸化炭素処理により PEG および分散染料を BC に注入し、続いて EBI 処理することで染色 BC 由来ヴィーガンレザーを調製している。また、調製条件が BC の表面形態、染料の導入、柔軟性、熱生理学特性に及ぼす影響を詳細に検証している。

第 5 章では、リサイクル絹フィブロインを EBI 処理により BC に導入し、BC の柔軟性、弾力性、さらに湿度応答の快適特性を相乗的に向上させる、最適なアプローチ法について報告してい

る。

第6章では、本研究を総括し、EBIにより改質されたBCの、従来の繊維や動物皮革の持続可能な代替品としての可能性を示唆するとともに、今後の展開および課題を述べている。

論文審査の結果の要旨

本研究では、環境調和型バイオマテリアルとして注目されているバクテリアセルロース (BC) に、グリーン可塑剤であるグリセロールおよびポリエチレングリコール (PEG) を、さらにリサイクルバイオポリマーである絹フィブロインタンパク質を導入することで、硬く脆いBCを、繊維および皮革用途に適した柔軟かつ高機能な材料へと転換することに成功している。修飾プロセスには、電子線照射 (EBI) や超臨界二酸化炭素 (scCO₂) といった水を使用しないグリーンテクノロジーを採用し、原料から加工まで一貫してサステナブルなものづくりの枠組みが示唆された。

具体的には、まずEBIのみによるBCの改質を検討し、吸収線量の増加に伴い分解が進行することで機械的強度は低下するものの、吸収線量 50 kGy の EBI 処理においては、BC 表面にエアロゲル層が形成され、接触冷感の指標である最大熱吸収速度 (Q_{max}) が低下することを明らかにしている。

次に、PEG およびグリセロールによるBCの可塑化を目的として、EBI 処理条件の最適化を行ったところ、高吸収線量 200 kGy で PEG 処理した BC は、未処理 BC と同等の引張強度を維持しつつ、伸びは 2~3 倍に増加し、硬さを示す曲げ弾性率は未処理の約 17 分の 1 である 166 MPa まで低下した。これにより、厚手デニム生地に匹敵する柔軟性を実現している。また、Q_{max} は未処理 BC の約 3.3 倍に相当する 0.256 W/cm² を示し、EBI 単独処理とは対照的に、PEG 導入により冷感を呈する表面特性が得られている。さらに、低吸収線量 10 kGy においても、曲げ弾性率は約 10 分の 1 (301 MPa) に低下し、伸びは 4 倍に増加、Q_{max} は 2.9 倍 (0.225 W/cm²) となり、加工効率およびコストの観点からも十分に実用化可能な改質効果を確認している。

さらに、水の代替として scCO₂ を用い、脱水 BC に PEG および分散染料を含浸させた後、10 kGy の EBI 処理を施すことで、洗濯に対する染色堅牢度 3~4 級と比較的高い耐久性を有する着色柔軟 BC 材料の調製にも成功している。本手法により、水や触媒を使用することなく、BC の着色、可塑化、架橋という多機能化を同時に達成するプロセスを確立し、scCO₂ と EBI が持続可能な皮革代替材料の製造において相乗的に機能するグリーン製造技術であることが実証された。

また、PEG の代わりにリサイクル絹フィブロインを BC に含浸させ、EBI 処理を施した BC/フィブロイン複合材料では、極めて低い曲げ弾性率 (43.6 MPa) と、優れた表面熱特性 (Q_{max} = 0.237 W/cm²) が達成された。これらの特性向上は、EBI によって誘起された BC ネットワーク内でのフィブロインの架橋および安定化に起因し、その結果として耐久性および保湿性が向上したことを、TGA、FT-IR、EDX 分析により明らかにしている。

本研究で開発した材料は、柔軟性、温熱快適性、機械的耐久性および加工性に優れ、従来の繊維材料や動物皮革に代わる持続可能な代替材料としての高い可能性を示している。これらの成果は、大規模製造に適した迅速かつ無溶剤・ゼロ排出の EBI 技術を基礎とする処理の産業的意義を強く示唆するものである。

以上の結果から、本論文の内容は十分な新規性と学術的および工業的価値があると認められ、本論文が博士論文の水準を満たしていると判断された。

本論文の基礎となった学術論文 7 報を以下に示す。いずれもレフリー制度の確立した学術誌に掲載されており、7 報ともに申請者が筆頭著者である。いずれの論文も二重投稿等の研究者倫理に反するような不正行為がないことを確認した。

(学術論文)

Chapter 1:

- Modification of dehydrated bacterial cellulose with glycerol and succinic acid by using padding method for textile applications, Hung Ngoc Phan, Satoko Okubayashi, Research Journal of Textile and Apparel, Vol. 29(2), pp. 371–388, 2025
- Textile finishing for bacterial cellulose modification: organic acid-catalyzed cellulosic acetylation, Hung Ngoc Phan, Thu Thi Nguyen & Satoko Okubayashi, The Journal of the Textile Institute, Vol. 116(4), pp. 713–721, 2025
- Fabrication of plasticized interpenetrating polymer network (IPN) leatherette derived from bacterial cellulose and silicon dioxide using a novel 2-in-1 thickening process, Hung Ngoc Phan, Diep Thi Mong Phan, Nguyen Thi Thu Vo, Satoko Okubayashi, Cellulose, Vol. 31(15), pp. 9281–9302, 2024

Chapter 2:

- Tailoring Aerogel-Like Surface Characteristics of Bacterial Cellulose by Electron Beam Irradiation-Induced Decomposition, Hung Ngoc Phan, Kazushi Yamada & Satoko Okubayashi, Journal of Polymers and the Environment, Vol. 33(1), pp. 285–300, 2025

Chapter 3:

- Sustainable Modification of Dehydrated Bacterial Cellulose by Polyethylene Glycol and Electron Beam Irradiation, Hung Ngoc Phan, Kazushi Yamada & Satoko Okubayashi, Fibers and Polymers, Vol. 26(3), pp. 1147–1162, 2025
- Sustainable plasticization of dehydrated bacterial cellulose by glycerol and electron beam irradiation, Hung Ngoc Phan, Satoko Okubayashi, Biomass Conversion and Biorefinery, Vol. 15(16), pp. 23477–23492, 2025

Chapter 4:

- Sustainable fabrication of bacterial cellulose-based vegan leather utilizing supercritical carbon dioxide and electron beam irradiation, Hung Ngoc Phan, Satoko Okubayashi, Cellulose, Vol. 32(8), pp. 4939–4960, 2025