

氏名（本籍）	林冠萱（ Taiwan ）		
学位の種類	博 士（ 生物資源工学 ）		
学位記番号	博 甲 第 9694 号		
学位授与年月日	令和 2 年 9 月 25 日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	生命環境科学研究科		
学位論文題目	Development of a Cellulose Nanocrystal-Paper Composite as a Substrate to Fabricate Robust Electroconductive Circuits (堅牢な電気回路を印刷するためのセルロースナノクリスタル—紙複合基板の開発)		
主 査	筑波大学教授	博士(農学)	江前敏晴
副 査	筑波大学准教授	博士(農学)	中川明子
副 査	筑波大学准教授	博士(農学)	小林幹佳
副 査	国立台湾大学准教授	Doctor of Agriculture	Feng-Cheng Chang

## 論 文 の 要 旨

ディスプレイや太陽電池など、セラミクスやプラスチック基板を使って製造した電子回路は、その材料特性から廃棄時に環境問題を引き起こすことがある。紙などのセルロース基板上に印刷技術を使って作られる電子回路は製造工程が簡便で、環境負荷が小さく、柔軟性を必要とする用途に適しており、エレクトロニクス業界からも注目されている。第1章で著者は、このような紙基板電子回路の開発状況や課題について議論している。さらにその調査の結果として、回路を形成する導電性材料として利用される銀ナノ粒子は紙基板への接着性が低く、緩い折り曲げでも剥離が起りやすいことが重大な問題であることに気づき、その解決法として、セルロースナノクリスタル（CNC）の懸濁液を紙基板にあらかじめ塗布しておく方法（プレコート）が接着力の向上に有効ではないかと考えた。

第2章で著者は、均一なプレコートを行うためにはCNC懸濁液の分散性が重要であると考え、粒子表面の荷電状態を調べることで分散性を評価した。まず、CNCを調製するためにパルプ繊維の硫酸加水分解する際に硫酸基が導入されることを元素分析により確かめたあと、電導度滴定により表面荷電密度を測定した。さらに電気泳動移動度の測定から分散性の尺度となるゼータ電位を決定した。さらに電気泳動の複数の理論式の比較から大島-Overbeek（length）式が最適であることを見出し、粒子形状を推定した。十分高いゼータ電位を有する条件で加水分解したCNC試料が光の複屈折現象を示したことから、結晶性と分散性の高い懸濁液であることを確認した。

第3章で著者は、CNC懸濁液のプレコートを行ったインクジェット紙基板の上に、水性銀ナノ粒子インクをインクジェット法で印刷した。予想通りこの銀の配線は高い導電性を示した。そのメカニズムを解析するために、インクジェット紙上に滴下した水性銀ナノ粒子インク滴の接触角を測定したところ、45°であったものが、CNCをプレコートすることにより33°に低下した。

このように基板表面が濡れやすくすることで接着性が向上することがわかった。また、表面粗さがプレコートによって低下することもわかり、表面平滑性の向上もその効果の1つであることが推測された。銀配線の堅牢性について、一定の荷重をかけて表面を摩擦する治具を製作し、市販の摩擦係数測定装置に取り付けた。一定回数の摩擦のあとにどの程度銀配線が紙面に残っているかの面積率を算出し、耐摩擦性を評価した。5～15層のプレコートにより、66%から、95%以上に面積率が向上した。電気抵抗は摩擦前にはいずれも0.1Ω程度であったものが、摩擦後は、プレコートなしでは∞Ωとなり、5～15層のプレコートを行えば12Ω以下を維持できることがわかった。さらに電子顕微鏡による紙断面の観察により、銀ナノ粒子はCNC層の内部にある程度の深さまで入り込んでいることがわかり、接着性向上の要因となっていることが推測された。

第4章で著者は、CNCだけを乾燥させて調製したフィルム及びCNCにセルロースナノファイバー(CNF)を混合して乾燥させたブレンドフィルムを透明基板材料として調製した。油性銀ナノ粒子インクを印刷して回路を作製したところ配線の抵抗はいずれも0Ωとなり、高い導電性を示した。透明なセルロース基板にも回路作製が可能であり、柔軟性のある透明基板のエレクトロニクスの製作が可能であることを示すことができた。繊維状の長いCNFをブレンドしたフィルムはCNCだけのフィルムに比べ、引張強度や耐折性に優れており、適度なCNFのブレンドにより機械特性の最適化が可能であることも見出した。

## 審 査 の 要 旨

この論文は、代表的なバイオマス素材である紙を持続的な社会を維持するためのエレクトロニクスの基板材料として活用する技術について論じている。通常のエレクトロニクス材料は分解性が乏しく、使用後に大量の廃棄物となって地球上に蓄積される問題の解決を図ることを目的においた。紙基板の上に電気回路を安定に作ることの難しさは、表面が粗く多孔質である紙の宿命であるものの、その改善に同じセルロース材料であるセルロースナノクリスタル及びセルロースナノファイバを印刷法でプレコートするという方法を新たに提案し、表面改質を試みた。ナノセルロース素材の調製法、印刷ためのナノセルロースインク調製条件を検討するためのコロイド特性の解析、回路の摩擦抵抗性の向上効果の解析を通し、実用的な紙基板作製技術を確立することに成功したと評価できる。

令和2年7月16日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士(生物資源工学)の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。