

## 学位論文の審査結果の要旨

人口増加に呼応するように世界の繊維需要・生産量は増加傾向にある。一方、スマートテキスタイルやウェアラブル技術に関する研究が重要性を増しており、化学繊維の高機能化と共に天然繊維についても今後のさらなる用途展開を目的とした高度な機能加工が希求されている。一方、ナノマテリアルやその加工技術についても世界中で多くの研究が行われており、両者の接点においてはナノマテリアルによる繊維の機能加工・複合化が重要課題の一つとなっている。具体的には医療分野やハイジーンプロダクト・ヘルスケア分野、スポーツウェア・防護服分野等で天然繊維への抗菌性等が重要度を増している。またスマートテキスタイル分野では導電性繊維が基本的材料の一つとなることから、繊維の電気的特性や磁気的特性の付与が重要となっている。

本学位論文は、シルク繊維表面に酸化グラフェン(GO)をコーティングする手法を中心に、さらに銀ナノ粒子(AgNP)、酸化鉄ナノ粒子( $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{NP}$ )を階層的にシルク繊維表面に修飾する方法を開発し、そのメカニズムや構造の分析結果等をまとめたものである。シルク繊維表面の機能化には、hyperbranched poly(amide) (HBPA) を分子間の接着剤的に用いて Layer-by-Layer 法(LbL法)によりコーティングを行っており、シルク繊維表面、HBPA と GO, AgNP,  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{NP}$  間の帯電状態を利用して自己集合的な階層化プロセスをとっている。本論文は5つの章で構成されている。第1章ではシルクの有用性や構造、さらに GO も含めたナノマテリアル、ナノ複合材料に関して概説している。第2章では、HBPA を用いたシルク繊維表面への GO の効率的なコーティング法について検討を行い優れた結果を得ている。本手法では、シルク繊維の HBPA 溶液と GO 分散液への浸漬を順次繰り返すことにより、GO の多層化が可能であることも示している。さらにこれらの材料について FTIR, FESEM, XPS 等による分析を行い、シルク繊維表面への GO の固定化を確認している。第3章では、シルク繊維表面に AgNP をコーティングし、さらに GO 溶液に浸漬することにより、シルク繊維に同軸構造の AgNP 層・GO 層を積層させる手法について述べている。このプロセスでは HBPA を AgNP 側と GO 側の両者に機能する両面テープのように用いることで階層化を実現させている。第4章では、AgNP と  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{NP}$  の二種類の金属ナノ粒子をシルク繊維表面に積層する手法を検討している。ここではまず  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{NP}$  と GO のハイブリッドを調製し、これを AgNP がコーティングされたシルク繊維表面上に吸着させることで多層構造化を実現している。また第2章から第4章の各章では、得られた物質の構造および繊維表面の特性などについて FESEM, SEM, AFM, FTIR, XRD, XPS 等を用いて詳細な分析・考察を重ねると共に、各プロセスのメカニズムについても検討・説明がなされている。第5章では本論文のまとめと今後の展望について述べられている。本研究で実現したシルク複合材料は抗菌性や導電性などの機能が想定できることから、今後、スマートテキスタイルの材料としてなど、応用に向けたさらなる研究が期待される。

以上のように、本学位論文は、シルク繊維と無機・金属ナノ粒子をそれぞれの帯電状態を利用して修飾・機能加工する技術を検討しており、得られた複数の技法・プロセス、および分析結果は学術的価値が高く有用な知見を得ており、博士(工学)の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。なおこれらの結果は3報の学術論文として既に公表・掲載されており、公表論文数、筆頭著者等の状況は所属するファイバー機能工学講座の要件(審査基準)を満たしていることを付記する。

## 公表主要論文名

1. Jiangchao Song, Sijun Xu, Tao Chen, Shigeru Yamanaka, Hideaki Morikawa. Preparation of graphene oxide-coated silk fibers through HBPA [a molecular glue]-induced layer-by-layer self-assembly. *Journal of the Iranian Chemical Society*, <https://doi.org/10.1007/s13738-017-1213-y>, 2017.
2. Sijun Xu, Jiangchao Song, Chunhong Zhu, Hideaki Morikawa. Graphene oxide-encapsulated Ag nanoparticle-coated silk fibers with hierarchical coaxial cable structure fabricated by the molecule-directed self-assembly. *Materials Letters*, 188: 215-219, 2017.
3. Jiangchao Song, Sijun Xu, Tao Chen, Hideaki Morikawa. Fabrication of hierarchical structured graphene oxide- $\text{Fe}_3\text{O}_4$  hybrid nanosheets and Ag nanoparticles bimetallic composite coated silk fibers through self-assembly. *Journal of Silk Science and Technology of Japan*, 25: 59-68, 2017.