

持続可能開発目標達成支援事業 (aXis)

A タイプ研究分野「 環境・エネルギー分野 」

研究課題名 「マレーシアでの生分解性ナノコンポジット事業の実現」

相手国名 : マレーシア

## 令和 2 (2020) 年度実施報告書

研究期間

2020年4月1日から2022年3月31日まで

研究代表者 : 氏名 白井 義人

所属・役職 九州工業大学・教授

## I. 国際共同研究の内容（公開）

### 1. 当初の研究計画に対する進捗状況

#### (1) 研究の主なスケジュール

## III 本研究の内容

### 1. 当該年度における実施計画（活動）

研究題目・活動	R 2 年度			
	4～6月	7～9月	10～12月	1～3月
1. 研究題目1 1-1 研究活動1-1 1-2 研究活動1-2	中型エクストルーダーの調達（済み） CNF 分散の条件設定（一部済み） CNF コンポジットの作成（一部済み）			
2. 研究題目2 2-1 研究活動2-1 2-2 研究活動2-2		TEX30 $\alpha$ 立ち上げ（次年度に延期） TEX30 $\alpha$ による条件設定（次年度に延期） CNF 複合材作成のスケールアップ（次年度に延期）		
3. 研究題目3 3-1 研究活動3-1 3-2 研究活動3-2 3-3 研究活動3-3	イオンクロマトグラフィー調達（済み） セルロース単体との分解比較 サンプル回収 菌群の馴養、機能評価 (赤字はすべて次年度に延期)	改良材料の分解チェック サンプル回収 MiSeq 分析、解析 メカニズム解明 まとめ	メカニズム解明 まとめ	まとめ
4. 研究題目4 4-1 研究活動4-1			事業性の検証と評価（次年度延期）	
機材導入 ディスク・ミル 調整済み大型二軸押出機（本学所有）		本邦調達、現地輸送、設置（済み） 調整と実習（一部実施） 調整と実習（一部済み） 相手国設置と実証（次年度延期）	調整と実習（一部実施） 相手国設置と実証（次年度延期）	
渡航活動 (赤字の渡航活動はすべて次年度延期)		マレーシア側の日本での調査・実習（3人・14日）	導入機材の立ち上げ（3人・15日） 研究コーディネーション（含む国際ワークショップ）（1人・210日）	国際ワークショップ

※大型二軸押出機（TEX30 $\alpha$ ）➡以降、大型二軸押出機と記載

中型二軸押出機（ZR015TW-45WG-NH (-700) -KU）➡以降、中型二軸押出機と記載

小型二軸押出機（IMC-1979）以降、小型二軸押出機と記載

研究題目・活動	R 3 年度			
	4 ~ 6 月	7 ~ 9 月	10 ~ 12 月	1 ~ 3 月
1. 研究題目1 1-1 研究活動1-1 1-2 研究活動1-2	CNF 分散の条件設定 CNF コンポジット作成および評価			まとめ
2. 研究題目2 2-1 研究活動2-1 2-2 研究活動2-2	TEX30 $\alpha$ による条件設定 <b>TEX30<math>\alpha</math>の調整(オーバーホール・メンテナンス含む)</b>	CNF コンポジットの大量生産 CNF 複合材作成のスケールアップ		まとめ
3. 研究題目3 3-1 研究活動3-1 3-2 研究活動3-2 3-3 研究活動3-3	セルロースコンポジットの分解比較 菌群の馴養、機能評価	分解度評価 サンプル回収 MiSeq 分析、解析 メカニズム解明	メカニズム解明 まとめ	まとめ
4. 研究題目4			事業性の検証と評価	まとめ
機材導入 調整済み大型二軸混練機（本学所有）	現地機材設置場所の調整	TEX $\alpha$ UPM への輸送と現地設置		
渡航活動	マレーシア側の日本での調査・実習 (1人・3日) (2人・14日) <b>困難と思う</b>	導入機材の立ち上げ (2人・15日) 研究コーディネーション (含む国際ワークショップ) (1人・180日)		国際ワークショッピング

\* 1 上記、赤字は新型コロナウイルス感染症の影響で研究を修正した点である。

## (2) プロジェクト開始時の構想からの変更点(該当する場合)

基本的に、プロジェクト開始時においては、まずマレーシアの共同研究関係者を日本に招き、特に本学の所有する大型のエクストルーダーの研修を受けさせ、現地において、十分な本装置の活用ができることを図ることを念頭においていた。今回の新型コロナウイルス禍によりマレーシア関係者の来日に全く目途がたたず、とはいえ、いきなり装置を送り、マレーシアの関心表明企業に開発した生分解性 CNF コンポジットの評価を依頼するに足るサンプルが確実にできという確認も得られない状況になった。

そのため、次善策として、代表的なパームバイオマスである EFB (搾油するためアブラヤシの果実房から果実を取り除かれた後の空房) 由来のセルロースパルプをマレーシアの NextGreen 社から提供を受け、UPM ヒダヤ教授が開発した CNF 製造技術により製造された CNF を日本に移送し、それを原料にして生分解性 CNF コンポジットをつくることとした。一方、エクストルーダーを試運転し、日本での調整段階で、外部協力企業のエンジニアとも協議し、必ずしもオーバーホールをどうしてもしなければならない状態

ではないこともわかった。そのため、予定していた大型二軸押出機のホーバーホールは中止し、その予算を用いて、もし必要であれば、これまで得た基礎研究情報に基づき、外部樹脂会社へのコンポジット製造依頼も含め、マレーシアの関心表明企業の検討に耐えられる所望量のサンプルを製造する。もちろん、本事業で購入した大型二軸押出機も十分に活用し、マレーシアの関心表明企業の検討に耐えられるコンポジットも製造する。現在、新型コロナウイルス感染症の影響は、全く予断を許さず、対策は常に複数を用意しておく必要があると考える。

## 2. プロジェクト成果の達成状況とインパクト（公開）

### (1) プロジェクト全体

- ・成果目標の達成状況とインパクト

まず、マレーシア現地では、すでに開発した廉価なセルロース・ナノ・ファイバー（CNF）のさらなるコストダウンを目指し、今回購入した大型ディスク・ミル装置（右写真）を用い、さらに CNF を廉価に作るための基盤整備に取り組み始めた。

詳細は以下に記すが、今回製造された CNF コンポジットは材料をすべて固体形状で処理することができ、廉価製造法として確立することができた。強度の指標である母材の強度 150% アップはまだ達成していないが、強度の増強は認められた。

また、汚泥中の菌叢を調整することにより、プラスチック材料として生分解性プラスチックを用いることにより CNF コンポジットの完全生分解性の可能性が示唆された。さらに、完全分解に貢献する微生物叢についても解析が進められており、メタンを中心としたバイオガスに変換するプロセスの解明も進んでいる。すなわち、マレーシアを含む多くの国での廃棄物処理に利用される埋立地からバイオガスを回収し、グリーン発電につなげることができる。このような試みは世界的にも最先端の研究である。



九工大での実験室規模での CNF 生分解性コンポジットの大量生産の様子

- ・プロジェクト全体のねらい（これまでと異なる点について）

本事業に関しては、あくまで、マレーシアでの本事業成果の社会実装につながる研究を進める方針

に変更はない。しかし、コロナ感染症の影響で、人的交流に大きな支障が出ている。もちろん、できる限りオンライン会議を通じて研究の進捗をはかるが、現在、マレーシアで本事業の成果に関心を示すコンポジット開発企業が2社あり、これら企業との連携が計れるよう準備を進める。

- ・SDGs達成に向けた重要性、科学技術・学術上の独創性・新規性（これまでと異なる点について）  
本事業に関連するSDGs目標は、12「つくる責任、つかう責任」、14「海の豊かさを守ろう」15「陸の豊かさも守ろう」の3つになると見える。この際、我々の研究成果が社会に実装されれば、海洋におけるマイクロプラスチック問題の解決につながる。マレーシア政府も使い捨てプラスチックについては生分解性を持たすことを決めており、我々の成果は、このマレーシア政府の方針を推進させることができる。これまでの研究成果は目標の達成に近づいていることを示す。

- ・研究運営体制、日本人人材の育成(若手、グローバル化対応)、人的支援（研修、若手の育成）およびネットワーク構築等

安藤研究室で今回雇用する人材は研究者としてアカデミックな場で活躍したい人材の雇用を行っている。また、前職では大学のポスドクとして実証研究に携わっており、今回の研究に適した人材であり論文や特許など成果のアウトプットが期待できるため、若手研究者的人材育成を念頭に雇用を行った

前田研究室では、微生物工学に関する研究活動を進めているが、マレーシアプトラ大学の若手研究者である Mohd Zulkhairi 上級講師、Noryahati 准教授、マレーシア国民大学の Mohd Yasin 上級講師などの連携のほか、アメリカペンシルベニア州立大学の Thomas K. Wood 教授、メキシコ国立自治大学の Rodolfo Garcia Contreras 准教授、コロンビアのサンタンデール工科大学の Viviana Sanchez Torres 准教授などの若手研究者と密接に連携している。このJST事業に参画している2名の日本人学生は、新型コロナ感染症流行前に、マレーシア、メキシコ、アメリカなどに短期留学経験を積んでおり、グローバルマインドを強化する機会を得ており、この事業をきっかけにさらに成長している。

## (2) 研究題目1：「CNF・生分解性コンポジット（ポリカプロラクトン、ポリ乳酸など）の強度等、樹脂性能の検証」

研究グループA（リーダー：安藤義人）

### ① 研究題目1の当初の計画（全体計画）に対する当該年度の成果の達成状況とインパクト

- 研究活動1-1：生分解性樹脂に対するCNF分散性の制御を実現する。

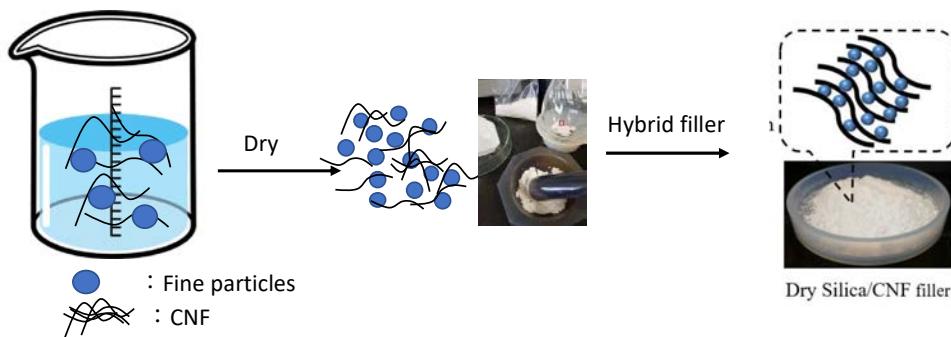


図1-1-1.ハイブリッドフィラーの作成

特開2020-128475“樹脂混合用ハイブリッドフィラー及びその製造方法”を利用してCNF含有生分解性

複合樹脂の合成を検討した。シリカ微粒子と市販のセルロースナノファイバー(CNF、スギノマシン製)を使ってハイブリッドフィラーの作成を試みた。任意の比率でCNFおよびシリカ粒子を混合し、ハイブリッドフィラーの作成を行った(図1-1-1)。先ずは、小型二軸押出機を使って表1に示す条件にて配合(195°C、30分)をおこない、得られた複合材ペレットを熱プレス成形(195°C)をおこない、更に得られたフィルムは液体窒素を使って急冷した。得られたフィルムは引張試験により物性評価を行った。まずはフィルムの外観からCNFの分散性を確認した(図1-1-2)。その結果、ハイブリッドフィラーを使ったフィルムはCNFを混ぜただけのフィルムと違いCNFの凝集は見られなかった。物性試験の結果に着目すると、PLA単体はCNF及びハイブリッドフィラーとの複合材よりも高い引張強度を示した。一方、PCLはハイブリッドフィラーと複合材がPCLおよびPCL/CNFに比べ高い引張強度を示した。以上の結果はPLAよりもPCLのほうがCNFの補強効果が高いことがわかる。また、樹脂によってCNFの補強効果が変わることもわかった。

そこで、CNFや誘導体でアスペクト比の低いセルロースナノクリスタル(CNC)とのハイブリッドフィラーの評価を行った。特にシリカよりもセルロース成分比が高い条件で行った(表1-1-2)。その結果、引張強度は原料と比較してほぼ同じあるいは低い結果を示した。特にCNFのみを混ぜた複合材は顕著に低くなっている。一方でハイブリッドフィラーとの複合樹脂はばらつきが大きく、PLA単独よりも大きい数値も出ている。これは、十分に混練さ

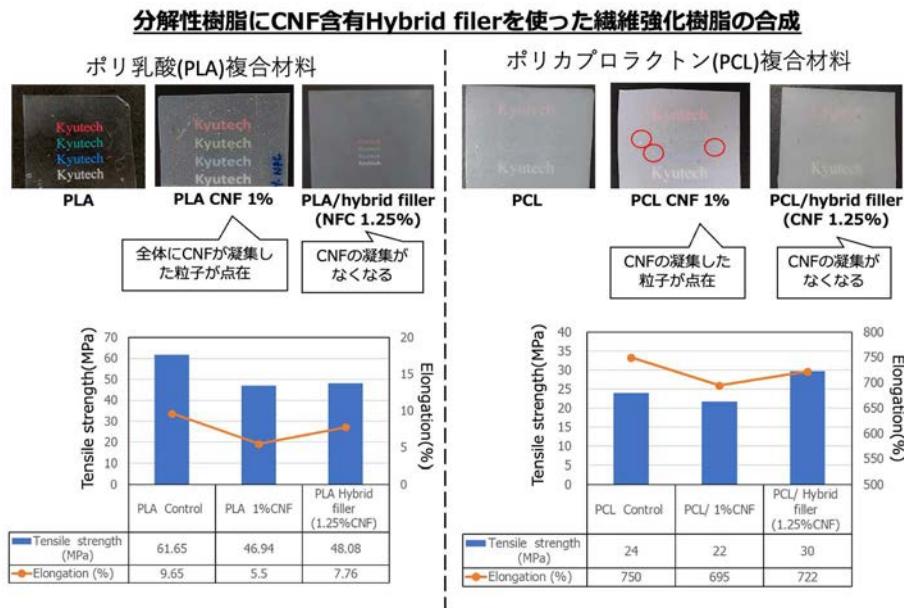


図1-1-2.ハイブリッドフィラーを使ったCNF含有生分解性樹脂複合材

表1-1-2.ハイブリッドフィラーの配合

サンプル名	フィラー含有量(wt%)
PLA/CNF	CNF-3%
PLA/CNC	CNC-3%
PLA/CNF/SiO <sub>2</sub>	CNF-1.8%/SiO <sub>2</sub> -1.2%
PLA/CNC/SiO <sub>2</sub> -1	CNC-1.8%/SiO <sub>2</sub> -1.2%
PLA/CNC/SiO <sub>2</sub> -2	CNC-1.3%/SiO <sub>2</sub> -0.6%
PLA/CNC/SiO <sub>2</sub> -3	CNC-6%/SiO <sub>2</sub> -4%

CNF : セルロースナノファイバー、CNC:セルロースナノクリスタル

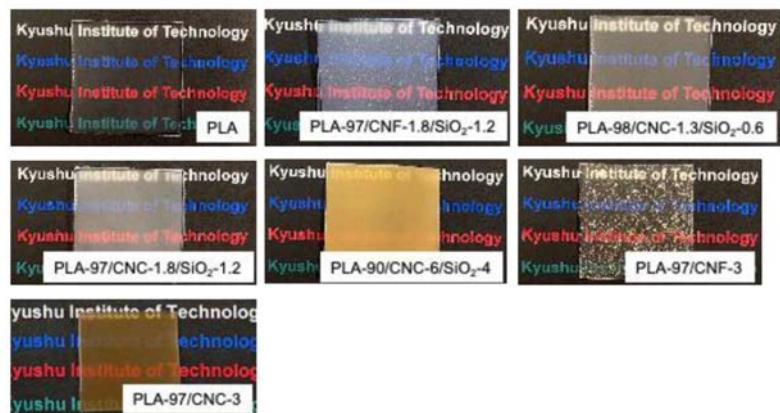


図1-1-3.CNF含有ポリ乳酸フィルム

れていれば可能性を示す。一方、得られたフィルムの透明性を図3に示すように比較したところCNCを用いた複合材は高い分散性を示しているがCNFを含有している複合材は樹脂内での凝集が見られる。

本研究結果により、ペレットを作成し整形形成も確認することができた。また、通常はスラリー状態でしか扱えないCNFをシリカ粒子と組み合わせることで粉末状のフィラーとして活用できることは産業上、非常に大きなメリットがある。特に作成方法も非常に簡便である。乾燥

粉末にすることで押出機などで容易に利用できるため産業上の利点は非常に大きい。

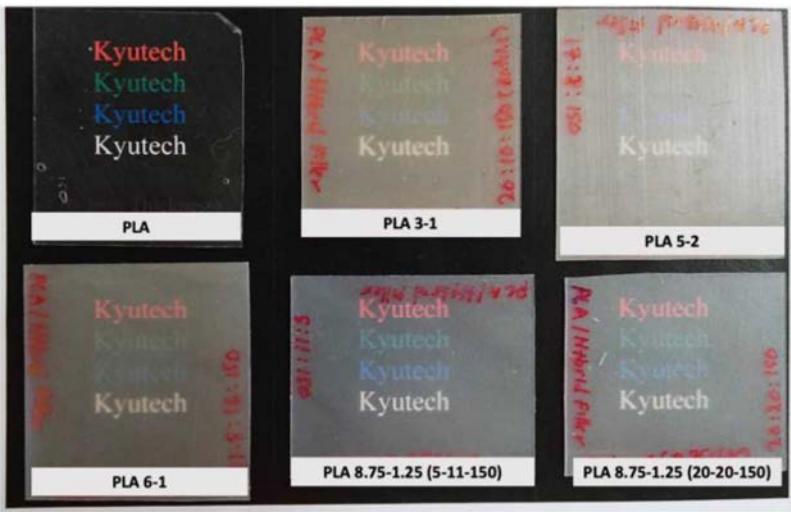


図1-2-1 中型二軸押出機で制作したペレットから作られた薄膜

表1-2-1 中型二軸押出機の混練条件

Sample	Materials		Weight ratio (%)		Feeding power (%)		Rotational speed of screw (rpm)	Temperature (°C)							
	Matrix	Filler	Matrix	Filler	Feeder 1 (Polymer)	Feeder 2 (Filler)		C1	C2	C3	C4	C5	C6	H	D
PLA 3-1	PLA	SiO <sub>2</sub> /CNF	96	4	10	20	150	100	200	200	200	190	180	180	170
PLA 5-2	PLA	SiO <sub>2</sub> /CNF	93	7	8	17	150	100	190	200	200	190	180	180	170
PLA 6-1	PLA	SiO <sub>2</sub> /CNF	93	7	16	11.5	150	100	190	200	200	190	180	180	170
PLA 8.75-1.25 (5-11-150)	PLA	SiO <sub>2</sub> /CNF	90	10	11	5	150	100	190	200	200	190	180	180	170
PLA 8.75-1.25 (20-20-150)	PLA	SiO <sub>2</sub> /CNF	90	10	20	20	150	100	190	200	200	190	180	180	170

#### 研究活動 1-2 : NF コンポジットの物理強度の増強を図る

本研究PJで購入した中型二軸押出機が納入されたことに伴い、シリカ粒子とCNFを種々の配合でハイブリッドフィラーを準備し、中型二軸押出機による溶融混練の実験を行った。ラボスケールの小型二軸押出機ではCNFが樹脂中に分散するハイブリッドフィラーの比率にはある程度の限界があった。ところが、小型二軸押出機で

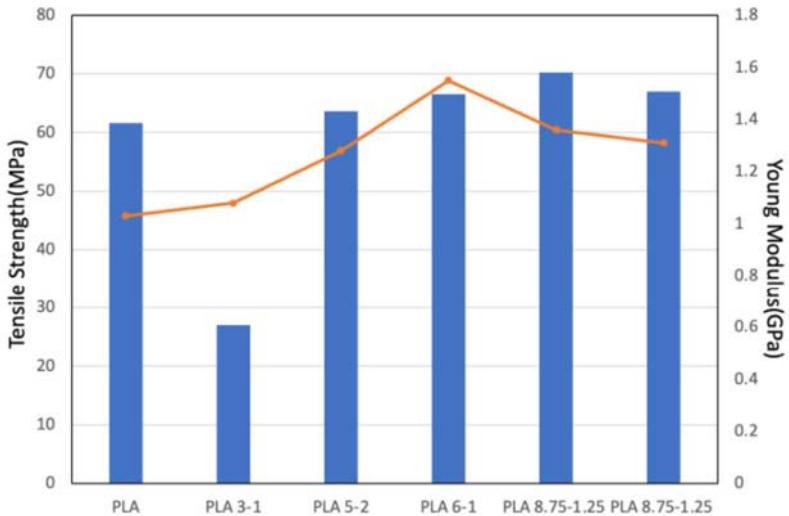


図1-2-2. CNF含有PLAの引張強度及びヤング率

分散させることができなかつた CNF とシリカ粒子の比率のハイブリッドフィラーでも中型二軸押出機では条件を最適化することで十分に分散させることができることがわかつた。

表 1-2-1 の Sample 番号は PLA シリカ粒子—CNF の比率を示す。混練速度が低い状態で作成した PLA ペレットは十分の CNF の凝集が見られ、分散が確認できなかつた。しかし、混練速度を 150rpm して得られた PLA ペレットでは CNF の凝集は確認できなかつた。そこで、得られたペレットを熱プレス成形により薄膜を作成し、CNF の分散性を確認した結果、いずれの場合も CNF の凝集は確認できなかつた。各ペレットから熱プレス成形によって作成された薄膜から試験片を作成し、引張試験を行つた。その結果を図 1-2-1 に示す。興味深いことに、ラボスケールの小型二軸押出機では PLA とハイブリッドフィラーで作成した複合材は PLA 単独の引張強度を超える結果は得られなかつたが、中型二軸押出機では PLA3-1 以外はすべての複合材が PLA 自身よりも高い引張強度を示しており、さらにヤング率も高い値を示していることがわかつた。これらの結果は、ハイブリッドフィラーが中型二軸押出機では十分に混練されおり、CNF が樹脂中に樹分に分散されていることがわかつた。また、種々の比率で作られたハイブリッドフィラーのいずれも PLA 薄膜中で分散しており、今後はハイブリッドフィラーの含有量や比率を最適化することが重要になると思われる。

今回の研究では小型二軸押出機と中型二軸押出機では混練能力が大きく違うことがわかつたことは大きな価値であった。本研究結果の目標である 150% 以上の強化はまだ未達成である。現在は PLA の引張強度がオリジナルと比べて 114%、PLA が 125% である。今後、目標を目指してハイブリッドフィラー配合及び含有量の最適化を進める。

## ② 研究題目 1 の当初計画では想定されていなかつた新たな展開

研究活動 1-1：生分解性樹脂として当初挙げていた PLA, PCL, PHB のうち PLA と PCL は容易に入手することに成功したが、国内の某企業にサンプル提供をお願いしたが本研究目的では提供できないと断られた。マレーシア側では PHB の複合材料に主眼をおいていたため、現在は新たな入手先を呼び複数の樹脂を混合することも念頭に今後の計画を考えている。

研究活動 1-2：本機で得られた条件は大型二軸押出機でも再現可能と謳われている中型二軸押出機はコロナのために納期が遅れていた。しかし、小型二軸押出機では CNF を分散させることが出来なかつたハイブリッドフィラーの配合や PLA に対する含有量も中型二軸押出機を使う事によって CNF を樹脂中に分散させることが可能であることが、今回の研究でわかつた。

## ③ 研究題目 1 の研究のねらい（参考）

研究活動 1-1：生分解性樹脂に対する CNF 分散性の制御を実現する。

内容：本研究の期間内に、生産する生分解性コンポジットの CNF の分散方法、混練方法を検討して母材を選択、最終的にペレタイズした複合樹脂の射出成型性を評価する。

研究活動 1-2：CNF コンポジットの物理強度の増強を図る

内容：本研究の期間内に、2 軸エクストルーダーで生産された CNF・生分解性コンポジットの成型品を用いて引張り強度、曲げ強度共に母材に比べて 150% 以上の強化を目的とする。

#### ④ 研究題目 1 の研究実施方法（参考）

研究活動 1-1：①に詳細に結果とともに記述

研究活動 1-2：①に詳細に結果とともに記述

#### (3) 研究題目 2：「2 軸エクストルーダーによるポリカプロラクトン等、生分解性プラスチックの CNF のコンポジットペレットの作製条件の検証と生分解性試験用試料の作製」

研究グループ A（リーダー：安藤義人）

##### ① 研究題目 2 の当初の計画（全体計画）に対する当該年度の成果の達成状況とインパクト

研究活動 2-1：大型二軸押出機による生産を可能にするため北九州市に本社を持ち、コンパウンド会社を傘下に持つ㈱明菱に依頼し、大型二軸押出機の操作、洗浄、メンテナンスを 3 回にわたってレクチャーを受けた。これらの知識は本学で購入した中型二軸押出機のメンテナンスにも活かすことができるため研究室の複数の学生も一緒に学習した。特に、安藤研究室にはマレーシアからの留学生が複数いるため、これらの学生にも講習を受けてもらった。また受けた際の内容は企業側からレポートを提供してもらうだけでなく、本学側ではビデオ撮影をしてマレーシア側のパートナーにいつでも教えることができる状態を整えた。

研究活動 2-2：CNF-複合材作成のスケールアップ（コロナ禍のためマレーシアとの交流が困難であり未達）

##### ② 研究題目 2 の当初計画では想定されていなかった新たな展開

研究活動 2-1：当初はマレーシア側から学生が渡日して大型二軸押出機の操作を学び、操作する予定だったがコロナの蔓延により渡日ができないため、代替案として大型二軸押出機の操作に長けている企業を探し、操作、メンテナンス、洗浄といった操作に必要な一連の作業をレクチャーしてもらい、その内容を記録して、今後の活動に備えることにした。

研究活動 2-2：コロナの蔓延により大型二軸押出機の輸送が困難なため未達である。代替案として、今後は日本側とマレーシア側の両面で状況を見て企業へ提供するサンプルの作成を行う予定である。

##### ③ 研究題目 2 の研究のねらい（参考）

研究活動 2-1：2 軸エクストルーダーによる CNF・生分解性コンポジットの大規模生産を可能にすることを目的とする。

内容：本研究グループの指導により ZoepNano 社が本研究期間内に、使用する 2 軸エクストルーダーのペレット生産スペックの 50% 生産性を達成する。

研究活動 2-2：目的：研究活動 2-1 で生産されたペレットの評価を、UPM を通じて Texchem Polymers 社と Polycomposites 社に依頼し、改善可能なコメントを得ることを目的とする。

内容：Texchem Polymers 社と Polycomposites 社のコメントに対して改善されたペレットを作成し、同社の満足を得る。

#### ④ 研究題目 2 の研究実施方法（参考）

研究活動 2-1：株明菱に依頼し大型二軸押出機に関する操作、メンテナンス、洗浄についてレクチャーを受けた。更に、その様子を録画し、参加できなかつた人も後日に学習できるようにした。

研究活動 2-2：担当の安藤が本学のマレーシア拠点 MSSC のディレクターであるため、毎週行っている会議の中でマレーシアの状況を常に追跡して、市内の状況や UPM の状況確認を行つた。

#### (4) 研究題目 3：「生分解性試験用 CNF を使つた生分解性コンポジットの生分解性評価」

研究グループ A（リーダー：前田憲成）

★研究題目 3 の当初の計画（全体計画）に対する当該年度の成果の達成状況とインパクト

研究活動 3-1 汚泥や土壤などの微生物源を用いた CNF・生分解コンポジットの生分解挙動の解析及び生分解性メカニズムの解明をする。

令和 2 年度においては、ベンチマークとなるデータを得るため、既存のプラスチック（PP、PE、PET）を対象に下水汚泥を微生物源とした生分解性評価をはじめに進めてきた。具体的には、調製した 5% (w/t) 汚泥に、三種類のフィルム状のプラスチック（PET、PP、PE）を別々に入れ、それぞれ好気性条件にて培養し、生菌数の変化、プラスチックの物性の変化を調べた。プラスチック存在下における各汚泥サンプル中の生菌数を比較したところ、コントロールと同程度の生菌数が計測されたため、プラスチック自身あるいはプラスチック由来分解物に毒性はないことが分かった。一方、プラスチックフィルムの重量はほとんど変化が見られなかつた。SEM を用いてフィルムの表面を観察すると生分解が起こつていると思われる変化は見られなかつた。また、XRD による結晶化度の測定したところ、各プラスチックで少しではあるが、結晶の度合いが低下していることがわかつた。

次に、基幹原料となるセルロースに対しても、下水汚泥を微生物源として、微生物分解、メタン生成などについても取り組んだところ、著しく分解活性が低いことがわかつたため、研究活動 3-3 で計画したセルロース材料を分解促進できる微生物群集の育種に取り組んだ。

また、安藤研究室から提供をうけたポリ乳酸ベースのプラスチック（室温で作成：PLA room、液体窒素で作成：PLA nitrogen）、ポリ乳酸とナノセルロースのコンポジット材料（室温で作成：composite room、液体窒素で作成：composite nitrogen）に対する下水汚泥中の微生物による分解を 37°C と 55°C で比較したところ、図 1 の通り、55°C の条件で、すべての材料の構造が弱くなることが明かとなつた。

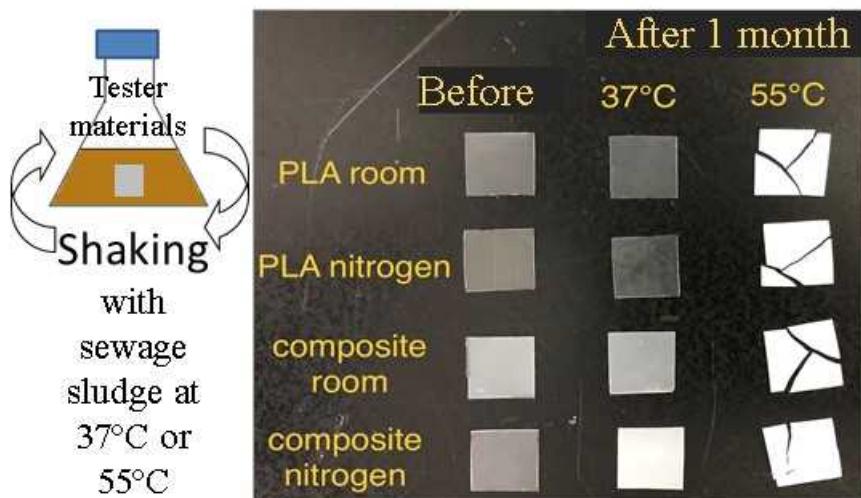


図1. 下水汚泥中に添加したポリ乳酸およびポリ乳酸－ナノセルロース材料に対する37℃と55℃での分解の様子

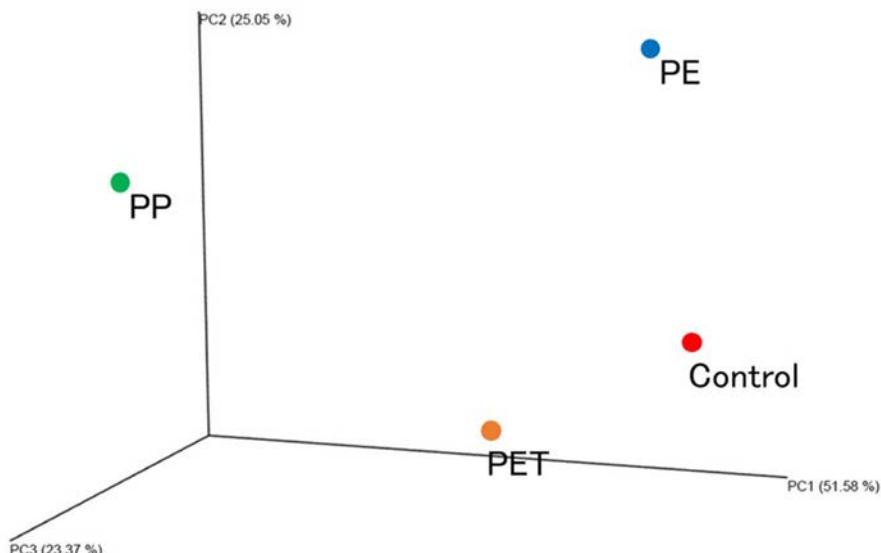


図2. 下水汚泥中に添加した各種プラスチックの1か月培養後の $\beta$ 多様性変化  
(プラスチックを添加していないControlと比べて、PP、PE、PETを添加した下水汚泥では、 $\beta$ 多様性の結果から、異なった菌叢を有することを示している)

研究活動3－2 CNF・生分解性コンポジットの生分解過程における微生物多様性変化の調査。

研究活動3－1で行った「既存のプラスチック(PP、PE、PET)を対象とした下水汚泥を微生物源とした生分解性評価」の検討において、培養1か月後のサンプルからDNAを抽出し、次世代シーケンサーMiSeqを用いて菌叢解析を行うと、サンプル間に菌の割合や $\alpha$ 多様性・ $\beta$ 多様性に変化が見られ、プラスチックの添加により菌叢が変化することが分かった(図2)。

また、セルロース系材料などの微生物分解を担う有用菌の探索は、複合系微生物という複雑な反応が起こっている事象を、单一系というシンプルな系で理解していく上で重要な取り組みであ

るが、難培養性細菌群を分離できないという決定的な課題がある。そこで、分離できる細菌群を拡充していく取り組みを進めるために、通常の細菌培養の培地として使われる LB 培地、その培地を希釈した培地、そもそも多種多様な難培養性細菌群が豊富に存在している下水汚泥を用いた培地を用いて、形成するコロニーの多様性評価を行なった。

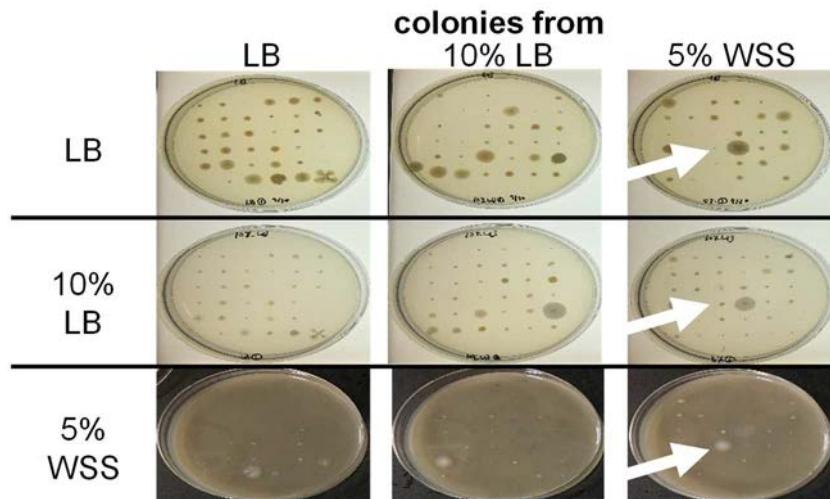


図3. LB 寒天培地、LB 希釈寒天培地、下水汚泥寒天培地に形成したコロニーの違い  
(各培地で特異的に形成するコロニーの存在が明らかとなった)

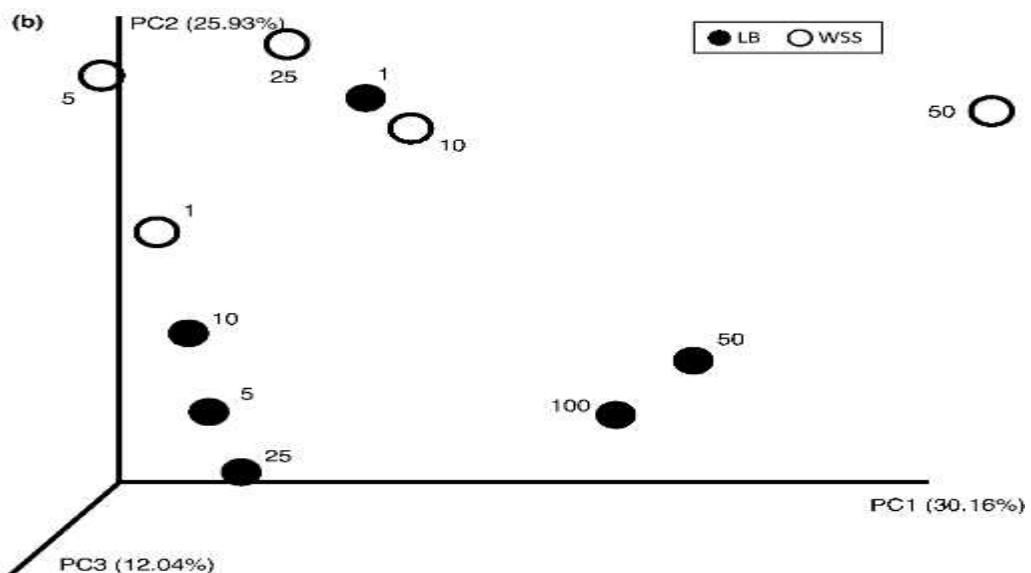


図4. LB 寒天培地、LB 希釈寒天培地、下水汚泥寒天培地に形成したコロニーの  $\beta$  多様性の違い(各培地、各濃度で形成するコロニーの種類が異なることが分かった)

その結果、図3の白矢印のところのように、各培地で特異的に形成コロニーの存在が明かとなり、その  $\beta$  多様性（サンプル間の多様性の違いを示す指標）も大きく、寒天培地の成分の違い、濃度の違いで異なることが明かとなった（図4）。(Applied Microbiology and Biotechnology に掲載)

### 研究活動3－3 CNF・生分解性コンポジット材料を分解促進する微生物群集育種および機能解明。

研究活動3－1で取り組んだ「基幹原料となるセルロースを原料とした微生物分解」の検討において、著しく分解活性およびメタン変換効率が低いという課題が明らかとなつたため、セルロースを原料に、効率的にメタンガスを生成できる微生物群集の育種に取り組んだ。はじめに、下水汚泥中の微生物群では、セルロース分解菌が少ないとこと、セルラーゼの活性が低いことが分かったため、カルボキシメチルセルロースを添加した系、添加していない系で、下水汚泥の馴養を行なった。その結果、キシメチルセルロースを添加していない下水汚泥を馴養した場合、セルロースの分解活性が顕著に増加すること、セルロースからのメタン生成も向上することが明かとなった（図5）。

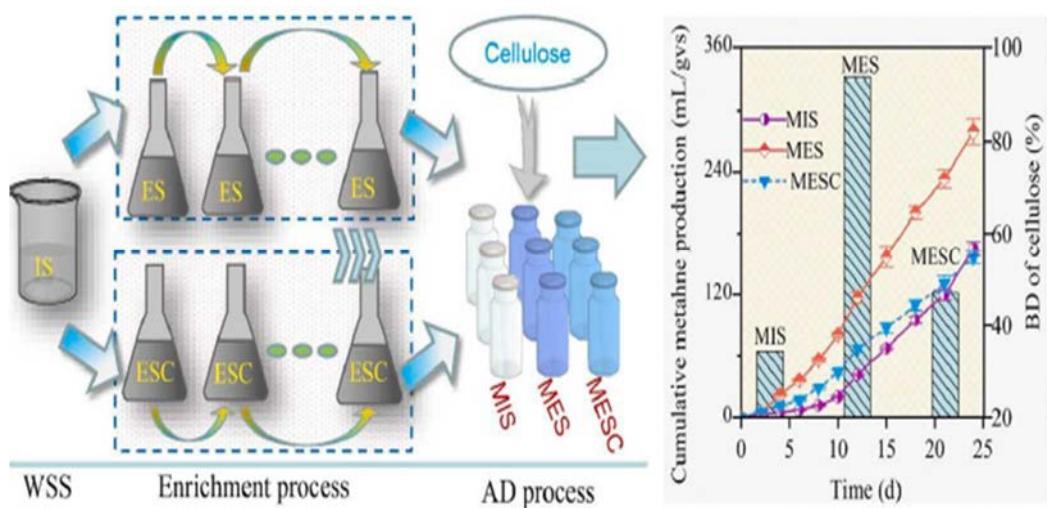


図5. セルロース材料分解促進のための下水汚泥の馴養とそれによるセルロースからの効率的メタン変換

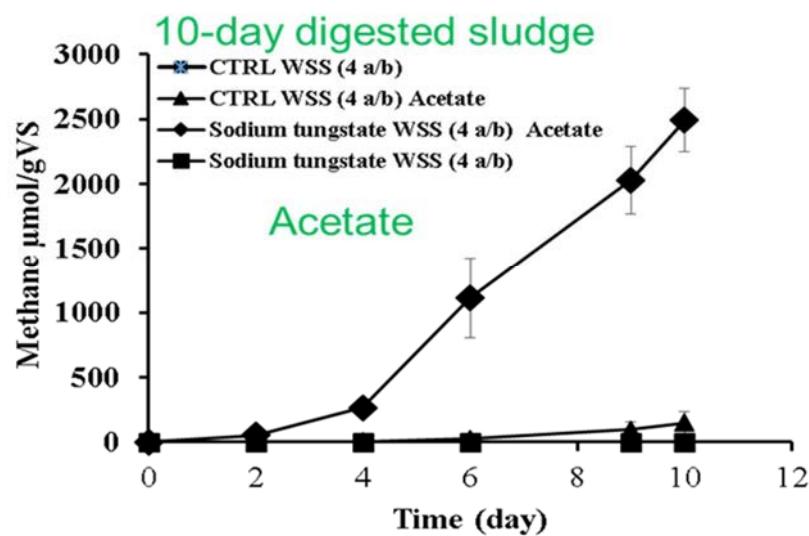


図6. 下水汚泥の嫌気消化における酢酸資化性メタン生成活性におけるタンゲステン酸ナトリウムの効果検証

次に、下水汚泥の嫌気消化を促進するために、タンゲステン酸ナトリウムの効果を調べたところ、メタン生成が向上することがわかつた。その促進メカニズムを調べたところ、酢酸からのメタン生成経

路となる酢酸資化性メタン生成反応が、タングステン酸ナトリウムによって活性化することが明かとなった（図6）。

#### ★研究題目3の当初計画では想定されていなかった新たな展開

研究活動3-3は、マレーシアのPOMEと油やし空房のコンポストプロセスにも絡めて活動を行う予定であったが、新型コロナ感染症の流行の現状では、マレーシア現地で実施が困難な状況となっている。マレーシア国内でも研究活動が再開された場合は、マレーシアサイドの共同研究者と遠隔で活動に取り組むか、日本国内で生ごみなどからのコンポストを代替として活動に取り組む予定としている。

#### ★研究題目3の研究のねらい（参考）

研究活動3-1：汚泥や土壌などの微生物源を用いたCNF・生分解コンポジットの生分解挙動の解析及び生分解性メカニズムの解明をする。

内容：本研究の研究期間内に、実験結果に基づくCNF・生分解コンポジットの生分解挙動の解析及び生分解性メカニズムを明らかにする。

研究活動3-2：CNF・生分解性コンポジットの生分解過程における微生物多様性変化を調査する。

内容：本研究の研究期間内に、CNF・生分解性コンポジット分解に微生物グループ変化を明らかにし、その分解に関わる菌叢の関わり合いを明らかにする。

研究活動3-3：CNF・生分解性コンポジット材料を分解促進する微生物群集育種および機能解明。

内容：本研究の研究期間内に、CNF・生分解性コンポジット材料を分解促進する微生物群集育種および機能解明を行い、分解の促進に関与する微生物群の解明と役割を明らかにする。

#### ★研究題目3の研究実施方法（参考）

研究活動3-1：結果のところに記述

研究活動3-2：結果のところに記述

研究活動3-3：結果のところに記述

## II. 今後のプロジェクトの進め方、および成果達成の見通し（公開）

現在（2021年5月30日）、新型コロナウイルス感染症の世界的蔓延し、我が国は緊急事態宣言、マレーシアは完全ロックダウンの状況下にあり、往来どころか社会経済活動に大きな制限と規制がかかった状況にある。すなわち、変異株の強毒化により、感染の質と強度の点で増え悪化している状況である。一方、光明と考えられるのはこの疾病に対するワクチンが開発され、欧米を中心に顕著な効果が認められており、我が国においても集団接種が開始され、現在、医療従事者、高齢者を中心に少なくとも800万人以上の1回目の接種が終わっており、収束に対する希望はある。しかし、税金から大きな研究費をいただいている本事業においては、実質の日本・マレーシアの交流ができない状況においても、着実に事業の進捗を計れる方法を検討しておく必要がある。具体的には、リモート会議によるお互いの進捗の確認と問題点、課題の共有と解決策の検討とお互いの研究拠点における実行のサイクルを、できる限り継続していく必要がある。これはロックダウン中のマレーシアにおいても、在宅勤務によって実行することは可能である。一方、緊急事態宣言やロックダウンの解除後は、個々に割り振られた研究計画をそれぞれが着実に進捗させ、Plan・Do・Check・ActionのPDCAサイクルをもちいたリモート共同研究をする必要がある。

これまで、本報告書で述べてきたように、我々のプロジェクトにおいては、日本において、明らかにせねばならない課題は着実に取り組み、成果が出つつある。マレーシアにおいてもCNFの製造と利活用については、これまでの方法を用いて進められている。特に、本事業の基礎になったSATREPS事業の成果を用いてスピンドルしたCNF製造会社、ZOEPNANO社は以下の同社のカタログにある他社との価格比較において、現状でもかなり競争力があるが、本事業の成果を用い、飛躍的に生産性が上がれば、圧倒的な価格優位性が期待できる。

**Table 1. Competitive price of nanocellulose producers**

<b>Producer</b>	<b>Source</b>	<b>Price range / kg</b>	<b>Process</b>	<b>Capacity (tons/year)</b>
American Process, U.S.	Agriculture residues	\$ 100 - \$ 500	SO <sub>2</sub> fractionation	130
Borregaard Chemcell, Europe	Bleached cellulose	\$ 100	Proprietary	1,100
Daicel Finechem, Japan	Purified pulp	\$ 100 - \$ 500	Mechanical treatment	120
Daio Paper Corporation, Japan	Bleached hardwood	\$ 100 - \$ 500	Mechanical treatment	110
Nippon Paper Industries, Japan	Wood pulp	\$ 500 - \$ 1000	TEMPO carboxylate	990
Sugino Machine, Japan	Plant	\$ 1000	Oblique collision	50
University of Maine, U.S.	Wood pulp	\$ 100 - 1000	Mass colloid grinder, TEMPO	300
ZoepNano Sdn. Bhd, Malaysia	Oil palm waste	\$ 150 - \$ 250	Mechanical treatment	-

引用：2021年ZoepNano社会社カタログ

さらに、九州工業大学においては、基本的に、生分解性CNFコンポジットペレットの製造技術開発に

目途を立てており、評価サンプルをつくる準備はできている。緊急避難的な策ではあるが、マレーシアで関心表明がある2社、あるいは、今後ともマレーシアサイドは積極的に関心表明企業を開拓する意向を表明しており、事業終了までに社会実装の道筋をつけることは十分に期待できる。

### III. 社会実装に向けた課題とそれを克服するための工夫、教訓など（公開）

#### (1) プロジェクト全体

- ・研究成果を社会実装につなげるための課題、現状および課題解決に向けて取り組んだこと。

本事業の基礎になった ASTREPS 事業の成果がしっかりとしていたことにより、次のステップである社会実装に直接的につながる課題は、すでに明らかになっていた。たとえば、本学においては、安藤准教授が SATREPS の終了後 SATREPS の際の方法である、気相重合プロセスを取り除く改善に取り組み、より容易に CNF コンポジットを開発する手段として、ここで挙げた特許の基になる発明をしていた。また、前田准教授も同じく SATREPS の際に、マレーシア側研究者との共同研究により、微生物多様性の先進的な研究成果を多数上げていたため、今回の CNF 生分解性プラスチックの分解挙動の研究にも遅滞なく取り組むことができたし、この難しい時代でも本事業を通じてレベルの高い雑誌への論文掲載もできている。これはすなわち、国際的な PDCA サイクルの持続的な継続の賜物と考える。また、マレーシアのヒダヤ教授も、SATREPS の成果であるパームバイオマスからの CNF 製造技術を用いてスピンオフ会社を設立した。特に、安藤准教授とヒダヤ教授の成果は我が国の今年度ものづくり白書で紹介される予定である。これら実績が挙げることができた理由は、つくづく、海外センターパートとの持続的で継続的な協働ができていたことと思う。

- ・各種課題を踏まえ、研究プロジェクトの妥当性・有効性・効率性・インパクト・持続性を高めるために実際に行った工夫。

場合によっては、日本、マレーシアの事務方も含め、問題がおこるごとに、オンライン会議を開き、粘り強く解決策を検討したこと。マレーシア側（マレーシアプトラ大学：UPM）には、UPM Consultancy & Services Sdn. Bhd. (UPM CS) という成果の社会実装を担う独立法人があり、その協力が得られていることが大きいと思う。また、同じく、日本側にも九工大に URA と呼ぶオープンイノベーション推進機構・産学連携本部という部門があり、安藤准教授はこの部門の所属でもあり、研究者と産学連携推進の本学のキーパーソンでもある。単なる偶然ではあるが、我々の研究チームは各大学の社会実装への窓口と連携を取りやすい状況にある。

- ・プロジェクトの自立発展性向上のために、今後相手国（研究機関・研究者）が取り組む必要のある事項。

九州工業大学とマレーシアプトラ大学（UPM）の協力関係は、白井教授とモハメッド・アリ教授の1994年に始まる師弟関係から始まり、現在は UPM に本学のサテライト・オフィスがあるほど緊密な関係がある。UPM は 2018 年以降、QS200 以内の大学であるが、これには SATREPS の成果として出版された 100 報以上のレベルの高い共同研究論文が少なからず貢献をした。これは白井・アリ教授の 25 年継続している共同研究の賜物と思う。したがって、UPM と、共同研究先が九工大に限れば、上記事項はこれまでの実績に溺れることなく、新たな時代の変化（例えば、今回のコロナ禍）に機動的に対応できる準備が必要である。

- ・諸手続の遅延や実施に関する交渉の難航など、進捗の遅れた事例があれば、その内容、解決プロセ

ス、結果。

通常の年と比較すると、現在ほどあらゆる手続きに時間がかかり、研究そのもの獲得にも時間がかかる時代はない。まさに、現在のコロナ禍がほとんどの場合、原因と思う。将来、このようなパンデミックが起きないよう、起こっても対応が取れるよう、衛生防疫の分野の研究と成果の社会実装が渴望される。

(2) 研究題目 1 :「CNF・生分解性コンポジット（ポリカプロラクトン、ポリ乳酸など）の強度等、樹脂性能の検証」

研究グループ 1 （安藤）

- ・相手国側研究機関との共同研究実施状況と問題点、その問題点を克服するための工夫、今後への活用。

研究題目 1 に関しては、日本側での研究であったため相手国研究機関への情報提供と報告が主であった。実施内容や方法については ZOOM などのオンライン会議ツールを使って報告を行っている。課題としては、本実験で使用する中型二軸押出機の選定から購入までのプロセスに時間がかってしまったことだ。これは、単純に緊急事態宣言によって大学の入札過程も含めて各事業者の動きが遅れてしまったことに起因する。その問題点を克服するために、発注後に製造される新品の製品を購入するのではなく、中古の機種を探してもらい、それをリノベーションした製品の購入を行うことで時間の短縮を図った。しかし、それでも予定よりも 3 ヶ月程度の遅れが出た。今回、最初の緊急事態宣言が出た際にはすぐに収まると思われていた COVID-19 の蔓延は、現在でも収まる様子が見えない。したがって、それを念頭に計画を立案、実施していくことが今後は重要だと考える。

- ・実証試験や社会実装に向けた取り組みにおける教訓、提言等。

今回は実証試験や社会実装に向けて既にある技術を本課題に合わせて最適化することが重要な課題である。しかし、最適化というのは使用目的が示されない状況であるが、社会実装に向けて使用する材料や装置は想定されているため、その仕様に向けた最適化を進めている。製造法や方法の最適化を進めている中で、相手国側の出口となる企業と相手国パートナーだけでなく日本側でも交渉を行い、どんな用途を欲しているのか、あるいは製品に対する要求事項を事前に調査することは重要である。

(3) 研究題目 2 :「2 軸エクストルーダーによるポリカプロラクトン等、生分解性 PLA との CNF のコンポジットペレットの作製条件の検証と生分解性試験用試料の作製」

研究グループ 2 （安藤）

- ・相手国側研究機関との共同研究実施状況と問題点、その問題点を克服するための工夫、今後への活用。

本課題では、本学の技術を相手国であるマレーシアに本学が所有している大型二軸押出機を移設して実証試験、社会実装するために、その押出機や製造法を学ぶためにマレーシアより研修生を受け入れる予定であった。しかし、COVID-19 の世界的な蔓延により来日することが困難になった。さらには、当初はこんなに長期化、深刻化するとは想像していなかったため、一段落したら来日してもらうつもりでいた。しかし、長引くことがわかつてから本学が所有している大型二軸

押出機と同シリーズを利用している樹脂コンパウンド会社を見つけて、本学の学生及び教員に向けた大型押出機の操作法のレクチャーとそのビデオ撮影の承諾も含めて依頼を行った。研修できないことを克服するために、本学にいる留学生と共に教員も操作を学習し、マレーシアへ渡航した際に操作法のレクチャーができるようにした。また、ビデオ撮影することで、操作に曖昧な部分がないように記録するだけでなく、マレーシア人研修生も日本に来れなくても学習できるようにした。

また、研修で来れない場合の対策した上で大型二軸押出機はマレーシアへ移設する計画を進めているが、押出機がマレーシアに移設したあとに操作できない事も考えられる。幸いにも購入した中型二軸押出機で最適化した条件はスケールアップの際にも大きな影響を与えない特長がある。そこで、COVID-19 の長期化も想定した上で、マレーシアで企業用サンプルを作成できないことも考えられるため、マレーシアで作成する予定であったマレーシアの企業向けのサンプルを日本でも中型二軸押出機を使って準備する計画も考えている。

- ・実証試験や社会実装に向けた取り組みにおける教訓、提言等。

実証試験や社会実装に向けて企業用試験サンプルをマレーシア国内で作成する予定であったが、COVID-19 の長期化により事業期間中にマレーシア国内で製造できないことも想定される。したがって、そのように最悪のことも想定した上で日本国内でできることを計画し、事業期間後も本来の目的を継続することを想定した上で計画し実施することが重要である。

#### (4) 研究題目 3 :「生分解性試験用 CNF を使った生分解性コンポジットの生分解性評価」

##### 研究グループ 3 (前田)

- ・相手国側研究機関との共同研究実施状況と問題点、その問題点を克服するための工夫、今後への活用。

マレーシアプトラ大学の共同研究者である Mohd Zulkhairi 上級講師、Norhayati 准教授とは、これまでメール、Zoom などの遠隔ツールを活用して、研究活動を進捗させてきた。特に、研究活動 3-3 は、マレーシアの POME と油やし空房のコンポストプロセスを生分解コンポジット材料の微生物分解に活用する取り組みを計画していたが、現時点ではその計画は実行できそうにない。マレーシアでの研究活動の再開の動向は随時確認しつつ、日本国内で実施できる生ごみなどを活用したコンポストを代替策としている。その成果とノウハウをもとに、マレーシアでの原料でのコンポストに応用する予定としている。

- ・実証試験や社会実装に向けた取り組みにおける教訓、提言等。

実際にマレーシアの埋め立て地での嫌気消化を想定した実証試験に取り組む必要がある。また、セルロース系材料の微生物分解、メタン生成を促進するためのプロセスの開発も社会実装に向けた重要である。

#### IV. 日本のプレゼンスの向上 (公開)

上記した UPM CS は UPM の技術移転の本部である。その General Manager である Mohd Kamil Yusoff 博士より、たいへん期待しているし、事業の成功のために全力で支援するとの意向を示されている。一般的にマレーシアは、多くの企業に日本の企業にあるような研究所がなく、UPM のような大きな国立大学に社会実装のための研究を委託することが多い。今回、その部署のトップに認識され、協力表明があったことは、本事業成果のマレーシアでの社会実装の実現においては、現実的にたいへん大きいと思う。

#### V. 成果発表等【研究開始～現在の全期間】(公開)

#### VI. 投入実績【研究開始～現在の全期間】(非公開)

#### VII. その他 (非公開)

以上

## V. 成果発表等

### (1)論文発表等【研究開始～現在の全期間】(公開)

#### ①原著論文(相手国側研究チームとの共著)

年度	著者名,論文名,掲載誌名,出版年,巻数,号数,はじめ－おわりのページ	DOIコード	国内誌/ 国際誌の別	発表済 /in press /acceptedの別	特記事項(分野トップレベル雑誌への掲載など、 特筆すべき論文の場合、ここに明記ください。)
2020	Airil Farhan Mohd Udaiyappan, Hassimi Abu Hasan, Mohd Sobri Takriff, Siti Rozaimah Sheikh Abdullah, Toshinari Maeda, Nurul Asyifah Mustapha, Nazlina Haiza Mohd Yasin, Noor IrmaNazashida Mohd Hakimi, "Microalgae–bacteria interaction in palm oil mill effluent treatment", Journal of Water Process Engineering, 2020, Vol. 35, Article No. 101203	10.1016/j.j wpe.2020.1 01203	国際誌	発表済	Q1ジャーナル、Field-weighted citation impactの値が4.74
2020	Mohd Huzairi Zainudin, Nurul Asyifah Mustapha, Toshinari Maeda, Norhayati Ramli, Kenji Sakai, Mohd Ali Hassan, "Biochar enhanced the nitrifying and denitrifying bacterial communities during the composting of poultry manure and rice straw", Waste Management, 2020, Vol. 106, pp. 240–249	10.1016/j. waste.2020. 03.029	国際誌	発表済	Q1ジャーナル、Field-weighted citation impactの値が1.77
2020	Nurhasliza Zolkefli, Norhayati Ramli, Nur Shaidatul Lyana Mohamad-Zainal, Nurul Asyifah Mustapha, Mohd Zulkhairi Mohd Yusoff, Mohd Ali Hassan, Toshinari Maeda, "Alcaligenaceae and Chromatiaceae as pollution bacterial bioindicators in palm oil mill effluent (POME) final discharge polluted rivers", Ecological Indicators, 2020, Vol. 111, Article No. 106048	10.1016/j.e colind.2019 .106048	国際誌	発表済	Q1ジャーナル

論文数  
うち国内誌  
うち国際誌  
公開すべきでない論文

3 件  
0 件  
3 件  
0 件

#### ②原著論文(上記①以外)

年度	著者名,論文名,掲載誌名,出版年,巻数,号数,はじめ－おわりのページ	DOIコード	国内誌/ 国際誌の別	発表済 /in press /acceptedの別	特記事項(分野トップレベル雑誌への掲載など、 特筆すべき論文の場合、ここに明記ください。)
2020	Qili Zhu, Lichun Dai, Yanwei Wang, Furong Tan, Chenghan Chen, Mingxiong He, Toshinari Maeda, "Enrichment of waste sewage sludge for enhancing methane production from cellulose", Bioresource Technology, 2021, Vol. 321, Article No. 124497	10.1016/j.b iotech.202 0.124497	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2020	Kazuo Yamamoto, Shotaro Toya, Sarah Sabidi, Yuki Hoshiko, Toshinari Maeda, "Diluted Luria–Bertani Medium vs. sewage sludge as growth media; comparison of community structure and diversity in the culturable bacteria", Applied Microbiology and Biotechnology, 2021		国際誌	accepted	Q1ジャーナル

論文数  
うち国内誌  
うち国際誌  
公開すべきでない論文

2 件  
0 件  
2 件  
0 件

## (3)他の著作物(相手国側研究チームとの共著)(総説、書籍など)

年度	著者名,タイトル,掲載誌名,巻数,号数,頁,年	出版物の種類	発表済/in press/acceptedの別	特記事項
2020	Nurhasliza Zolkefli, Siti Suhaillah Sharuddin, Mohd Zulkhairi Mohd Yusoff, Mohd Ali Hassan, Toshinari Maeda, and Norhayati Ramli, "A review of current and emerging approaches for water pollution monitoring", Water, 2020, Vol. 12, No. 12, Article No. 3417	総説	発表済	
著作物数 公開すべきでない著作物		1 件	0 件	

## (4)他の著作物(上記③以外)(総説、書籍など)

年度	著者名,論文名,掲載誌名,出版年,巻数,号数,はじめ～終わりのページ	出版物の種類	発表済/in press/acceptedの別	特記事項
2020	白井義人、第11章アブラヤシ産業の未利用エネルギー利用、アブラヤシ農園問題の研究(2021)、林田秀樹編著、晃洋書房、240-259	書籍	発表済	
著作物数 公開すべきでない著作物		1 件	0 件	

## (5)研修コースや開発されたマニュアル等

年度	研修コース概要(コース目的、対象、参加資格等)、研修実施数と修了者数	開発したテキスト・マニュアル類	特記事項

V. 成果発表等

(2) 学会発表【研究開始～現在の全期間】(公開)

①学会発表(相手国側研究チームと連名)(国際会議発表及び主要な国内学会発表)

年度	国内/ 国際の別	発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、年月日等	招待講演 /口頭発表 /ポスター発表の別
			招待講演 0 件 口頭発表 0 件 ポスター発表 0 件

②学会発表(上記①以外)(国際会議発表及び主要な国内学会発表)

年度	国内/ 国際の別	発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、年月日等	招待講演 /口頭発表 /ポスター発表の別
			招待講演 0 件 口頭発表 0 件 ポスター発表 0 件

## V. 成果発表等

### (3) 特許出願【研究開始～現在の全期間】(公開)

#### ① 国内出願

	出願番号	出願日	発明の名称	出願人	知的財産権の種類、出願国等	相手国側研究メンバーの共同発明者への参加の有無	登録番号 (未登録は空欄)	登録日 (未登録は空欄)	出願特許の状況	関連する論文のDOI	発明者	発明者所属機関	関連する外国出願※
No.1													
No.2													
No.3													

国内特許出願数 0 件  
公開すべきでない特許出願数 0 件

#### ② 国外出願

	出願番号	出願日	発明の名称	出願人	知的財産権の種類、出願国等	相手国側研究メンバーの共同発明者への参加の有無	登録番号 (未登録は空欄)	登録日 (未登録は空欄)	出願特許の状況	関連する論文のDOI	発明者	発明者所属機関	関連する国内出願※
No.1													
No.2													
No.3													

国外特許出願数 0 件  
公開すべきでない特許出願数 0 件

## V. 成果発表等

### (4)受賞等【研究開始～現在の全期間】(公開)

#### ①受賞

年度	受賞日 (例:2020/4/1)	賞の名称	業績名等 (「○○の開発」など)	受賞者	主催団体	プロジェクトとの関係 (選択)	特記事項

0 件

#### ②マスコミ(新聞・TV等)報道

年度	掲載日 (例:2020/4/1)	掲載媒体名	タイトル/見出し等	掲載面	プロジェクトとの関係 (選択)	特記事項

0 件

V. 成果発表等

(5) ワークショップ・セミナー・シンポジウム・アウトリーチ等／実証試験等【研究開始～現在の全期間】(公開)

①ワークショップ・セミナー・シンポジウム・アウトリーチ等

年度	開催日 (例:2020/4/1)	名称	場所 (開催国)	参加人数 (相手国からの招聘者数)	公開/ 非公開の別	概要
2020	2020/12/7-11	TECHINNOVATION 2020	Singapore	3(1)	公開	

1 件

②実証試験等

年度	実施期間(実施日)	実証項目	実施場所	概要
2020	①2020/10/20-21 ②2020/12/26-27 ③2021/3/4-5 ④2021/3/9-10	樹脂ペレット作成	グリーンマテリアル研究センター	二軸押出機を使用し樹脂ペレットを作成
2020	2021/2/8-26	生分解性コンポジット材の嫌気発酵	前田研究室	嫌気発酵プロセスによる試験材料のメタン変換
2020	2021/3/8-26	生分解性コンポジット材の生分解性評価	前田研究室	ジャーファーメンターによる試験材料の微生物分解

3 件