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

終了報告書

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： 白井義人

所属 九州工業大学大学院生命体工学研究科・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

(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)

以下、報告書の赤字新型コロナウイルス感染症（以下コロナ禍と記載）の影響事項を示す。

研究題目・活動	R3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 コンポジット作成および評価 CNF 分散の条件設定 ←→ CNF コンポジットの大量生産 →			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	大型二軸押出機による条件設定（コロナ禍でマレーシアから来日できず、未着） 大型二軸押出機操作・整備訓練（コロナ禍で日本人とマレー人留学生） ←→ 大型二軸押出機のUPM移送を完了する ←→ PalmCNF 入手、複合材の作成 →			まとめ ←→
1. 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 ←→	分解度評価 ←→	メカニズム解明 ←→	まとめ ←→
	サンプル回収 ←→	MiSeq 分析、解析 ←→	メカニズム解明 ←→	まとめ ←→
	菌群の馴養、機能評価 ←→	メカニズム解明 ←→	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 ←→	大型二軸押出機 UPM への輸送 ←→		
渡航活動		(コロナ禍のため中止) マレーシア側の日本での調査・実習 ←→	導入機材の立ち上げ (1人・15日) コロナ禍のため縮減 ←→ 研究コーディネーション (含む国際ワークショップ) (1人・実働20日)	国際ワークショップ ←→

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

令和2年度に続き、令和3年度においても新型コロナウイルスはより以上に猛威を振るい、マレーシアとの共同研究活動については、オンライン活動を除けば、進捗をはかることはたいへん困難で

【終了報告書】【210531】

あった。そのため、相互のリアルな交流ができなかった。その中でもこの2年間、JST シンガポールからのお誘いで2回参加させていただいた TechInnovation 2020 と同 2021 については、数は少なかったが、我々のシーズであるナノセルロースコンポジットに関心のある企業と4社と知り合うことができ、そのうちの1社はUPMとの共同研究を打診してくれている。

また、安藤准教授は、海外渡航が難しい現状に鑑み、国内での活動を活発化し、以下記載されているように、極めて多くの企業に成果を周知させている。

さて、本事業申請段階において、我々は以下のマイルストーンを設定した。なお、以下、赤字表示は新型コロナウイルス感染症（以下コロナ禍）の影響を受けた計画とその対応を記載した。

・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、あくまでも、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、以下記載の通り、現在、日本、マレーシアで本事業の成果に関心を示す企業は多数あり、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）

SDGs 目標のいくつかは、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つになると考える。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

(2) 研究課題 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（安藤准教授）研究活動1は2つの研究活動からなる。それぞれのマイルストーンと一緒に概略説明する。

研究活動1-1 生分解性樹脂に対する CNF 分散性の制御

マイルストーン 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

マイルストーン 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。

これら成果については、後段で安藤准教授が詳細に説明しているが、1-1 課題については開発技術の特許化が進み、国内展示会等により数十社の企業からの問い合わせを受け、有償でサンプルの提供を依頼した企業もあり、将来的な社会実装が実感できる。また、PLA と CNF のコンポジットの場合、マイルストーンである150%を超える結果も見られ、大量生産できる実機にて安定的には引張り強度が125%強化される複合材ペレットが得られており、方法の実用化が大いに期待できる。

(3) 研究課題 2

事業規模2軸エクストルーダーによるポリカプロラクトン等、生分解性プラとの CNF のコンポジットペ

【終了報告書】【210531】

レットの作製条件の検証と生分解性試験用試料の作製（安藤准教授）研究課題 2 は 2 つの研究活動からなる。それぞれのマイルストーンと一緒に概略説明する。

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

マイルストーン 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 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 Nexrgreen 社に依頼し、改善可能なコメントを得る。

マイルストーン Nextgreen 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。

本課題については、コロナ禍の蔓延により、予定したような進捗を得ることはできなかった。そもそも、本年春先にマレーシアから研究者を招聘し、九州工大エコタウン実証研究エリアに設置された大型二軸押出機の研修を受けてもらい、産業実機である本機械をマレーシア・プトラ大学に設置し、現地での大量生産とマレーシアの地元企業との共同研究を活性化させ、マレーシアにおける生分解性 CNF コンポジットの需要を喚起することを計画したが、特に、令和 3 年度東京オリンピック前後のコロナ禍によるパンデミックにより、海外との交流は実質的にすべて停止した状況になってしまった。現在（令和 4 年 1 月）においても、コロナ禍が収まる気配は全くない。現在の所、大型二軸押出機はマレーシア・プトラ大学に到着しているが、稼働できる状況になく、この課題 2 については進捗できなかった。ただし、マレーシア・プトラ大学では、こちらとのオンラインでの共同研究により、購入したウェット・ディスク・ミルを活用し、研究課題 4 の事業性評価のためのセルロース・ナノファイバー（CNF）の事業性評価のための所要エネルギー等の見積もりに必要なデータを得ることができた。

なお、今後、事業終了（令和 4 年 3 月 31 日）までに白井研究代表が大学と JST の許可を得て、渡航準備に入っており、2 月中旬までにはマレーシアに渡航し現地での共同研究に携わる予定である。

(3) 研究課題 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を行う。（前田准教授）研究課題 3 は 3 つの研究活動からなる。それぞれのマイルストーンと一緒に概略説明する。

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。

マイルストーン 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の作業仮説を提案する。

今回、ポリ乳酸、ポリカプロラクトン、ポリヒドロキシ酪酸とセルロースのコンポジット材料の生分解試験およびメタン生成試験を行なった。その結果、生分解性およびメタン生成がなかった既存のプラスチック（PE, PP, PET）と比べて、試験したコンポジット材料では分解性があること、メタン生成に利用されていることが分かった。

特にポリ乳酸とポリヒドロキシ酪酸系のコンポジット材料は 20%程度の分解が見られた。（ポリ乳酸系材料の分解にはリパーゼ活性が寄与している可能性がある。）ポリ乳酸のみではメタン生成への

利用ができなかったが、紫外線照射によりメタンが生成されるようになったことから、実際の環境中では光と微生物の両方の働きにより、分解が促進する可能性が示唆された。

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。

マイルストーン 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につき、同分野の専門家（例えば、九州大学大学院農学研究院酒井謙二教授）と十分な討論ができるレベルのそれら役割を説明できるようにする。

微生物群で分解されない3種の既存プラスチック、試験した生分解コンポジットでそれぞれ、生分解反応およびメタン生成反応で、それぞれ特徴となる菌叢に変化していることが分かった。既存のプラスチックでは微生物群集の種の多様性が低下しているのにも関わらず、試験したコンポジット材料では、種の多様性がコントロールと同程度または増えていることから、今回試験した材料の環境中への負荷は小さいことが分かった。

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。

マイルストーン 研究活動 3-2 と同じ。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につき、同分野の専門家（例えば、九州大学大学院農学研究院酒井謙二教授）と十分な討論ができるレベルの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。

セルラーゼ活性と PLA 分解活性が低い課題を解決するために、有用菌群を探索するための効果的な培地の検証評価、微生物群集の馴養によるセルラーゼ活性の向上化とメタン生成促進、オリゴ乳酸分解菌 HT3 株の分離に成功した。

(4) 研究活動 4. 事業性評価

現在 NextGreen 社は EFB (Empty Fruit Bunch) 起源のパルプを製造している。価格は 90USD/トン前後である。これを原料にして CNF を製造する場合、後に詳述するように、まず、取り出したパルプを 2% 水中に懸濁し、ウィンド・ディスク・ミルのような機器により微細に破砕し、セルロース繊維をナノ化する。その後、噴霧乾燥のような乾燥物の変性少ない乾燥法により乾燥させる。これら固形物の CNF を用い、ここで開発した方法により生分解性樹脂と CNF、シリカ粒子のコンポジット樹脂の製造工程を検討した。その結果、後述するようにシリカ粒子の価格次第で十分に事業性があることが確認された。

・成果目標の達成状況とインパクト等(詳細説明)

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)

【終了報告書】【210531】

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

本研究では、各々が水素結合により凝集しやすいセルロースナノファイバー（CNF）を親水性で CNF と馴染みやすいシリカ微粒子（Si 粒子）と混合することによって、CNF 単体での凝集を阻害し、かつ分散しやすい状態を簡便に作り上げる技術を使う。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により押出機などで容易に利用できるようにするため産業上の利点は非常に大きい。“樹脂混合用ハイブリッドフィラー及びその製造方法”を独自技術として特開 2020-128475 に出願している（図 1-1-1）技術を用いて各種樹脂への最適化を進め、PLLA や PCL 樹脂内への CNF の凝集を抑制したフィルムが得られることを確認した。また、今年度内に出願特許の権利化は本学知財部門を通して進めている。

➤ 研究活動 1-2：CNF コンポジットの物理強度の増強を図る

これまでの結果から、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ており、CNF が樹脂中に十分に分散されていることがわかった。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 PLLA 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た。

そこで、本実験ではこのフィラー作成技術を用いて 3 種の分解性樹脂である L-ポリ乳酸（PLLA）、ポリヒドロキシ酸（PHA）、ポリカプロラクトン（PCL）への繊維強化材料とすべく、二軸押出機による熔融混練法による条件を検討した。CNF 含有生分解性複合樹脂の合成を本研究 PJ で購入した中型二軸押出機に適用できる条件設定を進めた。

本 PJ では大型二軸押出機をマレーシアに輸送して商業化ベースで生産することを目的にしており、今回使用している中型二軸押出機は大型二軸押出機へ条件を転用できる利点を持つ。各樹脂に対して CNF と Si 粒子の比率、および樹脂に対するフィラーの含有量、シリカ粒子の大きさによる影響について検討を行った。

CNF と Si 粒子の比率(PLA, PCL, PHB)

最初に、バイオマスベースプラスチックである L-ポリ乳酸（PLLA）を母材に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、溶融混練を行った。

● L-ポリ乳酸 (PLLA)

ハイブリッドフィラーの作成条件を表 1-1-1 に示す。小スケールにより最適と判断した Si 粒子と CNF の比率 87.5wt%:12.5wt%以外に 8;2, 6;2, 4;2, 2;8, CNF のみのフィラーを樹脂に対して 10wt%加えて複合材の作成を試みた。溶融混練条件は中型二軸押出機を用いて 150rpm、チャンバー温度は樹脂投入口から投入口から 100, 190, 200, 200, 190, 180°Cに設定し、複合材のペレタイズを行った。

得られた各複合材のペレットの熱分解特性を TG により評価を行った。Si 粒子および CNF の添加量による PLLA の熱分解挙動に大きな変化は現れなかった。この結果、溶融混練による各成分の樹脂への大きな影響はないことがわかった。

得られた複合材ペレットを使って熱プレスによりシート整形を行い、ダンベル型の引張試験片の作成を行った。得られた 5 試験片を用いて引張試験を行い、得られた結果を平均することで結果を得た。引張試験により得られた引張強度、弾性率、ヤング率を図 1-1-3 に示す。

その結果、引張強度は Si 粒子と CNF 比率 87.5wt%:12.5wt%と 60wt%:20wt%が高い値を示し、Si 粒子の比率が低くなると徐々に引張強度および最大伸び率も低くなっていく傾向が見られるため、樹脂とフィラーの界面接着性が低下していることが推察される。一方で、一般的には伸び率が上がるとヤング率は低下する傾向にあるが Si 粒子と CNF 比率が 60wt%:40wt%までは、それ以降と比較して相対的に伸び率もヤング率も向上している。これは、ある一定の比率まではフィラーと樹脂界面の接着性が高く、硬くて粘り強い材料へ変

表 1-1-1 サンプル作成条件

サンプル番号	サンプル構成				
	Matrix [90wt%]	Filler [10wt%]	Filler構成		
			SiO ₂ (wt%)	CNF (wt%)	
E046-1-2	PLA	SiO ₂ +CNF	87.5	12.5	
E046-1-4			80	20	
E046-1-5			60	40	
E046-1-6			40	60	
E046-1-7			20	80	
E046-1-8			0	100	
E046-1-91			-	-	-

図 1-1-2. Thermal degradation behavior of PLLA/CNF composites

図 1-1-3. The results of tensile test for PLLA/CNF composites a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

化しており、繊維による補強効果が得られているものと推察できる。

次に、シリカ粒子の大きさ、およびフィラーの含有量について検討を行った。複合材ペレットの混練条件は前述と同じで、試験片の準備も同様に行った。シリカ粒子によるハイブリッドフィラーの効果を検討するために粒径の異なる Si 粒子を選択し、ハイブリッドフィラーを準備した (表 1-1-2)。また、準備したハイブリッドフィラーの樹脂に対する含有量を 10, 20, 30wt%と変化させて、機械的強度への影響を観察した。引張試験の結果を図 1-1-4 に示す。

表 1-1-2 用いたシリカ粒子の特性

Si 粒子グレード	平均粒子径 (μm) レーザー法	pH (5%スラリー)	細孔容積 (mL/g)	比表面積 (m ² /g)
SYLOSPHERE C-1504	4.5	6.2	1.5	520
SYLOSPHERE C-1510	10	6.2	1.5	520

フィラー含有量に対する機械強度の変化は粒径に関わらず同じ傾向を示し、フィラーの含有量が増加するに伴い、引張強度は低下し、伸びも低下している。またヤング率は向上していることからフィラーと樹脂の界面接着性が低下し、充填剤が多くなっているために靱性がなくなっていることがわかる。粒径の違いに着目すると、粒径が小さい方が引張強度が高い傾向を示した。これは、粒子の表面が小さい方が表面積も大きく、CNFの表面と相互作用しやすいということが考えられる。その結果、シリカ粒子/CNFの相互作用がより強く引き起こされ、分散性の向上につながっているものと考えられる。

● ポリヒドロキシ酸 (PHA)

ハイブリッドフィラーの配合条件は前述と同じである(表 1-1-1)。また、熔融混練条件は中型二軸押出機を用いてチャンバー温度は樹脂投入口から投入口から 90, 180, 190, 190, 180, 170℃に設定し 150rpm で熔融混練を行い、PHA 複合材のペレタイズを行った。

得られた各複合材のペレットの熱分解特性を TG により評価を行った(図 1-1-5)。Si 粒子および CNF の添加量による PHA の熱分解挙動に大きな変化は現れなかった。この結果、熔融混練による各成分の樹脂への大きな影響はないことがわかった。

図 1-1-4. The results of tensile test for PLLA/CNF composites with size effect and composition a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

得られた複合材ペレットを使って熱プレスによりシート整形を行い、ダンベル型の引張試験片の作成を行った。得られた 5 試験片を用いて引張試験を行い、得られた結果を平均することで結果を得た。引張試験により得られた引張強度、弾性率、ヤング率を図 1-1-6 に示す。

その結果、引張強度は PLLA と同様に Si 粒子と CNF 比率 87.5wt%:12.5wt% と 60wt%:20wt%が高い値を示し、Si 粒子の比率が低くなると徐々に引張強度および最大伸び率も低くなっていく傾向が見られるため、樹脂とフィラーの界面接着性が低下していることが推察される。一方で、一般的には引張強度が上がると伸び率は低下する傾向にあるが Si 粒子と CNF 比率が 60wt%:20wt%までは、それ以降と比較して相対的に伸び率も向上している。これは、ある一定の比率まではフィラーと樹脂の界面接着性が高いために繊維による補強効果が得られているものと推察できる。また、興味深い点は PLLA と比べてヤング率が PHA の場合は PLLA と比べて影響を受けている点である。

次に、PHA に対してもシリカ粒子の大き

図 1-1-5. Thermal degradation behavior of PHA/CNF composites

図 1-1-6. The results of tensile test for PHA/CNF composites a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

さ、およびフィラーの含有量について検討を行った。複合材ペレットの混練条件は前述と同じで、試験片の準備も同様に行った。前述と同様にシリカ粒子によるハイブリッドフィラーの効果を検討するために粒径の異なる Si 粒子を選択し、ハイブリッドフィラーを準備した。また、準備したハイブリッドフィラーの樹脂に対する含有量を 10, 20, 30wt%と変化させて、機械的強度への影響を観察した。引張試験の結果を図 1-1-7 に示す。

フィラー含有量に対する機械強度の変化は粒径に関わらず同じ傾向を示し、フィラーの含有量が増加するに伴い引張強度は低下し、伸びも低下している。またヤング率は一部(80:20(C1504)87.5:12.5)を除き向上していることからフィラーと樹脂の界面接着性が低下し、充填剤が多くなっているために靱性がなくなっていることがわかる。粒径の違いに着目すると、興味深い点は PLLA と異なり粒径はそれほど物性に大きな影響を与えていない点である。これは、Si 粒子が PHA 中では PLLA よりも、CNF の分散性に強く影響を与えていることが示唆される。図 1-1-6 で示されるように CNF のみを PHA に混練した場合でも顕著な物性の低下は起こっていないことから、相対的に PHA の方が PLLA よりも CNF に対する界面接着性が良いと思われる。

図 1-1-7. The results of tensile test for PHA/CNF composites with size effect and composition a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

● ポリカプロラクトン (PCL)

ハイブリッドフィラーの配合条件は前述と同じである (表 1-1-1)。PCL の融点は他の樹脂と比べて低いので熔融混練条件は、二軸押出機を用いてチャンバーの温度は樹脂投入口から 110, 120, 120, 120, 110, 100°Cに設定し 50rpm で熔融混練を行い、PCL 複合材のペレタイズを行った。

得られた各複合材のペレットの熱分解特性をTGにより評価を行った。Si粒子およびCNFの添加量によるPCLの熱分解挙動に大きな変化は現れなかった。この結果、熔融混練による各成分の樹脂への大きな影響はないことがわかった。

得られた複合材ペレットを使って熱プレスによりシート整形を行い、ダンベル型の引張試験片の作成を行った。得られた5試験片を用いて引張試験を行い、得られた結果を平均することで結果を得た。引張試験により得られた引張強度、弾性率、ヤング率を図1-1-9に示す。

その結果、PLLAやPCLと異なる結果を得た。比較対象となる母材PCLに比べてハイブリッドフィラーを加えた際には引張強度が著しく低下している。Si粒子とCNF比率を変えてCNF比率が高くなると60wt%までは引張強度が低下していくが、80wt%およびCNF単独になると再び強度が上がっていくことが分かった。また、伸び率を見ても引張強度は低下していくにも関わらず、伸び率も低下しており母材となるPCLと大きく異なっており、非常に脆くなっていることがわかる。結果として、ハイブリッドフィラーとPCLとの界面接着性が低い

図 1-1-8. Thermal degradation behavior of PHA/CNF composites

図 1-1-9. The results of tensile test for PCL/CNF composites a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

ことが示唆された。

次に、前述と同様にシリカ粒子によるハイブリッドフィラーの効果を検討するために粒径の異なる Si 粒子を選択し、ハイブリッドフィラーを準備した。また、準備したハイブリッドフィラーの樹脂に対する含有量を 10, 20, 30wt%と変化させて、機械的強度への影響を観察した。引張試験の結果を図 1-1-10 に示す。

PCL の場合、フィラー含有量が多くなると引張強度が低下し、伸び率も低くなる傾向が現れた。伸び率の低下とともにヤング率が上昇しており、ハイブリッドフィラーを加えていくことで硬くて脆い性質になることがわかる。

次に、Si 粒子の大きさの影響に目を向けると大きな粒子の方が機械的性質を低下させていた。これは、PLLA の際に考察したと同様に小さい粒子の方が CNF との相互作用による影響の方が大きく、逆に Si 粒子が大きくなると樹脂との界面接着性の阻害が起こっていると考えられる。これらの結果から、今回のハイブリッドフィラーとは PCL が馴染まないという結果が出た。

小型二軸押出機では PCL の融点が低いために混練の際に液状になるのを防ぐために反応時間を短くしている。しかし、中型二軸押出機は混練距離が長いために途中で液状になるため、出口付近の温度を低くして回収している。おそらく、液状になった際にフィラーが樹脂と分離してしまうために効果が得られないのでは無いかと推測する。PCL の複合材の作成条件を最適化するために中型二軸押出機の混練条件を何度か検討したが、期待できる結果は得られなかった。

実験題目 1 の総括

本研究では、3 種類の分解性樹脂 PLLA , PHA , PCL に対して二種類のシリカ粒子を使って作成されたハイブリッドフィラーを使って CNF 含有複合材料の作成を小型二軸押出機の試験を経て、中型二軸押出機にて複合材ペレットの作成を行った。得られた各ペレット樹脂から作成した試験片を用いて引張試験を行い、樹脂とフィラーの界面接着性を評価した。非常に興味深いのは、小型のラボ用二軸押出機を用いた場合と中型二軸押出機で得られた結果の傾向が合致していないことが分かった。小型二軸押出機では PLLA はハイブリッドフィラーを用いた複合材はフィルム作成を行うと CNF が綺麗に分散しているが、引張強度自体は PLLA 単独の方が大きいという結果であった。しかし、中型二軸押出機を使うと PLLA に対してハイブリッドフィラーは他の 2 種類に比べてフィラーが樹脂中へ良く分散されており、引張試験の

図 1-1-10. The results of tensile test for PCL/CNF composites with size effect and composition a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

結果から繊維の補強効果も観察された。その一方で、PCL の場合はその逆であり、小型二軸押出機の結果の方が中型二軸押出機で作成された複合材の引張試験の結果より良かった。これは、PCL の融点の低さと粘度が一つの原因だと思われる。混練中に液状になってしまうためにフィラーとの分離が引き起こされ、強度の低下が引き起こされたと思われる。混練条件の設定も重要であるが、樹脂自体の熱特性も複合材のパフォーマンスに大きく影響することが分かった。

今回は想定されている社会実装に向けて本技術を最適化することが重要な課題である。しかし、その一方では、作成した複合材の使用目的が示されない状況であるため、本来は、相手国側の出口となる企業と相手国パートナーが重要となる。

② 研究題目 1 の研究のねらい

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。

結果：各樹脂に対するハイブリッドフィラーの適用性および樹脂との相性を評価することで、一部の樹脂に対して繊維補強効果を確認することができた。

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。

結果：ハイブリッドフィラーによる PLLA および PHA に対する引張強度の強化は観察されたが、混練条件によって振り幅が大きく、安定して 150%以上の増強は得られなかった。これまでに得られた条件にて最も大きな差が出た場合 (PLA 40.54MPa, PLA/Si/CNF 70.22MPa) で算出すると PLLA にて 173%の補強効果を得られている。曲げ試験については、コロナによる人力的、時間的な問題から行っていない。

③ 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

(4) 研究題目 2：「2 軸エクストルーダーによるポリプロラクトン等、生分解性プラとの 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 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(株)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が、コロナ禍のためにマレーシアでの実証実験は困難であった。

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活かすことで、複合材のペレタイズ化に成功した (実験題目 1-2 参照)。

② 日本側でも研究題目 2 の当初計画では想定されていなかった新たな展開

【終了報告書】【210531】

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習、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。昨年度の活動を活かし、中型二軸押出機によるサンプル作成および各種樹脂への条件の最適化を進めた（実験題目 1-2 参照）。

マレーシア側の企業が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が不明であったため、大型機への条件移行ができる中型二軸押出機を使って各種条件により複合材の作成および引張試験による CNF の補強効果を実験題目 1 にて検討を行った。結局、COVID-19 の長期化により、マレーシアで企業用サンプルを作成できない可能性が高かったため、マレーシアで作成する予定であったサンプルを日本でも中型二軸押出機を使って準備した。

コロナの影響がなくなった際にマレーシアでサンプル作成が容易にできるように、マレーシアの ZoepNano 社が販売する EFB から作られた CNF (EFBCNF) を購入し、日本で市販されている CNF との比較を行った。

また、マレーシア企業からの評価は難しいため、本プロジェクトで活用している技術を展示会等でアピール、また展示会で興味を持った国内企業へサンプル提供を行い、評価してもらった。

● EFBCNF の効果

EFB CNF は 3 種の分解性樹脂 (PLLA , PHA , PCL) に対して中型二軸押出機による熔融混練から CNF 複合材料を作成し、引張試験による評価を行った。EFBCNF は CNF のみ、そして、Si 粒子を使ってハイブリッドフィラーにして樹脂へ添加した。混練条件は実験題目 1-2 に示す各樹脂への混練条件と同じである。

図 2-1-1 に PLLA を母材とする CNF 複合材の引張試験の結果を示す。図の左から Si/EFBCNF, EFBCNF, PLLA のみ, Si/CNF, CNF との PLLA 複合材の結果を示している。PLLA に対して 2 種類の繊維 (EFBCNF と CNF) 共にハイブリッドフィラー化することで母材である PLLA 単独よりも高い引張強度を示した。

図 2-1-2 The images of PLLA composites film with CNFs

しかし、興味深いことに国内で購入した CNF 単独では引張強度の低下を示すが、EFBCNF はそれ自身が PLLA に対する補強効果を示した。

しかし、引張試験用の試験片を作成するために熱プレスを行う際に EFBCNF では樹脂の変色が顕著に観察された。また、ハイブリッドフィラーにした際はその変色が若干抑えられているがフローマーク (flow mark) と呼ばれる、成形品の表面に熔融樹脂が流れた跡の模様が観察された。

次に、PHA と EFBCNF との複合化をおこなった。条件は前述と同じである。PHB では PLLA とは異なる挙動が見られた。PHB に対する Si/EFBCNF の補強効果は観察されず、EFBCNF のみを熔融混練して得られた複合材の方が高い引張強度と伸び率を示した。その一方で、Si/CNF は他の PHA 複合材に比べ引張強度は大きな値を示したが、EFBCNF との PHA 複合材の方が伸び率は大きかった。したがって、通常はフィラーを加えると伸び率は低下し、ヤング率は大きくなるのだが、比較的に PHA/EFBCNF は他の複合材に比べて、PHA 単独のヤング率に近い値を示している。何かしらの繊維の補強効果が出ているのでは無いと思われる。

しかし、熱プレス時のフィルムを PLLA と同じように観察すると図 2-1-4 に見られるように EFBCNF と PHA の複合材は熱により茶色に変色が顕著であった。また、PLLA と同様に表面に熔融樹脂が流れた跡の模様が観察された。

図 2-1-3 The results of tensile test for PHA/CNFs composites. a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

図 2-1-4 The images of PHA composites film with CNFs

最後に、PCL と EFBCNF および国内市販の CNF との比較を行った。その結果、CNF に比べハイブリッドファイバー化した EFBCNF だけでなく、EFBCNF 単独で溶融混練した PCL 複合材が高い引張強度を示した。さらに、ハイブリッド化した EFBCNF との複合材よりも繊維単独の方が複合材として引張強度が高かった。しかし、この場合も PCL 単独の方が高い引張強度を示すことがわかった。

次に、他の材料と同様に熱による着色に関する影響を観察した。他の材料と同様に PCL でも EFBCNF による着色が観察された (図 2-1-6)。

図 2-1-6 The images of PCL composites film with CNFs

図 2-1-5 The results of tensile test for PCL/CNFs composites. a) tensile strength, b) elongation, c) young force rate.

これまでに、3種の分解性樹脂を用いて EFBCNF との複合材の評価を国内市販の CNF と同様に行った。その結果、CNF と単純に比較すると EFBCNF の方が引張強度への影響が大きいことがわかった。しかし、その一方で熱による変色が観察される。これは、EFBCNF に不純物としてリグニンやヘミセルロースが残存していることが考えられる。そこで、国内市販の CNF と EFBCNF を赤外スペクトルにより比較を行った。両材料のスペクトルに大きな違いが現れなかった。TG による熱分解挙動の観察でも EFBCNF と CNF との違いで複合材の熱分解挙動に大きな違いがなかった。したがって、EFB から抽出された CNF の繊維自身の性質の違い、例えば結晶化度、繊維長や繊維幅が影響を与えていることが考えられる。

③ 研究題目 2 の研究のねらい

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。(コロナ禍で実施できず)

将来的な大規模生産に向けて、中型二軸押出機を使用して種々の分解性樹脂とハイブリッドファイラーおよびパーム繊維から抽出した EFBCNF の特性を明らかにした。

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。(コロナ禍で実施できず)

コロナ禍によりマレーシア国内でのサンプル作成および評価が難しいことから、国内企業向けの展示会や説明会に参加し、本プロジェクトで使用している特許技術の紹介を行なった。対面にて北九州市で行われた展示会エコベンチャーメッセ 2021 では企業、団体が 18 社、オンラインで行われた新技術説明会では 76 名の参加、イノベーションジャパンでは 5 社から問い合わせがあった。そのうち、ハイブリッドファイラーについては徳島県の企業へ有償でサンプル提供を行い、社内での実験結果により、樹脂に対する分散性は、良好な評価結果が得られており最終結果を年度内に報告してもらう予定になっている。また、CNF 複合材料に関して 5 件の問い合わせがあり、そのうちの 2 件は来年度から工業化に向けて共同研究をする予定である。他 3 社は現在テーマ内容を検討しており、現在打ち合わせを行なっている段階である。

④ 研究題目 2 の研究実施方法

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、参加できなかった人も後日に学習できるようにした。

マレーシアから EFBCNF を輸入し、中型二軸押出機を使って複合材の作成を行った。

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 の状況確認を行った。

マレーシアの状況を毎週確認した上で、マレーシアで実施が難しいと判断して国内企業へ技術紹介を行い、数 10 社が興味を示した。

(5) 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」

【終了報告書】【210531】

研究グループ B (リーダー：前田憲成)

① 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。

(1) 既存プラスチックおよびセルロースの生分解検討

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であるポリプロピレン (PP)、ポリエチレン (PE)、ポリエチレンテレフタレート (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行なった。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った。SEM を用いてフィルムの表面を観察すると生分解が起こっていると思われる変化は見られなかった。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った。

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、セルロース分解酵素の活性が低く、著しく分解活性が低いことがわかった。そのため、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。

図 3-1. 下水汚泥中に添加したポリ乳酸およびポリ乳酸-ナノセルロースコンポジット材料に対する 37°C と 55°C での分解の様子

(2) ポリ乳酸ベースのコンポジット材料の生分解および嫌気発酵の検討

安藤研究室から提供をうけたポリ乳酸 (PLA) のみの材料 (室温で作成 : PLA room、液体窒素で作成 : PLA nitrogen)、PLA とナノセルロース (CN) のコンポジット材料 (室温で冷却 : composite room、液体窒素で冷却 : 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

【終了報告書】【210531】

ところ、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った（図 3-1）。さらに、次の材料についても、55°Cにおける生分解性を比較した。使用した材料は、S3: PLA (100%)、S4: PLA (97%) + CN ファイバー (1.8%) + SiO₂ (1.2%)、S5: PLA (98%) + CN クリスタル (1.3%) + SiO₂ (0.67%)、S6: PLA (97%) + CN クリスタル (1.8%) + SiO₂ (1.2%)、S7: PLA (90%) + CN クリスタル (6.0%) + SiO₂ (4%)、S8: PLA (97%) + CN ファイバー (3%)の6つである。

図 3-2. 下水汚泥中に添加したポリ乳酸およびポリ乳酸-ナノセルロースコンポジット材料に対する 55°Cで 2 か月間後の微生物分解度と酵素活性調査

図 2 に示したように、各材料における分解度を調査したところ、PLA のみである S3 および PLA (90%) + CN クリスタル (6.0%) + SiO₂ (4%)コンポジットである S7 で、2 か月間の培養で、それぞれ 14%および 21%の重量減少が観測された。各サンプルにおける 3 つの加水分解酵素であるリパーゼ、プロテアーゼ、セルラーゼの酵素活性を調べたところ、それぞれのサンプルで分解酵素の活性に違いが見られた。試験材料の分解が顕著であった S3 と S7 では他のサンプルと比べて、リパーゼ活性が高く、材料の分解に寄与している可能性が示唆された。

次に、これらのコンポジット材料のうち、S3、S4、S6 およびろ紙 (Filter paper) を用いて、これらの材料の分解における汚泥濃度の影響を調べた。その結果、微生物濃度が高い 25%を用いた際に、材料の分解度が高いことが分かった（図 3-3）。一方、2.5%および 0.25%の汚泥濃度では、コンポジット材料の分解度は同程度となった。

図 3-3. ポリ乳酸およびポリ乳酸-ナノセルロースコンポジット材料の 55°Cでの微生物分解における汚泥濃度の影響 (Filter paper を用いた実験では 8 日間の培養で評価した)

次に、PLA と酢酸セルロースのコンポジット材料 (WA-13、WA-15、WA-16 : 組成は酢酸セルロース (80%) + PLA(20%) + Sn (2 mL)) は同じであるが作り方が異なる材料、E-16 : 酢酸セルロース (80%) + PLA(20%)) を用いて、37°C で 2 ヶ月間好氣的に培養させた結果、WA-13、WA-15、WA-16 は 6~8% 程度分解された。培養後の pH はいずれのサンプルも pH 4.3~4.5 となっており、pH 低下が分解度の停滞の要因であると考えられる。また、微生物源 (下水汚泥) を接種していない水の条件でも 6~9% 程度の分解が見られ、pH も 3 程度となっているため、このコンポジット材料は微生物群によってほとんど分解できないことが明らかとなった。

上記で用いた PLA 系コンポジット材料を用いて、嫌気発酵を行ない、メタン生成の検討を行なった。はじめに、S3、S4、S5、S6、S7、S8 に加えて、S9 (PLA (90%) + CN ファイバー (1.5%) + SiO₂ (8.5%)) の試験材料を下水汚泥に添加して、37°C および 55°C で嫌氣的に培養し、メタンガスを時間変化で測定した。37°C の条件ではほとんど材料の重量減少は見られず、55°C では 8% 程度重量が減少した。この結果に相関して、図 3-4 に示したように、37°C での嫌気発酵では、メタン生成がいずれのサンプルで同程度であった。その一方、55°C の条件では、S5 のサンプルではメタン生成量が 2.6 倍程度増加したものの、誤差が大きく、繰り返し数回実験を行なっても同様な結果が見られた。この嫌気発酵サンプル中の有機酸分析を行なった結果、いずれのサンプルにおいても比較的酢酸が多く検出されたが、PLA コンポジット材料ではプロピオン酸の濃度が嫌気発酵の時間経過とともに増加することがわかった (図 3-5)。

図 3-4 ポリ乳酸およびポリ乳酸-ナノセルロースコンポジット材料の 37°Cおよび 55°Cでの嫌気発酵によるメタン生成

図 3-5 ポリ乳酸およびポリ乳酸-ナノセルロースコンポジット材料の 37°Cおよび 55°Cでの嫌気発酵中の有機酸の動態

PLA系コンポジットからのメタン生成効率が低いため、試験材料に対する紫外線照射の効果を調べた。これらの材料が環境中に拡散した場合には、紫外線に照射されることも想定できる。はじめに、PLA以外にもPP、PE、PETの材料を1×2 cmのサイズにカットし、研究室にある紫外線ランプ下で21日間反応させた。図3-6に示したように、PLA材料において21日後には約3 mg程度の重量減少が確認されたが、その他のプラスチックでは重量減少は見られなかった。また、走査型電子顕微鏡で紫外線照射後の表面を観察したところ、紫外線照射7日目の試料では表面形態が変化していることが明らかとなった。

図 3-6 ポリ乳酸およびその他の既存プラスチック材料に対する紫外線照射の効果

図 3-7 紫外線照射処理したポリ乳酸を用いた 37°Cでの嫌気発酵と pH 変化

図 3-8 酢酸セルロースーポリ乳酸コンポジット材料を用いた嫌気発酵によるメタン生成

図 3-7 は紫外線処理した PLA を試験材料として、37°Cで嫌気発酵した際に生成したメタン量およびその際の pH 変化である。紫外線照射をした PLA では2ヶ月後以降、未処理のサンプルよりも若干ではあるが、メタン生成量が増加することがわかった。また嫌気発酵中の pH は紫外線照射処理をしたサンプルでは8日目に pH 5.6 付近まで低下していたが、その後の pH は同じような値を示した。

次に、PLA と酢酸セルロースのコンポジット材料、WA-13、WA-15、WA-16、E-16 を用いて、37°Cで2ヶ月間嫌気発酵を行なった。その結果、嫌気条件では WA-13、WA-15、WA-16 の重量は7~9%程度減少し、コントロールと比べて40日以降、WA-13、WA-15、WA-16 の条件で、顕著にメタン生成が増加していることが分かった (図 3-8)。

(3) ポリカプロラクトンまたはポリヒドロキシ酪酸ベースのコンポジット材料の生分解および嫌気発酵の検討

次に、ポリカプロラクトン (PCL)、PCL に CN ファイバーを4%混合したもの (PCL CNF 4)、PCL に CN ファイバーを1.2%混合したもの (PCL CNF 1.2)、およびポリヒドロキシ酪酸 (PHB)、PHB に CN ファイバーを4%混合したもの (PHB CNF 4)、PHB に CN ファイバーを1.2%混合したもの (PHB CNF 1.2) の試験材料に対する37°Cで1ヶ月間の微生物分解の検討を行なった。表3-1の通り、PCL 材料ではいずれも2%程度の分解であったが、PHB 材料では PHB 単体では7.5%の分解であるのに対し、PHB CNF 4 では16%の重量減少が確認された。試験したいずれの材料も、一か月後の pH は4付近まで低下していた。

表 3-1. ポリカプロラクトンおよびポリヒドロキシ酪酸ベースのコンポジット材料の微生物分解

	Weight decrease(mg)	Rate of decrease(%)	pH(before culture)	pH (1 months)
Ctrl	-	-	6.5	4.2
PCL	2.4(±0.3)	2		3.9
PCL CNF 4	3.4(±0.5)	2.5		4.1
PCL CNF 1.2	2.8(±0.3)	2.2(±0.1)		4.1
PHB	7(±1)	7.5(±0.4)		4
PHB CNF 4	18(±3)	16(±1)		4
PHB CNF 1.2	9(±2)	10		4.4

図 3-9 は PHB および PCL を試験材料として、2ヶ月間の嫌気発酵を行ない、材料の変化およびメタン生成の結果を示している。PHB では嫌気発酵後に脱色が見られたのに対し、PCL では茶色に変色していた。また PHB では21%程度の重量減少が確認された一方、PCL では2%弱しか分解されていなかった。この結果に相関して、PHB からのメタン生成量は69%程度増加しているのに対し、PCL では31%の増加であった。PHB の重量減少からメタンへの生成効率を算出したところ、32%程度であった。

図 3-9 ポリカプロラクトンおよびポリヒドロキシ酪酸材料の嫌気発酵によるメタン生成

図 3-10 ポリヒドロキシ酪酸-セルロースコンポジット材料の嫌気発酵によるメタン生成

次に、PHB とセルロースとのコンポジット材料の嫌気発酵を検討したところ、重量が 13%~18% 程度減少し、メタン生成がコントロールと比較して、促進していることが分かった (図 3-10)。微

生物源を添加していない水のみ条件では重量変化は1%以下であることから、下水汚泥中の微生物群によって効率的に PHB コンポジット材料からメタンが生成されていることが明らかとなった。

図 3-11. 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 β 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、 β 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

(1) 既存プラスチックの微生物分解における菌叢変化

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 α 多様性・ β 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 3-11)。PP、PE、PET では微生物分解は見られなかったのに対し、菌叢が変化している点は興味深い。

(2) 各種コンポジット材料の好氣的生分解における菌叢変化

PLA 系コンポジット材料の微生物分解は、37°C ではほとんど起こらないが、図 3-12 に示したように、菌叢は各サンプルにおいて存在する相対割合が異なっていることが分かった。また 55°C の条件では、PLA および PLA コンポジット材料である S3 と S7 で分解度が高いことから、これらのサンプルで存在割合が増える乳酸菌の科である *Carnobacteriaceae* と放線菌門である *Solirubrobacterales* が分解に関与している可能性がある。また、PCL および PCL コンポジット材料においては、PCL 分解菌として知られている *Chitinophagaceae* 科や *Clostridium* 属などの存在割合が多くなっている (図 3-13)。また、PHB および PHB コンポジット材料においても、PHB 分解菌である *Rhodanobacter* 属、および PHB 生成菌である *Acinetobacter* 属の菌群が特徴あるものとして検出されている。

図 3-12. ポリ乳酸およびポリ乳酸—セルロースコンポジットの 37°C および 55°C での微生物分解における菌叢

図 3-13. ポリカプロラクトンおよびポリカプロラクトン—セルロースコンポジットの 37°C での微生物分解における菌叢

図 3-14. 既存プラスチックおよび生分解コンポジット材料の微生物分解における α 多様性（微生物種数：ChaoI 指数として表記）の比較：(A) 既存プラスチック、PET, PP, PE、(B) PLA および PLA コンポジット材料、S3-S8、(C) PCL および PCL コンポジット材料、PCL, PCLC40、PCLC12、(D) PHB および PHB コンポジット材料

これまでの結果の通り、生分解性がなかった既存プラスチックにおいても菌叢がコントロールと比べると変化していることから、分解はないものの、プラスチック成分の違いで作用する微生物種が異なることが分かった。その一方、図 3-14 は、既存プラスチックおよび試験した生分解性コンポジット材料を微生物分解させた際の微生物種数の比較である。既存プラスチックでは微生物種数が減少しているものの、今回試験したコンポジット材料は環境に対して悪影響がないこと、環境負荷は小さいことが示唆された。

(3) 紫外線照射処理材料および各種コンポジット材料の嫌気発酵における菌叢変化

図 3-15 は、紫外線照射処理ありなしの PLA の嫌気発酵中、および PHB と PCL の嫌気発酵中の菌叢の類似度の比較である。プロット間が近ければ菌叢が類似しており、プロット間が離れていれば抗生菌叢が異なることを意味する。PLA を紫外線処理して嫌気発酵した際には、未処理のものと比較して大きく菌叢が変化していることが分かった。また、PCL 材料の菌叢はコントロールのものと類似しているが、PHB 材料の菌叢とは大きく異なっていることが明らかとなった。

図 3-15. 各種試験材料の嫌気発酵後の β 多様性比較

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 から、下水汚泥を微生物群とした場合、セルラーゼ活性が著しく低いため、またポリ乳酸の分解活性も低いため、これらの活性を高める取り組みが必要である。ここでは、コンポジット材料の分解促進として、セルロース分解およびポリ乳酸の分解の双方に着眼して研究活動を行なった。この活動においては、優秀な微生物菌を単一菌として分離していくアプローチ、および複合微生物系として捉え機能を制御していくアプローチで研究を進めた。

(1) 有用菌探索のための各種培養条件における多様なコロニー形成評価

優秀な微生物菌を単一菌として分離していく場合の大きな課題として、難培養性細菌群を分離するというものである。培養が難しいため、コロニーとして有用な菌株を探索できないというものである。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 3-16. 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 3-17 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 β 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 3-16 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らかとなり、その β 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らかとなった (図 3-17)。(Applied Microbiology and Biotechnology に掲載)

(2) 複合微生物系としてセルロース分解活性を高めるための馴養効果の検討

セルロースに対する著しく低い分解活性および低いメタン変換効率を改善するため、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、カルボ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らかとなった（図 3-18）。

図 3-18. 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 3-19. 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グ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、タング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った。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らかとなった（図 3-19）。

(3) オリゴ乳酸分解菌の探索

PLA に対する分解が低い問題を解決するため、オリゴ乳酸を基質として、オリゴ乳酸を資化できる菌株の探索を行なった。通常の PLA の場合は、水溶液中に可溶化させることが難しい。そのた

め、可溶化できる分子量のオリゴ乳酸を使うことで、有用菌の探索ができると考えた。PLA を添加した下水汚泥を 55°C で 2 ヶ月間培養させた後、オリゴ乳酸入り最少培地に塗布し、増殖してコロニーを形成したクローンを選別した。図 3-20 の写真の通り、候補のクローンはオリゴ乳酸ありなしの培地でさらに選別を行ない、オリゴ乳酸が入っていない培地では生育できず、オリゴ乳酸が入っている培地のみで生育できるクローンを探索した。その結果、候補の菌株が 3 つあり、さらに生菌数測定で増殖度が高い菌株を調査したところ、1 株 (No.2) はオリゴ乳酸が存在する場合に高い増殖活性を持つことが分かった。この菌株に対して、16S リボソーム RNA 遺伝子相動性解析を行なったところ、この菌株が *Aeribacillus pallidus* に近縁することがわかり、*Aeribacillus* sp. HT2 株と名付けた。

図 3-20. オリゴ乳酸資化菌株の探索

②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、新型コロナウイルス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。コンポスト内でのコンポジット材料の分解度を評価する予定であったが、それが実現できず、コ

ンポスト内の温度となる 55℃での分解挙動は、研究室内の恒温槽で設定して評価した。また、ポリ乳酸分解促進のために、オリゴ乳酸分解菌株の単離にも試みており、この点も当初計画では想定されていなかった展開である。

② 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。

④ 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

研究題目 4：「事業性評価」

研究グループ A（リーダー：白井義人）

④ 研究題目 4 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

本研究課題の目的は、マレーシアに設置されたウェット・ディスク・ミルの実験データに基づき、EFB 由来のパルプより乾燥 CNF の製造に必要なエネルギーを求め、製造原価を求め、事業性について検討することである。

まず、以下、図 4-1 に UPM に今回導入されたウェット・ディスク・ミルによるパルプからの CNF 製造の写真と必要な電力等をまとめた。

図 4-1. 導入されたウェットミルディスクと CNF 製造風景

この際、運転条件を以下に示す。

表 4-1: 2% セルロース・水懸濁物 から CNF・水懸濁物の製造風景とその結果

パラメーター	実験データ
実験回数	20
懸濁物中の CNF 濃度 (wt.%)	2.0
乾量当たりの生産性 (kg/h)	0.026
1kgCNF 製造あたりの消費電力 (kWh/kg)	50.5
投入セルロース当たりの CNF 収率 (%)	85

上記より、EFB 由来のパルプ（セルロース）から CNF1 kg を製造する際に必要なエネルギーを計算する。まず、パルプ 1 kg から 850 g の CNF が製造できる。すなわち、1 kg の CNF を製造するための原料パルプは 1.18 kg が必要となる。また、CNF は 2% の懸濁液として生産されるので、乾物とするためには、98%

【終了報告書】【210531】

の水分を乾燥させる必要がある。この際、通常噴霧乾燥が採用されている。この際、CNF 製品を 1 kg つくるためには 49 kg の水を蒸発せねばならないので、水の蒸発潜熱と顕熱を考えると、少なくとも 50 kWh のエネルギーが必要である。つまり、この際、パルプから 1 kg の CNF をつくるためには 50.5 kWh のエネルギー（電気）が必要であることが今回分かったので、1 kg の CNF をパルプから作るためにはほぼ 110 kWh のエネルギーが必要になる。

一方、パルプについては、例えば、NextGreen 社が現在販売を計画している EFB (Empty Fruit Bunch) 由来のパルプの販売価格を約 850 USD/トン (0.85 USD/kg) で販売されている。すなわち、パルプから CNF の収率は 85% であるので、1 kg の CNF をつくる原料原価は 1 USD と見込める。

他方、この際必要なエネルギーを仮に電気で購入したとする。現在のマレーシアの産業用電気代はだいたい kWh あたり、0.08~0.09 USD/kWh であるので、110 kWh というのは、コストとして CNF 1 kg つくるのに約 10 USD の電気代を含むエネルギー代が必要になる。ただし、安藤准教授の今回の結果から、生分解性コンポジットに必要なフィラーの量は、概ね、全体で 10%、その内、CNF が 20%、シリカ微粒子が 80% であるので、CNF のコストとしては、CNF 単体で考えれば、1 kg のコンポジットあたり 20 g であるので、コストとしてもコンポジット 1 kg あたり、CNF 20 g、シリカ微粒子 80 g と仮定すると、CNF はセルロースコストがパルプ代 1 USD/kg、ナノ化のためと噴霧乾燥のためのエネルギー代 10 USD/kg であるので、CNF コンポジットの経費は 11 USD/kg となるが、コンポジットに必要な量は 1 kg あたり 20 g であるので、わずか 2% であり、この価格が理由で事業が難しくなることはないと思われる。

一方、シリカ粒子についても、この CNF 原価に近ければ何ら問題はないと思うが、CNF よりも桁違いに高くなると事業性のマイナス要因になることはあきらかである。

ただし、実際、生分解性プラスチックを取り扱っている専門家へのヒアリングから、生分解性プラスチックは、海洋汚染によるマイクロプラスチックビーズ問題が広く知れ渡った 3, 4 年前から、生分解性プラの需要が大きくなり、現在、供給不足の状況で、国内での価格も生物系生分解プラも石油系生分解性プラもそれぞれ 500 円/kg 程度の価格になっており、むしろそのあおりで、汎用樹脂の価格の上昇につながっているとのこと。樹脂価格が一般的に上昇するのであれば、本研究の成果は、さらなる環境付加価値を上げることができるので、将来的な事業化には明るい状況と考えられる。

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）

本研究の研究代表である白井も、これまで25年以上共同研究を続けてきて、共著論文は200報以上出版した共同研究先、マレーシア・プトラ大学のMOHD ALI HASSAN教授も、今年度をもって退任する。しかし、この25年間の共同研究を通じて、多くの優秀な後継者が育っている。すなわち、本事業に関わった日本およびマレーシアの若手研究者の著しい成長や強い繋がりへの継承は大きな成果の一つといえる。九工大においては、今回のプログラムに参加した安藤准教授、40歳そこそこで教授に昇進した前田教授にしても、研究資金の確保についても、研究成果の発表についても、まさに、このaXisプログラム中に大きく成長した研究者である。特に、安藤准教授については、独自に継続して、研究資金を獲得できるようになり、今回の事業終了後も社会実装に向けた活動が続けられることが確信できる。この事業期間中にも、明らかになった成果に基づき、多くの関連企業への共同研究の提案と、成果の社会実装を積極的に働きかけ、技術の知財化を進めていき社会実装に近いものを多く持っている。安藤准教授は、本事業期間は大学の国際・研究推進を司る部門の責任者として大学運営に関わっており、決して研究に集中できる環境ではなかったが、大学の共同研究等を司る部門の所属になっても、決して腐ることなく、むしろ、運営の経験が将来につながるという前向きな態度で、得られた経験を活かして自身の研究活動においても運営の傍らで研究室をマネジメントして、国際連携や企業との共同研究を増やしながらか、大きな成果を上げている。

また、前田教授は、その年齢からすると頭抜けた成果を挙げ、特に、多くの外国人、日本人の博士を輩出している。それらの少なからず者は、本事業の前身であるSATREPSにおける博士、また、現在、本事業に関しても修士、博士が関わっており、大学の教育成果に大いに貢献している。

さらに、マレーシア・プトラ大学（UPM）と本学は、もう25年来の特別な関係があり、そもそも、本事業のUPM側のPLであるアリ教授は、1994年から始まったJICAの博士育成事業において、白井教授の指導で岡山大学から博士を得たことがそもそもの共同研究が始まったきっかけであり、その後、Hidayah Ariffin教授、Mohd Rafein Zakaria准教授、Norhayati Ramli准教授、Mohd Zulkhairi准教授等、本学とUPMから博士を取り、今なお、共同研究者として日本の科学技術の発展に貢献している者は多い。特筆すべきは、Hidayah Ariffin教授は、やはり、40歳そこそこで教授に昇進しており、本事業においても大きな貢献をしてくれている。

さて、成果の社会実装についてであるが、驚いたことに、マレーシアの企業では自ら研究所をもっているところが、日本と比較すると非常に少ない。そのため、そもそもマレーシアの大学は研究コンサルタントがひとつの大きな仕事であり、有価で新技術の事業化を手伝っており、今回の我々の事業もUPMCSという大学の成果の社会実装を任務とする部門を通して本学との契約がなされており、彼らのKPI(Key Performance Indicator)が大学のシーズの社会実装へのアドバイスであるので、本事業終了後においても、マレーシアでの今回成果の社会実装・事業化が期待できる。

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

本事業の代表である白井はマレーシアでのいくつかの事業の社会実装の成功例がある。最も代表的なものは、21世紀に入ってすぐに実施した、地球温暖化防止のための、パームオイル工場の廃液処理事業において、廃液処理池から無為に放出されているメタンガスを火力発電に利用することによ

り、国連の推奨する途上国と先進国の温暖化ガス放出防止の共同事業であるクリーン開発メカニズムを提案し、実際に事業化するだけでなく、相手先の世界最大のパームオイル企業であるフェルダ社に大きな利益をもたらせたことがある。また、SATRESP の成果としてはパームオイル工場の副産物であるパーム果実房から油やしの実を取った後の空房（EFB、カリに富む）とパームオイル廃液の嫌気発酵（廃液処理タンク）で複製する汚泥（リンと窒素に富む）を使って高品質のコンポストをつくり、トレンガンヌ州営会社にその仕組みを社会実装し、EFB と廃液の処理に伴う経費の削減だけでなく、化学肥料の削減による経済性の向上を図ったこともある。

このような成功の原因は、前述したように、マレーシア国内の多くの企業は研究所を持っていないため、大学での研究を信用してくれているというのが一つ。さらに、ルックイースト政策で、マレーシアの人々は日本人に対して我々には理解できない、無条件の信頼をもっていられることが大きいと思う。

(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、生分解性プラとの 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

【終了報告書】【210531】

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おうつもりでいた。しかし、長引くことがわかっ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られなくても学習できるようにした。

また、研修で来られない場合の対策を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を考え、パーム繊維由来のセルロースナノファイバーを輸入して実施した。

- ・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。

COVID-19の影響を受け、渡航が叶わなかったが、VISA発給の際、多くの関係者の支援を受け、何とか年度内に白井研究代表のマレーシア渡航が実現した。現在、大型のエクストルーダーが運転できるよう、調整作業に入っている。

何とか、本事業の期間中に、生分解性 CNF コンポジットの大規模生産につながるよう、現地指導を現在継続中である。

現地で調整中の大型エクストルーダーと白井代表

(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 准教授、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、現地マレーシアでも新型コロナウイルス感染症による活動が規制されたこと、そして日本側研究者のマレーシアへの渡航による現地活動が出来なかったことで、当初の現地での協働活動を想定した取り組みはできなかった。その点は、コンポスト内温度を想定して、55℃付近の温度域での微生物分解およびメタン生成の検討も行ない、実際のコンポスト内で起こると想定される現象を疑似的に検証することで代替した。実際のコンポスト生成プロセスでは、熱を生成し、低温から中温域への変化し、その時間変化の中で微生物叢も変化していることが予想されるため、今回の 55℃での結果と、実際のコンポスト生成過程での

【終了報告書】【210531】

コンポジット材料の分解の結果を比較し、異なる点などを学術的に検証していきたい。

- ・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)

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	Ainil 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.wpe.2020.101203	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.wasman.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, Noor 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.ecolind.2019.106048	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2020	Sharip N.S., Ariffin H., Andou, Y., Shirotsaki Y., Bahrin E.K., Jawaid M., Tahir P.M., Ibrahim N.A. "Process optimization of ultra-high molecularweight polyethylene/cellulose nanofiber bionanocomposites in triple screw kneading extruder by response surface methodology", Molecules, 2020,	doi.org/10.3390/molecules25194498	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2020	Megashah L.N., Ariffin H., Zakaria M.R., Hassan M.A., Andou, Y., Padzil F.N.M. "Modification of cellulose degree of polymerization by superheated steam treatment for versatile properties of cellulose nanofibril film", Cellulose, 2020, 27(13), pp. 7417-7429.	doi.org/10.1007/s10570-020-03296-2	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2020	Yasim-Anuar T.A.T., Ariffin H., Norrahim M.N.F., Hassan M.A., Andou, Y., Tsukegi T., Nishida H. "Well-dispersed cellulose nanofiber in low density polyethylene nanocomposite by liquid-Assisted extrusion", Polymers, 2020, 12(4), 927.	doi.org/10.3390/polym12040927	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Noor Shaidatul Lyana Mohamad-Zainal, Norhayati Ramli, Nurhasliza Zolkefli, Nur Azyani Jamari, Nurul Asyifah Mustapha, Mohd Ali Hassan, Toshinari Maeda, "Zero-emission of palm oil mill effluent final discharge promoted bacterial biodiversity rebound in the receiving water system", Applied Sciences, 2021, Vol. 11, Article No. 10814	10.3390/ap112210814	国際誌	発表済	
2021	Yuya Hashiguchi, Mohd Rafein Zakaria, Toshinari Maeda, Mohd Zulkhairi Mohd Yusoff, Yoshihito Shirai, Mohd Ali Hassan, "Ecotoxicological assessment of palm oil mill effluent final discharge by zebrafish (Danio rerio) embryonic assay", Environmental Pollution, 2021, Vol. 277, Article No.	10.1016/j.envpol.2021.116780	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Noor Shaidatul Lyana Mohamad-Zainal, Norhayati Ramli, Nurhasliza Zolkefli, Nurul Asyifah Mustapha, Mohd Ali Hassan, Toshinari Maeda, "Survivability of Alcaligenaceae and Chromatiaceae as palm oil mill effluent pollution bioindicators under fluctuations of temperature, pH and total suspended solid", Journal of Bioscience and Bioengineering, 2021, Vol. 132, pp. 174-182	10.1016/j.jbiosc.2021.04.014	国内誌	発表済	
2021	Shobanah Menon Baskaran, Mohd Rafein Zakaria, Ahmad Syafiq Mukhlis Ahmad Sabri, Mohd Shamzi Mohamed, Helmi Wasoh, Maeda Toshinari, Mohd Ali Hassan, Ibrahim M. Banat, "Valorization of biodiesel side stream waste glycerol for rhamnolipids production by Pseudomonas aeruginosa RS6", Environmental Pollution, 2021, Vol. 276, Article No. 116742	10.1016/j.envpol.2021.116742	国際誌	発表済	Q1ジャーナル, Field-weighted citation impactの値が2.51
2021	Fatini Mat Arisah, Amirah Farhana Amir, Norhayati Ramli, Hidayah Ariffin, Toshinari Maeda, Mohd Ali Hassan, Mohd Zulkhairi Mohd Yusoff, "Bacterial resistance against heavy metals in Pseudomonas aeruginosa RW9 involving hexavalent chromium removal", Sustainability, 2021, Vol. 13, Article No.	10.3390/su13179797	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Sharip N.S., Ariffin H., Yasim-Anuar T.A.T., Andou, Y., Shirotsaki Y., Jawaid M., Tahir P.M., Ibrahim N.A. "Melt-vs. Non-melt blending of complexly processable ultra-high molecular weight polyethylene/cellulose nanofiber bio nanocomposite", Polymers, 2021, 13(3), 404, pp. 1-15.	doi.org/10.3390/polym13030404	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Kenji Sakai, Mohd Ali Hassan, Charles S. Vairappan, Yoshihito Shirai "Promotion of a green economy with the palm oil industry for biodiversity Q5 conservation: A touchstone toward a sustainable bioindustry", Journal of Bioscience and Bioengineering, 2021, accepted.	10.1016/j.jbiosc.2022.01.001	国際誌	accepted	Q2ジャーナル
2021	Chapol Kumar Roy, Shotato Toya, Yuki Hoshiko, Sarah Sabidi, Nurul Asyifah Mustapha, Toshiki Miyazaki, Toshinari Maeda, "Effect of sodium tungstate on anaerobic digestion of waste sewage sludge: Enhanced methane production via increased acetoclastic methanogens", Journal of Environmental Chemical Engineering, 2022, Vol. 10, Article No. 107524.	10.1016/j.ece.2022.107524	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Chapol Kumar Roy, Yuki Hoshiko, Shotato Toya, Toshinari Maeda, "Effect of different concentrations of sodium selenite on anaerobic digestion of waste sewage sludge", Environmental Technology & Innovation, 2022, Vol. 27, Article No. 102403.	10.1016/j.eti.2022.102403	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Yuki Hoshiko, Ryutarō Hirano, Nurul Asyifah Mustapha, Phuong Dong Thi Nguyen, Shuto Fujie, Viviana Sanchez-Torres, ToshinariMaeda, "Impact of 5-fluorouracil on anaerobic digestion using sewage sludge", Chemosphere, 2022, Vol. 298, Article No. 134253.	10.1016/j.chemosphere.2022.134253	国際誌	発表済	Q1ジャーナル

論文数 16 件
 うち国内誌 1 件
 うち国際誌 15 件
 公開すべきでない論文 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, Mingxiang He, Toshinari Maeda, "Enrichment of waste sewage sludge for enhancing methane production from cellulose", <i>Bioresource Technology</i> , 2021, Vol. 321, Article No. 124497	10.1016/j.biortech.2020.124497	国際誌	発表済	Q1ジャーナル, Field-weighted citation impactの値が2.37
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", <i>Applied Microbiology and Biotechnology</i> , 2021, Vol. 105, pp. 3787-	10.1007/s00253-021-11248-4	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Jorge A. Albarracín-Arias, Chang-Ping Yu, Toshinari Maeda, Wilfredo Valdivieso Quintero, Viviana Sanchez-Torres, "Microbial community dynamics and electricity generation in MFCs inoculated with POME sludges and pure electrogenic	10.1016/j.jhydene.2021.08.218	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Yuki Hoshiko, Yoshito Nishiyama, Tae Moriya, Kiwao Kadokami, Luis Esaú Lopez-Jácome, Ryutarō Hirano, Rodolfo García-Contreras, Toshinari Maeda, "Quinolone signals related to pseudomonas quinolone signal-quorum sensing inhibits the predatory activity of <i>Bdellovibrio bacteriovorus</i> ", <i>Frontiers in Microbiology</i> , Vol. 12, Article No. 722579	10.3389/fmicb.2021.722579	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Oswaldo Tostado-Islas, Alberto Mendoza-Ortiz, Gabriel Ramírez-García, Isamu Daniel Cabrera-Takane, Daniel Loarca, Caleb Pérez-González, Ricardo Jasso-Chávez, J. Guillermo Jiménez-Cortés, Yuki Hoshiko, Toshinari Maeda, Adrian Cazares, Rodolfo García-Contreras, "Iron limitation by transferrin promotes simultaneous cheating of pyoverdine and exoprotease in <i>Pseudomonas aeruginosa</i> ", <i>ISME Journal</i> , 2021, Vol. 15, pp.	10.1038/s41396-021-00938-6	国際誌	発表済	Q1ジャーナル, Field-weighted citation impactの値が3.09
2021	Mustapha, S., Andou, Y. "Enhancing Mechanical Properties of Polyurethane with Cellulose Acetate as Chain Extender", <i>Fibers and Polymers</i> 2021, 22(8), pp. 2112-2118		国際誌	発表済	
2021	Mustapha, S., Andou, Y. "Tailored higher performance silicone elastomer with nanofibrillated cellulose through acidic treatment", <i>Polymer Composites</i> 2021, 42(5), pp. 2282-2292	doi.org/10.1002/pc.25976	国際誌	発表済	
2021	Kawano, T., Iikubo, S., Andou, Y. "The relationship between crystal structure and mechanical performance for fabrication of regenerated cellulose film through coagulation conditions", <i>Polymers</i> 2021, 13(24), 4450	doi.org/10.3390/polym1324445	国際誌	発表済	Q1ジャーナル
2021	Lease, J., Kawano, T., Andou, Y. "Esterification of cellulose with long fatty acid chain through mechanochemical method" <i>Polymers</i> 13(24), 4397	doi.org/10.3390/polym1324439	国際誌	発表済	Q1ジャーナル

論文数 9 件
 うち国内誌 0 件
 うち国際誌 9 件
 公開すべきでない論文 0 件

③その他の著作物(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 Suhailah 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 1 件
公開すべきでない著作物 0 件

④その他の著作物(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-おわりのページ		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、兎野書房、240-259		書籍	発表済	
2021	Qi-Li Zhu, Bo Wu, Nipon Pisutpaisal, Yan-Wei Wang, Ke-dong Ma, Li-Chun Dai, Han Qin, Fu-Rong Tan, Toshinari Maeda, Yan-sheng Xu, Guo-Quan Hu, Ming-Xiong He, "Bioenergy from dairy manure: technologies, challenges and opportunities", Science of The Total Environment, 2021, Vol. 790, Article No. 148199		総説	発表済	Q1ジャーナル
2021	Toshinari Maeda, Sarah Sabidi, Viviana Sanchez-Torres, Yuki Hoshiko, Shotaro Toya, "Engineering anaerobic digestion via optimizing microbial community: effects of bactericidal agents, quorum sensing inhibitors, and inorganic materials", Applied Microbiology and Biotechnology, 2021, Vol. 105, pp. 7607-7618		総説	発表済	Q1ジャーナル
2021	Eksiler, K., Kawano, T., Andou, Y. Chapter 5: "Fabrication of biodegradable cellulose composite through greener reaction process" In book Royal Society of Chemistry Book: Cellulose Nanoparticles: Synthesis and Manufacturing. 2021, pp.236-257.		書籍	発表済	
2021	安藤義人、河野哲聖「利用農業資源の資源環境利用に向けたプラスチック材料開発」一般社団法人日本塗装技術協会 塗装工学 VOL.56, No.10, 2021.		書籍	発表済	

著作物数 5 件
公開すべきでない著作物 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

2021	国内学会	川野哲聖(九工大)、廃棄物由来の有機-無機ハイブリッドフィラー充填高分子 複合材料の開発と特性評価、第70回高分子学会討論会、リモート、2021.9.8	口頭発表
2021	国内学会	安藤義人(九工大)、廃棄物由来の有機-無機ハイブリッドフィラー充填高分子複合材料の開発と特性評価、第70回高分子学会討論会、リモート、2021.9.8	招待講演
2021	国際学会	Wang ruozhu(九工大)、Design of thermoplastic materials using cellulose as a base matrix、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences 2021 (SAES2021)、リモート、2021.12.7	ポスター発表
2021	国際学会	Jacqueline lease(九工大)、Surface Modification of cellulose through mechanochemical esterification、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences 2021 (SAES2021)、リモート、2021.12.7	ポスター発表
2021	国内学会	Jacqueline lease(九工大)、Surface Modification of cellulose through mechanochemical esterification、第70回高分子学会討論会、リモート、2021.9.8	口頭発表
2021	国際学会	Yoshito Andou(九工大)、FABRICATION OF BIODEGRADABLE CELLULOSE COMPOSITE THROUGH GREENER REACTION PROCESS、The 47th International Congress on Science, Technology and Technology-based Innovation (STT 47)、リモート(タイ)、2021.9.5-7.	招待講演
2021	国際学会	Yoshito Andou(九工大)、Surface Modification of cellulose through mechanochemical esterification、58th Annual Convention of Chemists 2021、リモート(インド)、2021.12.22-23	招待講演
2021	国内学会	安藤義人(九工大)、木質バイオマスの利用と地域課題の解決を考える、第36回繊維学会西部支部講演会、リモート、2021.12.10	招待講演
2021	国内学会	川野哲聖(九工大)、Preparation of photo-solidification electrically conductive polymer using graphene、70th SPSJ Annual Meeting、リモート、2021.5.27	口頭発表
2021	国内学会	川野哲聖(九工大)、脂肪酸塩を用いたセルロースの凝集抑制および誘導体の調製とその応用、第70回高分子学会年次大会、リモート、2021.5.26	ポスター発表
2021	国内学会	川野哲聖(九工大)、オリーブ搾油滓と大理石加工屑を用いた廃棄物由来ポリマーコンポジットの開発、第70回高分子学会年次大会、リモート、2021.5.27	ポスター発表
2021	国内学会	星子裕貴(九工大)、グラム陰性菌クォーラムセンシング阻害剤フルオロウラシルのメタン菌への影響調査、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	遠矢将太郎(九工大)、下水汚泥中の微生物機能と菌叢変化に対する電気培養の影響調査、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	北村雄真(九工大)、ポリ乳酸-ナノセルロース複合材料の嫌気消化過程への影響調査、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	田中瑛二(九工大)、電気培養による下水汚泥の減容効果の検証、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	田代滉人(九工大)、複合微生物系による新規コンポジットプラスチックの微生物分解、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	森岡勇磨(九工大)、歯周病原菌Porphyromonas gingivalisの酸素ストレスに対する動態調査、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	甲斐友教(九工大)、大腸菌のパーシスター形成に対するヒドロゲナーゼの機能の解明、第58回化学関連支部合同九州大会、リモート、2021.7.3	ポスター発表
2021	国内学会	星子裕貴(九工大)、捕食性細菌デロピリオ属細菌を使ったPQSクォーラムセンシングアッセイにおける夾雑物除去の検討、生物工学若手研究者の集い夏のオンラインセミナー2021、リモート、2021.7.17	ポスター発表
2021	国内学会	川野哲聖(九工大)、廃棄物由来の有機-無機ハイブリッドフィラー充填高分子 複合材料の開発と特性評価、第70回高分子学会討論会、リモート、2021.9.8	口頭発表
2021	国内学会	遠矢将太郎(九工大)、電気培養装置を用いた下水汚泥中の細菌群生存戦略と菌叢変化に対する影響調査、電気化学会九州支部トークショーイン九州2021、リモート、2021.9.13	ポスター発表
2021	国内学会	遠矢将太郎(九工大)、マルチ分解酵素生成菌Aeromonas hydrophila ST5株の低温条件下における特性評価、第27回日本生物工学会九州支部大分大会、リモート、2021.12.4	口頭発表
2021	国内学会	阿部克哉(九工大)、デロピリオ属細菌の捕食促進に対するリシン及びアルギニンの影響調査、第27回日本生物工学会九州支部大分大会、リモート、2021.12.4	口頭発表
2021	国内学会	田代滉人(九工大)、複合系微生物叢に対するPLAコンポジットプラスチックの影響調査、日本生物工学会第27回九州支部大分大会、リモート、2021.12.4	口頭発表
2021	国内学会	田中瑛二(九工大)、電気培養を用いた汚泥減容における汚泥濃度の影響、日本生物工学会第27回九州支部大分大会、リモート、2021.12.4	口頭発表

件
件

2021	国内学会	森岡勇磨(九工大)、レッドコンプレックスのプロテアーゼ活性調査、日本生物工学会第27回九州支部大分大会、リモート、2021.12.4	口頭発表
2021	国際学会	阿部克哉(九工大)、Lysine and Arginine Essential to Promote The Predatory Activity of Bdellovibrio bacteriovorus Act The Prey Bacteria、9th International Joint Symposium on Applied Engineering and Sciences(SAES2021)、リモート、2021.12.6	ポスター発表
2021	国際学会	甲斐友教(九工大)、Role of hydrogenases for persistence in Escherichia coli、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences (SAES2021)、リモート、2021.12.6	ポスター発表
2021	国際学会	田代滉人(九工大)、Decomposition of new composite plastics by a complex microbial system、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences (SAES2021)、リモート、2021.12.6	ポスター発表
2021	国際学会	田中瑛二(九工大)、Enhanced sludge reduction by an electrical cultivation system、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences(SAES2021)、リモート、2021.12.6	ポスター発表
2021	国際学会	Wang ruozhu(九工大)、Design of thermoplastic materials using cellulose as a base matrix、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences 2021 (SAES2021)、リモート、2021.12.7	ポスター発表
2021	国際学会	Jacqueline lease(九工大)、Surface Modification of cellulose through mechanochemical esterification、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences 2021 (SAES2021)、リモート、2021.12.7	ポスター発表
2021	国際学会	星子裕貴(九工大)、Methanogenic archaea vs. bacteria as social cheaters in anaerobic digestion using sewage sludge、9th International Symposium on Applied Engineering and Sciences (SAES2021)、リモート、2021.12.7	口頭発表
2021	国内学会	Jacqueline lease(九工大)、Surface Modification of cellulose through mechanochemical esterification、第70回高分子学会討論会、リモート、2021.9.8	口頭発表

招待講演	5 件
口頭発表	24 件
ポスター発表	24 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外国出願

	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													

外国特許出願数 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 (「〇〇の開発」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	
2021	2021/11/16	北九州市 市民カレッジ	日本	20	公開	「環境にやさしい材料への取り組み」
2021	2021/4/17	明専会東京支部 招待講演	東京(オンライン併用)	30	非公開	「地球環境との共生に向けた材料開発と産学官連携の教育貢献」
2020	2020/12/10	新技術説明会	オンライン	138	公開	プラスチック資源に向けた未利用農業廃棄物の資源循環利用
2021	2021/8/23-9/17	イノベーションジャパン2021	オンライン	不明	公開	未利用農業資源を利用した自然に優しい樹脂材料の開発:グリーンマテリアル

5 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	ジャーファーマーターによる試験材料の微生物分解
2021	①2021/9/7 ②2021/9/9 ③2021/9/22 ④2021/12/13-15	①②③フィラー送りの検量線データ採取 ④PLAとCNFとの混練	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

3 件