

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：14101

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K19287

研究課題名(和文) 押出成形可能な粘土状木質繊維素材の開発によるプラスチック代替への挑戦

研究課題名(英文) Challenge to substitute plastic by developing extrudable clay-like wood fiber material

研究代表者

野中 寛 (Nonaka, Hiroshi)

三重大学・生物資源学研究科・教授

研究者番号：90422881

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：海洋ゴミやマイクロプラスチックが深刻な環境問題となっているため、100%植物性の生分解する製品の開発が急がれる。木材、紙パルプ、わらなどは食料と競合しない植物材料だが、熱可塑性がなくプラスチック同様の成形加工ができない。そこで本研究では、木材を一度繊維化し、セルロース系増粘剤、水と混練し、天然物由来の粘土状木質繊維素材を開発した。通常の切削加工では難しい形状の木質材料を押出成形などすることに成功し、プラスチック代替の可能性を見出した。パイプ状成形品「ウッドストロー」はウッドデザイン賞2018に入賞し、以降新聞各社、WEBメディア等に多数取り上げられ、本研究の独創性や挑戦性がおいに評価された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

木粉に、セルロース系増粘剤を用いて可塑性を持たせ、オールバイオマス成形品を成形するための学術的基礎を確立し、木粉のみならず竹粉、コーヒーかすなどにも適用できることを実証した。プラスチック製品の一部を、バイオマスそのものや、紙パルプで代替することは、化石資源代替、マテリアルリサイクル率の向上の観点より低炭素化に、また海洋のマイクロプラスチック問題の低減に寄与し、廃棄物バイオマスの利用促進につながるなど、様々なエネルギー・環境政策の課題解決に資する

研究成果の概要(英文)：Since the marine debris and the microplastic are regarded as serious problems, it is urgent to develop 100% plant-based biodegradable products. Wood, paper pulp, and straw are plant materials that do not compete with food, but they have no thermoplasticity and cannot be molded like plastics. In this study, wood was firstly made into fiber, and it was kneaded with a cellulosic thickener with water to develop a clay-like wood fiber material. We succeeded in molding a wood material with a shape that is difficult to make by ordinary cutting and found the possibility of replacing plastics. The pipe-shaped molded product "Wood Straw" won the Wood Design Award 2018, and was subsequently featured in many newspapers, WEB media, etc., and the originality and challenge of this research were greatly evaluated.

研究分野：林産化学

キーワード：木質粘土 押出成形 可塑性 セルロース セルロース誘導体 木粉 プラスチック代替

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

2015年10月29日NHKクローズアップ現代にて、「海に漂う“見えないゴミ”～マイクロプラスチックの脅威～」が放送された。世界中の石油系プラスチックが紫外線等で分解され、大きさ5 mm以下の「マイクロプラスチック」となって大量に海中に漂っているという。油性物質を高濃度に吸着し生物濃縮が懸念されるなど、深刻な状況になりつつある。パリ協定の採択、石油資源の枯渇に対応するためにも、生分解性かつリサイクル可能な原則100%植物素材を開発し、いち早くプラスチックの生産、使用から脱却する必要がある。

### 2. 研究の目的

本研究では、世界最古の木造建築・法隆寺で1400年の耐久実績がある植物素材「木材」に再注目する。木材をプラスチック代替素材と考えたときの最大の弱点は、切削加工しかできないため、自由に成形できず、リサイクルも難しいことである。この欠点を克服すべく、石油系樹脂に木粉を混ぜ込んだ「ウッドプラスチック (Wood Plastic Composite: WPC)」の開発が進み、近年では樹脂中にセルロースナノファイバー (CNF) を分散し補強繊維として活用する研究が盛んである。これらは押出成形等が可能で、樹脂の一部代替または補強により樹脂使用量の低減に成功しているが、引き続き樹脂に依存しておりマイクロプラスチック問題の解決はできない。

そこで本研究では加熱溶融成形から発想を転換し、木材を一度繊維化し、セルロース系の増粘剤、必要に応じて植物系可塑剤を添加して、天然物由来の粘土状木質繊維素材を開発し、押出成形により任意形状の木質材料を再構築すること、その結果としてプラスチック代替の可能性を見出すことを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 粘土状木質繊維素材の調製と加工性評価

当初、木材チップを水中でナノレベルに繊維化した「リグノセルロースナノファイバー」の利用を検討した。成形は可能であったが、得られた粘土状木質繊維素材の含水率が高くなり、乾燥時の収縮も大きいことから、乾式粉碎により得られる木粉へとシフトした。

粒径0.12, 0.25, 0.5 mm アンダーの各ヒノキ木粉とヒドロキシプロピルメチルセルロース (HPMC, 信越化学工業株式会社) 粉末をそれぞれ8:2~5:5となるよう予め混合し、木粉とHPMC粉末の混合重量に対して100~233 wt%となるように、水をそれぞれ加えた。その後、自転公転攪拌脱泡装置 (SK-300S, 株式会社写真化学) を用いて、2000 rpmで2分間混練した。各木粉-HPMC-水混練物1.5 gを定試験力押出成形細管式レオメーター (CFT-500D, 株式会社島津製作所) のシリンダー内に充填し、一定の圧力を加えながら押し出した。尚、測定で用いるダイはダイ穴径3 mm, 厚み10 mmを用いた。試験荷重は5~85 kgfとし、せん断応力及びせん断速度のグラフから流動性を評価した。

#### (2) 中空状木粉成型品 (ウッドストロー) の作製と機械的特性

粒径0.25 mm アンダーのヒノキ木粉とHPMC粉末を8:2~5:5となるよう予め混合し、粉末の混合重量に対して125 wt%となるよう水を加えた。その後、実験(1)と同じ手順に基づいて混練し、木粉-HPMC-水混練物を調製した。細管式レオメーターに外径6 mm, 内径5 mmの中空状押出成形用特注ダイ (東海アツミテクノ株式会社) を装填し、荷重を25~65 kgfで押し出した。押出成形物を17時間、室温26℃, 湿度53%の条件下で風乾させることで木粉成型品を獲得した。作製した木粉成型品の内径及び外径、長さはノギスを用いて測定し、重量で割ることで密度を算出した。また、収縮性は乾燥後の外径を測定することで求めた。卓上型引張圧縮試験機 (MCT-Logger1150, A&D株式会社) を用いて3点曲げ試験を行い、5つの試験体の平均値から曲げ強度 (MOR) と曲げヤング率 (MOE) を算出した。尚、スパン (L) は40 mmに設定し、圧縮速度は10 mm/minとした。

### 4. 研究成果

#### (1) 粘土状木質繊維素材の調製と加工性評価

Fig. 1に水分量, 比率, 粒径の違いによる混練物の流動性を示す。すべての混練物は静置状態であるせん断速度  $\dot{\gamma} = 0 \text{ s}^{-1}$  付近においてせん断応力が  $0 < \tau < \tau_c$  であった。これを降伏値と呼び、混練物の変形し、流動するために応力を示す。木粉混練物は、分子量, 比率, 木粉粒径の違いに関わらず、せん断速度の低い範囲で高い粘性を示すが、せん断速度とともに粘性が減少した。このような挙動は、非ニュートン的で擬塑的な流動と呼ばれ、静置した状態において混練物の内部に形成された弱い構造が、流動とともに順次破壊し分散するためであり、押出成形性が付与されていると提唱されている。木粉混練物を構成する3成分の影響を比較すると、水分量の違いが

流動性に最も起因し、高水分量ほど流動性が向上した。その要因として、混練物の粘度の低下と流動時の摩擦が挙げられる。Fig. 1 (A) に示すように、水分量の異なる各混練物の降伏値は、水分量の増加とともに減少しており、低圧力で流動している。このことから、水は木粉粒子間距離を拡張させ混練物の粘度を低下させることが示唆された。また、混練物の外部に染み出した水は可塑剤としてはたらし、細管式レオメーターのシリンダー内壁と混練物間の摩擦を低減することが示唆された。これらの要因により流動性が大幅に向上したと考える。しかし、水を 233 wt% 加えた混練物 (Fig. 1(A)) は流動後の形状維持が困難であったことから粉末重量あたり 100 ~ 150 wt% の水分量が混練物の加工に適していると考えられる。Fig. 1 (B) に示すように HPMC の添加は流動性の向上に起因した。これは水に溶解した HPMC が流動時のシリンダー内壁及び木粉粒子間の摩擦を低減したためと考える。しかし、HPMC は木粉と比較して高コストであり、木粉成型品を開発する上では、低添加量が望まれる。Fig. 1 (C) に示すように、木粉粒径の違いは、せん断応力に影響を及ぼさなかったが、流動後成形物の表面は粒径が小さくなるほど平滑であった。以上の流動性評価から、木粉 : HPMC = 7:3 に対して粉末重量あたり 125 wt% の水分量が最も良好な成形性を有すると示唆された。

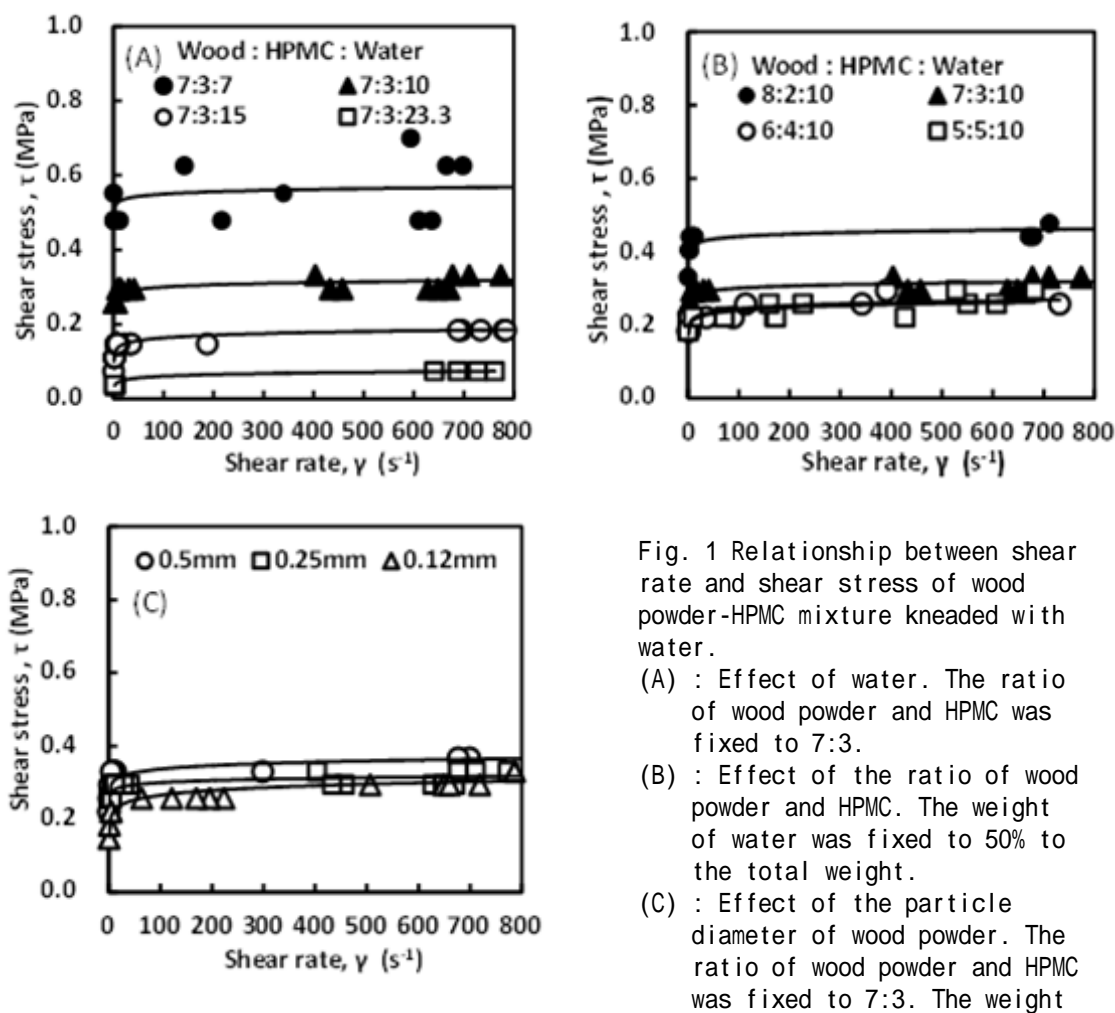


Fig. 1 Relationship between shear rate and shear stress of wood powder-HPMC mixture kneaded with water.

- (A) : Effect of water. The ratio of wood powder and HPMC was fixed to 7:3.
- (B) : Effect of the ratio of wood powder and HPMC. The weight of water was fixed to 50% to the total weight.
- (C) : Effect of the particle diameter of wood powder. The ratio of wood powder and HPMC was fixed to 7:3. The weight

## (2) 中空状木粉成型品 (ウッドストロー) の作製と機械的特性

上記の配合比で調製した木粉 - HPMC - 水混練物は中空状での成形が可能であり (Fig. 2), Fig. 3 に示すように押出荷重 45 kgf 以上の設定で、大量かつ連続的な生産が可能であった。木粉と HPMC の比率が異なる木粉混練物はすべて中空状での押出成形が可能であり、木粉の比率が高いほど乾燥後の収縮が低く、低密度であった (Fig. 4)。これは木粉が HPMC と比べて水への親和性が低いいため、乾燥時の追従度は低いと考えられる。Fig. 5 に木粉成型品の曲げ強度と曲げヤング率を示す。結果より、HPMC の比率が高い成型品ほど高強度、高ヤング率を示した。このことから HPMC は木粉間を接着させるバインダーとしてはたらし、機械的特性の向上に寄与した。



Fig. 2 Appearance of extruded pipe named “wood straws”.

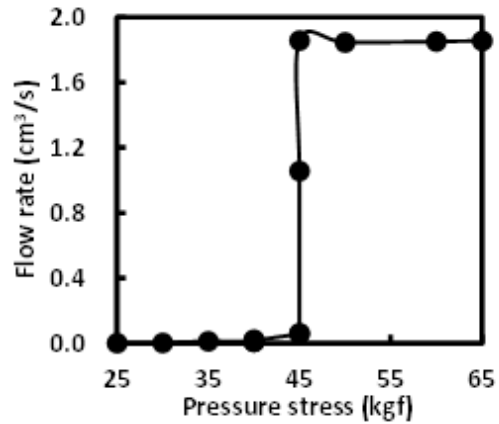


Fig. 3 Relationship between pressure load and flow rate of wood fiber mixture. The ratio of wood powder and HPMC was fixed to 7:3. The weight of water was fixed to 50% to the total weight.

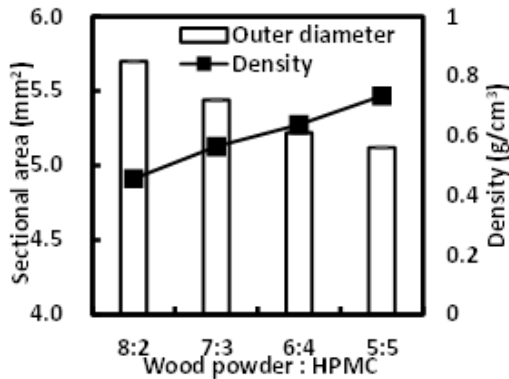


Fig. 4 Shrinkage and density of “Wood straw”. Effect of ratio to wood powder and HPMC.

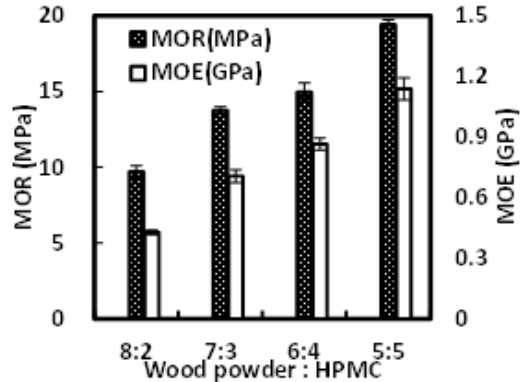


Fig. 5 MOR and MOE of “Wood straw”. Effect of ratio to wood powder and HPMC.

### (3) 今後の展望

当初は木質繊維として紙パルプも試したが、繊維長の長いものは押出が困難で、粉末状の繊維材料の方が原料に適していた。またセルロース含量が高い材料の方が、押出後の乾燥収縮や変形が大きくなることから、紙粉より木粉の方が形を作りやすかった。竹粉やコーヒーかすでも良好に押出成形が可能で、日本中で繁茂する竹の新たな利用、あるいは、食品廃棄物の利用にもつながる。

本研究では、「バイオマス粉末に、セルロース系増粘剤、水を適当な比率で混練して流動性を与え、オールバイオマス成形品を成形する」という革新的技術の礎を築いた。本技術に基づき木粉を円筒状に成形した木製ストロー「ウッドストロー」は、ウッドデザイン賞 2018 を受賞し、NHK 国際放送、新聞各社等に取り上げられている。成形法はいわば食品に近く、クッキーを水につけると吸水しバラバラになるのと同様、20 分程度で吸水し、バイオマス粉末がバラバラになる。これは非常に優れた海洋分解性をもつ新しい木質材料といえるが、実際の使用には長時間の使用に耐える耐水性や強度が求められる。成型品への耐水性付与について、2019 年度「NEDO 先導研究プログラム / 新技術先導研究プログラム」(1 年間)にて鋭意研究中である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 松岡 拓磨, 野中 寛	4. 巻 74
2. 論文標題 セルロース誘導体を用いた木粉の湿式押出成形 ~パイプ状成形品「ウッドストロー」の製作~	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 紙パ技協誌	6. 最初と最後の頁 508-515
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) coming soon	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Matsuoka Takuma; Nonaka, Hiroshi	4. 巻 74
2. 論文標題 Wet extrusion of wood powder using a cellulose derivative	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JAPAN TAPPI JOURNAL	6. 最初と最後の頁 516-524
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) coming soon	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 野中 寛	4. 巻 99
2. 論文標題 石油系樹脂を使わないバイオマス三次元成形の取組 ~ウッドストローを例として~	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 えねるみくす	6. 最初と最後の頁 27-32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.20550/jieenermix.99.1_27">https://doi.org/10.20550/jieenermix.99.1_27</a>	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 河村 海斗, 阿部羅 貴嗣, 野中 寛	4. 巻 72
2. 論文標題 セルロース誘導体を用いたセルロース繊維の押出成形	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 紙パ技協誌	6. 最初と最後の頁 315-320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.2524/jtappij.1703">https://doi.org/10.2524/jtappij.1703</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計24件（うち招待講演 10件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 石油系樹脂を使わないバイオマス三次元成形の取組～ウッドストローを例として～
3. 学会等名 日本エネルギー学会 【リサイクル・バイオマス・ガス化】三部会(RGB)シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 世の中のプラスチック製品を 木や紙に転換する話～木製ストロー開発の取組と今後の展開～
3. 学会等名 三重ハイテクフォーラム令和元年度夏季交流会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 セルロース系増粘剤を用いたバイオマスの成形イノベーション
3. 学会等名 第13回多糖の未来フォーラム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 オールバイオマス成形品開発の取組
3. 学会等名 2019東海シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 (三重大院) 松岡 拓磨, 野中 寛
2. 発表標題 HPMCマトリックスが木粉の加工性に及ぼす影響
3. 学会等名 第69回日本木材学会大会(函館アリーナ)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 (三重大院生資)○松岡拓磨, 野中 寛, (ザ・バック)阿部羅貴嗣
2. 発表標題 コーヒー抽出残渣を利用したストローの押出成形
3. 学会等名 第14回バイオマス科学会議(東広島)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 (三重大院生資)○松岡拓磨, 野中 寛
2. 発表標題 石油系プラスチックを代替する新規セルローズ素材の加工性
3. 学会等名 第28回日本MRS年次大会(北九州国際会議場)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 (三重大院生資)○松岡拓磨, 野中 寛
2. 発表標題 押出成形法によるオール木質ストローの開発
3. 学会等名 2018年度日本木材学会中部支部大会(静岡大学農学部)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 木質系バイオマスの全成分を利用するための取組
3. 学会等名 みえバイオリファイナリー研究会公開セミナー（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 (三重大院生資) 松岡拓磨, 野中 寛
2. 発表標題 細管式レオメータを用いた新規セルロース繊維素材の流動特性の評価
3. 学会等名 セルロース学会第25回年次大会（京都大学・宇治キャンパス）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 オールバイオマス成形品によるプラスチック代替
3. 学会等名 第48回産学官交流フォーラム 鈴鹿高専・鈴鹿医療科学大学・三重大学合同フォーラム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 植物資源でプラスチックを代替できるか
3. 学会等名 夢・化学-21 化学への招待 高校生のための化学講座 プラスチックの化学（招待講演）
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 押出成形法によるオール天然素材「ウッドストロー」の開発
3. 学会等名 エコプロ2018 (東京ビックサイト)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 三重大学 木質分子素材制御学研究室
2. 発表標題 オールセルロース系三次元成形品
3. 学会等名 第7回JACI/GSCシンポジウム(ANAクラウンプラザホテル神戸)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 セルロース繊維や木粉の三次元成形エコマテリアル
3. 学会等名 2018NEW環境展
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Kawamura, K. Takayanagi, H. Nonaka
2. 発表標題 Development of claylike extrudable wood fiber material
3. 学会等名 253rd American Chemical Society (ACS) National Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 野中 寛, 河村海斗, 阿部羅貴嗣
2. 発表標題 ヒドロキシプロピルメチルセルロースを用いたセルロース繊維の三次元成形
3. 学会等名 セルロース学会第24回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 高柳小春, 野中 寛
2. 発表標題 セルロース誘導体を用いたリグノセルロースナノファイバーの成形
3. 学会等名 セルロース学会第24回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 木質系バイオマスの真の利活用に向けたポイントと研究推進
3. 学会等名 ケナフ協議会2017年度年会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 セルロース系増粘剤を活用する木質繊維の三次元成形
3. 学会等名 第3回材料WEEK 295回定例研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hiroshi Nonaka, Kaito Kawamura, Takuma Matsuoka, Takatsugu Abera
2. 発表標題 All-cellulosic 3D material: extrusion molding of cellulose using cellulose derivative
3. 学会等名 The 4th International Cellulose Conference (ICC2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hiroshi Nonaka and Koharu Takayanagi
2. 発表標題 Lignocellulosic nanofiber: its properties and utilization
3. 学会等名 Wood and Biofiber International Conference (WOBIC2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takuma Matsuoka and Hiroshi Nonaka
2. 発表標題 Extrusion or Press Molding of Wood Powder Using Cellulose Derivative
3. 学会等名 Wood and Biofiber International Conference (WOBIC2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 野中 寛
2. 発表標題 木質系バイオマスの全成分を生かす研究開発
3. 学会等名 JACI (新化学技術推進協会) エネルギー・資源技術部会 バイオマス分科会講演 (招待講演)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

三重大学プレスリリース <http://www.mie-u.ac.jp/topics/kohoblog/2018/10/-2018.html>  
ウッドデザイン賞2018入賞作品(技術・研究分野) [https://www.wooddesign.jp/2018/pdf/wooddesign2018\\_awardslist\\_5.pdf](https://www.wooddesign.jp/2018/pdf/wooddesign2018_awardslist_5.pdf)  
2018年11月11日 伊勢新聞 <https://www.isenp.co.jp/2018/11/11/25072/>  
2018年12月6日 朝日新聞 <https://www.asahi.com/articles/ASLC95G31LC90NFB01G.html>  
2019年1月5日 朝日新聞(英語) <http://www.asahi.com/ajw/articles/AJ201901050004.html>  
2019年1月～ NHK World "Great gear" にて全世界に放送(冒頭8分)  
<https://www3.nhk.or.jp/nhkworld/en/ondemand/video/2018241/> (オンデマンド放送終了済)  
2019年3月29日 サステナブル・ブランドジャパン [http://www.sustainablebrands.jp/article/story/detail/1191809\\_1534.html](http://www.sustainablebrands.jp/article/story/detail/1191809_1534.html)  
2019年6月23日 読売新聞 <https://www.yomiuri.co.jp/local/mie/news/20190622-0YTNT50176/>  
2019年7月16日 三重大Rナビ <http://www.mie-u.ac.jp/R-navi/interview/cat688/post-19.html>  
2019年7月31日 日刊工業新聞 第2部(地球環境特集) [https://www.nikkan.co.jp/space\\_pdfs/index/0048222](https://www.nikkan.co.jp/space_pdfs/index/0048222)  
2020年1月25日 日経新聞 <https://r.nikkei.com/article/DGXMZ054802540U0A120C2MY1000?s=5>  
2020年3月8日 講談社ブルーバックスWEB <https://gendai.ismedia.jp/articles/-/69879>  
など

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----