

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

研究区分：環境問題対応型研究（カーボンニュートラル枠）

研究実施期間：2022（令和4）年度～2024（令和6）年度

課題番号：1CN-2203

体系的番号：JPMEERF20221C03

研究課題名：セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立

Project Title : Establishment of Biomass Powder Extrusion Molding and Insolubilization System Using Cellulose Derivative as an Auxiliary Agent

研究代表者：野中 寛

研究代表機関：三重大学

研究分担機関：

キーワード：オールバイオマス、バイオ複合材料、プラスチック、循環型社会、廃棄物利用

注：研究機関等は研究実施期間中のものです。また、各機関の名称は本報告書作成時点のものです。

令和7（2025）年11月



環境研究総合推進費
Environment Research and Technology Development Fund



独立行政法人
環境再生保全機構
ERCA Environmental Restoration and Conservation Agency

目次

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書.....	1
研究課題情報	3
<基本情報>	3
<研究体制>	4
<研究経費>	4
<研究の全体概要図>	5
1. 研究成果.....	6
1. 1. 研究背景	6
1. 2. 研究目的	6
1. 3. 研究目標	6
1. 4. 研究内容・研究結果.....	7
1. 4. 1. 研究内容	7
1. 4. 2. 研究結果及び考察.....	11
1. 5. 研究成果及び自己評価.....	26
1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献.....	26
1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価.....	27
1. 6. 研究成果発表状況の概要.....	29
1. 6. 1. 研究成果発表の件数.....	29
1. 6. 2. 主要な研究成果発表.....	29
1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動.....	30
1. 7. 國際共同研究等の状況.....	32
1. 8. 研究者略歴	32
2. 研究成果発表の一覧.....	33
(1) 研究成果発表の件数.....	33
(2) 産業財産権	33
(3) 論文	33
(4) 著書	34
(5) 口頭発表・ポスター発表.....	34
(6) 「國民との科学・技術対話」の実施.....	37
(7) マスメディア等への公表・報道等.....	38
(8) 研究成果による受賞.....	38
(9) その他の成果発表	38
権利表示・義務記載	38

Abstract

研究課題情報

<基本情報>

研究区分 :	環境問題対応型研究（カーボンニュートラル枠）
研究実施期間 :	2022（令和4）年度～2024（令和6）年度
研究領域 :	統合領域
重点課題 :	【重点課題 6】グローバルな課題の解決に貢献する研究・技術開発（海洋プラスチックごみ問題への対応） 【重点課題 4】環境問題の解決に資する新たな技術シーズの発掘・活用
行政ニーズ :	
課題番号 :	1CN-2203
体系的番号 :	JPMEERF20221C03
研究課題名 :	セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立
研究代表者 :	野中 寛
研究代表機関 :	三重大学
研究分担機関 :	
研究協力機関 :	

注： 研究協力機関は公開の了承があった機関名のみ記載されます。

<研究体制>

サブテーマ1 「セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立」

<サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者>

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	三重大学	大学院生物資源学研究科	教授	野中 寛	
分担者	三重大学	大学院生物資源学研究科	教授	橋本 篤	
分担者	三重大学	大学院生物資源学研究科	助教	徳永 有希	

注： 研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

<研究経費の実績>

年度	直接経費（円）	間接経費（円）	経費合計（円）	備考（自己充当等）
2022	12,000,000	3,600,000	156,000,000	
2023	14,000,000	4,200,000	182,000,000	
2024	12,000,000	3,600,000	156,000,000	
全期間合計	38,000,000	11,400,000	494,000,000	

注： 環境研究総合推進費の規定する研究経費の支援規模を超えた額は自己充当等によるものです。

<研究の全体概要図>

セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立

研究代表機関：国立大学法人 三重大学

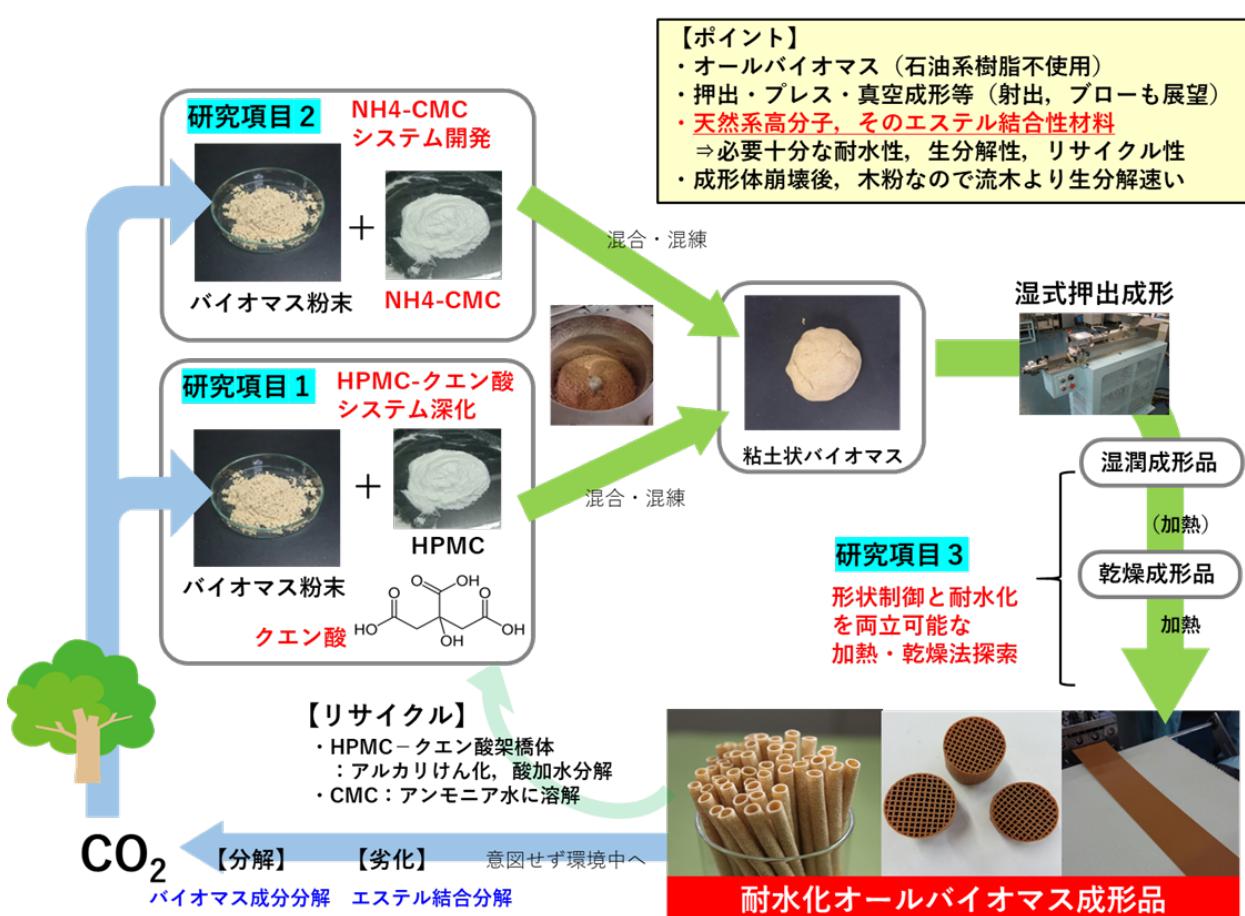
研究代表者：大学院生物資源学研究科 教授 野中 寛

【研究目的】

海洋プラスチックごみ問題の解決、プラスチック製品のカーボンニュートラル化を目指し、石油系樹脂を複合しないオールバイオマス成形品の開発を行う。研究代表者が有する「セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形技術」を実用化するためには、成形品が高湿度環境下、過度に吸湿することなく表面状態や強度を維持するよう、過不足ない耐水性を付与する必要がある。

1. HPMC（ヒドロキシメチルセルロース）を助剤としてバイオマス粉末を成形する際に、トリカルボン酸（クエン酸）を内添し、加熱によりセルロース誘導体を架橋して耐水化させる技術の深化
2. 加熱により水不溶化するセルロース誘導体：NH4-CMC（カルボキシメチルセルロースアンモニウム）を新たに助剤に採用したバイオマス粉末の押出成形・耐水化技術の開発
3. 乾燥に伴う成形品の変形抑制と成形品の耐水化を両立しうる加熱・乾燥法の探索

木粉やコーヒー粕などのバイオマス資源の材料化を望む企業との技術開発実証・実用化につなげる。



*30分の多湿条件下（ホットカップ用リッドを想定）で、
①強度維持、②表面べたつきがないこと、を指標に組成や耐水化条件を決定

1. 研究成果

1. 1. 研究背景

海洋プラスチックごみ問題の解決に向けた取組を加速するプラットフォーム：CLOMA（クリーン・オーシャン・マテリアル・アライアンス）が設立され、プラスチックの3R促進のほか、生分解性プラスチックや紙製品の開発・利用が進められている。しかし化学合成により製造される生分解性プラスチックは、水圏を含めた環境中で適切に生分解されるか、その環境影響は未知である。一方、紙はセルロース材料で、地球の浄化能力内で代謝される担保はあるが、可塑性がなく射出成形や押出成形ができないことから、プラスチック製品を十分代替可能とは言い難い。またバイオマス成分のうちセルロースの活用に偏ることなく、バイオマス資源全体を利用する観点も重要である。これに対して研究代表者（三重大・野中）は、バイオマス粉末に対して、プラスチックと複合するのではなく、水溶性セルロース誘導体を助剤として、可塑性と保形性を付与し、湿式押出成形を行うことにより「オールバイオマス成形品」を得る独自の研究開発を推進してきた。本技術を用いて木粉を中空状に成形した作品（ウッドストロー）は、ウッドデザイン賞を受賞し、海洋プラごみ問題対策技術として、新聞各紙、NHK国際放送等で取り上げられている。この手法では、成形品内にバインダーとしてセルロース誘導体が存在するため、水に触れたとき、あるいは、多湿環境下において、表面のべとつきや強度低下を招く可能性があり、何らかの処理により過不足ない耐水性を付与する必要がある。

1. 2. 研究目的

そこで本研究では、1. 水溶性セルロース誘導体（ヒドロキシプロピルメチルセルロース、HPMC）を助剤として、木粉やコーヒー粕の湿式押出成形を行う際に、架橋剤としてトリカルボン酸であるクエン酸を添加しておき、成形後加熱によりセルロース誘導体を架橋して耐水化させる技術を深化、2. 加熱により水不溶化する水溶性セルロース誘導体（カルボキシメチルセルロースアンモニウム、NH4-CMC）を助剤に採用し、木粉やコーヒー粕を湿式押出成形後、加熱による乾燥・アンモニア脱離で耐水化させる新たなバイオマス粉末押出成形・耐水化技術を開発、3. 乾燥に伴う成形品の変形抑制と成形品の耐水化を両立しうる加熱・乾燥技術の開発を行うことを目的とする。本研究で、一連のバイオマス粉末成形・耐水化システムを確立したのち、バイオマス資源の材料化を望む企業と、環境問題対応型研究（技術実証型）に共同申請し、製品試作、成形機開発等、実用化に直結する研究へとステップアップし、技術開発実証・実用化につなげる。

1. 3. 研究目標

<全体の研究目標>

研究課題名	セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立
全体目標	[1] セルロース誘導体（HPMC）を助剤とし、クエン酸を架橋剤として添加する、木粉・コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。 [2] セルロース誘導体（NH4-CMC）を助剤とする、木粉、コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。 ●システム確立の指標として、得られるオールバイオマス成形品が、30分の高温多湿条件下（ホットカップ用リッドを想定）で、①強度を維持する、②表面がべとつかない（浸出物が少ない）こと、を設定する。 ●原料のなかでセルロース誘導体のコストが最も高い（実売ベースで2000円/kg程度。なおセルロースナノファイバーは、この価格よりずっと高価）ので、バイオマス粉末重量の1/4以下の使用量に抑えることを目指す。

<サブテーマ1の研究目標>

サブテーマ1名	セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立
サブテーマ1実施機関	三重大学
サブテーマ1目標	[1] セルロース誘導体（HPMC）を助剤とし、クエン酸を架橋剤として添加する、木粉・コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。 [2] セルロース誘導体（NH4-CMC）を助剤とする、木粉、コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。 ●システム確立の指標として、得られるオールバイオマス成形品が、30分の高温多湿条件下（ホットカップ用リッドを想定）で、①強度を維持する、②表面がべとつかない（浸出物が少ない）こと、を設定する。 ●原料のなかでセルロース誘導体のコストが最も高い（実売ベースで2000円/kg程度。なおセルロースナノファイバーは、この価格よりずっと高価）ので、バイオマス粉末重量の1/4以下の使用量に抑えることを目指す。

1. 4. 研究内容・研究結果

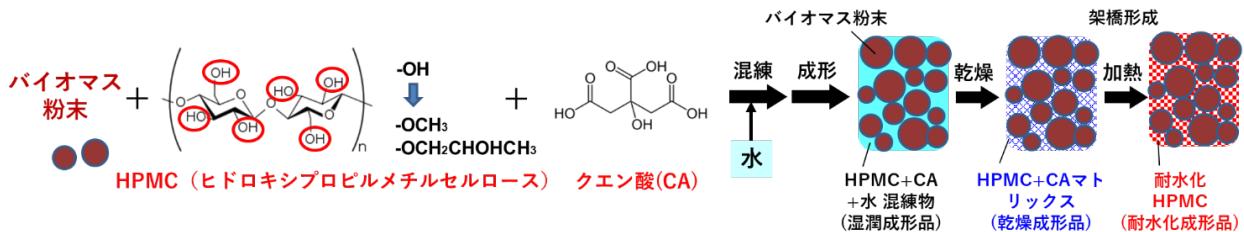
1. 4. 1. 研究内容

研究代表者は、木粉、水溶性セルロース誘導体（ヒドロキシプロピルメチルセルロース：HPMC）、水を所定の比で混練することにより、木粉を粘土状素材へと変換し、これを常温で押出成形し、乾燥によりオールバイオマス成形品を得るシーズ技術を有している。木粉間の糊として機能するセルロース誘導体が水溶性のため、成形品は水にふれると、ぬめりを生じ、水中で崩壊する特性を有する。この課題に対して、[1] 原材料にクエン酸（Citric acid, CA）を添加し成形後に加熱・架橋することに糊を水不溶化する、[2] HPMCの代わりに別のセルロース誘導体：カルボキシメチルセルロースアンモニウム（NH4-CMC）を使用して木粉を成形後加熱のみで糊を不溶化する、という2つのアイディアをシステムとして確立し、バイオマス粉末から耐水性を有するオールバイオマス成形品を創る基盤技術を確立する。そのために、以下3つの研究項目を設定し実施した。

研究項目1：HPMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の深化

研究項目2：NH4-CMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の開発

研究項目3：成形品の形状制御と耐水化を両立する加熱・乾燥システムの探索

研究項目1：HPMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の深化

これまで研究室で実施してきた押出成形の標準的組成は、木粉：セルロース誘導体（HPMC）：水=7:3 だった（Tao, 2021）。成形品のコスト削減のため、本プロジェクトではセルロース誘導体使用量を、バイオマス粉末重量の1/4以下に抑えることを目標に掲げているため、最初から木粉：HPMC：水=8:2 を設定し、クエン酸（CA）を添加することとした。

Tao X, Nonaka H (2021), Wet extrusion molding of wood powder with hydroxy-propylmethyl cellulose

and with citric acid as a crosslinking agent, *Bioresources*, 16(2), 2314–2325.
<https://doi.org/10.15376/biores.16.2.2314-2325>

[1] 耐水化条件の総合的検討（論文3）

スギ木粉（91 μm 以下）、HPMC粉末、クエン酸粉末を使用し、木粉：HPMC：CA：水 = 8 : 2 : 0.5 : 11.5 の組成で混合後、真空押出成形機で成形した。温度とテンションをかけながら巻き取り、厚さ0.3~0.4 mmのロール状のシートを得ることに成功した（図1）。架橋条件（加熱温度、時間）を変えて、種々のクエン酸架橋バイオマス成形シートを調製した。水中に浸漬した際の吸水率を測定することにより簡易的に耐水性を評価し、一定環境で調湿後、あるいは、室内環境にて引張試験を行い、架橋条件と強度の関係を把握した。以上のデータより、強度と耐水性を両立する架橋条件を見出した。



図1 木粉：HPMC：水：CA = 8 : 2 : 11.5 : 0.5 で成形した木粉シート

[2] HPMC削減型コーヒー粕成形と変形を抑えた耐水化（研究項目3を兼ねる）

廃棄物となっているバイオマス粉末の一例としてコーヒー粕を挙げ、コーヒー粕の押出成形による板状成形品の製造を目指した。社会実装を見越して、セルロース誘導体使用量は、バイオマス粉末重量の1/5 を目標として水分量を調整した結果、コーヒー粕：HPMC：CA：水 = 10 : 2 : 0.5 : 10 の比率で押出成形が可能であることを見出した。原料を混合後、真空押出成形機を用いて、幅110~300 mm、厚さ3~15 mmの成形品を作製した（図2）。厚さ3 mmのプレート状成形品について、乾燥方法と反りの矯正法、架橋のための加熱のタイミングなどを検討し、平坦で外観不良のない耐水性コーヒー粕プレートの生産を実現するための条件を追究した。



図2 コーヒー粕の押出成形。（左）工場での成形例（幅300 mm）、（中）成形品の恒温器での乾燥、（右）大量に成形したコーヒープレート

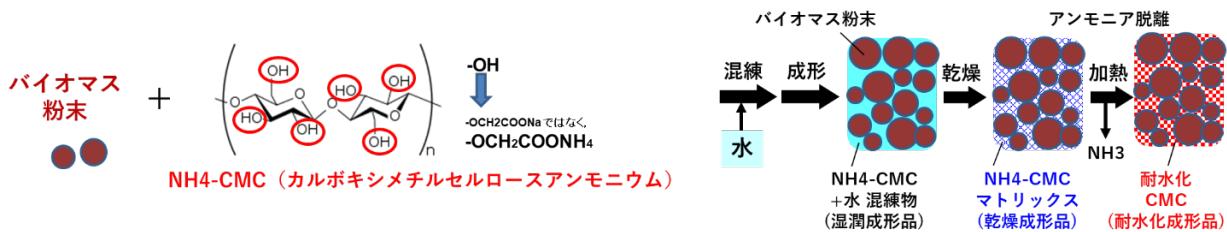
[3] グリセリン添加時の耐水化条件の探索

本技術で得られるバイオマス成形品は硬くもろい傾向にある。柔軟性を付与するためグリセリンを添加し、耐水化条件を探査した。木粉：HPMC：CA：グリセリン：水 = 7 : 3 : 0.5 : 3 : 10.5 の組成で押出成形を行い、柔軟性の高いシート作成に成功した。150~190°C、2時間の加熱処理では、シートは水中で崩壊したため、クエン酸量を増やして耐水性の向上を図った。さらに、HPMC量を削減し、木粉：HPMC：水：CA：グリセリン = 8 : 2 : 10.5 : 2 : 0 or 1 or 2 の組成で成形したシートの水中崩壊や耐水化時の伸びを評価し、最適条件を探査した。

【本研究項目における主な原料組成】

実験	使用原料	組成	略称
[1]	木粉（91 μm 下）：HPMC：クエン酸：水	8 : 2 : 0.5 : 11.5	
[2]	コーヒー粕：HPMC：水：CA	10 : 2 : 0.5 : 10	
[3]	木粉（91 μm 下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	7 : 3 : 0.5 : 3 : 10.5	
[3]	木粉（91 μm 下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8 : 2 : 2 : 0 : 10	Gy0
[3]	木粉（91 μm 下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8 : 2 : 2 : 1 : 10	Gy1
[3]	木粉（91 μm 下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8 : 2 : 2 : 2 : 10	Gy2

研究項目2：NH4-CMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の開発



[1] 押出成形のための木粉、NH4-CMC、水の組成比探索

木粉、NH4-CMC、水の量や種類を変えて混合、混練を行い、成形に適した可塑性と保形性が得られる組成比を幅広くスクリーニングした。具体的には、混練後に得られる粘土状素材を、細管式レオメータ（定試験力押出し式、試験圧力：0.4903～49.03MPa）に仕込み、せん断速度とせん断応力の関係を測定し、素材のレオロジー特性を評価した。得られた糸状の押出成形品を乾燥させ、割裂試験を行い、組成と強度の関係を把握した。なお糸状の押出成形品の加熱による耐水化、キャプスタン式糸つかみ具を用いた引張試験は行わず、次節にて幅広のシートを用いて行った。

[2] 押出成形および耐水化条件の探索（論文5）

NH4-CMCを助剤としてバイオマス粉末の湿式押出成形を行い、加熱による耐水化の実現可能性を検討した。紙粉（10:2:14）と木粉（10:2:15）の組成比を確立し、ヘンシェルミキサーで混合後、真空押出成形機を使用して厚さ0.3～0.4 mmのロール状シートを得た（図3）。このシートに対し、耐水化のための最適な加熱条件を探査し、加熱後の吸湿特性、引張強度、表面粘着性を評価した。また、NH4-CMC粉末の加熱変化を解析し、シートの耐水性との関係を考察した。



図3 NH4-CMCを助剤として成形した紙粉シート（左）、木粉シート（中）、表面粘着性試験（右）

[3] NH4-CMCの粘度・量、木粉粒径、グリセリン添加の影響

NH4-CMCの粘度、木粉とNH4-CMCの比率、木粉の粒径、グリセリンの有無が異なる計6種類の木粉押出成形シートを作成した（図4）。これらを加熱によって耐水化させた後、引張強度試験と水浸漬試験を行い、組成の違いによる機械的特性および耐水性への影響を調査した。

[4] NH4-CMCを助剤とするコーヒー粕成形と変形を抑えた耐水化（研究項目3を兼ねる）

厚さ0.3～0.4 mmのシートは、テンションをかけながら高温ドラムで巻き取ることで乾燥成形品を得られるが、厚みのある成形品には適用できない。本節では、コーヒー粕のアップサイクルを目的として、NH4-CMCを助剤としてコーヒー粕を大量にプレート状に成形し、乾燥・加熱シーケンスを最適化して耐水化した成形品の製造を目指した。

コーヒー粕：NH4-CMC：水 = 10:2:14 の組成で、外部工場の混練真空押出成形機を用いて幅110 mm、厚さ3 mmで押出成形を行った。現場の乾燥機で60°C乾燥し、含水率15%程度にして、三重大学に送付した。上述の試験より、耐水化には150°Cで30分以上の加熱が必要と考え、最終的に外観不良のない平坦な耐水化コーヒー粕プレートを得るために、乾燥・加熱方法の最適化を行った。

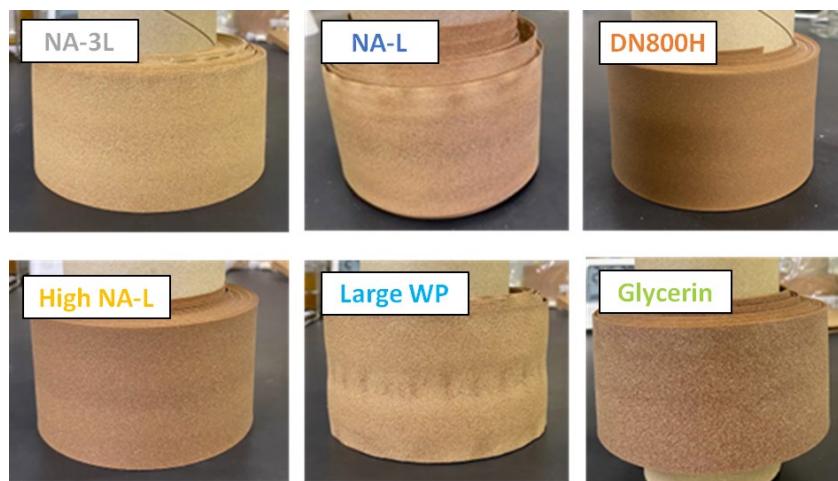


図4 6種類の木粉シートの外観

【本研究項目における主な原料組成】

実験	使用原料	組成	略称
[2]	紙粉：NH4-CMC (NA-L) : 水	10 : 2 : 14	
[2]	木粉 (91 μm下) : NH4-CMC (NA-L, 粘度中) : 水	10 : 2 : 15	NA-L
[3]	木粉 (91 μm下) : NH4-CMC (DN800H, 粘度大) : 水	10 : 2 : 15	DN800H
[3]	木粉 (91 μm下) : NH4-CMC (NA-3L, 粘度小) : 水	10 : 2 : 15	NA-3L
[3]	木粉 (91 μm下) : NH4-CMC (NA-L) : 水	10 : 2.5 : 15	High NA-L
[3]	木粉 (178 μm下) : NH4-CMC (NA-L) : 水	10 : 2 : 15	Large WP
[3]	木粉 (91 μm) : NH4-CMC (NA-L) : 水 : グリセリン	10 : 2 : 13 : 2	Glycerin
[4]	コーヒー粕 : NH4-CMC : 水	10 : 2 : 14	

研究項目3：成形品の形状制御と耐水化の両立を両立する加熱・乾燥システムの探索

木粉を湿式押出成形した湿潤成形体の乾燥に伴う変質・変形を抑制しつつ、乾燥時間の短縮を試みるべく、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法の適用について検討した。実験試料には木粉を使用した円盤形オールバイオマス湿式押出成形物（内径φ47 mm、厚さ4.3 mm）を用い、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥特性に及ぼす高周波照射強度の影響について検討した。また、乾燥後試料の品質評価として、形状測定、近赤外分光イメージングおよび材料強度の測定を実施した。つぎに、材料の質量比を木粉36wt.%、HPMC9wt.%、イオン交換水53wt.%、クエン酸2wt.%として調製したクエン酸添加試料（内径φ47 mm、厚さ4.3 mm）を用いて赤外線－通風併用乾燥実験を行い、試料の膨化や表面の焦げといった変性を抑制するとともに、乾燥時間の短縮、消費電力量の削減を試みた。その際、乾燥シミュレーションを併用することにより、理論的な側面からも最適な乾燥条件の模索を行った。さらに、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法および赤外線－通風併用乾燥法に関する知見と、研究項目1および2の知見に基づき、クエン酸添加の有無および乾燥後の加熱処理時間の違いが試料の耐水性に与える影響の検討、および複雑な構造を持つハニカム型試料の乾燥特性の把握を行った。その上で、木粉由来のオールバイオマス湿式押出成形物の最適な乾燥・加熱シーケンスの模索を試みた。

1. 4. 2. 研究結果及び考察

研究項目1：HPMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の深化

[1] 耐水化条件の総合的検討（論文3）

図5に、木粉：HPMC：CA = 8:2:0.5 の組成の木粉シートを、150~210°C、0.5、1.5、5 h加熱し、水に浸漬したときの吸水率を示す。105°C乾燥、150°C-0.5h乾燥サンプルのみ、水中で崩壊し、取り出して秤量することができなかった。170°C-0.5 h、150°C-1.5 hの加熱条件では、崩壊しなかったものの、吸水率は100%を超えた。これに対して、

- ・150°C-5 h, 170°C-1.5 h, 190°C-0.5 h → 吸水率50~65%
- ・170°C-5 h, 190°C-1.5 h, 210°C-0.5 h → 吸水率40%程度

となり、前者を耐水化（水不溶化）準完了（△）、後者を耐水化（水不溶化）完了（○）とみなした。

図6に、これら加熱サンプルを浸水後、あるいは、70°C90%RH (Relative humidity, 相対湿度) 条件にて調湿後、強度試験を行った結果を示す。△および○のサンプルは浸水後でも引張強度試験を行えるだけの強度があった。その他のサンプルも高温多湿下の吸湿後は、50 MPa以上の引張強度を有し、水中で使う用途以外では、十分に使用可能であると判断された。またシートのぬめりもなかった。

加熱時間が長く、温度が高いほど強度が向上する傾向が見られた（図6）。しかし、ある条件を超えると強度が低下した。170°Cでは1.5時間と5時間の加熱で同じ強度を示し、190°Cでは5時間の加熱で強度が低下、210°Cでは1.5時間の加熱でも強度が減少した。これは、過度の加熱によるセルロース誘導体の低分子化が原因と推測される。

短時間の高温加熱では耐水化は進むものの、セルロース誘導体の熱分解を抑えるには、加熱温度を約180°C程度以下に調整する必要がある。また、クエン酸一水和物の融点は100°C、無水物の融点は153°Cであるため、分子レベルでの架橋・水不溶化を促進するには、融点以上の温度が望ましい。すなわち160~180°Cの範囲が適切であると考えられた。

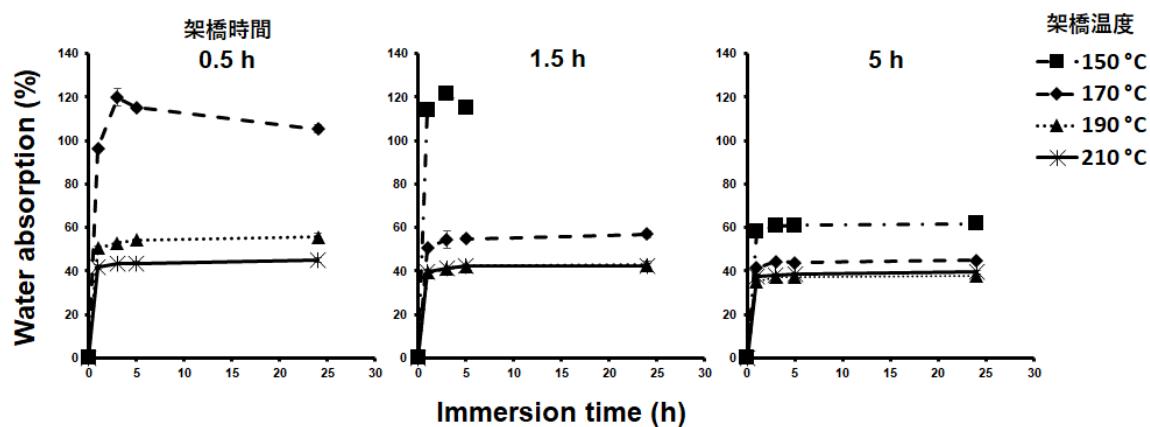


図5 各条件で加熱したシートを水に24時間浸漬したときの吸水率の変化（論文3）

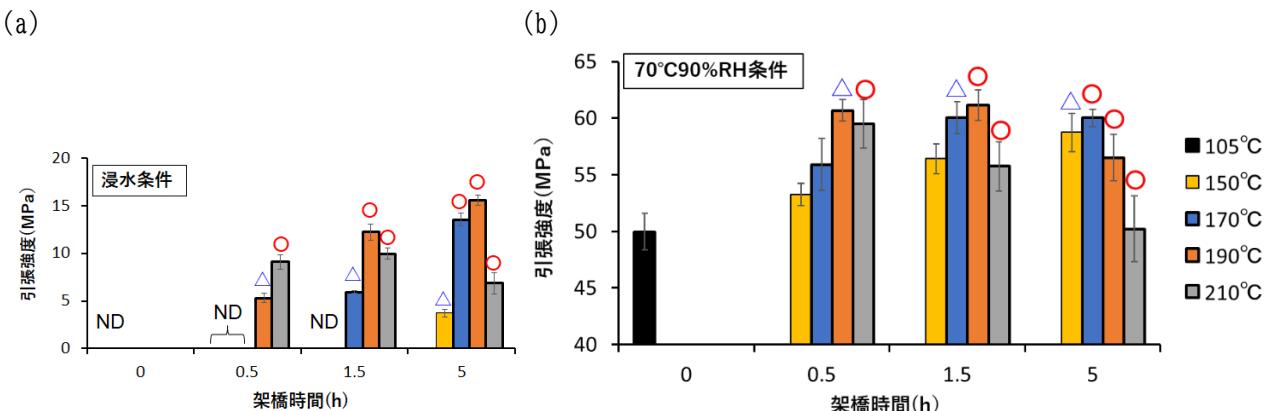


図6 各条件で加熱したシートを浸水または70°C 90%RHで調湿24時間後の引張試験結果（論文3）

160、170、180°Cで各時間加熱したシートを0.5、1、1.5 h 加熱し、70°C90%RHで調湿すると、吸湿量は10～13%となっていた（図7）。加熱が厳しいほど吸湿量が少なく、強度が大きい傾向にあった。これはクエン酸とHPMC間でエステル結合が形成し、親水性の-OH基、-COOH基が消失したことによる。架橋処理の有無に関わらず、この木粉シートの強度は、シート含水率に依存して低下することが明らかとなった。これは紙と同様の挙動であり、木粉—HPMC間の水素結合に基づく成形体であることを示している。加熱処理後、20°C65%RH調湿後は、吸湿量は7～8%となった。同様に加熱条件が厳しいほど吸湿量は少なかったがその差は小さく、引張強度はいずれも約70 MPaとなった。通常の室内環境下では十分な強度を有することが改めて明らかになった。

各条件で加熱したシートを25°Cの水中で24 h振とう攪拌し、振とう後に溶出したあとの水のHPLC分析クロマトグラムを示す（図8）。105°C乾燥のみの試料からは完全に崩壊し、HPMCやクエン酸が溶けだし、木粉と分離される。このシグナルに比べ、架橋強度が強くなるとともに、HPMC、クエン酸（CA）のピークとも大きく減少し、大部分のHPMCが、架橋により水に不溶化していることが明らかとなった。

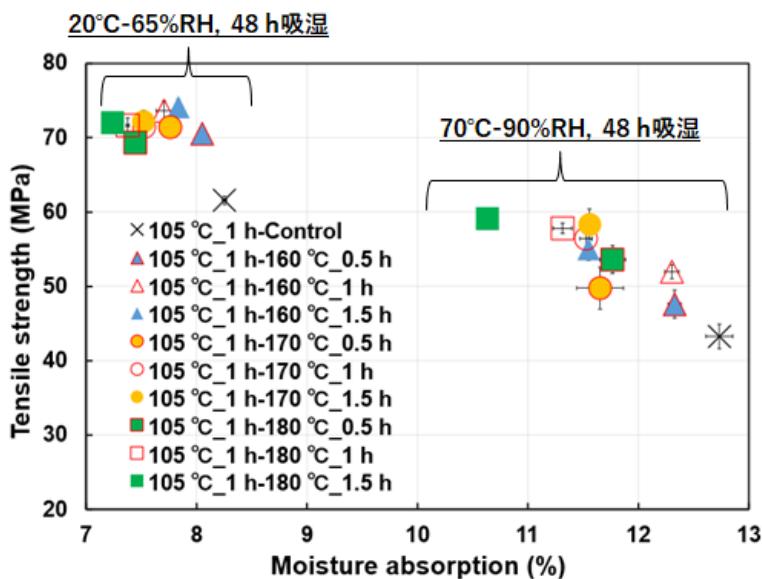


図7 160～180°Cで0.5、1、1.5 h加熱したシートを20°C65%RH、70°C90%RHで調湿24時間後の吸湿量と引張強度の関係

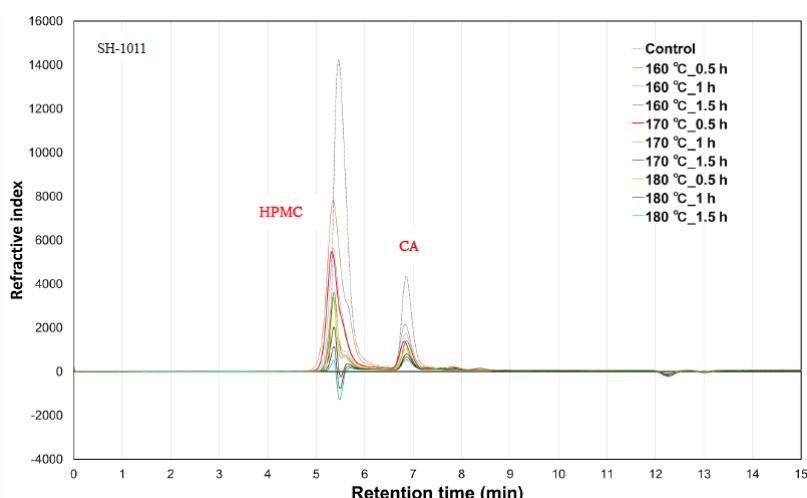


図8 160～180°Cで0.5、1、1.5 h加熱したシートを、25°Cの水中で48 h振とうしたときの水のHPLC分析クロマトグラム（カラム：Shodex SH-1011）

[2] HPMC削減型コーヒー粕成形と変形を抑えた耐水化（研究項目3を兼ねる）

バイオマス粉末に対するHPMC比率をさらに下げ、コーヒー粕：HPMC：CA = 10:2:0.5 の条件で 20 kg スケールの押出成形に成功した。成形品は長さ約40 cmにカットし含水率は約46%である。ラップ等で包み冷蔵庫内に保管しても数日から10日ほどでカビが発生するため、押出成形後は速やかに乾燥する必要がある。

成形から乾燥までの連続処理を考慮し、上下150°Cに設定した遠赤外線コンベア炉で乾燥を試みたが、乾燥速度が遅く、現実的ではないと判断された。そこで送風式の恒温器を使用したところ、80°Cでは5時間で含水率18%、60°Cでは11時間で14%まで低減された。この含水率ではカビの発生が抑えられ、輸送や保管に適する状態となる。しかし、乾燥中に反りが発生し、新たな課題となつた。

120°Cで2分間の熱プレスを行ったところ、成形品は柔らかい革のようになり、平坦に矯正（形状記憶）できることを発見した（図9）。含水率が数%の状態では硬く、熱プレス時に割れる。しかし、120~150°Cの乾燥機で数分予熱することで柔らかくなり、120°Cでの熱プレスが可能となることも新たに明らかになった（ただし、元の形状に反り戻る傾向がある）。また、形状記憶された平板は、恒温器内で特別な固定を行わなくとも大きく反ることなく乾燥可能であり画期的な発見となった。クエン酸による架橋を進行させるため、170（180）°Cの温度条件を以下の方法で探索した。

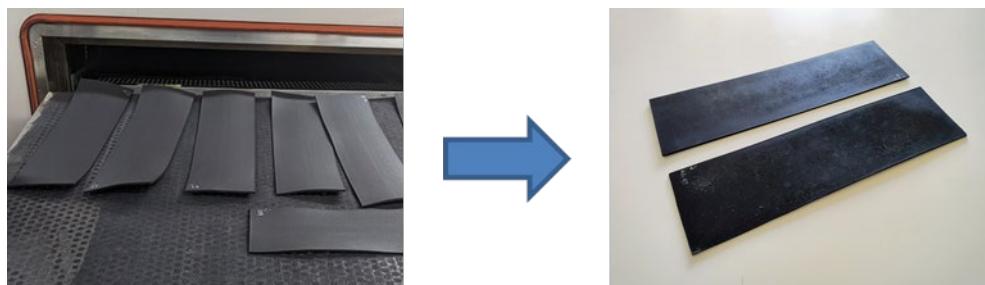


図9 120°Cで2分間の熱プレスによる形状矯正

方法①：170（180）°C熱プレス → 蒸気の逃げ道がなく、急激な膨張で表面が破裂した。アイロンのように熱板を断続的に当てる工夫や吸気できる熱板の使用により解決の可能性あり。

方法②：170（180）°C恒温器内で静置・昇温 → 乾燥と架橋（硬化）が先行し、焼き煎餅状の凸凹が発生。しかし、耐水化には成功。

方法③：低温加熱後の昇温 → 105~150°Cで加熱し含水率を下げたのち、170（180）°Cで昇温。効果は大きかったが外観不良の完全な解消は困難（図10）。追加実験により、粒径の大きいコーヒー粕の使用で外観不良が減少し、クエン酸の割合を増やすと外観不良が増加することが判明。

方法④：段階的な昇温 → 120°Cで乾燥後、150°C、170（180）°Cと段階的に昇温することで架橋に成功。水分を徐々に揮発させる戦略だが、時間がかかる点が課題。

エステル結合生成時に生じる水分の揮発を促すため、クエン酸量を抑制する、成形体表面の硬化を防ぐための送風（研究項目3）を行う、などが有効と考えられた。

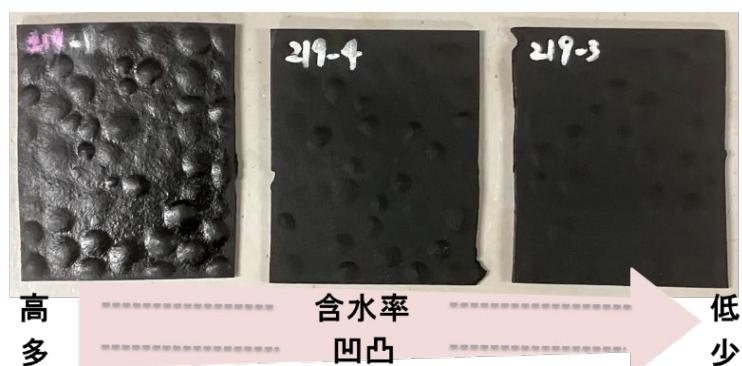


図10 形状矯正したコーヒー粕プレートの含水率を調整後、180°Cの乾燥機内で加熱後の外観

[3] グリセリン添加時の耐水化条件の探索

成形物の柔軟性の観点から、グリセリン（沸点290°C）の添加が有用である。一方、グリセリン添加の強度や耐水性への影響に関してはデータがない。初期検討として、木粉：HPMC：クエン酸：グリセリン = 7:3:0.5:3 の重量比で木粉シートを作成したところ、非常に柔軟なシートが得られた。これを150~190°C、2 h の加熱処理を行ったが、大きく吸水・膨潤するか、熱劣化するかであった。グリセリンの-OH基がクエン酸と反応し、HPMCの架橋が不十分になったことが推測された。そのため、グリセリンに対して、クエン酸が多い以下の組成を試すこととした。

略称	使用原料	組成	成形日
Gy0	木粉（91 μm下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8:2:2:0:10	2024/04/24
Gy1	木粉（91 μm下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8:2:2:1:10	2024/10/31
Gy2	木粉（91 μm下）：HPMC：クエン酸：グリセリン：水	8:2:2:2:10	2024/04/24

図11に、これらのシートを160~180°C、0.5~1.5 h加熱後、水中に48時間浸漬した様子を示す。グリセリン有無に関わらず、すべての加熱サンプルは水中で崩壊せず、ほとんど膨潤もなかった。Gy0とGy2は加熱せずとも水中で形状を維持していた（図11）。木粉：HPMC：CA = 8:2:0.5 の組成ではなかったことであり、クエン酸が4倍量となり、常温にて長期間のストック中に水不溶化が進んだ可能性がある。吸水による重量増加は30%弱であり十分に耐水化していた。

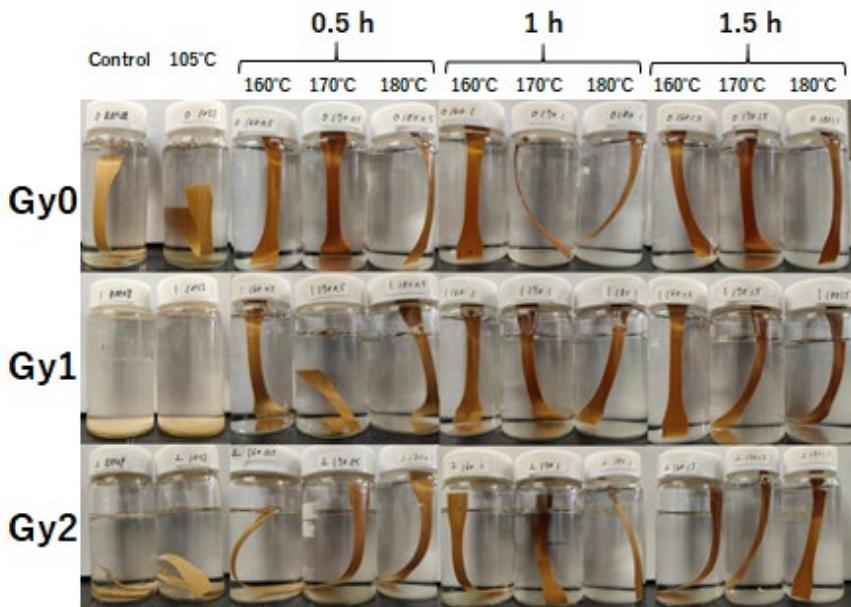


図11 Gy0、Gy1、Gy2シートを各条件で加熱し48時間水に浸漬した後の様子。崩壊しなくなった。

図12aに、各加熱条件で耐水化したシートの引張強度（20°C RH65%，48h調湿後）を示す。加熱条件が厳しくなるほど強度が増し、Gy0は60~70 MPa、Gy1は50~60 MPa、Gy2は30~50 MPaの範囲となり、室内環境で十分な耐久性を示した。図12bには、Gy0とGy2の代表的な応力-ひずみ曲線を示している。160°C、0.5 h加熱したGy2サンプルは、グリセリンなしのサンプルより2倍以上の伸びを示したが、加熱時間が長く、温度が高くなるほど伸び率の差が縮小した。これは、水中での耐水性は獲得したものの、架橋反応後に伸びが失われたことを意味する。

水浸漬試験後のHPLC分析により、水中へのグリセリン溶出が少ないことを確認した。グリセリンはクエン酸とエステル結合し、HPMCとの架橋に関与することで、柔軟性を付与しにくい分子構造を形成していると推測された。

グリセリンは低分子で、クエン酸との反応性が高いため、耐水化には相当量のクエン酸が必要であり、加熱架橋後は伸びが失われる。耐水性と伸びを両立させる材料開発は困難である一方で、架橋前の柔軟性を活かした型押し成形などの方法により、加熱による硬化を利用できる。さらに、常温での不溶化も確認され、加熱なしでもある程度の耐水性を持つ柔軟性シートとして活用可能である。

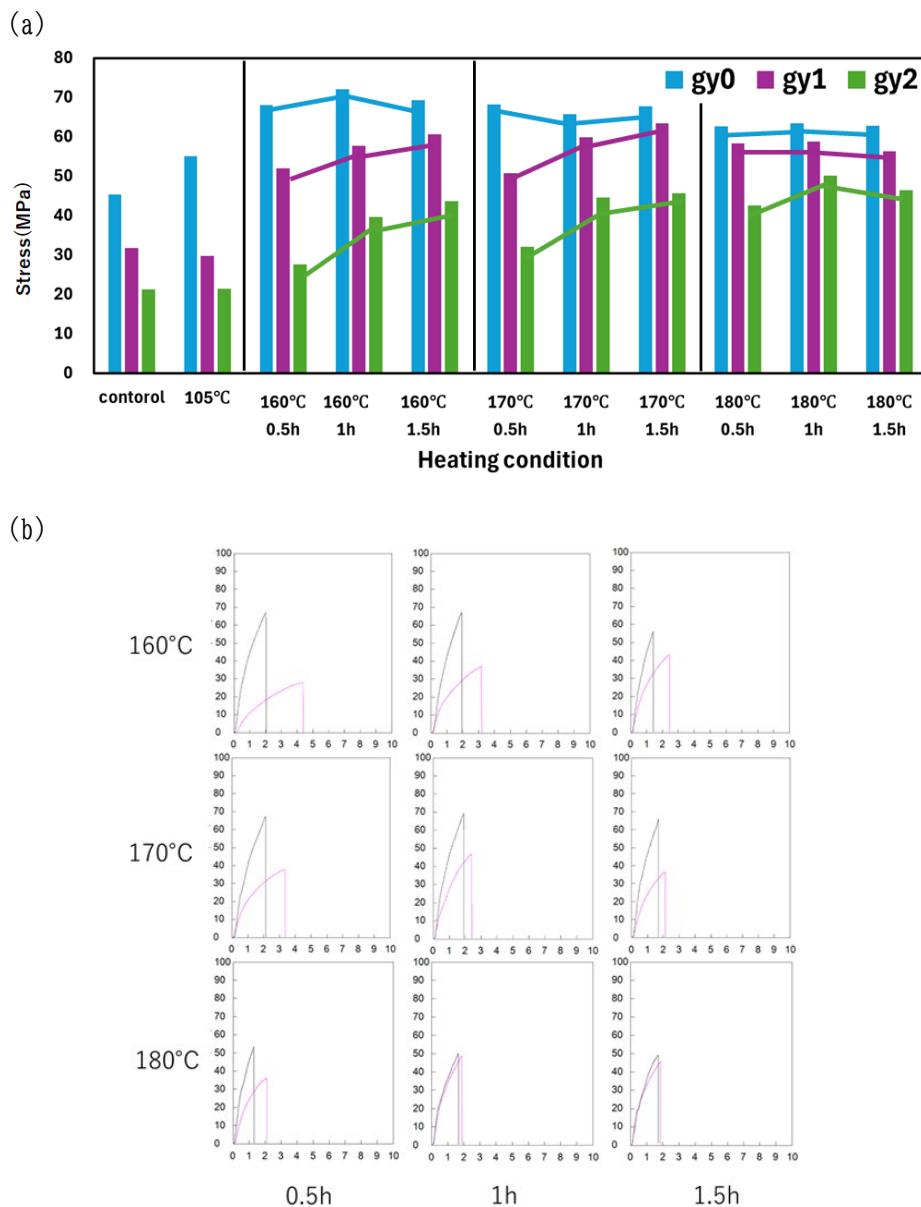


図12 加熱シートの(a) 20°C RH65%、48 h 調湿後の引張強度、
(b) gy0とgy2の代表的な応力ーひずみ曲線の比較

[4] 本項目のまとめ

木粉: HPMC: 水: CA = 8:2:11.5:0.5 の組成で押出成形可能であることを見出した。得られた木粉押出成形シートを150~190°Cで加熱し耐水化を試みた。耐水化には170°C以上の加熱が適当であり、この架橋処理による強度の低下はなく目的を達成した。190°C-5 h、210°C-1.5 hの加熱では強度が低下しており、バインダーや木粉成分の熱分解によるものと推定されるため、用途に応じて、必要最低限の加熱・耐水化条件を採用するとよい。架橋の有無によらず、強度はシート含水率に依存して低下する、紙と似た性質を有することが明らかとなった。架橋した場合、吸湿量が下がる傾向にあり、高い強度を維持できる可能性が高い。

コーヒー粕については、コーヒー粕: HPMC: 水: CA = 10:2:10:0.5の組成を見出し、HPMC量をコーヒー粕重量の1/5に抑えて、20 kgレベルの大量連続成形に成功した。数mmの厚さのある成形品について、恒温器での送風乾燥により含水率を20%弱まで下げ、熱プレスにより反りを解消し平坦にする手法を開発した。その後170 (180) °Cに加熱して耐水性を付与することにも成功した。

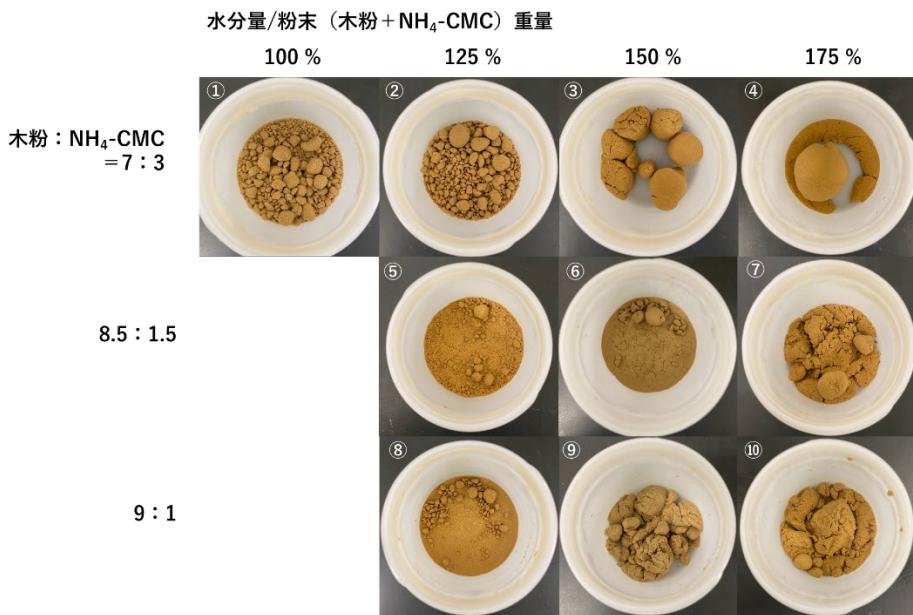
グリセリンの添加は成形品の柔軟性向上におおいに寄与した。一方で加熱時おそらくはクエン酸とエステル結合するため、HPMCとクエン酸の架橋が不十分となり、耐水化が得られにくかった。そのためクエン酸を十分量添加したところ、成形品は水中で崩壊しなくなったが、伸びも失われた。そのため常温で伸びを使い、加熱して硬化させるような、熱硬化性樹脂に近い使い方が向いていると考えられた。偶然、常温・数か月での耐水性獲得を見出したため、加熱なしで、ある程度耐水性を有する柔軟性シートとして利用可能でもある。

研究項目2：NH₄-CMCを助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化技術の開発[1] 押出成形のための木粉、NH₄-CMC、水の組成比探索

以下の組成で混合・混練し、粘土状素材を調製した。NH₄-CMC (NA-L) は、溶液の1%粘度が100～300 mPa·sであるのに対して、NH₄-CMC (DN800H) は700～950 mPa·sである。NH₄-CMCを助剤として木粉成形の流動性や強度を評価するため、攪拌後の粘土の状態を観察し、レオメータ解析を行った。

No.	木粉	NA-L	水	No.	木粉	DN800H	水
①	7	3	10	⑪	7	3	12.5
②	7	3	12.5				
③	7	3	15				
④	7	3	17.5	⑫	7	3	17.5
⑤	8.5	1.5	12.5	⑬	8.5	1.5	12.5
⑥	8.5	1.5	15				
⑦	8.5	1.5	17.5	⑭	8.5	1.5	17.5
⑧	9	1	12.5	⑮	9	1	12.5
⑨	9	1	15				
⑩	9	1	17.5	⑯	9	1	17.5

攪拌後の①～⑩の粘土を観察した結果（図13）、水分量の少ない①、②、⑤はそぼろ状であり、水を増やすほど粘土状へと近づいた。④、⑦、⑩は特に柔らかい粘土であった。木粉：NH₄-CMC=9：1の⑧は粉状に近く、手でまとめることが困難だった。しかし水分量を増やすと⑨、⑩のように粘土状になったため、9：1までなら水量を調整することで成形可能であることが確認された。一方、⑨、⑩は混練真空押出成形機に適した粘性を持たず、シート成形には不向きであると推測された。

図13 木粉、NH₄-CMC、水の組成を変えて混合したときの様子

細管式レオメータを用いた解析（図14）では、押出成形は困難と予測された木粉：NH₄-CMC=9：1の素材も含めて、全ての素材が押し出された。せん断速度が増すほど粘度が低下し、非ニュートン流体であることが判明した。同じ木粉：NH₄-CMC比で比較すると、水分量が多いほど粘度が低下し、流動性が向上した。また、水分量が少ない組成では、木粉比率の増加に伴い粘度上昇が顕著となった。NH₄-CMCの種類による違いを評価したところ、DN800Hの方が高粘度であり、木粉：NH₄-CMC=9：1の条件では高せん断速度領域でより良好な流

動性を示した。NA-L使用時は粉状に近かったが、DN800H使用時の方がまとまりやすく、高分子量NH4-CMCの方がバインダー量を減らし、木粉比率を増やせる可能性が示唆された。

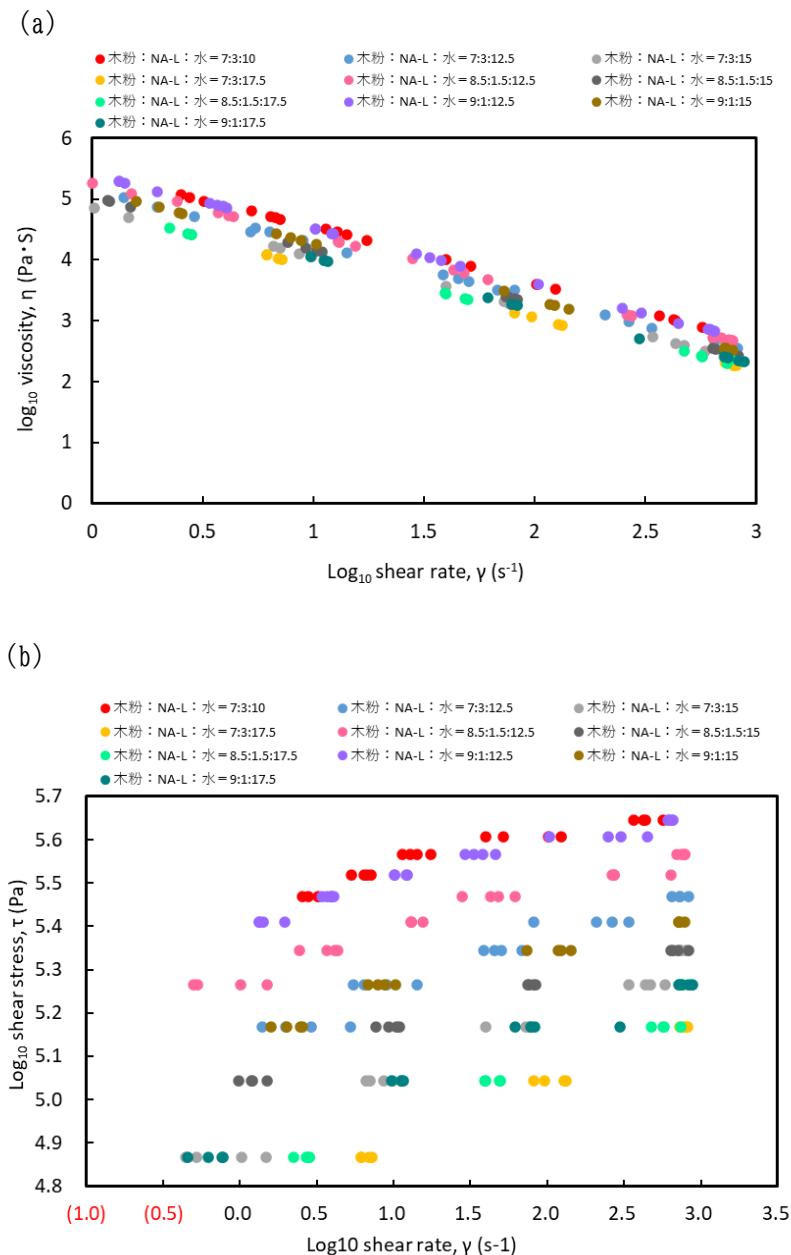


図14 木粉とNH4-CMCの割合や水分量を変えたときの混練素材の
(a)せん断速度と粘度、(b)せん断速度とせん断応力 の関係

レオロジー解析で得られた糸状成形品の割裂試験(図15)において、同じ水分量/粉末重量の比較では、NH4-CMCの割合が減るほど強度が低下し、 $7:3 > 8.5:1.5 > 9:1$ の順に強度が減少した。乾燥前に同程度の粘度を示していた①と⑧の乾燥後の強度は4倍以上の差があり、成形品の強度は乾燥前の粘度よりもNH4-CMCの量が影響することが判明した。

二種のNH4-CMCを比較すると、粘度の高いDN800Hを使用した方が強度が高い傾向を示した。また、密度と強度の関係を確認したところ、強度は密度と正の相関を持ち、水分量が多いほどポーラスで密度の低い成形品が得られることが明らかになった。

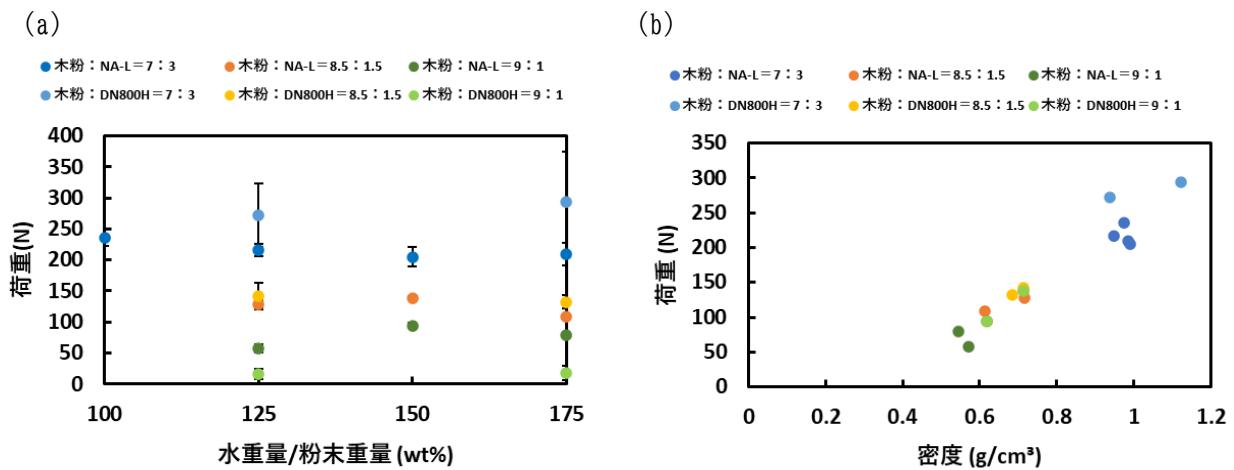


図15 各組成の糸状押出成形品を乾燥後の割裂荷重
(a)水重量/粉末重量でのデータ整理、(b)密度と割裂荷重の関係

レオロジー解析の結果、木粉 : NH4-CMC = 9 : 1 というセルロース誘導体を少量含む組成でも、水の量を増やすことで押出成形は可能であることが確認された。しかし、糸状成形品の割裂試験により、水の増加が乾燥後の成形物の密度低下と強度低下を招くことも明らかになった。したがって、水の使用量を過剰にすることは好ましくない。以上の結果から、適切な水量で成形可能なバインダー量を使用することが重要であり、またバインダーコストを抑える観点から、木粉 : NH4-CMC = 7 : 3 ~ 8.5 : 1.5 の範囲が最適に近いと推測された。

[2] 押出成形および耐水化条件の探索（論文5）

バイオマス粉末 : NH4-CMC = 10 : 2 (NH4-CMC使用量がバイオマス粉末の1/5) に照準を定め、成形に必要な水分量を探索したところ、紙粉では14部、木粉では15部となった。図16に、紙粉 : NH4-CMC = 10 : 2、木粉 : NH4-CMC = 10 : 2 で成形した紙粉シートと木粉シートについて、105または150°Cで、1または3 hで加熱処理し、水に浸漬したときの様子を示す。未加熱のサンプルは浸漬直後から吸水を開始し、30分後には完全に膨潤したのに対して、加熱サンプルは水中で長時間形状を保持することができた。吸水による試験片膨潤の度合いは、未処理 > (105°C-1 h) > (105°C-3 h) > (150°C-1 h) > (150°C-3 h) であり、試験後水中から試験片を取り出す際、105°C加熱サンプルは崩壊し、150°C加熱サンプルは形状に大きな変化はなかった。以上より、NH4-CMCを助剤としてバイオマス粉末を押出成形し、その後加熱処理により不溶化させるシステムは特に150°Cにおいて良好に成立し、架橋剤不要の新しい成形法として有望であることが実証された。また加熱温度と加熱時間により、水中での吸水・崩壊時間をコントロールできることも明らかとなった。

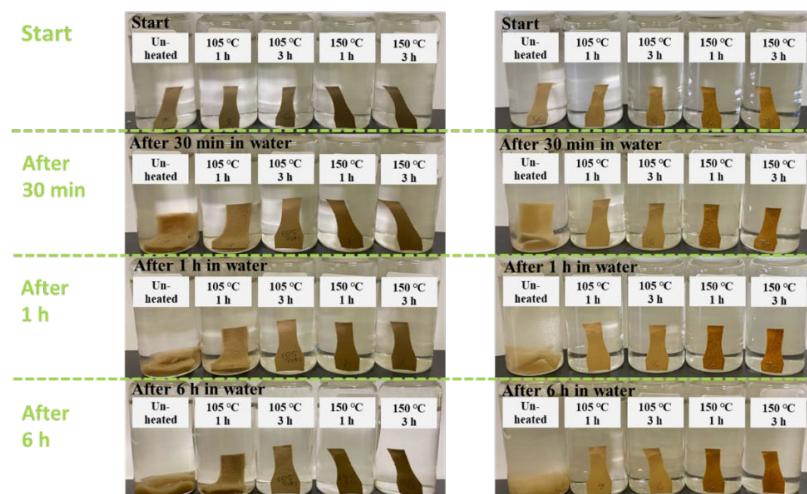


図16 105または150°Cで、1または3 h加熱処理した紙粉シート（左）と木粉シート（右）の水中における崩壊の様子（浸漬開始～6時間後まで）（論文5）

未加熱および加熱処理後の木粉シートを真空乾燥後、30°C 70%RH条件下で、0、15、30、60、120分吸湿処理後、すぐに強度試験を行った結果を図17に示す。横軸にシート吸湿率（乾重基準）、縦軸に引張強度を示した。吸湿率ゼロでは、未加熱、加熱問わず70 MPa程度の強度となった。いずれのシートも時間とともに吸湿が進み、引張強度が50 MPa程度にまで減少したものの、十分に使用に耐える強度だった。また独自開発の表面粘着性試験では、加熱処理を行ったシートは、浸水後、50°C 90%RH での吸湿後とも、“べたつき”は感じない状態であり、粘着力を測定することができなかった。

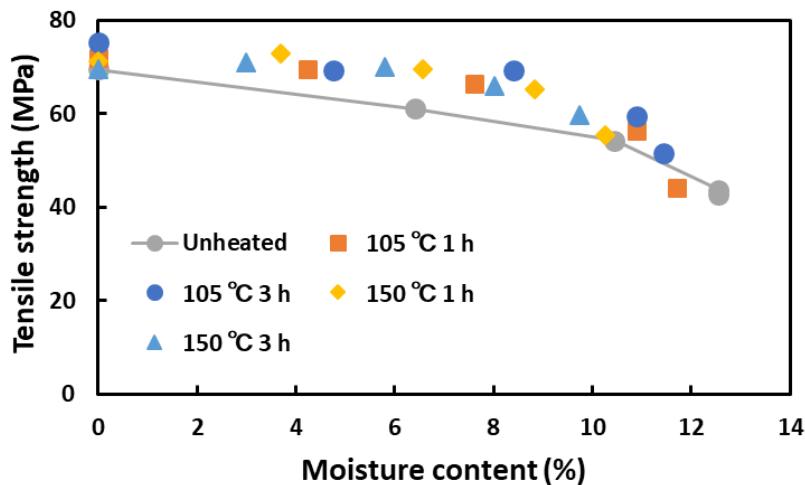


図17 105または150°Cで、1または3 h加熱処理した紙粉シートと木粉シートを30°C 70%RH条件下で調湿した後の引張強度とシート含水率（乾重基準）の関係（論文5）

NH4-CMC (NA-L) の粉末を加熱後、元素分析をしたところ、窒素含量の順は、未処理 > (105°C-1 h) > (105°C-3 h) > (150°C-1 h) > (150°C-3 h) であり、水中での崩壊しやすさに完全に対応していた。これはNH4-CMCからのNH3の脱離によるものである。一方、(150°C-3 h)の加熱条件でも、Nは2%以上であったことは予想外であり、アンモニウム塩が残っていても十分に耐水化されることが明らかとなった。加熱による反応は、アンモニアの脱離としか知られていなかったが、フーリエ変換赤外分光分析(FT-IR分析)より脱離したNH3がH-CMCと再結合し、アミドを生成している可能性が示唆された。加熱処理後のNH4-CMCを0.1 M NaOHに溶かしたのち、HClを用いて酸性化して、沈殿として得られる酸型CMCの窒素含量の分析を行った。アンモニウム塩は、アルカリに溶解、酸性化によりH型に変換され窒素は失われる。これに対してアミドはアミドのまま存在する。よって窒素分析値はアミドの割合を示す。本方法により、NH4-CMCの加熱に伴うアンモニウム塩の減少、アミド生成割合の定量に成功した。本内容は当初の予定外だが、NH4-CMCの水不溶化の原理に関する重要な化学反応と考えている（図18）。

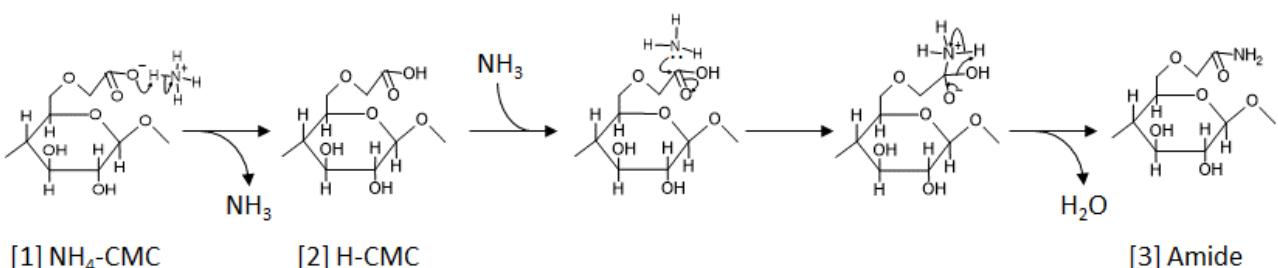


図18 加熱に伴うNH4-CMCの反応。HN3の脱離のみならずアミドの生成を確認

[3] NH4-CMC の粘度・量、木粉粒径、グリセリン添加の影響

以下の組成で調製した木粉シートを150°Cで0.5、1、3 h加熱し、水浸漬試験、引張強度試験、柔軟性試験を行い、NH4-CMCの粘度・量、木粉粒径、グリセリン添加が与える影響を評価した。いずれのシートも0.5 hの加熱で、水中24時間後、崩壊しなくなった。図19に、20°C65%RHで調湿した引張強度試験の結果を示す。図19eに、NH4-CMCの粘度、NH4-CMCの割合、木粉粒径、グリセリンの添加が、伸び率に与える影響を示した。

No.	使用原料	組成	略称
①	木粉（スギ、91 μmアンダー）：NH4-CMC（NA-L、粘度中）：水	10 : 2 : 15	NA-L
②	木粉（91 μm）：NH4-CMC（DN800H、粘度大）：水	10 : 2 : 15	DN800H
③	木粉（91 μm）：NH4-CMC（NA-3L、ニチリン化学、粘度小）：水	10 : 2 : 15	NA-3L
④	木粉（91 μm）：NH4-CMC（NA-L）：水	10 : 2.5 : 15	High NA-L
⑤	木粉（スギ、178 μmアンダー、那賀ウッド）：NH4-CMC（NA-L）：水	10 : 2 : 15	Large WP
⑥	木粉（91 μm）：NH4-CMC（NA-L）：水：グリセリン	10 : 2 : 13 : 2	Glycerin

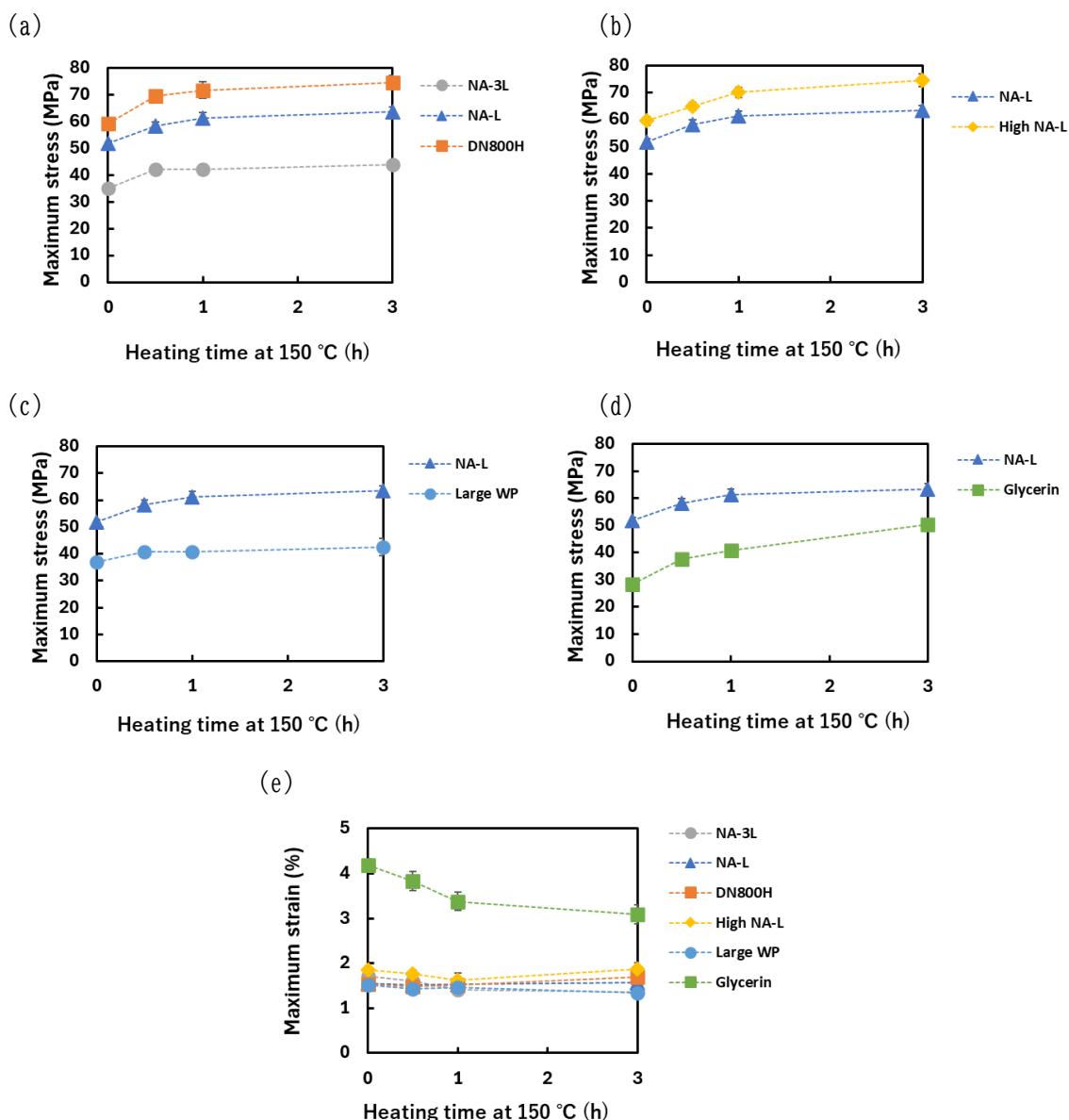


図 19 150°Cでの加熱時間と木粉シート（20°C65%RH で調湿後）の引張強度に対する(a)NH4-CMC の粘度の影響、(b)NH4-CMC の割合の影響、(c)木粉粒径の影響、(d)グリセリン添加の影響、(e)伸び率の変化

●NH4-CMC の影響

応力の比較では②>①>③の順となり、粘度の高い NH4-CMC を用いた木粉シートほど応力が大きいことが確認された。一般的に、粘度が高いほど分子量も大きく、バインダー（接着剤）としての機能が向上する。特に、(1) 木材へのぬれ性、(2) 接着剤の凝集力の観点から、粘度の高い NH4-CMC の方が木粉シートの密度を高め、強度を向上させる効果を持つと考えられる。

●木粉と NH4-CMC の比率の影響

木粉と NH4-CMC の比率が異なる①と④を比較すると、応力は④>①であり、NH4-CMC 比率が高いほどシートの強度が向上することが示された。これは、木粉間の隙間を埋めるバインダー量が増加することで密度が高まり、強度の向上につながるためと考えられる。

●木粉の粒径の影響

木粉の粒径が異なる①と⑤を比較した場合、応力は①>⑤であり、粒径が小さい方が強度が高くなることが確認された。粒径が小さいほど表面積が増し、より密な木粉シートを形成することが可能となるためである。

●グリセリン添加の影響

グリセリンの有無が異なる①と⑥を比較すると、グリセリンを含む⑥は絶乾時の引張強度が大きく低下した。一方で、伸びは顕著に向上していた。吸湿率の測定結果より、グリセリンは、シート内の平衡含水率を高める保湿効果があることが確認されている。この結果から、加熱により耐水化したシートを一般的な環境下で使用する際には、グリセリンが柔軟性の向上に寄与することが分かった。HPMC を助剤とする場合、加熱時にグリセリンはクエン酸と反応し柔軟性を付与しなくなるのとは対照的である。

●解体試験

150°C、0.25~6 h 加熱した木粉シート①②に、0.1 M NaOH を加えると、すぐに膨潤して崩壊した。溶液が茶色に変色したが、これは木粉に NaOH を加えた時にもみられたため木粉由来の溶出物であると考えられる。攪拌後の溶液は懸濁していたが、遠心分離をすることにより水相と固相に分離することができた（図 20）。水相には、NaOH に溶解した NH4-CMC および木粉由来の溶出物が含まれ、固相には木粉が分離される。

水相を SEC 分析した結果、RI 検出器で NH4-CMC を検出することができた。表1に各加熱シートから溶かした NH4-CMC の平均分子量 M_w 、 M_n を示す。DN800H の方が粘度が高く、平均分子量が大きい。NA-L、DN800H とともに 150°Cでの加熱とともに低分子化することが明らかとなった。一方、150°Cでの加熱により引張強度に変化はないので（図 19）、NH4-CMC の低分子化により強度の低下はないと考えられる。

将来的に成形品の解体、NH4-CMC のリサイクルを考えたとき、高分子量を維持することが望ましい。すなわち必要な耐水性に応じて、必要十分な加熱条件で加熱することが肝要となる。



図20 耐水化した木粉シートを
0.1 M NaOHに浸漬して解体し遠心
分離した様子

表1 耐水化した木粉シートから抽出した NH4-CMC の
分子量分布測定の結果

Sample	NA-L			DN800H		
	M_n	M_w	M_w/M_n	M_n	M_w	M_w/M_n
Unheated	152464	375961	2.4659	179081	473623	2.6447
150 °C 0.25 h	126696	307528	2.4273	151549	393886	2.5991
150 °C 0.5 h	113828	277058	2.4340	135882	358805	2.6406
150 °C 1 h	97686	248738	2.5463	125249	336352	2.6855
150 °C 3 h	77744	196272	2.5246	105841	287892	2.7200
150 °C 6 h	61656	157107	2.5481	95540	266244	2.7867

[4] NH4-CMC を助剤とするコーヒー粕成形と変形を抑えた耐水化（研究項目3を兼ねる）

コーヒー粕：NH4-CMC (DN800H) : 水 = 10 : 2 : 14 の組成で、混練真空押出成形機を用いて厚さ 3 mm のプレートの押出成形に成功した。しかし HPMC を助剤とする場合に比べて、水の使用量が多いため、60°Cの乾燥機で乾燥後、ワカメのように大きく変形してしまった。この状態から耐水化された平らなプレートを作る方法を多数試した結果、以下には代表的な 3 つを報告する。

【方法 1】 含水率約 15%のプレートを、直接 150°C、30 分間熱プレスを行った。含水率が約 15%のときは、成形品は水分の存在によりしなやかであり、割れずにプレスすることができた。 30 分プレス後、熱板をあげた際に勢いよく湯気がでた。水の抜け道がないため、内部に閉じ込められた高圧水蒸気が開放され、成形品表面に膨らみを生じ、外観不良となった。

【方法 2】 そのため含水率を下げたのちに、熱プレスすることを考えた。含水率を約 8%にまで下げ、150°Cで熱プレスをすべく荷重をかけたところ割れてしまった。これは含水率低下により、成形品が硬くなっていたためである。その後、HPMC と同様に加熱をすると材料が柔らかくなる性質を見出し、乾燥機を用いて 120°Cで余熱後 150°C、30 分間熱プレスを行った。これは成功したが、水蒸気による表面膨らみの兆しはあった。また 150°C、30 min のプレスは、熱プレス機を占有し律速となるのみならず、おそらくはコーヒー粕由来のオイルが搾りだされているため、表面に光沢を生じた。

【方法 3】 含水率約 15%のプレートを、120°C、2 分間（必要に応じて時間を延ばす）熱プレスを行うと、平らなプレートが得られる。これを乾燥機内で 150°C、1、2、3 時間加熱したところ、形状を維持し、外観不良もなかった（図 21）。含水率が低く硬い成形品についても、120~150°Cで短時間余熱を行うことにより、材料が柔らかくなり、120°C、2 分間のプレスができた。

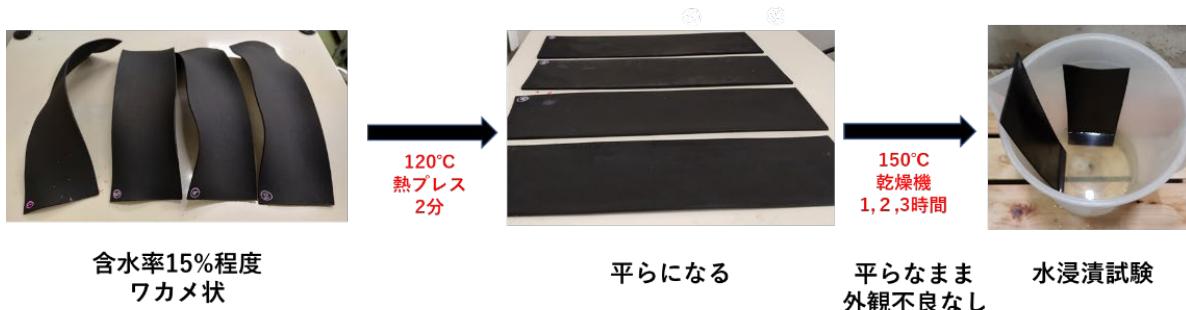


図 21 コーヒー粕プレートの乾燥、加熱シーケンスの探索

[5] 本項目のまとめ

紙粉、木粉、コーヒー粕の組成（紙粉：NH4-CMC：水=10：2：14、木粉：NH4-CMC：水=10：2：15、コーヒー粕：NH4-CMC：水=10：2：14）を用いた押出成形が可能であることを確認し、NH4-CMCの使用量をバイオマス粉末重量の1/5に抑えることができた。HPMC と比較すると、適切な加水量の調整が必要となった。押し出した成形シートに対して、以下の条件で加熱処理を実施した：(105°C-1 h)、(105°C-3 h)、(150°C-1 h)、(150°C-3 h)。その後、水への浸漬試験により耐水化（水不溶化）の検証を行った。その結果、耐水化の度合い（吸水しにくさ）は 150°C-3時間 > 150°C-1時間 > 105°C-3時間 > 105°C-1時間 の順となり、この傾向は加熱条件下でのNH4-CMCの窒素含有率の低下、すなわちNH3の脱離進行と相関していた。また脱離したNH3が再結合してアミドが生成していることを世界で初めて科学的に明らかにした。

150°Cで加熱したサンプルを室内環境 (20°C 65%RH) に調湿した後、40~70 MPaの引張強度を示した。また、粘度の高いNH4-CMCの使用や粒径の小さい木粉を組み合わせることで、強度の向上が確認された。一方で、グリセリンの添加は吸湿量を増大させ、強度を低下させるものの、柔軟性を向上させる効果があった。

薄いシート状の成形品は、テンションをかけながら高温ドラムを介して乾燥させることができた。厚手のシートは、乾燥後に大きく変形するが、120~150°Cの余熱によって柔軟化し、すかさず120°Cで熱プレスを行うと平滑化が可能で、最終的に150°Cの加熱で平らな耐水化した成形品を得るシーケンスを開発した。

吸湿時や水濡れ時にも表面が粘着性を帯びることはなく、NH4-CMCの使用量をバイオマス粉末重量の1/5に抑えた状態で、システムの確立に向けた重要な指標を達成した。これらの結果から、NH4-CMCを助剤として用いたバイオマス粉末の押出成形と加熱処理による水不溶化システムは、有望な技術であることが実証された。

研究項目3：成形品の形状制御と耐水化の両立を両立する加熱・乾燥システムの探索

[1] 湿式成形体への高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法の適用（論文6）

図22に示すように、高周波誘電加熱の併用および高周波進行波電力を強くすることで乾燥時間の短縮が可能となり、その挙動を定量的に示すことが確認できた。また、高周波進行波電力0 Wの通常の真空凍結乾燥と比較して、10 W、20 Wの照射条件では形状変化および収縮に顕著な影響は認められず、収縮挙動は高周波誘電加熱の有無ではなく、含水率の低下によって大きな影響を受けていることが確認できた。しかし、25 Wの照射条件では、その他の条件よりも収縮挙動が異なる結果となった。さらに、近赤外分光画像計測結果に関しては、高周波誘電加熱の併用による乾燥後試料内の化学的特性に有意な影響はなく、均一に乾燥が進行していることが確認できた。材料強度に関する検討では、高周波進行波電力0 W、10 W、20 Wの場合、試料に含まれている水分量に大きく起因し、材料強度の上昇が確認された。以上より、木粉由来バイオマス試料に関して、乾燥後試料の化学的・物理的特性を損なうことなく、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法により乾燥時間の数十%の短縮および乾燥に要する消費電力の著しい削減が可能となった（図23）。そして、乾燥後試料の特性評価を考慮すると、本研究の実験条件においては、高周波進行波電力を20 Wとすることが最適であった。

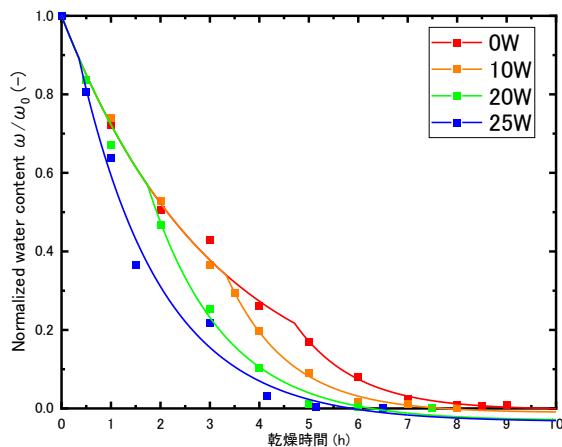


図22 円盤状試料の高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥過程における正規化含水率の経時変化（論文6）

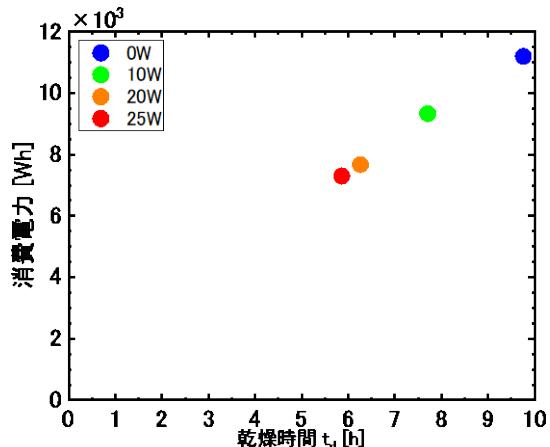


図23 高周波併用真空凍結乾燥に関する消費電力量と乾燥時間との関係（論文6）

[2] 加熱・乾燥シーケンスの検討、成形品強度への影響解析（論文4）

赤外線-通風併用乾燥法を木粉由来のオールバイオマス湿式押出成形物に適用し、その有効性を検討した。その結果、赤外線と熱風を組み合わせた赤外線-通風併用乾燥法は、試料の膨化や表面の焦げといった変性を抑制するとともに、乾燥時間の短縮、消費電力量の削減に成功した。また、図24に示したように、乾燥過程で乾燥条件を制御することで、試料の品質を損なうことなく（図25、特徴的な吸収帯における分光画像）、乾燥時間をさらに短縮し、消費電力量を削減できる可能性を実験とシミュレーションで示した。これらの結果は、より多様な乾燥条件を対象にした検討が可能であることが示唆された。さらに、赤外線-通風乾燥後の試料は、形状的・化学的な特性において低温で長時間通風乾燥した試料よりも良好な結果が得られた。以上のように、木粉由来のオールバイオマス湿式押出成形物に関して、赤外線-通風併用乾燥法は試料の品質を損なうことなく最適な乾燥プロセスを実現できることが示された。

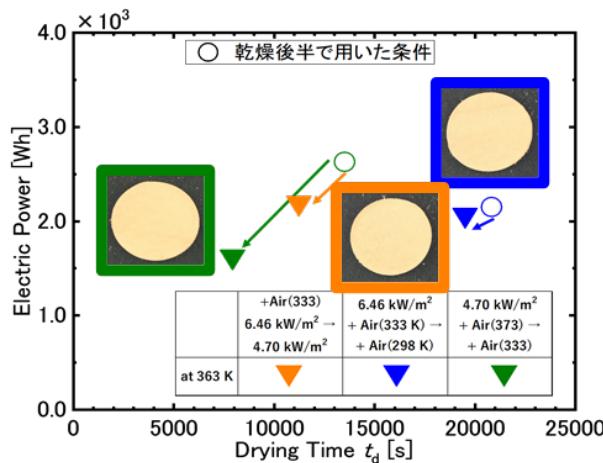


図24 乾燥過程において条件を変更した場合の赤外線-通風乾燥過程における乾燥過程における正規化含水率の経時変化

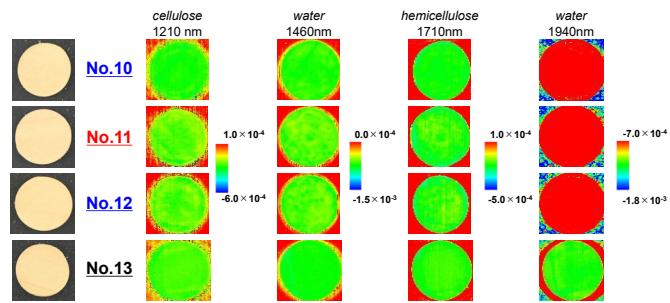


図25 乾燥過程において条件を変更した場合の赤外線-通風乾燥後試料の近赤外分光画像（論文4）

[3] 乾燥、耐水化を一括で行う乾燥方法の探索

上記[1]および[2]の乾燥に関する知見と、研究項目1および2の知見に基づき、クエン酸添加の有無および加熱時間の違いが試料の耐水性に与える影響を検討するとともに、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法を用いた高品質な乾燥試料の作成を目指し、複雑な構造を持つハニカム型試料の乾燥特性の把握を行った。その結果、クエン酸を添加することで、乾燥特性や乾燥後試料の化学的特性に影響は見られなかったものの、材料強度においてはクエン酸を添加していない試料と比べて強度の向上が確認できた。また、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥によるハニカム型試料の乾燥では、円盤型試料と同様、品質を損なうことなく短時間で省電力な乾燥が可能であると同時に、内部の複雑な構造を保ちながら高品質な乾燥製品を作成できることを実験的に示した（図26）。

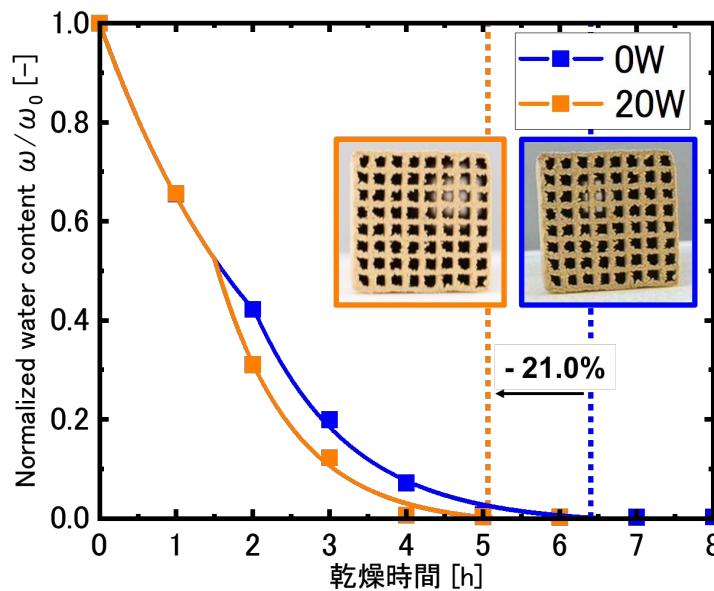


図26 ハニカム状試料の高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥過程における正規化含水率の経時変化と乾燥後試料の外観

さらに、クエン酸を添加し、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法もしくは赤外線-通風併用乾燥各乾燥法によりほぼ絶乾状態まで乾燥後、180°Cで熱硬化処理を行った。図27は、純水中に浸漬された乾燥後試料に及ぼす加熱処理の有無および加熱時間の影響を示した写真である。高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥に関し

ては、円盤型、ハニカム型試料のいずれにおいても、加熱処理を行っていない試料では1 h後には試料表面にぬめりが生じ、4 h後には試料の溶解が顕著に認められた。一方、加熱処理によりクエン酸で架橋された実験試料は形状に関係なく、完全な耐水性を示し、14日後においてもぬめりがなく、また形状を崩すことなく品質を維持する結果となった。このとき、加熱時間30 minと60 minの違いによる耐水性への影響は確認されなかった。つまり、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法では、30 minの加熱処理を行うことで試料に耐水性を付与できることが実験的に示された。

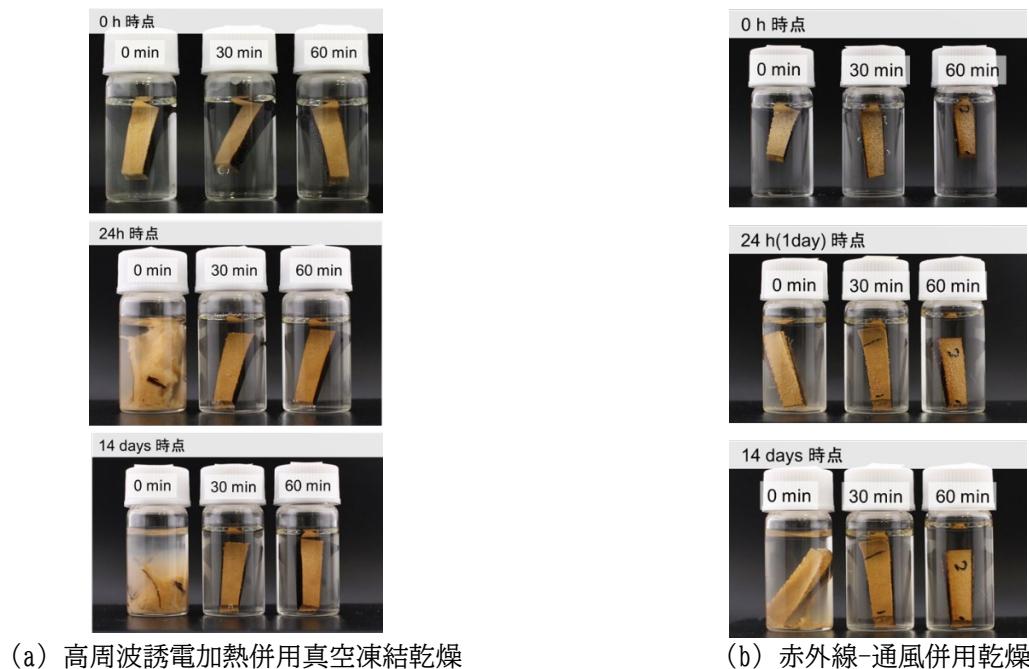


図27 純水中に浸漬された乾燥後試料に及ぼす加熱処理の有無および加熱時間の影響

これらの成果は、本研究において構築した高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法もしくは赤外線-通風併用乾燥法を用いてクエン酸を添加した木粉由来のオールバイオマス湿式押出成形物の品質劣化を抑制しつつ、かつ通常の乾燥方法よりも消費電力量を数十%抑制してほぼ絶乾状態まで乾燥することを可能とした。また、その乾燥試料を453 Kで適切な加熱時間で熱硬化処理することで、試料内部に架橋が形成され、耐水性を向上させることができた。以上より、木粉由来のオールバイオマス湿式押出成形物の最適な乾燥・加熱シーケンスの考え方を提示することができた。

1. 5. 研究成果及び自己評価

1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

<得られた研究成果の学術的意義>

木や紙は、プラスチックのように熱可塑せず、むしろ熱分解する素材のため、成形加工は接着や切削に限定される。本研究は、プラスチックの熱可塑性、食糧との競合の懸念のあるデンプンの糊化性に頼ることなく、セルロース誘導体の増粘性を活用して、バイオマス粉末を三次元成形し、オールバイオマス成形品を生産する点において革新性と独創性がある。粉末を原料にする点において、木粉のほか、紙粉、竹粉、コーヒー粒など、各種バイオマス粉末を利用可能で、廃棄物系バイオマスにも適用しやすい点においても先導的である。本課題では、バイオマス粉末の1/4~1/5量という少ない量のセルロース誘導体でも、木粉やコーヒー粒を押出成形、耐水化可能であること、また耐水化のための加熱により強度の低下もないこと、を明らかにした点において学術的意義が非常に高く（論文3、5）、社会実装に直接つながりうる発展性を有する。

本技術は水を使う湿式成形のため、プラスチックの熱可塑成形とは異なり、成形後に乾燥・耐水化作業が必要となる。乾燥に伴う変形制御が重要な課題であったが、形状や厚さに応じて、巻取乾燥成形法、熱プレス矯正乾燥法、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法（論文6）、赤外線一通風併用乾燥法（論文4）、を適用し、変形を抑えて耐水化させることに成功した。これは今後の社会実装に向けて大きな発展性のある成果である。バイオマテリアル全般として水の関わりが重要であり、今回見出した乾燥・加熱技術は、広く応用展開できる可能性がある。

また本課題では、セルロース誘導体や架橋剤のクエン酸の使用量は極力抑えるというスタンスだった。グリセリン添加系で成形品を耐水化させるために、HPMCと等量のクエン酸を添加したところ、偶然にも常温での耐水性獲得の予兆を得た。クエン酸による多糖類の架橋に関する既往の研究は、基本的には170℃前後なので、100℃以下の低温でも十分に架橋が進行する可能性を示したのは超革新的である。また研究が少なく水不溶化のメカニズムについて知見のなかったNH₄-CMCの加熱による構造変化について、独創性ある手法で、世界初の知見を得た。

<環境政策等へ既に貢献した研究成果>

コーヒーショップで産業廃棄物となっているコーヒー粒を回収し、株式会社ダルトン（株式会社イトーキ傘下）が100 kgスケールで乾燥・微粉碎をするノウハウを確立した。本研究開発の押出成形技術を用いて、20 kgスケールで厚さ3 mmのプレートを連続成形、イトーキが家具、インテリア向けのパネル部材などとして活用し（図28）、ボードやツールを試作、展示会等で好評を得ている。一連のコーヒー抽出残渣の粉碎・乾燥、成形による基材製造と家具製作（特許2）、コーヒー抽出残渣成形品を用いた他素材との積層体の製作（特許1）について、三重大学・株式会社イトーキ共同で特許出願を行い、インテリア製品へのアップサイクルを模索している。

試作作成の流れ

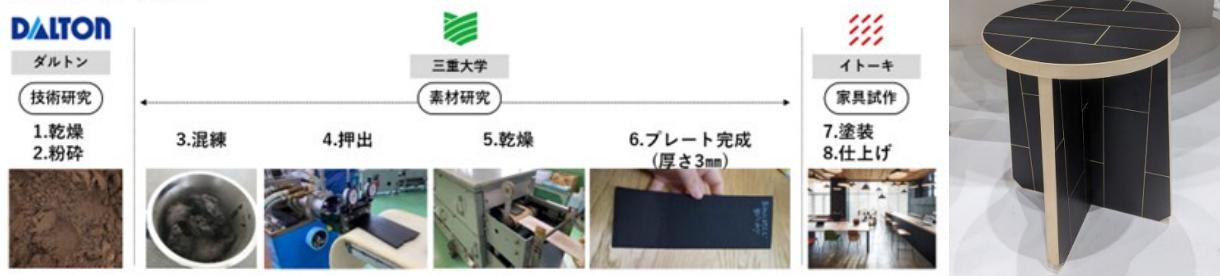


図28 コーヒー抽出残渣の乾燥・粉碎、新規成形法による押出成形、ツール試作

<環境政策等へ貢献することが見込まれる研究成果>

この研究は、ライフサイクル全体での資源循環を徹底し、環境政策や環境産業へ貢献する。例えば、コーヒーに関しては、コーヒー粕のアップサイクルにより、コーヒー業界が抱える「2050年問題（地球温暖化、異常気象の発生等により、コーヒービジネスが50%程度にまで縮小）」への対応を図り、嗜好飲料以外の価値を創出することで生産者への利益還元につなげる狙いがある。

●環境政策への貢献：

- 廃棄段階の最適化に焦点を当て、木粉、コーヒー粕、その他多様なバイオマス粉末を、全量活用する取り組みにより循環型社会の促進。
- バイオマスを活用したインテリア製品や建材、容器・包装類の生産技術を発展させることで、脱プラスチック社会の構築を後押し。
- 竹粉などの未活用資源の活用を通じて、地域課題の解決にも寄与。

●社会的・経済的な影響：

- 飲料メーカーとコーヒーショップなどと連携し、資源循環型ビジネスの構築を促進。
- インテリア製品として活用することで廃棄物削減を実現し、新たな環境型素材の認知拡大。
- 石油由来接着剤の使用が多い木質ボードの脱炭素化やプラスチック代替技術の発展に貢献し、環境産業全体への波及効果を期待。
- フードシステムにおける持続可能なモデルとして展開可能であり、各種バイオマス粉末の活用にも適用。

本課題研究成果の応用範囲は広く、国内外での社会実装が進めば、大きな経済的・環境的価値が生まれると期待される。

1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価

<全体達成状況の自己評価> · · · ·

1. 目標を大きく上回る成果をあげた

「セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立」(三重大学、野中 寛)

全体目標	全体達成状況
<p>[1] セルロース誘導体（HPMC）を助剤とし、クエン酸を架橋剤として添加する、木粉・コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。</p> <p>[2] セルロース誘導体（NH4-CMC）を助剤とする、木粉、コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。</p> <p>●システム確立の指標として、得られるオールバイオマス成形品が、30分の高温多湿条件下（ホットカッピング用リッドを想定）で、①強度を維持する、②表面がべとつかない（浸出物が少ない）こと、を設定する。</p> <p>●原料のなかでセルロース誘導体のコストが最も高い（実売ベースで2000円/kg程度。なおセルロースナノファイバーは、この価格よりずっと高価）ので、バイオマス粉末重量の1/4以下の使用量に抑えることを目指す。</p>	<p>1. HPMCを助剤とし、クエン酸を添加するシステムでは、170°C程度での耐水化が適切であり、高温多湿条件下においても十分な強度を維持し、表面のべたつきもなかった。またHPMC使用量はバイオマス粉末の1/4～1/5以下に低減できた（成果3論文）。</p> <p>2. NH4-CMCを助剤とするシステムについては、成形組成を見出し、150°Cでの耐水化を確立した。室内環境下で十分な強度を維持し、表面のべたつきもなかった。NH4-CMC使用量はバイオマス粉末の1/5で成形できた（成果5論文）。</p> <p>3. 湿式押出成形品の乾燥法として、形状や厚さに応じて、巻取乾燥成形法、熱プレス矯正乾燥法、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法（成果6論文）、赤外線一通風併用乾燥法（成果4論文）を適用し、変形を抑えて耐水化させることに成功した。</p> <p>掲げた全体目標を完全にクリアするのみならず、偶然に常温での耐水化反応を見出し、未知だったNH4-CMCの機構解明も進むなど、化学反応の観点からも新規的な知見が多く得られ、また複数の企業との連携活動も進んだ（成果1～2特許）ことから、目標</p>

	を上回る成果をあげたと言える。
--	-----------------

<サブテーマ1 達成状況の自己評価> · · · · · 1. 目標を大きく上回る成果をあげた

「セルロース誘導体を助剤とするバイオマス粉末押出成形・耐水化システムの確立」（三重大学、野中寛）

サブテーマ1目標	サブテーマ1達成状況
<p>[1] セルロース誘導体（HPMC）を助剤とし、クエン酸を架橋剤として添加する、木粉・コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。</p> <p>[2] セルロース誘導体（NH4-CMC）を助剤とする、木粉、コーヒー粕の押出成形・耐水化システム（組成、成形、乾燥、加熱）を確立する。</p> <p>●システム確立の指標として、得られるオールバイオマス成形品が、30分の高温多湿条件下（ホットカップ用リッドを想定）で、①強度を維持する、②表面がべとつかない（浸出物が少ない）こと、を設定する。</p> <p>●原料のなかでセルロース誘導体のコストが最も高い（実売ベースで2000円/kg程度。なおセルロースナノファイバーは、この価格よりずっと高価）ので、バイオマス粉末重量の1/4以下の使用量に抑えることを目指す。</p>	<p>1. HPMCを助剤とし、クエン酸を添加するシステムでは、170℃程度での耐水化が適切であり、高温多湿条件においても十分な強度を維持し、表面のべたつきもなかった。またHPMC使用量はバイオマス粉末の1/4～1/5以下に低減できた（成果3論文）。</p> <p>2. NH4-CMCを助剤とするシステムについては、成形組成を見出し、150℃での耐水化を確立した。室内環境下で十分な強度を維持し、表面のべたつきもなかった。NH4-CMC使用量はバイオマス粉末の1/5で成形できた（成果5論文）。</p> <p>3. 湿式押出成形品の乾燥法として、形状や厚さに応じて、巻取乾燥成形法、熱プレス矯正乾燥法、高周波誘電加熱併用真空凍結乾燥法（成果6論文）、赤外線一通風併用乾燥法（成果4論文）を適用し、変形を抑えて耐水化させることに成功した。</p> <p>掲げた全体目標を完全にクリアするのみならず、偶然に常温での耐水化反応を見出し、未知だったNH4-CMCの機構解明も進むなど、化学反応の観点からも新規的な知見が多く得られ、また複数の企業との連携活動も進んだ（成果1－2特許）ことから、目標を上回る成果をあげたと言える。</p>

1. 6. 研究成果発表状況の概要

1. 6. 1. 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	2
査読付き論文	4
査読無し論文	0
著書	8
「国民との科学・技術対話」の実施	15
口頭発表・ポスター発表	28
マスコミ等への公表・報道等	4
成果による受賞	3
その他の成果発表	4

1. 6. 2. 主要な研究成果発表

成果番号	主要な研究成果発表 (「研究成果発表の一覧」の査読付き論文又は著書から10件まで抜粋)
3	Hiratsuka H, Tao X, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), Properties of wood powder sheets extruded with hydroxypropyl methylcellulose and citric acid after heating, <i>Bioresources</i> , 20(1), 1900–1914. https://doi.org/10.15376/biores.20.1.1900-1914
4	常岡華奈, 野中 寛, 末原憲一郎, 橋本 篤 (2025), オールバイオマス湿式押出成形品の赤外線-送風併用乾燥特性材料, 化学工学論文集, 51(3), 68–74.
5	Kimata H, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), All-Biomass Composite Sheet Made by Extrusion of Biomass Powder Using Ammonium Carboxymethylcellulose (NH ₄ -CMC), <i>Waste and Biomass Valorization</i> , published online 05 May. https://doi.org/doi:10.1007/s12649-025-03069-7
6	Tsuneoka H, Suehara K, Nonaka H, Hashimoto A (2025), Effects of Assistance of High-Frequency Dielectric Heating on Vacuum Freeze Drying Characteristics of All Biomass Wet-Extruded Disk, <i>Drying Technology</i> , 43(10), 1593–1602.
8	野中 寛 (2023), オールバイオマス成形技術の開発木質資源の成形, 「海洋汚染問題を解決する生分解性プラスチック開発」 (NTS Inc.) (監修:岩田忠久), pp. 299–306

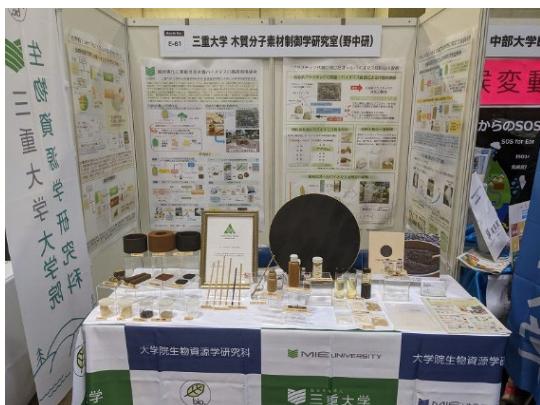
9	野中 寛（監修）（2023），特集 パルプや木質の成形技術 —100%バイオマスプロダクトを目指す—，BIOINDUSTRY, 40(3), 1-57.
10	野中 寛（2023），セルロース誘導体を用いるバイオマス粉末の押出成形，Glycoforum, 26(6), A22. (日本語版) https://doi.org/10.32285/glycoforum.26A22J Nonaka H (2023), Extrusion molding of biomass powder with cellulose derivatives, Glycoforum, 26(6), A22. (英語版) https://doi.org/10.32285/glycoforum.26A22
11	野中 寛（2023），木質資源の成形技術，成形加工, 35(12), 426-429. https://doi.org/10.4325/seikeikakou.35.426
12	野中 寛（2025），バイオマス粉体の成形技術開発，粉体技術, 17(2), 104-110.

注：この欄の成果番号は「研究成果発表の一覧」と共通です。

1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動

「国民との科学・技術対話」の実施：15件、マスコミ等への公表・報道等：4件、その他：4件などである。主な普及活動を以下にあげた。東京ビッグサイトで行われる大規模な展示会：NEW環境展、および、エコプロには例年出展し、ポスターや試作品の展示を通して本研究課題の成果広報を行い、来場者との対話をしている（図29）。本研究課題に関する成形、乾燥、耐水化の一連のシステムは、「木質粉体の湿式押出成形」としてウッドデザイン賞2023を受賞した（図30、成果6.3）。また海外から来る学生や若手研究者への対応もたびたび行っており、シーズ技術を体験させるなどしている。

成果番号	成果情報
45	展示会：エコプロ2022（東京ビッグサイト, 2022/12/7-9） 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース, ERCAブース
47	展示会：オルガテック東京2023（東京ビッグサイト, 2023/4/26-28） 本研究開発で製作したコーヒー粕パネルを用いて試作したツールを展示（ITOKIブース）
49	展示会：2023NEW環境展（東京ビッグサイト, 2023/5/24-26） 三重大学大学院生物資源学研究科ブース
52	展示会：エコプロ2023（東京ビッグサイト, 2023/12/6-8） 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース, 動き出す未来ステージ
53	展示会：2024NEW環境展（東京ビッグサイト, 2024/5/22-24） 三重大学大学院生物資源学研究科ブース
57	展示会：エコプロ2024（東京ビッグサイト, 2024/12/4-6） 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース
58	PRTIMES（2022年12月2日）「イトーキ×三重大学×ダルトン、サステナブルなエコ素材として注目される「コーヒー豆のかす」活用を共同研究」
63	ウッドデザイン賞2023（JAPAN WOOD DESIGN AWARD 2023） 三重大学 木質分子素材制御学研究室「木質粉体の湿式押出成形」
68	南太平洋大学の学生に対する講義、本プロジェクト技術シーズの体験（三重大学, 2024/1/22） *公益財団法人国際環境技術移転センター（ICETT）に協力



エコプロ2022 木質分子素材制御学研究室ブース



ERCAブース



オルガテック東京2023（オフィス家具展示会）



2023NEW環境展



エコプロ2023 動き出す未来ステージ



木質分子素材制御学研究室ブース



JST交流事業 南太平洋大学の学生に講義・研究体験

図29 主要な研究成果普及活動の写真



木質粉体の湿式押出成形

三重大学 木質分子素材制御学研究室(三重県)

- ソーシャルデザイン部門
- ▲ 調査・研究分野
- 調査・研究の新領域、その他／異分野視点による調査・研究

木質粉体に水溶性セルロース誘導体を添加すると、湿式押出成形が可能となり、成形後乾燥によりオール木質成形品が得られる。セラミックス用いる真空混練押出成形機を流用してシート、ハニカム、板、チューブ等の大量連続成形、クエン酸内添による成形品の水不溶化にも成功しており、新たな木材成形技術として期待される。

評価のポイント

木材の成形、加工のさらなる可能性を求めて、木粉の湿式押出成形に取り組んだ研究。様々な形状に木材を加工できれば、より複雑なデザイン、木どうしの組み合わせ、など新たな木材活用の展開につながる。さらなる技術進化に期待したい。

問合・入手・技術提供の方法（連絡先） 大学研究室、あるいは、展示会出展の際にブースにお越しいただければ、見ていただくことが可能です。木材学会等の学術会議でも学会発表を行っています。

※掲載している内容・価格などは、受賞当時の情報です。現在の情報とは異なる場合があります。
詳しくは受賞作品の連絡先へお問い合わせください。

図30 ウッドデザイン賞2023 を受賞

1. 7. 国際共同研究等の状況

<国際共同研究の概要>

国際共同研究を実施していない。

<相手機関・国・地域名>

機関名（正式名称）	(本部所在地等) 国・地域名

注：国・地域名は公的な表記に準じます。

1. 8. 研究者略歴

<研究者（研究代表者及びサブテーマリーダー）略歴>

研究者氏名	略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等）
野中 寛	<p>研究代表者及びサブテーマ1リーダー 東京大学大学院工学系研究科 博士課程修了 博士（工学） 地球環境産業技術研究機構研究員、三重大学准教授を経て、 現在、三重大学大学院生物資源学研究科 教授 セルロース学会東海・北陸支部長、理事 専門は、バイオマス科学、林産化学、化学工学 研究テーマは、バイオマスの高度有効利用</p>

2. 研究成果発表の一覧

(1) 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	2
査読付き論文	4
査読無し論文	0
著書	8
「国民との科学・技術対話」の実施	15
口頭発表・ポスター発表	28
マスコミ等への公表・報道等	4
成果による受賞	3
その他の成果発表	4

(2) 産業財産権

成果番号	出願年月日	発明者	出願者	名称	出願以降の番号
1	2024年6月	小島勇、山本洋平、坂田幸、澤田浩一、野中寛	株式会社イトーキ、国立大学法人三重大学	積層体、積層体の製造方法、及び家具	特願2024-102316
2	2024年6月	管智士、小島勇、山本洋平、坂田幸、澤田浩一、野中寛	株式会社イトーキ、国立大学法人三重大学	基材及び家具	特願2024-102317

(3) 論文

<論文>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
3	2024	Hiratsuka H, Tao X, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), Properties of wood powder sheets extruded with hydroxypropyl methylcellulose and citric acid after heating, <i>Bioresources</i> , 20(1),	1	有

		1900-1914. https://doi.org/10.15376/biores.20.1.1900-1914		
4	2025	常岡華奈, 野中 寛, 未原憲一郎, 橋本 篤 (2025), オールバイオマス湿式押出成形品の赤外線-送風併用乾燥特性材料, 化学工学論文集, 89(7), 359-362.	1	有
5	2025	Kimata H, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), All-Biomass Composite Sheet Made by Extrusion of Biomass Powder Using Ammonium Carboxymethylcellulose (NH ₄ -CMC), <i>Waste and Biomass Valorization</i> , published online 05 May. https://doi.org/doi:10.1007/s12649-025-03069-7	1	有
6	2025	Tsuneoka H, Suehara K, Nonaka H, Hashimoto A (2025), Effects of Assistance of High-Frequency Dielectric Heating on Vacuum Freeze Drying Characteristics of All Biomass Wet-Extruded Disk, <i>Drying Technology</i> , 43(10), 1593-1602.	1	有

(4) 著書

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
7	2022	野中 寛 (2022), 石油からバイオマスへの原料転換の課題と展望 脱炭素社会における木質バイオマスの役割, 生物資源, 16(2), 2-15.	1
8	2023	野中 寛 (2023), オールバイオマス成形技術の開発木質資源の成形, 「海洋汚染問題を解決する生分解性プラスチック開発」(NTS Inc.) (監修:岩田忠久), pp.299-306	1
9	2023	野中 寛 (監修) (2023), 特集 パルプや木質の成形技術—100%バイオマスマスクを目指す—, BIOINDUSTRY, 40(3), 1-57.	1
10	2023	野中 寛 (2023), セルロース誘導体を用いるバイオマス粉末の押出成形, Glycoforum, 26(6), A22. (日本語版) https://doi.org/10.32285/glycoforum.26A22J Nonaka H (2023), Extrusion molding of biomass powder with cellulose derivatives, Glycoforum, 26(6), A22. (英語版) https://doi.org/10.32285/glycoforum.26A22	1
11	2023	野中 寛 (2023), 木質資源の成形技術, 成形加工, 35(12), 426-429. https://doi.org/10.4325/seikeikakou.35.426	1
12	2024	野中 寛 (2025), バイオマス粉体の成形技術開発, 粉体技術, 17(2), 104-110.	1
13	2024	Tsuneoka H, Suehara K, Nonaka H, Hashimoto A (2025), Effects of assistance of high-frequency dielectric heating on vacuum freeze drying characteristics of all biomass wet-extruded plate, AgEng 2024 Proceedings, 1020-1025.	1
14	2025	野中 寛 (2025), セルロース系バインダーを用いるオールバイオマス押出成形, 化学工学, 89(7), 印刷中.	1

(5) 口頭発表・ポスター発表

<口頭発表・ポスター発表>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
15	2022	野中 寛,「バイオマスへの原料転換の課題と展望」,山口地区化学工学懇話会 第79回講演会・見学会(山口大学, 2022/7/8) 依頼講演	1	無
16	2022	山田拓海, 砂原美咲, 盛田浩市, 瀧澤貴弘, 野中 寛, 「セルロース誘導体を助剤とする木粉 3D プリンティングの試み」, セルロース学会第29回年次大会(金沢, 2022/7/21-22) ポスター発表	1	無
17	2022	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「アンモニウム CMC を用いて押出成形した紙粉シートの不溶化特性」, セルロース学会第29回年次大会(金沢, 2022/7/21-22) ポスター発表	1	無
18	2022	陶 相宇, 野中 寛, 「クエン酸を添加した木粉押出成形シートに対する熱処理の影響」, セルロース学会第29回年次大会(金沢, 2022/7/21-22) ポスター発表	1	無
19	2022	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「アンモニウムCMC を助剤とした紙粉押出成形品の特性評価」, 2022年度日本木材学会中部支部大会(塩尻, 2022/10/20) 口頭発表	1	無
20	2022	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「アンモニウム CMC を用いて押出成形した木粉シートの特性評価」, 第73回日本木材学会大会(福岡, 2023/3/14-16) 口頭発表	1	無
21	2022	陶 相宇, 徳永有希, 野中 寛, 「加熱条件下での HPMC-CA 複合フィルムの不溶化メカニズム探索」, 第73回日本木材学会大会(福岡, 2023/3/14-16) 口頭発表	1	無
22	2023	野中 寛, 「セルロース誘導体を用いたバイオマス粉末の押出成形」, 第45回九州紙パルプ研究会講演会(福岡, 2023/6/2) 依頼講演	1	無
23	2023	常岡華奈, 末原憲一郎, 野中 寛, 橋本 篤, 「オールバイオマス成形体の真空凍結乾燥特性に及ぼす高周波誘電加熱の影響」, 農業環境工学関連学会2023年合同大会(つくば, 2023/9/4-8) 口頭発表	1	無
24	2023	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「アンモニウムCMC の加熱による特性変化」, セルロース学会第30回年次大会(広島, 2023/9/28-29) ポスター発表	1	無
25	2023	野中 寛, 「バイオマスの押出成形」, 第51回木材の化学加工研究会シンポジウム(名古屋, 2023/10/6) 依頼講演	1	無
26	2023	砂原美咲, 徳永有希, 野中 寛, 「3Dプリンティング材料としての粘土状木質素材の開発」, 2023年度日本木材学会中部支部大会(金沢, 2023/10/12) 口頭発表	1	無
27	2023	Tao X, Tokunaga Y, Nonaka H, "Mechanical strength of extrusion molding wood sheet after thermal crosslinking treatment", 11th Asian Conference on Biomass Science(秋田, 2023/12/5) 口頭発表	1	無
28	2023	Sunahara M, "Development of Wood-Powder Materials for 3D Printing", The 29th Tri-U International Joint Seminar & Symposium (Tri-U2023)(タイ・チェンマイ, 2023/12/21-23)	1	無

		口頭発表		
29	2023	平塚寛之, 徳永有希, 野中 寛, 「湿式押出成形によるスギ木粉由来バイオマスシートの機械的特性」, 第74回日本木材学会大会(京都, 2024/3/13-15) 口頭発表	1	無
30	2023	常岡華奈, 末原憲一郎, 野中 寛, 橋本 篤, 「オールバイオマス湿式押出成形板の赤外線-熱風併用乾燥特性に及ぼす熱風温度の影響」, 化学工学会第89年会(堺, 2024/3/18-20) ポスター発表	1	無
31	2024	Tsuneoka H, Suehara K, Nonaka H, Hashimoto A (2025), Effects of assistance of high-frequency dielectric heating on vacuum freeze drying characteristics of all biomass wet-extruded plate, AgEng 2024 (ギリシャ・アテネ, 2024/7/1-4) 口頭発表	1	無
32	2024	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「粘度の異なるアンモニウムCMCを用いた木粉の押出成形」, セルロース学会第31回年次大会(熊本, 2024/7/11-12) ポスター発表	1	無
33	2024	野中 寛, 「天然系増粘剤を用いるバイオマス粉末の押出成形」, 2024年度第1回バイオ産業研究会講演会(大阪, 2024/7/29) 依頼講演	1	無
34	2024	野中 寛, 「セルロース誘導体を用いるバイオマス粉末の押出成形」, 高分子講演会(東海)(津, 2024/8/6) 依頼講演	1	無
35	2024	Nonaka H, "All-biomass composite material made by extrusion of biomass powder using cellulose derivatives", 10th International Conference on Engineering for Waste and Biomass Valorization(仙台, 2024/8/20-23) 依頼講演(Keynote Speech)	1	無
36	2024	Nonaka H, "Novel molding method of lignocellulosic powders using cellulose derivatives", 17th European Workshop on Lignocellulosics and Pulp(フィンランド・トゥルク, 2024/8/26-30) ポスター発表	1	無
37	2024	常岡華奈, 末原憲一郎, 野中 寛, 橋本 篤, 「オールバイオマス湿式押出成形板の赤外線-熱風併用乾燥条件の模索」, 化学工学会第55年会秋季大会(札幌, 2024/9/11-13) 口頭発表	1	無
38	2024	Tao X, Tokunaga Y, Nonaka H, "Insolubilization of cellulose derivative: crosslinking with citric acid", 2nd International Symposium on Cellulose and Renewable Materials(中国・成都, 2024/9/21-23) 口頭発表	1	無
39	2024	Nonaka H, "Extrusion molding of biomass powder with cellulose derivatives", CELLIENCE, cellulose science webinar 2024(オンライン, 2024/12/10) 依頼講演	1	無
40	2024	木全遙香, 徳永有希, 野中 寛, 「アンモニウムCMCを用いた木粉押出成形品の強度に影響を及ぼす因子の調査」, 第75回日本木材学会大会(仙台, 2025/3/19-21) 口頭発表	1	無
41	2024	坂田 幸, 野中 寛, 「コーヒー粕押出成形プレート	1	無

		の製作」，第75回日本木材学会大会（仙台，2025/3/19-21）口頭発表		
42	2025	【発表予定】Nonaka H, "All-biomass composite material made by extrusion of biomass powder using cellulose derivatives", ISWFPC2025 (アメリカ・ローリー, 2025/6/1-5) ポスター発表	1	無

(6) 「国民との科学・技術対話」の実施

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
43	2022	高校出前授業（愛知県・高蔵寺高校, 2022/10/27) 「石油の代わりに何つかう？ 植物資源で環境問題に応える」	1
44	2022	滋賀県Innovation Ecosystem in Shiga（長浜, 2022/11/16) 研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話	1
45	2022	展示会：エコプロ2022（東京ビッグサイト, 2022/12/7-9) 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース, ERCAブースにて研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話	1
46	2022	SUZUKA産学官交流会 第52回産学官交流フォーラムにて講演 (鈴鹿, 2023/3/2) 「脱炭素社会におけるバイオマス資源」	1
47	2023	展示会：オルガテック東京2023（東京ビッグサイト, 2023/4/26-28) 本研究開発で製作したコーヒー粕パネルを用いて試作したツールを展示 (ITOKIブース)	1
48	2023	展示会：2023NEW環境展（東京ビッグサイト, 2023/5/24-26) 三重大学大学院生物資源学研究科ブースにて研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話	1
49	2023	高校出前授業（三重県・川越高校, 2023/5/31) 「バイオマス資源利用～脱炭素社会実現に向けて～」	1
50	2023	展示会：FOOMA JAPAN 2023（東京ビッグサイト, 2023/6/6-9) 山口大学生命医工学センター・摂南大学食品加工学研究室・三重大学食品生物情報工学研究室ブースにて研究内容のポスター／来場者との対話	1
51	2023	三重大学大学院生物資源学研究科オープンラボ2023（三重大学, 2023/9/29) 講演／来場者との対話	1
52	2023	展示会：エコプロ2023（東京ビッグサイト, 2023/12/6-8) 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース, にて研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話 動き出す未来ステージにて, 研究室学生が, 一般市民に対して研究成果の講演・説明	1
53	2024	展示会：2024NEW環境展（東京ビッグサイト, 2024/5/22-24) 三重大学大学院生物資源学研究科ブースにて研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話	1
54	2024	高校出前授業（三重県・川越高校, 2024/5/29) 「バイオマス資源利用～脱炭素社会実現に向けて～」	1
55	2024	三重大学大学院生物資源学研究科オープンラボ2024（三重大学, 2024/9/27) ポスター発表／来場者との対話	1
56	2024	高校出前授業（愛知県・名古屋西高校, 2024/12/12) 「バイオマス資源利用～脱炭素社会実現に向けて～」	1
57	2024	展示会：エコプロ2024（東京ビッグサイト, 2024/12/4-6) 三重大学木質分子素材制御学研究室ブース, にて研究内容のポスター／試作品の展示／来場者との対話	1

(7) マスメディア等への公表・報道等

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
5 8	2022	PRTIMES (2022年12月2日) 「イトーキ×三重大学×ダルトン、サステナブルなエコ素材として注目される「コーヒー豆のかす」活用を共同研究」 (この情報をソースとしてインターネットメディアに多数転載)	1
5 9	2023	株式会社イトーキ 統合報告書2023 2023年6月29日公開 p.14-16 「特集② 新素材研究 “気づき”と“出会い”から始まったサーキュラー・エコノミーへの挑戦 -コーヒーの豆粕を家具にする-」	1
6 0	2023	中部経済新聞 (2023年9月6日) 13面	1
6 1	2024	伊勢新聞 (2025年1月3日) 8面 木の粉でストロー、コーヒー粕板に	1

(8) 研究成果による受賞

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
6 2	2022	2022年度日本木材学会中部支部大会 優秀発表賞	1
6 3	2023	ウッドデザイン賞2023 (JAPAN WOOD DESIGN AWARD 2023) 三重大学 木質分子素材制御学研究室「木質粉体の湿式押出成形」	1
6 4	2023	The 29th Tri-U International Joint Seminar & Symposium (Tri-U2023) Best Prenseter Award	1

(9) その他の成果発表

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
6 5	2022	東南アジアからの若手JICA研修員に対する講義 (三重大学, 2022/12/2) *公益財団法人国際環境技術移転センター (ICETT) に協力	1
6 6	2022	パラオ共和国の高校生に対する講義, 本プロジェクト技術シーズの体験 (三重大学, 2023/2/16) *公益財団法人国際環境技術移転センター (ICETT) に協力	1
6 7	2023	海外からの若手JICA研修員に対する講義 (三重大学, 2023/10/18) *公益財団法人国際環境技術移転センター (ICETT) に協力	1
6 8	2023	南太平洋大学の学生に対する講義, 本プロジェクト技術シーズの体験 (三重大学, 2024/1/22) *公益財団法人国際環境技術移転センター (ICETT) に協力	1

権利表示・義務記載

特に記載する事項は無い。

この研究成果報告書の文責は、研究課題に参画した研究者にあります。
 この研究成果報告書の著作権は、引用部分及びERCAのロゴマークを除いて、原則的に著作者に属します。
 独立行政法人環境再生保全機構（ERCA）は、この文書の複製及び公衆送信について許諾されています。

Abstract**[Project Information]**

Project Title : Establishment of Biomass Powder Extrusion Molding and Insolubilization System Using Cellulose Derivative as an Auxiliary Agent

Project Number : JPMEERF20221C03

Project Period (FY) : 2022-2024

Principal Investigator : Nonaka Hiroshi

(PI ORCID) : ORCID 0000-0002-1996-8738

Principal Institution : Mie University
 Tsu City, Mie, JAPAN
 Tel: +81-59-231-9520
 E-mail: nonaka@bio.mie-u.ac.jp

Cooperated by :

Keywords : All biomass, Biocomposite material, Plastics, Circular society,
 Waste utilization

[Abstract]

Wood and paper lack thermoplastic properties like plastics and are instead prone to thermal decomposition, limiting their processing to adhesion and cutting. This study aims to develop an innovative technology for producing fully biomass-based molded products by utilizing the thickening properties of cellulose derivatives, without relying on plastics or easy-decaying starch. By transforming biomass powder into a clay-like material, it can be extrusion-molded at room temperature and dried.

However, since cellulose derivatives function as adhesives between biomass powder particles and are water-soluble, the molded product dissolves upon contact with water, causing slipperiness and ultimately disintegration in water. To address this issue, two approaches were explored: (1) adding citric acid along with hydroxypropyl methylcellulose (HPMC) and using heat-induced crosslinking to make the adhesive water-insoluble, and (2) replacing HPMC with ammonium carboxymethyl cellulose (NH₄-CMC) and achieving water resistance solely through heating.

First, to tackle cost-related challenges, the use of cellulose derivatives was minimized to 1/4–1/5 of the biomass powder weight. It was confirmed that water resistance could be achieved at approximately 170°C for approach (1) and 150°C for approach (2). The resulting water-resistant biomass-molded products retained sufficient strength even under humid conditions, without surface stickiness, making them viable for non-submerged applications. The effects of cellulose derivative

viscosity, usage ratio, biomass powder particle size, and glycerin on strength and elongation properties were also clarified.

Furthermore, two drying methods were optimized: dielectric heating-assisted vacuum freeze-drying and infrared-ventilation drying. These methods allowed the molded products to transition from high moisture content immediately after molding to an almost completely dry state, preventing deformation and surface defects while ensuring water resistance through subsequent heating. Additionally, for products deformed after conventional drying in a thermostatic chamber, a heat pressing technique was developed for shape correction, successfully achieving water resistance.

This sequence of material formulation, molding, drying, and heating (water resistance enhancement) has led to the establishment of a complete biomass powder molding and water resistance system. The technology is applicable not only to wood powder but also to paper powder, bamboo powder, coffee grounds, and other biomass waste materials, making it highly suitable for sustainable biomass utilization. Moving forward, collaboration with companies interested in materializing these biomass resources will facilitate the transition towards social implementation and industrial application.

[References]

- Kimata H, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), All-Biomass Composite Sheet Made by Extrusion of Biomass Powder Using Ammonium Carboxymethylcellulose (NH₄-CMC), *Waste and Biomass Valorization*, published online 05 May. <https://doi.org/doi:10.1007/s12649-025-03069-7>
- Hiratsuka H, Tao X, Tokunaga Y, Nonaka H (2025), Properties of wood powder sheets extruded with hydroxypropyl methylcellulose and citric acid after heating, *Bioresources*, 20(1), 1900-1914. <https://doi.org/10.15376/biores.20.1.1900-1914>
- Nonaka H (2023), Extrusion molding of biomass powder with cellulose derivatives, *Glycoforum*, 26(6), A22. <https://doi.org/10.32285/glycoforum.26A22>
- Tao X, Nonaka H (2021), Wet extrusion molding of wood powder with hydroxy-propylmethyl cellulose and with citric acid as a crosslinking agent, *Bioresources*, 16(2), 2314-2325. <https://doi.org/10.15376/biores.16.2.2314-2325>

This research was performed by the Environment Research and Technology Development Fund (JPMEERF20221C03) of the Environmental Restoration and Conservation Agency provided by Ministry of the Environment of Japan.