Environment Research and Technology Development Fund Final Research Report

環境研究総合推進費　終了研究成果報告書

公募区分：	環境問題対応型研究（技術実証型）
研究予定期間：	令和３（2021）年度　～　令和５（2023）年度
課題番号：	【1G-2101】
体系的番号：	（JPMEERF20211G01）
研究課題：	「セルロースナノファイバー補強によるバイオマスプラスチック用途拡大の推進」
Research Title：	Promotion of Expanded Use of Biomass-based Plastics through Cellulose Nanofiber Reinforcement
研究代表者：	矢野浩之
研究代表機関：	国立大学法人　京都大学
研究分担機関：	地方独立行政法人　京都市産業技術研究所、 一般社団法人　サステナブル経営推進機構
研究協力機関：	
研究領域：	統合領域
キーワード：	バイオマスプラスチック、セルロースナノファイバー、構造用途、カーボンニュートラル、生分解性

令和６（2024）年５月

目次

環境研究総合推進費　終了研究成果報告書.....1
I. 成果の概要.....3
１．　はじめに（研究背景等）.....5
２．　研究開発目的.....5
３．　研究目標.....5
４．　研究開発内容.....6
５．　研究成果.....8
５－１．　成果の概要.....8
５－２．　研究目標の達成状況.....16
５－３．　研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献.....19
６．　研究成果の発表状況の概要.....20
６－１．　成果の件数.....20
６－２．　主な査読付き論文等の主要な成果.....20
７．　国際共同研究等の状況.....20
８．　研究者略歴.....21
II.　成果の詳細.....22
II－１　サブテーマ１「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」.....22
［サブテーマ１要旨］.....22
１．　サブテーマ１研究開発目的.....22
２．　サブテーマ１研究目標.....22
３．　サブテーマ１研究開発内容.....23
４．　サブテーマ１結果および考察.....23
５．　サブテーマ１研究目標の達成状況.....33
II－２　サブテーマ２「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」.....35
［サブテーマ２要旨］.....35
１．　サブテーマ２研究開発目的.....35
２．　サブテーマ２研究目標.....35
３．　サブテーマ２研究開発内容.....36
４．　サブテーマ２結果および考察.....36
５．　サブテーマ２研究目標の達成状況.....48
III. 研究成果の発表状況の詳細.....50
（１）　成果の件数.....50
（２）　誌上発表.....50
（３）　口頭発表.....51
（４）　知的財産権.....52
（５）　「国民との科学・技術対話」の実施.....52
（６）　マスメディア等への公表・報道等.....52
（７）　研究成果による受賞.....53
（８）　その他の成果発表.....53
Abstract.....54

別紙　公募審査・中間評価結果への対応

Ⅰ．成果の概要

＜課題情報＞

公　募　区　分　：	環境問題対応型研究（技術実証型）
研究実施期間：	令和３（2021）年度　～　令和５（2023）年度
課　題　番　号　：	【1G-2101】
研　究　課　題　：	「セルロースナノファイバー補強によるバイオマスプラスチック用途拡大の推進」
研究代表者：	矢野浩之（京都大学生存圏研究所、教授）
重点課題（主）：	【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
重点課題（副）：	【重点課題⑥】海洋プラスチックごみ問題への対応
行政要請研究テーマ（行政ニーズ）：	(1-4) バイオテクノロジー等を活用した環境問題の解決に資する新素材等の技術シーズの発掘、活用に向けた研究・技術開発 (1-6) 従来のプラスチックの代替となる生分解性プラスチックやバイオマスプラスチック等の環境配慮型素材の応用に関する研究・技術開発
研　究　領　域　：	統合領域

＜キーワード＞

バイオマスプラスチック
セルロースナノファイバー
構造用途
カーボンニュートラル
生分解性

＜研究体制＞

サブテーマ１「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」

＜サブテーマ１リーダーおよび研究分担者＞

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
京都大学	生存圏研究所	教授	矢野浩之	2021年度～2023年度
		研究員	小野和子	2021年度～2023年度
京都市産業技術研究所	材料・素材技術グループ	グループリーダー	仙波　健	2021年度～2023年度
		次席研究員	野口広貴	2021年度～2023年度

サステナブル経営推進機構	LCA事業部	総括研究員	神崎昌之	2021年度～2023年度
サステナブル経営推進機構	LCA事業部	室長	山岸　健	2021年度～2023年度
サステナブル経営推進機構	LCA事業部	研究員	須永紗季	2021年4月～2022年6月
サステナブル経営推進機構	LCAエキスパートセンター	研究員	渕上智子	2022年7月～2024年3月

サブテーマ２「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」

＜サブテーマ２リーダーおよび研究分担者＞

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
京都大学	生存圏研究所	特任教授	臼杵有光	2021年度～2022年度
サステナブル経営推進機構	LCA事業部	総括研究員	神崎昌之（2023年度よりサブテーマリーダー）	2021年度～2023年度
京都大学	生存圏研究所	研究員	田熊邦郎	2021年度～2023年度
サステナブル経営推進機構	LCA事業部	主任研究員	山岸　健	2021年度～2023年度
サステナブル経営推進機構	LCA事業部	副主任研究員	須永紗季	2021年4月～2022年6月
サステナブル経営推進機構	LCAエキスパートセンター	LCAエキスパート	渕上智子	2022年7月～2024年3月

＜研究経費（間接経費を含む）＞

年度	直接経費	間接経費	経費合計
2021	30,127千円	5,198千円	35,325千円
2022	30,127千円	5,198千円	35,325千円
2023	28,468千円	6,853千円	35,321千円
合計	88,722千円	17,249千円	105,971千円

１．　はじめに（研究背景等）

2050年、温室効果ガスのゼロエミッション達成には大幅なCO_2排出の削減が求められる。そのためには石油由来のプラスチックからカーボンニュートラルなバイオマスを原料とするバイオマスプラスチックへの大幅な転換が不可欠である。我が国は、2030年までに200万トンのバイオプラスチックへの転換を目標に掲げているが（図0-1、本研究ではバイオマスプラスチックと称している）、現状ではその達成は困難な状況にあると言わざるを得ない。その理由の一つは、バイオマスプラスチックの性能である。例えば、代表的なバイオマスプラスチックであるポリ乳酸は、自動車・家電・建築資材などに利用するには衝撃特性や加工性（結晶化速度）が劣り、そのままでは代替が難しい。同様の課題をバイオマスプラスチックとして生産量が伸びているバイオポリエチレン（PE）も抱えている。バイオPEは石油由来PEと全く同じ特性のため、石油由来PEの市場をそのまま置換えることができる点で200万トンの目標に対してはポリ乳酸より現実的である。しかしながら、柔らかく、耐熱性が低く、構造用途への利用に制限がある。

図0-1　バイオプラスチック200万トン導入に向けて
我が国のバイオプラスチック導入ロードマップ（環境省HPより）

我々は植物繊維をナノレベルまで解繊した高強度セルロースナノファイバー（CNF）によるプラスチックの強化について20年にわたり世界をリードして研究を進めている。その中で化学変性パルプを溶融した樹脂と練って、パルプのナノ解繊とCNFの樹脂中への均一分散を同時に行うパルプ直接混練法（京都プロセス）を開発した。2019年11月には、東京モーターショーに京都プロセスで作ったCNF材料をドアなどに実装したクルマ(Nanocellulose Vehicle, NCV)を展示し、多くの関心を集めている（図0-2）。

図0-2　東京モーターショー、環境省ブースにおけるNCVの展示

２．　研究開発目的

本研究の目的は、セルロースナノファイバー(CNF) で強化することによるバイオマスプラスチックの構造用途への導入拡大に関する検証である。

３．　研究目標

全体目標	4種類のバイオマスプラスチックについて、コスト/パフォーマンスの壁をクリアして10万トンの実用化可能な製品、用途を見出す。

サブテーマ１	CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価
実施機関	京都大学、京都市産業技術研究所、サステナブル経営推進機構

目標	①高剛性構造用途：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 曲げ弾性率：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の2倍、線熱膨張係数：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の半分。 ②耐衝撃構造用途：CNF複合バイオPE 耐衝撃性（Charpy強度）：10%CNF CNF複合でバイオPE(1.5kJ/m^2)の2倍。 上述の耐衝撃性を有した状態で熱変形温度（高荷重）をバイオPEより30℃アップ。 ③土壌分解性・高剛性構造用途：CNF複合PBS PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PBSの2倍、曲げ強度：PBSの2倍、熱変形温度（高荷重）をPBSより30℃アップ。 ④海洋分解性・高強度材料用途：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS PHBHと同等の海洋分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PHBHの2倍、曲げ強度：PHBHの2倍、熱変形温度（高荷重）をPHBHより30℃アップ。 ⑤環境性能（各複合材共通） 上記CNF複合材について、環境性能の代表指標としてLCA手法を用いて複合材製造プロセスまでのライフサイクル温室効果ガス排出量を明らかにする。

サブテーマ２	CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価
実施機関	京都大学、サステナブル経営推進機構
目標	サブテーマ１で開発したCNF複合材料を実際の製品に加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出す。 ①高剛性構造用途射出成形品：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ②耐衝撃構造用途射出成形品：CNF複合バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ③高耐熱構造用途ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE ブロー成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。 ④高耐熱構造用途押出成形品：CNF複合バイオPE 押出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。 ⑤土壌分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH 日用品（ワンウェイスプーン、等）射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ⑥海洋分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ⑦環境性能（各成形品共通） サブテーマ１-⑤を踏まえ、CNF複合材を使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに低炭素化への技術ポテンシャルを明確にする。

４．　研究開発内容

本研究では、高機能・高性能が求められる製品分野（自動車、産業資材、建材、家電、文具・日用品等）および土壌・海洋分解性製品分野（CNFが生分解性である特徴を活かしたワンウェイ容器・食器・日用品、漁具等）へのCNF複合によるバイオマスプラスチックの導入拡大について、用途、加工法

に応じたCNF複合バイオマスプラスチックの組成設計を行い、アドバイザー企業へのサンプル提供、評価等を通じで検証した。研究、検証にあたっては、CNF複合化バイオマスプラスチックのライフサイクルベースの環境性能評価を行いつつ、次世代バイオマスプラスチックのライフサイクルアセスメント（LCA）ガイドラインの研究も実施した。

本研究は２つのサブテーマに分けて実施した。サブテーマ１では「CNF＋バイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」を行った。サブテーマ２ではサブテーマ１におけるCNF複合材の組成と機械的性能および環境性能との関係を踏まえ、「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」を行った。共通して、①高剛性構造用途品としてポリ乳酸およびそのブレンド物、②耐衝撃構造用途品としてバイオPEおよびそのブレンド物、③土壌分解性・海洋分解性構造用途品としてPBS、 PHBHおよびそのブレンド物について、CNF複合材および製品の実用性能および環境性能を評価した。

さらに、バイオマスプラスチックの導入拡大を推進するために、これらのサブテーマ１のデータおよびそれに基づき大量製造したCNF複合材を17社の企業アドバイザー*に提供し、試作金型、製品金型で成形、評価を進め、性能改善を進めることで、早期からのバリューチェーン構築を目指した。

並行して、サブテーマ１でCNF複合材の環境性能の代表指標としてLCA手法を用いて複合材製造プロセスまでのライフサイクル温室効果ガス排出量を明らかにするとともに、サブテーマ２でCNF複合材を使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに低炭素化への技術ポテンシャルについて解析した。

＊企業アドバイザー：本研究では企業アドバイザーを選定し、秘密保持契約を締結後、CNF複合材を提供し、アドバイザー企業においいて保有する試験用金型、生産用金型を用いて成形品を製造し、実用物性を評価し、結果を材料開発にフィードバックした。

令和３年度	**サブテーマ１** バイオマスプラスチック：ポリ乳酸、バイオPE、PBS、PHBHについてアセチル化CNF添加率を変化させて複合材を作製し、射出成形サンプルについて強度性能および土壌分解性を評価した。 LCAについて原料栽培時の土地利用変化等の最新の評価動向を踏まえて暫定的な算定方法論を作成し、各材料の製造時温室効果ガス排出原単位を整備した。 **サブテーマ２** サブテーマ１で開発したCNF複合材の特性をもとに、４種類のバイオマスプラスチックについて利用が期待できる用途に関する情報収集を行うとともに、一部のCNF複合材についてアドバイザー企業の試験金型および生産用金型を用いて射出成形品を作製し、実用物性と環境性能を評価した。 LCAについて文献調査と評価シナリオ設定を中心に行い、暫定的算定方法論を作成した。 ＜アドバイザー企業＞　本研究ではアドバイザー企業を複数選定し、秘密保持契約を締結後、アドバイザー企業保有の生産用金型を用いて成形品を製造し、実用物性を評価し、結果を材料開発にフィードバックする。
令和４年度	**サブテーマ１** バイオマスプラスチックおよびそのブレンド物（ポリ乳酸/バイオPE、PBS/PHBH）について、CNF率、樹脂組成を変化させ、求められる実用物性、コストに向けて性能向上を図った。射出成形サンプルについて強度性能および土壌分解性を、フィルムサンプルについて海洋分解性を評価した。並行して、ブロー成形用、押出成形用樹脂組成の検討を進めた。 LCAについて各材料の製造時温室効果ガス排出原単位を拡充した。 **サブテーマ２** 令和３年度で絞り込んだ樹脂組成およびブレンド樹脂組成を軸に、アドバイザー企業の試験金型および生産用金型を用いて射出成形品を作製し、実用物性と環境性能

	を評価した。 LCAについて温室効果ガス排出削減ポテンシャル算定方法論を構築し試算した。
令和５年度	**サブテーマ１** 令和４年度で絞り込んだ樹脂組成を軸に更なる性能向上を図った。射出成形サンプルについて強度性能および土壌分解性を評価した。並行して、ブロー成形用、押出成形用樹脂の検討を進めた。 LCAについて絞り込んだ材料の製造時温室効果ガス排出原単位を精査した。 **サブテーマ２** 令和４年度で絞り込んだ樹脂組成を軸にアドバイザー企業の試験金型、生産用金型を用いて射出成形品、ブロー成形品、押出成形品を作製し、実用物性を評価した。 LCAについて試作した成形品すべての温室効果ガス排出削減ポテンシャルを算定し、次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための要件を整理した。

５．　研究成果

５－１．　成果の概要

サブテーマ１

サブテーマ１では、CNF複合材の基本性能を、①高剛性構造用途、②耐衝撃構造用途、③土壌分解性・高剛性構造用途、④海洋分解性・高強度材料用途、⑤環境性能（各複合材共通）に分けて検討した。項目ごとに主要な成果をまとめる。この結果を踏まえ、サブテーマ２でアドバイザー企業に提供する樹脂組成、CNF添加率を決めた。

①高剛性構造用途

CNF補強ポリ乳酸（CNF10%, PLA20%, PP+MAPP:70%）で曲げ弾性率4.8GPaと開発目標を越えるベース樹脂：PP+MAPPの補強効果（2倍以上）が得られたが(PP:ポリプロピレン、MAPP:マレイン酸変性PP、相溶化剤)、高温・湿潤下での試験においてPLAの分解に起因すると思われる重量減少が生じた。

(a)射出成形グレード

射出成形は自動車部材や家電部材、日用品において最も多用されている樹脂成形法である。樹脂には金型内への注入に関係し高い流動性が求められる。このことから、MFR（静的樹脂流動性）が大きく、比較的高弾性のHDPEである射出成形グレード（ブラスケムSHA7260）を高剛性用ベース樹脂に選択し、CNF補強の効果を評価した。CNF複合は日本製紙（株）製アセチル化変性パルプ（変性度0.9）を用い、パルプ直接混練法により行った。結果を表0-1に示す。

CNF10％の添加でバイオPEの弾性率は2倍以上になった。さらにタルクを15％添加するとバイオPEの弾性率は1.13GPaから3.76GPaまで3倍以上も大きくなり、強度は自動車用タルク添加PP材を上回った。線熱膨張係数(CTE)もベース樹脂の176.8ppm/Kを大きく下回る38.4ppm/Kにまで低下した。これは自動車用PP/タルク樹脂の70ppm/Kをさらに下回る。CNF添加率が増えると樹脂の流動性が低下することから、成形性を重視したCNF添加率5%について、CNF率とタルク添加率との関係を明らかにした。耐衝撃性は、ノッチありシャルピー衝撃強度ではCNFを添加しても変化しなかったが、ノッチなしの値は低下した。

表0-1（表1-1）　CNF補強による射出成形グレードバイオPEの強度特性変化

	曲げ試験			シャルピー衝撃試験 4J		線熱膨張係数[2)]
	弾性率 (GPa)	強度 (MPa)	破断歪み (%)	ノッチあり (kJ m^{-2})	ノッチなし (kJ m^{-2})	
ベース樹脂 SHA7260	1.13	25.1	-	2.68	(103) [1)]	176.8
CNF10%＋タルク15%	3.76	60.8	4.4	3.00	21.5	38.4
CNF5%＋タルク2.5%	1.73	36.8	-	2.43	30.9	N.D.
CNF5%＋タルク10%	2.24	42.2	-	2.57	27.1	53.6

1) 全てNBのため参考値　2) 0-100℃の範囲で算出

耐衝撃性はCNF材料の採用に当たって注意すべき点である。

(b)ブロー成形グレード

ブロー成形はペットボトルやポリ容器などの成形に用いられる成形方法である。CNF補強での弾性率および強度の向上による容器の薄肉化、軽量化への期待が大きい。ブロー成形では成形時に樹脂（パリソン）がたれ落ちてしまうドローダウンを防ぐ上で射出成形に比べ溶融粘度の高い樹脂の使用が求められ、この点、CNF添加による樹脂粘度の上昇は、ブロー成形においてはプラスの効果となる。しかし、成形品には液体等を充填した状態での落下時の衝撃強度が求められるため、耐衝撃性を大きく損なわないCNF率での利用が重要である。そこでCNF添加後に一般的なブロー成形グレードのMFR（メルトフローレート、樹脂流動性の指標）に近い値になるようにベース樹脂としてブロー成形グレード（ブラスケムSHE150）を選定した。CNF5%の添加で弾性率は1.5-1.6倍、強度は1.5-1.7倍にまで増大した。一方で、シャルピー強度がノッチ有りで33kJ/m^{2}から5kJ/m^{2}にまで大きく低下した。この結果を踏まえ、②耐衝撃構造用途では、樹脂を高弾性のHDPEから低弾性で耐衝撃性にすぐれたLLDPEに変更して検討した。

②耐衝撃構造用途：CNF複合バイオLLDPE/LDPE

バイオLLDPEからブラスケムSLH118を補強用樹脂に選択した。CNFを10%添加すると曲げ弾性率は約5倍に、曲げ強度は約3倍にまで大きく向上したが、衝撃特性が大幅に低下した。そこで繊維率を2%、5%に下げて検討した。比較として耐衝撃性に優れたバイオLDPE（SBC818およびSTN7006）についても検討した。LLDPEとLDPE(STN7006)はニート樹脂の曲げ弾性率、曲げ強度はほぼ同等で、CNF補強による変化も似ていたが、衝撃強度（シャルピー強度）が、LDPEではCNF率5%でニート樹脂の半分にまで低下したのに対して、LLDPEではニート樹脂と同等あるいはそれ以上の衝撃強度を示した。高い衝撃強度を有する樹脂へのCNF添加で衝撃強度が増大することは極めて稀である。衝撃試験後のサンプルを見ると、LLDPEでは5%CNF添加品でもヒンジ破壊の形態（破壊面が白化し破壊が停まる）を示した（図0-3）。高い衝撃強度を維持したブロー成形品用の材料として期待できる。

図0-3（表1-4）　CNF補強バイオLLDPEおよびLDPEの衝撃試験後の試験

③土壌分解性・高剛性構造用途：CNF複合PBS

生分解性樹脂であるPBSのCNF補強について検討した。CNFはアセチル化後も生分解性が維持される。本研究では、三菱ケミカル（株）製のPBS 2種（産業コンポスト用：ZM7B01、家庭コンポスト用：DM9B01）、日本製紙（株）製アセチル化変性パルプ（変性度0.97）を使用した。表0-2にCNF複合材の性能を示す。CNF添加率の増加に従い曲げ弾性率および強度が大きく向上した（No.1-4）。DM9B01では、CNFを10wt% 複合することで（No.2）、曲げ弾性率1240MPa（ニート樹脂の4.6倍）、曲げ強度32.2MPa（ニート樹脂の2.1倍）となった。同様にZM7B01では、CNFを10wt%複合することで（No.4）、曲げ弾性率2430MPa（ニート樹脂の3.7倍）、曲げ強度64.5MPa（ニート樹脂の1.9倍）となった。続

表 0-2(表 1-5) CNF 複合 PBS の組成および性能

No.	PBS グレード	CNF (wt%)	添加剤		曲げ弾性率 (MPa)	曲げ強度 (MPa)	HDT (℃)
			種類	wt%			
DM9B01		0	-	-	270	15.3	50.4
1	DM9B01	5	-	-	670	23.4	67.3
2		10	-	-	1240	32.2	71.6
ZM7B01		0	-	-	660	33.2	70.2
3	ZM7B01	5	-	-	1460	49.9	84.1
4		10	-	-	2430	64.5	93.2
5		10	タルク	5	2660	66.4	82.5
6	ZM7B01	10	タルク	10	2800	66.7	83.1
7		10	タルク	20	3910	75.6	84.5
8		0	タルク	20	1410	45.9	70.6
9		10	ラミー	5	2780	66.0	95.4
10	ZM7B01	10	ラミー	10	3230	70.3	95.7
11		10	ラミー	15	3720	75.3	100.0

HDT：負荷応力1.80 MPa

いて、さらなる性能向上を目指し種々の添加剤について検討した（No.5-11）。CNFとタルクの併用で、曲げ弾性率がさらに向上した。また、セルロース系長繊維であるラミーとCNF10wt%の併用で、負荷応力1.80MPaにおける荷重たわみ温度（Heat Distorsion Temperature: HDT、昇温過程で一定の曲げたわみに達する時の温度）が100℃となり（ニート樹脂は70.2℃）、HDTに関する開発目標を達成した。

④海洋分解性・高強度材料用途：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS

海洋分解性樹脂として（株）カネカ製のPHBH（PHBH-131N）を用いた。表0-3に複合材の性能を示す。CNF添加率10wt%(No.13)で曲げ弾性率：3080MPa(ニート樹脂の2.4倍)、曲げ強度：60.9 MPa（ニート樹脂の1.5倍）、HDT（負荷応力1.80 MPa）：94.4℃（ニート樹脂より17.4℃向上）など、目標性能をほぼ達成した。さらなる樹脂組成検討を種々の添加剤並びに相容化剤について行った。添加剤としてタルク、相容化剤としてポリ乳酸（PLA、Ingeo3251D、NatureWorks LLC）あるいはマレイン酸変性PLA(MA-PLA)を使うことで特に高い弾性率と強度が得られた(NO.18,19)。

表 0-3（表 1-6）CNF 複合 PHBH の組成および性能

No.	CNF (wt%)	添加剤		曲げ弾性率 (MPa)	曲げ強度 (MPa)	HDT (℃)
		種類	wt%			
PHBH-131N	0	−	−	1310	39.5	77.0
12	5	−	−	2090	49.4	85.3
13	10	−	−	3080	60.9	94.4
14	10	タルク	5	3100	58.0	92.3
15	10	タルク	10	3320	59.7	94.5
16	10	タルク	20	4490	61.4	93.0
17	0	タルク	20	2310	41.4	80.6
18	10	PLA	11.43	3540	71.9	73.4
19	10	MA-PLA	11.43	3630	75.6	68.5

HDT:負荷応力1.80 MPa

⑤環境性能

a)マテリアルリサイクル性

CNF複合材については、これまでPP樹脂やHDPE樹脂で成形、粉砕を繰り返しても機械的性能が変わらないことが明らかにされている。同様の検討をCNF複合PBSおよびPHBHについて行った。曲げ弾性率の結果について図0-4に示す。曲げ試験後に粉砕、再成形を行う操作を5回繰り返したが、PBS、PHBHいずも曲げ弾性率、強度はほぼ一定であった。繊維系フィラーとして一般的なガラス繊維の場合は、リサイクルの工程で繊維が折れて短くなり、補強効果が大きく損なわれることが知られているが、小さくかつしなやかなCNFの場合は、成形過程で繊維の切断が生じず、マテリアルリサイクルできると考えられる。

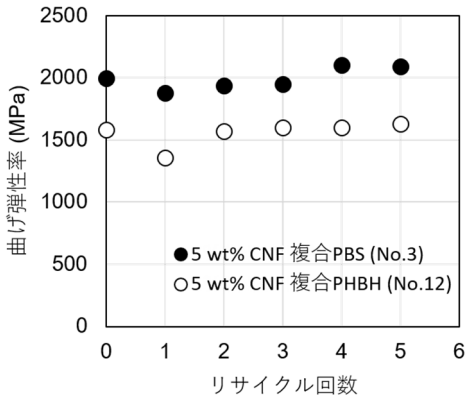


図0-4（図1-2） CNF複合樹脂のリサイクルにおける曲げ弾性率変化

b) CNF複合生分解性樹脂の土壌分解性

CNF複合PBS、PHBHについて、土壌を模した用土中での分解性を評価した。ニート樹脂（CNF等、添加物の無い樹脂）およびCNF5%、10%の射出成形サンプルを、28℃の恒温室において用土中に埋設し、最大48週間まで一定の埋設期間ごとに回収し、重量および強度特性を調べた。CNF複合材はニート樹脂に比べ、分解初期での重量減少が大きい傾向がみられたが、強度は長期間保たれていた。

分解試験後のサンプルの外観および断面について図0-5および図0-6に示す。ニート樹脂では分解はサンプルの表層から生じたが、CNF複合材は、分解初期から内部に分解による空隙が広がっていた（図0-6）。PBS（DM9B01、三菱ケミカル（株）提供）では、48週になるとニート樹脂は観察ができないほど亀裂が入っていた。一方、CNF複合材は、サンプル内部に亀裂がみられたものの、CNFがサンプルの形状を維持し、

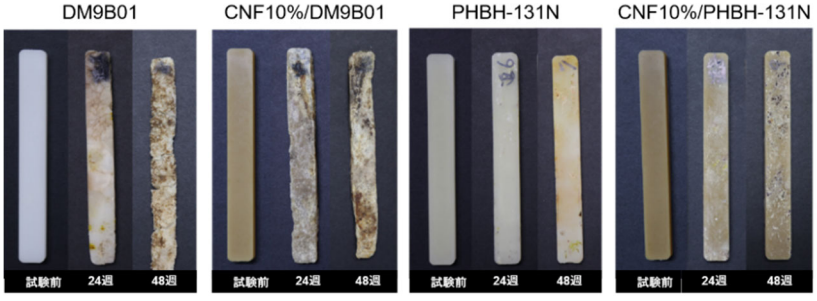


図0-5（図1-4） 生分解試験後のサンプル外観

割れを防いでいた。生分解試験後のサンプルに付着している微生物を染色し、光学顕微鏡で観察したところ、ニート材は、劣化部位を含む表層のみが染色されていた。これに対しCNF強化サンプルでは、劣化部位の内部まで広く染色されており、サンプル内部に多数の微生物が存在していたことを示している。これらの結果から、樹脂中のCNFのネットワークが、サンプル内部への水分の移動を可能にし、内部からの生分解を促進していることが示された。生分解性が促進されながらもCNFで強度が維持される点は世界で初めての知見である。

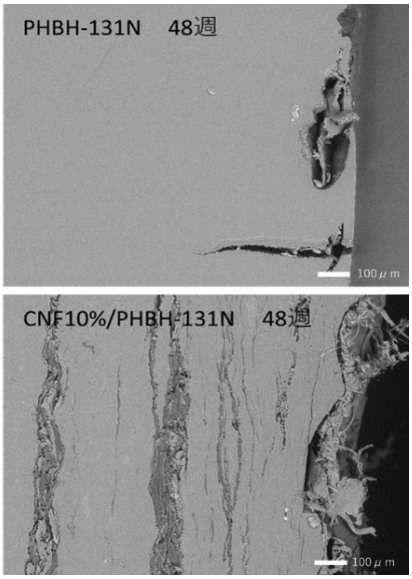


図0-6（図1-6）低真空SEMを用いた生分解試験後のサンプルの断面観察。上：PHBH(131N)、48週、下：CNF10%/PHBH、48週

c）CNF複合生分解性樹脂の海洋生分解性

10wt% CNF複合PHBHおよびニート樹脂のPHBH（PHBH-131N、（株）カネカ提供）について熱プレスで製造したフィルムを栄養塩（NH_4Cl 0.5g/L、KH_2PO_4 0.1g/L）を添加した海水溶液に沈め、直射日光の当たらない23℃環境で静置した。図0-7にサンプルの外観変化を示す。CNFの有無に関わらず、試験開始から14日目で表面の平滑性が無くなり、25日目では崩壊が始まっていた。50日目にはニート樹脂およびCNF複合材のいずれにおいてもサンプルは消失した。CNFの複合化はPHBH本来の海洋生分解性を損なわず、むしろ分解を促進していることが示唆された。

d）CNF強化バイオマスプラスチックのライフサイクルアセスメント（LCA）

CNF複合バイオマスプラスチックのLCAによる環境影響評価手法について最新の動向を調査した。原料栽培時における直接的な土地利用による影響については、実態に即した評価または複数のシナリオを想定した評価が求められる傾向となっている。また、バイオマス残渣を用いた電力や熱などのエネルギーを外部に供給した場合は、現状の標準的なエネルギーによる環境影響を控除することが多い。既往評価事例を参考に、バイオ素材のLCA実施時のプロセスフロー、およびCNF複合バイオマスプラスチックの暫定的な評価方法論を整理したうえで、植物の栽培からCNFとバイオマスプラスチックの複合化までの累積での温室効果ガス排出量を、PLA、バイオPE、PBS、PHBHについて整備した。

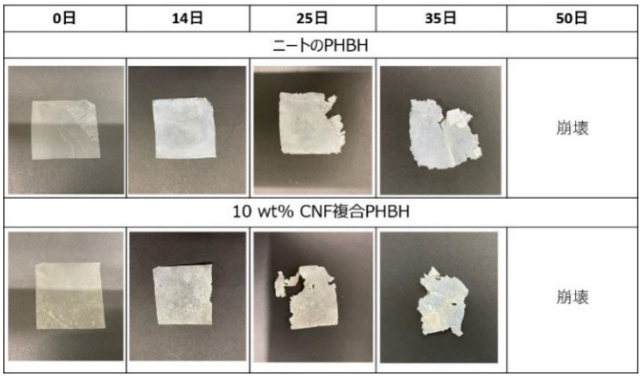


図 0-7（図 1-8）PHBH-131N および CNF 複合 PHBH フィルムの分解の様子

さらに、絞り込んだ材料として10wt%のCNFを複合化させたバイオPEペレットを選択し、GHG排出量を評価した。CNFについては、新規技術開発中の京都プロセス第4世代（アセチル化を経由しないリアクティブプロセス）と従来のアセチル化を経由する第3世代について評価した。図0-8に、算出した10%CNF複合バイオPEペレット1kgあたりのCradle-to-gate（資源採掘から原材料製造、製品製造まで）のGHG排出量を示した。京都プロセスは解繊工程がないことが特徴であり、対象となる工程はマスターバッチ（MB）混練工程と希釈工程となる。第4世代は開発途上であり便宜的に解繊工程を含んでいるため排出量が増加しているが、アセチル化を回避することで混練工程の負荷は低

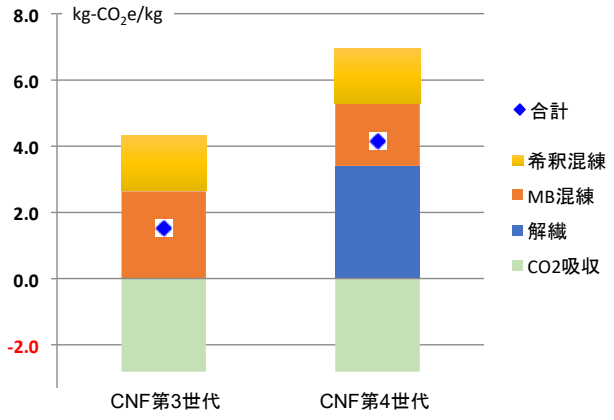


図0-8（図1-12）10%CNF複合バイオPEペレット1kgあたりのGHG排出量

減している。今後解繊工程をなくす方向で開発が進めば、GHG排出量は1kgあたり1kg以下となる可能性が示唆され、汎用樹脂の一般的な排出係数（2kg-CO_2e/kg前後）に対して競争力のある水準となる。

サブテーマ２

サブテーマ２では、サブテーマ１で開発したCNF複合材の性能に基づき、実用化可能な用途に向けた樹脂組成の検討を行い、実際の製品に加工し、加工性、性能を評価した。また、製品の環境性能について評価した。並行して、LCAについて文献調査と評価シナリオ設定を中心に行い、暫定的算定方法論を作成した。下記の項目ごとに主要な成果をまとめる。

①高剛性構造用途・射出成形品、②耐衝撃構造用途・射出成形品、③高耐熱構造用途・ブロー成形品、④高耐熱構造用途・押出成形品、⑤土壌分解性高剛性構造用途・射出成形品、⑥海洋分解性高剛性構造用途・射出成形品、⑦環境性能（各成形品共通）

企業アドバイザー評価

CNF複合材を所定のCNF添加率に調整したペレットとして提供するために、マスターバッチからの希釈試験を行い、17機関に主としてCNF複合バイオPE（一部、PLA添加品）、CNF複合バイオPBSおよびCNF複合バイオPHBHを計25回提供した。CNF複合材を提供した企業（樹脂、目標とする用途）は、（株）上山製作所（バイオPE、文具）、エビス（株）（バイオPE、歯ブラシ）、トヨタ車体（株）（PP/PLA、自動車部材）、トヨタ紡織（株）（バイオPE、自動車内装部品）、（株）デンソー（バイオPE、自動車エアコン部品）、豊田合成（株）（バイオPE、自動車部材）、（株）タミヤ（バイオPE、プラモデル部品）、日進化学（株）（バイオPE、フィルム・容器部品）、新明工業（株）（バイオPE、自動車用部品）、（株）島津製作所（バイオPE、分析装置部品）、（株）吉野工業所（バイオPE、容器部品）、積水化成工業（株）（PLA、シート発泡・断熱容器）、（株）伊藤園（PP/PLA、運搬用パレット）、積水成型工業(株)（バイオPE、ボトル）、前川化学工業（株）（バイオPE、電気部品）、（株）カネカ（PHBH、カトラリー）、(株)ユニオン産業（PHBH、日用雑貨品）である。それぞれの企業で、本研究から提供したCNF複合材ペレットについて、実際の試作用金型や製品金型を用いて実大材の加工性、性能評価を行った。その結果、目標とした16品目を上回る20を超える実用化可能な用途を見出した。また、CNF複合バイオPEの性能で置換え可能なPP複合材について自動車用途で国内50万トン、建築資材、パレット材等、それ以外の構造用途を含めると優に100万トンを超えることを踏まえ、CNF複合材について生産量が増えコストが下がれば、少なくともCNF補強で新たに10万トンのバイオマスプラスチック用途を産み出せることを見出した。主な評価結果について述べる。

①高剛性構造用途・射出成形品：CNF/PLA/PP

(a)運搬用パレット

（株）伊藤園は1枚当たり20kgの運搬用PP樹脂パレットを年間100万台使用しており、毎年10万台ずつ更新している。その経年劣化したリサイクルPPのCNF補強によるアップサイクルを、CNF添加PP/PLA材の複合により検討した。図0-9に伊藤園が行ったパレット材用試験の落錘衝撃試験の結果について示す。第一回目のサンプル提供では多くのサンプルで脆性破壊を生じていたが、エラストマーの種類や添加率、

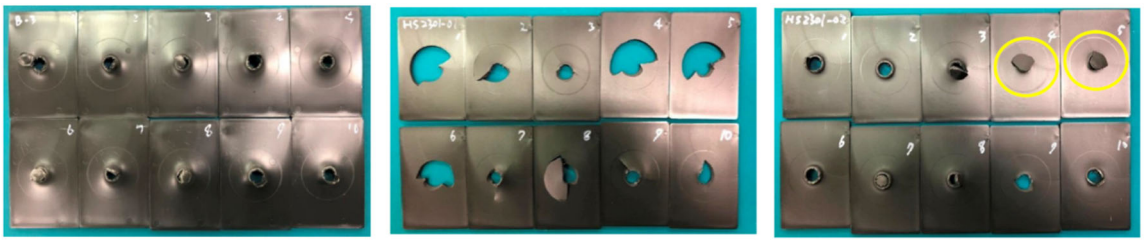


図0-9（図2-2）　落錘衝撃試験（各10枚）

左からリサイクルプラ、CNF複合材初期品、CNF複合材改良品。

CNF添加率を変えるなどの材料組成検討を行った結果、3度目のサンプル提供で目標とする弾性率、強度、衝撃特性を達成出来た。

②耐衝撃構造用途・射出成形品：CNF複合バイオPE

(a) 自動車用エアコンケース部品

（株）デンソーは自動車用エアコンケースにおける世界トップの企業である。本研究から提供したPPタルク品と同等の性能を有するCNF複合バイオPEについて、試作金型を用い、強度特性、成形加工性を評価した。さらに、製品金型を用い、樹脂温度、射出圧を種々変えてエアコンケース部品の成形を行った。図0-10には樹脂温度190℃で射出成形した成形品を示す。樹脂未充填の箇所や成形品のねじれや反りも無く成形出来ている。

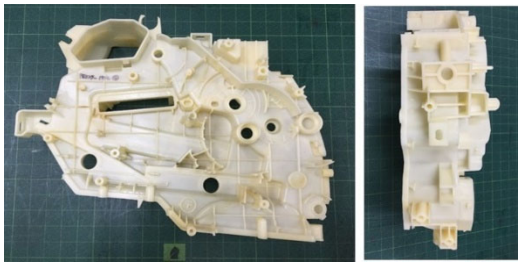


図0-10（図2-3）CNF複合バイオPEを用い射出成形で製造したエアコンケース部品。

(b) 文房具

CNF複合PEについて（株）上山製作所が保有している生産金型により番号札、カード立て、トレー、レシートホルダー、衣類のサイズ表示用クリップの成形を行った。

（株）上山製作所は、その評価結果に基づき、（株）Nature Gifts(パルプ直接混練法でCNF複合材を製造、販売するベンチャー企業)のCNF複合PEを用いて商品を製造し、2023年度より販売を開始した（図0-11）。本研究の成果が短期間で商品化まで繋がった点は特筆すべきことである。

図0-11（図2-6）商品化した番号札とカード立てのカタログ

(c) CNF複合バイオPEの耐薬品試験

（株）島津製作所は日本を代表する分析機器メーカーである。CNF複合バイオPEの分析機器部材への使用を目指し、分析機器において重要な耐薬品性評価を島津製作所において行った。試験にはニート樹脂のバイオPE（SHA7260、Braskem社）およびCNF複合バイオPE（CNF10wt%、タルク5wt%）の短冊形試験片（10×80×4 mm）を用いた。

試験A：試験液50μLを室温条件で試験片に垂らし、1分後にふき取り。

試験B：試験液50μLを室温条件で試験片にこすりつけ、20秒強くこすってふき取り。

表0-4（表2-2） 試験Cの結果一覧

	試験液	寸法変化率 (%)	重量変化率 (%)
ニートバイオPE	メタノール	-0.06	0.061
	アセトニトリル	-0.01	0.090
	THF	0	0.932
	クロロホルム	-0.03	1.942
	1N H_2SO_4	-0.03	0.069
CNF複合バイオPE	メタノール	0.03	0.122
	アセトニトリル	0.01	0.108
	THF	0.19	1.297
	クロロホルム	0.05	2.551
	1N H_2SO_4	-0.08	0.046

試験C：試験液に試験片を室温条件で８時間浸漬し、試験片の重量および寸法の変化を測定。

ニート樹脂およびCNF複合樹脂、いずれも試薬の接触により樹脂が侵されることはなかった。試験C（表0-4）では、CNF複合バイオPEは長軸方向の寸法がわずかに増加した(最大はTHFの0.19%)。しかし、その量は極めて少ないことから、本試験で使用した薬品に対しては耐性があると言える。現時点では、複合材のコストに課題があるが、性能面では分析機器への適用可能性を示すことができた。

③高耐熱構造用途・ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE

(a)ブロー成形ボトル

ブロー成形は射出成形、押出成形と並ぶ樹脂成形加工における代表的な成形法である。ボトルやタンク、パイプといった様々な形状の容器、部品の製造に用いられる。本研究では積水成型工業(株)にCNF

複合PE（LLDPE）を提供し、ブロー成形における加工性、成形体の強度特性等を、500ccボトルの成形により評価した（図0-12）。従来の石油由来PEを用いた場合と比較し加工性において差異は無く、わずかであるが剛性が向上した。また、本研究で調整したLLDPEを主体とした樹脂組成により衝撃特性も従来PP品と比較して低下することが無かった。ブロー成形による容器製造にCNF複合バイオPEを利用できることを示す結果といえる。

図0-12（図2-8）ニートLLDPE（左）とCNF複合バイオPE（右）を用いたブロー成形ボトル

④高耐熱構造用途・押出成形品：CNF複合バイオPE

(a) 押出延伸シート

積水化成工業（株）にCNF複合PLAを提供し、断熱食品容器への使用を目的に、積水化成工業（株）の独自技術による発泡延伸シートの成形を行った。CNF添加率を変えて2回、複合材を提供し、成形シートの発泡状態、構造解析を行った。

⑤土壌分解性高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH

既にPHBH製のワンウェイ用カトラリーは実用化されているが、耐熱性の課題から加熱された食品や加熱用容器への使用にはまだ課題がある。サブテーマ１において、PBS、PHBHいずれにおいてもCNF複合で機械的強度とともに耐熱性（HDT）も大きく向上することを確認した。その結果を基に、加工法についてさらに検討し、図0-13に示した通りCNF複合PHBHで、スプーン、丸皿、角皿、紙コップホルダー、苗ポッドおよび植木鉢を成形した。スプーンは(株)カネカ、その他は(株)ユニオン産業で成形を行った。いずれも通常使用している金型を用いて特殊な条件の設定なく成形することができた。

図0-13（図2-10）ニートのPHBH（a）および10wt% CNF複合PHBH(b-g）成形品。（a)、（b）スプーン、(c）植木鉢、(d）苗木ポット、(e）紙コップホルダー、(f）角皿、(g）丸皿

⑥海洋分解性高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS

プラスチックが海洋に放出される原因として、釣りで使用されるルアーやフロート、また海上での位置表示に使用されるブイなどの発泡成形製品があげられる。ニート樹脂のPBSの場合、発泡倍率2倍までは全体に均一な気泡が形成されているが、3倍以上では大きな気泡が不均一に存在していた。一方、CNFを3wt%添加すると発泡倍率5倍でも比較的均一な気泡が形成された。CNFの複合によりPHBHでも最大発泡倍率の向上が確認できたことから、海洋生分解性を有するバイオマスプラスチックを海上での使用が想定される発泡成形製品（ルアー、ブイ、浮き、浮き輪など）や、食品トレーなどに展開できる。

⑦ CNFとバイオPEの複合成形品製造におけるGHG（温室効果ガス）排出量の評価

(a) CNF複合バイオPEトレー射出成形品製造に係るGHG排出量の評価

バイオマスプラスチックとしてバイオPEを取り上げ、CNFとの複合化プロセスおよびCNF複合バイオPEペレットを用いた射出成形プロセスについてラボスケールでの実測を行い、Cradle-to-gate（資源採掘から原材料製造、製品製造まで）でのGHG排出量を算出した。結果を図0-14に示した。

バイオマス吸収分を控除したトレー成形品のトータルのGHG排出量は、第3世代CNFを用いた場合は約2.0kg-CO_2e/kg、第4世代CNFの場合は解繊工程を含んだもので約4.7kg-CO_2e/kgと算出されたが、解繊工程をなくす条件最適化が進めば、第3世代よりもさらにGHG排出量を低減できる可能性が示唆された。ただし、解繊工程がゼロになった場合でも、現状では第3世代品から6%ほどの削減ポテンシャルとなっており、さらにポテンシャルを上げるには、寄与率の大きい混練工程の高効率化が有効であることが確認できた。

(b) 機能を考慮したトレー射出成形品のGHG排出量評価

CNF複合化による機能強化を考慮した評価を行うため、曲げ弾性率とGHG排出量の関係を確認した。

射出成形品の曲げ弾性率の評価結果によると、バイオPEニート樹脂品の弾性率は、石油由来PPよりも低いが、CNFを10%複合化させることで大きく向上することがわかった。タルクの10%複合化品よりも上昇率は高く、現在汎用的に強化樹脂として使用されているタルク入りPP品と同等程度の値を示した。図0-15に、トレー成形品1p(piece)あたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）を示した。10%CNF複合バイオPEの第3世代品では、石油由来の汎用樹脂PE, PP品と同等以下の排出量を示す結果となった。

図0-16に弾性率で補正した1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）を示した。補正はPPの曲げ弾性率およびGHGをXおよびA/p、CNF品の曲げ弾性率およびGHGをYおよびB/pとしPPのGHG=A、CNF品のGHG=B*X/Yとして計算した。ここでpはトレー1枚を示しており、サイズ（縦・横・高さ）は同一である。自動車用途等では等剛性による評価がなされるが、本研究では簡易的に上記で行った。第3世代の10%CNF複合バイオPE品は、ニート樹脂の石油由

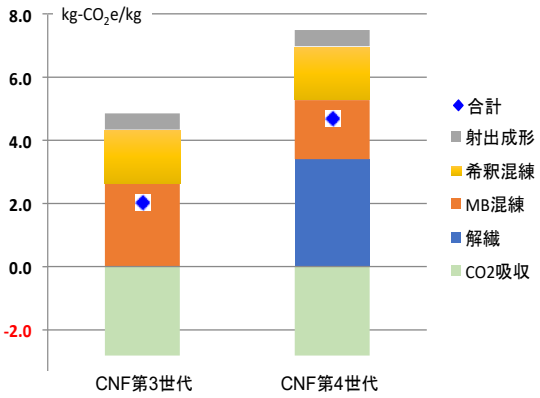


図0-14（図2-15）CNF複合バイオPEトレー成形品1kgあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

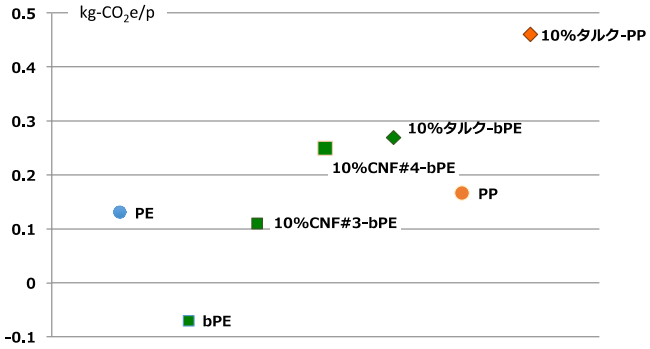


図0-15（図2-17）トレー成形品1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

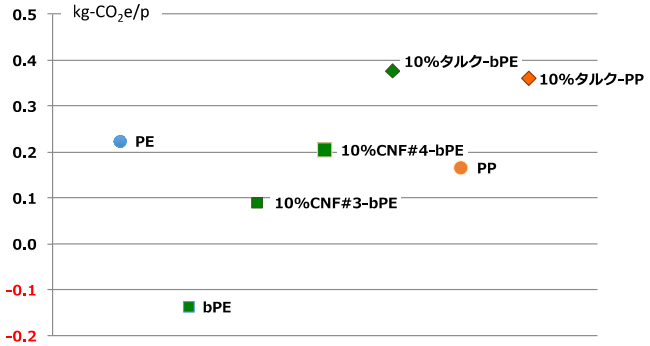


図0-16（図2-18）弾性率補正後の1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

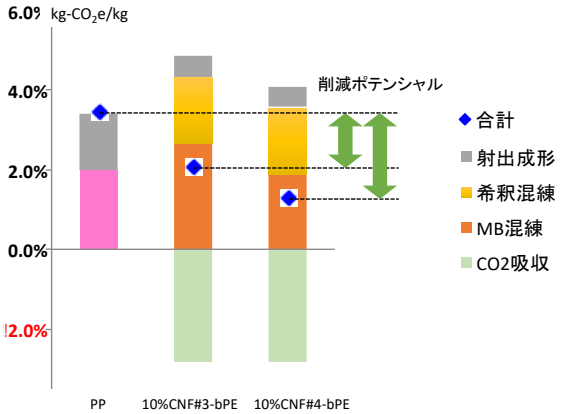


図0-17（図2-22）樹脂成形品1kgあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

来PE、PP品を有意に下回る排出量を示した。

廃棄燃焼による化学量論的排出量を加算したCradle-to-grave（資源採掘から原材料製造、製品製造－廃棄まで）での評価でも同様の傾向を示し、第3世代の10%CNF複合バイオPE品はニート樹脂の石油由来PE，PP品を下回り、第4世代品も石油由来PE，PP品と同レベルの水準を示した。

弾性率を同等にした場合の容積あたりのGHG排出量を、汎用樹脂PP品と比較すると（図0-17）、第3世代のCNF複合バイオPE品でもすでに有意な削減ポテンシャルを示しているが、解繊工程を省いた第4世代CNF複合バイオPE品ではさらに競争力のある削減ポテンシャルを示すことが認められた。

(c) リサイクル性向上を考慮したCNF複合バイオPEトレーの評価

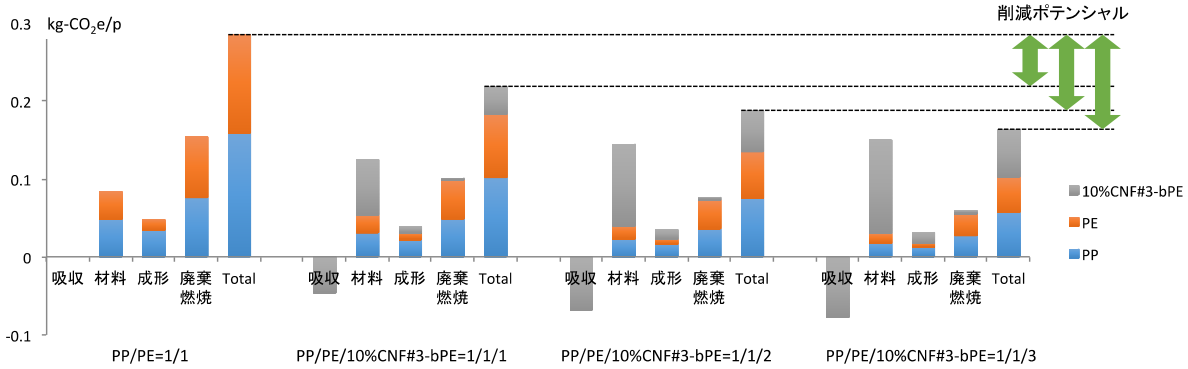


図0-18（図2-23） 回収樹脂1kgあたりのGHG排出量（弾性率補正後）

マテリアルリサイクルの原料となる使用済みプラスチックの汎用樹脂回収品に対して、将来的にCNF複合バイオPEが混ざり合うことで、再生品の強度低下を抑えられる可能性がある。使用済み回収プラとしてPE/PP=1/1品を想定し、これに対してCNF複合バイオPEを等量、2倍量、3倍量と加えた射出成形品サンプルを作成し、曲げ弾性率の測定とGHG排出量の算出を行った。PE/PP=1/1品にCNF複合バイオPEが加わることで強度の向上が認められ、一方で、材料由来のGHG排出量は、CNF複合バイオPEの割合が増えるにつれ低減することが確認できた。図0-18に弾性率で補正した回収樹脂1kgあたりのGHG排出量を示した。現状の製造条件でもCNF複合バイオPEの混合割合が増えるにつれ、確実にライフサイクルGHG排出量の削減が見込まれることが明らかとなった。

５－２． 研究目標の達成状況

＜全体の達成状況＞・・・・・・・・・

２．目標を上回る成果をあげた

「セルロースナノファイバー補強によるバイオマスプラスチック用途拡大の推進」

全体目標	全体の達成状況
4種類のバイオマスプラスチックについて、コスト/パフォーマンスの壁をクリアして10万トンの実用化可能な製品、用途を見出す。	4種類のバイオマスプラスチックについて用途に応じたCNF複合材組成を検討し、17社に材料提供を行い、実用化に向けた評価を受けた。バイオPE,PLAでは自動車内装部材、エアコン部材、パレット材、ボトルなどに使われている石油由来樹脂品と同等あるいはそれを上回る性能を達成した。また、生分解性プラスチックでは土壌および海洋生分解性を維持した状態で強度や耐熱性を向上でき、製品の性能も向上することを明らかにした。企業評価に基づきバイオマスプラスチックについて20を超える性能的に実用化可能な用途を見出し、そのうち文房具で３つの商品が上市された。CNF複合バイオPEの性能で置換え可能なPP複合材について自動車用途で国内50万トン、建築資材、パレット材等、それ以外の構造用途を含めると優に100万トンを超えることを踏まえ、CNF複合材について生産量が増えコストが下がれば、少なくともCNF補強で目標とする10万トンの新たなバ

	イオマスプラスチック用途を産み出せることを見出した(p12)。

＜【サブテーマ１】達成状況＞・・・・・・・・ 2．目標を上回る成果をあげた

「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」

サブテーマ１目標	サブテーマ１の達成状況
①高剛性構造用途：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 曲げ弾性率：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の2倍、線熱膨張係数：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の半分。 **②耐衝撃構造用途：**CNF複合バイオPE 耐衝撃性（Charpy強度）：10%CNF CNF複合でバイオPE(1.5kJ/m^2)の2倍。上述の耐衝撃性を有した状態で熱変形温度（高荷重）をバイオPEより30℃アップ。 **③土壌分解性・高剛性構造用途：**CNF複合PBS PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PBSの2倍、曲げ強度：PBSの2倍、熱変形温度（高荷重）をPBSより30℃アップ。 **④海洋分解性・高強度材料用途：**CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS PHBHと同等の海洋分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PHBHの2倍、曲げ強度：PHBHの2倍、熱変形温度（高荷重）をPHBHより30℃アップ。 **⑤環境性能（各複合材共通）** 上記CNF複合材について、環境性能の代表指標としてLCA手法を用いて複合材製造プロセスまでのライフサイクル温室効果ガス排出量を明らかにする。	**①高剛性構造用途：目標を上回って達成** CNF10%添加高剛性バイオHDPEで2.4倍の弾性率、1/4の線熱膨張係数を達成。さらにCNF10%とタルク15%の併用で曲げ弾性率は3倍以上向上、線熱膨張係数は1/5程度にまで改善（p8,表0-1）。CNF5%添加ポリ乳酸/PPにおいてニートPP樹脂の1.4倍の弾性率を達成(p12)。射出成形、ブロー成形に適した複数の複合樹脂組成を開発（p25,表1-2,表1-3）。 **②耐衝撃構造用途：目標達成** CNF複合バイオPEでCharpy強度3.0kJ/m^2(p8,表0-1)でバイオPEより50℃高い熱変形温度を達成。さらに、バイオLLDPEを5%CNFで補強することで、高いCharpy強度（77.6kJ/m^2）を保ち、曲げ弾性率を2.5倍、強度を2倍まで向上(p26,表1-4)。 **③土壌分解性・高剛性構造用途：目標を上回って達成** PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で（p10,図0-5、曲げ弾性率および強度をPBSの5.9倍および2.3倍まで増大、熱変形温度をニート樹脂よりも30℃アップ(p9, 表0-2)。さらに目標にない新たな成果として、CNFネットワークによる生分解性樹脂の分解促進機構を世界で初めて発見(p11,図0-6)。 **④海洋分解性・高強度材料用途：目標を上回って達成** PHBHと同等の海洋および土壌分解性を保持した状態で(p10,図0-5, p11,図0-7)、曲げ弾性率、強度を最大で3.4倍、1.9倍増大。熱変形温度をニート樹脂よりも17.5 ℃アップ(p10,表0-3)。さらに目標にない新たな成果として、5回のリサイクル後も曲げ性能を維持することを明らかにした(p10,図0-4)。 **⑤環境性能（各複合材共通）：目標達成** 各複合材料の製造時温室効果ガス排出原単位、LCA実施時の暫定的な算定方法論を整理し、CNF複合樹脂の温室効果ガス排出量を算出(p32,図1-11、p11,図0-8)。

＜【サブテーマ２】達成状況＞・・・・・・・・ 2．目標を上回る成果をあげた

「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」

サブテーマ２目標	サブテーマ２の達成状況
サブテーマ１で開発したCNF複合材料を実際の製品に加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用	サブテーマ１で開発したCNF複合材料を試験金型、製品金型で加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出した。

化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出す。 **①高剛性構造用途・射出成形品：**CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 　射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**①高剛性構造用途・射出成形品：目標達成** CNF/ポリ乳酸/PPについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を3社で評価。運搬用パレットの要求性能を達成（p12,図0-9）。射出成形で実用化可能な用途として運搬用パレット、電気部品、自動車フォグランプ部品を見出した。
②耐衝撃構造用途・射出成形品：CNF複合バイオPE 　射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**②耐衝撃構造用途・射出成形品：目標を上回って達成** CNF複合バイオPEについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を10社で評価。射出成形で実用化可能な用途として、自動車でエアコンケース、ランプハウジング、エアクリーナケース、ドアトリムを見出した。さらに分析機器部材、文房具、日用雑貨品、容器部品についても性能的に実用化可能な用途を見出し、それに基づき、文房具で３つの商品化を達成した（p13,図0-10，0-11，表0-4）
③高耐熱構造用途・ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 　ブロー成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。	**③高耐熱構造用途・ブロー成形品：目標達成** CNF複合バイオLLDPEについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を1社で評価。ブロー成形で実用化可能な用途として、液体ボトル（p14,図0-12）、トナーボトルを見出した。
④高耐熱構造用途・押出成形品：CNF複合バイオPE 　押出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。	**④高耐熱構造用途・押出成形品：目標達成** CNF複合バイオPE を1社で押出成形性で評価（p37,表2-1）。さらに生分解性CNF複合ポリ乳酸について1社で特殊押出法（延伸）による発泡加工性、製品性能を評価。断熱性のある食品容器、加熱可能な食品容器への実用化について現行品と比較しながら継続評価中。
⑤土壌分解性・高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH 　日用品（ワンウェイスプーン、等）射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**⑤土壌分解性・高剛性構造用途・射出成形品：目標達成を上回って達成** CNF複合PHBHについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を2社で評価。射出成形で実用化可能な用途として目標を上回る6品目：ワンウェイスプーン、植木鉢、苗ポッド、紙コップホルダー、角皿、丸皿を見出した（p14,図0-13）。
⑥海洋分解性・高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**⑥海洋分解性・高剛性構造用途・射出成形品：目標達成** 目標にない新たな成果として、CNF複合PHBHについてサブテーマ１で開発した樹脂組成で射出発泡成形を行い発泡特性を評価。CNFを複合することで最大発泡倍率が数倍向上することを確認。射出発泡成形で実用化可能な用途として、ルアーや浮き、浮き輪、ブイ、食品トレーを見出した（図p42,図2-13）
⑦環境性能（各成形品共通） 　サブテーマ１-⑤を踏まえ、CNF複合材を使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに低炭素化への技術ポテンシャルを明確にする。	**⑦環境性能（各成形品共通）：目標達成** CNF複合材に関するLCA実施に際し必要なデータ収集範囲を整理し、CNF複合バイオPE製品のLCAを算定。低炭素排出素材としての優位性を明らかにした（p15,図0-17、p16,図0-18）。

５－３．　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＞

3機関の連携と17のアドバイザー企業の協力により、バイオポリエチレンやPLAをCNFで補強することで、自動車部材や建築資材等においてバイオマスプラスチックのみでは達成できなかった用途展開が可能であることを世界に先駆けて見出した。また、LCA評価と組み合わせることで、そのようなCNF複合バイオマスプラスチックは、現在の主要工業材料である金属やセラミックス、石油由来プラスチックと異なり、製造段階でカーボンネガティブとなる構造用材料であり、マテリアルリサイクルも容易であることから、カーボンニュートラル2050の実現に向けて、今後、その用途拡大を積極的に押し進める必要があることを示した。また、生分解性のバイオマスプラスチックにおいては、CNF補強を行っても海洋分解性は損なわれず、さらに土壌分解性においては、材料中のCNFネットワークが成形品の形状を維持しながらも内部からの生分解性を促進することを世界で初めて見出した。この成果は環境負荷の小さい材料である生分解性プラスチックの用途拡大に資するものである。

＜行政等に既に貢献した成果＞

（株）上山製作所と行った樹脂組成検討の結果として、（株）上山製作所は（株）Nature Giftsが製造するCNF複合バイオポリエチレンを環境配慮型材料として用いた文房具を上市した。

＜行政等に貢献することが見込まれる成果＞

バイオ&バイオとマテリアルリサイクルで温室効果ガス・ゼロエミッションに貢献

本研究は、温室効果ガス2050ゼロエミッションに向けた我が国の目標「2030年までに200万トンのバイオマスプラスチックへの転換」への貢献を目的とし、植物由来の高強度ナノ繊維、CNFでの補強による、高機能・高性能が求められる製品分野（家電、建材、自動車、産業資材等）および生分解性等の環境性能が求められる製品分野（日用品、漁具等）へのバイオマスプラスチックの導入拡大について検証した。

構造用バイオマスプラスチック、生分解性バイオマスプラスチックについてCNF補強による性能変化、環境特性を評価した結果、バイオPEについてCNF補強で自動車用タルク添加PP樹脂と同等の剛性、強度で、軽量かつ耐熱性に優れた複合材を製造できることを明らかにした。また、CNF補強バイオPEの樹脂組成の検討により、耐衝撃性に優れたボトルのブロー成形に成功した。さらに、生分解性バイオマスプラスチックのPBSおよびPHBHについては、CNF補強で生分解性を損なうことなく、曲げ弾性率、曲げ特性および耐熱性（HDT）を大幅に向上できることを示した。

これまでバイオPEについては、曲げ特性や耐熱性の点から、大きな市場である自動車構造用途や家電品構造用途、建築資材への展開が限られていた。また、PBSおよびPHBHについても曲げ特性や耐熱性の観点から、これまでフィルムなどの強度があまり重視されない用途で利用されてきた。これに対し、本研究を通して、CNFによる補強でバイオマスプラスチックのみでは達成できなかった広い用途への展開が可能であることを世界に先駆けて見出した。特に、バイオPEについて、本研究の成果に基づき環境を意識した文房具への商品化がなされた点は特筆すべきことである。また、生分解性プラスチックについては、熱い食品を取り扱うワンウェイ用途のカトラリーや容器への展開が継続して検討されている。

さらに、LCA手法を用いて、CNF複合材および成形品について植物の栽培からCNFとバイオ樹脂の複合までの累積での温室効果ガス排出量を算定するなど、ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに、文献調査と評価シナリオ設定を通じて、次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための暫定的算定方法論を作成している。

CNF複合材は排出CO_2の削減に効果があるマテリアルリサイクルが容易である。LCA評価に基づき、マテリアル製造の要素技術の最適化、リサイクルを行うことで、CNF複合材は使用すれば使用するほど大気中の二酸化炭素が減少していく“ネガティブエミッション”材料になる可能性を有している。CNF複合材を始めとする構造用セルロース複合バイオマスプラスチックの積極的活用は温室効果ガス2050ゼロエミッションに大きく貢献することが期待できる。

6．　研究成果の発表状況の概要

6－1．　成果の件数

成果の種別	件数
査読付き論文：	0
査読付き論文に準ずる成果発表（人文・社会科学分野）：	0
その他誌上発表（査読なし）：	3
口頭発表（国際学会等・査読付き）：	2
口頭発表（学会等・査読なし）：	7
知的財産権：	0
「国民との科学・技術対話」の実施：	8
マスコミ等への公表・報道等：	0
研究成果による受賞：	0
その他の成果発表：	0

6－2．　主な査読付き論文等の主要な成果

成果番号	主要な成果（10件まで）
	特に記載すべき事項はない。

※この欄の成果番号は「Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細」と共通です。

7．　国際共同研究等の状況

＜国際共同研究等の概要＞

特に記載すべき事項はない。

８．　研究者略歴

＜研究代表者略歴＞

代表者氏名	略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等）
矢野浩之	京都大学農学研究科博士後期課程中退、農学博士。京都府立大学農学部林学科助手、講師、京都大学木質科学研究所助教授を経て2004年より同生存圏研究所教授。京都大学生存圏研究所バイオナノマテリアル共同研究拠点代表。専門は木質材料学、研究テーマはセルロースナノファイバー強化樹脂材料の開発と実装。

＜研究分担者（サブテーマリーダー）略歴＞

分担者氏名	略歴（学歴、学位、現職、研究テーマ等）	参画期間
1）臼杵有光	名古屋大学工学部応用化学科修士課程修了、博士（工学）、(株)豊田中央研究所取締役材料分野長を経て、2022年度まで京都大学生存圏研究所特任教授。専門は高分子科学、複合材料学。	2021年度～ 2022年度
2）神崎昌之	早稲田大学理工学部化学科修士課程、ミシガン大学土木環境工学科修士課程修了、修士、産業環境管理協会を経て2019年サステナブル経営推進機構入社、2023年3月現在海外戦略事業部部長、LCA学会理事、ISO/TC207/SC3（環境ラベル）エキスパート、専門はLCA。	2023年度

Ⅱ．　成果の詳細

Ⅱ－１　サブテーマ１「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」

［サブテーマ１要旨］

CNF複合バイオマスプラスチック（PLA、バイオPE、PBS、PHBH）の基本性能を、①高剛性構造用途、②耐衝撃構造用途、③土壌分解性・高剛性構造用途、④海洋分解性・高強度材料用途、⑤環境性能（各複合材共通）に分けて検討した。バイオPEについてCNF補強で自動車用タルク添加PP樹脂と同等の剛性、強度で、軽量かつ耐熱性に優れた複合材や耐衝撃性を維持しながら高弾性の複合材を製造できることが明らかになった。また、生分解性バイオマスプラスチックについては、CNF補強で海洋分解性を損なわず、強度特性や発泡特性を向上できることが明らかになった。さらに、土壌分解性において、材料中のCNFネットワークが成形品の形状を維持しながらも内部からの生分解性を促進することを世界で初めて見出した。各複合材料の製造時温室効果ガス排出原単位、LCA実施時の暫定的な算定方法論を整理し、CNF複合樹脂の温室効果ガス排出量を算出した。

１．　サブテーマ１研究開発目的

サブテーマ１は、高機能・高性能が求められる製品分野（自動車、産業資材、建材、家電、文具・日用品等）および土壌・海洋分解性製品分野（CNFが生分解性である特徴を活かしたワンウェイ容器・食器・日用品、漁具等）へのCNF複合によるバイオマスプラスチックの導入拡大の検証に向けて、多種類のバイオマスプラスチックにおけるCNF補強性の解析、評価および複合化バイオマスプラスチック材料の生分解性、LCAといった環境性能の評価を行うことを目的とした。

２．　サブテーマ１研究目標

サブテーマ１	「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」
サブテーマ１実施機関	京都大学、京都市産業技術研究所、サステナブル経営推進機構
サブテーマ１目標	①高剛性構造用途：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 曲げ弾性率：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の2倍、線熱膨張係数：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の半分。 ②耐衝撃構造用途：CNF複合バイオPE 耐衝撃性（Charpy強度）：10%CNF CNF複合でバイオPE(1.5kJ/m^2)の2倍。 上述の耐衝撃性を有した状態で熱変形温度（高荷重）をバイオPEより30℃アップ。 ③土壌分解性・高剛性構造用途：CNF複合PBS PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PBSの2倍、曲げ強度：PBSの2倍、熱変形温度（高荷重）をPBSより30℃アップ。 ④海洋分解性・高強度材料用途：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS PHBHと同等の海洋分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PHBHの2倍、曲げ強度：PHBHの2倍、熱変形温度（高荷重）をPHBHより30℃アップ。 ⑤環境性能（各複合材共通） 上記CNF複合材について、環境性能の代表指標としてLCA手法を用いて複合材製造プロセスまでのライフサイクル温室効果ガス排出量を明らかにする。

３．　サブテーマ１研究開発内容

サブテーマ１では、高機能・高性能が求められる製品分野および土壌・海洋分解性製品分野へのCNF複合によるバイオマスプラスチックの導入拡大に向けて、多種類のバイオマスプラスチックにおけるCNF補強性の解析、評価および複合化バイオマスプラスチック材料の生分解性、LCAといった環境性能の評価を行った。

令和３年度	バイオマスプラスチック（ポリ乳酸、バイオPE、PBS、PHBH）およびそのブレンド物についてアセチル化CNF添加率を変化させて複合材を作製し、射出成形サンプルについて強度性能を評価した。また、生分解性樹脂との複合化においては、土壌分解性、海洋分解性を強度特性変化、顕微鏡による観察から評価した。 LCAについて原料栽培時の土地利用変化等の最新の評価動向を踏まえて暫定的な算定方法論を作成し、各材料の製造時温室効果ガス排出原単位を整備した。
令和４年度	バイオマスプラスチックのブレンド物（ポリ乳酸/バイオPE、PBS/PHBH）について、アセチル化CNF添加率、樹脂組成や比率、添加剤を変えて、求められる実用物性、コストに向けて性能向上を図った。射出成形サンプルについて強度性能、環境性能（マテリアルリサイクル性）を評価するとともに、生分解性樹脂との複合化においては土壌分解性、海洋分解性を評価した。並行して、ブロー成形用、押出成形用樹脂組成の検討を進めた。 LCAについて各材料の製造時温室効果ガス排出原単位を拡充する。
令和５年度	令和４年度で絞り込んだ樹脂組成を軸に、用途に応じた更なる性能向上を図った。射出成形サンプルについて強度性能を評価するとともに、生分解性樹脂との複合化においては土壌分解性に関する評価、機構解明を行った。並行して、ブロー成形用、押出成形用樹脂の組成検討を進めた。 LCAについて絞り込んだ材料の製造時温室効果ガス排出原単位を精査する。

４．　サブテーマ１結果および考察

サブテーマ１ではCNF複合材の強度性能、生分解性特性について検討するとともに、射出成形、ブロー成形、押出成形といった異なる成形法に合わせたCNF添加率、樹脂組成の検討、改良を進めた。また、生分解性樹脂との複合化においては、CNF複合材の土壌分解性、海洋分解性を強度特性変化、顕微鏡観察による構造変化等から評価した。並行して、CNF/バイオマスプラスチック複合材製造時のライフサイクル温室効果ガス排出原単位について整備した。

【サブテーマ１】CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価

①高剛性構造用途：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE

CNF複合材の製造はパルプ直接混練法（京都プロセス）により行った。本研究では、未乾燥パルプをアセチル化処理し、押出機等を用いた溶融樹脂との混練時にパルプのナノ解繊および樹脂中への均一分散を行うCNF複合材製造法（京都プロセス第3世代）を用いたが、サブテーマ２におけるLCA評価では、パルプの変性と解繊、樹脂中への均一分散を押出機内ですべて行うパルプ直接混練法（京都プロセス第4世代）との比較も行った。第3世代のパルプには、アセチル化処理を置換度（DS）0.9で行った変性パルプを使用した。CNF率にはアセチル基分は含まない。

CNF補強ポリ乳酸（CNF10%, PLA20%, PP+MAPP:70%）で曲げ弾性率4.8GPaと開発目標を越えるベース樹脂：PP+MAPPの補強効果（2倍以上）が得られたが、高温・湿潤下での試験においてPLAの分解に起因すると思われる重量減少が生じた。構造用途では使用箇所、使用期間などへの配慮が必要である。このためポリ乳酸（PLA、Ingeo3251D、NatureWorks LLC）に関しては、湿潤下での使用が予想される用途では単独使用は行なわず、パルプ直接混練法における変性パルプの解繊促進剤として検討した。

バイオPEについては、様々な構造用途へのCNF補強効果について検討するために、射出成形用途、ブロー成形用途、シート加工用途ごとにブラスケム社の商品群から適宜、目的に応じて選択し、CNF添加率と強度特性の関係を明らかにした。

主な成果は以下の通りである。

(a)射出成形グレード

射出成形は自動車部材や家電部材、日用品において最も多用されている樹脂成形法である。樹脂には金型内への注入に関係し高い流動性が求められる。このことから、MFR（静的樹脂流動性）が大きく、比較的高弾性のHDPEである射出成形グレード、ブラスケムSHA7260をベース樹脂に選択し、CNF補強の効果について成形性も含め評価した。バイオPE（SHA7260）については、弾性率、強度がCNF補強により自動車用途に広く用いられているタルク添加PPと同等の性能になるとともに（図1-1）、高荷重下での熱変形温度（HDT）が、タルク添加PP品を上回ることが明らかになっている。タルクは天然の鉱石を粉砕した微粒子で、プラスチックの補強用フィラーとして一般的に用いられている。このことから、より高弾性、高強度の射出成形品の製造を目指し、CNFとタルクの併用による強度特性の変化について検討した。結果を表1-1に示す。

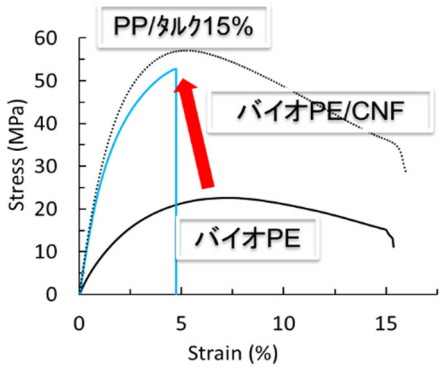


図1-1　CNF補強によるバイオPEの強度特性変化（環境省アセチル化CNF強化バイオPEプロジェクトの成果、2019-2020年度

CNF10％にタルク15％を添加するとバイオPEの弾性率は1.13GPaから3.76GPaまで3倍以上も大きくなり、強度は自動車用タルク添加PP材を上回った。線熱膨張係数も大きく低下した。CNF添加率が増えると樹脂の流動性が低下することから、成形性を重視したCNF添加率5%について、CNF率とタルク添加率との関係を明らかにした。耐衝撃性については、CNF強化品のノッチありシャルピー衝撃強度はベース樹脂と変わらなかったが、ノッチなしの値は低下した。CNF材料の採用に当たって注意すべき点である。

表1-1（表0-1）CNF補強による射出成形グレードバイオPEの強度特性変化

	曲げ試験			シャルピー衝撃試験 4J		線熱膨張係数[2)]
	弾性率 (GPa)	強度 (MPa)	破断歪み (%)	ノッチあり (kJ m^{-2})	ノッチなし (kJ m^{-2})	
ベース樹脂 SHA7260	1.13	25.1	-	2.68	(103) [1)]	176.8
CNF10%＋タルク15%	3.76	60.8	4.4	3.00	21.5	38.4
CNF5%＋タルク2.5%	1.73	36.8	-	2.43	30.9	N.D.
CNF5%＋タルク10%	2.24	42.2	-	2.57	27.1	53.6

1) 全てNBのため参考値　2) 0-100℃の範囲で算出

(b)ブロー成形グレード

ブロー成形はペットボトルやポリ容器などの成形に用いられる成形方法である。CNF補強での弾性率および強度の向上による容器の薄肉化、軽量化への期待が大きい。射出成形グレードに比べ、ブロー成形では溶融粘度の高い樹脂の使用が求められる。CNFの添加により溶融樹脂の粘度は上昇するが、ブロー成形においては、それは成形時に樹脂（パリソン）がたれ落ちてしまうドローダウンを防ぐ上でプラスの効果となる。一方で、成形品には液体等を充填した状態での落下時の衝撃強度が求められるため、耐衝撃性を大きく損なわないCNF率での利用が重要である。そこで、CNFの添加でMFRが低下することを考慮し、CNF添加後に一般的なブロー成形グレードのMFRに近い値になるようにベース樹脂としてブロー成形グレード、ブラスケムSHE150を選定した。CNF添加率は5%である。結果を表1-2に示す。

高CNF率のマスターバッチ(MB)をベース樹脂で希釈する際にはCNFの分散不良が発生する可能性がある。そこで、最初に希釈工程について検討した。一段階希釈と二段階希釈で曲げ・衝撃特性に大きな差

表1-2　CNF補強によるブロー成形グレードバイオPEの強度特性変化

	曲げ試験			シャルピー衝撃試験4J	備考
	弾性率 (GPa)	強度 (MPa)	破断ひずみ (%)	ノッチあり(kJm^{-2})	
ベース樹脂 SHE150	1.01	22.1	-	33.4	CTE 190ppm/K (40-60℃)
二段階	1.49	35.6	-	4.92	
一段階	1.49	36.3	-	4.62	
一段階・高吐出量	1.60	34.8	-	5.47	MFR 0.25 (190℃, 2.16 kg) CTE 130ppm/K (40-60℃) 上記2試料とは射出成形条件が異なる

は見られず、二段階希釈では、CNFの短繊維化が起こっている傾向が見られた。このことから、CNF5%程度への希釈は一段階希釈で良いと判断した。

CNF5%の補強では、弾性率は1.5-1.6倍、強度は1.5-1.7倍にまで増大した。一方、シャルピー強度はノッチ有りで33kJ/m^{2}から5kJ/m^{2}にまで大きく低下した。そこで、②耐衝撃構造用途の検討では樹脂をLLDPEに変更した。

②耐衝撃構造用途：CNF複合バイオLLDPE/LDPE

LLDPEやLDPEはTダイキャスト法での押出成形によるフィルム製造に使用される樹脂であるが、耐衝撃性に優れている点で、CNFで補強した耐衝撃構造用途のベース樹脂として期待できる。最初にバイオLLDPEからブラスケムSLH118を補強用樹脂に選択した。CNF複合体の特徴を把握するため、高CNF率(10%)と低CNF率(1%)の複合材を作製し、曲げ強度特性および衝撃特性を測定した（表1-3）。

表1-3　CNF補強によるフィルム成形グレードバイオPEの強度特性変化

	曲げ試験			シャルピー衝撃試験4J	備考
	弾性率 (GPa)	強度 (MPa)	破断ひずみ (%)	ノッチあり (kJm-2)	
ベース樹脂 SLH118	0.272	8.49	-	(64.4)*	*すべてNBのため参考値
CNF10%	1.30	26.2	-	10.8	
CNF1%	0.341	10.2	-	(72.3)**	**すべて不完全破壊

フィルム用樹脂は曲げ弾性率、強度は低いが、衝撃特性が高い特徴を有している。ベース樹脂にCNFを10%添加すると、曲げ弾性率は約5倍に、曲げ強度は約3倍にまで大きく向上した。ベース樹脂の曲げ特性が低い分、CNFの補強効果が非常に高く現れたといえる。一方で、衝撃特性は大幅に低下した。また、CNF1%品では、曲げ特性の向上率(20~25%)は、 CNF10%品の向上率から考えると低い。CNFが均一に分散出来ておらず、CNFネットワークの形成が不十分な可能性がある。そこで繊維率2%、5%および10%において衝撃特性を検討した。比較として、耐衝撃性に優れた他のバイオPE,LDPE（SBC818およびSTN7006）についても補強効果を検討した（表1-4）。

LLDPEとLDPEはニート樹脂の曲げ弾性率、曲げ強度はほぼ同等で、それらのCNF補強による変化も似ている。LLDPE（SLH118）は5%のCNF添加で弾性率は2倍以上に、強度も2倍近くになった。LDPE（STN7006）もほぼ近い曲げ特性にまで向上している。これに対し、衝撃強度（シャルピー強度）では大きな違いが生じた。LDPEではCNF率5%ではニート樹脂の半分にまで衝撃強度が低下したのに対して、LLDPEではニート樹脂と同等あるいはそれ以上の衝撃強度を示した。高い衝撃強度を有する樹脂へのCNF添加で衝撃強度が増大することは極めて稀である。また、衝撃試験後のサンプルを見ると、LLDPEでは、5%CNF補品とニート樹脂品がヒンジ破壊の形態（破壊面が白化し破壊が停まる）を示した。CNF補強で弾性率や強度が大きく向上する一方で、高い耐衝撃強度を維持しているといえる。このような特性

表1-4（図0-3）CNF補強によるバイオLLDPEおよびLDPEの耐衝撃特性

LLDPE

	曲げ試験		シャルピー /kJ m^{-2}
	弾性率 /GPa	強度 /MPa	
SLH118	0.272	8.49	64.4
CNF1%	0.341	10.2	72.3
CNF2%	0.384	10.8	75.9
CNF5%	0.684	16.0	77.6
CNF10%	1.30	26.2	10.8

LDPE

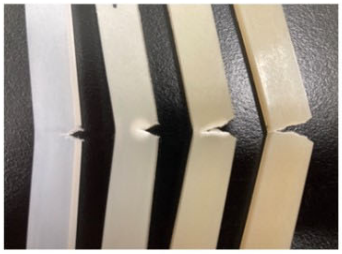
	曲げ試験		シャルピー /kJ m^{-2}
	弾性率 /GPa	強度 /MPa	
SBC818	0.162	7.27	56.9
CNF2%	0.244	9.49	60.4
CNF5%	0.418	13.5	13.1
CNF10%	0.863	22.1	5.43

LDPE

	曲げ試験		シャルピー /kJ m^{-2}
	弾性率 /GPa	強度 /MPa	
STN7006	0.229	9.33	76.4
CNF2%	0.317	11.4	80.4
CNF5%	0.504	15.0	33.4
CNF10%	0.922	23.7	6.76

左から、ニート, CNF1%, 2%, 5%, 10%

左から、ニート, CNF2%, 5%, 10%



左から、ニート, CNF2%, 5%, 10%

は高い衝撃強度を維持したブロー成形品の製造を可能にすると期待される。

③土壌分解性・高剛性構造用途：CNF複合PBS

生分解性樹脂であるPBSの性能向上を目的に、京都プロセスに基づいてCNFを複合化した。本研究では、原料として三菱ケミカル（株）製のPBS 2種（ZM7B01：産業コンポストグレード、DM9B01：ホームコンポストグレード）、日本製紙（株）製のアセチル化変性パルプ（変性度0.97）及びパルプの膨潤剤を使用した。表1-5に本検討で作製した複合樹脂の代表的な性能をまとめた。基礎検討としてCNFの複合率が異なる複合樹脂（No.1-4）を作製した結果、CNF複合率の増加に従い曲げ弾性率及び強度が向上することを確認した。DM9B01の場合、CNFを10 wt% 複合することで（No.2）、曲げ弾性率1240 MPa（ニートの4.6倍）、曲げ強度32.2 MPa（ニートの2.1倍）となった。同様にZM7B01の場合、CNFを10 wt%複合することで（No.4）、曲げ弾性率2430 MPa（ニートの3.7倍）、曲げ強度64.5 MPa（ニートの1.9倍）となった。

表 1-5（表 0-2）CNF 複合 PBS の組成および性能

No.	PBS グレード	CNF (wt%)	添加剤		曲げ弾性率 (MPa)	曲げ強度 (MPa)	HDT (℃)
			種類	wt%			
DM9B01		0	-	-	270	15.3	50.4
1	DM9B01	5	-	-	670	23.4	67.3
2		10	-	-	1240	32.2	71.6
ZM7B01		0	-	-	660	33.2	70.2
3	ZM7B01	5	-	-	1460	49.9	84.1
4		10	-	-	2430	64.5	93.2
5		10	タルク	5	2660	66.4	82.5
6	ZM7B01	10	タルク	10	2800	66.7	83.1
7		10	タルク	20	3910	75.6	84.5
8		0	タルク	20	1410	45.9	70.6
9		10	ラミー	5	2780	66.0	95.4
10	ZM7B01	10	ラミー	10	3230	70.3	95.7
11		10	ラミー	15	3720	75.3	100.0

HDT：負荷応力1.80 MPa

さらなる性能の向上を目的に、CNFと他の添加剤の併用を検討した。結果として、タルク及びセルロース系の長繊維であるラミーにおいて特に効果が大きかった。以降、ZM7B01をベース樹脂として検討を行った結果について記載する（No.5-11）。CNFと併用するタルク及びラミーの量が増えるに従い性能が向上した。CNF10 wt%とタルク20 wt%を複合したPBS(No.7)では、曲げ弾性率3910 MPa、曲げ強度75.6 MPa(それぞれニートの5.9倍及び2.3倍)となった。タルクを含まないCNF複合PBS(No.4)と比較すると曲げ弾

性率の増加量は1480 MPa(2430 MPa→3910 MPa)である。一方、タルクのみを20wt%添加した場合(No.8)、ニートのPBSからの曲げ弾性率の増加量は750 MPa(660 MPa→1410 MPa)と小さかった。同じタルクの複合率(20wt%)であっても、CNFを含む方が弾性率の増加量が多く、タルクの併用によって、相乗効果が発現し性能向上したことを示唆している。なお、曲げ強度もタルクの複合率が増えるほど増加したが、曲げ弾性率とは異なり、CNFとの併用による相乗効果は見られなかった。

セルロース系長繊維であるラミー15 wt%とCNF10 wt%の併用(No.11)では、曲げ弾性率が3720 MPa(ニートの5.6倍)、曲げ強度が75.3 MPa(ニートの2.3倍)まで向上した。さらに負荷応力1.80 MPaにおける荷重たわみ温度(HDT)が100℃となった(ニート樹脂は70.2℃)。本テーマの開発目標である「ニート樹脂に対して曲げ弾性率及び強度2倍、荷重たわみ温度30℃向上」を達成した。

④海洋分解性・高強度材料用途:CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS

海洋分解性樹脂であるPHBHの性能向上を目的に、京都プロセスに基づいてCNFを複合化した。本研究では、原料として(株)カネカ製のPHBH(PHBH-131N)、日本製紙(株)製のアセチル化変性パルプ(変性度0.97)を使用した。表1-6に本検討で得られた代表的な複合樹脂の物性をまとめた。基礎検討としてCNFの複合率が異なる複合樹脂を作製し、性能を評価した(No.12及び13)。CNF複合率10 wt%(No.13)で曲げ弾性率3080 MPa(ニートの2.4倍)、曲げ強度60.9 MPa(ニートの1.5倍)となった。

表1-6(表0-3)CNF複合PHBHの組成および性能

No.	CNF (wt%)	添加剤		曲げ弾性率 (MPa)	曲げ強度 (MPa)	HDT (℃)
		種類	wt%			
PHBH-131N	0	−	−	1310	39.5	77.0
12	5	−	−	2090	49.4	85.3
13	10	−	−	3080	60.9	94.4
14	10	タルク	5	3100	58.0	92.3
15	10	タルク	10	3320	59.7	94.5
16	10	タルク	20	4490	61.4	93.0
17	0	タルク	20	2310	41.4	80.6
18	10	PLA	11.43	3540	71.9	73.4
19	10	MA-PLA	11.43	3630	75.6	68.5

HDT:負荷応力1.80 MPa

さらなる性能の向上を目的に、種々の添加剤をCNFと併用した複合樹脂の作製を行った。結果として、タルク、ポリ乳酸(PLA、Ingeo3251D、NatureWorks LLC)及びマレイン酸変性ポリ乳酸(MA-PLA、京都市産業技術研究所にてIngeo3251Dを変性)の併用で特に高い効果が得られた。

タルクを併用した場合(No.14-16)、タルクの複合率増加に伴って曲げ特性が向上し、CNF10 wt%とタルク20 wt%を複合したNo.16の曲げ弾性率は4490 MPa(ニートの3.4倍)、曲げ強度は61.4 MPa(ニートの1.5倍)となった。また、PLAを併用したNo.18の曲げ弾性率及び強度はそれぞれ3540 MPa(ニートの2.7倍)及び71.9 MPa(ニートの1.8倍)、MA-PLAを併用した場合(No.19)では3630 MPa(ニートの2.8倍)及び75.6 MPa(ニートの1.9倍)となった。それぞれ、PHBHのみで作製したCNF10 wt%複合PHBH(No.13)の曲げ弾性率 3080 MPa及び曲げ強度60.9 MPaよりも向上した。フィラーによる樹脂の補強に際しては、フィラーと樹脂間の界面接着性が重要であるが、PLAやMA-PLAを併用した場合における曲げ特性の向上は、PHBHよりも極性基が多いPLA及びMA-PLAによって、樹脂とCNF間の接着性が改善した結果であると推測される。PLA及びMA-PLAの併用により「ニート樹脂に対して曲げ弾性率及び強度2倍」という目標をほぼ達成することができた。前述のタルクとPLA、またはMA-PLAを組み合わせることで、さらなる性能向上と用途拡大が期待できる。

⑤環境性能

(a) マテリアルリサイクル特性

CNF複合PBS(ZM7B01)及びPHBH(PHBH-131N)のマテリアルリサイクル性を評価するため、CNFを5 wt%複合した複合樹脂(No.3、No.12)を短冊形試験片(10 mm×80 mm×4 mmt)に成形し、曲げ試験後に粉砕、

再成形を行い、曲げ試験を実施する操作を5回繰り返した。図1-2にCNF複合樹脂の曲げ弾性率とリサイクル回数の関係をまとめた。CNF複合PBS、PHBHいずれの場合も、リサイクルを繰り返しても、曲げ弾性率はほぼ一定もしくは僅かに向上する結果となった。繊維系フィラーとして一般的なガラス繊維の場合には、リサイクル工程で折れて短くなり、補強効果が損なわれることが知られているが、微細かつしなやかなCNFの場合にはリサイクルを繰り返しても切断が生じず、補強効果が維持されたものと考えられる。また、リサイクルを繰り返すことによる僅かな弾性率の向上は、複合樹脂中に含まれる解繊不十分なパルプ繊維の解繊が徐々に進んだ影響であると考えられる。

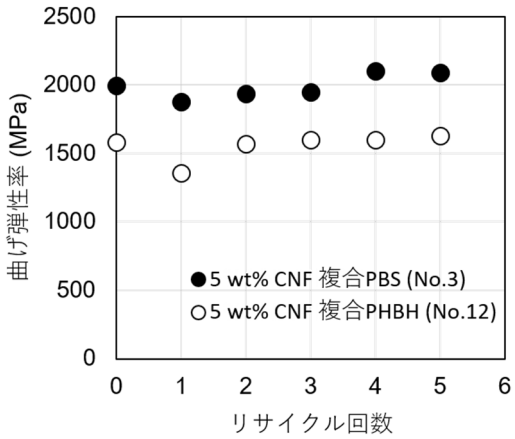


図1-2（図0-4）CNF複合樹脂のリサイクルにより曲げ弾性率変化

(b) CNF複合生分解性樹脂の土壌分解性

生分解性プラスチックは、従来のプラスチックとは異なり、自然に分解するため環境への残留が起こらないとされ、これからの使用の増加が見込める樹脂である。これらの生分解性プラスチックのうち、PBSとPHBHをCNFで強化したサンプルについて、土壌を模した用土中での分解性を評価した。

使用した樹脂は、PBSはZM7B01、DM9B01（三菱ケミカル）、PHBHはPHBH-131N、PHBH-331N（カネカ）である。それぞれニート樹脂およびCNF5%、10%複合材の曲げ試験用サンプル（長さ：80mm、幅：10mm、厚さ：4mm）を射出成形により製造し、28℃の恒温室において、土壌を模した用土中に各サンプルを埋設し、48週間まで12週ごとに回収し、質量減少率を算出した。

PBSでは、分解性に優れるDM9B01で大きな質量減少を示した。CNF複合材はニート樹脂（CNF無添加）に比べ、分解初期での質量減少が大きい傾向がみられ、CNFの存在が初期劣化を促進している可能性が示された。CNF複合PHBH材では、ニート樹脂と比較して明らかにCNF複合材で質量減少が大きく、CNFの存在がPHBHの分解を促進していることが示された（図1-3）。

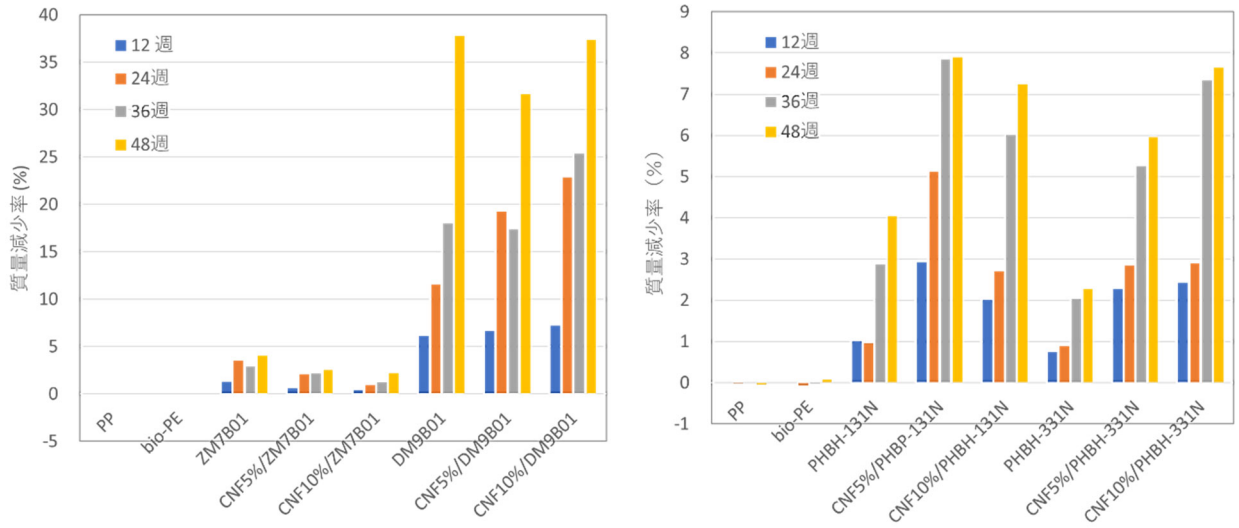


図１-3　生分解試験後のサンプルの質量減少率
左：PBS、右：PHBH　対象としてPP、バイオPEを使用

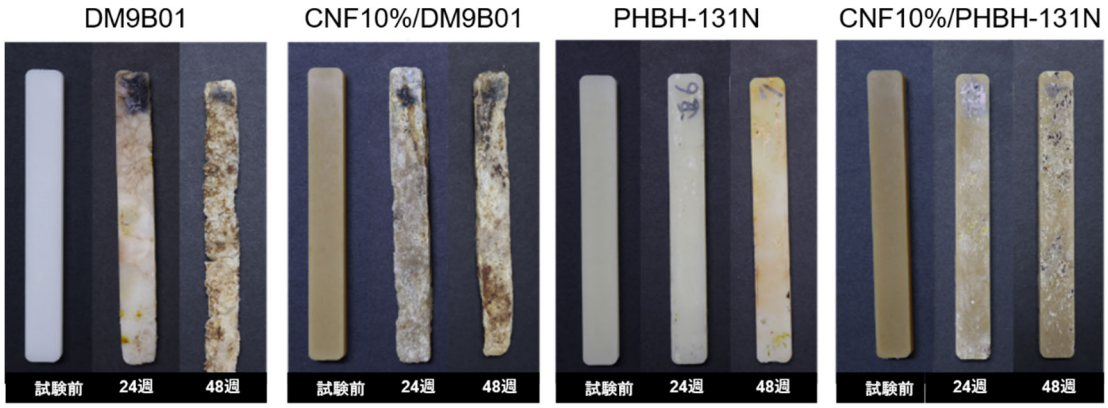


図1-4（図0-5）生分解試験後のサンプル外観

生分解試験後のサンプルの外観について図1-4に示す。PBSではニート樹脂の劣化が顕著で、48週ではすべてのサンプルが割れてしまい、また表層部分での小片の脱落が大きかった。このことが48週での大きな質量減少につながったと考えられる。一方、CNF10%添加複合材では、同様に劣化が激しく、サンプル自体はやせていっているものの、形状は保っており、ニート樹脂のように割れることはなかった。CNFの存在がサンプルの形状を保っていることが示された。PHBHのニート樹脂では、分解がゆっくり進んでおり、目立った劣化は観察されなかった。しかし、CNF複合材では、劣化部位が多くみられ、週数が進むとそれらの数が増え、また大きくなっていった。

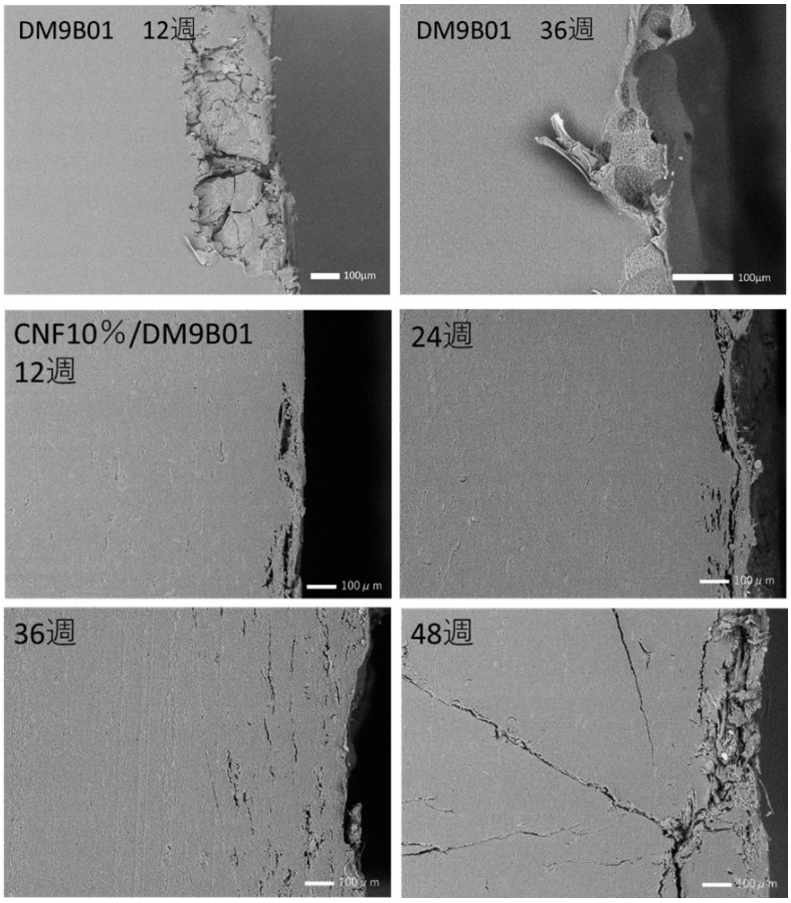


図1-5　低真空SEMを用いた生分解試験後のPBSサンプルの断面観察
射出方向に直角に切断し、切断面をミクロトームで削って観察した。
左上：ニートDM9B01-12週、右上：DM9B01-36週、左中：CNF10%/DM9B01-12週、右中：CNF10%/DM9B01-24週、左下：

生分解試験後のサンプルを射出方向に直角に切断し、断面を低真空SEMを用いて観察した（図1-5、1-6）。ニート樹脂では分解が進んでも、劣化部位はサンプルの表層にのみ観察された。一方、CNF複合材では、分解の初期から内部へと分解による空隙が広がっている様子が観察された。分解性に優れるDM9B01では、48週になるとニート樹脂のサンプルでは観察ができないほど亀裂が入っていた。一方、CNF複合材では、サンプル内部に亀裂がみられたものの、含まれるCNFがサンプルの形状を維持しており、割れることを防いでいた。

生分解試験後のサンプルに付着している微生物を青く染色し、光学顕微鏡で観察した（図1-7）。ニート樹脂サンプルでは、劣化部位を含む表層のみが染色されており、しばしば劣化部位の脱落がみられた。これに対しCNF強化サンプルでは、劣化部位の内部まで広く染色されており、サンプル内部に多数の微生物が存在していたことを示している。樹脂の分解とCNFの補強によりできたサンプル内部の空隙に微生物叢が形成されていたと考えられる。

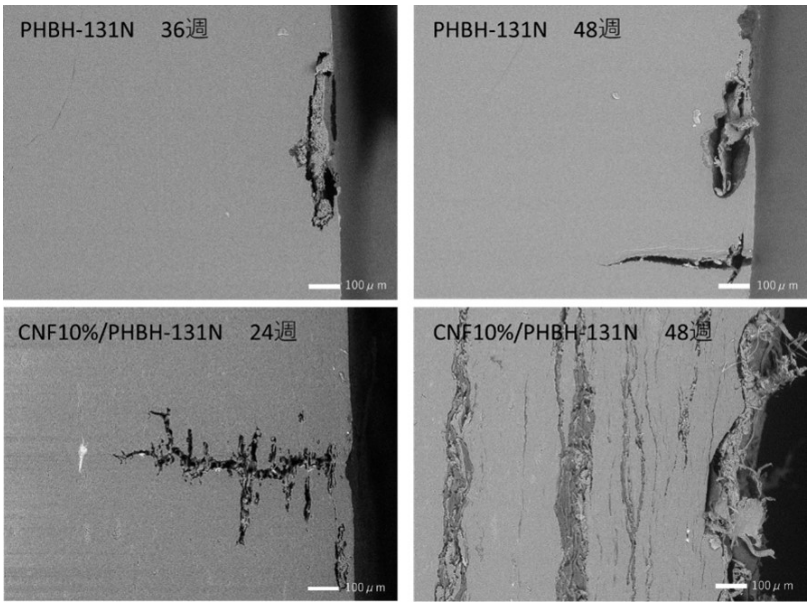


図1-6（図0-6）　低真空SEMを用いた生分解試験後のPHBHサンプルの断面観察　左上：ニートPHBH-131N-36週、右上：PHBH-131N-48週、左下：CNF10%/PHBH-131N-24週、右下：CNF10%/PHBH-131N-48週

これらの結果から、樹脂中のCNFのネットワークが、複合材サンプル内部への水分の移動を可能にし、内部からの生分解を促進していることが示された。また、CNFが微生物の住処となり、微生物による分解も促進していると考えられる。それにも関わらず、CNFは、分解が進んだ樹脂の形状維持に役立っており、劣化に伴う破壊を防いでいた。以上からCNF複合は生分解性樹脂の分解促進に有効に働きながら、成形体の形状を維持する効果があるといえる。これらは生分解性樹脂のCNF複合における世界初の知見であり、生分解性樹脂の用途拡大に貢献することが期待される。

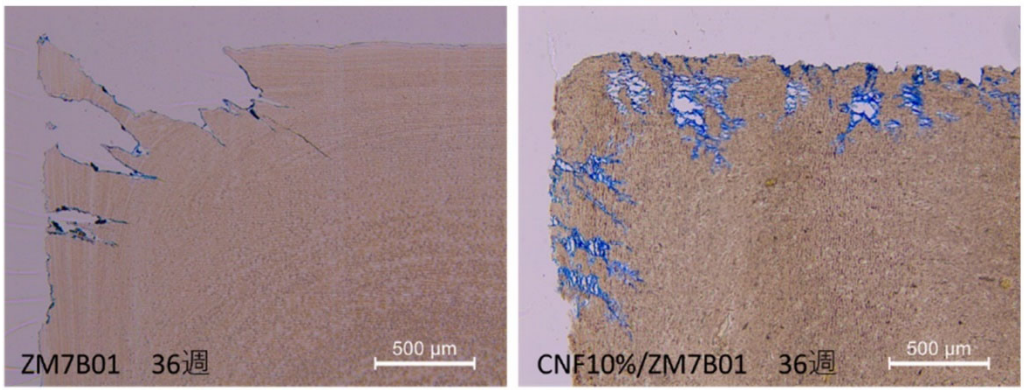


図1-7　光学顕微鏡を用いた生分解試験後のPBSサンプルの断面観察
アニリンブルーとコットンブルーにより微生物を染色し、射出方向に直角にスライスして観察した。右：ニートZM7B01、CNF10%/ZM7B01　それぞれ36週のサンプルを使用

(c) CNF複合生分解性樹脂の海洋生分解性

10 wt% CNF複合PHBHおよびニート樹脂のPHBH（PHBH-131N）の海洋生分解性試験を（株）カネカにおいて実施した。成形用ペレットから熱プレスにより 40×40×0.04 mm のフィルムを作製し、試験に使用した。試験は兵庫県高砂市にて採取した海水に栄養塩（NH_4Cl 0.5g/L、KH_2PO_4 0.1g/L）を添加した溶液にフィルムを沈め、直射日光の当たらない23℃環境で静置した。一定期間毎に試験片を取り出し、蒸留水で洗浄後、乾燥し、外観観察と重量保持率を調べることで、ニート樹脂およびCNF複合PHBHの海洋生分解性を評価した。図1-8には一定期間毎のサンプルの外観の変化を示した。CNFの有無に関わらず、試験開始から14日目のサンプルには全体に表面の平滑性が無くなり、25日目のサンプルでは崩壊が開始していた。50日目にはニート樹脂およびCNF複合PHBHのいずれにおいてもサンプルが消失した。

図1-9に試験経過日数に対するサンプルの重量保持率を示す。重量保持率は、試験開始前の試験片重量に対するサンプリング時の試験片重量の重量比である。図に示す通り、CNF複合PHBHの方がニート樹脂のPHBHよりも僅かに分解（崩壊）速度が早かった。土壌生分解性試験の結果に基づくと、CNFの存在が海洋中においても微生物によるPHBHの分解を促進していると考えられる。

以上の通り、本試験の結果からCNFの複合化はPHBH本来の海洋生分解性を損なわず、むしろ海洋中に放出された際の分解を促進し、マイクロプラスチックス問題の解決に貢献し得ることが示唆された。

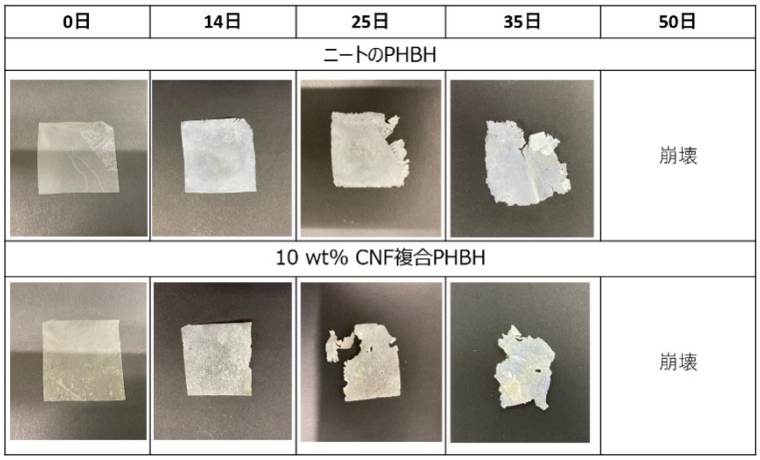


図 1-8（図 0-7）PHBH-131N および CNF 複合 PHBH フィルムの分解の様子

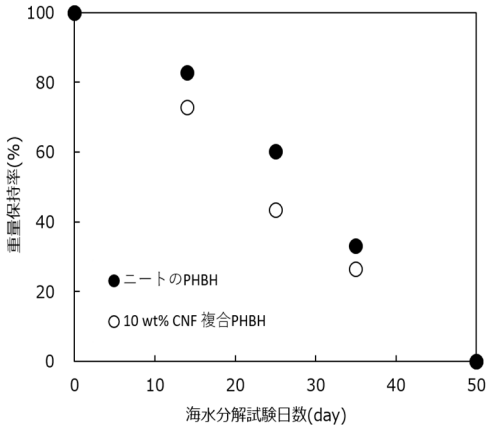


図 1-9 PHBH-131N および CNF 複合 PHBH（No. 13）の重量保持率

(d)CNF強化バイオマスプラスチックのライフサイクルアセスメント（LCA）

ライフサイクルアセスメント（LCA）手法を用いて、CNF複合材について植物の栽培からCNFとバイオマスプラスチックの複合までの累積での温室効果ガス排出量を算定した。具体的には、原料栽培時の土地利用変化等の最新の評価動向を踏まえて暫定的な算定方法論を作成し、文献値を参照してCNFとPLA、バイオPE、PBS、PHBHの各複合材料の製造時温室効果ガス排出原単位を整備した。

まず、バイオ素材のLCA実施時のプロセスフローについて既往文献を参考に図1-10の通り整理した。

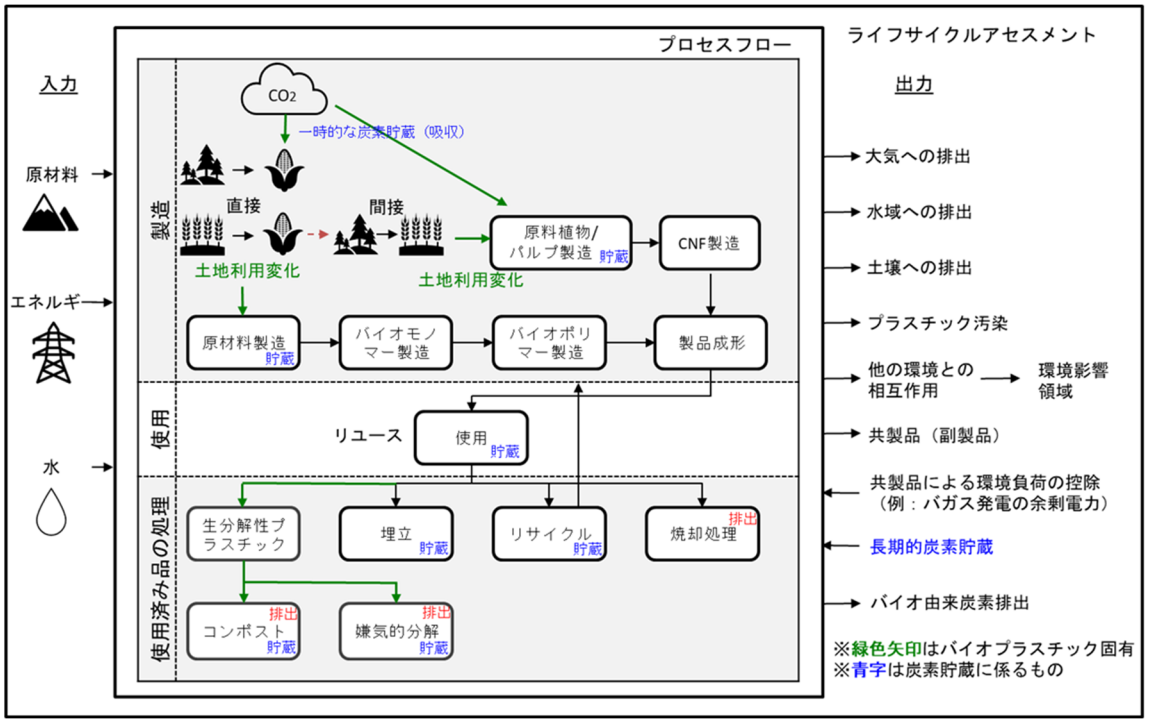


図1-10　バイオ素材のLCA実施時のプロセスフロー

表1-7　CNF複合バイオマスプラスチックのLCA実施時の暫定的な算定方法論

項　目	内　　容
データ品質	算定結果に対して重要なデータについてはそのデータ収集条件等のデータ品質が明記され、その妥当性が評価されていること。具体的には研究論文やクリティカルレビュー済みのLCA報告書が望ましい。また、開発中の樹脂については最新のデータ源であることが望ましい
包括的環境影響評価	特に、水資源消費、土地利用（生物多様性）について課題のあるバイオマス資源を調達する場合には、温室効果ガス排出量のみを環境影響の代表指標として用いない
栽培時のCO_2吸収量の扱い	原料作物の栽培時のCO_2吸収量については、CNF複合材料中のCO_2ストック量を栽培プロセスにおいてマイナス算定する
バイオマスによる余剰エネルギー	バイオマス残渣を用いた電力や熱などのエネルギーを外部に供給した場合、マージナルなエネルギーの環境影響を控除する
直接的土地利用	実態に即した評価、または複数の想定シナリオで算定に含める
間接的土地利用	バイオマス資源の調達地域が課題の大きいとされる地域でなければ、原則として算定に含めない
将来技術評価	将来の工業レベルでの量産化を前提としたシミュレーションを行っているデータはシミュレーションの結果であると明示して採用可能とする
バイオマス原料作物の種類	原料作物の種類（サトウキビorとうもろこし等）によっても環境影響が異なるので、算定対象と同一の原料作物のデータを採用する
共製品との環境負荷の配分	バイオマス素材からは複数の共製品が生産される場合がある（例：サトウキビの精製プロセスから生産される砂糖、廃糖蜜、エタノール、バガス等）ため、共製品との環境負荷の配分が必要となる。配分方法について明記され、その妥当性が評価されているデータ源を用いる

例えば、バイオ素材中の炭素貯蔵に関しては、直接的な土地利用変化と間接的な土地利用変化に伴うもの、さらには一時的なものか長期的なものか、といった視点での評価が求められる。

また、このプロセスフローを参考に、CNF複合バイオプラのLCA実施時の暫定的な算定方法論を表1-7の通り整理した。例えば、バイオマスプラスチックの原料としてサトウキビが使用される場合、副生品としてサトウキビの絞り粕であるバガスが製造される。このバガス等を燃焼させることでエネルギー（バイオマスによる余剰エネルギー）を得た場合の取り扱いについて、「バイオマス残渣を用いた電力や熱などのエネルギーを外部に供給した場合、マージナルなエネルギー(日本においては火力発電）の環境影響を控除する」という方法論を適用する。この方法論を取ることのメリットは「国際規格であるISO14067（2018）カーボンフットプリントの方法論と整合的である」という面がある一方、「現時点では化石資源由来エネルギーを代替するとして環境負荷を控除した場合、将来的に再生可能エネルギーが

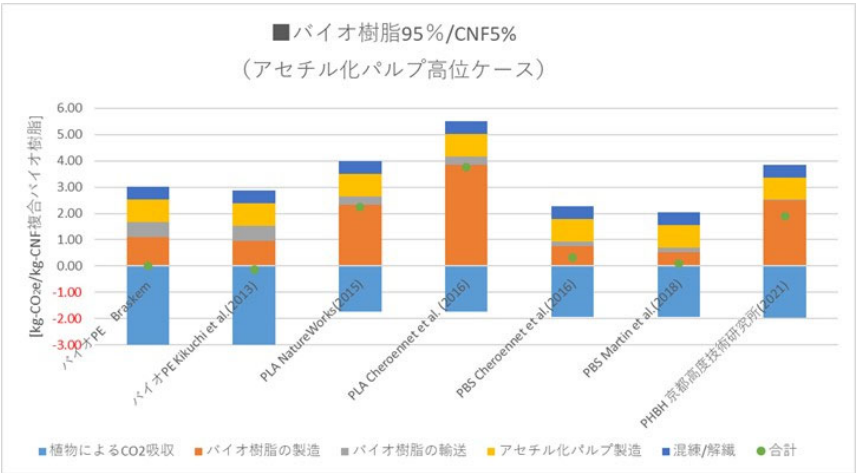


図1-11　CNF/バイオマスプラスチック複合材製造時のライフサイクル温室効果ガス排出量

普及すると、かえって控除する環境影響が少なくなる」といった課題もある。

以上の暫定的な算定方法論に基づいて整理したCNF/バイオマスプラスチック複合材製造時のライフサイクル温室効果ガス排出原単位について図1-11に示す。これは特定のシナリオ設定に基づくバイオマスプラスチック95wt%、CNF5wt%の複合材（ペレット状）の製品を作るところまでの累積での温室効果ガス排出量を示した事例である。

さらに、10wt%のCNFを複合化させたバイオPEペレットについて、実測によるGHG排出量評価を行った。実測は、新規技術開発中の京都プロセス第4世代（アセチル化を経由しないリアクティブプロセス）によるCNF製造工程、およびCNFとバイオPEの複合化工程におけるエネルギー消費量および収率について行った。比較のために、アセチル化を経由する第3世代CNFのGHG排出係数を文献（kanematsu, *et al.*, 2020）から引用した上で、同様に評価した。バイオPEの製造に係るGHG排出係数は文献（kikuchi, *et al.*, 2013）を参照した（いずれも標準的あるいは最適化を想定した条件による排出量を採用した）。

図1-12に、10%CNF複合バイオPEペレット1kgあたりのGHG排出量を示した。京都プロセスは解繊工程がないことが特徴であるが、第4世代は開発途上であり予備解繊工程が含まれている(実測の詳細についてはサブテーマ2に詳述）。バイオマスによるCO_2吸収分を控除したトータルのGHG排出量（10%CNF複合バイオPE1kgあたりCradle-to-gate: 資源採掘から原材料製造、製品製造まで）は、第3世代CNFでは約1.5、第4世代CNFでは約4.2(kg-CO_2e/kg)と算出された。今後第4世代の解繊工程をなくす方向で開発が進めば、さらなるGHG排出量の低減が見込まれる

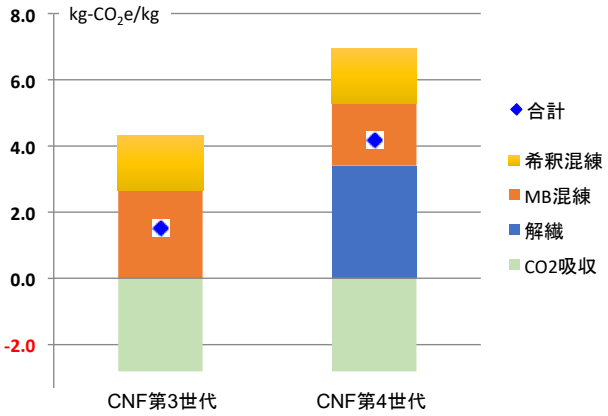


図1-12（図0-8）10%CNF複合バイオPEペレット1kgあたりのGHG排出量

５．　サブテーマ１研究目標の達成状況

サブテーマ１の達成状況は下記の通りである。

＜【サブテーマ１】達成状況＞・・・・・・・・　２．目標を上回る成果をあげた

「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」

サブテーマ１目標	サブテーマ１の達成状況
①高剛性構造用途：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 曲げ弾性率：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の2倍、線熱膨張係数：10%CNF複合でポリ乳酸、ブレンド樹脂の半分。	**①高剛性構造用途：目標を上回って達成** CNF10%添加高剛性バイオHDPEで2.4倍の弾性率、1/4の線熱膨張係数を達成。さらにCNF10%とタルク15%の併用で曲げ弾性率は3倍以上向上、線熱膨張係数は1/5程度にまで改善（p8, 表0-1）。CNF5%添加ポリ乳酸/PPにおいてニートPP樹脂の1.4倍の弾性率を達成(p12)。射出成形、ブロー成形に適した複数の複合樹脂組成を開発（p25, 表1-2, 表1-3）。
②耐衝撃構造用途：CNF複合バイオPE 耐衝撃性（Charpy強度）：10%CNF CNF複合でバイオPE(1.5kJ/m^2)の2倍。上述の耐衝撃性を有した状態で熱変形温度（高荷重）をバイオPEより30℃アップ。	**②耐衝撃構造用途：目標達成** CNF複合バイオPEでCharpy強度3.0kJ/m^2(p8, 表0-1)でバイオPEより50℃高い熱変形温度を達成。さらに、バイオLLDPEを5%CNFで補強することで、高いCharpy強度（77.6kJ/m^2）を保ち、曲げ弾性率を2.5倍、強度を2倍まで向上(p26, 表1-4)。
③土壌分解性・高剛性構造用途：CNF	**③土壌分解性・高剛性構造用途：目標を上回って達成**

複合PBS PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PBSの2倍、 曲げ強度：PBSの2倍、熱変形温度（高荷重）をPBSより30℃アップ。 **④海洋分解性・高強度材料用途：**CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS PHBHと同等の海洋分解性を保持した状態で、曲げ弾性率：PHBHの2倍、 曲げ強度：PHBHの2倍、熱変形温度（高荷重）をPHBHより30℃アップ。 **⑤環境性能（各複合材共通）** 上記CNF複合材について、環境性能の代表指標としてLCA手法を用いて複合材製造プロセスまでのライフサイクル温室効果ガス排出量を明らかにする。	PBSと同等の土壌分解性を保持した状態で（p10,図0-5、曲げ弾性率および強度をPBSの5.9倍および2.3倍まで増大、熱変形温度をニート樹脂よりも30℃アップ(p9, 表0-2)。さらに目標にない新たな成果として、CNFネットワークによる生分解性樹脂の分解促進機構を世界で初めて発見(p11,図0-6)。 **④海洋分解性・高強度材料用途：目標を上回って達成** PHBHと同等の海洋および土壌分解性を保持した状態で(p10,図0-5, p11,図0-7)、曲げ弾性率、強度を最大で3.4倍、1.9倍増大。熱変形温度をニート樹脂よりも17.5 ℃アップ(p10,表0-3)。さらに目標にない新たな成果として、5回のリサイクル後も曲げ性能を維持することを明らかにした(p10,図0-4)。 **⑤環境性能（各複合材共通）：目標達成** 各複合材料の製造時温室効果ガス排出原単位、LCA実施時の暫定的な算定方法論を整理し、CNF複合樹脂の温室効果ガス排出量を算出(p32,図1-11、p11,図0-8)。

Ⅱ－２　サブテーマ２「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」

［サブテーマ２要旨］

サブテーマ１におけるCNF複合材の組成と機械的性能および環境性能との関係を踏まえ、「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」を行った。17社にCNF複合バイオマスプラスチックを提供し、試験金型、生産金型による加工性、成形品の性能評価を行った。その結果、目標とした16品目を越える20の実用化可能な用途が見出された。さらに、上山製作所は、本研究から提供した材料評価を踏まえ、2023年にCNF複合バイオPEを用いた文房具を商品化した。CNF複合材に関するLCA実施に際し必要なデータ収集範囲を整理し、CNF複合バイオPE製品のLCAを算定した。

１．　サブテーマ２研究開発目的

サブテーマ２ではサブテーマ１におけるCNF複合材の組成と機械的性能および環境性能との関係を踏まえ、「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」を行った。

２．　サブテーマ２研究目標

サブテーマ２	「CNF＋多種類のバイオマスプラスチックの複合化の研究および複合化バイオマスプラスチック材料の環境性能評価」
サブテーマ２実施機関	京都大学、京都市産業技術研究所、サステナブル経営推進機構
サブテーマ２目標	サブテーマ１で開発したCNF複合材料を実際の製品に加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出す。 ①高剛性構造用途射出成形品：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ②耐衝撃構造用途射出成形品：CNF複合バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ③高耐熱構造用途ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE ブロー成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。 ④高耐熱構造用途押出成形品：CNF複合バイオPE 押出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。 ⑤土壌分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH 日用品（ワンウェイスプーン、等）射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。 ⑥海洋分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。

	⑦環境性能（各成形品共通） サブテーマ１-⑤を踏まえ、CNF複合材を使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに低炭素化への技術ポテンシャルを明確にする。

３． サブテーマ２研究開発内容

令和３年度	サブテーマ１で開発したCNF複合材の特性をもとに、４種類のバイオマスプラスチックで利用が期待できる用途について情報収集するとともに、一部の樹脂についてアドバイザー企業の生産用金型を用いて射出成形品を作製し、実用物性と環境性能を評価する。 LCAについて文献調査と評価シナリオ設定を中心に行い、暫定的算定方法論を作成する。 ＜アドバイザー企業＞　本研究ではアドバイザー企業を複数選定し、秘密保持契約を締結後、アドバイザー企業保有の生産用金型を用いて成形品を製造し、実用物性を評価し、結果を材料開発にフィードバックする。
令和４年度	令和３年度で絞り込んだ樹脂組成およびブレンド樹脂組成を軸に、アドバイザー企業の生産用金型を用いて射出成形品、ブロー成形品、押出成形品を作製し、実用物性と環境性能を評価する。 LCAについて温室効果ガス排出削減ポテンシャル算定方法論を構築し試算する。
令和５年度	令和４年度で絞り込んだ樹脂組成、相溶化剤、酸化防止剤を軸にアドバイザー企業の生産用金型を用いて射出成形品、ブロー成形品、押出成形品を作製し、実用物性と環境性能を評価する。 LCAについて試作した成形品すべての温室効果ガス排出削減ポテンシャルを算定し、次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための要件を整理する。

４． サブテーマ２結果および考察

サブテーマ１で開発したCNF複合材の特性をもとに、４種類のバイオマスプラスチックで利用が期待できる用途について情報収集した。さらに、用途ごとにCNF添加率、樹脂組成を検討したCNF複合材を17のアドバイザー企業に25回提供し、試験金型や生産用金型を用いて射出成形品、ブルー成形品、押出成形品を作製し、実用物性を評価した。また、製品の環境性能について評価した。並行して、LCAについて文献調査と評価シナリオ設定を中心に行い、暫定的算定方法論を作成した。

サンプル提供：企業アドバイザー評価

CNF複合材を所定のCNF添加率に調整したペレットとして提供するために、マスターバッチからの希釈試験を行い、17機関に主としてCNF複合バイオPE（一部、PLA添加品）、CNF複合バイオPBSおよびCNF複合バイオPHBHを計25回提供した。CNF複合材を提供した企業（樹脂、目標とする用途）は、（株）上山製作所（バイオPE、文具）、エビス（株）（バイオPE、歯ブラシ）、トヨタ車体（株）（PP/PLA、自動車部材）、トヨタ紡織（株）（バイオPE、自動車内装部品）、（株）デンソー（バイオPE、自動車エアコン部品）、豊田合成（株）（バイオPE、自動車部材）、（株）タミヤ（バイオPE、プラモデル部品）、日進化学（株）（バイオPE、フィルム、容器）、新明工業（株）（バイオPE、自動車用部品）、（株）島津製作所（バイオPE、分析装置部品）、（株）吉野工業所（バイオPE、容器部品）、積水化成工業（株）（PLA、シート発泡）、（株）伊藤園（PP/PLA、パレット）、積水成型工業(株)（バイオPE、ボトル）、前川化学工業（株）（バイオPE、電気部品）、（株）カネカ（PHBH、カトラリー）、(株)ユニオン産業（PHBH、日用雑貨品）であった。それぞれの企業で、本研究から提供したCNF複合材について、実際の製品金型、試作用金型を用いて実大部材の成形、加工性、性能の評価を行った。その結果、目標とした16品目を上回る20を超える実用化可能な用途を見出した。

実用性の可能性が高いと思われるバイオPEの自動車分野への用途として、豊田合成（株）において行った押出グレードの部品に向けた評価結果を表2-1に示す。

CNFを10％添加することにより弾性率が3倍程度向上するなど機械的特性の向上を実証できている。しかしながらシャルピー衝撃強度が低下し、実用上はこの対策が必要であることが指摘された。また、弾性率の高温時の低下を抑制できたことから、サブテーマ１で明らかにした耐熱性向上を確認できた。結果を図2-1に示す。

図より80℃でニートPEの弾性率が84％低下するのに対し、バイオPE-CNF10は70％の弾性率低下に抑えられており、CNF補強の効果が認められている。

以上の検討から、豊田合成（株）は、自社金型による試作において弾性率、衝撃強度、耐熱性の傾向を把握でき、次のステップとしてCNFの特徴を活かした材料設計と製品設計の方針が明確になった。耐熱性が向上することで従来のPEでは使用できなかったエンジン回りの部材、例えばダクトへの適用も可能になると考えている。

表2-1　バイオPE-CNF10％の評価結果（豊田合成で実施）

評価内容				バイオPE	バイオPE /CNF10%	HDPE
項目		条件				押出グレード
比重			ISO 1183	0.95	0.99	0.94
MFR		g/10分	ISO 1133	35.3	2.2	18.9
シャルピー衝撃		kJ/m^2	ISO 179	2.4	1.8	23.4
荷重たわみ (HDT)	高荷重	℃	ISO 75	47	70	47
	低荷重	℃		69	123	72
引張 23℃	降伏強度	MPa	ISO 527	23.6	49.2	24.0
	破断伸び	%		84.1	5.0	46.7
	弾性率	MPa		1106	3012	847
引張 80℃	降伏強度	MPa	ISO 527	7.2	22.0	43.4
	破断伸び	%		178.0	9.2	-（破断せず）
	弾性率	MPa		175	895	185

①高剛性構造用途射出成形品：CNF/PLA/PP

(a)運搬用パレット

（株）伊藤園は1枚当たり20kgのPP製運搬用パレットを年間100万台使用しており、毎年10万台ずつ更新している。その経年劣化したリサイクルPPのCNF補強によるアップサイクルを、CNF添加PP/PLA材の複合により検討した。図2-2に伊藤園が行ったパレット材用試験の落錘衝撃試験の結果について示す。衝撃試験は日本プラパレットで行った。

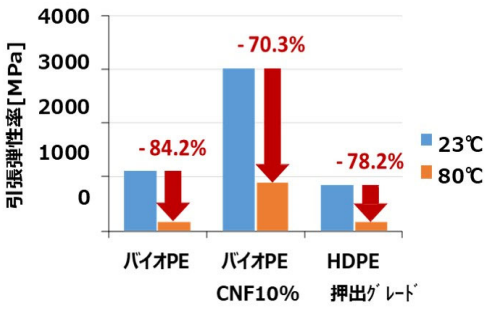


図2-1　各サンプルの室温と80℃の引張弾性率

最初に本事業から提供したCNF添加PP/PLA材とリサイクルPPの複合では弾性率は目標値をクリアしたが、衝撃特性が伊藤園の有する目標値に到達しなかった。具体的には多くのサンプルで脆性破壊を生じている。そこで本研究においてエラストマーの種類、添加率、CNF添加率を変えるなどの材料組成検討を行い、3度目のサンプル提供で目標とする弾性率、強度に加え衝撃特性も達成出来た。本成果はCNF補強でリサイクルプラスチックのアップサイクルができることを示すものであり、石油由来プラスチックのリサイクルによる排出CO_2削減にCNF複合バイオマスプラスチックの使用が有用であるといえる。

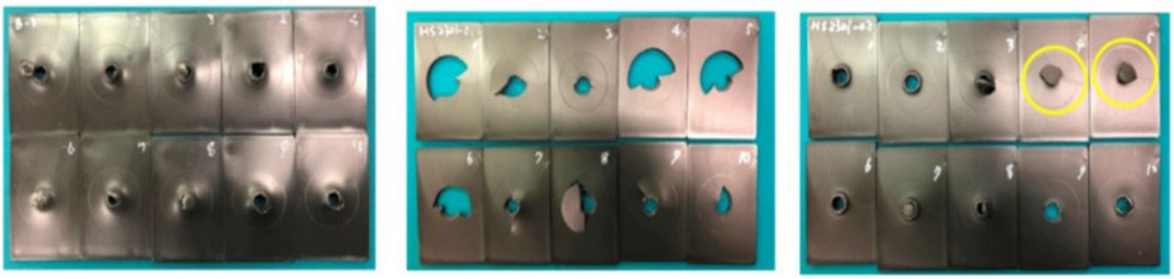


図2-2（図0-9）落錘衝撃試験（各10枚）。左からリサイクルプラ、CNF複合材初期品、CNF複合材改良品。

②耐衝撃構造用途射出成形品：CNF複合バイオPE

(a) 自動車用エアコンケース部品

（株）デンソーは自動車用エアコンケースにおける世界トップの企業である。本研究から提供したCNF複合バイオPEについて、試作金型を用い、強度特性、成形加工性を評価した。さらに、自社製品金型を用い、樹脂温度、射出圧を種々変えてエアコンケース部品の成形を行った。図2-3には樹脂温度190℃で射出成形した成形品を示す。樹脂未充填の箇所や成形品のねじれや反りも無く、従来のタルク添加PPと同様の成形が出来た。外観からは変色も認められない。石油由来の樹脂をCNF補強でバイオPEに置き換えられる可能性を見い出せた。

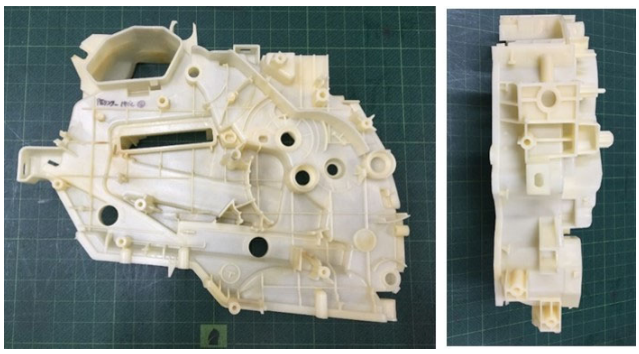


図2-3（図0-10）CNF複合バイオPEを用い射出成形で製造したエアコンケース部品。

(b) 文房具

（株）上山製作所は文房具や日用雑貨品の成形を行っている。製品評価用にCNF複合バイオPEを提供し、（株）上山製作所が保有している生産金型により、番号札、カード立て、トレー、レシートホルダー、衣類のサイズ表示用クリップの成形を行った。さらに、（株）上山製作所の基準に基づく耐久性試験を行い、製品としての信頼性を評価した。その評価結果に基づき、（株）上山製作所では、（株）Nature Gifts(京都プロセスによるCNF複合材を製造販売するベンチャー企業)のCNF複合材を用いて商品を製造し、2023年度より販売を開始した。本研究の成果が短期間で商品化まで繋がった点で、特筆すべきことといえる。

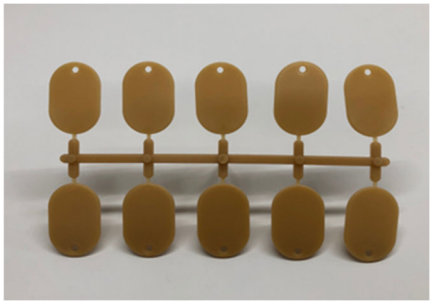


図2-4　CNF複合バイオPEを用い射出成形で製造した番号札。加工性が良く、一度に複数個の成形が可能。

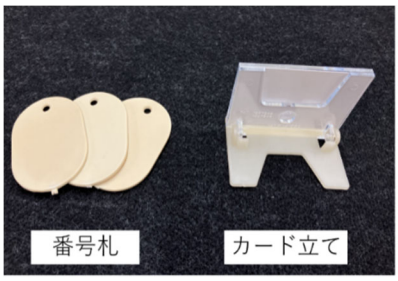


図2-5　製品金型を用いて成形した番号札とカード立て

図2-6（図0-11）　商品化したCNF強化バイオPEを用いた番号札とカード立てのカタログ

(c) CNF複合バイオPEの耐薬品試験

（株）島津製作所は日本を代表する分析機器メーカーである。本研究では、CNF複合バイオPEの分析機器部材への使用を目指し、（株）島津製作所にCNF複合バイオPEを提供し、耐薬品性評価を行った。試験にはニートのバイオPE（SHA7260、Braskem社）および京都プロセスで作製したCNF複合バイオPE（CNF10wt%、タルク5wt%）の短冊形試験片（10×80×h4 mm）を用いた。また、耐薬品性を調査する試験液として、メタノール、アセトニトリル、THF、クロロホルム、硫酸（1N H_2SO_4）を選択した。これらの試験液を下記に示した条件で各試験片に接触させ、試験液接触面の様子から耐薬品性を評価した。

試験A：試験液 50μLを室温条件で試験片に垂らし、1分後にふき取り。

試験B：試験液 50μLを室温条件で試験片にこすりつけ、20秒強くこすってふき取り。

試験C：試験液に試験片を室温条件で８時間浸漬し、試験片の重量および寸法の変化を測定。

試験A実施後の試験片の様子を図2-7に示す。薬品が接触した位置は、サンプルにマーカーで記入した標線の左側である。ニート樹脂およびCNF複合樹脂のいずれの場合も試薬の接触により樹脂が侵されることはなかった。試験Bも同様の結果であった。また、試験Cで得られた結果を表2-2に示す。

図2-7 試験A実施後のサンプルの様子

ニートのバイオPEでは、すべての試験液の場合で寸法がわずかに縮小した（最大0.06%）。非常に小さな変化である事から、残留応力の影響だと考えられる。一方、重量については、いずれも僅かに増加した。最も重量変化が大きかったのは、本試験で使用した試験液の中で最も疎水的であるクロロホルムで、1.942%の増加となった。一方、CNF複合バイオPEの場合では寸法はわずかに増加し(最大はTHFの0.19%)、ニートのバイオPEよりも全体的に重量増加が大きかった。寸法の変化は試験液の浸透による膨潤効果であると考えられる。重量変化に関しては、CNF複合バイオPEの場合でもクロロホルムで最も重量変化が大きく、2.551%の増加となった。CNFを複合することで樹脂内部への試験液の浸透が促進されたことが示唆された。

試験A～Cの結果より、CNF複合バイオPEは、今回使用した5種の試験液に対して侵されることなく、僅かではあるが膨潤する傾向にある事が確認できた。しかしながら、その量は極めて少ないことから、本試験で使用した薬品に対しては耐性があると言える。現時点では、バイオPEのコスト面に課題があるが、性能面ではCNF複合バイオPEの製品部材への適用可能性を示すことができた。

表2-2（表0-4） 試験Cの結果一覧

	試験液	寸法変化率 (%)	重量変化率 (%)
ニートバイオPE	メタノール	-0.06	0.061
	アセトニトリル	-0.01	0.090
	THF	0	0.932
	クロロホルム	-0.03	1.942
	1N H_2SO_4	-0.03	0.069
CNF複合バイオPE	メタノール	0.03	0.122
	アセトニトリル	0.01	0.108
	THF	0.19	1.297
	クロロホルム	0.05	2.551
	1N H_2SO_4	-0.08	0.046

③高耐熱構造用途ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE

(a)ブロー成形ボトル

ブロー成形は射出成形、押出成形と並ぶ樹脂成形加工における代表的な成形法である。ボトルやタンク、パイプといった様々な形状の容器、部品の成形加工に用いられている。自動車ではPEを主要材料の一つとした燃料タンクがブロー成形により製造されている。本研究では積水成型工業(株)にCNF複合PE（LLDPE）を提供し、ブロー成形における加工性、成形体の強度特性等を、500ccボトルの成形により評価した（図2-8）。従来の石油由来PEを用いた場合と比較し加工性において差異は無く、わずかであるが剛性が向上した。また、本研究で調整したLLDPEを主体とした樹脂組成により衝撃特性も従来品と比較して低下することが無かった。ブロー成形による容器製造においてCNF複合材を利用できることを示す結果といえる。

図2-8（図0-12）ニートLLDPE（左）およびCNF複合バイオPE（右）を用いたブロー成形ボトル

④高耐熱構造用途押出成形品：CNF複合バイオPE

(a) 押出延伸シート

積水化成工業（株）にCNF複合PLAを提供し、断熱食品容器への使用を目的に、積水化成工業（株）の独自技術による発泡延伸シートの成形を行った。CNF添加率を変えて2回複合材を提供し、成形シートの発泡状態、構造解析を行った。

⑤土壌分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH

サブテーマ１での検討結果より、PBSおよびPHBHにCNFを複合することでHDTが向上することを確認した。その結果を基に、70℃条件で曲げ試験を実施して得られた応力ひずみ曲線と曲げ弾性率を表2-3および図2-9にまとめた。表2-3に示す通り、70℃条件における曲げ弾性率は、CNF添加率が多いほど、23℃条件の曲げ弾性率からの低下率が低かった。また、PBSの場合ではCNFを5 wt%、PHBHの場合ではCNFを10 wt% 複合すると、70℃条件であっても、23℃条件のニート樹脂よりも大きな曲げ弾性率を示した。既にPHBH製のワンウェイ用カトラリーは実用化されているが、耐熱性の課題から加熱された食品への使用にはまだ課題がある。本検討で得られた結果は、CNFの複合がこの課題の解決に貢献できることを示している。これらCNFによる機械的強度および耐熱性の向上に関する結果を

表2-3 曲げ弾性率の温度依存

	曲げ弾性率 (MPa)	
CNF (wt%)	23℃	70℃
0 (ZM7B01)	660	410 (-38%)
5	1460	970 (-34%)
10	2430	1777 (-27%)
0 (PHBH-131N)	1310	570 (-57%)
5	2000	1030 (-49%)
10	2580	1600 (-38%)

70℃の曲げ弾性率の横の（）内の値は23℃の曲げ弾性率からの減少率を示している。

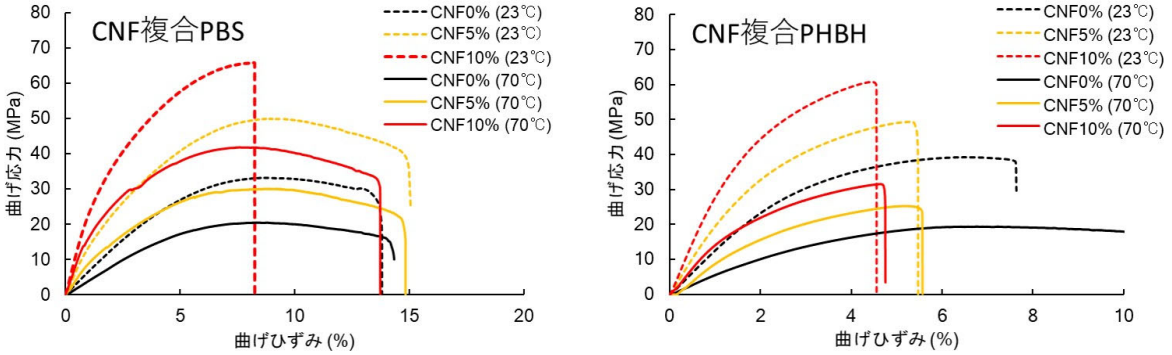


図2-9 23℃および70℃におけるCNF複合PBSおよびCNF複合PHBHの応力ーひずみ曲線

基に、図2-10に示した通りCNF複合PHBHで、スプーン、丸皿、角皿、紙コップホルダー、苗ポッドおよび植木鉢を成形した。スプーンは(株)カネカ、その他は(株)ユニオン産業にそれぞれCNF複合材を提供し成形評価を行った。結果的に、いずれも、通常使用している金型を用いて、特殊な条件の設定なく成形ができたが、当初、スプーンを成形した（株）カネカからは成形品の外観と成形サイクルにおける課題点について指摘を受けた。外観に関しては、京都プロセスで製造したCNF複合PHBHで成形を行った場合、PHBH本来の透明感のある白色（図2-10（a)）ではなく、不透明な褐色になってしまい、かつニートのPHBHを成形した場合と比較して表面の平滑性が損なわれた点が挙げられた。さらに、ニートのPHBHの場合では冷却時間10秒で成形品を金型から取り出すことが可能であるのに対し、CNF複合材の場合では、40-50秒の冷却時間が必要であり、成形サイクルが長時間化した。成形品の色味に関しては、CNFの原料として利用したパルプに含まれるリグニンに由来する着色であると考えられる。脱リグニン処理を行ったパルプを使用すること、もしくは白色の顔料を成形時に添加することで解決できると考えられる。また、成形品表面の平滑性に関しては、CNF複合樹脂中に存在する解繊不十分なパルプ由来のセルロース繊維が影響していると考えられる。解繊の促進に寄与する補助剤の利用や、混練条件の最適化の検討が必要である。

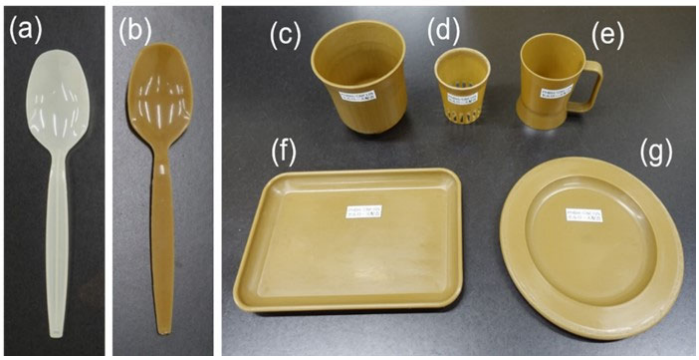


図2-10（図0-13） ニートのPHBH（a）および10wt% CNF複合PHBH(b-g)
成形品（a）(b）スプーン、(c）植木鉢、(d）苗木ポット、(e）紙コップホルダー、(f）角皿、(g）丸皿

成形サイクルの長時間化については、ニートのPHBHおよびCNF複合PHBHの示差走査熱量測定（DSC）より検討した。図2-11に150℃から30℃への冷却工程で得られたDSCカーブを示す。測定結果より、ニートのPHBHの結晶化温度は95.3℃(図2-11(a))、それに対して10 wt%のCNFを複合したPHBHの場合では、結晶化温度が63.6℃(図2-11(c))まで低下していることが明らかとなった。この結晶化温度の低下が、成形サイクルに影響していると考えられる。CNF複合PHBHを製造する際に、水溶性の膨潤剤を使用しており、製造の最終工程でこの膨潤剤の除去を目的に、複合樹脂の温水洗浄（80℃）を行っている。今回使用したPHBHには、結晶化を促進するために結晶核剤が添加されているが、この温水洗浄によって結晶核剤も除去された可能性が考えられた。そこでニートのPHBHを1時間80℃の温水に浸漬した後、十分に乾燥を行い、DSCの測定を行った。その結果、結晶化温度が48.9℃（(図2-11(b)))まで低下することを確認した。さらに、（株）カネカより提供を受けた結晶核剤を10wt% CNF複合PHBHに溶融混練で添加しDSCを測定したところ、結晶化温度は97.2℃(図2-11(d))まで回復した。以上のことからニート樹脂同様の成形サイクルを実現するためには、結晶核剤を製造工程の最終段階で添加すれば良いことが示された。

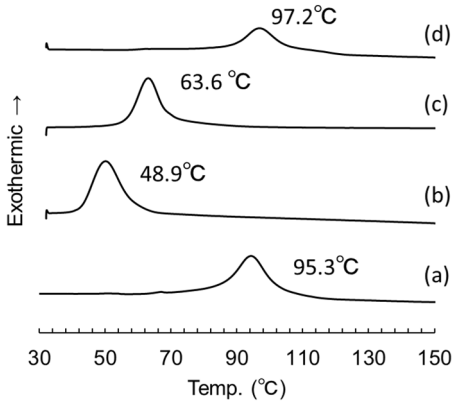


図2-11 PHBHおよびCNF複合PHBHの冷却過程のDSCカーブ、(a)ニートのPHBH、(b)温水浸漬後のニートPHBH、(c)10wt%CNF複合PHBH、(d)結晶核剤を添加した10wt%CNF複合PHBH

この結果を踏まえ、ユニオン産業へは結晶核剤を最終工程で添加したCNF複合PHBHを提供した。その結果、ユニオン産業にて通常行っている成形条件では、ニートのPHBHは成形不良が生じたが、CNF複合樹脂では問題なく成形でき、成形性の面でもCNFの添加効果を確認できた。

⑥海洋分解性・高剛性構造用途射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS

プラスチックが海洋に放出される原因として、釣りで使用されるルアーやフロート、また海上での位置表示に使用されるブイなどの発泡成形製品があげられる。このことからこれらの製品への生分解性樹脂の利用は重要であり、海洋生分解性が明らかにされているCNFで補強することで、その用途拡大が期待できる。

これら発泡成形製品を製造する上で、樹脂の溶融粘弾性は重要なパラメーターの1つであるが、図2-12に示した通り、CNFの添加は樹脂の溶融時の貯蔵弾性率を増大させ、発泡成形性に影響を及ぼすことが考えられる。そこで、低圧発泡射出成形機（日本製鋼所製　J85AD-110H RIC Foam）を用いて発泡成形試験を行った。試験には88mm×88mm×h2 mmの金型を使用し、コアバック量で発泡倍率を調整して、発泡成形性を評価した。

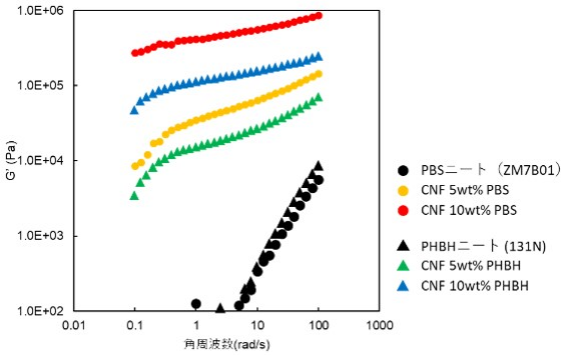


図2-12 ニート樹脂およびCNF複合樹脂の角周波数変化に対する貯蔵弾性率

図2-13はPBS（ZM7B01）とPHBH（131N）のニート樹脂および3 wt%のCNFを複合した各樹脂の発泡成形サンプルの断面図である。ニートのPBSの場合、発泡倍率2倍までは全体に均一な気泡が形成されているが、3倍以上では大きな気泡が不均一に存在している。一方、CNFを3 wt%複合したPBSでは、発泡倍率5倍でも比較的均一な気泡が形成された。PHBHについても同様にCNFの添加によって発泡倍率の向上を確認できた。CNFを含まないPHBHの場合では、2倍発泡時点で不均一かつ大きな空孔が形成され、さらに発泡倍率を大きくすることはできなかった。一方、3 wt%のCNFを複合することで、発泡倍率3倍であっても、比較的均一な気泡を形成することができた。以上の通り、CNFの複合によりPBSおよびPHBHの最大発泡倍率の向上が確認できたことから、海洋生分解性を有するPBS並びにPHBHを海上での使用が想定される発泡成形製品（ルアー、ブイ、浮き、浮き輪など）や、食品トレーなどへの展開が期待できる。

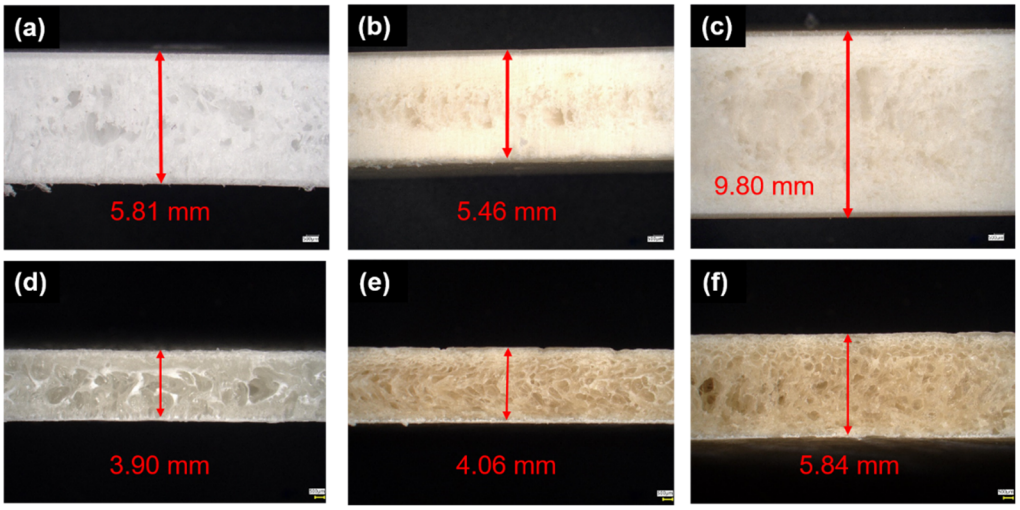


図2-13 ニート樹脂およびCNF複合樹脂の発泡成形試験片断面
(a) PBS（ZM7B01）；発泡倍率3倍、(b) 3 wt%CNF 複合 PBS ； 発泡倍率3倍、
(c) 3wt%CNF 複合PBS ； 発泡倍率5倍、 (d) PHBH（131N）； 発泡倍率2倍、
(e) 3wt%CNF 複合PHBH ； 発泡倍率2倍、(f) 3wt%CNF 複合PHBH ； 発泡倍率3倍

⑦ CNFとバイオPEの複合成形品製造におけるGHG排出量の評価

CNFとバイオPEとの複合化プロセス、およびCNF複合バイオPEペレットを用いた射出成形プロセスについてラボスケールでの実測を行い、Cradle-to-gate（資源採掘から原材料製造、製品製造まで）およびCradle-to-grave（資源採掘から原材料製造、製品製造、廃棄まで。流通・使用段階は対象外）でのGHG排出量を算出した。

CNFは、パルプを樹脂と直接練る「パルプ直接混練法（京都プロセス）」により製造するものとしたが、従来のアセチル化による変性パルプを経る方法（第3世代）の評価に加え、アセチル化を経ずに混練プロセスで同時に化学変性を行うリアクティブプロセス（第4世代）の実データを収集することにより、CNF製造プロセスの最適化に向けた検討と、バイオPEとの複合化における影響を確認した。

また、複合化による機能強化を考慮した評価を行うため、CNF複合バイオPEの曲げ弾性率とGHG排出量の関係を、さらに、リサイクル性向上を考慮した評価を行うため、既存の回収品を想定した石油由来の汎用樹脂との混合物に関して、機能とGHG排出量の関係を評価した。

(a) 目的

①CNF複合バイオPEトレー射出成形品製造に係る環境影響（GHG排出量）の評価

②CNFによるバイオPEの機能強化を考慮したCNF複合バイオPEトレーの評価

③CNFによるバイオPEのリサイクル性向上を考慮したCNF複合バイオPEトレーの評価

(b) 実施内容

・CNF複合バイオPEペレット製造プロセスのデータ実測

・CNF複合バイオPEトレー射出成形プロセスのデータ実測

・トレー成形品あたりの Cradle-to-gate におけるGHG排出量の算出

・成形品の強度（曲げ弾性率）とGHG排出量の評価

・リサイクルを想定した石油由来汎用樹脂との混合品の強度とGHG排出量の評価

(c) 評価範囲

第3世代、第4世代ともに、Cradle-to-gateの場合は、パルプ原料および樹脂原料の製造からCNF複合樹脂ペレット製造、さらに射出成形によるトレー成形品製造までを評価範囲とした（図2-14）。バイオマスによるCO_2吸収量を考慮した評価を行うためのCradle-to-graveの評価では、これにトレー成形品の廃棄段階を加えた範囲とした。比較のために、CNFの代わりにタルクを複合化させた射出成形品についても同様に評価した。

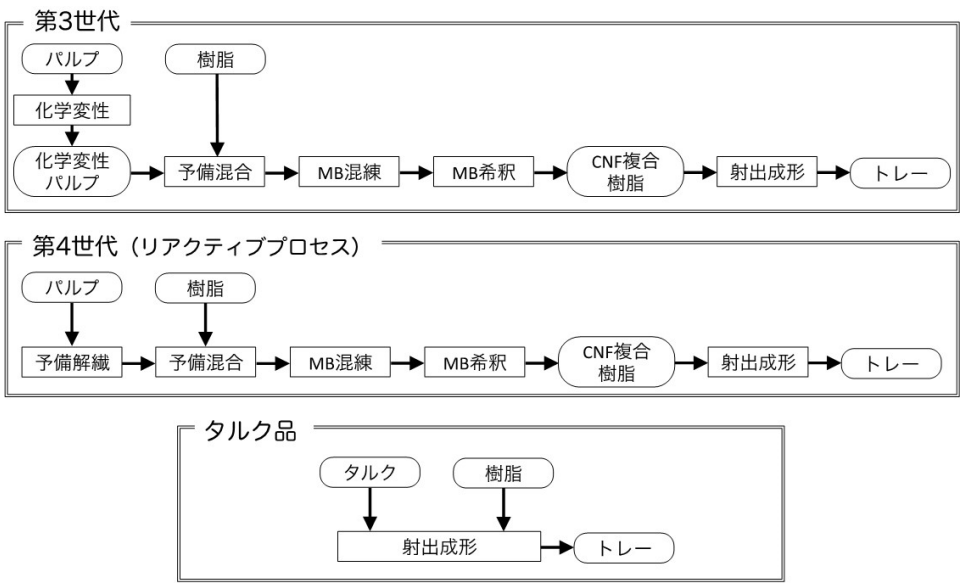


図2-14　評価範囲（システム境界）

(d) データ収集

プロセスデータの収集は、以下の項目について実施した。

・第4世代のCNF複合バイオPEペレット製造プロセス（解繊・予備混合・MB混練・希釈混練）の実測

・CNF複合バイオPEトレー製造プロセス（射出成形）の実測

・タルク複合バイオPE、バイオPEニート、石油由来PPニートのトレー製造プロセス（射出成形）の実測

実測は、以下の各工程について、材料投入量，電力消費量，生産量を測定した。なお、いずれも量産化を念頭に置き、昇温/洗浄時電力，立上/洗浄時ロス樹脂は考慮しないこととした。

・解繊工程：コニカルリファイナーによる40%-wetパルプの解繊→15%解繊パルプ/水

・予備混合工程：ヘンシェルミキサーによる15%解繊パルプ/水、溶媒、相溶化剤、バイオPEペレットの混合→10%パルプ/バイオPE/水混合物

・MB混練工程：二軸押出機による混練（10%パルプ/バイオPE/水＋バイオPE）→MB（30%CNF/バイオPE）

・希釈混練工程：二軸押出機による混練（30%CNF/バイオPE＋バイオPE）→10%CNF/バイオPEペレット
・射出成形工程：射出成形機による10%CNF/バイオPEペレットの成形→トレー（約10cm x 16cm）
(e) その他の評価条件
・第3世代のアセチル化パルプ（CNF）製造のGHG排出係数：Kanematsu, et al.(2021)より収集（低位7.7 kg-CO_2e/kg）
・バイオPEのGHG排出係数：Kikuchi, et al.(2013)より収集 （ブラジル標準1.3 kg-CO_2e/kg）
・その他のGHG排出係数：IDEA v3.3, IPCC2021(AR6) GWP100aより引用, 電力: 2020年度日本平均
・タルクの価格：1000円/kg
・輸送プロセスは対象外

結果① CNF複合バイオPEトレー射出成形品製造に係る環境影響（GHG排出量）の評価

図2-15に、CNF複合バイオPEトレー成形品のCradle-to-gateにおけるGHG排出量算定結果を、CNF第3世代と第4世代それぞれについて示した。

バイオマス吸収分を控除すると、トレー成形品トータルのGHG排出量は、第3世代CNFを用いた場合は約2.0kg-CO_2e/kg、第4世代のCNFを用いた場合は約4.7kg-CO_2e/kgと算出された。成形品のGHG排出量の傾向は材料における結果とほぼ同様であり、第4世代で解繊工程をなくす方向になればさらに低い値となり、現状の石油由来汎用樹脂と遜色ない結果となり得る。ただし、仮に解繊工程がゼロになった場合でも、現状で第3世代から6%ほどの削減ポテンシャルとなっている。さらにポテンシャルを上げるには、寄与率の大きい混練工程のさらなる高効率化が有効であることが見て取れる。

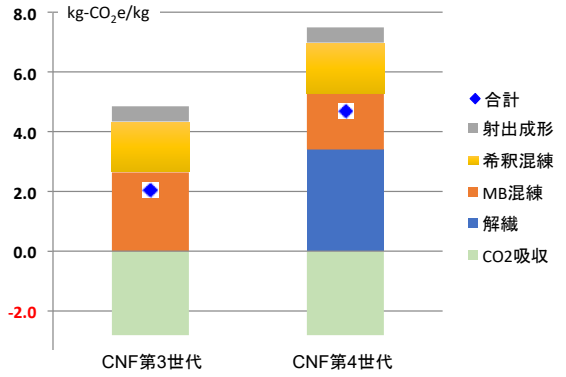


図2-15（図0-14） CNF複合バイオPEトレー成形品1kgあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

結果② CNFによるバイオPEの機能強化を考慮したCNF複合バイオPEトレーの評価

図2-16、2-17に、ニートの石油由来PE, PPとニートのバイオPE、および10%CNF複合バイオPEの第3世代品と第4世代品、さらにタルクを10%複合化した石油由来PPおよびバイオPEについて、各射出成形品の曲げ弾性率の評価結果と、トレー成形品1pあたりのGHG排出量評価結果を示した。射出成形品の強度の評価は、「JIS K7171」に準じた曲げ試験により行った。

バイオPEニート品の弾性率、強度は、石油由来PPやPE品よりも低くなっているが、CNFを10%複合化させることで大きく向上した。タルクの10%複合化品よりも上昇率は高く、現在汎用的に強化樹脂として使用されているタルク入りPP品と同等程度の値を示した。これらの樹脂の1pあたりのGHG排出量（バイオマスによるCO_2吸収分を控除した算出値、Cradle-to-gate）を見ると、第3世代のCNF複合バイオPE

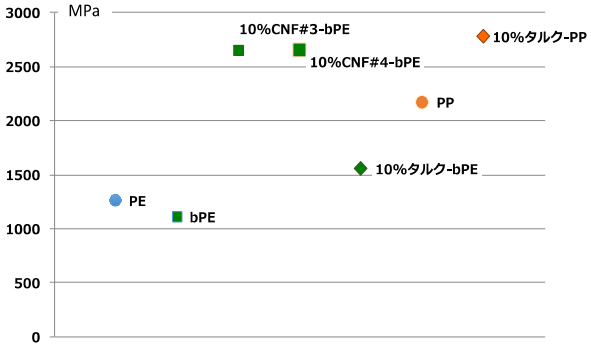


図2-16 曲げ弾性率評価結果

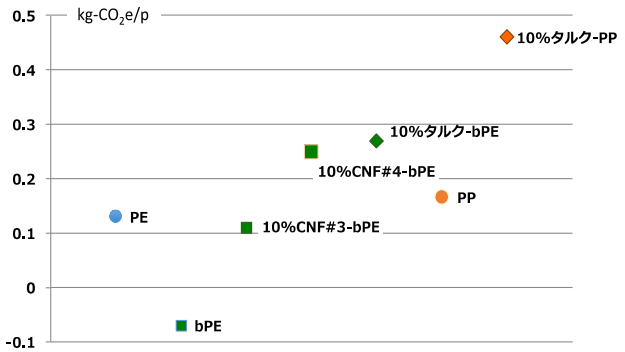


図2-17（図0-15）トレー成形品1pあたりのGHG 排出量（Cradle-to-gate）

品では、汎用樹脂である石油由来PE，PP品と同等以下の排出量を示し、10%タルク複合PP品と比較して有意に低い値となった。ただし、タルクのGHG排出量はラボレベルでの購入単価で算定したため高めに算出されている可能性があるが、仮に価格が現状設定値の1/10（100円/kg）となった場合でも、10%タルク複合PPの1pあたりのGHG排出量は0.19kg-CO_2e/pと算出され、第3世代CNF複合バイオPE（算出値；0.11kg-CO_2e/p）の優位性は保持される結果となる。

図2-18、2-19に、弾性率で補正した1pあたりのGHG排出量を、Cradle-to-gateおよびCradle-to-graveのそれぞれについて示した。補正はPPの曲げ弾性率およびGHGをXおよびA/p、CNF品の曲げ弾性率およびGHGをYおよびB/pとしPPのGHG=A、CNF品のGHG=B*X/Yとして計算した。ここでpはトレー1枚を示しており、サイズ（縦・横・高さ）は同一。自動車用途等では等剛性による評価がなされるが、本研究では簡易的に上記で行った。Cradle-to-gateで見ると、第3世代および第4世代の10%CNF複合バイオPE品は、ニートの石油由来PE，PP品と同等以下のGHG排出量を示した。Cradle-to-graveの評価は、基材樹脂およびCNFの廃棄燃焼による化学量論的排出量を加算して評価した。CNFはオレフィン樹脂と比較して炭素含有率が低いため、燃焼により発生するCO2は相対的に減少する。結果はよりCNF複合化品の優位性が明確になり、第3世代の10%CNF複合バイオPE品はニートの石油由来PP品を有意に下回り、第4世代品も石油由来PP品と同レベルの水準を示した。なお、タルク複合PP品はタルクの価格設定により大きめに算出されている可能性があるが、タルクの価格が今回設定値の1/10となった場合の10%タルク複合PP品のGHG排出量（弾性率補正後、Cradle-to-grave）は0.26kg-CO_2e/pと算出され、第3世代CNF複合バイオPE品のGHG排出量算出値（0.21kg-CO_2e/p）は十分に競争力のある数値を示す結果が得られた。

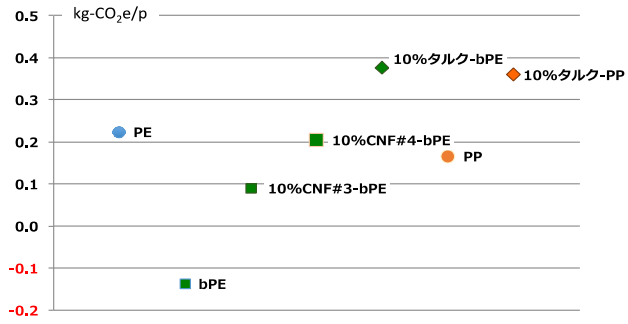


図2-18（図0-16）弾性率補正後の1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

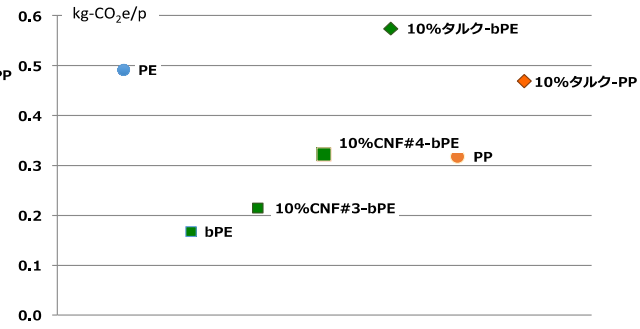


図2-19　弾性率補正後の1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-grave）

結果③　CNFによるバイオPEのリサイクル性向上を考慮したCNF複合バイオPEトレーの評価

マテリアルリサイクルの原料となる使用済みプラスチックのうち、汎用樹脂であるPEとPPは分離が難しいため、混合ペレットとしてリサイクルされる可能性が高い。その際、PPと比較して強度の低いPEが混在することにより再生品の強度低下が避けられないが、将来的にこれにCNF複合バイオPEが混ざり

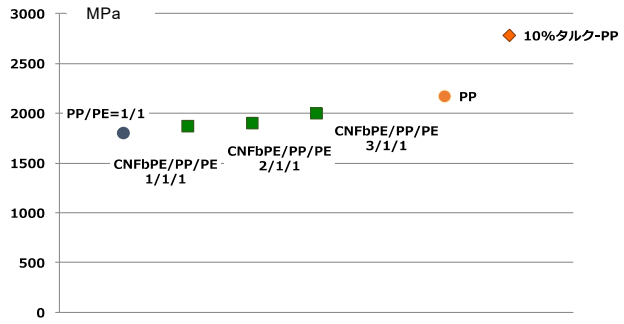


図2-20　曲げ弾性率評価結果

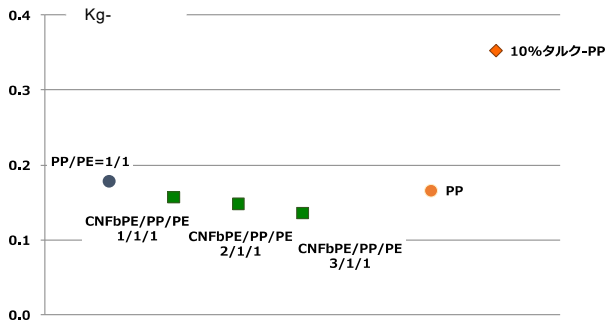


図2-21　弾性率補正後の1pあたりのGHG排出量（Cradle-to-Gate）

合うことで、強度低下が抑えられる可能性がある。そこで、石油由来PE，PP、およびCNF複合バイオPEの混合成形品について、強度（弾性率）とGHG排出量の観点から評価を行った。使用済み回収プラとして、PE/PP=1/1品を想定し、これに対してCNF複合バイオPEを等量、2倍量、3倍量と加えた射出成形品サンプルを作成し、曲げ弾性率の測定と、GHG排出量の算出を行った。なお、GHG排出量は、各材料のCradle-to-gateにおける負荷を単純に合計することにより算出した。

図2-20、2-21に、サンプルの曲げ弾性率の測定結果と、弾性率補正後のGHG排出量（バイオマスによるCO_2吸収分の控除後）を示した。PE/PP=1/1品にCNF複合バイオPEが加わることで弾性率が向上することが認められ、石油由来PPニート品の水準に近づくことが示された。一方で材料由来のGHG排出量は、CNF複合バイオPEの割合が増えるにつれ低減することが示唆された。

まとめ

京都プロセスの第4世代生産技術によるCNF複合バイオPE射出成形品の製造に係るGHG排出量について、製造プロセスの実測値を元に算出した。現時点では、第3世代生産技術の場合と比較して優位な結果とはなっていないが、第4世代は未だ発展途上であり、今後は、さらなるGHG排出量の低減も期待できる。仮に第4世代品の解繊工程をなくした場合のGHG排出量を、石油由来PP品と第3世代品とともに2-22に図示し、標準的なPP品と比較した。第3世代でもすでに削減ポテンシャルが見出せるが、さらに第4世代では削減ポテンシャルが大きくなることがわかった。

また、現状のバイオPE品は、曲げ強度が低い傾向があるが、CNFを複合化させることにより強度向上が見られ、現在汎用的に使用されている強化樹脂であるタルク入りPP品と同等の曲げ強度発現も確認された。強度を同等にした場合の容積あたりのGHG排出量では、CNF複合バイオPE品は石油由来PP品と同等以下の環境負荷を示し、CNF製造工程のさらなる最適化により競争力のある削減ポテンシャルを示すことが示唆された。

さらに、使用済み回収プラスチックのうち、強度低下が懸念される汎用樹脂PE/PP = 1/1品にCNF複合バイオPEが加わることで、強度低下を抑えつつ、GHG排出量の削減ポテンシャルを有することが示唆された（図2-23）。

現状のバイオPE品は、余剰バイオマスを有効利用することでGHG排出量の削減に寄与しているが、他のバイオマスプラスチックについても同様の生産技術が確立できれば、いずれも有用な材料として期待されるものとなる。なお、バイオマス利用においては、GHG排出量のみならず、土地利用や生態系など他の環境影響領域への負荷増加も懸念されるため、今後はあわせて評価が必要である。

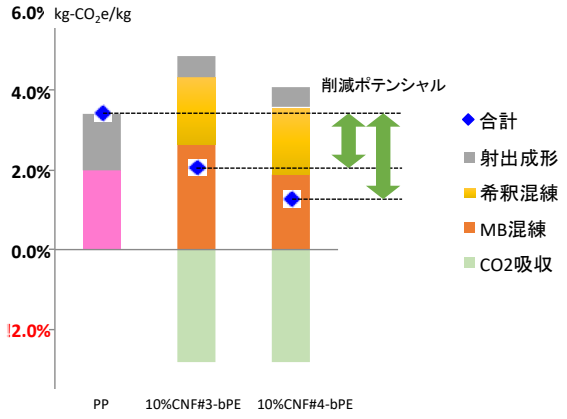


図2-22（図0-17）樹脂成形品1kgあたりのGHG排出量（Cradle-to-gate）

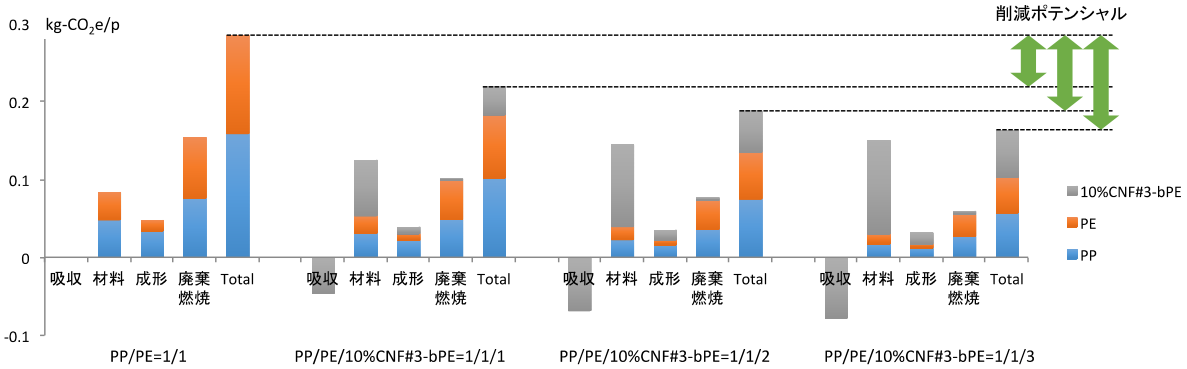


図2-23（図0-18） 回収汎用樹脂1kgあたりのGHG排出量

次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための要件の整理

サブテーマ１では、CNF複合バイオマスプラスチックを使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに、文献調査と評価シナリオ設定を通じて、次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための暫定的算定方法論を作成した。今後、「セルロースナノファイバーに関する温室効果ガス排出量削減効果算定ガイドライン（2021年）」（以下「環境省CNF-LCAガイドライン」）をベースに、プラスチックに係る資源循環の促進等に関する法律案等を踏まえ随時更新していく予定である。環境省CNF-LCAガイドラインは図2-24の構成となっている。

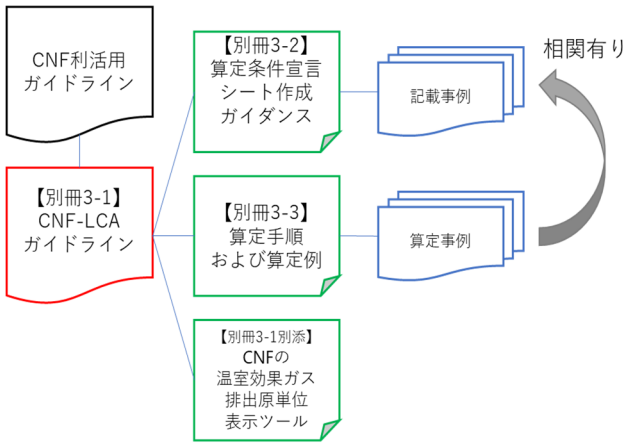


図2-24　環境省CNF-LCAガイドラインの構成

環境省CNF-LCAガイドラインではバイオマスプラスチックとの複合は想定されていないため、次に挙げる内容を含めることが必要となる。

- CNF でバイオマスプラスチックを強化することの目的とメリットなど
- バイオマスプラスチックの種類および特徴
- バイオマスプラスチック製造段階の CO_2 排出原単位の推定値提供
- バイオマスプラスチック製造について一からデータ収集する際のデータ収集範囲
- CNF 複合バイオマスプラスチック製品のリサイクル時の LCA 評価方法
- CNF 複合バイオマスプラスチック製品の LCA 算定事例
- 地球温暖化以外の環境影響評価（海ゴミプラ、生物多様性、資源消費等）の評価方法検討

本研究を通じて得られた、次世代バイオマスプラスチックのLCAガイドライン策定のための要件について、以下に整理する。

- CNF でバイオマスプラスチックを強化することの目的とメリットなど
  植物を原料としたセルロースナノファイバー（CNF）とバイオマスプラスチックを複合化させることで、バイオマス度を損なわずに高機能化が見込まれ、より広い分野でのバイオマスの活用が期待できる。特に CNF の複合化は樹脂の強度向上効果に加えてリサイクル性も期待でき、回収される使用済みプラスチックの品質向上に寄与する可能性もある。
- バイオマスプラスチックの種類および特徴
  バイオマスプラスチックには、比較的短期間で空気中の CO_2 を取り込んで成長する再生可能な有機資源を原料として生産されるバイオマスプラスチックと、製品自体が生分解性を有するプラスチックがある。バイオマスプラスチックは枯渇性資源の消費削減や温室効果ガスの排出抑制につながる特質があり、一方の生分解性プラスチックはプラごみによる環境負荷低減に寄与する可能性があるなど、いずれもプラスチックを取り巻く諸問題を解決する要素の一つとして期待されている。
- バイオマスプラスチック製造段階の CO_2 排出原単位の推定値提供
  文献等によると、バイオマスプラスチックのライフサイクル温室効果ガス排出量原単位は様々な前提条件での数値が公表されている。それらの中から、本研究を通じて妥当と思われる数値を整備した結果を表 2-4 にまとめた。
- バイオマスプラスチック製造について一からデータ収集する際のデータ収集範囲
  バイオマスの栽培から加工による資源化工程、さらに加工による材料化工程をメインとし、以下のプロセスについて収集する。

表2-4　バイオマスプラスチックのGHG排出原単位（Cradle to Gate）推定値整備結果

No.	プラスチックの種類	著者（発行年）	地理的有効範囲		原材料	元文献のGHG排出原単位（CO_2e/kg-樹脂）	整備結果GHG排出原単位（CO_2e/kg-樹脂）	備考
1	PE	Braskem（※）	ブラジル		サトウキビ	-3.09	**-1.99**	説明不足の直接的土地利用変化を除外
2		Kikuchi et al.（2013）	産油国ブラジル日本		サトウキビ	-2.14～-0.93	**-2.14**	エネルギーの控除を含めたブラジル平均
3	PLA	NatureWorks（2015）	アメリカ		トウモロコシ	0.60	**0.60**	企業レポートだがデータ品質にも言及
4		Cheroennet et al.（2016）	タイ		サトウキビ	2.21	**2.21**	データ品質は不完全ながら他の事例少
5	PBS	Cheroennet et al.（2016）	タイ		サトウキビ トウモロコシ	-1.24	**-1.24**	データ品質が不完全ながら他の事例少
6		Martin et al.（2018）	欧州		トウモロコシ葉茎	-1.49～2.13	**-1.49**	将来シミュレーションをしたベストケース
7	PHBH	京都高度技術研究所（2022）	マレーシア日本		パーム油 ジャトロファ油 廃食用油	0.57～1.05	**-0.53**	廃食用油ケース

①植物の栽培プロセス
②バイオマス原料の調整プロセス
③バイオマス原料の輸送プロセス
④廃棄物処理プロセス

土地利用管理に伴うGHG排出量については、以下のデータを収集する。
・土壌中の窒素肥料から発生するN_2O、・家畜が行う消化管内発酵により発生するCH_4
・家畜の排せつ物処理により発生する CH_4、N_2O、・石灰および尿素施用からの非生物起源のCO_2
・稲作からの CH_4、・貯水池およびその他の浸水した土地からの CH_4、・バイオマス由来の CH_4、N_2O

土地利用変化に伴うGHG排出量は、以下のデータを収集する。
・炭素蓄積の増加または減少に伴う CO_2吸収または排出量、・バイオマス燃焼由来の CO_2、CH_4、N_2O、・土壌有機物の損失による窒素の無機化からの N_2O、・泥炭地の排水に伴う CO_2、CH_4、N_2O

- CNF複合バイオマスプラスチック製品のリサイクル時のLCA評価方法
  リサイクルの評価において、上流側システムと下流側システムとでシステム境界の線引きが必要となるが、バイオマスプラスチックに関してどの考え方を取り入れるかについては、今後の事例研究が待たれる。
- CNF複合バイオマスプラスチック製品のLCA算定事例
  本研究におけるCNF複合バイオPEの評価結果が算定事例となる。
- 地球温暖化以外の環境影響評価（海ゴミプラ、生物多様性、資源消費等）の評価方法検討
  現状として事例が少ないことから、引き続き情報収集が必要である。

５．　サブテーマ２研究目標の達成状況

サブテーマ２の達成状況は下記の通りである。

＜【サブテーマ２】達成状況＞・・・・・・・　２．目標を上回る成果をあげた

「CNF複合化（強化）バイオマスプラスチックの製品適用の評価実証研究および複合化バイオマスプラスチック製品の環境性能評価」

サブテーマ２目標	サブテーマ２の達成状況
サブテーマ１で開発したCNF複合材料を実際の製品に加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出す。	サブテーマ１で開発したCNF複合材料を試験金型、製品金型で加工し、その実用性能評価、LCA評価を通じて、低炭素化に貢献し、コスト的、性能的に実用化可能な用途を樹脂、成形方法ごとに下記の通りに見出した。
①高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合ポリ乳酸、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**①高剛性構造用途・射出成形品：目標達成** CNF/ポリ乳酸/PPについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を3社で評価。運搬用パレットの要求性能を達成（p12,図0-9）。射出成形で実用化可能な用途として運搬用パレット、電気部品、自動車フォグランプ部品を見出した。
②耐衝撃構造用途・射出成形品：CNF複合バイオPE 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**②耐衝撃構造用途・射出成形品：目標を上回って達成** CNF複合バイオPEについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を10社で評価。射出成形で実用化可能な用途として、自動車でエアコンケース、ランプハウジング、エアクリーナケース、ドアトリムを見出した。さらに分析機器部材、文房具、日用雑貨品、容器部品についても性能的に実用化可能な用途を見出し、それに基づき、文房具で３つの商品化を達成した（p13,図0-10, 0-11, 表0-4）。
③高耐熱構造用途・ブロー成形品：CNF複合バイオPE、CNF複合ポリ乳酸/バイオPE ブロー成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。	**③高耐熱構造用途・ブロー成形品：目標達成** CNF複合バイオLLDPEについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を1社で評価。ブロー成形で実用化可能な用途として、液体ボトル（p14,図0-12）、トナーボトルを見出した。
④高耐熱構造用途・押出成形品：CNF複合バイオPE 押出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を2つ以上見出す。	**④高耐熱構造用途・押出成形品：目標達成** CNF複合バイオPE を1社で押出成形性で評価（p37,表2-1）。さらに生分解性CNF複合ポリ乳酸について1社で特殊押出法（延伸）による発泡加工性、製品性能を評価。断熱性のある食品容器、加熱可能な食品容器への実用化について現行品と比較しながら継続評価中。
⑤土壌分解性・高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PBS、CNF複合PBS/PHBH 日用品（ワンウェイスプーン、等）射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**⑤土壌分解性・高剛性構造用途・射出成形品：目標を上回って達成** CNF複合PHBHについてサブテーマ１で開発した樹脂組成を2社で評価。射出成形で実用化可能な用途として目標を上回る6品目：ワンウェイスプーン、植木鉢、苗ポッド、紙コップホルダー、角皿、丸皿を見出した（p14,図0-13）。
⑥海洋分解性・高剛性構造用途・射出成形品：CNF複合PHBH、CNF複合PHBH/PBS 射出成形可能でサブテーマ１で開発した性能に基づき実用化可能な用途を3つ以上見出す。	**⑥海洋分解性・高剛性構造用途・射出成形品：目標達成** 目標にない新たな成果として、CNF複合PHBHについてサブテーマ１で開発した樹脂組成で射出発泡成形を行い発泡特性を評価。CNFを複合することで最大発泡倍率が数倍向上することを確認。射出発泡成形で実用化可能な用途として、ルアーや浮き、浮き輪、ブイ、食品トレーを見出した（図p42,図2-13）
⑦環境性能（各成形品共通） サブテーマ１-⑤を踏まえ、CNF複合材を使用した成形品の製品ライフサイクル全体のLCA手法を整備するとともに低炭素化への技術ポテンシャルを明確にする。	**⑦環境性能（各成形品共通）：目標達成** CNF複合材に関するLCA実施に際し必要なデータ収集範囲を整理し、CNF複合バイオPE製品のLCAを算定。低炭素排出素材としての優位性を明らかにした（p15,図0-17、p16,図0-18）。

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細
※この項目の成果番号は通し番号です。

（1） 成果の件数

成果の種別	件数
査読付き論文：	0
査読付き論文に準ずる成果発表（人文・社会科学分野）：	0
その他誌上発表（査読なし）：	3
口頭発表（国際学会等・査読付き）：	2
口頭発表（学会等・査読なし）：	7
知的財産権：	0
「国民との科学・技術対話」の実施：	8
マスコミ等への公表・報道等：	0
研究成果による受賞：	0
その他の成果発表：	0

（2） 誌上発表

＜査読付き論文＞

成果番号	【サブテーマ１】の査読付き論文
	特に記載すべき事項はない。

成果番号	【サブテーマ２】の査読付き論文
	特に記載すべき事項はない。

＜その他誌上発表（査読なし）＞

成果番号	【サブテーマ１】のその他誌上発表（査読なし）
1	野口広貴、生分解性プラスチックの普及に向けたセルロースナノファイバー複合材料の開発. 繊維学会誌、2023年、79、p.367-369、ISSN 0037-9875
2	野口広貴、セルロースナノファイバー複合生分解性プラスチックの開発と性能. 加工技術、2023年、680、p.23-33
3	野口広貴、セルロースナノファイバーを用いたバイオプラスチックの性能改善. バイオプラジャーナル、2023年、84、p.5-10

成果番号	【サブテーマ２】のその他誌上発表（査読なし）
	特に記載すべき事項はない。

（３） 口頭発表

口頭発表（国際学会等・査読付き）＞

成果番号	【サブテーマ１】の口頭発表（国際学会等・査読付き）
4	Noguchi, H., Ono, K., Ito, A., Semba, T., Yano, H., Development of chiral and achiral biodegradable polymer composite and its performance. MRM2023/IUMRS-ICA2023 Grand Meeting, Kyoto, Japan, 2023, A2-P303-07
5	Ono, K., Noguchi, H., Semba, T., Yano, H., Effects of CNF Addition on Biodegradation in CNF-Reinforced Biodegradable Plastics. ICC 2022+1, 2023, A002

成果番号	【サブテーマ２】の口頭発表（国際学会等・査読付き）
	特に記載すべき事項はない。

＜口頭発表（学会等・査読なし）＞

成果番号	【サブテーマ１】の口頭発表（学会等・査読なし）
6	小野和子、野口広貴、仙波健、矢野浩之、第29回セルロース学会（2022）、CNF強化生分解性プラスチックの土壌中での分解性
7	野口広貴、仙波健、伊藤彰浩、小野和子、矢野浩之、 セルロースナノファイバーの複合による生分解性樹脂の性能強化、プラスチック成形加工学会第31回秋季大会、成形加工シンポジア’23, 2023, A-201
8	野口広貴、仙波健、伊藤彰浩、小野和子、矢野浩之、CNFの複合化による生分解性樹脂の性能向上、プラスチック成形加工学会第30回秋季大会、成形加工シンポジア’22, 2022, C-203
9	山岸健、渕上智子、神崎昌之、 CNF複合バイオマス樹脂製品のLCAにおける現状と課題、プラスチック成形加工学会第30回秋季大会、 成形加工シンポジア’22, A013
10	小野和子、野口広貴、仙波健、矢野浩之、CNF 補強による生分解性プラスチックの土壌試験における分解性、プラスチック成形加工学会第31回秋季大会, 成形加工シンポジア’23, A202
11	小野和子、野口広貴、仙波健、矢野浩之、生分解性樹脂PBSの分解性に対するセルロースナノファイバー添加の影響. 第74回日本木材学会, 2024, Z15-07-0930

成果番号	【サブテーマ２】の口頭発表（学会等・査読なし）
12	渕上智子、斎木祐子、兼松祐一郎、菊池康紀、矢野浩之、山岸健、神崎昌之、セルロース繊維による樹脂成形品の機能強化とリサイクル性を考慮したGHG排出量評価、第19回日本LCA学会研究発表会、2024, 1-C1-02

（４） 知的財産権

成果番号	発明者	出願者	名称	出願以降の番号	出願年月日
	「特に記載すべき事項はない。」				

（５） 「国民との科学・技術対話」の実施

成果番号	実施年度	【サブテーマ１】の実施状況
13	2022	大阪府立天王寺高等学校の生存圏研究所見学時における特別授業「未来のクルマは裏山で作る- セルロースナノファイバー材料の開発 -」（令和4年6月3日、宇治、京都大学宇治キャンパス、聴講者26名）
14	2022	京都大学創立 125 周年記念アカデミックマルシェ（令和 4 年 6 月 18 日、京都、ロームシアター京都、参加者約 3000 名）にて研究紹介
15	2022	エコプロ2022（令和4年12月7日-9日、東京、東京ビックサイト、 ERCAブースでのポスター展示、参加者約6万人）
16	2023	京都大学宇治キャンパス産学交流会（令和5年年10月17日、宇治、京都大学宇治キャンパス、聴講者25名）
17	2023	京都大学宇治キャンパス公開講演会（令和5年10月21日、京都、京都大学宇治キャンパス、聴講者約200名）
18	2023	京都大学生存圏研究所オープンセミナー（令和5年年12月20日、オンライン、聴講者約120名）
19	2023	第10回京都大学ー稲盛財団合同京都賞シンポジウム（令和6年2月3日、東京、JPタワーホール&カンファレンス、聴講者約300名）
20	2023	京都大学附置研究所・センターシンポジウム（令和6年年3月2日、松本、まつもと市民芸術館、オンライン併用、聴講者約600名）

成果番号	実施年度	【サブテーマ２】の実施状況
		「特に記載すべき事項はない。」

（６） マスメディア等への公表・報道等

成果番号	【サブテーマ１】のメディア報道等
	特に記載すべき事項はない。

成果番号	【サブテーマ２】のメディア報道等
	特に記載すべき事項はない。

（７） 研究成果による受賞

成果番号	【サブテーマ１】の研究成果による受賞
	特に記載すべき事項はない。

	特に記載すべき事項はない。

（８） その他の成果発表

成果番号	【サブテーマ１】のその他の成果発表
21	野口広貴、仙波健、伊藤彰浩、小野和子、矢野浩之、 CNF複合ポリブチレンサクシネートの性能と生分解挙動に関する研究、地方独立行政法人京都市産業技術研究所技術ノート、2023、京都市産業技術研究所 ホームページ

成果番号	【サブテーマ２】のその他の成果発表
	特に記載すべき事項はない。

Abstract

[Research Title]

Promotion of Expanded Use of Biomass-based Plastics through Cellulose Nanofiber Reinforcement

Project Period (FY) :	2021-2023
Principal Investigator :	Yano Hiroyuki
(PI ORCID) :	ORCID0000-0001-2345-6789
Principal Institution :	Kyoto University, Kyoto, Japan, JAPAN Tel: +81-774-38-3669 Fax: +81-774-38-3655 E-mail: yano@rish.kyoto-u.ac.jp
Cooperated by :	Kyoto Municipal Institute of Industrial Technology and Culture, Sustainable Management Promotion Organization
Keywords :	Biomass-based plastics, Cellulose nanofibres, Structural applications, Carbon neutral, Biodegradable

[Abstract]

Through a collaboration of three institutions with the cooperation of 17 companies, the uses of biomass-based plastics in structural applications were examined, namely reinforcement with cellulose nanofibers (CNFs). Under sub-theme 1, the performance of CNF reinforced bioplastics (PLA, bio-PE, PBS, and PHBH) was examined in applications including: (1) high-stiffness structures, (2) impact-resistant structures, (3) soil-degradable and high-stiffness materials, and (4) marine-degradable and high-strength materials. All materials were evaluated for their environmental performance. It was found that CNF reinforcement of bio-PE can produce lightweight and heat-resistant composites with rigidity and strength equivalent to that of automotive talc-added PP resin, as well as composites with high elasticity and impact resistance. For biodegradable biomass-based plastics, it was also found that CNF reinforcement can improve strength and foaming properties without compromising marine degradability. Furthermore, in term of soil degradability, it was found for the first time that a CNF network in biodegradable biomass-based plastics promotes biodegradability from the inside of a product while maintaining its shape. The greenhouse gas emissions associated with production of each composite material were calculated, a provisional calculation methodology for conducting LCA was developed, and the greenhouse gas emissions of CNF reinforced biomass-based plastics were calculated. On the basis of these evaluation results, under sub-theme 2, CNF reinforced biomass-based plastics were provided to the 17 companies, which evaluated the processability and performance of molded products in test and production molds. As a result, 20 potential practical applications were identified, exceeding the study target of 16 items. Furthermore, the material evaluation provided by this study led Ueyama Seisakusho Co. to commercialize three stationery products composed of CNF-reinforced bio-PE in 2023. The scope of data collection required for conducting LCA on CNF composite materials was determined and the LCA for CNF reinforced bio-PE products was performed.

This research was funded by the Environment Research and Technology Development Fund (ERTDF).

別引糸氏

【参考資料】終了研究成果報告書　公募審査・中間評価結果への対応

指摘等	対応状況・非対応理由等
中間評価時コメント「海洋分解性プラスチックの分解性の評価がほとんど進んでいない点は、懸念がある。」	CNF複合PHBHについて海洋分解性を評価し、CNF複合材はPHBHと同等あるいはそれ以上の海洋分解性を有することを明らかにした。（成果の概要、p11、図0-7）
中間評価時コメント「学会等への成果報告がほとんどなされていない。」	中間評価後に、3件の誌上発表および8件の学会口頭発表（うち2件は国際学会）、6件の「国民との科学・技術対話」を行った。国際誌への論文を2件準備中。
中間評価コメント「研究目標である「コスト/パフォーマンスの壁をクリアして…」という点について、定量的な説明がなく、どの程度目標に近づけるのか不明である。従来のプラスチック製造と比べて、コストはどれくらいになるのか、排出CO_2の削減の効果を定量的に示してほしい。」	LCA評価に基づく排出CO_2（GHG）の削減効果についてp31-33およびp42-46に定量的に示した。コスト/パフォーマンスの向上に向けて新たな製造プロセス（パルプ直接混練法：第4世代）の開発を進めている。そのひとつ前の製造プロセス（第3世代）で、2023年に本研究の成果に基づき、文房具においてコスト/パフォーマンスの壁をクリアして3つの商品が上市された。