Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費　終了研究成果報告書

１Ｊ－２００１　セルロースナノファイバーコンポジットの実用化

（JPMEERF20201J01）

令和２年度～令和４年度

Developmentof Cellulose Nanofiber Composite for Commercial Use

<研究代表機関>
オーミケンシ株式会社

<研究分担機関>
神戸女子大学
京都大学 生存圏研究所

<研究協力機関>
－

○図表番号の付番方法について
「Ⅰ．成果の概要」の図表番号は「０．通し番号」としております。なお、「Ⅱ．成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。
「Ⅱ．成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号．通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和５年５月

目次

Ⅰ. 成果の概要 ・・・・・ 1

1．はじめに（研究背景等）
2．研究開発目的
3．研究目標
4．研究開発内容
5．研究成果
　5－1．成果の概要
　5－2．環境政策等への貢献
　5－3．研究目標の達成状況
6．研究成果の発表状況
　6－1．査読付き論文
　6－2．知的財産権
　6－3．その他発表件数
7．国際共同研究等の状況
8．研究者略歴

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－A　セルロースナノファイバーコンポジット紙のロールtoロールプロセスの確立 ・・・・・ 17
（オーミケンシ株式会社）

要旨
1．研究開発目的
2．研究目標
3．研究開発内容
4．結果及び考察
5．研究目標の達成状況
6．引用文献

Ⅱ－B　ナノ複合液の最適化 ・・・・・ 24
（神戸女子大学、オーミケンシ株式会社）

要旨
1．研究開発目的
2．研究目標
3．研究開発内容
4．結果及び考察
5．研究目標の達成状況
6．引用文献

Ⅱ－Ｃ　ナノ複合層のゲル化条件の最適化　・・・・・　28
（京都大学 生存圏研究所）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅱ－Ｄ　セルロースナノファイバーコンポジット製品の試作評価　・・・・・　31
（オーミケンシ株式会社）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細　・・・・・　36

Ⅳ．英文Abstract　・・・・・　37

I. 成果の概要

課題名 1J-2001　セルロースナノファイバーコンポジットの実用化
課題代表者名　徳田　宏（オーミケンシ株式会社 環境素材事業本部 加古川工場 応用技術室 室長）

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）

行政要請研究テーマ（行政ニーズ）　非該当

研究実施期間　令和２年度～令和４年度

研究経費
166,330千円（合計額）
（各年度の内訳：令和２年度：100,000千円、令和３年度：33,165千円、令和４年度：33,165千円）

研究体制
（課題Ａ）セルロースナノファイバーコンポジット紙のロールtoロールプロセスの確立（オーミケンシ株式会社）
（課題Ｂ）ナノ複合液の最適化（神戸女子大学）
（課題Ｃ）ナノ複合層のゲル化条件の最適化（京都大学生存圏研究所）
（課題Ｄ）セルロースナノファイバーコンポジット製品の試作評価（オーミケンシ株式会社）

研究協力機関
－

本研究のキーワード
セルロース、ナノファイバー、紙、海洋生分解性、リサイクル性、
海洋プラスチックごみ、代替素材イノベーション、脱プラスチック、脱炭素化

1．はじめに（研究背景等）

「経済財政運営と改革の基本方針2019」で言及され、また直近では「G20大阪サミット2019」で「海洋プラスチックごみ」問題の共通認識が合意に至ったように、廃棄物による海洋汚染の深刻さが顕在化している。この問題の解決策とされる代替素材のイノベーションでは、使い捨てプラスチックを天然素材に代替する「脱プラスチック」、微生物で分解する素材へ代替する「生分解性素材」の、主に２つが重要視され、強く求められている。

図-0.1：関連する国内外の環境問題の状況および国際的な取組

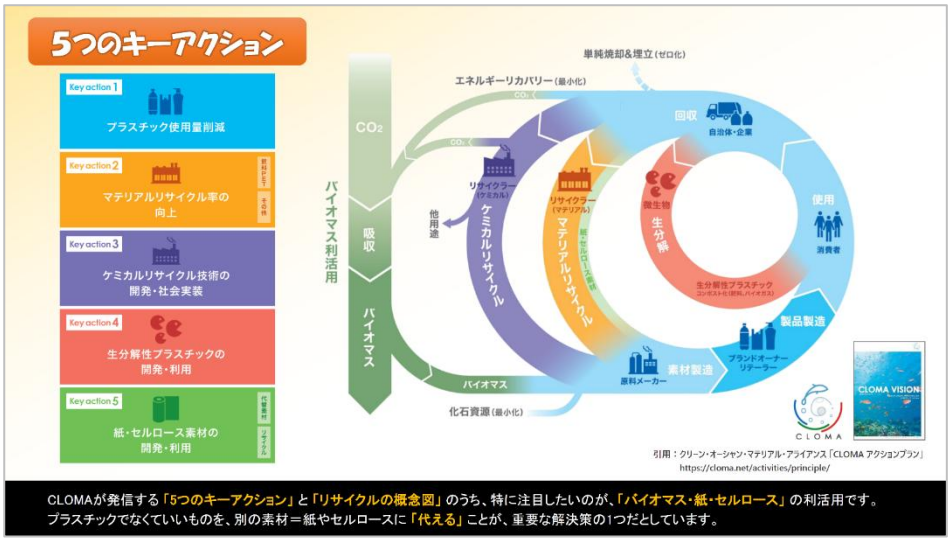


図-0.2：CLOMAアクションプランと５つのキーアクション

そんな中、プラスチックを「紙素材」へ切り替える動きが注目されている。紙とは科学的に、主に木材などの非可食性植物を精製して得る「セルロース」を指し、莫大な貯蔵量と再生産可能な循環資源として、世界的に利用と研究が盛んな環境素材を代表する１つである。このセルロースの生分解性は、土壌・淡水・海水のいずれにも限定されず良好で、生分解性試験規格（ASTM D 6691）によると、生分解性の良否の判断材料に採用され、海洋中でも速やかに分解されることが証明されている。

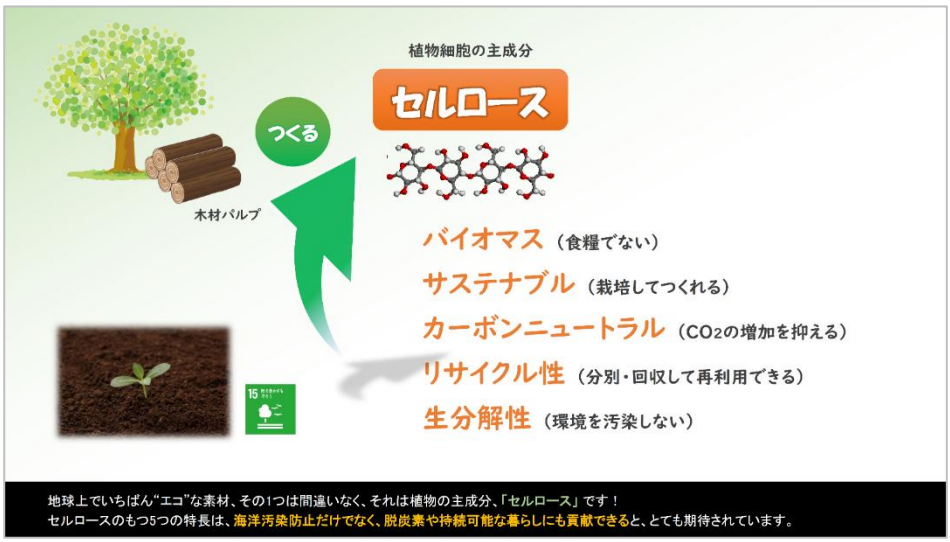


図-0.3：セルロースの優位性

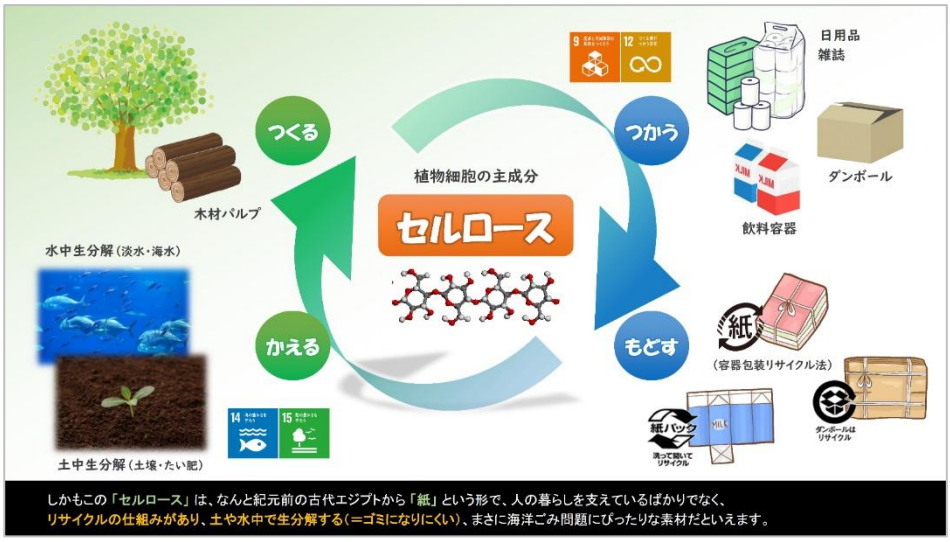


図-0.4：セルロースおよび紙を使用した従来からある資源循環システム

しかしながら、これら代替されたいわゆる紙素材の多くは、実際には耐水性やガスバリア性などの機能性を満たす目的で、フィルムや接着剤など数十%の非生分解性プラスチックを併用する「見かけの紙製品」による「減プラスチック」であり、根本的な解決とはいえない。つまり、脱プラスチックで真に求められる代替素材イノベーションとは、「プラスチックを原料から製品まで全く含まず」、環境適性に優れた「セルロースベース」で、「現行品同等の実用性」を併せ持つ素材の創出である、と考える。

２．研究開発目的

本研究は、海洋プラスチックごみ問題の根本的な解決のため、セルロースとそのナノファイバーの融合からなる、プラスチックを全く含まない海洋分解性・リサイクル性・実用耐久性を兼ね備えた「海洋分解性紙素材」を創出する、代替素材イノベーションの実証・実用化を目的とする。

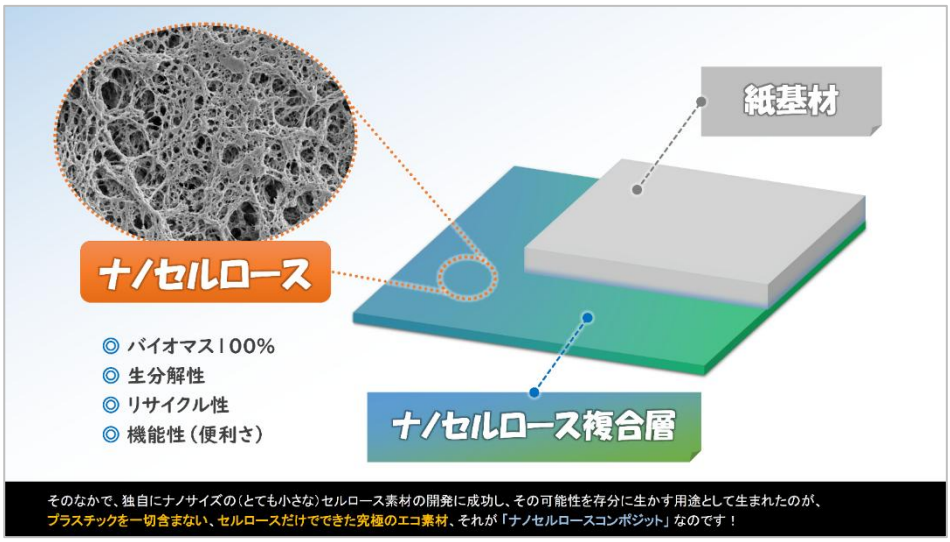


図-0.5：本研究で創出する海洋分解性紙素材「セルロースナノファイバーコンポジット」の概念図

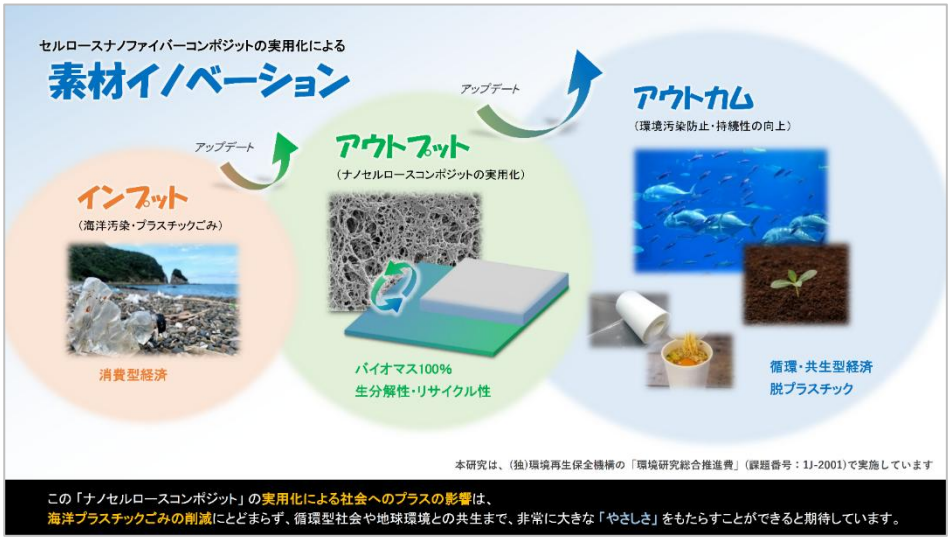


図-0.6：本研究が提案するアウトプットとアウトカム

プラスチック代替を目的とする紙製品の技術課題は、飲食用途の場合、湿潤状態での強度や、内容物の劣化防止のためのガスバリア性などがある。これらの解決策として「セルロースナノファイバー」の用途開発が進められているが、未だ実用化に至らないか、用途が極めて限定的で、実際のプラスチック代替例は少ない。

一方で当研究者らはこれまで、再生セルロース事業のさらなる環境負荷低減を目指して、アルカリ処理法によるセルロース食品の実用化や、ナノファイバー複合素材の開発を進めてきた。そのなかで、特定のアルカリ処理がセルロースの溶解やセルロースナノファイバーの製造を促進させ、またこれを塗工した紙の再生凝固によるゲル化が、紙の繊維同士の結合を強固にし、湿潤強度が向上する結果を得た。また他の研究で、従来のプラスチックフィルムより高いガスバリア性を示す報告もある。

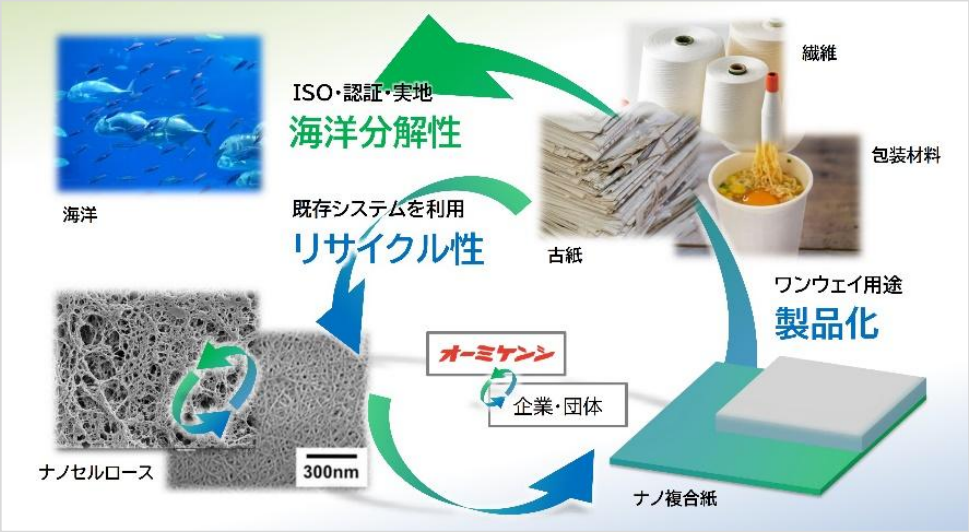
図-0.7：当研究者らによるセルロース製品の実用化例

そこで本研究は、当研究者らが保有する「セルロースのアルカリ処理法」の実用化技術と、先端材料「セルロースナノファイバー」の研究成果を融合し、海洋分解性・リサイクル性・実用耐久性を兼ね備えた「海洋分解性セルロースナノファイバーコンポジット」の開発を目的とし、速やかにかつ低コストで社会実装するため、既存の紙加工技術を応用した製造方法を採用し、経済・環境活動の両立を目指す。

具体的には、既存のセルロース由来のロール紙に、ロールtoロールプロセスを用いて、セルロースナノファイバーゲルを塗工して機能性を付与し、セルロースナノファイバーを複合した機能性ロール紙を得る。さらにこの機能性ロール紙をモールドなどで成形し、セルロース100%の本格的な環境適合材料として最終製品化する。

研究課題は、製品化までの工程別に、製造プロセスの最適化によるロール紙の製造（課題Ａ）、アルカリ処理条件と得られた再生ゲルの評価と最適化（課題Ｂ・Ｃ）、成形加工による製品用途開発（課題Ｄ）を検討する。

3．研究目標

全体目標	特にワンウェイ製品に由来する海洋プラスチックごみ問題の解決を目的とする、「セルロースナノファイバーコンポジット（CNC）」の紙と、これを成型加工した製品の、２つの実用化（代替素材イノベーション）をアウトプット目標とする。 具体的には、実用性（既存のプラスチック製品への要求特性が実用同等以上であること、土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好に生分解性することの両立）を証明した、セルロースナノファイバーコンポジット製品の試作を完了する。  図-0.8：研究目標の概念図 -- 目標①：海洋分解性セルロースナノファイバーコンポジット紙の実用化（課題A・B・C） ・ナノセルロース複合液を、ロールtoロール（R2R）プロセスで紙基材に塗工する、CNC紙の製造技術を確立する。 製造技術とは、プロセスに必要な各種機器の設計や改造、各工程の条件設定、製造するCNC紙の品質要求などの最適化による、連続生産性の確立を指す。 ・土壌・淡水・海水のいずれの環境中でも良好な生分解性をもつこと。生分解性の指標は、国際標準規格または団体認証制度による模擬試験と、日本近海等の実地試験から、研究の段階や目的に沿って都度選択する。 ・既存のプラスチック製品を代替するための要求特性を、実用同等以上とする。 特性はたとえば、生分解性・耐水性・ガスバリア性などがある。 ・マテリアルリサイクル性として、古紙のナノ複合液の原料適性を評価する。 -- 目標②：海洋分解性セルロースナノファイバーコンポジット製品の実用化（課題D） ・CNC紙を原材料とする、ワンウェイ用途のCNC製品を試作し、実用性を検証する。CNC製品はたとえば、紙コップなどの食品包材やカトラリー類など、あらゆるプラスチックの代替製品を想定する。 ・土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好な生分解性をもつこと。 ・既存のプラスチック製品の要求特性を、実用同等以上とする。 ・既存インフラシステムによる、古紙としてのリサイクル性を評価する。

課題A	セルロースナノファイバーコンポジット（CNC）紙のロールtoロール（R2R）プロセスの確立
サブテーマリーダー	徳田　宏／オーミケンシ株式会社
目標	CNC紙のR2R製造技術を確立する。 製造技術とは、プロセスに必要な各種機器の設計や改造、各工程の条件設定、製造するCNC紙の品質要求などの最適化による、連続生産性の確立を指す。 具体的には、R2R機を用いて、課題Bで検討されたナノ複合液の溶解条件と、課題Cで検討されたナノ複合層のゲル化条件をもとに試作したCNC紙について、最終製品の要求特性（生分解性、耐水性、ガスバリア性など）を評価し、用途や機能に応じた作り分けを可能にし、課題Dに必要なCNC紙を提供する。
課題B	ナノ複合液の最適化
サブテーマリーダー	山根　千弘／神戸女子大学
目標	CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合液の溶解条件を最適化する。 ナノ複合液のゲル化層がCNCの機能を決定する。 また、このナノ複合液を課題AおよびCに提供し、フィードバックされた評価結果から、ナノ複合液（条件）を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。
課題C	ナノ複合層のゲル化条件の最適化
サブテーマリーダー	矢野　浩之　／京都大学生存圏研究所
目標	CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合層のゲル化条件を最適化する。 課題Bで検討されたナノ複合液を用いて、再生工程でのゲル化（再生）とその後の不純物の洗浄条件を検討する。 また、このナノ複合層のゲル化条件を課題に提供し、課題Aからフィードバックされた評価結果から、ゲル化条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。
課題D	セルロースナノファイバーコンポジット（CNC）製品の試作評価
サブテーマリーダー	徳田　宏／オーミケンシ株式会社
目標	実用性を証明したCNC製品の試作を完了する。 実用性とは、既存のプラスチック製品への要求特性が実用同等以上であること、土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好に生分解性することの両立を指す。 CNC製品とは、特にワンウェイ製品に由来する海洋プラスチックごみ問題の解決を目的とした、CNC紙を原料とするプラスチック代替製品を指す。 具体的には、課題Aで得たCNC紙を用いて、協力企業で最終製品相当の試作品を成形すること、その試作製品の要求特性を評価すること、さらにこれら検討の繰り返しで、課題Aで証明するCNC紙相当の良好な生分解性を維持させたまま、要求特性を実用同等以上まで向上させる。

４．研究開発内容

特にワンウェイ製品に由来する海洋プラスチックごみ問題の解決を目的とする「セルロースナノファイバーコンポジット（CNC）」の紙と、これを成型加工した製品の、２つの実用化（代替素材イノベーション）をアウトプット目標とした。具体的には、既存のプラスチック製品への要求特性が実用同等以上であることと、土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好に生分解性することの、２つの実用性を証明した、セルロースナノファイバーコンポジットの製品の試作を完了するために、以下の４課題に分担した。

課題Ａでは、課題Ｂで検討されたナノセルロース複合液を紙基材に塗工し、また課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件をもとに、CNC紙のロールtoロールプロセスによる連続製造技術を検討した。具体的には、R2R機を用いて、課題Ｂで検討されたナノ複合液の溶解条件と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件をもとに試作したCNC紙について、最終製品の要求特性（生分解性、耐水性、ガスバリア性など）を評価し、用途や機能に応じた作り分けを可能にし、課題Ｄに必要なCNC紙を提供した。

課題Ｂでは、課題Ａの要求特性を達成するナノ複合液の最適化を検討した。また、このナノ複合液を課題ＡおよびＣに提供し、フィードバックされた評価結果から、ナノ複合条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化した。

課題Ｃでは、課題Ａの要求特性を達成するナノ複合層のゲル化条件の最適化を検討した。具体的には、課題Ｂで検討されたナノ複合液を用いて、再生工程のゲル化とその後の不純物の洗浄条件を検討した。また、このナノ複合層のゲル化条件を課題に提供し、課題Ａからフィードバックされた評価結果から、ゲル化条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化した。

課題Ｄでは、課題Ａで得られたCNC紙を原料として、ワンウェイ用途のCNC製品を試作し、その実用性を検討した。具体的には、課題Ａで得たCNC紙を用いて、協力企業で最終製品相当の試作品を成形すること、その試作製品の要求特性を評価すること、さらにこれら検討の繰り返しで、課題ＡでCNC紙相当の良好な生分解性を維持させたまま、要求特性を実用同等以上まで向上させた。

５．研究成果

５－１．成果の概要

海洋プラスチックごみによる海洋汚染の解決手段の１つとして、とりわけ使い捨てプラスチック製品やプラスチックを複合した紙製品の代替として、セルロース100%からなる、海水環境下の生分解性・リサイクル性・実用性を兼ね備えた「セルロースナノファイバーコンポジット（CNC）」を開発し、社会実装に必要な以下の要件を満足させた。

１）使用用途の異なる複数のCNCロール紙の連続生産技術を確立した。
２）コンポスト・土壌・淡水・海水の試験環境下で、良好な生分解性を示した。
３）食品容器包装に必要な要求特性のうち、良好な酸素バリア性・耐油性・耐熱性を示した。
４）機能性を発現するナノ複合層で、５％のリサイクルパルプが活用できた。
５）CNCロール紙のみを原料としたCNC食品容器の試作品を得た。
６）CNC食品容器の特性は、冷凍食品用の容器に必要な耐熱性と耐久性を示した。
７）CNC食品容器のリサイクル先の選択肢として、園芸用の育苗ポットへアップサイクルできた。

５－２．環境政策等への貢献

＜行政等が既に活用した成果＞

特に記載すべき事項はない。

＜行政等が活用することが見込まれる成果＞

本研究と政府省庁の提案に合致する環境施策には、特に以下６点が挙げられる。

・国際合意：「大阪ブルー・オーシャン・ビジョン」（Ｇ20大阪サミット2019）
「Ｇ７イノベーションチャレンジ」（Ｇ７広島サミット2023）

・閣議決定：「経済財政運営と改革の基本方針2019」
「パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略」

・環境省　：「海洋プラスチックごみ対策アクションプラン」
「プラスチック資源循環戦略」

具体的には、生育時にCO_2を固定化する木質バイオマスを用いることで、海洋流出時の廃棄物蓄積を抑制する海水環境下での生分解性による「①海洋プラスチックごみ」問題の解消、生分解やサーマルリカバリーによるCO_2増加を抑制するカーボンニュートラルによる「②脱炭素化」、「③SDGs」目標（９：技術革新、12：つくるつかう責任、14：海の豊かさを守る、#15：陸の豊かさを守る）の、大きく分けて3つの達成目標に貢献する。

またCO_2の観点では、日本バイオマス製品推進協議会公表の「バイオマス製品の地球温暖化ガス削減効果」で、原料からペレット製造にかかるポリスチレンのCO_2排出量が1,820kg/tとの試算が報告されており、仮に４億tすべてのプラスチックがポリスチレンで生産され、かつすべてセルロースに切り替えたと想定するとき、原材料としてのCO_2削減量は約7.3億tに達する。また産業・経済面で、仮にプラスチック製品の価格を100円/kgと仮定しても市場総額40兆円と、環境にも経済にも与える影響は莫大である。

５－３．研究目標の達成状況

全体目標① 海洋分解性セルロースナノファイバーコンポジット紙の実用化	目標の達成状況
・ナノセルロース複合液を、ロールtoロールプロセスで紙基材に塗工する、CNC紙の製造技術を確立する。製造技術とは、プロセスに必要な各種機器の設計や改造、各工程の条件設定、製造するCNC紙の品質要求などの最適化による、連続生産性の確立を指す。	○目標どおりの成果をあげた。 紙基材に必要なアルカリ性のナノ複合液への耐性、不純物除去のための水洗への耐水性、乾燥工程による品質欠陥（シワ・カール・収縮）防止を検討した結果、坪量や実績用途の異なる８種類の紙基材で、生産条件を適切に制御することで、品質不良のないCNC紙の連続製造技術を確立した。
・土壌・淡水・海水のいずれの環境中でも良好な生分解性をもつこと。生分解性の指標は、国際標準規格または団体認証制度による模擬試験と、日本近海等の実地試験から、研究の段階や目的に沿って都度選択する。	◎目標を上回る成果をあげた。 ISOおよびASTM規格による認証制度を利用し、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境での生分解性を検証した結果、いずれの環境下でも、規定の試験時間よりも極めて短期間のうちに良好な生分解性を示すCNC紙が得られた（p18 図-A.1、p20 図-A.5）。
・既存のプラスチック製品を代替するための要求特性を、実用同等以上とする。特性はたとえば、生分解性・耐水性・ガスバリア性などがある。	◎目標を上回る成果をあげた。 酸素バリア性は、一部の食品包装で求められるハイバリアクラス（10cc以下）だけでなく、絶対湿度10g/㎥以下（25℃、50%RH相当）の条件では、精密機器の要求クラス（1cc以下）を達成した（p19 図-A.3）。 また食品包装や産業資材で求められる耐油性は、キット法（J.TAPPI）の最高値12を達成し、極めて高い耐油性をもつことを証明した（p20 図-A.4）。
・マテリアルリサイクル性として、古紙のナノ複合液の原料適性を評価する。	○目標どおりの成果をあげた。 課題Ｂで検討された古紙を配合するナノ複合液と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件とを、課題Ａで検討された連続製造技術を適用することで、当事業で排出されるパルプ100％からなる古紙をマテリアルリサイクルした、CNC紙の連続生産が可能であることを明らかにした。 得られたリサイクルCNC紙の生産性は、古紙配合率５％以下のとき、実用レベルで連続生産ができ（p20 図-A.5）、また酸素バリア性や耐油性などの特性は、古紙配合の有無によらず同等の性能をもった。

全体目標② 海洋分解性セルロースナノファイバーコンポジット製品の実用化	目標の達成状況
・CNC紙を原材料とするワンウェイ用途のCNC製品を試作し、実用性を検証する。CNC製品はたとえば、紙コップなどの食品包材やカトラリー類など、あらゆるプラスチックの代替製品を想定する。	○目標どおりの成果をあげた。 食品容器用の紙器成形方法のうち、接着剤や熱可塑性プラスチックを用いない方法として、深絞りトレー（金型で熱圧成形）とテーパートレー（折って立体に成形）の２種類で試作品を得た。 深絞りトレーとテーパートレーで、市販品と同型同等の試作品を得た。CNC紙が食品容器用紙器のCNC製品に成形できることを証明した。
・土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好な生分解性をもつこと。	◎目標を上回る成果をあげた。 ISOおよびASTM規格の試験方法で、試作したCNC製品の製法が、原材料のCNC紙と成分や特性を変化させず、CNC紙単体での評価結果をそのまま利用可能なため、課題Ａの成果で示されたとおり、４環境ともに良好な生分解性をもつことを証明したといえる（p18 図-A.1、p20 図-A.5）。
・既存のプラスチック製品の要求特性を、実用同等以上とする。	○目標どおりの成果をあげた。 既存の冷凍食品用容器の要求特性として、耐冷凍性・耐熱性（レンジ調理）・耐油性・耐久性が挙げられる。市販のたこ焼（チルド）とハンバーグ（冷凍）をCNCのテーパートレーに移し替えて、24時間保存による耐冷凍性、指定のレンジ調理による耐熱性と耐油性、食後までの耐久性を評価結果、いずれも良好で、既存のプラスチック製品と同等以上の特性をもつことを証明した（p30 図-D.1）。
・既存インフラシステムによる、古紙としてのリサイクル性を評価する。	◎目標を上回る成果をあげた。 CNC紙を古紙原料として、モールド成形により育苗ポットを試作した結果、従来どおりの製造方法で目的の試作品が得られた。 回収されたCNC紙または製品のマテリアルリサイクル性の古紙適性は、モールド用原料として育苗ポットなどのプラスチック製品の代替製品にアップサイクルが可能であることを証明した。

課題Ａ・目標	目標の達成状況
CNC紙のR2R製造技術を確立する。 製造技術とは、プロセスに必要な各種機器の設計や改造、各工程の条件設定、製造するCNC紙の品質要求などの最適化による、連続生産性の確立を指す。 具体的には、R2R機を用いて、課題Ｂで検討されたナノ複合液の溶解条件と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件をもとに試作したCNC紙について、最終製品の要求特性（生分解性、耐水性、ガスバリア性など）を評価し、用途や機能に応じた作り分けを可能にし、課題Ｄに必要なCNC紙を提供する。	◎目標を上回る成果をあげた。 連続生産性は、紙基材に必要なアルカリ性ナノ複合液への耐性、不純物除去のための水洗への耐水性、乾燥工程による品質（シワ・カール・収縮）を検討した結果、坪量や実績用途の異なる８種類の紙基材で、生産条件を適切に制御することで、品質不良のないCNC紙の連続製造技術を確立した。 生分解性は、ISOおよびASTM規格による認証制度を利用し、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境での生分解性を検証した結果、いずれの環境下でも、規定の試験時間よりも極めて短期間のうちに良好な生分解性を示すCNC紙が得られた（p18 図-A.1、p20 図-A.5）。 プラスチック代替の要求特性のうち、酸素バリア性は、一部の食品包装で求められるハイバリアクラス（10cc以下）だけでなく、絶対湿度10g/㎥以下（25℃、50%RH相当）の条件では、精密機器の要求クラス（1cc以下）を達成した（p20 図-A.6）。 また食品包装や産業資材で求められる耐油性は、キット法（J.TAPPI）の最高値12を達成し、極めて高い耐油性をもつことを証明した（p21 図-A.7）。 マテリアルリサイクル性は、課題Ｂで検討された古紙を配合するナノ複合液と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件を、上記の連続製造技術を適用することで、当事業で排出するパルプ100%からなる古紙をマテリアルリサイクルした、CNC紙の連続生産が可能であることを明らかにした。 得られたリサイクルCNC紙の品質は、古紙配合率５%以下のとき、実用レベルで連続生産ができ（p21 図-A.8）、また酸素バリア性や耐油性などの特性は、古紙配合の有無によらず同等の性能をもった。

課題Ｂ・目標	目標の達成状況
CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合液の溶解条件を最適化する。 ナノ複合液のゲル化層がCNCの機能を決定する。 また、このナノ複合液を課題ＡおよびＣに提供し、フィードバックされた評価結果から、ナノ複合液（条件）を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。	◎目標を上回る成果をあげた。 特定の生産条件のとき、課題Ａで要求される良好な塗工性と、連続生産性を達成可能なナノ複合液になることを見出した。 ナノ複合液へのマテリアルリサイクル性は、食品の一次容器で求められる安全性の観点から、調査の結果、古紙のうち禁忌物を含まず、品質劣化のないパルプを利用することが、最もよい複合条件であることを明らかにした（p24 図-B.1）。具体的には、当事業で排出するパルプ100%からなる古紙を、ナノ複合液に対して５%以下の配合率で複合することで、課題Ａで要求される連続生産性を達成可能であることを見出した（p20 図-A.5）。

課題Ｃ・目標	目標の達成状況
CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合層のゲル化条件を最適化する。 課題Ｂで検討されたナノ複合液を用いて、再生工程でのゲル化（再生）とその後の不純物の洗浄条件を検討する。 また、このナノ複合層のゲル化条件を課題に提供し、課題Ａからフィードバックされた評価結果から、ゲル化条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。	◎目標を上回る成果をあげた。 ナノ複合層のゲル化条件は、課題Ａで要求される連続生産性を簡便に達成可能であることを見出した。 不純物の洗浄条件は、特に食品の一次容器で求められるpHの中性化と、中和塩の除去方法を検討し、課題Ａで要求される品質基準（pH中性と中和塩の検出濃度）を達成可能であることを見出した。 また、上記の方法は、セルロース原料が古紙であっても、また紙基材の特性が異なる場合でもそのまま適用可能で、幅広い要求を満たすことができる。

課題D・目標	目標の達成状況
実用性を証明したCNC製品の試作を完了する。 実用性とは、既存のプラスチック製品への要求特性が実用同等以上であること、土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好に生分解性することの両立を指す。 CNC製品とは、特にワンウェイ製品に由来する海洋プラスチックごみ問題の解決を目的とした、CNC紙を原料とするプラスチック代替製品を指す。 具体的には、課題Aで得たCNC紙を用いて、協力企業で最終製品相当の試作品を成形すること、その試作製品の要求特性を評価すること、さらにこれら検討の繰り返しで、課題Aで証明するCNC紙相当の良好な生分解性を維持させたまま、要求特性を実用同等以上まで向上させる。	◎目標を上回る成果をあげた。 食品容器用の紙器成形方法のうち、接着剤や熱可塑性プラスチックを用いない方法として、深絞りトレー（金型で熱圧成形）とテーパートレー（折って立体に成形）の２種類で試作品を得た。 深絞りトレーとテーパートレーで、市販品と同型同等の試作品が得られ、CNC紙が食品容器用のCNC製品に成形できることを証明した。 既存の冷凍食品用容器の要求特性として、耐冷凍性・耐熱性（レンジ調理）・耐油性・耐久性が挙げられる。市販のたこ焼（チルド）とハンバーグ（冷凍）をCNCのテーパートレーに移し替えて、24時間保存による耐冷凍性、指定のレンジ調理による耐熱性と耐油性、食後までの耐久性を評価結果、いずれも良好で、既存のプラスチック製品と同等以上の特性をもつことを証明した（p30 図-D.1）。 生分解性は、ISOおよびASTM規格の試験方法で、試作したCNC製品の製法が、原材料のCNC紙と成分や特性を変化させず、CNC紙単体での評価結果をそのまま利用可能なため、課題Aの成果で示されたとおり、4環境ともに良好な生分解性をもつことを証明したといえる（p18 図-A.1、p20 図-A.5）。 マテリアルリサイクル性は、モールド成形により育苗ポットを試作した結果、従来どおりの製造方法で目的の試作品が得られた。 回収されたCNC紙または製品のマテリアルリサイクル性は、モールド用原料として育苗ポットなどのプラスチック製品の代替製品にアップサイクルが可能であることを証明した。 なお、自治体からの聞き取りの結果、紙として廃棄可能かは、指定する各回収業者のリサイクル技術によるため、自治体（兵庫県加古川市）として判断できない、との回答であった。

６．研究成果の発表状況

６－１．査読付き論文

特に記載すべき事項はない。

６－２．知的財産権

特に記載すべき事項はない。

６－３．その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	０件
その他誌上発表（査読なし）	０件
口頭発表（学会等）	０件
「国民との科学・技術対話」の実施	３件
マスコミ等への公表・報道等	２件
本研究費の研究成果による受賞	０件
その他の成果発表	０件

７．国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

８．研究者略歴

研究代表者

徳田　宏

・学歴：京都工芸繊維大学　工学部、卒業
・学位：学士（工学）
・現職：オーミケンシ株式会社　環境素材事業部　加古川工場　応用技術室　室長
・担当：研究代表者、課題ＡおよびＤリーダー

研究分担者

１）畑井　幸二
・学歴：近畿大学大学院　農学研究科　バイオサイエンス専攻、修了
・学位：修士（農学）
・現職：オーミケンシ株式会社　環境素材事業部　開発部　担当部長
・担当：課題Ａ、Ｂ、Ｄ

２）上野　文也
・学歴：鳥取大学大学院　工学研究科、修了
・学位：修士（工学）
・現職：オーミケンシ株式会社　環境素材事業部　開発部　社員
・担当：課題Ａ、Ｂ、Ｄ

３）山根　千弘
・学歴：北海道大学大学院　工学研究科　応用化学専攻、修了
・学位：博士（工学）
・現職：神戸女子大学　家政学部　教授
・担当：課題Ｂリーダー

４）阿部　賢太郎（課題Ｃリーダー）
・学歴：名古屋大学大学院　生命農学研究科　生物圏資源学専攻、修了
・学位：博士（農学）
・現職：2023年１月に逝去（京都大学　生存圏研究所　准教授）
・担当：課題Ｃリーダー
・期間：開始から2023年１月まで

５）矢野　浩之（課題Ｃリーダー）
・学歴：京都大学大学院　農学研究科　林産工学専攻、退学
・学位：博士（農学）
・現職：京都大学　生存圏研究所　教授
・担当：課題Ｃリーダー
・期間：2023年１月から終了まで

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－１　課題Ａ：セルロースナノファイバーコンポジット紙のロールtoロールプロセスの確立

オーミケンシ株式会社
環境素材事業本部　加古川工場　応用技術室　室長　　徳田　宏　（リーダー）
環境素材事業本部　開発部　担当部長　　畑井　幸二
環境素材事業本部　開発部　社員　　上野　文也

［要旨］

１．研究開発目的

セルロースナノファイバーコンポジット紙の実用化を達成するためには、業界の商習慣に合わせた製品形態で取引可能であること、連続的な生産方式で、コスト競争力に優れた製造方法をもつことが不可欠である。例えば、製品形態は一定以上の幅方向のサイズ以上で、数百m以上の巻長さをもつロール形状であることが望ましい。ロール形状かつ連続生産とコスト競争力に優れた生産方式として、ロールtoロール（R2R）が最も一般的である。そこで本課題Ａでは、最終製品の要求特性を達成するセルロースナノファイバーコンポジットのロール紙を製造するための、R2Rプロセスの確立を目的とする。

２．研究目標

CNC紙のR2R製造技術を確立する。

製造技術とは、プロセスに必要な各種機器の設計や改造、各工程の条件設定、製造するCNC紙の品質要求などの最適化による、連続生産性の確立を指す。

具体的には、R2R機を用いて、課題Ｂで検討されたナノ複合液の溶解条件と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件をもとに試作したCNC紙について、最終製品の要求特性（生分解性、耐水性、ガスバリア性など）を評価し、用途や機能に応じた作り分けを可能にし、課題Ｄに必要なCNC紙を提供する。

３．研究開発内容

最終製品の要求特性を達成するセルロースナノファイバーコンポジットのロール紙を製造するR2Rプロセスの生産条件を検討した。課題ＢおよびＣより提供された条件を適用して結果をフィードバックし、その影響を検討した。

また、得られたCNC紙の要求性能を評価した。具体的には、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境の生分解性は、ISOまたはASTM規格でその程度を確認した。ガスバリア性は、酸素透過率のISO規格を参考に、温度と相対湿度を変化させたときの影響を評価した。耐油性と耐水性は、J.TAPPI規格のキット法と実際の食材を用いて、24時間の耐久性を評価した。

さらに、ナノ複合液に対する古紙適性について、古紙の有無による生産性と品質特性の差を評価した。

４．結果及び考察

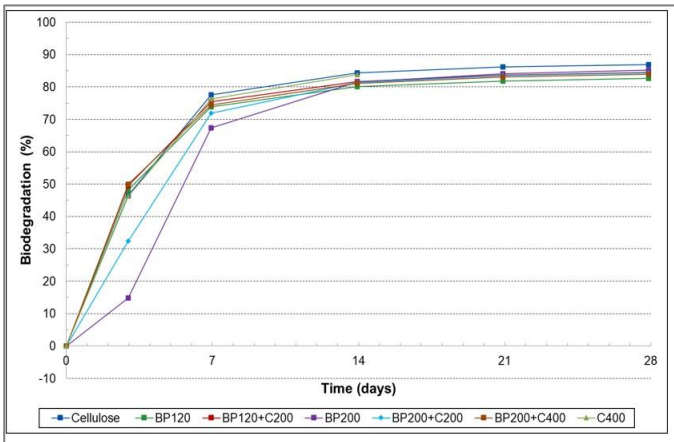
紙基材の種類は、一般的な紙製品で使用実績のあるものから、平判のプレ評価で加工強度や品質をクリアしたものをR2Rプロセスで試作し、連続生産性の可否を評価した。

その結果、紙基材に必要なアルカリ性ナノ複合液への耐性、不純物除去のための水洗への耐水性、乾燥工程による品質条件を、８種類の紙基材で達成できた。

その結果、生産条件が適切に制御されたときに、品質基準を満たすCNC紙を連続的に生産できることを明らかにした。

海水環境下の生分解性は、ASTM D6691規格を用いて、５種類の紙基材からなるCNC紙を評価した。

その結果、ナノ複合膜単体の生分解性は、14日間のごく短期間のうちに99%の分解がみられ、ナノ複合膜が極めて優れた生分解性をもつことを明らかにした。一方、このナノ複合層を複合したCNC紙の生分解性は、非コート紙が28日間の短期間のうちに95%以上の分解がみられたが、耐水性や印刷適性を高めたコート紙が52～76%で、生分解性は認められるものの、長期の分解速度が低下した。これは、コート成分が生分解性を阻害または遅延させる悪影響を与えていると考えられる。また、CNC紙の生分解性は、ナノ複合層単体と比べて分解速度が低下した。これは、ナノ複合層を構成するセルロース（II形・人工型）と、紙基材を構成するセルロース（Ⅰ形・天然系）の結晶系が異なるためと考えられる。



MARINE
OK bio-degradable
TÜV AUSTRIA
MARINE

・規格：ASTM D6691：2017
・環境：海水（MARINE）
・温度：30℃±1℃
・指標：CO_2発生量（好気的）

検体			生分解率 [%]	
種別	基材	ナノ膜厚	14day	28day
ナノ層	なし	17μm	◎99	◎99
非コート紙	A	なし	45	◎95
		8μm	47	◎97
	B	なし	47	◎98
		8μm	47	◎97
		17μm	46	◎97
コート紙	C	8μm	74	○76
	D	8μm	70	○73
	E	8μm	52	△52

図-A.1：海水環境下の生分解性試験結果（ASTM D6691）

土壌・淡水・コンポスト環境下の生分解性は、それぞれ対応するISO規格を用いて評価した。

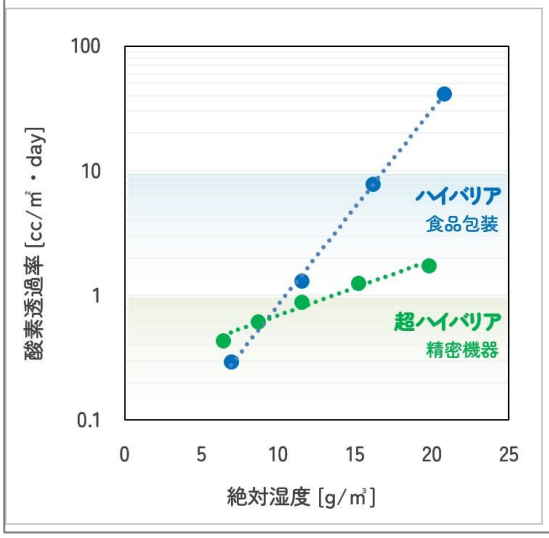
その結果、いずれも海水中と比べて高い生分解性を示すことを明らかにした。海水環境下での生分解が最も難易度が高いため、海水中の生分解性が良好な場合、他の３環境でも良好な確率が高いことを示唆する。

検体			生分解率 [%]				崩壊率
種別	基材	ナノ膜厚	コンポスト 45day	土壌 122day	淡水 28day	海水 28day	[%] 12week
非コート紙	A	8 μm	(◎)	(◎)	(◎)	◎ 97	◎ 99
	B	8 μm	(◎)	(◎)	(◎)	◎ 97	△ 56
コート紙	C	8 μm	○ 88	○ 86	◎ 91	○ 76	○ 81
	D	8 μm	◎ 95	◎ 93	◎ 97	○ 73	○ 86
	E	8 μm	○ 86	○ 81	○ 87	△ 52	◎ 96
			ISO14855-1 58±2℃	ISO17556 20~28℃	ISO14851 20~25℃	ASTMD6691 30±1℃	ASTMD6691 30±1℃

図-A.2：各環境下の生分解性試験結果

ガスバリア性は、酸素透過率のISO規格を参考に、温度15～35℃、相対湿度５～90%RHの範囲で、絶対湿度を変化させたときの影響を評価した。

その結果、一部の食品包装で求められるハイバリアクラス（10cc以下）だけでなく、絶対湿度10g/㎥以下の条件では、精密機器の要求クラス（１cc以下）を達成した。酸素透過率が湿度で変化する原因は、セルロース分子が相互作用する水分量に比例して、分子間距離が拡大するためと考えられる。



温度 [℃]	湿度 [%RH]	湿度 [g/㎥]	酸素透過率 [cc/㎡・day] 平均	n=1	n=2	n=3
25	5	1.2	<0.1	-0.02	0.01	-0.01
	30	6.9	0.3	0.30	0.29	0.30
	50	11.5	1.3	1.29	1.35	1.32
	70	16.1	7.8	7.78	7.88	7.77
	90	20.7	41.7	41.30	41.58	42.14
15	50	6.4	0.4	0.43	0.44	0.44
20		8.7	0.6	0.62	0.63	0.60
25		11.5	0.9	0.90	0.89	0.89
30		15.2	1.3	1.27	1.27	1.22
35		19.8	1.7	1.74	1.74	1.73

図-A.3：CNC紙の酸素透過率と絶対湿度の影響

耐油性と耐水性は、J.TAPPI規格のキット法と実際の食材を用いて、24時間の耐久性を評価した。

その結果、最高値のキット12を達成し、極めて高い耐油性があることを明らかにし、またソースやマヨネーズなどの食品調味料による評価で、十分な耐水性と耐油性をもつことを確認した。

試験液のしみ込みの有無（○なし、×あり）

	キット液No1		キット液No12		ウスターソース		マヨネーズ	
	山折(凸)	谷折(凹)	山折	谷折	山折	谷折	山折	谷折
1時間後	○	○	○	○	○	○	○	○
3時間後	○	○	○	○	○	○	○	○
24時間後	○	○	○	○	○	○	○	○

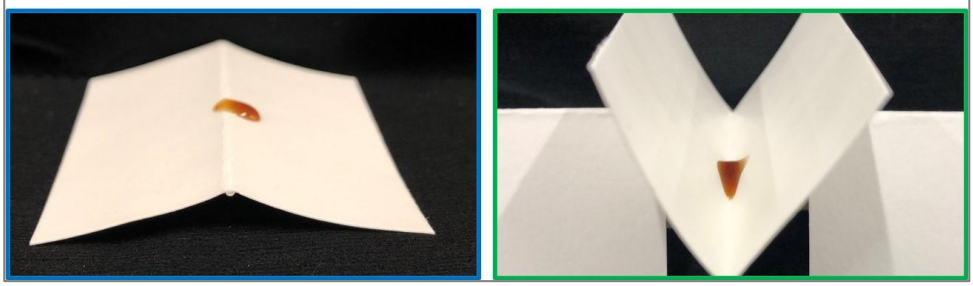


図-A.4：CNC紙の耐油性（キット法）

さらに、ナノ複合液に対する古紙適性について、古紙の有無による生産性と品質特性の差を評価した。

その結果、課題Bで検討された古紙を配合するナノ複合液、課題Cで検討されたナノ複合層のゲル化条件を、上記の連続製造技術を適用することで、当事業で排出するパルプ100%からなる古紙をマテリアルリサイクルした、CNC紙の連続生産が可能であることを明らかにした。

得られたリサイクルCNC紙の品質は、古紙配合率５%以下のとき、実用レベルで連続生産ができ、また酸素バリア性や耐油性などの特性は、古紙配合の有無によらず同等の性能をもった。

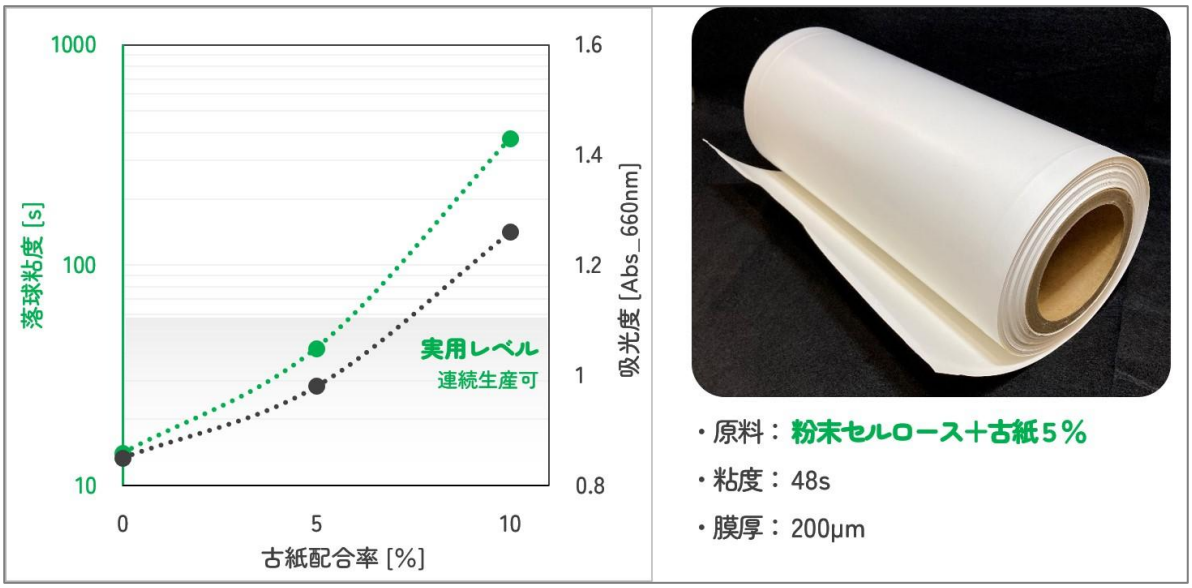


図-A.5：古紙配合率と落球粘度の関係と試作した古紙配合のリサイクルCNC紙

以上のことから、実績用途の異なる８種類の紙基材で、生産条件を適切に制御することで、品質不良のないCNC紙の連続製造技術を確立した。得られたCNC紙の特性は、既存のプラスチック製品と同等以上の実用性（酸素バリア性、耐油性）をもち、かつ土壌・淡水・海水・コンポストのいずれの環境でも良好に生分解性することを証明した。さらに、パルプ100%からなる古紙をマテリアルリサイクルしたCNC紙の連続生産が可能であることを明らかにした。リサイクルCNC紙の品質は、古紙配合率５%以下のとき、実用レベルで連続生産ができ、また酸素バリア性や耐油性などの特性は、古紙配合の有無によらず同等の性能をもった。

5．研究目標の達成状況

課題Ａ・目標	目標の達成状況
品質不良のないCNC紙の連続生産の製造技術開発を完了する。	○目標どおりの成果をあげた。 紙基材に必要なアルカリ性ナノ複合液への耐性、不純物除去のための水洗への耐水性、乾燥工程による品質（シワ・カール・収縮）を検討した結果、坪量や実績用途の異なる８種類の紙基材で、生産条件を適切に制御することで、品質不良のないCNC紙の連続製造技術を確立した。
CNC紙が検証可能な環境中で良好な生分解性をもつことを証明する。本計画（2020年３月）時点で、検証可能かつ最終製品で認証が必要な環境は、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境がある。	◎目標を上回る成果をあげた。 ISOおよびASTM規格による認証制度を利用し、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境での生分解性を検証した結果、いずれの環境下でも、規定の試験時間よりも極めて短期間のうちに良好な生分解性を示すCNC紙が得られた（p18 図-A.1、p19 図-A.2）。
既存のプラスチック製品を代替するための要求特性を、実用同等以上とする。	◎目標を上回る成果をあげた。 酸素バリア性は、一部の食品包装で求められるハイバリアクラス（10cc以下）だけでなく、絶対湿度10g/㎥以下（25℃、50%RH相当）の条件では、精密機器の要求クラス（1cc以下）を達成した（p19 図-A.3）。また食品包装や産業資材で求められる耐油性は、キット法（J.TAPPI）の最高値12を達成し、極めて高い耐油性をもつことを証明した（p20 図-A.4）。
マテリアルリサイクル性（ナノ複合液に対する古紙などの適性）を評価する。古紙はたとえば、新聞などの紙や牛乳パックなどの紙パック、その他のセルロース系再生資源全般を指し、特に制限しない。具体的には、課題Ｂで検討された古紙などの再生資源を配合するナノ複合液を用いてCNC紙を試作し、標準とするCNC紙と品質や特性を比較する。	○目標どおりの成果をあげた。 課題Ｂで検討された古紙を配合するナノ複合液と、課題Ｃで検討されたナノ複合層のゲル化条件を、上記の連続製造技術を適用することで、当事業で排出するパルプ100%からなる古紙をマテリアルリサイクルした、CNC紙の連続生産が可能であることを明らかにした。 得られたリサイクルCNC紙の品質は、古紙配合率５%以下のとき、実用レベルで連続生産ができ（p20 図-A.5）、また酸素バリア性や耐油性などの特性は、古紙配合の有無によらず同等の性能をもった。

6．引用文献

・A. Okugawa, Y. Yuguchi, D. Hayakawa, F. Ueno, K Hatai, C. Yamane. (2023)
“Oxygen permeability of regenerated cellulose films with different water regains”.
Carbohydrate Polymers, volume 313, Article 120847.

Ⅱ－２　課題Ｂ：ナノ複合液の最適化

神戸女子大学
　家政学部　教授　　山根　千弘（リーダー）

オーミケンシ株式会社
　環境素材事業本部　開発部　担当部長　　畑井　幸二
　環境素材事業本部　開発部　社員　　上野　文也

［要旨］

１．研究開発目的

セルロースナノファイバーコンポジットに求められる特性を達成するためには、ナノセルロース複合層の構造制御が不可欠である。例えば、ガスバリア性や耐油性を高めるための面方向の緻密さ、成形性を高めるための強度やしなやかさは、原料のセルロース材料の種類や、これらナノセルロースの複合条件により決定される。そこで本課題Ｂでは、要求特性を達成するためのナノ複合液の溶解条件の最適化を目的とする。

２．研究目標

CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合液の溶解条件を最適化する。

ナノ複合液のゲル化層がCNCの機能を決定する。
また、このナノ複合液を課題ＡおよびＣに提供し、フィードバックされた評価結果から、ナノ複合液（条件）を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。

３．研究開発内容

課題Ａの要求特性を達成するため、ナノ複合液の調製条件を検討した。また、課題Ａで求められるナノ複合液の塗工性と連続生産における安定性を検討した。また、このナノ複合液を課題ＡおよびＣに提供し、フィードバックされた評価結果から、ナノ複合条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化した。

４．結果及び考察

溶解させるセルロース材料は、製法や重合度の異なる木材由来パルプ検討した。

その結果、原料選定が適切なとき、課題Ａで要求される良好な塗工性と、連続生産性を達成可能なナノ複合液になることを見出した。

古紙のナノ複合液へのマテリアルリサイクル性は、食品の一次容器で求められる安全性の観点から、禁忌物を含まず、品質劣化のないパルプを利用することが、最低限求められる適性であることがわかった。その点から、古紙適性の有無は、製造工場で使用されなかった紙パックの損紙や、一般回収された紙パック、本事業で排出されるパルプ100%からなる紙基材が望ましい。

分類	食品用	品種	主な由来/禁忌物
一般回収 工場損紙	○	—	紙パック(工場ロス)
	○	—	紙パック(家庭ゴミ)
	×	—	蛍光染料
	×	—	着色物
	×	—	異物多数
自社損紙	○	クラフト紙	パルプ100%
	○	コップ紙	パルプ100%
	×	紙器用紙	古紙パルプ70%

図-B.1：古紙の分類と食品包材での使用可否

このうち、クラフト紙由来の古紙を原料として、粉砕処理したものを用いて、ナノ複合液への古紙配合率を検討した。

その結果、古紙配合率５%以下、落球粘度50s以下のとき、課題Ａで求められる連続生産性を満たすナノ複合液となることを明らかにした。

５．研究目標の達成状況

課題Ｂ・目標	目標の達成状況
CNC紙と製品の要求特性を達成するナノ複合液の溶解条件の最適化を検討し、課題ＡおよびＣに提供する。	◎目標を上回る成果をあげた。 原料選定が適切なとき、課題Ａで要求される良好な塗工性と、連続生産性を達成可能なナノ複合液になることを見出した。
マテリアルリサイクル性（ナノ複合液に対する古紙原料の適性）を評価する。古紙はたとえば、新聞や牛乳パックなどの再生資源全般を指し、特に制限しない。具体的には、セルロース再生資源を配合するナノ複合液を試作し、課題Ａに提供する。	○目標どおりの成果をあげた。 食品の一次容器で求められる安全性の観点から、調査の結果、古紙のうち禁忌物を含まず、品質劣化のないパルプを利用することが、最もよい複合条件であることを明らかにした（p24 図-B.1）。具体的には、当事業で排出するパルプ100%からなる古紙を、ナノ複合液に対して５%以下の配合率で複合することで、課題Ａで要求される連続生産性を達成可能であることを見出した（p20 図-A.5）。

６．引用文献

・H. Miyamoto, Y. Yuguchi, D. M. Rein, Y. Cohen, K.Ueda and C. Yamane. (2016).
“Structure of cellulose/direct dye complex regenerated from supercritical water”.
Cellulose, 23 (3), 2099-2115.

・C. Yamane, R. Hirase, S. Kuwamoto and Y. Yuguchi. (2015).
“Mechanism of structure formation and dissolution of regenerated cellulose from cellulose/aqueous sodium hydroxide solution and formation of molecular sheets deduced from the mechanism”.
Cellulose, 22 (5), 2971-2982.

・C. Yamane. (2015).
“Structure formation of regenerated cellulose from its solution and resultant features of high wettability”.
Nordic Pulp & Paper Research Journal, 30 (1), 78-91.

Ⅱ－３　課題Ｃ：ナノ複合層のゲル化条件の最適化

京都大学
生存圏研究所　教授　　矢野　浩之（リーダー）（2023年１月～）
生存圏研究所　准教授　　阿部賢太郎（リーダー）（～2023年１月）

［要旨］

１．研究開発目的

セルロースナノファイバーコンポジットに求められる特性を達成するためには、ナノセルロース複合層の構造制御が不可欠である。例えば、ガスバリア性や耐油性を高めるための面方向の緻密さ、成形性を高めるための強度やしなやかさは、原料のセルロース材料の種類や、これらナノセルロースの複合条件により決定される。そこで本課題Ｃでは、要求特性を達成するためのナノ複合層のゲル化条件の最適化を目的とする。

２．研究目標

CNC製品（紙）の要求特性を満たすナノ複合層のゲル化条件を最適化する。

課題Ｂで検討されたナノ複合液を用いて、再生工程でのゲル化（再生）とその後の不純物の洗浄条件を検討する。

また、このナノ複合層のゲル化条件を課題に提供し、課題Ａからフィードバックされた評価結果から、ゲル化条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化する。

３．研究開発内容

課題Ａの要求特性を達成するため、課題Ｂで検討されたナノ複合液からナノ複合膜を形成する条件と、ナノ複合液に含まれる不純物の除去方法を検討した。このナノ複合層のゲル化条件を課題Ａに提供し、課題Ａからフィードバックされた評価結果から、ゲル化条件を再検討し、要求特性を達成する条件を最適化した。

４．結果及び考察

ナノ複合層を形成させるための条件を検討した結果、用いる溶媒の種類や濃度、および接触方法に関わらず、10秒以内の短時間のうちに完了することを確認した。また溶媒の濃度がナノ複合層の形成に与える影響はごくわずかであった。

不純物の洗浄条件は、特に食品の一次容器で求められるpHの中性化と、中和塩の除去方法を検討した。洗浄液には、飲用に適した上水を用いて検討した。

その結果、洗浄時間が45秒以上でpHが8以下と中性になり、不純物の濃度が0.1%以下まで減少することを確認した。また洗浄時間が３分以上のとき、紙基材の耐水強度に応じて引張強度が低下し、R2Rプロセスでの連続生産性を低下させるフィードバックを得た。

これらの条件を満たすことで、均質に再生されたナノ複合膜が得られ、課題Ａで要求される連続生産性と品質基準を達成可能であることを見出した。またこの方法は、古紙が配合されたナノ複合液であっても、また紙基材の特性が異なる場合でもそのまま適用可能で、幅広い要求を満たすことを明らかにした。

5．研究目標の達成状況

課題Ｃ・目標	目標の達成状況
CNC紙と製品の要求特性を達成するナノ複合層のゲル化条件の最適化を検討する。具体的には、課題Ｂで検討されたナノ複合液を用いて、再生工程でのゲル化（再生）とその後の不純物の洗浄条件を検討し、課題Ａに提供する。	◎目標を上回る成果をあげた。 ナノ複合層の形成条件は、用いる溶媒の種類や濃度、および接触方法に関わらず、10秒以内の短時間のうちに完了することを確認した。また溶媒の濃度がナノ複合層の形成に与える影響はごくわずかであった。 不純物の洗浄条件は、特に食品の一次容器で求められるpHの中性化と、中和塩の除去方法を検討し、上水中に一定時間以上投入することで、課題Ａで要求される品質基準（pH中性と中和塩の検出濃度）を達成可能であることを見出した。 また、上記の方法は、セルロース原料が古紙であっても、また紙基材の特性が異なる場合でもそのまま適用可能で、幅広い要求を満たすことができる。

6．引用文献

・Abe K. (2018).
“Novel fabrication of high-modulus cellulose-based films by nanofibrillation under alkaline condition”.
Carbohydrate Polymers, 205, 488-491.

・Abe K, Yano H. (2012).
“Cellulose nanofiber-based hydrogels with high mechanical strength”.
Cellulose, 19 (6), 1907-1912.

・Abe K, Yano H. (2011).
“Formation of hydrogels from cellulose nanofibers”.
Carbohydrate Polymers, 85 (4), 733-737.

・Abe K, Iwamoto S, Yano H. (2007).
“Obtaining cellulose nanofibers with a uniform width of 15 nm from wood”.
Biomacromolecules, 8 (10), 3276-3278.

Ⅱ－４　課題Ｄ：セルロースナノファイバーコンポジット製品の試作評価

オーミケンシ株式会社
環境素材事業本部　加古川工場　応用技術室　室長　　徳田　宏　（リーダー）
環境素材事業本部　開発部　担当部長　　畑井　幸二
環境素材事業本部　開発部　社員　　上野　文也

［要旨］

１．研究開発目的

セルロースナノファイバーコンポジット製品の実用化を達成するためには、業界の商習慣に合わせた製品形態で取引可能であること、原料とするセルロースナノファイバーコンポジット紙の特性を引き継ぎながら、生分解しない原料を一切使用せずに、コスト競争力に優れた製造方法であることが不可欠である。例えば、ヒートシール用のポリエチレンやアクリル樹脂などプラスチックの接着剤を一切使用せずに成形する方法が求められる。そこで本課題Ｄでは、要求特性を達成するセルロースナノファイバーコンポジット製品の成形方法と使用用途を、研究協力先である企業と連携して試作し、その特性を評価することを目的とする。

２．研究目標

実用性を証明したCNC製品の試作を完了する。

実用性とは、既存のプラスチック製品への要求特性が実用同等以上であること、土壌・淡水・海水のいずれの環境でも良好に生分解性することの両立を指す。

CNC製品とは、特にワンウェイ製品に由来する海洋プラスチックごみ問題の解決を目的とした、CNC紙を原料とするプラスチック代替製品を指す。

具体的には、課題Ａで得た CNC 紙を用いて、協力企業で最終製品相当の試作品を成形すること、その試作製品の要求特性を評価すること、さらにこれら検討の繰り返しで、課題Ａで証明する CNC 紙相当の良好な生分解性を維持させたまま、要求特性を実用同等以上まで向上させる。

３．研究開発内容

最終製品の要求特性を達成するセルロースナノファイバーコンポジット製品を試作するための研究協力先である企業の選定と、試作した製品の特性を評価した。具体的には、紙・紙器・その他の包装容器を製造販売するメーカーと、そのメーカーやユーザーと取引のある商社を調査し、連携内容に合意を得た企業でセルロースナノファイバーコンポジット製品を試作した。また得られた試作品の特性を、その試作品で想定される用途に合わせて評価した。

さらに、セルロースナノファイバーコンポジットを古紙の原材料とした、マテリアルリサイクルの可能性を検討した。

４．結果及び考察

紙・紙器・その他の包装容器を製造販売するメーカーと、そのメーカーやユーザーと取引のある商社を調査した結果、計12社で連携内容に合意を得ることができた。

これらの連携企業のうち、使用が想定できる最終製品のとして、プラスチックを使用しない２種類の成形方法で、３種類のトレー試作品を得た。

特に達成が困難だった課題として、特に国内の食品包装容器に求められる高い密閉性を、プラスチックを使用せずに成形する技術が極めて少ないことが挙げられる。高い密閉性と生産性を両立するために、一般的にはヒートシールと呼ばれる、ポリエチレンなど低融点の熱可塑性樹脂を用いて、ピンポイントで接着させることを前提とする包装容器がシェアの大半を占めている。本研究のように、紙素材だけで容器成形を達成しようとする試みは、国内ユーザーの要求を満たす手段が極めて少なかった。一方で、欧米では澱粉のりなど生分解性をもつ接着剤を活用した簡易包装を利用するユーザーやその製造方法の採用が進んでおり、日本国内と欧米での企業の環境に対する取り組みの差が確認できた。

結果的に、紙素材だけで容器成形を達成する方法として、深絞りトレー（金型で熱圧成形する方法）と、テーパートレー（折って立体に成形する方法）の２種類の方法で、市販の冷凍食品容器やテイクアウト容器と同型同等の試作品が得られ、CNC紙が食品用紙器としてのCNC製品に成形できることを証明できた。

得られたCNC製品の特性は、冷凍食品用容器で特に求められる、耐冷凍性・耐熱性・耐油性・耐久性の４項目で評価した。

その結果、いずれも既存のプラスチック製品と同等以上の性能を示した。既存のプラスチック製品では、レンジ調理で求められる耐熱性を達成するために、高融点かつ変形の少ない素材を選択することが求められるが、融点を示さないセルロース（紙）製品の場合、レンジ調理だけでなく、一定程度のオーブン調理も可能であり、プラスチック製品と比べて優れた特性をもつことも確認できた。

図-D.1：チルド・冷凍食品による特性評価

生分解性は、それぞれ対応するISOまたはASTM規格を用いて評価を予定したが、各規格で用いる検体はいずれも粉末状に粉砕されることから、CNC紙以外の原材料を使用しない場合は、評価結果に影響を与えないものとして解釈されたことから、CNC紙と同じく良好な生分解性をもつこととした。

CNC製品のマテリアルリサイクル性は、モールド成形により従来どおりの製造方法で、従来品としてポリエチレンで流通する園芸用の育苗ポットの試作品が得られることを確認し、さらにその高い生分解性により鉢上げ作業（苗の生長に合わせて植え替える）を不要にでき、また廃棄物を発生させないことから、モールド用原料としてプラスチック製品の上位互換品としてアップサイクルが可能であることを証明できた。

5．研究目標の達成状況

課題D・目標	目標の達成状況
プラスチック製品の要求特性が実用同等以上である、CNC製品の試作を完了する。	○目標どおりの成果をあげた。 食品容器用の紙器成形方法のうち、接着剤や熱可塑性プラスチックを用いない方法として、深絞りトレー（金型で熱圧成形）とテーパートレー（折って立体に成形）の２種類で試作品を得た。深絞りトレーとテーパートレーで、市販品と同型同等の試作品が得られた。CNC紙が食品容器用紙器のCNC製品に成形できることを証明した。 既存の冷凍食品用容器の要求特性として、耐冷凍性・耐熱性（レンジ調理）・耐油性・耐久性が挙げられる。市販のたこ焼（チルド）とハンバーグ（冷凍）をCNCのテーパートレーに移し替えて、24時間保存による耐冷凍性、指定のレンジ調理による耐熱性と耐油性、食後までの耐久性を評価結果、いずれも良好で、既存のプラスチック製品と同等以上の特性をもつことを証明した（p30 図-D.1）。
CNC製品が検証可能な環境中で良好な生分解性をもつことを証明する。本計画（2020年３月）時点で、検証可能かつ最終製品で認証が必要な環境は、土壌・淡水・海水・コンポストの４環境がある。	◎目標を上回る成果をあげた。 ISOおよびASTM規格の試験方法で、試作したCNC製品の製法が、原材料のCNC紙と成分や特性を変化させず、CNC紙単体での評価結果をそのまま利用可能なため、課題Ａの成果で示されたとおり、４環境ともに良好な生分解性をもつことを証明したといえる（p18 図-A.1、p19 図-A.2）。
マテリアルリサイクル性（CNC製品の古紙リサイクル適性）を評価する。古紙の分類はたとえば、容器包装リサイクル法で定義された紙などがある。具体的には、CNC製品を紙として廃棄できるか、自治体などと協議する。	◎目標を上回る成果をあげた。 モールド成形により育苗ポットを試作した結果、従来どおりの製造方法で目的の試作品が得られた。 回収されたCNC紙または製品のマテリアルリサイクル性は、モールド用原料として育苗ポットなどのプラスチック製品の代替製品にアップサイクルが可能であることを証明した。 なお、自治体からの聞き取りの結果、紙として廃棄可能かは、指定する各回収業者のリサイクル技術によるため、自治体（兵庫県加古川市）として判断できない、との回答であった。

6．引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細

（1）誌上発表

特に記載すべき事項はない。

＜査読付き論文に準ずる成果発表＞

特に記載すべき事項はない。

＜その他誌上発表（査読なし）＞

特に記載すべき事項はない。

（2）口頭発表（学会等）

特に記載すべき事項はない。

（3）「国民との科学・技術対話」の実施

課題Ａ・Ｄ共通（CNC紙およびCNC製品の社会実装について）

1）オーミケンシ株式会社　ホームページ掲載（2021年３月29日）
「海洋プラスチックごみ問題に対する環境研究総合推進費の取り組み」

2）オーミケンシ株式会社　ホームページ掲載（2022年３月31日）
「海洋プラスチックごみ問題に対する環境研究総合推進費の取り組み」

3）東京ビッグサイト（2022年12月７～９日）
「エコプロ2022」（ブース来場者　約1,200名）

（4）マスコミ等への公表・報道等

課題Ａ・Ｄ共通（CNC紙およびCNC製品の社会実装について）

1）化学工業日報（2022年６月７日、全国版）
「100％セルロース複合材　事業化へ」

2）someone（2023年３月１日、2023春号vol.62、13頁）
FOCUS　ヒトモノギジュツ「紙の中の「隠れプラスチック」をなくしたい」

（5）本研究費の研究成果による受賞

特に記載すべき事項はない。

（6）その他の成果発表

特に記載すべき事項はない。

Ⅳ．英文Abstract

Developmentof Cellulose Nanofiber Composite for Commercial Use

Principal Investigator:
Ko TOKUDA
Institution:
4-1-1, Minamihonmachi, Chuo-ku, OSAKA, 541-8541, JAPAN
Tel: +81-6-6205-7300 / Fax: +81-6-6205-7313
E-mail: tokuda-kou@omikenshi.co.jp
Cooperated by:
Kobe Women's University, Kyoto University

[Abstract]

Key Words:
Cellulose, Nanofibers, Paper, Biodegradable in the seawater, Recyclability,
Marine plastic waste, Alternative material innovation, De-plasticize, De-carbonize

To solve marine pollution caused by marine plastic waste, especially as a substitute for disposable plastic products and paper products composited with plastic lamination, we have developed a "cellulose nanofiber composite (CNC)" that is made of 100% cellulose, biodegradable in seawater, recyclable, and practical. The following requirements for social implementation have been attained.

1) Established a technology for continuous production of various CNC paper rolls for different uses.
2) Good biodegradability was demonstrated under ISO and ASTM test environments of compost, soil, fresh water, and seawater.
3) Demonstrated good oxygen barrier property, oil resistance, and heat resistance required for food container packaging.
4) 5% recycled pulp could be utilized in the nano-composite layer.
5) Prototype CNC food containers were produced using only CNC paper rolls as raw material.
6) The properties of the CNC food container showed the heat resistance and durability required for frozen food containers.
7) CNC food containers could be upcycled into seedling pots for horticulture.

[References]

None