

論文名：液化木材を基材としたポリウレタンの合成とその応用に関する研究

生産科学研究科物質科学専攻

市瀬 英明

近年、農林水産資源、有機性廃棄物などの生物由来の有機性資源であるバイオマスを、エネルギーやマテリアルとして総合的に活用し、持続的に発展可能な社会を実現しようとする機運が高まりつつある。しかし、バイオマスの活用は必ずしも十分に進んでいる状況とは言えない。特に、木質系バイオマスについては、間伐材・被害木などの林地残材、また建設発生木材の利用率は依然として低調な状況にある。このようななかで、木材の液化技術、さらにはその液化物を基材とした樹脂の合成技術の開発は、木質系バイオマスの有効活用策として期待されている。これまでも、木材の液化、さらには得られた液化物のポリウレタン（PU）化に関する研究が行われてきた。

しかし、液化木材を基材とする PU の基材となる液化木材の合成条件や、生成 PU の特性へのハードセグメントの構造や含有量の影響については、報告事例が少なく、未だ不明な部分が多い。液化木材を基材とした PU をより広範囲、多用途に応用、普及させるためには、その特性に影響を与える諸因子の影響を明らかにする必要がある。

これらの背景に基づき、本研究では、液化木材の合成条件、液化木材を基材とした PU の性質に及ぼす液化木材の影響、およびハードセグメントの構造やその含有量の影響を明らかにすることを目的とした。さらに、液化木材を基材とした PU の応用として、木質成形体のバインダーとしての適応の可能性を調べた。

第 1 章では、緒論として、バイオマスの利用の現状および既往の研究を概説し、問題点をあきらかにし、本研究の目的を述べた。

第 2 章では、木材の液化条件と得られた液化木材の性質の反応条件の依存性について調べた。具体的には、ヒノキ間伐屑を硫酸触媒下にてポリ(オキシエチレン)グリコール (PEG 数平均分子量 400) による加溶媒分解を行った。その結果、液化木材の水酸基価は、液化反応時間の経過とともに低下し、その一方で、粘度、分子量、および分子量分布は、液化反応時間の経過とともに増大することを明らかにし、その機構を考察した。

第 3 章では、合成した液化木材を基材としたポリウレタンの物性と液化木材の液化合成条件との関係を検討した。イソシアナートには、芳香族イソシアナートであるポリメリック MDI(pMDI)と、

直鎖脂肪族イソシアナートであるヘキサメチレンジイソシアナート(HDI)を用い、特性の比較をも行った。液化木材を基材とする PU のガラス転移温度 (T_g) は、基材とした液化木材の液化反応時間が長くなるにつれて、pMDI 系 PU、HDI 系 PU とともに低下する傾向にあった。引張特性は、pMDI 系 PU、HDI 系 PU とともに液化木材の液化反応時間が長くなるにつれて、引張強さ、伸びが低下する傾向を示した。これは液化木材の分子量の増加、水酸基価の低下から、得られる液化木材の化学構造の変化に起因していると考察し、液化木材ポリウレタンの設計条件を提案した。

第 4 章では、液化木材ポリウレタンの物性改良を目的とし、力学物性へのハードセグメントの構造とその含有量の及ぼす影響について検討した。イソシアナートとしては、第 3 章と同じく、pMDI と HDI を用い、特性の比較を行った。pMDI 系、HDI 系のいずれの PU もハードセグメントの増加とともに、ゲル分率は上昇し、膨潤度は低下することが明らかになった。pMDI 系、HDI 系のいずれの PU においても T_g および $\tan \delta$ の α 緩和ピーク温度 (T_a) はハードセグメントの増加とともに高温側に移動したが、その程度は pMDI 系で大きく、HDI 系ではわずかであった。pMDI 系 PU では、分子鎖の 3 次元化により促進される架橋密度の向上、およびハードセグメントのウレタン基とソフトセグメントの水素結合の形成に起因するソフトセグメント鎖のミクロブラウン運動の抑制が影響していると考察した。一方、HDI 系 PU では、HDI が 2 官能性であり架橋点の導入が少ないことに加えて、生成するハードセグメントが結晶性であり、ハードセグメント間での凝集に起因するミクロ相分離構造を取りやすいことによる影響が大きいと考察した。ハードセグメントの導入により、物性が改善されることを明らかにした。

第 5 章では、液化木材を基材とした PU を接着剤とし、建設発生木材のリサイクルチップを骨材とした木質ボードを調製し、実用の可能性について調べた。液化木材 PU の接着剤の基材とした木質ボードは、PEG400 を基材とした PU 接着剤による木質ボードよりも曲げ強さは低かった。しかし、成形密度に応じて、JIS A5908 規格のいずれかのタイプに適応し得ることが明らかになった。木質ボードの吸水厚さ膨張率は、その基材の液化反応時間によらないことがわかったが、いずれの木質ボードも、JIS A5908 の規格を満足するものではなかった。

第 6 章では、本研究の総括を行うとともに、今後の展望について述べた。