

[別紙2]

論文審査の結果の要旨

申請者氏名 栗本 康司

常圧で酸触媒存在下に多価アルコールを用いる木材液化は、木材はほぼ全ての成分を化学原料に転換するための一手法である。この液化法は、150度程度の温度で木材を加溶媒分解するため液化反応中の成分損失がなく、木材成分のほとんどを液化物として得られ樹脂原料として利用でき、発泡体や接着剤が試作されている。既往の研究では、特定の樹種やセルロースを試料に液化条件や反応メカニズムを知るための検討が行われているが、液化木材から調製したポリウレタン(PU)の性質についての検討は皆無である。PUの機械的特性、物理化学的特性などに関する基礎的知見の欠如は、液化技術の実用化を阻む一因となっている。

本研究では木質系廃材の液化技術の実用化を目的とし、針葉樹や広葉樹の混在した木材に対して同一の処理を施して液化できるような最適液化条件と溶媒の検討を行い、得られた液化木材を化学量論的に取り扱うことによってPUフィルムを調製し、[イソシアネート基]/[水酸基] ($[NCO]/[OH]$) 比、木質濃度、原料となる樹種の各条件が、フィルムの架橋構造、機械的特性、熱的特性、湿熱劣化性などの基礎的性質におよぼす影響を検討した結果を取りまとめている。

第1章では、木材を始めとするバイオマス資源を化学原料に転換して利用することの意義と現在までの木材の液化手法の変遷について論じている。

第2章では、針葉樹材4種と広葉樹材3種を用い、すべての樹種に対して高い液化率と安定した水酸基値を与える液化条件を明らかにしている。液化溶媒としてポリエチレンリコール(PEG #400)のみを用いた従来の液化では反応中にすべての樹種で縮合反応が起り液化率を高めることができなかった。一方、PEG #400にグリセリンを混入した場合、縮合が抑制され液化率の向上が認められた。グリセリン濃度を検討した結果、10%のグリセリンを含む混合溶媒が最も優れていることが見出された。

第3章では、木質濃度の異なった液化木材からPUフィルムを調製し、架橋構造の形成過程をFT-IRスペクトルの変化から追跡するとともに、機械的特性と $[NCO]/[OH]$ 比あるいは木質濃度との関係を議論している。分光分析の結果、液化木材とイソシアネートが反応して架橋構造を形成することが確認された。さらにフィルムの機械的特性は、 $[NCO]/[OH]$ 比あるいは木質濃度を変えることで調整できることが明らかとなった。

この結果はたとえポリオール原料が天然物に由来するものであっても化学量論的な取り扱いができる資源であることを示したものである。

第4章では、DMF溶媒中におけるPUフィルムの膨潤量や重量減少を測定することによって架橋密度と未架橋成分重量を定量化するとともに、フィルムの熱的性質を評価している。この結果、フィルムの架橋密度は、機械的特性と同様に $[NCO]/[OH]$ 比あるいは木質濃度を変化させることで制御できることを明らかにした。また、窒素雰囲気下で

の熱重量測定の結果、液化木材から高い耐熱性を持つPUが調整可能であることを明らかにしている。

第5章では、樹種の違いがPUフィルムの機械的特性に及ぼす影響を論じている。フィルムのヤング率、引張り強さおよび伸びは樹種間で有意差があり、高粘度の液化木材を使用するほど硬い性質のフィルムとなることが認めた。しかしながら、機械的特性の樹種依存性を改善するためには、液化木材の粘度を調整することが簡便な方法であることを見出した。

第6章では、PUフィルムの湿熱環境下での重量減少と機械的特性の変化について、液化木材を含まないものと比較対照として議論している。液化木材からのPUフィルムは未架橋成分を含むため暴露中にかなりの重量減少を示すものの、強度低下が木質成分を全く含まないフィルムと比べて小さくなることを認め、総体として液化木材からのPUは高い耐湿熱性を持つことを明らかにしている。

以上、本研究では様々な樹種を原料とした場合の液化条件を確立するとともに、液化木材から調製したPUフィルムの機械的、熱的諸性質を明らかにして液化木材の応用に関する新たな知見を見出している。現在、木質資源の有効利用が問題となっている状況において、本研究で得られた知見は端材などの未利用資源の有効利用だけでなく、防腐処理木材や化学修飾木材などのリサイクルにも応用できるものであり、今後の研究開発にとって大きく寄与することが明らかである。

よって、審査委員一同は本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。