

リグニン誘導体を利用した環境調和型材料の開発 (I)

－リグニン誘導体と木粉の熱圧成形－

齋藤 猛*

Development of Eco-Compatible Materials Utilizing Lignin Derivatives. I .

－ Heat Pressure Molding of Wood Powder with Lignin Derivatives －

by Takeshi SAITO

In order to develop architectural wood materials, composites of wood powder with lignin derivatives were made by heat pressure molding, and the characterizations were examined .

- ・ The bending strength and the modulus of elasticity on various composites rose with rising in temperture under high pressure.
- ・ In particular, the mechanical properties of composite were improved by blending hydroxymethylated lignin derivative.

Key words:lignin derivatives,hydroxymethylated lignin derivative,heat pressur molding

1. はじめに

再生可能な木質資源の有効利用技術の確立は、資源循環型社会を構築する上で重要な課題となっている。そうしたなか、三重大学で開発された「相分離変換システム」¹⁾は、常温常圧にて木質資源中のリグニンを有用なリグニン誘導体として取り出す手法であり、この手法を利用した新材料開発が各所で取り組まれている。

ここでは、リグニン誘導体を利用した建材の開発を目的として、リグニン誘導体をそのままあるいはメチロール化等した後、木粉と混合・熱圧成形することにより複合体を作製し、その力学的強度、吸水率等について検討した。

2. 実験方法

2. 1 リグニン誘導体等の製造

リグニン誘導体：ヒノキ木粉（製材鋸屑，20メッ

シュパス）を原料として、72%硫酸を使用した相分離変換システム（2step法process II，付加フェノール：p-クレゾール）²⁾により製造した。

リグニン誘導体のメチロール化：リグニン誘導体を0.2Nの水酸化ナトリウム水溶液に溶解後、60℃でホルムアルデヒドと反応させる方法を用いた。

リグニン誘導体の機能変換処理（低分子化）：リグニン誘導体を0.5Nの水酸化ナトリウム水溶液に溶解後、140℃で加熱する方法を用いた。

2. 2 リグニン誘導体の特性解析

リグニン誘導体等の各種平均分子量は、テトラヒドロフラン（THF）を溶解液としてGPCにより、また、相転移点については2℃/minの昇温速度でTMAにより測定した。

2. 3 複合体の調製

リグニン誘導体、そのメチロール化物及び機能変換処理による低分子化物（変換体）を各々収着

* リグニン研究グループ

させたヒノキ木粉を直径6cmのステンレス製金型に採り、圧縮温度160～190℃、圧縮圧力10～100MPaで15～45分間プレスにより圧縮して成形複合体を調製し、20℃65%の恒温恒湿室中に静置し養生した。なお、木粉への収着は、リグニン誘導体と変換体はアセトンに、メチロール化物はTHFに溶解後、木粉7gに対してリグニン誘導体1gを混合攪拌、乾燥する方法により行った。

2. 4 複合体の性能試験

各種複合体から、長さ約55mm、幅20mm、厚さ約2mmの試験片を調製し、スパン長さ50mm、荷重速度2mm/minにて曲げ試験を行い、曲げ強さおよび弾性率を求めた。また、試験片を20℃の恒温室内にて3cmの水面下に24時間静置し、吸水率および吸水厚さ膨張率を求めた。

3. 結果と考察

3. 1 リグニン誘導体等の特性

表1にリグニン誘導体とその変換体の平均分子量等を、図1にGPCチャートを示す。リグニン誘

表1. リグニン誘導体等の特性

リグニン誘導体	重量平均分子量 Mw	33060
	数平均分子量 Mn	4884
	分散度 Mw/Mn	6.77
	相転移点	159.9℃
変換体	重量平均分子量 Mw	2355
	数平均分子量 Mn	850
	分散度 Mw/Mn	2.77
	相転移点	138.3℃ 160.1℃

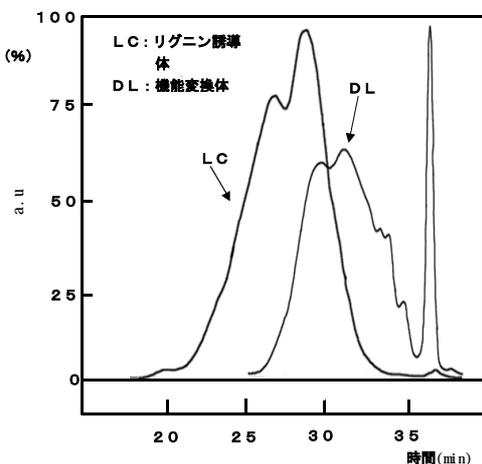


図1. リグニン誘導体とその機能変換体のGPCチャート

導体の重量平均分子量は33060、分散度は6.77で、相転移点は約160℃であった。一方、変換体の重量平均分子量は2355、分散度は2.77で、機能変換処理により分子量が低下(約1/15)し、分散度が低くなっている。また、変換体のGPCチャートには、溶出時間36.6分(分子量250)付近に特徴的なシャープなピークが見られた。

図2にリグニン誘導体とメチロール化物のTMAチャートを示す。両チャートを比較するとリグニン誘導体の160℃付近に見られる相転移点が、メチロール化物では見られず、この原因は、メチロール化によりリグニン誘導体に熱架橋性が付与されたためと考えられる。

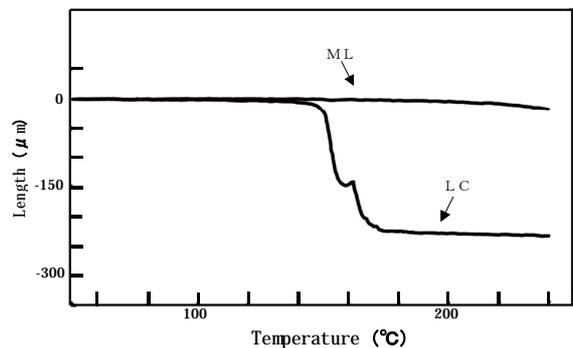


図2. リグニン誘導体とそのメチロール化物のTMAチャート

3. 2 複合体の性能

各種複合体の曲げ強さおよび弾性率を図3および図4に示す。曲げ強さ、弾性率とも各複合体で圧縮温度の上昇とともに上昇した。メチロール化物との複合体(圧縮圧力100MPa)では圧縮温度190℃で曲げ強さ約65MPaと、木粉のみに比較して3倍以上の強度を示し、リグニン誘導体および変換体との複合体では、各々30および20MPaの圧縮圧力(圧縮温度190℃)で約40MPaの曲げ強さ示している。また、リグニン誘導体との複合体では、190℃の圧縮温度では30MPaの圧縮圧力での成形体が最も曲げ強さが高く、それ以上の圧力をかけると曲げ強さが低下する傾向が見られ、これは高温高压による複合体の劣化が原因だと考えられる。なお、変換体との複合体では、圧縮温度190℃・圧縮圧力30MPaのものは成形できなかった。

図5および図6に各種複合体の吸水率および吸

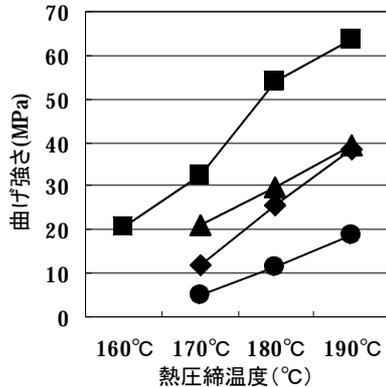


図3. 複合体の曲げ強さ

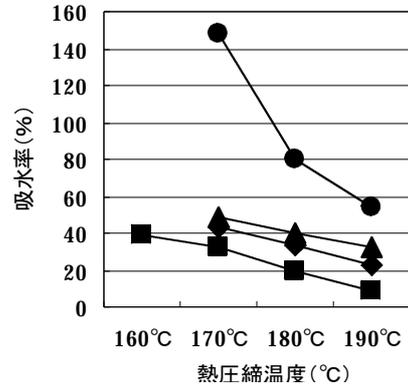


図5. 複合体の吸水率

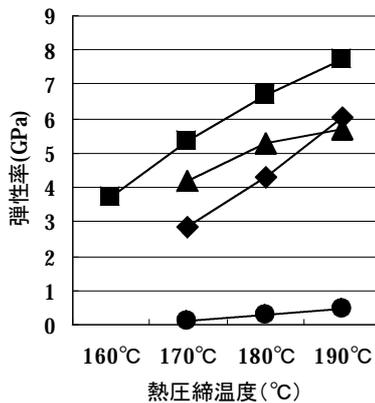


図4. 複合体の弾性率

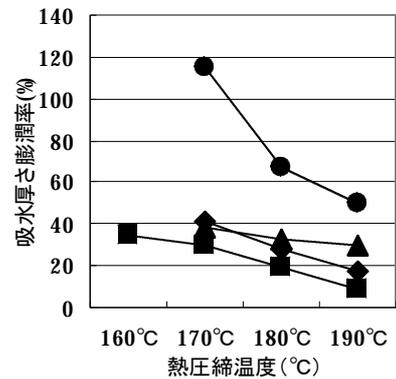
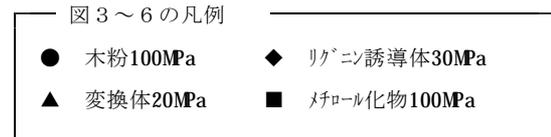


図6. 複合体の吸水厚さ膨潤率



水厚さ膨潤率を示す。吸水率と吸水厚さ膨潤率はどちらも、各複合体で圧縮温度の上昇とともに低下した。中でもメチロール化物との複合体では、190°Cの圧縮温度のもので、吸水率8.3%、吸水厚さ膨潤率8.7%と大変低い値を示した。

なお、各複合体の密度は、それぞれ図中で最も曲げ強さの高かった圧縮温度190°Cのもので、木粉成形体：1.26、変換体複合体：1.27、リグニン誘導体複合体：1.27、メチロール化物複合体：1.31と一般の木質系ボードに比較して高い値となった。

4. まとめ

- (1) 各種複合体の曲げ強さおよび弾性率は、圧縮温度の上昇とともに高くなった。
- (2) 木粉にリグニン誘導体のメチロール化物を混合することにより、その熱圧成形複合体は、力学的強度等の性能が向上した。

本報告の一部は、第52回日本木材学会大会（岐阜大学，岐阜市，H14.4.4）にて発表した。

謝辞

当研究の全般にわたり、種々ご指導を頂いた三重大学生物資源学部の船岡正光教授に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 船岡正光：“天然リグニンからのポリマーの合成”. 高分子加工. 46(3), p29~ 34 (1997)
- 2) 林一哉ほか：“リグニン誘導体の製造”. 三重県科学技術振興センター工業技術総合研究所研究報告. No. 25, p60~62 (2001)