

公益財団法人 萩原 畠山記念文化財団 平成29年度研究助成 成果概要

研究テーマ題目：イオン液体との複合化による熱可塑性セルロースプラスチックスの開発

鹿児島大学理工学域工学系 教授 門川 淳一

セルロースは、グルコースが $\beta(1 \rightarrow 4)$ -グリコシド結合で直鎖状につながった天然多糖であり、自然界に最も豊富に存在する有機資源であるため有効に利用することが望まれている。しかし、セルロースは分子間・分子内での強い水素結合により強固な結晶性を有するため加工性や溶解性に乏しい。そこで、セルロースのヒドロキシ基を置換して誘導体化することで熱可塑性を有する材料が実用化されている¹⁾。また、未置換のセルロースにグリセロールのような可塑剤を添加することで柔軟性を向上させることができるが熱可塑性は発現しない²⁾。一方、イオン液体の塩化1-ブチル-3-メチルイミダゾリウム(BMIMCl)がセルロースを良好に溶解することが報告されており³⁾、既に研究代表者はセルロース/BMIMCl溶液を室温で静置することで簡便にイオングルが得られることを見出している⁴⁾。本研究では、イオングル形成を介して熱可塑性を有する非晶セルロースプラスチックスの創製を目指した。

コットンセルロース(重合度:約2500)にBMIMClを加え、115 °Cで3時間、減圧下で加熱し、セルロース/BMIMCl溶液(5 wt%)を調製した。過去の研究により溶液からのゲル化はBMIMClの吸湿性による水の吸収によって起こることが示唆されている⁴⁾。そこで、より短時間でのゲル化のために得られた溶液を水中に浸漬したところ、効率よくイオングルを形成した。次に、イオングルを60 °Cで24時間加熱し水を留去したところ、セルロース/BMIMCl複合フィルムが得られた。ゲル化の際の水の量を増加させることでセルロースの存在割合のより高いフィルムが得られることが分かった。X線回折測定結果から、フィルム中のセルロースは結晶／非晶の混在であることが示唆された。引張試験の結果からは、良好な引張強度と破断伸び率を示した。つぎに、示差走査熱量(DSC)測定を行ったところ、150 °C付近にもとのセルロースとBMIMClには確認されない吸熱ピークが観測された。そこで、この相転移と考えられる温度以上のフィルムの熱加工実験を行った。両端をクリップで留めたフィルムを180 °Cで10分間加熱後、冷却したところ、フィルムの両端が接着することが分かった。これは、DSC測定の吸熱ピークに対応する相転移温度以上でフィルムが溶融したことによると考えられる。一方、通常の再生セルロースフィルムではこのような加工性は確認されなかった。以上より、本手法により熱可塑性を示すセルロースフィルム(プラスチックス)が得られることが分かり、今後の実用化が期待される。

- 1) E. Doelker, *Adv. Polym. Sci.*, **1993**, 107, 199.
- 2) C. Xiao, Z. Zhang, J. Zhang, Y. Lu, L. Zhang, *J. Appl. Polym. Sci.*, **2003**, 89, 3500.
- 3) R. Swatloski, S. Spear, J. Holbrey, R. Rogers, *J. Am. Chem. Soc.*, **2002**, 124, 4974.
- 4) J. Kadokawa, M. Murakami, Y. Kaneko, *Carbohydr. Res.*, **2008**, 343, 769.