

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：82105

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24248031

研究課題名(和文)次世代型防腐木材実現に向けた木質科学からの包括的アプローチ

研究課題名(英文)Comprehensive approaches from the wood science toward the realization of the next-generation type wood preservation

研究代表者

桃原 郁夫 (Momohara, Ikuo)

国立研究開発法人 森林総合研究所・研究企画科・科長

研究者番号：60222345

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,400,000円

研究成果の概要(和文)：性能が保証された次世代型防腐木材の実現に向け、木質科学からの包括的なアプローチを試みた。木質材料工学、木材乾燥、木材加工、森林化学、微生物科学、木材保存等、木質科学分野からの様々な研究により、乾燥温度やレーザーインサイジングパターンが注入性に与える影響、銅及び塩化ベンザルコニウムの処理木材中での局在性、木材防腐剤と木材腐朽菌との関係、処理木材の耐用年数等を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Comprehensive approaches from the wood science were carried out to develop the next-generation type treated wood whose performances is guaranteed. Researches from wood material technology, wood drying, wood processing, forest chemistry, wood microbiology and wood protection revealed effects of drying temperature and laser incising pattern on preservative penetration, localization of copper and benzalkonium chloride in treated wood, relationship between wood preservatives and wood decaying fungi, and service life of treated wood.

研究分野：木材保存学

キーワード：木材保存 木材乾燥 レーザーインサイジング TOF-SIMS 木材腐朽菌 加速劣化試験

### 1. 研究開始当初の背景

現在生産されている保存処理木材は、建築物や外構材の耐久性を支配する重要な材料であるにも関わらず、薬剤注入時のばらつきが大きく早期に腐朽する場合があることや、使用中の耐久性能低下の予測ができないことから、望まれるレベルでの性能保証に踏み込めず、結果として建築・土木での利用が進まない状況にあった。

### 2. 研究の目的

保存処理木材が置かれたこのような状況に対し、木質材料工学、木材乾燥、木材加工、森林化学、微生物科学、木材保存等、木質科学分野の専門を異にする研究者がそれぞれの専門分野から包括的にアプローチすることで、(1)均質に薬剤が注入された保存処理木材の効率的な製造技術、(2)暴露された保存処理木材中における薬剤成分の挙動、(3)木材腐朽菌等の微生物と保存処理との関係を明らかにし、望まれるレベルでの性能保証を可能とすることを目的に研究を行う。

### 3. 研究の方法

#### (1)均質に薬剤が注入された保存処理木材の効率的製造技術の開発

本研究については、乾燥方法の工夫及びレーザーインサイジングという2つの方向から薬剤注入性の向上を試みた。

乾燥方法の工夫による薬剤注入性の向上については、スギ丸太を異なる温度で乾燥し、その辺材部への薬剤の浸透性を確認するモデル実験を実施した。また、これらの試験体を走査型電子顕微鏡で観察し、壁孔の状態を評価した。

モデル試験で良い結果が得られた条件を元に乾燥に要する時間などを考慮した上で、直径 18cm のスギ円柱材を用いた実大材での検証を行った。減圧環境下においた試験体に高周波を照射する方法で試験体を比較的低温に保ったまま試験体を乾燥させた。その試験体を防腐工場に持ち込み加圧式保存処理により薬剤を注入した。その後試験体を切断し、薬剤の浸潤状況を確認した。

#### (2)暴露された保存処理木材中における薬剤成分の挙動解明

本研究では、モデル試験体を用いて、水が浸入した場合の薬剤の挙動を確認する研究と水の浸入がない場合の薬剤の減少挙動を確認する研究などを実施した。また、木材に注入された有機系木材保存剤の可視化を試みた。これらのモデル試験に加え、実際に野外で使用した実大材を用いて浸潤状況の確認などを行った。

モデル試験は、木材保存剤 CUAZ を注入し養生したスギ辺材試験体を用いて行った。この試験体に含まれる銅を、低真空走査電子顕

微鏡にエネルギー分散型 X 線分光器を組み合わせた装置 (LVSEM-EDXA) で可視化した。その後、試験体を脱イオン水浸漬 2 時間、60 乾燥 4 時間の溶脱サイクルに供した。各溶脱サイクルの後、同一視野の試験体の状態を LVSEM-EDXA で同様に観察した。また、ACQ を注入した試験体についても同様に溶脱時の銅の挙動を観察した。

一方、水の浸入がない場合の薬剤の挙動を確認するため、CUAZ を吸収させたモデル試験体を 20、50、80、相対湿度 65% の環境に暴露する加速劣化試験を行った。暴露した試験体から CUAZ に含まれる殺菌成分であるシプロコナゾールを抽出し、残存量を測定した。

さらに、TOF-SIMS を用いた ACQ に含まれる成分の同時可視化を試みた。

これらのモデル実験に加えて、実際に屋外暴露していた実大の侵入防止杭を用いた研究も行った。この研究では、森林総合研究所 (つくば市) 構内で 10 年間使用した杭を切断し、その切断面における腐朽の進行状況の確認と、切断面に含まれる有効成分の分析を行った。また、インサイジング条件及び薬剤濃度を変えて製造した杭を暴露試験に供するとともに、初期及び暴露経過後の薬剤浸潤状況を確認した。

#### (3)木材腐朽菌等の微生物と保存処理との関係解明

本研究は、森林総合研究所のファンガスセラーに暴露した保存処理小試験及び(2)で使用した屋外暴露した杭に侵入した菌類の解析を実施した。

試験体から木粉を調製し、木粉に含まれる DNA を抽出し、その塩基配列を次世代シーケンサーで決定した。得られた塩基配列を SILVA database で BLAST 検索し、菌種を推定した。

### 4. 研究成果

#### (1)均質に薬剤が注入された保存処理木材の効率的製造技術の開発

乾燥方法の工夫による研究において、辺材部への浸透性を確認するモデル試験の結果を図 1 に示す。この図は、異なる温度で乾燥させたスギ丸太から調製した試験体の一方の木口面から木材保存剤 CUAZ を吸収させた後、木材保存剤を吸収させた面から 5cm 及び 10cm の位置で切断し、その面の浸潤度を測定して得た結果である。この図が示すとおり、乾燥温度が高くなるにつれて、薬剤の浸透性が悪くなる結果となった。

研究担当者らは本研究の申請に先立ち、人工乾燥した円柱材の薬剤浸潤度が天然乾燥材よりも低いという結果を報告していたが、本結果はその結果を裏付けるものであった。

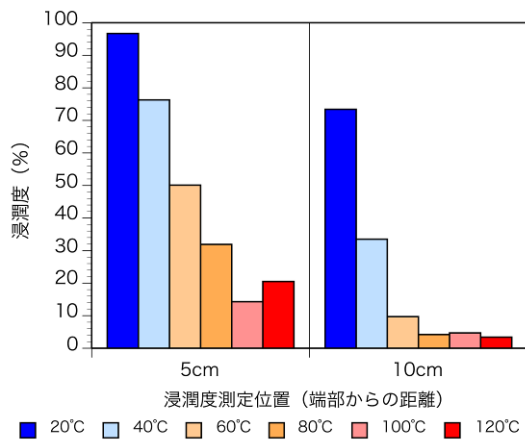


図1 乾燥温度と浸潤度との関係

本試験体の壁孔の状態をSEMで観察した結果を図2に示す。乾燥温度が高くなるに従い閉鎖壁孔の割合が高くなることが確認された。高い温度で人工乾燥した場合、閉鎖壁孔の割合が高まることによって薬剤の浸透性が悪くなることが明らかとなった。本結果を得たことにより、本研究開始時に解明すべきポイントとしていた人工乾燥材の薬剤浸潤度が天然乾燥材よりも低いという研究結果に理論的根拠を与えることができた。

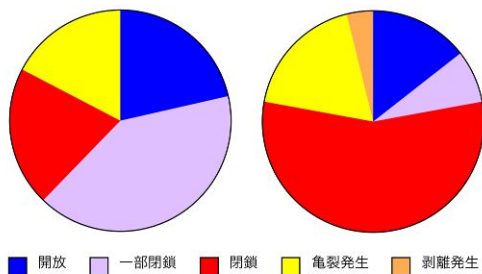
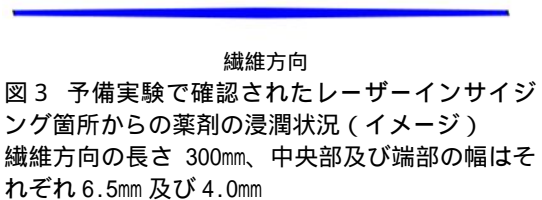


図2 20 及び 80 乾燥した後の壁孔の状態  
左：20 で乾燥した場合、右：80 で乾燥した場合

モデル実験で乾燥温度が低いほど薬剤の浸透性が良くなることが確認できたため、その条件を実大材で再現する実験を行った。ただし乾燥条件については、実際の製造に際して20や40で乾燥すると乾燥期間が長期化するため現実的ではないと考えられたことから、40でも現実的な期間で乾燥できる高周波減圧乾燥により乾燥した。この方法で乾燥した試験体を防腐工場で標準的な薬剤注入条件に従って薬剤を注入したところ、薬剤が最も浸透しにくい試験体中央部において全ての試験体で80%以上の浸潤を得ることはできなかった。本研究では、乾燥方法の改善だけで、JASの基準を満足する保存処理木材を製造する技術は確立できなかった。

一方、レーザーインサイジングによる薬剤注入性の向上については、予備実験によりレーザーインサイジングで刺傷した箇所からの薬剤浸潤が図3に示す中央部の幅が6.5mm、

端部の幅が4mm、中央部から端部までの長さが150mmの六角形を越えて広がることが確認されたことから、円柱材に内接する四角形を想定しその表面をこの六角形で埋めていくインサイジングパターン(図4)と、六角形をずらしながらせん状にインサイジングしていくパターンで実大材にインサイジングし、その効果を確認した。



その結果、円柱材に内接する四角形を想定したパターンに従ってインサイジングした場合及びらせん状にインサイジングした場合のいずれの場合も、適切な密度でインサイジングすることによってJASの基準を満足することが確認できた。

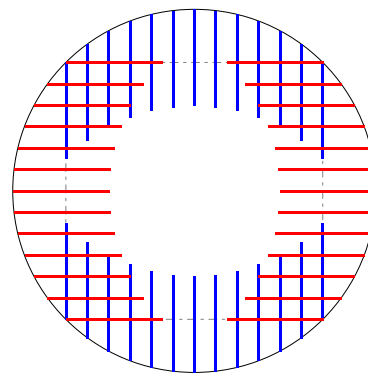


図4 円柱材に内接する四角形を想定したインサイジングの例

## (2) 暴露された保存処理木材中における薬剤有効成分の挙動解明

薬剤CUAZで保存処理した試験体に水が入った際の、薬剤(銅)の挙動を確認した結果を図5に示す。図の中で白色になっている部分ほど銅の濃度が高いことを示す。本研究から、保存処理試験体に最初に水が入りその水が乾く際に、試験体内部にあった固着していない銅が一旦浸入した水とともに試験体表面まで移動することや、水の浸入と乾燥を繰り返す間に、一旦試験体表面まで溶脱してきた銅が表面から失われていくことなどが明らかとなった。

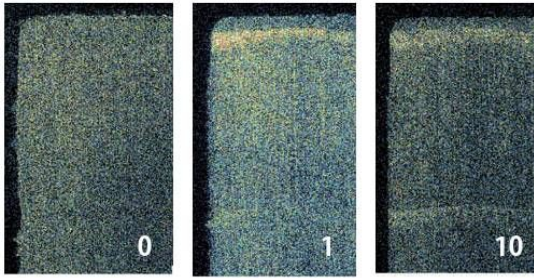


図5 CUAZを注入した試験体表面の銅の分布  
(数字は溶脱回数を示す)

水の出入りが無い環境における薬剤の残存率を測定した結果の例を図6に示す。本実験により、木材中のシプロコナゾールの減少を反応速度論的に示せることを明らかにした。また、この研究に先立ち、木材中のシプロコナゾールをGC/MSで精度良く定量するための手法開発を行い、アナライトプラテクトントにソルビトールを用い、内部標準を添加することにより、固相抽出することなく高精度で定量できることを明らかにした。

これらの成果は、シプロコナゾールの長期耐久性に信頼性を与えるとともに、有機系木材保存剤の長期耐久性を推定する手法の開発につながると思われる。

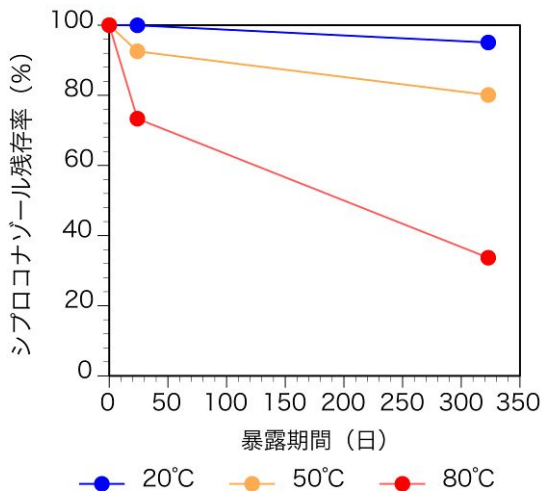


図6 異なる温度に暴露した際のシプロコナゾール残存率

さらに、有機系の木材保存剤有効成分の木材中での分布可視化を試み、TOF-SIMSを用いて観察することで、有機系の木材保存剤であっても可視化できる有効成分があることを明らかにした。その例を図7に示す。

この図は、ACQの有効成分である塩化ベンザルコニウムのうちアルキル鎖がC14の成分を可視化したものである。現在詳細について検討中であるが、本成果により、これまで木材中の挙動が明らかにされていなかった有機系の木材保存剤有効成分であっても、適切な手法を用いることで、木材内における挙動

を可視化できることを示せた。本成果は、今後の有機系木材保存剤及びその有効成分の挙動解明につながる成果となる。

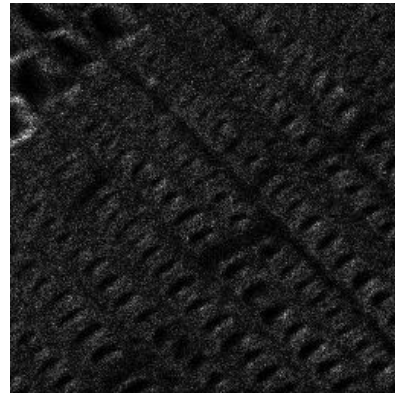


図7 塩化ベンザルコニウム(C14)のスギ辺材中での分布

一方、実際に10年間屋外暴露した実大試験体及び新たに実大材を用いて製造した侵入防止杭を用いて行った実験例を図8、図9に示す。図8左の写真は蛍光X線分析装置で薬剤(銅)の存在を可視化したものである。杭の表面から1cm程度内側に銅の未浸潤部(図8左の黒色部分)が広がっているのが確認できた。また、図8右の写真は、その光学画像であるが、銅の未浸潤部の一部で腐朽が生じていることが確認できた。

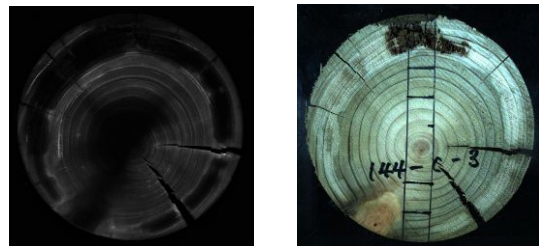


図8 屋外に10年間暴露した杭の地際部の状況  
(左:銅の分布、右:光学像)

図9は侵入防止杭として新たに製造した杭の縦断面の写真である。今回、インサイジング後に薬剤を注入した杭、インサイジングせずに薬剤を注入した杭を製造したが、インサイジングせず注入した場合は、図9の様に表面のごく内側に未浸潤部が生じる場合があることが確認できた。

以上の結果から、侵入防止杭のような円柱材に対して品質保証するためには、インサイジングした後に薬剤を注入することが必要であると思われる。

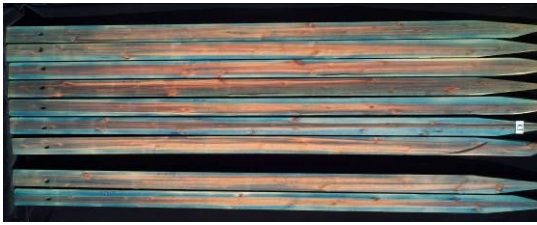


図9 インサイジングせずに薬剤を注入した杭の縦断面

(3)木材腐朽菌等の微生物と保存処理との関係説明

次世代シーケンサーにより決定した ITS 領域の塩基配列の BLAST 検索の結果、ファンガスセラーに暴露した全ての試験体に真菌類が侵入していたことが明らかとなった。薬剤の種類と真菌類の種類との関係を解析した結果、担子菌類の群集構造が木材保存剤の種類によって大きく変わらなかったのに対し、子の菌類の群集構造は銅を含む木材保存剤で処理した試験体と銅を含まない木材保存剤とで大きく異なることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

桃原郁夫: 木材腐朽のメカニズムとその防止. 木材保存, 42, 132-137 (2016) (査読無し)

Sakagami H, Tokunaga A, Fujimoto N, Koga S, Kobayashi I, Momohara I: Effects of drying temperature for *Cryptomeria japonica* on the permeability of wood preservative. I: The permeability of dried logs. BioRes (2016) 11, 4781-4793 (査読有り)

Momohara I, Ohmura W: Quantitative determination of cyproconazole, as a wood preservative, by gas chromatography-mass spectrometry analysis: matrix effect observed in determining cyproconazole and efficacy of adding analyte protectant. J Wood Sci (2014) 60:80-85 (査読有り)

松永浩史, 松村順司, 桃原郁夫: LVSEM-EDX を用いた CUAZ 処理材における銅の溶脱過程の可視化. 木材保存 (2014) 39, 86 - 90 (査読有り)

[学会発表](計10件)

中田裕治、佐々木貴信、梅澤究、吉田誠、大村和香子、桃原郁夫: 異なる薬剤で処理された木質材料に由来する腐朽材の菌叢解析.

日本木材学会大会研究発表要旨集(完全版)(CD-ROM), 66, ROMBUNNO.N28-P-03 (2016.03, 愛知県・名古屋市)

西嶋瞭、藤本登留、阪上宏樹、中尾哲也、桃原郁夫: 乾燥湿度および減圧がスギ辺材の薬液浸透性におよぼす影響. 日本木材学会大会研究発表要旨集(完全版)(CD-ROM), 66, ROMBUNNO.E28-P-15 (2016.03, 愛知県・名古屋市)

中田裕治、佐々木貴信、吉田誠、安藤恵介、服部順昭、大村和香子、松永浩史、桃原郁夫: 日本木材保存協会年次大会研究発表論文集, 31, 36-37 (2015.05, 東京都・港区)

徳永篤郎、阪上宏樹、藤本登留、内倉清隆、小林功、桃原郁夫: 異なる条件で乾燥させたスギ辺材における有縁壁孔の閉鎖状態と薬液浸透性の関係. 日本木材保存協会年次大会研究発表論文集, 30, 4-5 (2014.05, 東京都・港区)

柴勇気、安藤恵介、服部順昭、桃原郁夫: スギ円柱材のレーザインサイジング穴からの保存処理薬剤の浸潤. 日本木材学会大会研究発表要旨集(完全版)(CD-ROM), 64, ROMBUNNO.N13-P-19 (2014.03, 愛媛県・松山市)

高橋孝多、安藤恵介、服部順昭、桃原郁夫、大村和香子、松永浩史: 屋外暴露試験杭のソフトX線による腐朽観察と評価. 日本木材学会研究発表要旨集, 64, ROMBUNNO.N13-P-21 (2014.03, 愛媛県・松山市)

小林玄、松村順司、松永浩史、桃原郁夫: 養生期間の違いが CUAZ 保存処理材の溶脱性に与える影響. 日本木材学会大会研究発表要旨集(完全版)(CD-ROM), 64, ROMBUNNO.N13-P-17 (2014.03, 愛媛県・松山市)

[図書](計0件)

[産業財産権]  
出願状況(計0件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:  
発明者:

権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

桃原 郁夫 (MOMOHARA Ikuo)  
国立研究開発法人森林総合研究所・研究企  
画科・科長  
研究者番号：60222345

### (2) 研究分担者

小林 功 (KOBAYASHI Isao)  
国立研究開発法人森林総合研究所・加工技  
術研究領域・室長  
研究者番号：30353684

松永 浩史 (MATSUNAGA Hiroshi)  
国立研究開発法人森林総合研究所・木材改  
質研究領域・主任研究員  
研究者番号：80391184

服部 順昭 (HATTORI Nobuaki)  
東京農工大学・農学研究科・名誉教授  
研究者番号：90115915

吉田 誠 (YOSHIDA Makoto)  
東京農工大学・農学研究科・准教授  
研究者番号：30447510

福島 和彦 (FUKUSHIMA Kazuhiko)  
名古屋大学・生命農学研究科・教授  
研究者番号：80222256

藤本 登留 (FUJIMOTO Noboru)  
九州大学・農学研究科・准教授  
研究者番号：80238617

松村 順司 (MATSUMURA Junji)  
九州大学・農学研究科・教授  
研究者番号：70243946