

令和 3 年 8 月 23 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K07872

研究課題名(和文) 熱処理木材の接着特性の解明と木質材料への展開

研究課題名(英文) Investigation of bond characteristics of heat-treated wood and its application to wooden materials

研究代表者

近江 正陽 (Ohmi, Masaharu)

東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70233020

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：熱処理により耐久性を付与した木材の接着性を評価した。その結果、木材を熱処理することで接着性が低下する接着剤があった。さらに、接着性の評価からレゾルシノール系樹脂接着剤およびフェノール樹脂接着剤を用いて熱処理した木材小片から木質材料の1種であるパーティクルボードを製造し、ボードの耐久性及び耐腐朽性を明らかにした。木材小片の熱処理温度の増加に伴って、曲げ強さが低下する半面、耐水性と耐腐朽性の向上が認められた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱処理は木材資源の耐久性等を改良する方法として用いられている。一方、パーティクルボードは木質資源のリサイクルで製造され、長期的に炭素を固定することから地球温暖化の防止に寄与する材料と位置付けられるが、その低い耐久性から用途が限られていた。本研究では熱処理によって耐久性、耐腐朽性を付与した木材について、その接着性を評価し、その結果に基づいてパーティクルボードについて調製し、その物性、耐久性等を評価した。結果として、熱処理した木材パーティクルで製造したパーティクルボードは耐久性等が高くなることが明らかとなった。これらの結果は木質資源の利用用途の拡大と地球温暖化の防止に寄与するものである。

研究成果の概要(英文)：The bonding properties of adhesives for wood imparted with durability by heat treatment were evaluated. As a result, bonding properties of some adhesives decreased by heat-treating the wood. Furthermore, particleboard, which is a kind of wood-based material, was manufactured from heat-treated wood particle. The particleboards were manufactured from wood particles prepared at several temperatures with resorcinol based resin adhesive and phenol resin adhesive and the durability and decay resistance of the particleboards were clarified. The bending strength of particleboards decreased with heat treatment temperature, while the water resistance and decay resistance were significantly improved.

研究分野：木質材料学

キーワード：熱処理 接着 パーティクルボード 耐久性 寸法安定性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

わが国では地球温暖化問題の対策や国内林業の活性化を目的として、木材自給率の向上とそれに伴う木材利用の促進を目標とした「公共建築物等における木材の利用の促進に関する法律(H22)」や「森林・林業再生プラン(H23)」が法制化され、建築材料やその他の材料として国産材の利用拡大が推進されてきている。しかし、さらなる木材利用の推進について屋外での使用が考えられるが、木材は有機物であることから温度変動や湿度変動が大きな屋外での利用は難しく、特に木材腐朽菌による腐朽は木材の屋外利用を妨げる大きな問題となっている。今日、腐朽に対してはさまざまな木材保存剤を木材中に注入することで防止することがなされてきている。一方、木材の耐久性・耐腐朽性を向上させる方法として近年、熱処理による改質が注目をされている。熱処理は、木材を 200 以上の雰囲気中で熱処理することにより、木材中のセルロースの結晶化の促進、揮発物質の除去およびヘミセルロースの熱分解による減少により、耐久性・耐腐朽性を付与できることが明らかになってきている。さらに、木材保存剤等の化学物質を用いない処理であることから、製造における環境負荷が小さいことや使用中に化学物質が環境への放出が小さな耐久性付与処理として木材の耐久性付与の有効な方法として注目されている。熱処理木材については、海外産材および国産材(スギ)における熱処理条件と耐久性・耐腐朽性¹⁾²⁾や強度³⁾との関係等について多くの研究が行われており、多くの知見は蓄積されている。現在は、これらの知見を基に熱処理された製材(挽材)がエクステリア用材や建築物の外装材として製造され、用いられている。しかし、熱処理木材は、加熱過程において熱分解および乾燥による収縮や割れが発生し、物性が低下することや製材サイズであることからその大きさや形状に使用上の大きな制約があり、構造用耐力部材として用いることや大面積を要する用途には使うことはできないといった欠点がある。そのため、物性の向上・安定や大面積材料での使用するためには、接着加工による木質材料化が必要不可欠となる。

木質材料化にあたり重要な性質は、木材エレメントが接着剤で接着できるか(接着性)、接着が長期的に機能するか(接着耐久性)が重要なポイントになる。しかし、熱処理木材は熱処理により化学的組成や物理学的性質(密度、多孔度、濡れ等)が変化しており、耐久性・耐腐朽性が向上している一方で、接着に対しては未処理の木材とは異なる性質となっている。熱処理木材の接着について研究事例は海外産材における接着性の研究・評価事例は多くあるが⁴⁾、接着耐久性の評価についてはほぼ行われていない。また、国産材、特にスギの加熱木材については接着に関する研究は皆無な状況である。

2. 研究の目的

本研究では、上記のような社会背景や学術的な背景から、国産材(スギ)から調製された熱処理木材について複数の接着剤に対する接着性および接着耐久性の評価を行い、接着適性を明らかにする。さらに、得られた接着性の評価結果から、木質材料の1種であるパーティクルボードを製造し、物性、耐久性・耐腐朽性を評価し、木質材料の屋外利用の可能性を評価することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 熱処理木材の接着性の評価

1) 供試材料

試料にはスギ(*Cryptomeria japonica* D. Don)未処理材、および熱処理材を用いた。熱処理材は以下のプロセスで調製した。木材の含水率を10%程度に調整、耐圧耐熱容器に木材を入れて容器内を窒素置換、徐々に加熱し、容器内の圧力を制御しながら、220、24時間維持、

木材を常温まで冷却したのち容器から取り出す。25、65%で調湿した未処理および熱処理材の気乾状態の密度および含水率を表1に示す。また、評価に用いた4種類の接着剤および性状を表2に示す。以後接着剤の識別には表2の略号を用いる。

表1 未処理および熱処理材の気乾密度および含水率

	未処理材	熱処理材
気乾密度(g/cm ³)	0.34	0.30
含水率(%)	13.28	4.35

表2 実験に用いた接着剤の略号と性状(粘度、樹脂率、pH)

接着剤	略号	粘度(Pa·s)	樹脂率(%)	pH
水性高分子-イソシアネート系接着剤	API	8	59	6.4
メラミン樹脂接着剤	MF	7	28	8.4
フェノール樹脂接着剤	PF	0.28	45	11.2
レゾルシノール樹脂系接着剤	RF	0.6	38	8.0

2) 圧縮せん断接着強さ試験

圧縮せん断接着強さ試験は、JIS K 6852 : 1994「接着剤の圧縮せん断接着強さ試験方法」に

準拠し、圧縮せん断接着強さを測定した。

試験体は未処理および熱処理木材を厚さ 10 mm に鉋削し、板目面を、木裏同士で接着して調製した。接着操作は接着剤メーカー推奨の条件で行った。接着剤は試料にローラーで均一になるよう塗布し、加熱および圧縮はホットプレスで行った。接着後、恒温で養生し、試験体から接着面面積が 25×25 mm² になるように試験片を切り出し、試験に供した。

表 3 接着条件

接着剤	接着剤塗布量 (g/m ²)	圧縮圧 (MPa)	圧縮温度	圧縮時間
API	250	1	常温	3 時間
MF	240		常温	24 時間
PF	436		150	冷圧 30 分→解圧 30 分 →熱圧 10 分
RF	300		常温	24 時間

(2) 熱処理木材からのパーティクルボードの製造と物性の評価

1) 供試材料

試料はパーティクルボード用木材パーティクル(心層用、針葉樹広葉樹混合、フレーク)及び熱処理による質量減少を評価するためにスギ(*Cryptomeria japonica* D. Don) 辺材の板目板を用いた。パーティクルボードの製造には、接着性評価で用いた接着剤の中で最も接着性が高かったレゾルシノール系樹脂接着剤(RF)およびパーティクルボード用接着剤では高い耐久性を示すフェノール樹脂接着剤(PF)を用いた。

2) 木材パーティクルの熱処理

木材パーティクルの熱処理条件を表 4 に示す。木材パーティクルの熱処理は処理温度 160、180、200、220、窒素雰囲気下、処理温度の保持時間を 6 時間とした。また、熱処理による質量の変動(減少)を測定するために全乾質量既知のスギ辺材板目材(10(R)×50(L)×50(T) mm)を木材パーティクルと共に熱処理を行った。スギ材については熱処理による質量減少、気乾密度および全乾密度、木材パーティクルについては吸水による質量増加率(吸水率)を測定した。

雰囲気	窒素
圧力	常圧
温度()	160、180、200、 220
窒素流量(ml/min)	300
熱処理スケジュール	窒素充填 2 時間 昇温 12 時間 温度保持 6 時間 冷却 室温まで

3) パーティクルボードの製造

未処理及び(2)-2)の各温度条件で処理した木材パーティクルを原料として、パーティクルボードを製造した。接着剤にはフェノール樹脂接着剤(PF)とレゾルシノール樹脂系接着剤(RF)を用いた。製造したパーティクルボードの仕様は、目標寸法: 10 mm×300 mm×300 mm、目標全乾密度: 0.6 g/cm³、目標含脂率を 10%、層構成: 単層無配向とした。熱圧縮条件は圧縮時間を 20 分、圧縮温度を 180、圧縮圧を 3MPa とした。

4) パーティクルボードの物性および耐久性評価

熱処理木材パーティクルを用いて製造したパーティクルボードの性能評価を行った。基礎物性の評価として、JIS A 5908:2015 に規定される常態曲げ強さ試験、湿潤時曲げ強さ試験(B試験)を行った。さらに耐久性の評価として、ASTM(American Society for Testing and Materials)に規定される ASTM6 サイクル処理による促進劣化試験(試験方法 D 1037)を行った。

4. 研究成果

(1) 熱処理木材の接着性の評価

1) 圧縮せん断接着強さ試験

接着条件ごとの接着強さを図 1 に示す。接着条件は木材(未処理: U、熱処理: HT)と接着剤を示している。また、エラーバーは標準偏差を示している。常態での接着強さは U では API < PF、HT では API < PF、API < RF で有意差があった。木部破断率については U の PF 以外では概ね高い値を示した。接着強さにおよぼす熱処理の影響を見てみると、いずれの接着剤においても熱処理材の方が接着力は低くなった。これは熱処理によって木材自体の強度が低下したためであると考えられる。一方、熱処理材は API と RF で、常態と煮沸接着強さに有意差はなく、熱処理による耐水性と寸法安定性の増加が煮沸による接着力の低下を軽減していることが示唆された。

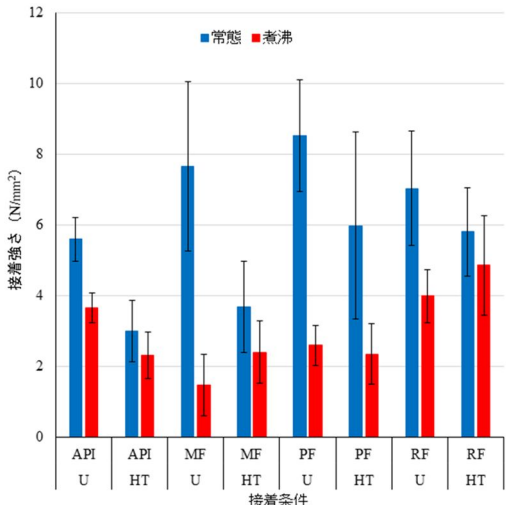


図 1 接着条件ごとの圧縮せん断接着強さ

(2) 熱処理木材からのパーティクルボードの製造と物性の評価

1) スギ材および木材パーティクルの熱処理

木材パーティクルと一緒に熱処理を行ったスギ材の熱処理による質量減少率と密度を表5に示す。処理温度の増加に伴い、質量減少率は顕著に増加し、220℃では約10%の質量減少が生じた。また、密度についても温度の増加に伴って減少した。

図2に熱処理木材パーティクルの吸水率を示す。未処理木材パーティクルに比べて、熱処理木材パーティクルの吸水率は有意に低下し、熱処理温度の増加に伴い、吸水率の顕著に低下した。これは熱処理によって木材パーティクルが疎水化したことを示しており、さらに処理温度の増加により疎水化が進行したことが明らかとなった。

2) パーティクルボードの物性および耐久性評価

(a) 曲げ試験および湿潤曲げ試験

処理温度とパーティクルボードの曲げ強さ(MOR)の関係を図3に示す。

常態曲げ強さ及び湿潤時曲げ強さは、処理温度の増加に伴ってフェノール樹脂接着剤(P)、レゾルシノール系樹脂接着剤(R)共に低下した。これは熱処理より木材パーティクル自体の強度が低下したことが原因であると考えられる。熱処理は木材の寸法安定性を向上させると同時に、密度の低下による強度の低下を生じることが知られている^{5,6)}。本研究で熱処理した木材パーティクルも、処理温度の増加に伴い質量が減少によって木材パーティクルの強度が低下し、結果としてパーティクルボードの強度に影響を及ぼしたと推定される。

処理温度と湿潤処理によるMORの残存率の関係を図4に示す。湿潤処理による曲げ強さ残存率はパーティクルボードの耐水性を示す指標となり、各処理温度の残存率と無処理の残存率を比較し無処理の値よりも大きい場合は、その処理温度で耐水性が向上していると考えられる。湿潤処理による曲げ強さ残存率はPが220℃、Rが200℃と220℃で無処理の曲げ強さ残存率に比べて高い値となり、耐水性の向上が見られた。残存率の増加は熱処理により木材パーティクルの寸法安定性が向上したことが原因であると考えられる。パーティクルボードをはじめとする木質材料において、水分の吸脱着による寸法変化が生じると、エレメント同士の接着点または接着面に応力が生じる。その応力により接着点または接着面の破壊が生じ木質材料の強度の低下や厚さ膨張の原因となる⁷⁾。熱処理された木材パーティクルは疎水化が進み、水分の吸脱着による寸法変化が生じにくくなっている。そのため寸法変化によって生じる接着点へ負荷する応力が減少し、木材パーティクル間の接着点の破壊が抑制され、残存率が増加したと考えられる。

(d) 耐久性評価 (ASTM6 サイクル処理による耐久性試験)

ASTM6 サイクル処理によるPで製造したパーティクルボードの厚さ変化率を図5、Rで製造

表5 加熱処理スギ材の密度および質量減少率

処理条件	気乾密度 (g/cm ³)	全乾密度 (g/cm ³)	質量減少率 (%)
	Ave ± std	Ave ± std	Ave ± std
無処理	0.41 ± 0.03	0.36 ± 0.03	
160	0.39 ± 0.00	0.36 ± 0.00	0.82 ± 0.14
180	0.38 ± 0.01	0.35 ± 0.01	1.58 ± 0.08
200	0.37 ± 0.02	0.35 ± 0.02	4.06 ± 0.39
220	0.36 ± 0.00	0.34 ± 0.00	9.52 ± 0.74

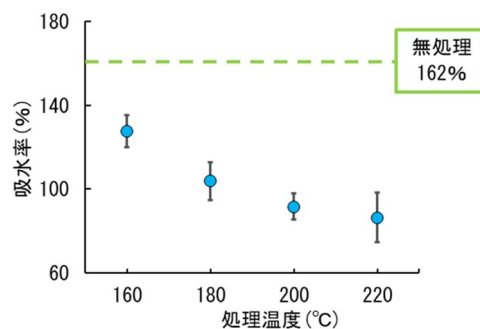


図2 木材パーティクルの処理温度と吸水率の関係

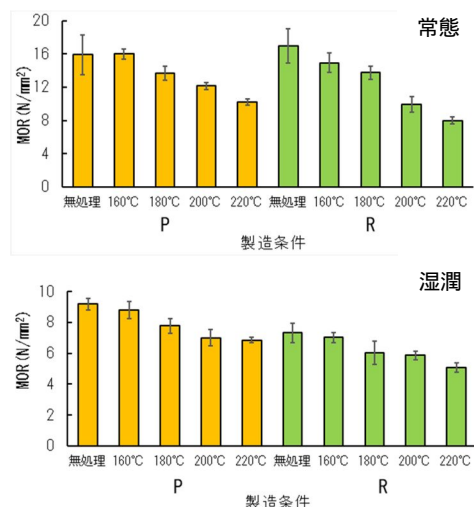


図3 曲げ試験および湿潤曲げ試験の結果

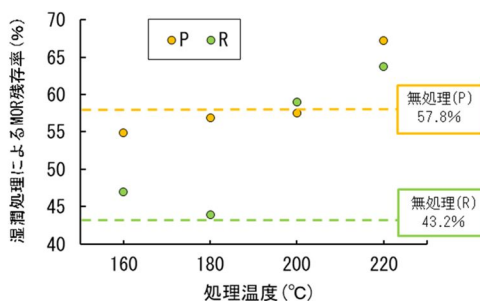


図4 処理温度と湿潤処理によるMORの残存率の

したパーティクルボードの厚さ変化率を図6に示す。

ASTM6 サイクル処理による促進劣化で P と R は共にサイクル数の増加に伴い、全ての処理条件で第1サイクル目に促進劣化前の厚さから大きく増加し、第2サイクル以降は漸増する傾向が見られた。220 の熱処理パーティクルボードの厚さ変化率は著しく小さく、促進劣化処理に対する耐久性が非常に高いことが分かった。熱処理はパーティクルボードの耐水性や寸法安定性の向上が厳しい促進劣化試験に対しても効果があることが明らかとなった。

3) まとめ

本研究は木材への熱処理が接着性に及ぼす影響を評価した。さらに、木材の熱処理温度を変えて熱処理を行った木材を原料とするパーティクルボードを製造し、その物性および耐久性を評価した。得られた結果は以下の通りである。

(a) 4 種類の接着剤で未処理および熱処理木材の接着性を評価した。その結果、以下のことが明らかとなった

用いた接着剤で熱処理木材は一般的な接着条件で接着可能であった。

熱処理により接着強さは低下し、接着の耐水性も低下する傾向が認められた。

熱処理による接着性（接着強さ、耐水性）の低下は、主として熱処理による被着材木材の強度の低下に起因すると推定された。

(b) 温度を変えて木材パーティクルを熱処理したところ以下のことが明らかとなった。

処理温度の増加に伴い、木材パーティクルが暗色化した

処理温度の増加に伴い、吸水率が低下した。

(c) 熱処理した木材パーティクルを用いてパーティクルボードを製造し、その基本的な物性および耐久性を評価した。結果として以下のことが明らかとなった。

熱処理した木材パーティクルを原料としてフェノール樹脂接着剤及びレゾルシノール樹脂系接着剤を用いてパーティクルボードが製造できた。

処理温度の増加に伴いパーティクルボードの曲げ強さは低下した。

湿潤処理による曲げ強さ残存率は P が 220、R が 200、220 で無処理と比べて高く、耐水性の向上が認められた。

ASTM 6 サイクル処理による厚さ変化を測定したところ、220 の熱処理とフェノール樹脂接着剤で製造したボードの厚さ変化が著しく小さく、高い耐久性が認められた。

本研究では木材および木材パーティクルに熱処理を行い、その接着性を評価し、パーティクルボードを製造することで無処理のパーティクルボードに比べて様々な性能を向上させることが可能であることが分かった。現在日本では熱処理が施された木質材料は製造されていないが、本研究で得られた結果は屋外利用も含め、熱処理木材並び木質ボードの利用用途の拡大に期待できるものとなった

< 引用文献 >

- 1) 桃原郁夫：熱処理と耐朽性、木材保存、31(1)、3-11 (2005)
- 2) Nikola Vukas, Izat Horman, Seid Hajdarević: Heat treated wood, Symposium of the 14th International Research/Expert Conference "Trends in the Development of Machinery and Associated Technology (2010)
- 3) M.J. Boonstra, J.F. Rijdsdijk, C. Sander, E. Kegel, B. Tjeerdsma, H. Militz, J. Van Acker, M. Stevens: MICROSTRUCTURAL AND PHYSICAL ASPECTS OF HEAT TREATED WOOD. PART 1. SOFTWOODS, Maderas. Ciencia y tecnología. 8(3):193-208 (2007)
- 4) Kol HS, Özbay G. : Adhesive bond performance of heat-treated wood at various conditions, J Environ Biol., 37(4), 557-564(2016)
- 5) 栗山旭：木材の 200 までの加熱処理による化学的变化について、材料、16(169) 772-776、(2010)
- 6) 林業実務必携、朝倉書店、(1987)、p.577
- 7) 作野友康ら：木材接着の科学、海青社、(2010) p. 125

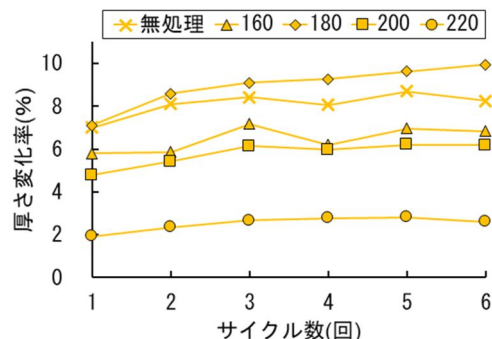


図5 ASTM6 サイクル処理による P で製造したパーティクルボードの厚さ変化率

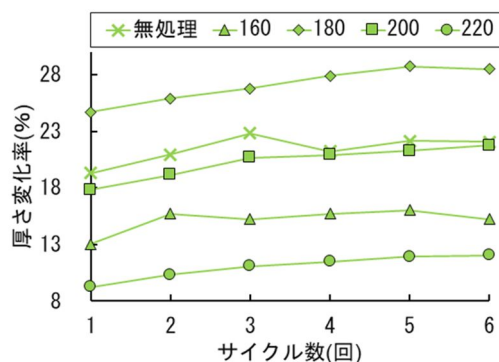


図6 ASTM6 サイクル処理による R で製造したパーティクルボードの厚さ変化率

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 古谷渚、近江正陽
2. 発表標題 パーティクルへの熱処理がパーティクルボードの物性に及ぼす影響
3. 学会等名 第70回日本木材学会大会（鳥取大会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 古谷渚、近江正陽
2. 発表標題 スギ熱処理材から製造した配向性ストランドボードの性能評価
3. 学会等名 第69回日本木材学会大会（函館大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 川村祥太郎、近江正陽
2. 発表標題 スギ熱処理材の接着性能評価
3. 学会等名 第68回日本木材学会大会（京都大会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 古谷渚、近江正陽
2. 発表標題 パーティクルボードの物性に及ぼす熱処理の影響
3. 学会等名 第71回日本木材学会大会（東京大会）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------