

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 11 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21580199

研究課題名（和文）弾性を有する木質炭化マットの成形と断熱材への適用に関する基礎研究

研究課題名（英文） Basic Study on the Manufacture of Carbonized Wood Shaving Mat and its Application to Insulation Materials

研究代表者

関野 登（SEKINO NOBORU）

岩手大学・農学部・教授

研究者番号：30171341

研究成果の概要（和文）：弾性を有する良好な成形条件は、炭化温度 400～500℃、初期マット密度 200～300kg/m³であることを見出した。また、様々な条件で成形された木質炭化マットの熱伝導率を測定し、その値は木質小片断熱材の熱伝導率よりも最大で 25%小さいことが分かった。さらに、その断熱性の発現メカニズムを検討するため、粗空隙の見かけの熱伝導率を熱伝導の複合則から求めた。一方、ホルムアルデヒドおよびアンモニアに対する吸着能と炭化温度との関係を調べ、吸着能の発現メカニズムを表面化学特性および細孔特性から考察した。

研究成果の概要（英文）： Good formability was obtained at initial mat densities ranging 200–300 kg/m³ and at carbonizing temperatures ranging 400–500°C. Thermal conductivity of carbonized wood shaving mats was measured as a function of initial mat density and carbonizing temperature, and it was found that the minimum thermal conductivity was 25% less than that of wood shaving mats before carbonizing. To investigate the mechanisms behind this better insulation, apparent thermal conductivity of coarse pores which includes the effects of convective and radiative heat transfer was calculated by the use of a mix law of thermal conduction. On the other hand, relationships between carbonization temperature and adsorption ability to formaldehyde and ammonia were examined and then the mechanisms behind the adsorption ability were discussed from surface chemical characteristics and pore sizes.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：木質材料学

科研費の分科・細目： 森林学・木質科学

キーワード：環境材料、建築構造・材料、省エネルギー、断熱性、炭化、熱伝導率

1. 研究開始当初の背景

近年、欧州をはじめとして木質系断熱材の開発事例が増えている。研究代表者らもプレカット工場から排出される乾燥プレーナー層に着目し、これらを原料とする木質小片断熱材（商品名「サーモカール」）を開発した。この断熱材は気乾状態の木質小片を型枠中

で常温圧縮し、圧縮状態のマット全体（密度 100kg/m³）を防湿フィルムで被覆して製造される。接着剤不要と熱圧不要の省資源・省エネルギー製造が特徴である。これまで、実大試作品を使った保温効果の検証、遮音・吸音性の測定、耐火試験などが行われた。耐火試験では壁内に充填された断熱材が炭化状態で崩壊

せずに留まることが確認され、これが本研究の着想となった。すなわち、弾性圧縮状態にある木質マットは炭化しても見かけ上の収縮がほとんど生じず、かつ、圧縮方向の弾性の保持が確認された。炭化前のマット密度が高ければ炭化後も脆弱になりにくいと推測されるため、その成形技術の開発が望まれた。さらに、このような新規材料の断熱性能や各種の付加性能には未知な点が多く、その解明に大きな関心が湧いた。

2. 研究の目的

木質小片断熱材は製造エネルギーが少なく、火災時の遮熱性にも優れるが、断熱材の中では熱伝導率が比較的大きく、また、生物劣化の懸念など、いくつかの改善点が指摘されている。そこで本研究では、これらの改善を図るため、木質小片断熱材を通常の2~3倍の密度で成形し、これを炭化することでマット密度を木質小片断熱材と同じ程度(約100kg/m³)に戻す“木片炭化マット”を考案した。その最適な成形技術およびマットの諸性能に関する基礎データの収集が本研究の主目的であり、下記の事項を明らかにすることを目的とする。

- (1) 成形性から見た最適製造条件
- (2) 断熱性から見た最適製造条件
- (3) 成形性と断熱性の両立条件
- (4) 空隙構造からみた断熱性発現機構
- (5) 居住環境の空気質改善効果

3. 研究の方法

(1) 木片炭化マットの製造

プレカット工場のプレーナー屑(嵩密度:40kg/m³、含水率:約12%)を、底面積5cm×20cm、深さ20cmの金属製成型枠内に接着剤無添加で水平堆積させ、常温圧縮した。圧縮マットの密度(以下、初期マット密度)は150、200、250、300kg/m³の4水準であり、型枠ごと電気炉に入れて加熱した。炭化温度(マット中心部の温度)は、300、400、500、600、700℃の5水準とした。なお、炉内の昇温速度は一定で、目標の炭化温度に到達後、加熱を停止し、常温になるまで電気炉内にて炭化マットを自然冷却した。その後、マット形状を目視観察して成形性の良否を4段階で評価した。

(2) 熱伝導率の測定

ASTM C 518に準拠した1試料2熱流計方式により、平均材温25℃(高温熱板温度30℃、低温熱板温度20℃)における熱伝導率を測定した。測定数は1条件につき4回とし、試験体は測定直前まで20℃、65%RHの雰囲気中で養生された。得られた熱伝導率と製造条件の関係を考察した。

(3) 水分吸着等温線の測定

木片炭化マットの吸湿性および断熱性との関係を検討するため、炭化温度400℃および700℃の木片炭化マットおよび未炭化木片の水分吸着等温線(20℃)を求めた。

(4) 木片間粗空隙の断面積測定

断熱性の発現メカニズムに関する基礎資料を得るため、CCDカメラ付き実体顕微鏡を用いて木片間空隙の断面積を測定した。観察面は熱流に直交する断面とし、マット表面から深さ2.5mmごとの5断面で、1断面につき12mm×12mmの画像を4箇所、計20箇所撮影した。撮影画像の小片間空隙を目視により判別し、画像解析ソフト(Scion Image)を用いて、空隙断面積を測定した。

(5) 木片間粗空隙の熱伝導率の算出

マット粗空隙の空気の熱導伝熱、対流伝熱および粗空隙表面における輻射伝熱の三形態が反映された伝熱の指標を“見かけの熱伝導率”とし、細胞内孔、木炭実質、吸着水分、小片間空隙の4要素からなる直列・並列モデルと熱伝導の複合則を適用し、マット内の粗空隙の見かけの熱伝導率 λ_{vl} を試算した。

(6) ガス吸着試験と比表面積の測定

木片炭化マットの吸着性能に関する基礎知見を得るため、まずホルムアルデヒドとアンモニアに対する吸着性能を調べた。一般に、木炭の吸着は表面化学特性および細孔特性に基づく化学吸着と物理吸着の両方によって生じる。そこで、表面化学特性としてHClとNaOHの消費量を求め、細孔特性として窒素吸着等温線と比表面積、木片炭化マットの吸着メカニズムを検討した。

4. 研究成果

(1) 成形性と断熱性の両立条件

初期マット密度が高くなるにつれて成形性は向上し、炭化温度から見ると400~500℃での成形性が良好であった。その際のマット密度は92~138kg/m³であった。また、600℃ではマットに湾曲が生じることが多く、700℃では全てのマットで湾曲が生じた。以上より、成形性良好のマットは400~500℃での炭化が前提となり、マット密度90kg/m³以上となるように初期マット密度を設定する必要がある。図1は初期マット密度とマット密度の関係が炭化温度ごとに示されている。適用した回帰式はy切片ゼロの直線であり、その勾配は炭化による密度残存率を意味する(300℃;53%、400℃;46%、500℃;39%、600℃;37%、700℃;36%)。

図2に示すように炭化マットの熱伝導率熱は0.044~0.060W/mKの範囲にあり、製造条件全体で見るとマット密度との間に明瞭な

関係が見られない。しかし、初期マット密度（図中の回帰曲線）ごとに見ると、いずれも炭化温度 400°C（各系列の右から 2 番目のプロット、△プロットでは右端）で熱伝導率は最小となった。この理由として、空気の対流に影響する小片間の空隙の大きさが炭化温度で異なる、熱伝導に影響する含有水分が炭化温度で異なる、などが考えられる。一方、成形性の観点からは炭化温度 400°C でマット密度が 90kg/m³ 以上では成形性が良好であるため、断熱性と成形性の両方を満たす製造条件として、初期マット密度 200~250 kg/m³、炭化温度 400°C 程度が最適と言える。また、マット密度 100 kg/m³ の木質小片断熱材「サーモカル」の熱伝導率 0.060W/mK に対して、約 25% 低い熱伝導率の達成が可能であった。

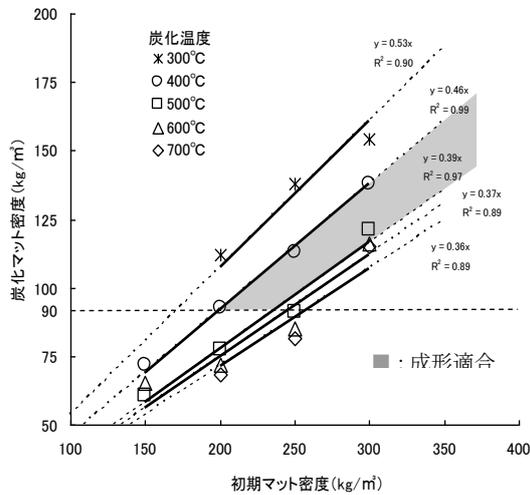


図1 製造条件と成形性の関係

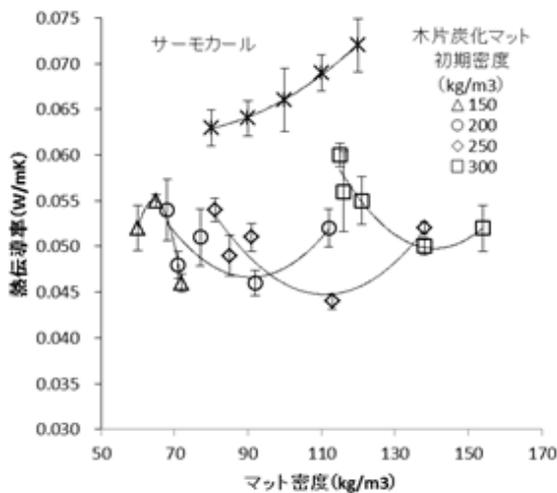


図2 マット密度と熱伝導率の関係

(2) 吸湿特性から見た断熱性発現機構

木質小片断熱材に対して木片炭化マットが断熱性に優れる要因は、吸湿性の低下、マット粗空隙の細分化による対流伝熱の抑制、粗空隙表面の輻射の低下などが考えられた。そこでまず、吸湿性の観点から検討した。図3は20°Cで測定された吸着等温線である。相対湿度50%以上では、炭化温度400°Cで小片の吸湿性が小さいことが分かる。熱伝導率測定時の温湿度環境は、平均材温20°C、平均相対湿度65%であり、その平衡含水率は図3より炭化温度400°Cで5.8%、700°Cで7.5%となる。吸湿性物質の熱伝導率は一般に含水率依存性を示すため、この水分量の相違が炭化温度400°Cで熱伝導率が低くなった一因と言える。このことを熱伝導率の含水率依存性から詳細に検討した結果、断熱性向上の3割程度がこの吸湿性由来と説明できるが、残り7割は他の要因、すなわちマット構造に基づく物性と結論づけられた。

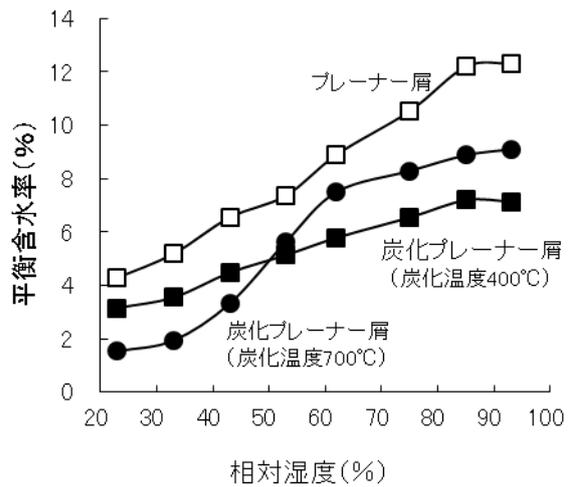


図3 水分吸着等温線

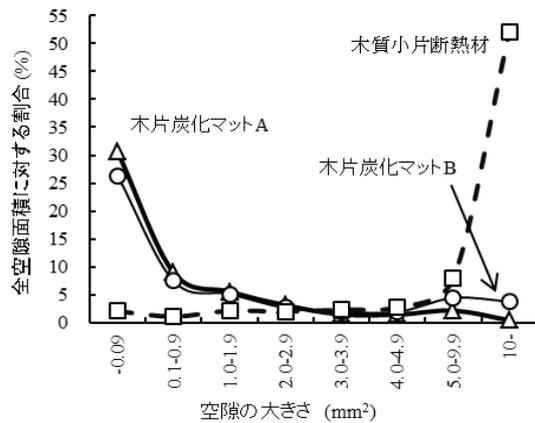


図4 マット粗空隙の断面積分布

(3) 木片間粗空隙から見た断熱性発現機構
 マット粗空隙の顕微鏡観察とその画像解析を行い、図4に示すような粗空隙の断面積分布を得た。木質小片断熱材では、断面積10mm²以上が空隙全体の50%を超えるが、木片炭化マット(Aは初期密度200kg/m³、炭化温度400°C、Bは初期密度250kg/m³、炭化温度500°C)のそれは5%未満と少なく、断面積2mm²以下の空隙が相対的に多いことが分かった。木質小片断熱材と木片炭化マットでのこのような粗空隙構造の相違が、対流伝熱の差異の要因となり、断熱性に差異を生じさせたと推察された。

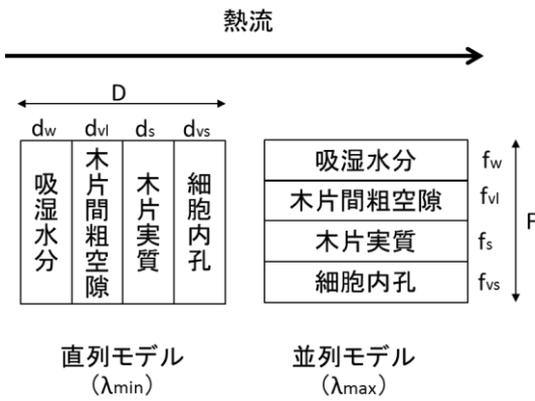


図5 熱伝導の4要素直列・並列モデル

$$\lambda_{\min} = \frac{D}{\sum\left(\frac{d}{\lambda}\right)} = \frac{V}{\frac{V_w}{\lambda_w} + \frac{V_{vl}}{\lambda_{vl}} + \frac{V_s}{\lambda_s} + \frac{V_{vs}}{\lambda_{vs}}} \quad (1)$$

$$\lambda_{\max} = \frac{\sum(f \cdot \lambda)}{F} = \frac{V_w \cdot \lambda_w + V_s \cdot \lambda_s + V_{vl} \cdot \lambda_{vl} + V_{vs} \cdot \lambda_{vs}}{V} \quad (2)$$

$$\lambda = Z \times \lambda_{\max} + (1-Z) \times \lambda_{\min} \quad (3)$$

(4) 粗空隙の見かけの熱伝導率
 図4で得られた粗空隙構造の相違は、木質小片断熱材と木片炭化マットの断熱性の差異を論じる際、有用なデータとなり得る。すなわち、マット粗空隙の細分化による対流伝熱の抑制、粗空隙表面の輻射の低下が断熱性改善の主要因であることを裏付ける。しかし、その解釈は定性的な域を脱しない。そこで、定量的な解釈を深めるため、木片間空隙部の伝熱特性に関する物性値をモデル計算により調べた。すなわち、マット粗空隙の空気熱導伝熱、対流伝熱および粗空隙表面における輻射伝熱の三形態が反映された伝熱の指

標を“見かけの熱伝導率”とし、図5に示すような細胞内孔、木炭実質、吸着水分、小片間空隙の4要素からなる直列・並列モデルと熱伝導の複合則(1~3式)を適用し、マット内の粗空隙の見かけの熱伝導率 λ_{vl} を計算した。ただし、 V 、 λ は、それぞれ、容積、熱伝導率であり、添え字 w 、 vl 、 s 、 vs は、それぞれ、吸着水分、木片間粗空隙、炭化あるいは未炭化の木片実質、細胞内孔を示す。得られた λ_{vl} の値は、炭化温度400°Cのマットで0.031 W/mKであり、静止空気の熱伝導率0.025 W/mKの2割増し程度であった。この値は木質小片断熱材の値0.045 W/mKの約2/3であり、小片間粗空隙の細分化による対流抑制や輻射低減の現れと言える。また、炭化温度の上昇とともに λ_{vl} の値は増加する傾向があり、炭化温度700°Cで0.042W/mKとなった。この要因として、過度に炭化が進むと粗空隙が連続して対流抑制効果が低下すること、表面の輻射伝熱が増大することが推察された。

表1 測定対象とした製造条件と pH 測定値

初期密度 (kg/m ³)	炭化温度 (°C)	pH	略号
150	400	6.00	154
	400	6.68	204
	500	7.45	205
250	400	6.81	254
	500	7.28	255
	600	7.43	256
300	400	6.11	304
	500	6.96	305
	600	7.10	306
	700	7.75	307

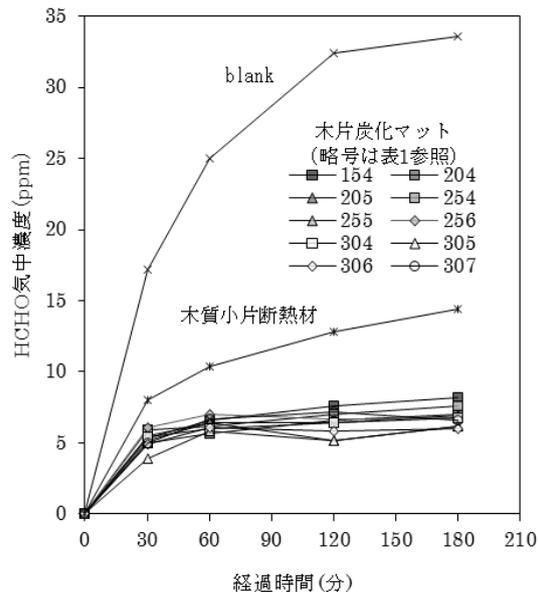


図6 HCHOの気中濃度変化

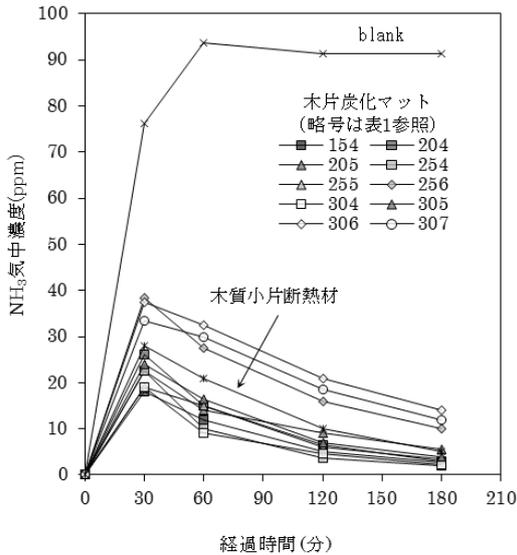


図7 NH₃の気中濃度変化

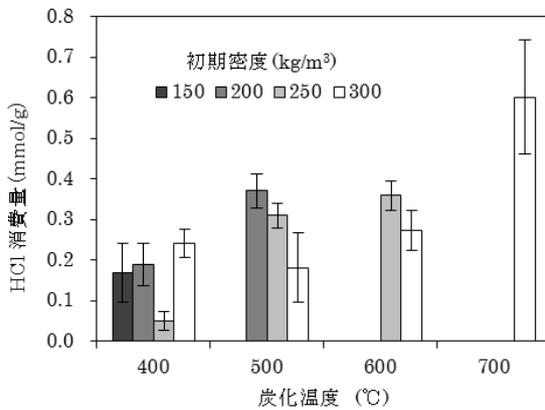


図8 製造条件とHCl消費量の関係

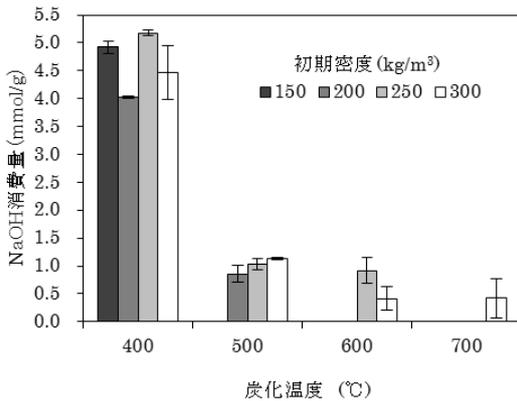


図9 製造条件とNaOH消費量の関係

(5) ガス吸着特性とその機構

表1はホルムアルデヒド(HCHO)およびアンモニア(NH₃)の吸着試験に供した木片炭化マットの製造条件と、JISに準じて測定したマ

ットの酸性度(pH)である。炭化温度が高くなるにつれ、pHは弱酸性から中性、アルカリ性へと変化した。

図6にHCHOの気中濃度変化を示す。木片炭化マットを入れた場合、60分以降はほぼ一定の濃度で、放散量と吸着量がほぼ拮抗していた。180分後の気中濃度は5.0~8.2ppmとなり、Blankに対して1/4~1/6の値、木質小片断熱材に対して1/2~1/3の値となった。

一方、図7はNH₃の気中濃度変化であり、木片炭化マットを入れた場合、30分以降は漸減し、放散量に対し吸着量が上回っていた。180分後の気中濃度は2.7~14ppmとなり、最も低い濃度ではBlankの約1/30の値であった。ただし、木質小片断熱材と比較すると、炭化温度500°C以下のマットでは吸着能の向上が認められたものの、600°C以上のマットでは木質小片断熱材の吸着能を下回った。

図8に木片炭化マットのHCl消費量を示す。消費量は炭化温度400°Cで最も少なく、500~600°Cでやや増加、700°Cで最大となった。図9はNaOH消費量であるが、HClとは逆に炭化温度400°Cで消費量が最大となり、600~700°Cでは少なかった。一般にHClおよびNaOHの消費量は、それぞれ吸着に関わる塩基性官能基、酸性官能基の相当量とされる。したがって、図8は炭化温度が高いほど塩基性官能基が多いことを意味する。同様に、図9は炭化温度が低いほど酸性官能基が多いことを意味する。

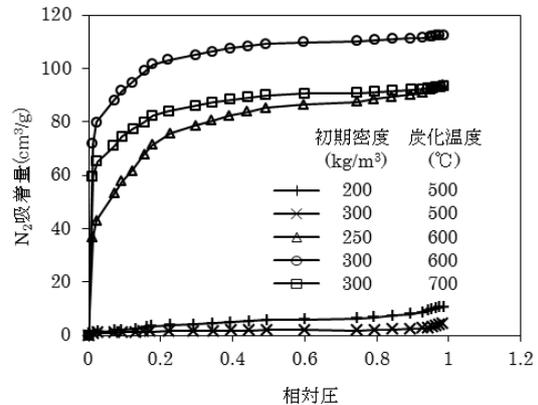


図10 液体窒素温度における窒素吸着等温線

窒素吸着等温線の測定結果を図10に示す。IUPACの分類によるI型~VI型のうち、炭化温度500°CのものはII型、600~700°CのものはI型に相当する吸着等温線が得られた。一方、炭化温度400°Cの全条件と500°Cの一部の条件では窒素吸着量は0cm³/gであった。この要因として、低い炭化温度では表面が本質的に無孔もしくは炭化で発生したタール分などで細孔が塞がれていた可能性が考えら

れる。表2は窒素吸着等温線から得られた比表面積であり、炭化温度 500°C以下では 0~14m²/g だが、600°C以上では 267~368m²/g となった。これより、木片炭化マットの細孔は炭化温度 600°C以上で発達し、この温度域では物理吸着が期待できる。

表2 木片炭化マットの比表面積 (m²/g)

初期密度 (kg/m ³)	炭化温度 (°C)			
	400	500	600	700
150	0			
200	0	14		
250	0	0	267	
300	0	5	368	297

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 2 件)

①山口晃輔、関野 登、栗本康司、小藤田久義、木片炭化マットのホルムアルデヒドおよびアンモニア吸着能—表面化学特性および細孔特性からの検討—、木質炭化学会誌、査読有、7 (2)、2011、76-82

②山口晃輔、関野 登、弾力性を有する木片炭化マットの製造と断熱材への適用に関する基礎的研究 (第1報) 製造条件と熱伝導率の関係、岩手大学演習林報告、査読有、第41号、2010、1-15

[学会発表] (計 6 件)

①関野 登、木片炭化マットの断熱性発現メカニズム~小片間粗空隙の等価熱伝導率からの考察~、第9回木質炭化学会研究発表会、2011.6.2、秋田ビューホテル (秋田市)

②N. SEKINO and K. YAMAGUCHI, Carbonizing Binderless Wood Shaving Insulation Panels for Better Insulation and Durability Part1: Relationship between thermal conductivity and carbonizing temperature, Society of Wood Science and Technology (SWST) International Convention, 2010.10.11-14, ヨーロッパ国連本部 (ジュネーブ: スイス)

③山口晃輔、関野 登、木片炭化マットの吸着性能と細孔特性・表面化学特性との関係、日本木材加工技術協会第28回年次大会、2010.10.7-8、奈良女子大学 (奈良市)

④関野 登、山口晃輔、弾力性を有する木質小片炭化マットの熱伝導率、第8回木質炭化学会研究発表会、2010.5.27-28、明星大学日野校舎 (東京都)

⑤山口晃輔、関野 登、木片炭化マットの製造条件と吸着性能、第60回日本木材学会大会、2010.3.17、宮崎市民プラザ (宮崎市)

⑥山口晃輔、関野 登、弾力性を有する木片炭化マットの成型技術と断熱性能、第27回日本木材加工技術協会年次大会、2009.10.8-9、熊本県立劇場 (熊本市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

関野 登 (SEKINO NOBORU)

研究者番号: 30171341