

コロイダルシリカを用いた無機質複合化処理単板の性能と 単板積層材への応用に関する研究*

後藤 崇志

Studies on the Properties of Wood-Mineral Composed Veneers Using Colloidal Silica and
the Application to Laminated Veneer Lumber

Takashi Goto

要 旨

本研究は、島根県の森林資源で蓄積量が多い針葉樹材のスギ材と広葉樹材のコナラ材の利用技術の開発を目的として行ったものである。

スギ材とコナラ材を合板や単板積層材（以下、LVLと記す）などに利用するために、スギ単板とコナラ単板を製造した。そして、これらの単板に難燃性や耐候性を付与するために、コロイダルシリカーホウ酸溶液（以下、CB溶液と記す）による無機質複合化処理を施し、酸素指数による燃焼性試験、ウェザーメータを用いた促進耐候性試験など各種の性能評価を行った。

コナラ材は未利用広葉樹材の1つであり、これまで構造用部材として利用されることはほとんどなかった。したがって、基礎的な強度特性に関するデータは得られていない。そこで、コナラ材の製材と単板などの基礎的な強度特性をスギ材とあわせて把握した。さらに、コナラ単板をLVLへ応用するために、コナラ単板とスギ単板とを複合化したLVL（以下、異樹種複合LVLと記す）への適用性を検討した。

LVLを構造用として利用するためには、耐火性の付与が重要な課題となる。そこで、LVLに耐火性を付与することを目的として、CB溶液を用いて無機質複合化処理したスギ単板あるいはコナラ単板を異樹種複合LVLやスギLVLに積層接着し、その耐火性について基礎的な試験を実施した。

以下、本研究で得られた結果などをまとめる。

第1章 コロイダルシリカーホウ酸溶液によって無機質複合化処理したスギ単板とコナラ単板の難燃性評価

第1章では、スギ単板（辺材、心材）とコナラ単板に難燃性を付与することを目的とし、CB溶液により無機質複合化処理を単板に施してその難燃性の評価を行った。無機質複合化処理単板（以下、WMC単板と記す）の難燃性の評価は、酸素指数（以下、OIと記す）による燃焼性試験を行い、あわせて炭化試験片のEPMA観察を行った。また、実証的な燃焼試験としてマイクロバーナーによる燃焼性試験もあわせて行った。

難燃性の評価に用いたWMC単板の重量増加率（%、以下、WPGと記す）は、スギ辺心材単板で約50%、コナラ単板で約14%となった。溶脱処理に対する不溶性無機物の固着率はそれぞれ約80%、62%と高い値を示した。

* この報告は、島根大学大学院総合理工学研究科の博士論文（2005年3月）として取りまとめたものである。

OIによる燃焼性試験の結果、OIは無処理単板では樹種に関わりなくスギ単板とコナラ単板とも22%となったが、WMCスギ単板では約57%、WMCコナラ単板では約33%と無処理単板よりも大きくなった。溶脱処理後はそれぞれ31%、24%程度と低下したが、それでも無処理単板より高い難燃性を維持していた。WPGとOIとの間には強い相関関係が認められ、得られた回帰直線式によってWPGからOIを推定することが可能となった。燃焼時間と残炭率はWMC単板で改良されており、溶脱処理後も単板の内層部分に固着した不溶性無機物により燃焼時間と残炭率に著しい低下は認められなかった。

OIによる燃焼性試験から得られた無処理単板とWMC単板の炭化試験片について、EPMA観察を行った。無処理スギ単板では細胞壁の薄壁化が認められ、無処理コナラ単板では道管の扁平化などが認められた。しかし、WMCスギ単板では、無機物は仮道管内腔と細胞壁中に広く固着していた。WMCコナラ単板では、無機物が道管の内腔を充填していた部位と道管内腔の内壁をコーティングするように付着している2種類の部位が観察された。

マイクロバーナーによる燃焼性試験の結果、WMC単板を加熱面に積層接着すると試験体上面の温度上昇が緩やかとなった。特に、WPGの高いスギ辺心材単板では、30分間の燃焼処理を施しても着火は認められなかった。WMCスギ心材単板を加熱面に積層接着し、直接火炎を当てて試験を行った結果、WPGが50%以上の単板でWPGとOIとの回帰直線式から求められるOIが60%以上になると、実際の燃焼挙動に類似した状況下における難燃性がより高くなる傾向が認められた。

第2章 コロイダルシリカ溶液による無機質複合処理単板の色調変化と耐候性評価

第2章では、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合処理に伴う単板の色調変化を検討するために、スギ単板とコナラ単板への無機質複合処理に伴う色調変化を検討した。また、耐候操作による溶脱処理における不溶性無機物の固着率と色調変化、さらにウェザーメータによる促進耐候性試験での色調変化と単板の表面状態の変化を観察し、WMC単板の耐候性について検討した。

耐候性の評価に用いたWMC単板のWPGは、スギ、コナラともCB溶液処理単板がコロイダルシリカ単独溶液（以下、C溶液と記す）やホウ酸単独溶液（以下、B溶液と記す）よりも大きくなり、スギ単板60.7%、コナラ単板17.0%であった。

処理に伴う単板の色調変化を測色した結果、C溶液ではアルカリ汚染の影響が認められ、B溶液では酸汚染の影響が認められた。CB溶液ではこのような汚染などの影響が認められず、色差（以下、 ΔE^* と記す）が小さくなって利用上支障が生じないことが明らかとなった。

溶脱処理における不溶性無機物の固着率は、C溶液とCB溶液で処理した単板で高くなり、スギで80~90%、コナラで50~80%となった。不溶性無機物の形成にコロイダルシリカ溶液を用いることが有効であることが分かった。色調の変化は、CB溶液処理単板では処理時にアルカリ汚染や酸汚染が生じず、また固着した無機物の変色を防いで ΔE^* が最も小さくなった。

促進耐候性試験における色調変化を測色した結果、全体的な傾向として、 ΔE^* は促進劣化26時間目まで増加し、その後100時間目まで減少し、それ以後増加していく傾向が認められた。これは、試験初期の色調変化には無機質複合処理時のアルカリ汚染と酸汚染が影響しており、それ以降は木材成分の溶脱や固着した無機物が色調変化に影響しているものと考えられた。CB溶液による処理は、促進劣化初期の ΔE^* の増減幅が小さく、またスギではコントロールよりも ΔE^* 値の変化が小さくなっていた。さらに、促進耐候性試験による物理的な木質部の侵食を抑制しており、耐候性の向上が期待できるものと考えられる。

第3章 鳥根県産コナラ材とスギ材の異樹種複合LVLへの適用性の検討

—製材、単板、および異樹種複合LVLの基礎的な強度特性—

第3章では、コナラ材の製材、単板などの基礎的な強度特性を把握するとともに、コナラ単板とスギ単板を複合化した異樹種複合LVLの曲げ試験を行い、その曲げ性能を把握するとともに各単板の構成方法などについて検討した。

コナラ製材は曲げおよび縦圧縮試験において高い強度特性を示し、曲げヤング係数（以下、MOEと記す）は14.8GPa、曲げ強度（以下、MORと記す）は141MPa、縦圧縮強度は60MPaであった。横圧縮試験においては、試験体木口面に現れる道管配列角度が横圧縮強度に強く影響して負の相関関係が認められ、その強度は19MPa程度となった。

コナラ単板のMOEは、平均11.9~12.4GPa程度の範囲にあり、カラマツ単板などと同等の高いMOEを示すことがわかった。また、コナラ単板のMOEの分布特性は、MOEの下限側10.5GPa程度となった。

異樹種複合LVLのMOEは約10~12GPaで、スギLVLよりも1.7~2.1倍程度向上していた。MORは約80MPaでスギLVLよりも1.8倍程度向上していた。異樹種複合LVLは、外層部分にコナラ単板を構成することにより、そしてLVL断面におけるコナラ単板の構成割合が44%程度で高いMOEを示した。しかし、MORについてはMOEほど高い向上は認められなかった。これは、異樹種複合LVLの外層部分に構成したコナラ単板への応力分担が大きくなっているためと考えられ、今後各構成要素の応力分布の検討が必要である。

第4章 無機質複合化処理単板を積層したLVLの曲げ性能と燃焼処理の影響

第4章では、無機質複合化処理に伴う単板の力学的特性の変化を検討するため、CB溶液による無機質複合化処理をスギ単板とコナラ単板に施し、この処理前後での単板のMOEを重錘法により測定した。また、WMC単板を積層接着したLVL（以下、複合化LVL）を製造してその曲げ性能を検討した。さらに、複合化LVLにマイクロバーナーを用いて燃焼処理を施し、その直後に曲げ試験を実施して無処理LVLに対するMORの残存率を求め、WMC単板をLVLに積層接着した際の燃焼処理に対する耐火性の向上について検討した。

単板のMOEは、WPGの増加に伴って若干大きくなる傾向が認められたが、その分布特性は無機質複合化処理前と同様であった。挽き板のようにWPGがある値以上になるとMOEが低下するという事はなかったが、今後WPG値が50%程度の高い単板について検討する必要がある。

複合化LVLの曲げ性能は、無処理単板を積層した無処理LVLと同等であり、曲げ性能などが低下することはなかった。複合化LVLに積層接着したWMC単板の接着性能は良好で、JAS規格を満たす結果であった。

複合化LVLの燃焼処理後のMORの残存率は、10分間の燃焼処理後、スギのWMC単板を積層した場合38%、コナラのWMC単板を積層した場合27%となって無処理LVLよりも高くなった。また、燃焼処理に伴う断面欠損は複合化LVLでは抑制されていたことから、WMC単板の積層接着による耐火性の向上が図られたといえる。

序 章

1. 研究の目的

島根県の森林面積は約52.7万haであり、本県の土地面積6,707km²に占める森林面積の割合（林野率）は約79%にのぼり、全国3位の高い値となっている（島根県農林水産部森林整備課，2003）。そして、森林蓄積量は8,471万m³になり（島根県農林水産部森林整備課，2003），図1に示すように近年は人工林を中心に毎年約200万m³ずつ蓄積量は増加している。したがって、本県は全国的にみても人工林を中心として森林資源に恵まれていることがわかる。

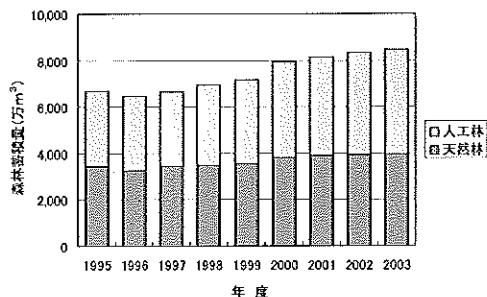


図1 島根県の森林蓄積量の推移

森林面積約52.7万haのうち民有林面積は約49.4万ha（森林面積の約93.7%）であり、民有林に占める人工林と天然林の内訳は、人工林面積約18.5万ha（民有林面積の約37.4%）、天然林面積約28.8万ha（同約58.3%）となっている（島根県農林水産部森林整備課，2003）。人工林は主に針葉樹により構成されており、その樹種構成はスギ約7.9万ha（人工林面積の約42.7%）、ヒノキ約5.4万ha（同約29.2%）、マツ類約5.1万ha（同約27.6%）となっている。一方、天然林のそれは、コナラ・クヌギなどの落葉広葉樹が大半を占めており、約25.6万ha（天然林面積の約88.9%）にもおよんでいる。

人工林面積の大部分を占めている針葉樹材の齢級構成を図2に示す。これより、人工林の針葉樹は、特に4～8齢級のスギとヒノキが多いことが分かる。4～8齢級のスギとヒノキは、人工林面積の約8.3万ha（人工林面積の約44.9%）を占めており、これらの人工林は間伐作業を必要とする林分である（島根県農林水産部森林整備課，2003）。

間伐作業を怠ると、植栽木が成育する際にそれら同士で競争が起こり、形状比（樹高/胸高直径）の高いモヤ

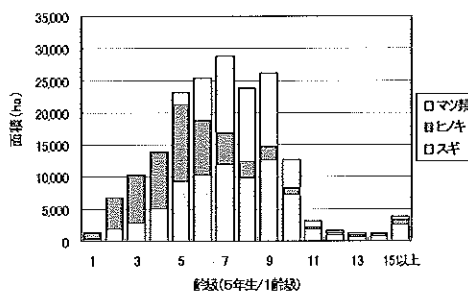


図2 人工林面積約18.5万haにおけるスギ、ヒノキ、マツ類の齢級構成

シ状の樹木となるために、図3に示すような風雪などによる倒木被害が発生する。さらに、病虫害が発生しやすくなって利用価値の高い材が生産できなくなる恐れがある。さらに、林内の下層植生がなくなって土地が痩せ、水源かん養機能などの公益的な多面的機能が十分に発揮できなくなることがわかっている（(社)全国林業改良普及協会，1998）。



図3 2004年10月の台風23号によるスギ林分の倒木被害（島根県飯石郡飯南町内にて撮影）

間伐を促進するためには間伐対象木となるスギやヒノキなどの中小径材の利用技術の開発が必要であり、この問題は本県のみならず国内の森林林業行政において重点課題と位置づけられている（林野庁，2003）。現在、間伐材は土木用資材や魚礁などとして盛んに利用されているが、今後はそれらを挽き板などに製材し、難燃化処理を施して難燃処理材などとしての新たな用途拡大が検討されている。

さて、本県の木材産業については、2003年現在県内には7つの原木市場があり、針葉樹材を中心に取引が行われている。2001年次の国産材取扱実績は13.3万m³であり、このうち樹種別の取扱実績はマツ類41%、スギ41%、ヒノキ15%となっている。マツ類とスギが圧倒的に多く、

本県の木材産業において主要な樹種になっていることがわかる (Takashi Goto, 2003)。

本県の主要な木材産業は、製材業、木材チップ製造業、合板工業などである。製材業については、2003年末現在その工場数は173工場であり、そのうち製材用動力の出力規模が37.5～75.0kW未満の工場が約38% (66工場) を占め、本県の製材業は小規模工場が多いといえる。製材用素材消費量は全体では17.6万m³であるが、1工場当たりの素材消費量は1,017m³で年々減少している (Takashi Goto, 2003)。

木材チップ製造業については、2003年末現在その工場数は26工場である。木材チップ生産量は15.4万m³で、原材料は素材 (原木) からの生産が約92%を占めている。本県における木材チップの主な消費先はパルプ製造業であるが、パルプ製造業においては近年特に安価な輸入チップの利用量が増大している。したがって、木材チップ、さらには原材料である広葉樹材などの新たな用途開発が求められている (中国四国農政局松江統計・情報センター, 2004)。

合板製造業については、2004年現在でJAS (日本農林規格) 認定工場は5工場あり、主に製造されている合板は普通合板と構造用途の合板である。製造量は2003年末現在28万m³で、依然として増加傾向にある (中国四国農政局松江統計・情報センター, 2004)。

西日本でも有数な本県の合板製造業では、南洋産大径材から北洋産カラマツ材またはニュージーランド産ラジアータパイン材などの針葉樹材への樹種転換が図られている。本県では1998年より県産スギ材を利用した合板の製造に関する研究が本格的に始まった。スギ材は①早晚材の特性の差が大きく、晩材部の硬さは早材部の4倍以上にもなる、②生材含水率の絶対値が高く、200%以上になることも多いなどの理由 (林, 1999) によりこれまで合板に利用されることはほとんどなかった。しかし、製造機械の改良開発により、図4に示すようなスギ丸太からの単板切削、単板の乾燥などの工程が可能となり (後藤ほか, 1999)、また性能評価の結果 (後藤ほか, 2000) から実用化が可能であることが明らかとなった ((財)日本木材総合情報センター, 2000) ことから、2002年からは県産スギ材を原料とする合板の製造が2工場で続けられている。

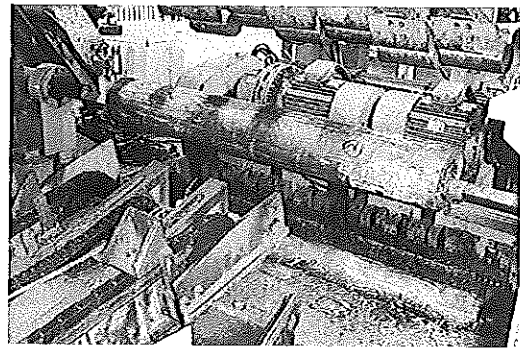


図4 スギ中小径材を原料とした合板用単板の切削工程

天然林の主要な樹種であるコナラは日本の温帯下部から暖帯にかけて広く分布し、2次林の優占種の1つとなっていて、かつては薪炭材として重要な樹種であった (佐竹ら, 1989)。島根県においても全域に広く分布し、蓄積量は極めて多い。広葉樹材は、民有林総蓄積量約8,472万m³のうち約34.9%にあたる約2,953万m³の蓄積量を誇り (平成14年度末現在)、図5に示すようにコナラ材はその中でも約33.7%にあたる約994万m³を占めている (島根県農林水産部森林整備課, 2003)。

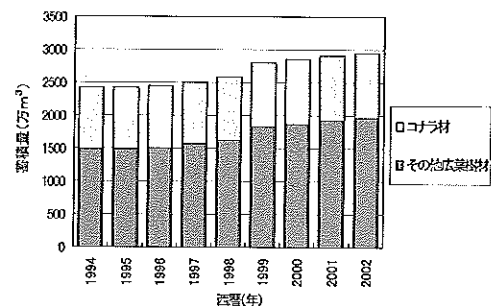


図5 民有林広葉樹材蓄積量に占めるコナラ材の蓄積量の推移

コナラ材 (図6) の気乾比重は平均0.75程度で重硬な材質を呈している (平井, 1996) が、同じコナラ属のミズナラ材よりも材質は劣る (佐竹ら, 1989)、(日本材料学会木質材料部門委員会, 1982) といわれている。乾燥による割れや狂いが生じやすく、またナラ類は若干腐りやすいという理由だけで「実用性に欠ける=雑木」として軽んじられてきた (建築知識編集部, 2002) 背景もある。したがって、現在の用途は直径20cm程度まではシイタケ原木に、それ以上の大径材はチップ用原木などに限られており (最新木材工業事典出版委員会, 1999)、用材としてはほとんど利用されていない。チップ用の原

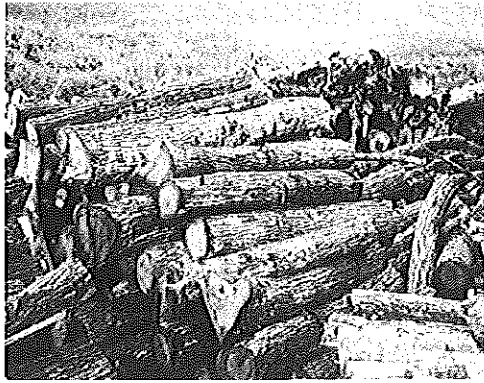


図6 チップ工場に集積されたコナラ原木

材料としての利用は、前述のとおり、県内のパルプ製造業では輸入チップの利用量が増大してきたため、コナラ材自体の需要は減少している。したがって、今後はコナラ材をはじめとする広葉樹材の新たな用途開発も求められている。

このように、本県は人工林を主とする針葉樹材と天然林を主とする広葉樹材をはじめとして全国的にも豊かな森林資源に恵まれている。本研究は、その中でも特に利用技術の開発が求められている針葉樹材のスギ材と広葉樹材のコナラ材の新たな利用技術の開発を目的として行うものである。

スギ材やコナラ材の新たな利用方法として、特に単板化による合板や単板積層材（以下、LVL (laminated veneer lumber) と記す）への利用が注目されている（島根県林業技術センター・島根県産業技術センター、2003）。合板やLVLなどの木質材料を構造用として利用するためには耐火性の付与が必要となり、構成エレメントへの難燃性付与による耐火性能の向上が重要な因子のひとつとなりうる（坂本、2000）。

1995年1月の阪神・淡路大震災では10万戸以上の木造構造物が被害をうけ、6,000人もの人々が木造住宅の崩壊によって亡くなっている（日本木材学会地震プロジェクトチーム 有馬ほか、1996）。この結果、木材製品の性能はそれまでの外観特性を重視した評価基準から、強度性能を基準とする構造信頼性が要求されるようになってきた。そして、強度性能が計算・評価され、構造信頼性に基づいて保証された構造用木材製品であるエンジニアードウッド (engineered wood) の需要が急増してきたのである。なお、代表的なエンジニアードウッドとしては図7に示す構造用集成材、構造用LVL、構造用合

板、OSB (oriented strand board) などがある (Tomoyuki Hayashi, 2003)。阪神・淡路大震災以降、在来軸組工法住宅の施工方法において構造用合板やOSBなどの構造用面材を利用することが増えてきている。また、軸組材料としては構造用集成材の需要が急増しており、構造用LVLの利用も増加傾向にある (林, 1998)。

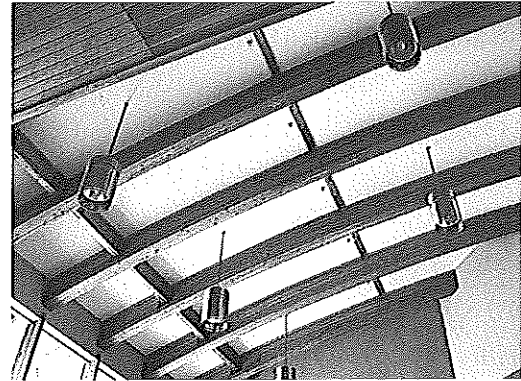


図7 中山間地域研究センターに施工された県産スギ構造用集成材

構造用合板や構造用LVLなどの構成エレメントとなる単板は、厚みが約3mmで裏割れが生じており、薬品処理も容易である (林, 1998)。また、合板やLVLでは処理単板を選択的に断面設計することが可能である。そこで、合板やLVLなどに耐火性を付与するために、単板の難燃化が期待できるコロイダルシリカーホウ酸溶液による無機質複合化処理を単板に施し、単板への難燃性の付与とその評価を試みた (古野ほか、2001)。

木材の難燃化は重要な課題 (建築知識編集部、2001) であるが、無機質複合化処理は木材の特性を残しながら製品の使用目的に応じて適正に行うことが望ましい (鈴木ほか、1999) と考えられている。そこで、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理前後での単板の色調変化を測色した。また、コロイダルシリカ溶液によって無機質複合化処理した材は、今後エクステリアウッド (exterior wood) など屋外での利用も考えられ、特に耐候性が重要な性能の1つとなる。そこで次に、コロイダルシリカ溶液を用いて無機質複合化処理したスギ単板とコナラ単板に耐候操作による溶脱処理と、ウェザーメータを用いた促進耐候性試験を行って色調変化の測色と単板の表面状態の変化を観察した。

本県の主要な木材産業の1つである合板製造業には、県産スギ材、さらにはコナラ材の利用も視野に入れた製造技術の開発が求められている。そこで、コナラ材の新たな利用技術の開発を目的として、スギ単板とコナラ単板を複合化したLVL（以下、異樹種複合LVLと記す）の製造を試みた。また、コナラ材の利用を進める上で、その強度特性に関する資料（錦織ほか、1989）は非常に少ないため、コナラ製材の曲げ試験と圧縮試験、次にLVLに利用するために重錘法によるコナラ単板とスギ単板の曲げヤング係数（以下、MOE（modulus of elasticity）と記す）の測定を行った。そして、異樹種複合LVLを製造して曲げ試験を行うことによってMOEと曲げ強度（以下、MOR（modulus of rupture）と記す）を求めた。

無機質複合化処理単板（以下、WMC（wood-mineral composed）単板と記す）の応用に関する研究として、異樹種複合LVLに耐火性を付与するために、WMC単板をLVLの外層部分に積層接着し、燃焼処理後に曲げ試験を行ってLVLのMORの残存率を求めた。また、無機質複合化処理前後の単板のMOEを測定し、無機質複合化処理に伴って単板に強度性能の変化が生じるかどうかについても検討した。

2. 従来の研究

コロイダルシリカ（colloidal silica）溶液（図8）とは、負に帯電した無定形シリカ粒子が直径10~20nmの集塊状態となって水中に分散してコロイド状をなしているものである。粒子の表面には $-SiOH$ 基および $-OH^-$ イオンが存在し、アルカリイオンにより電気二重層が形成され、粒子間の反発により安定している。この電荷バランスが崩れて粒子同士が接合すると増粘性が起り、ゲル化（固化）、凝集するのである（図9）（日産化学工業（株）、2001）。

コロイダルシリカ溶液の特徴は、①付着・皮膜（固体表面への強固な付着および充填皮膜の形成）、②含浸充填（多孔性物質への侵入充填及び表面平滑化）、③結合・硬化（乾燥または焼結による固いゲルの形成）などがある。用途としては、繊維、製紙、鋳造、窯業・耐火物などの製造分野において利用されている。なお、本研究において供試したコロイダルシリカ溶液（日産化学工

業（株）製 Snow Tex 30）の組成と特性は表1のとおりである（日産化学工業（株）、2001）。

コロイダルシリカ溶液による木材への無機質複合化処理については、古野ら（古野ほか、1997）により研究が始められた。当初はケイ酸塩として水ガラスが用いられ、

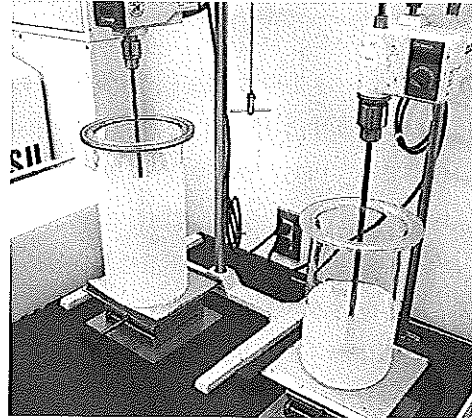


図8 攪拌中のコロイダルシリカ溶液

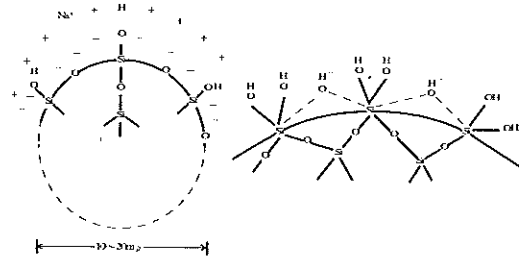


図9 コロイダルシリカ溶液の粒子及び表面状態の概要

表1 コロイダルシリカ溶液（Snow Tex 30）の組成と特性（日産化学工業（株）、2001）

組成と特性	特性値
無水珪酸 (SiO_2) 含有量 (wt %)	30~31
酸化ナトリウム (Na_2O) 含有量 (wt %)	0.6 以下
水素イオン濃度 (pH)	9.5~10.5
粒子径 (nm)	10~20
粘度 (25℃にて) ($mPa \cdot s$)	6 以下
比重 (20℃にて)	1.20~1.22
外観	透明性膠質液
氷結点	0℃

特に水ガラス-ホウ素化合物系処理によって木材に難燃性、耐朽性、耐蟻性などが付与できることがわかった (Takeshi FURUNO *et al.*, 1991), (Takeshi FURUNO *et al.*, 1992), (Takeshi FURUNO *et al.*, 1993)。しかし、水ガラス-ホウ素化合物系処理は、水ガラスと無機塩の両溶液に順次浸せきする二重拡散法で処理するものであった。したがって、アルカリ溶液である水ガラスへの浸せき処理によって、木質部、特に木材表面層付近にアルカリ汚染や劣化などが生じて接着強度の低下 (古野ほか, 1995) や耐摩耗性と硬さの低下 (古野ほか, 1996) などが認められ、課題となった。そこで、アルカリの影響を少なくし、かつ不溶性無機物の固着率を高めることができる無機溶液としてコロイダルシリカ溶液を用いたのであった (古野ほか, 1997)。

コロイダルシリカ溶液自体は表1よりアルカリ性溶液であるが、ホウ素化合物としてホウ酸を重量比で5%加えたコロイダルシリカ-ホウ酸溶液 (以下、CB (colloidal silica-boric acid) 溶液と記す) のpHは中性となり、木材基質を劣化させることなく木材の持つ良い特性を保持しながら無機物の高い固着性と難燃性、耐朽性、耐蟻性など複数の機能を同時に付与できることがわかってきている (古野ほか, 2001), (古野ほか, 1999)。

なお、コロイダルシリカ溶液を用いて無機質複合化処理した木材の特性に関するその他の研究は、例えば山口 (山口, 1994) によって曲げ強度、寸法安定性、無機物の固着状態の観察などについて報告されている程度であり、研究数は極めて少ない。

この無機質複合化処理の大きな特徴は、コロイダルシリカを水系で浸せきする非常に簡単な処理方法だという点である。水ガラスを用いる処理は、前述のとおり、二段階操作による二重拡散法が必要なものであった。しかし、CB溶液による処理は、図10に示すように1段階の浸せき操作で無機質複合化処理することが可能である。

また、コロイダルシリカ溶液や添加するホウ酸は、適正に利用すれば人と地球環境への負荷も少ないという特徴がある。コロイダルシリカ溶液の危険有害性については、火災・揮発性はこの溶液自体が不燃性物質であるので問題はなく、有害性についてはIARC (The International Agency for Research on Cancer: 国際がん研究機関) において、グループ3 (ある条件のもとで

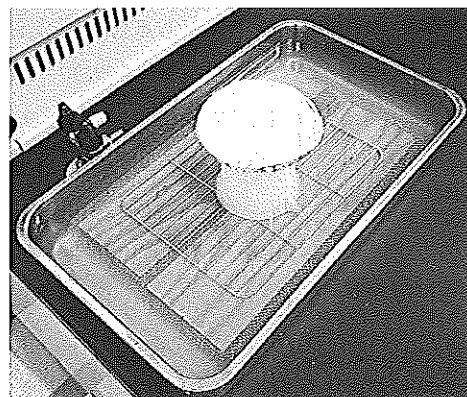


図10 CB溶液によるスギ単板への無機質複合化処理

行われた動物実験から限定された証拠はあるが、それ以外の強い支持証拠はなく、ヒト発ガン性に分類し得ない) に分類されており (日産化学工業(株)化学品事業部 無機材料事業部, 2000)、適正に利用すれば安全な溶液であるといえる。ホウ酸については、哺乳動物が必要以上のホウ酸塩を接種すると、過剰分は腎臓の働きで体外に排出されるため、哺乳動物に対するホウ酸塩の急性毒性は微弱で食塩と同程度である。下等動物では、摂取したホウ酸塩は必ず細胞に到達するため、過剰に摂取すれば死は免れない。害虫や腐朽菌はホウ酸塩に対し耐性を持ち得ず、このことは、木材保存剤としてのホウ酸塩の優れた特徴である (荒川, 2003) ことがわかっている。

CB溶液を用いた無機質複合化処理、水ガラス-ホウ素化合物系溶液を用いた処理、あるいは既存の難燃処理剤など (建築知識編集部, 2001), ((財)日本木材総合情報センター, 2000) を比較したものを表2に示す。なお、これは筆者の独自の考えが含まれているため、直接的な比較は困難な部分もあることを考慮に、あくまでも参考として記載する。

処理溶液のpHについては、水ガラス-ホウ素化合物系溶液は水ガラス溶液がアルカリ性であるため、木質基材の劣化や木材表面のアルカリ汚染が生じる恐れがある。しかし、CB溶液は中性であるのでそのような劣化などが生じることはない。処理設備は、既存法では減圧加圧処理施設などの大型機器を必要とする場合があるが、CB溶液は拡散浸透の1段階処理方法であり、浸せき処理によって無機質複合化が図られる。また、製造時間も短縮化されて製造コストが比較的安くなることが期待できる。コロイダルシリカ溶液自体の価格も市販され

表2 コロイダルシリカ溶液、水ガラス溶液などによる無機質複合化処理方法の比較検討

処理工程及び製品因子		CB 溶液	WB 溶液	既存法
処理工程	溶液 pH	中性	アルカリ性	—
	設備	簡易	簡易	減圧加圧
	含浸工程	1 段階	2 段階	1 段階
	コスト	安	高	高
	有害性	低	中	低
製品	難燃性	高	高	高
	耐溶脱性	高	中	中
	素材感	保持	中	中

注) CB溶液：コロイダルシリカ-ホウ酸溶液
WB溶液：水ガラス-ホウ素化合物系溶液

ている木材防腐剤などよりも比較的安価である。

このように、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理は、処理溶液自体の安全性が保たれており、処理方法も比較的簡易で低コスト化が図られ、木材製品の高付加価値化を可能とする方法であるといえる。

3. 研究の概要

本研究では、島根県産のスギ材とコナラ材の利用技術の開発を目的として、ロータリーレースによりスギ材とコナラ材の単板を製造し、コロイダルシリカ-ホウ酸溶液（以下、CB溶液と記す）により無機質複合化処理を施してその難燃性と耐候性などの性能評価を行った。また、スギ単板とコナラ単板を複合化する異樹種複合LVLへの応用を検討するために、まずスギ材とコナラ材の製材と単板について基礎的な強度特性を把握し、次に異樹種複合LVLを製造してその曲げ性能を検討した。さらに、異樹種複合LVLの構造用途への利用を想定して耐火性の付与について基礎的な研究を行った。無機質複合化処理単板（以下、WMC単板と記す）をLVLに積層接着し、燃焼処理を施してから曲げ試験を実施して曲げ強度（以下、MORと記す）の残存割合などを測定した。

本研究の概要を以下に示す。

第1章では、CB溶液により無機質複合化処理したスギ単板とコナラ単板の難燃性の評価について検討した。

スギ材とコナラ材を合板やLVLに利用するために、

これらのロータリー単板を製造した。構造部材の用途として利用するためには構成エレメントである単板に難燃性を付与し、構造材料として耐火性能を保証することが必要となってくる（坂本，2000）。そこで、CB溶液を用いて単板に無機質複合化処理を施し、単板への難燃性の付与とその評価を試みた。難燃性の評価は、酸素指数による燃焼性試験により行った。また、燃焼後の炭化試験片をEPMA（X線微小部分分析法）により観察して無機物の固着状態を確かめた。さらに、マイクロバーナーを用いた実証的な燃焼性試験を行って、酸素指数の値が実証的な燃焼試験においても難燃性を示しうるものなのかどうかあわせて考察した。

第2章では、コロイダルシリカ溶液とホウ酸などにより無機質複合化処理したスギ（辺材）単板とコナラ単板について、これらの処理に伴う色調変化と、屋外での利用を想定した耐候性の評価について検討した。

木材への無機質複合化処理は木材表面への無機物の固着を伴う。したがって、実際の利用を考えると木材の特性を残しながら目的に応じて適正に行う必要があると考えられている（鈴木ほか，1999）。また、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理は、難燃性や耐朽性などの向上が報告されている（古野ほか，2001）、（古野ほか，1997）ことから、今後、屋外で利用されているエクステリアウッドなどへの利用が期待される。エクステリアウッドの用途においては、日光や風雨に対する抵抗性を示す耐候性が重要な性能の1つとなる（雨宮，1991）ことは明らかである。

そこで、まずコロイダルシリカ溶液とホウ酸溶液などによる3条件の無機質複合化処理をスギ（辺材）とコナラの単板に施し、各処理に伴う色調変化を測色して著しい変色が生じないかどうか検討した。次に、これらのWMC単板に耐候操作による溶脱処理とウェザーメーターを用いた促進耐候性試験を行い、色調変化の測色と単板の表面状態の変化を観察してWMC単板の耐候性について評価を試みた。

第3章では、まずコナラ材とスギ材の製材や単板などの基礎的な強度特性を把握し、次にコナラ単板とスギ単板との複合化による異樹種複合LVLの製造とその曲げ性能について評価した。

コナラ材は重硬な材質を呈している（平井，1996）が、

ミズナラ材よりも材質は劣る（佐竹ほか，1989），（日本材料学会木質材料部門委員会，1982）とされ，また乾燥による割れや狂いが生じやすいために雑木として軽んじられてきた（建築知識編集部，2002）背景がある。したがって，コナラ材の利用を進める上でその強度特性に関する資料は非常に少ない（錦織ほか，1989）。そこで，まずコナラ製材の曲げ試験と圧縮試験を行って基礎的な強度特性を把握した。次に，LVLに利用するためにコナラ単板とスギ単板を製造し，その曲げヤング係数（以下，MOEと記す）を測定して単板のMOEの分布特性を検討した。そして，これらの単板を用いて単板構成条件の異なる数種類の異樹種複合LVLを製造し，曲げ試験を行ってMOEとMORを求めてその単板の構成方法などについて検討を行った。

第4章では，WMC単板のLVLへの応用を検討するために，CB溶液により無機質複合処理したスギ単板とコナラ単板をLVLに積層し，その曲げ性能と燃焼処理後の曲げ性能を検討した。また，WMC単板のMOEの測定も行った。

LVLに耐火性を付与するための基礎的研究として，CB溶液による無機質複合処理をスギ単板とコナラ単板に施し，これらをLVLの外層部分に積層接着した。そして，マイクロバーナーによって燃焼処理を施して断面欠損を生じさせた後に曲げ試験を行い，無処理のLVLに対するMORの残存割合を検討した。また，無機質複合処理したスギ単板とコナラ単板のMOEを測定し，処理によって単板のMOEに変化が生じるのかどうか検討するとともに，WMC単板を積層したLVLの曲げ試験もあわせて実施した。

第1章 コロイダルシリカーホウ酸溶液によって無機質複合処理したスギ単板とコナラ単板の難燃性評価

1.1 緒言

島根県の森林資源で蓄積量の多い針葉樹材のスギ材と，用途がチップ用材やシイタケ用原木などに限られている広葉樹材のコナラ材を合板や単板積層材（以下，LVLと記す）などに利用するために，ロータリー単板を製造した。合板やLVLなどの木質材料を構造用として利用するためには，構成エレメントへの難燃性付与に

よる耐火性能の向上が重要な因子の1つとなりうる（坂本，2000）。構成エレメントとなる単板は，厚みが約3mmで裏割れが生じており，薬品処理が容易である（林，1998）。そして，合板やLVLでは処理単板を選択的に断面設計することも可能である。

これまでの研究では，水ガラス-ホウ素化合物系溶液（古野ほか，1995），あるいはケイ酸塩-ホウ素化合物系溶液（古野ほか，2001）による難燃性の改良が試みられている。これらの処理により難燃性は向上したが，前者はアルカリ溶液であるため木質部の劣化と不溶性無機物の形成率が低いという問題が認められた。しかし，後者でケイ酸塩としてコロイダルシリカ溶液を用いた場合，処理溶液のpHは中性であり，木質部を劣化させることなく耐蟻性，耐光性などの改良が達成されている（古野ほか，1999）。

そこで，合板やLVLなどに耐火性能を付与するために，コロイダルシリカーホウ酸溶液による無機質複合処理をスギ材とコナラ材の単板に施し，難燃性の付与とその評価を試みた。

無機質複合処理した単板の難燃性の評価は，既報（古野ほか，2001）に準じて酸素指数による燃焼性試験により行った。また，燃焼後の炭化試験片をEPMA（X線微小部分分析法）により観察して無機物の固着状態を確かめた。

酸素指数とは「所定の試験条件下において，材料が燃焼を持続するのに必要な酸素中の容量パーセントで表される最低酸素濃度の数値」である。酸素指数法による結果は数値で表すので物質の燃焼性の相対評価が可能で，再現性が良く，数値に信頼性が高いといわれ，プラスチック業界では品質管理などに利用されている（吉村ほか，1980）。しかし，木材は樹種固有の組織構造，さらには生育環境によってその材質は大きく異なっている。また，この酸素指数法の結果から実際の火災状況下における木材の難燃性の評価は困難であると考えられる。

そこで，マイクロバーナーを用いた実証的な燃焼性試験をあわせて行い，無機質複合処理した単板の難燃性の評価を試みた。さらに，酸素指数の値がこの実証的な燃焼性試験において難燃性を示しうるものなのかどうかあわせて検討した。

1. 2 試験方法

1. 2. 1 供試単板

島根県産のスギ (*Cryptomeria japonica* D. Don) 辺材と心材およびコナラ (*Quercus serrata* Thunb. ex Murray) のロータリー単板を供試した。その寸法を210 (L) × 110 (T) × 3.5 (R) mmに調整し、スギ辺材34枚、心材27枚、コナラ47枚を供試した。

気乾状態の単板を60℃で24時間予備乾燥し、続いて50℃で24時間の真空乾燥 (P₂O₅存在下) を施して全乾状態とした。全乾重量などを測定した後、蒸留水中に1週間以上浸せきさせて飽水状態に調製し、無機質複合化処理を施した。

1. 2. 2 無機質複合化処理溶液の調製と浸せき処理

無機質複合化処理溶液は、コロイダルシリカ溶液 (日産化学工業(株)製 Snow Tex 30, 無水ケイ酸含有量30~31wt%) にホウ酸を重量比で5%加え、30分間攪拌して調製した。なお、コロイダルシリカ溶液のpHは10.92のアルカリ性であったが、重量比5%のホウ酸を添加するとpHは6.47の中性付近となり、古野らの報告 (吉野ほか, 2001) と同様にこの処理による木質部の劣化は生じないことを確認している。

飽水状態の単板を室温下でこの溶液中に24時間浸せきした。その後、室温下で30分間風乾し、単板中に含浸したコロイダルシリカをゲル化して固着させるために1. 2. 1項と同様な方法で固着乾燥を行った。そして、真空乾燥を行って全乾状態の無機質複合化処理 (以下、WMCと記す) 単板の重量などを測定して重量増加率 (% 以下、WPG (weight percent gain) と記す) を算出した。

1. 2. 3 溶脱処理

溶脱処理はJIS K 1571 (1998) に準じ、水中攪拌による溶脱操作を8時間施し、次に60℃の揮散操作を16時間施した。これを1サイクルとして計10サイクルの溶脱処理を行った。製造したWMC単板のうちスギ辺材9枚、心材7枚、コナラ11枚、さらに各無処理単板12枚を処理した。溶脱処理終了後にWPGを求め、溶脱処理前後のそれらより不溶性無機物の固着率 (%) を算出した。

1. 2. 4 酸素指数による燃焼性試験

酸素指数 (以下、OIと記す OI: oxygen index, 単板が有炎燃焼を維持するのに必要な酸素と窒素の混合ガスの最小酸素濃度 (容量%)) による燃焼性試験は、JIS K 7201 (1999) に準じ、図1-1に示すような燃焼性試験器 (スガ試験機(株)製 ON-1型) により行った。

単板は全乾状態に調製し、WMC単板と無処理単板、さらに溶脱処理を施したそれらを供試した。WMC単板1枚から100 (L) × 50 (T) × 3.5 (R) mm寸法のを4枚ずつ切り出し、各条件16枚を試験した。なお、供試したWMC単板のWPGは、無機質複合化処理前の全乾時密度を利用して、寸法100 (L) × 50 (T) × 3.5 (R) mmの推定全乾重量を算出しこれを用いて検討している。

試験は室温約10℃、燃焼用ガラス円筒内温度約20℃の温度条件のもと、単板をガラス円筒内に繊維方向を垂直に設置して行った。OIの初期値は既報の値 (古野ほか, 2001), (吉村ほか, 1980)などを参考とし、それ以後は試験結果やWPGを参考に0.5%刻みで変更した。着火前に約30秒間混合ガスを円筒内に流して雰囲気を作った。着火源はLPガスを使用し、点火器の炎の大きさを16mm程度として単板に約5秒ずつ2, 3回の着火を試みた。着火部位は、上端木口から裏割れない板目面にかけて6mm下がったあたりの位置とした。

このような着火方式により、単板に着火して有炎燃焼を3分間維持するか、もしくは単板が60mm以上燃焼す

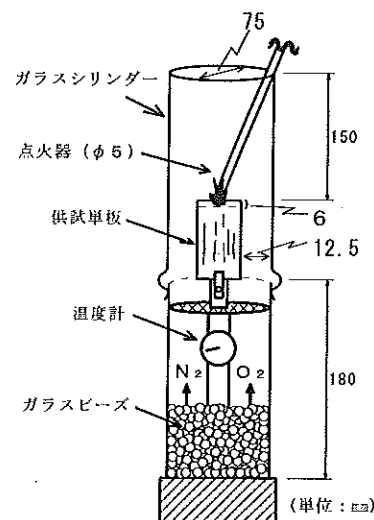


図1-1 酸素指数による燃焼性試験器の燃焼コラム装置部

る時の最小OIを求めた。また、燃焼時間、残炭率(%) (古野ほか, 2001), 燃焼挙動などもあわせて観察した。

1. 2. 5 EPMAによる炭化試験片の観察

EPMA観察は既報(古野ほか, 2001)のとおり, 観察用の炭化試験片をOIによる燃焼性試験後の炭化した単板より採取した。炭化した単板から横断面が3×5mm程の小ブロックを採取し, 破断面を観察面とした。イオンパタリング装置(日本電子製 JFC-1100)を用いて真空中で金蒸着を施し, EPMA(日本電子製 JEOL JXA733)により観察した。細胞内腔や細胞壁中の無機物の存在と分布を二次電子像で観察し, またケイ素(Si)のX線像も観察した。

1. 2. 6 ミクロバーナーによる燃焼性試験

ミクロバーナーによる燃焼性試験は, 古野らの報告(古野ほか, 1997)に準じて行った。2枚の単板を積層接着した試験体を水平に設置し, 試験体の下面を加熱してその際の上面温度を熱電対により測定した。

試験体は, 節など欠点のないスギ辺材単板(上面: 温度測定面)と, WMC単板あるいは無処理単板(下面: 加熱面)をレゾルシノール樹脂(大鹿振興(株)製 大鹿レジン D-33N)によりホットプレスで積層接着して製造した。試験体寸法は200(L)×100(T)×6(R)mm, 供試体数は加熱面の違いによって無処理スギ辺材5体, 無処理コナラ5体, WMCスギ辺材5体, WMCスギ心材9体, WMCコナラ5体とした。

試験は, 室温約10℃のもとで周囲を風防で取り囲んで行った。ミクロバーナーの口径直径は10mmでLPガスを利用し, 試験体下面との距離は100mmに調整した(図1-2)。なお, ミクロバーナーの炎の先端付近の温度は試験開始後7分間で400℃に達し, その後は試験終了時まで430~450℃で平衡状態であった。

WMCスギ心材のうち4体については, 意図的にその距離を80mmに近づけて直接火炎を当てて試験し, WPGとOIの回帰直線式より推定されるOI値との関係を比較検討した。温度測定は, 試験体上面中央部1ヵ所とその左右70mmの位置2ヵ所の合計3ヵ所とし, K熱電対温度計(TYPE K JIS 2 400mm, 直径8mm)により3秒間隔で測定した。なお, 熱電対による熱損失は全

て同等であるとみなして検討した。

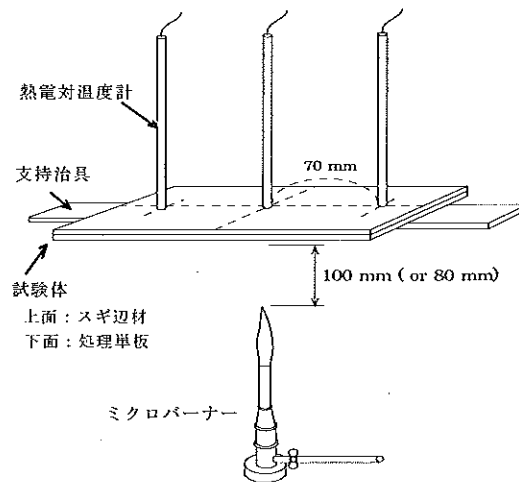


図1-2 ミクロバーナーによる燃焼性試験

1. 3 結果と考察

1. 3. 1 WMC単板のWPG

WMC単板の溶脱処理前のWPGはスギ辺材53.3%, スギ心材50.2%, コナラ14.1%となり, 溶脱処理後はスギ辺心材とも40%以上となり, コナラで10%程度となった(図1-3)。WPGは溶脱処理前後ともスギ辺心材単板で大きくなっているが, これは樹種の組織構造が影響しているものと考えられる。針葉樹材であるスギ材の主要構成細胞は仮道管でその比率は97.2%(古野ほか, 1994)を占めている。広葉樹材であるコナラ材の場合, 組織構造がほとんど同様であるミズナラ材と比較すると, 道管は12.6%(古野ほか, 1994)しか占めておらず, 空隙が少なく, 溶液の浸透性が低いことが影響しているものと考えられる。供試単板の全乾時密度を測定した結果, スギで0.30g/cm³, コナラで0.66 g/cm³となり, コナラ単板の全乾時密度がスギ単板のそれよりも約2倍大きいことから伺える。

スギ材の心材部には心材成分が沈着(城代ほか, 1993)しており, また石川ら(石川ほか, 2003)によると壁孔の破壊率は心材のほうが辺材よりも小さいため, ホウ素含有量も心材が小さくなったと報告している。しかし, 本研究においては辺心材でWPG, さらに後述のとおり難燃性などに大きな違いは認められていない。これは, 材料が単板であり, 単板製造時に裏割れも生じるため, 処理溶液が辺心材単板に同等に含浸しやすかったためと

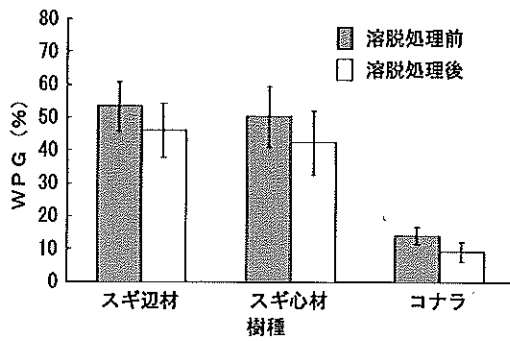


図1-3 溶脱処理前後でのWMC単板のWPG (エラーバーは標準偏差を示す)

思われる。古野らの研究(古野ほか, 1997)では、厚さ3mm程度のスギ挽き板に同じ処理を施している。このWPGは辺材30.8%, 心材24.1%と報告されており、本研究と比較すると、単板は含浸性が高いことがわかる。

なお、体積膨潤率はスギ辺材2.4%, スギ心材4.4%, コナラ5.4%となり、挽き板のようにWPGと明確な比例関係は認められなかった。これは、WMC単板では割れの拡大やあばれの発生が観察されたことから、これらの影響があるものと考えられる。

1. 3. 2 溶脱処理に対する不溶性無機物の固着率

図1-3における溶脱処理前後のWPGから不溶性無機物の固着率を求めた結果を表1-1に示す。スギ辺心材単板では80%以上と大きくなり、溶脱処理前のWPGと相関関係($R=0.43\sim 0.85$)が認められた。したがって、細胞内腔あるいは細胞壁に固着した無機物の絶対量が多いほど固着率は大きくなり、特に単板の内層部に形成される無機物が固着率に影響するものと考えられる。

古野らの研究(古野ほか, 1997)での固着率は約94%であると報告されている。しかし、本研究ではそれより小さい値を示した。これは単板の裏割れや製造工程で生じた微細な割れなどが影響しているものと考えられる。単板を合板やLVLに構成する際は、裏割れの生じている面が積層接着される。したがって、裏割れ部分からの

表1-1 溶脱処理後の不溶性無機物の固着率

固着率 (%)	スギ辺材	スギ心材	コナラ
平均値	80.4	84.6	62.8
標準偏差	1.8	1.6	7.2
単板枚数	7	9	11

無機物の溶脱は生じないわけであるが、この点については今後さらなる検討を要する。

1. 3. 3 酸素指数による燃焼性試験結果

(OI, 燃焼時間, 残炭率)

OIは図1-4に示すとおり、全ての無処理単板では樹種による違いや溶脱処理の影響は認められず、吉村ら(吉村ほか, 1980)の報告と同様に22%となった。WMC単板では、一般に着火が困難となり、OIを高く設定しないと着火できず、また燃焼を維持できない傾向が認められた。WMC単板のOIは著しく向上してスギ辺材56.5%, スギ心材57.0%, コナラ32.5%となった。着火が困難であることは木材の燃焼における発熱や発煙を抑制することに有効であることから、WMC単板の高い難燃性が示された。溶脱処理によってOIは低下し、それぞれ32.0%, 31.0%, 24.5%となった。しかし、無処理単板より高いOIを示しており、WMC単板の難燃性は溶脱処理後も保持されていた。

燃焼時間として、単板への着火が確認された後、有炎燃焼(木材活用辞典編集委員会, 1994)を継続した平均時間を表1-2に示す。WMC単板では無処理単板より

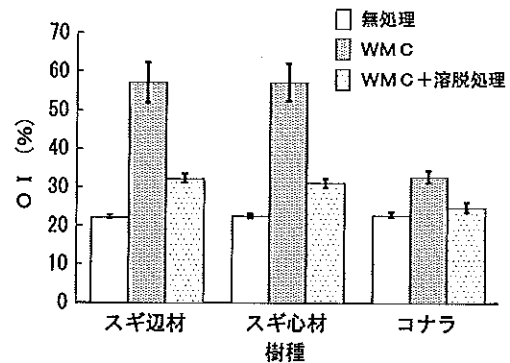


図1-4 溶脱処理前後の無処理単板とWMC単板のOI測定結果

表1-2 OIによる燃焼性試験における無処理単板とWMC単板の燃焼時間

単板条件	燃焼時間 (秒)		
	スギ辺材	スギ心材	コナラ
無処理 (溶脱前)	182	155	376
" (溶脱後)	202	205	428
WMC (溶脱前)	201	227	415
" (溶脱後)	188	210	439

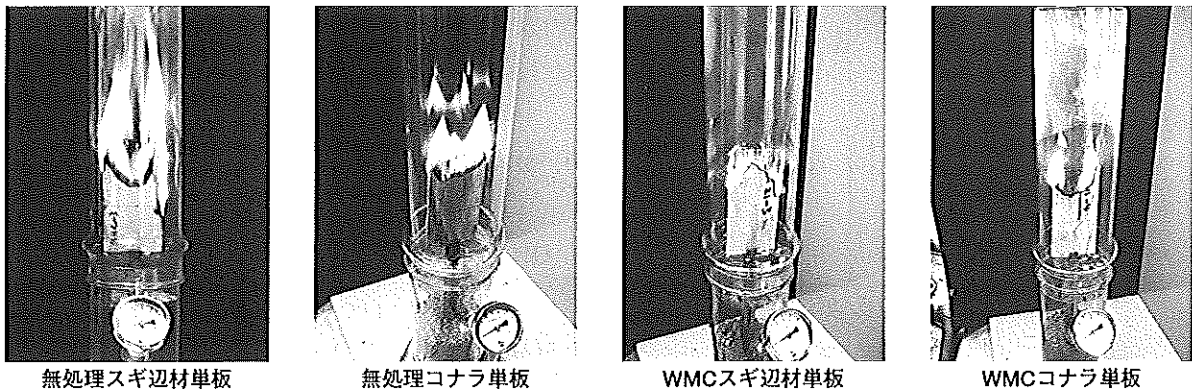


図1-5 OIによる燃焼性試験における各単板の燃焼挙動

も20~70秒程度長くなっていることがわかる。溶脱処理後も無処理単板より長い燃焼時間を示している。

図1-5に各単板の燃焼挙動の様子を示す。無処理スギ辺材単板は、赤色の大きな炎を生じながら激しい有炎燃焼を示し大量の煙が発生した。無処理コナラ単板では、小さな炎でゆっくりと燃焼した。WMC単板は、上端木口面から側面へ延焼して有炎燃焼となるものが大半であり、単板の板目面が先行的に燃焼するものはほとんど見られなかった。火炎は非常に小さく緑色を呈し、燃焼速度も緩やかで燃焼時間は長くなった。また、煙の発生はほとんど観察されなかった。

WMC単板では、単板製造時板目面に繊維直角方向に付いたガンギローラーの針傷跡の部分で燃焼の進行が止まるものが多数認められた(図1-6)。これはこの針傷がインサイジング効果(井上, 1972)を付与し、単板内層部への無機物の固着を促したためと考えられる。

溶脱処理後のWMC単板は、単板表層部分の無機物が溶脱されているため着火は比較的容易であった。しかし、単板内層部の無機物は固着しているため燃焼速度は溶脱処理前のもっと大きく変わらず、燃焼時間は溶脱処理前よりわずかに短い結果となった。そして、炭化物は赤熱燃焼(木材活用辞典編集委員会, 1994)が長く続いていた。

単板の燃焼に関与した部分における炭化重量割合(古野ほか, 2001)である残炭率を図1-7に示す。無処理スギ辺材単板は10%程度、無処理コナラ単板は2.5%ほどであったが、WMC単板では著しく向上し、WMCスギ辺材単板は34.2%、心材単板は28.7%、WMCコナラ単板では29.0%となった。これは、細胞内腔あるいは

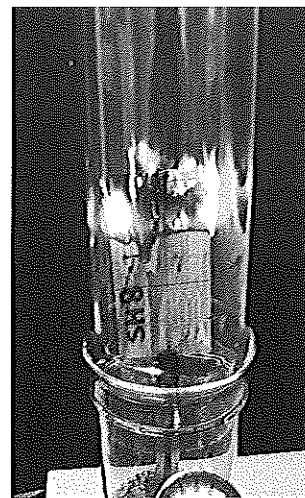


図1-6 WMC単板で観察された板目面での“インサイジング効果”

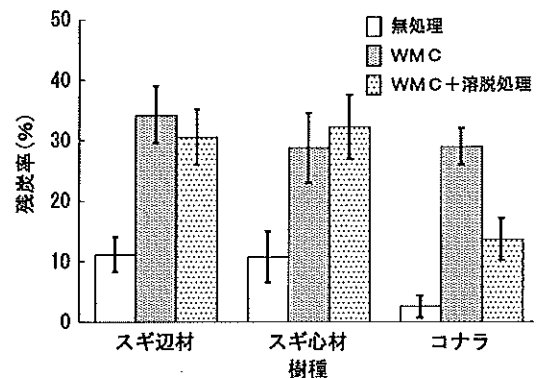


図1-7 OIによる燃焼性試験における残炭率の測定結果

細胞壁に固着している無機物が細胞壁の熱分解を抑制して炭化物の形成に寄与しているためと考えられる。溶脱処理後でもWMCスギ辺材単板では約30%を維持していることがわかる。これは、前述のとおり、単板表層の無機物は溶脱するが、単板内層の無機物は固着している

ため、残炭率は溶脱処理前と変わらず高い値になったものと考えられる。

1. 3. 4 酸素指数による燃焼性試験におけるWPGとOIとの関係

WMC単板のWPGとOIによる燃焼性試験の結果より得られたOIの値との関係を図1-8に示す。無処理あるいはWMCスギ辺心材単板のWPGとそれらのOIの間には強い相関関係が認められ、相関係数は溶脱処理前0.97、溶脱処理後0.92と高くなった。図1-8には示していないが、コナラ単板についても相関関係が認められ、相関係数は溶脱処理前0.93、溶脱処理後0.81であった。図1-8より得られた回帰直線式よりスギ辺心材単板、さらにはコナラ単板についてもWPGからOIが予測できることが可能となった。スギ単板の溶脱処理後のプロットで高いWPGでありながらOIが低いものが認められる。これは、前述のとおり、単板表層の無機物が溶脱され、着火が容易となったことが影響しているものと考えられる。着火は容易になったが、これらの燃焼時間は溶脱処理前と比較して短くはなっていない。

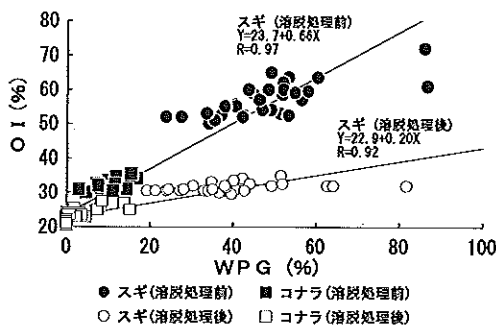


図1-8 OIによる燃焼性試験における単板のWPGとOI値との関係

1. 3. 5 炭化試験片のEPMA観察

OIにより燃焼性試験した炭化試験片をEPMAで観察した結果について、無処理スギ辺心材単板の横断面の二次電子像を図1-9に示す。仮道管全体が著しく異常に収縮し、また収縮しなかった仮道管部分が所々に散在している様子が見られる(図1-9A)。さらに注目されるのは細胞壁の薄壁化が進行していることであり、拡大像(図1-9B)からも明らかである。このことは、無処

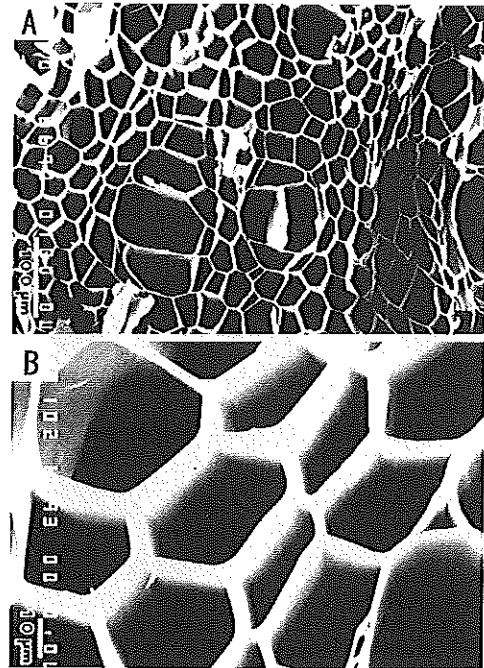


図1-9 無処理スギ辺心材単板の横断面二次電子像

理単板では残炭率が小さくなり、炭化部分が容易に砕けやすいことを裏付けている。

WMCスギ辺心材単板の横断面についてのEPMA観察結果を図1-10に示す。図1-10Aより、仮道管内腔にシリカが点在するようにして充填、固着している様子がわかる。別の部位では、試験片の表面付近あるいは試験片内部の早材部仮道管内腔に局所的にシリカが集中して存在しているのが認められた。コロイダルシリカ溶液系で含浸処理した無機質複合体では、図1-10Bに示すように、シリカが固体状で内腔を充填することはこれまでの研究で報告されている(古野ほか, 2001)。また、仮道管は全体的に均一に収縮しているが、無処理単板に見られたような異常な収縮は生じなかった。さらに、仮道管壁の薄壁化もみられず元の形態をほぼ保っていた(図1-10B)。図1-10CのX線像からケイ素は細胞内腔を充填しているシリカのみならず、細胞壁にも分布していることが明らかである。既報(古野ほか, 2001)と同様に細胞壁にシリカの他にホウ素化合物(ホウ酸)も存在していることが考えられ、この両成分が難燃性を付与し、燃焼による細胞壁の薄壁化を阻止して残炭率と燃焼時間が無処理単板よりも優れていたものと推察される。

コナラ単板で無処理とWMC単板の横断面の二次電子

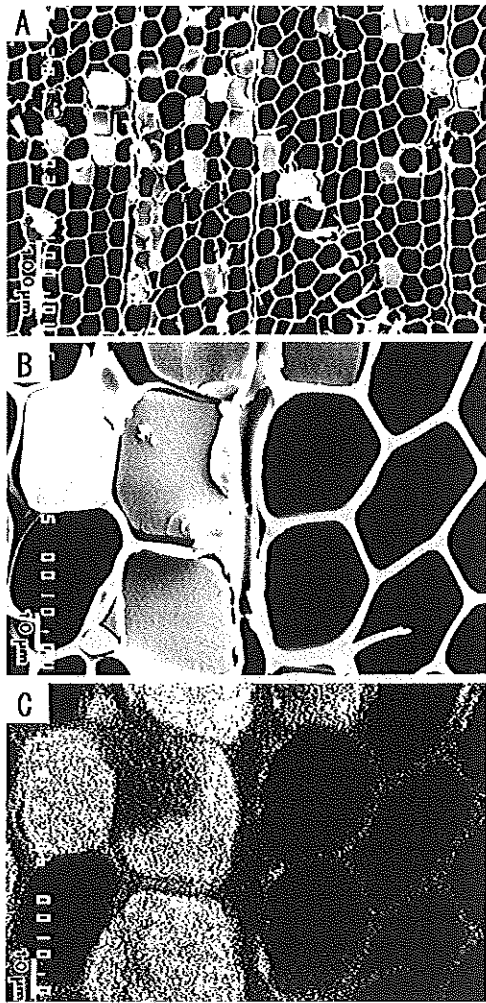


図1-10 WMCスギ辺材単板の横断面における二次電子像 (AおよびB) とSi-K α 1X線像 (C)

像を図1-11に示す。無処理コナラ単板では、組織の異常収縮や破壊、亀裂が観察され、特に道管の変形による扁平化が顕著に認められた (図1-11A)。それとは対照的にWMCコナラ単板では組織構造の変形は非常に少なく、道管内腔をシリカが固体状に充填あるいは道管の内壁をコーティングするように付着していた (図1-11B)。道管以外の木部繊維などへのシリカの分布は非常に少なかった。

WMCコナラ単板の横断面について二次電子像とその部位のX線像を図1-12に示す。これは、細胞内腔へのシリカの分布が見られなかった晩材部小道管およびその周辺の木部繊維と軸方向柔細胞の炭化状態を示しているが、図1-12Aより細胞壁の薄壁化は生じていないことがわかる。細胞内腔にシリカが存在していないにもかかわらず、道管壁や木部繊維壁にケイ素の分布が検出され

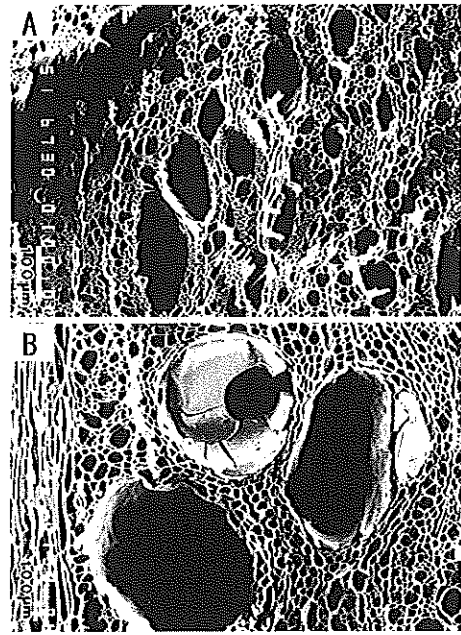


図1-11 無処理コナラ単板 (A) とWMCコナラ単板 (B) の横断面の二次電子像

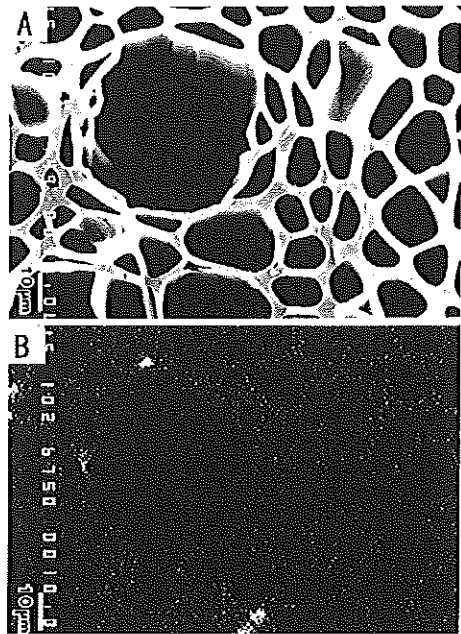


図1-12 WMCコナラ単板の横断面における二次電子像 (A) とSi-K α 1X線像 (B)

たことが注目される (図1-12B)。このことは、コロイダルシリカ溶液の含浸処理中に拡散浸透によってシリカが細胞壁中に固着したことを意味している。この細胞壁中のシリカの存在がホウ酸とともに難燃性の向上に寄与していると考えられる。

1. 3. 6 ミクロバーナーによる燃焼性試験結果

(燃焼面単板がおよぼす上面温度への影響)

各単板について代表的な温度曲線の一例を図1-13に示す。無処理コナラ単板は、大半が8分程度で有炎燃焼

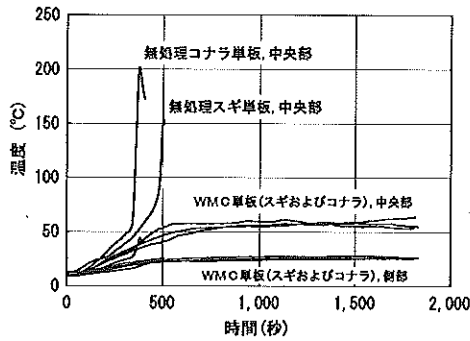


図1-13 ミクロバーナーによる燃焼性試験における燃焼時間と温度との関係(試験体下面とマイクロバーナーとの距離100mm)

状態となった。無処理スギ辺心材単板も短いもので8分、長くても20分程度で有炎燃焼状態となって上面スギ辺心材単板に延焼するかもしれない試験体中央部が燃え抜けた(図1-14(図左))。また、試験後の試験体下面の燃焼面は、図1-14(図右)に示すように、炭化部分が大きくなった。

これに対し、WMC単板では上面の温度上昇が約250~500秒にかけて緩やかになっていることが見てわかる。WMC単板を燃焼面に構成したものの大半は、30分間燃焼を続けても着火することはなかった(図1-15(図左))。これは、ホウ素によって不活性化炭化層が形成され酸素と熱の供給を妨げ(屋我ほか, 1997)、可燃性ガスの発生を抑制しているためと考えられる。試験後の燃焼面は、図1-15(図右)に示すように、無処理スギ辺心材単板よりも炭化部分が小さくなった。

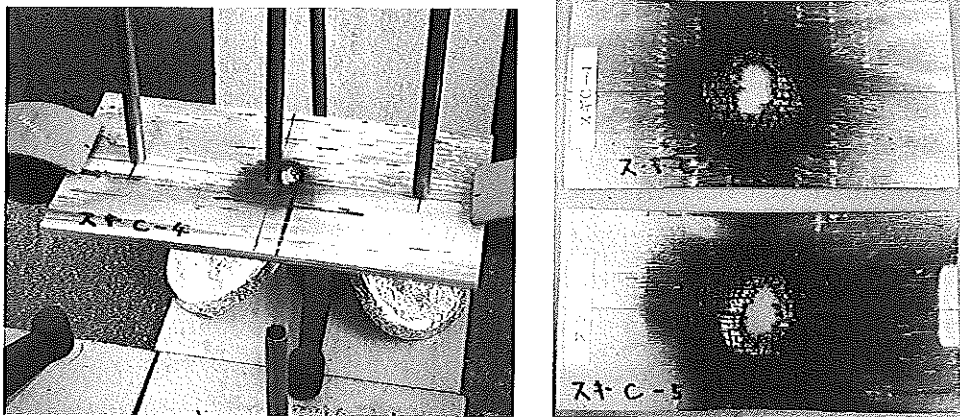


図1-14 燃焼面が無処理スギ辺心材単板での燃焼挙動(図左)と試験後に観察した燃焼面の炭化部分(図右)

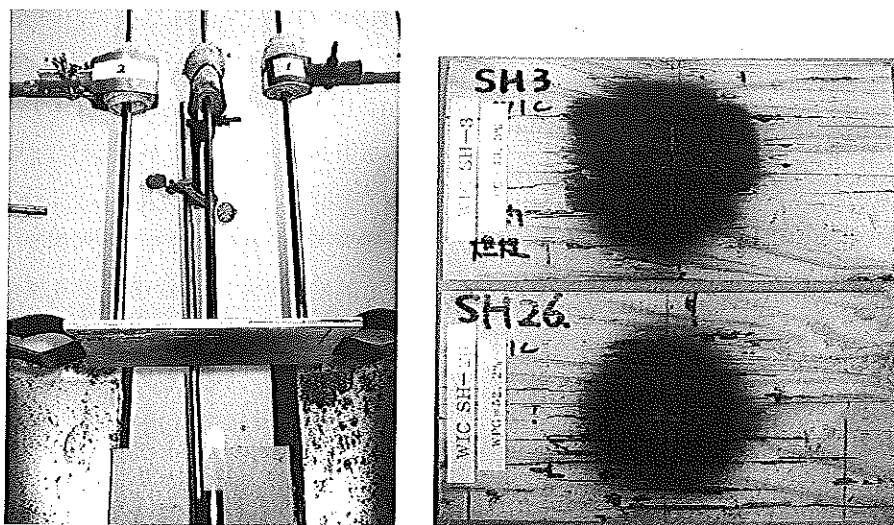


図1-15 燃焼面がWMCスギ辺心材単板での燃焼挙動(図左)と試験後に観察した燃焼面の炭化部分(図右)

燃焼される下面がWMCスギ辺心材単板のものでは、上面温度が60℃以上を記録することはなかった。しかし、WMCコナラ単板のものでは60～70℃以上を記録するものが認められた（図1-13）。これは、試験体下面（燃焼面）に構成したWMCコナラ単板のWPGは12%程度であるのに対し、スギ辺心材単板のそれは50%程度であったことから、WPGの低いコナラ単板では上面スギ辺心材単板への熱の伝導を抑制できなかつたと考えられる。

1. 3. 7 ミクロバーナーによる燃焼性試験結果 (燃焼面単板のWPGとOIとの関係)

燃焼面となる下面にWMCスギ心材単板を積層接着し、ミクロバーナーとの距離を80mmとして燃焼性試験を行った結果を図1-16に示す。なお、図中に示したOI値は、図1-8で得られたWPGとOIの回帰直線式より求めた推定OIを示している。これより、推定OIが60%以上になるならば、直接火炎が当たっても発炎することはない、上面温度の上昇を抑制していることがわかる。炭化層の形成部分も小さくなっていたので、高い難燃性を示すことがわかった。

上杉ら（上杉ほか，1999）によると、LVLの炭化速度は毎分0.6～0.7mmと報告されている。本実験において供試した試験体は、加熱面にWMC単板を積層し、その上面に無処理スギ辺心材単板を積層して厚さを6mmに調整している。試験体は約20～30分間燃焼しても完全に炭化することはない、また燃え抜けることもなかった。単板の難燃性は向上しているの、一般的なLVLと同

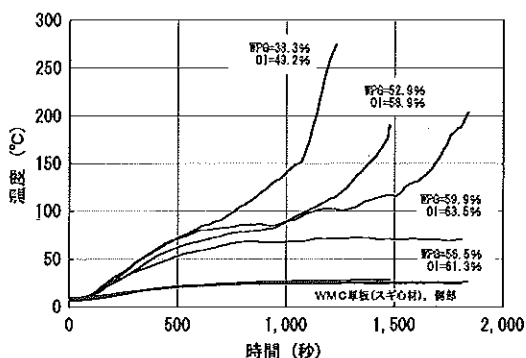


図1-16 ミクロバーナーによる燃焼性試験における燃焼時間と温度との関係（試験体下面とミクロバーナーとの距離80mm）

注) 図中のOI値は図1-8の回帰直線式より算出した

等以上の難燃性を付与することが可能になるものと期待される。

本実験は、2枚の単板を積層接着してその下面を燃焼させ、上面の温度を測定して評価を試みている。WMC単板の用途として構造用LVLなどを想定しており、WMC単板を積層したLVLの燃焼性試験を実施して、実際の使用状況下により近い状態での耐火性の評価を行う必要がある。

また、現在建築基準法における難燃材料、準不燃材料、不燃材料などの認定は、コーンカロリメータを用いた試験方法が採用されるようになってきている。このコーンカロリメータを用いた評価方法と既存のJISに準じた評価方法の整合性は現在検討されており（Subyakuto, Bambang Subiyanto *et al.*, 2003）、コロイダルシリカ溶液を用いて無機質複合処理した単板（木材）などの難燃性の評価においても、今後コーンカロリメータを用いた評価も実施する必要がある。

1. 4 まとめ

スギ辺材、心材単板とコナラ単板を製造し、難燃性の付与を目的としてコロイダルシリカ-ホウ酸溶液によるWMC単板を製造した。難燃性の評価はOIによる燃焼性試験を行い、あわせて炭化試験片のEPMA観察を行った。また、実証的な燃焼性試験としてミクロバーナーによる燃焼性試験もあわせて行った。

WMC単板のWPGはスギ辺心材単板で約50%、コナラ単板で約14%となった。溶脱処理を施した後も高いWPGを維持し、不溶性無機物の固着率はそれぞれ約80%、62%となった。

OIによる燃焼性試験の結果、OIは無処理単板では全ての単板が22%であったが、WMC単板ではスギ辺心材単板で約57%、コナラ単板でも約33%と大きくなった。溶脱処理後はそれぞれ31%、24%程度に低下したが、それでも無処理単板より高い難燃性を維持していた。燃焼時間と残炭率はWMC単板では改良されていた。溶脱処理後、単板表層の無機物は溶脱されるが、単板内層の不溶性無機物が効果的に作用し、燃焼時間と残炭率に著しい低下は認められなかった。

OIによる燃焼性試験後の炭化試験片について、EPMA観察を行った。無処理スギ辺心材単板では、細胞

壁の薄壁化が各所に認められ、残炭率に影響を及ぼしていることがわかった。無処理コナラ単板では、道管の扁平化などが認められた。しかし、WMCスギ辺材単板では、無機物は局所的あるいは分散して仮道管内腔に充填し、また細胞壁中にも広域的に固着していた。WMCコナラ単板では、無機物が道管の内腔を充填していた部位と道管内腔の内壁をコーティングするように付着している2種類の部位が観察された。

WPGとOIの間にはスギ単板とコナラ単板ともに強い相関関係が認められ、得られた回帰直線式を用いてWPGからOIを推定することが可能となった。

マイクロバーナーによる燃焼性試験の結果、WMC単板では試験体上面の温度上昇が緩やかとなった。WPGの高いWMCスギ辺材単板では、30分間燃焼しても着火は認められず、炭化の進行は抑制されていた。

WMCスギ材単板を加熱面に積層し、マイクロバーナーとの距離を80mmとして直接火炎を当てて試験を行った。その結果、WPGが50%以上の単板でWPGとOIとの回帰直線式から求められるOIが60%以上になると、実際の燃焼挙動に類似した状況下における難燃性がより高くなる傾向が認められた。

第2章 コロイダルシリカ溶液による無機質複合化処理単板の色調変化と耐候性評価

2.1 緒言

コロイダルシリカ溶液による木材の無機質複合化処理は、ホウ酸を加えることによって溶液のpHが中性となり、木材基質を劣化させることなく無機物の高い固着性と難燃性、耐朽性、耐蟻性などの向上が図られることがわかっている(古野ほか, 2001), (古野ほか, 1997), (古野ほか, 1999), (後藤ほか, 2004), (古野ほか, 2004)。また、この溶液の木材中への含浸処理は浸せき処理のみの一工程であり、処理溶液も人体に低毒性であることから(古野ほか, 1999)、例えばスギ間伐材をはじめとする低質材を用いた内装材料や外壁材などへの難燃性付与技術として実用化が期待できるものである。

しかし、一般的に無機質複合化処理による木材表面への無機物の固着は、木材本来の色調や質感を失う恐れがあり、実際の利用を考えると木材の特性を残しながら目

的に応じて適正に行うことが望ましい(鈴木ほか, 1999)と考えられている。したがって、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理についても、処理材の色調などの特徴を把握して製品の利用に適した処理技術を検討することが必要であると考えられる。

コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理は、難燃性や耐朽性なども向上することから、今後、内装材料やエクステリアウッドなどへの利用が考えられる。特に、エクステリアウッドなどの用途においては、日光や風雨に対する抵抗性を示す耐候性が重要な性能の一つとなる(雨宮, 1991)ことは明らかである。

この無機質複合化処理の耐光性については、ホウ酸を添加した溶液系では彩度の変化量が全体的に小さくなり、無処理材と大きな差異が生じたと報告されている(古野ほか, 1999)。風雨の影響について詳細な検討はなされていないが、水中攪拌と揮散操作を行う溶脱処理において、ホウ酸を添加すると不溶性無機物の固着率が高くなることがわかっている(後藤ほか, 2004)。しかし、耐候性そのものについてはこれまで詳細に検討されていない。

そこで、第2章では、まずコロイダルシリカ溶液による無機質複合化処理をスギ(辺材)とコナラの単板に施し、この処理に伴う色調変化を測色して著しい変色が生じないかどうかについて検討した。次に、これらの無機質複合化単板に耐候操作による溶脱処理とウェザーメータによる促進耐候性試験を行い、色調変化の測色と単板の表面状態の変化を観察して無機質複合化処理単板の耐候性について評価を試みた。

2.2 試験方法

2.2.1 供試単板

島根県産の針葉樹材のスギ(*Cryptomeria japonica* D. Don)と、広葉樹材のコナラ(*Quercus serrata* Thunb. ex Murray)の丸太を供試し、ロータリーレースにより厚さ3mmの単板を製造した。スギ(辺材)とコナラの乾燥単板を寸法3(R)×65(T)×150(L)mmに調製して各130枚を用いた。なお、乾燥単板の気乾時含水率は5~8%, 全乾時密度はスギ0.31g/cm³, コナラ0.69g/cm³であった。

単板は60℃で24時間予備乾燥し、次に50℃で24時間以

上の真空乾燥 (P₂O₅存在下) を行って全乾重量を測定した。そして、セパラブルフラスコ中に入れて減圧処理を3時間行い、蒸留水を注入して浸せき処理を施した。その後、室内で1週間以上蒸留水中に浸せきさせ、飽水状態にしてから無機質複合化処理溶液を拡散浸透させた。なお、飽水時の単板の平均含水率はスギ282%、コナラ95%であった。また、あわせてコントロール単板30枚を調製した。

2. 2. 2 無機質複合化処理溶液の調製と浸せき処理

無機質複合化処理溶液は、コロイダルシリカ溶液 (日産化学工業(株)製 Snow Tex 30, 無水ケイ酸含有量30~31wt%) とホウ酸により調製した。処理溶液は、コロイダルシリカ (colloidal silica) 単独溶液 (以下, C溶液と記す), コロイダルシリカ溶液にホウ酸を重量比で5%加えて2時間攪拌したコロイダルシリカーホウ酸 (colloidal silica-boric acid) 溶液 (以下, CB溶液と記す), ホウ酸を50℃の温浴中で24時間攪拌した飽和溶液 (溶液濃度9.28%) であるホウ酸 (boric acid) 単独溶液 (以下, B溶液と記す) の3条件とした。各溶液のpHを測定してから飽水状態の単板を浸せきさせた。

各単板30枚ずつを供試して無機質複合化処理を施した。C溶液処理とCB溶液処理は室温下で24時間浸せきし, B溶液処理は50℃の温浴中で24時間浸せきした。浸せき処理後, 単板は室温下で1時間程度風乾し, 次に60℃で24時間の固着乾燥を行った。そして, 前述と同様な方法で全乾重量を測定して重量増加率 (% 以下, WPGと記す) を算出した。

2. 2. 3 溶脱処理

無機質複合化処理単板 (以下, WMC単板と記す) とコントロール単板から各条件15枚を供試し, JIS K 1571 (1998) の耐候操作に準じて溶脱処理を行った。なお, 溶脱処理に供試した15枚の単板は, 各WMC単板30枚について, 溶脱処理前のWPGの平均値が等しくなるように15枚ずつ2グループに区分し, その後1グループに溶脱処理を実施することとした。

処理方法は, まず材積の10倍量の蒸留水中での水中攪拌による溶脱操作を8時間, 次に60℃での揮散操作を16時間, これを1サイクルとして10サイクル行った。その

後, 前述と同様な方法により溶脱処理後のWPGを求め, 溶脱処理前のWPGとの比較から不溶性無機物の固着率 (%) を算出した。

2. 2. 4 WMC単板の側色

単板は無機質複合化処理前後, および溶脱処理後に材色を測色した。測色は分光測色計 (MINOLTA製 CM-3700d) を用いてCIE $L^*a^*b^*$ 表色系により評価した。測色条件はD65光源, 10度視野, 測定径φ11mmとし, 単板の木表側で常に同一となる3箇所を測色した。そして, 処理前後での色差 (以下, ΔE^* と記す) を求め, 処理に伴う色調の変化が生じているかどうか検討した。

2. 2. 5 WMC単板の促進耐候性試験

促進耐候性試験は, 図2-1に示したキセノンアークランプ式耐候性試験機 (スガ試験機(株)製 XL-75) により, 紫外線照射とスプレー処理を行う促進劣化処理を施した。そして, 促進劣化処理の時間ごとに材色を測色し, 促進劣化処理前との ΔE^* などを求めて著しい変色が生じているかどうか検討した。

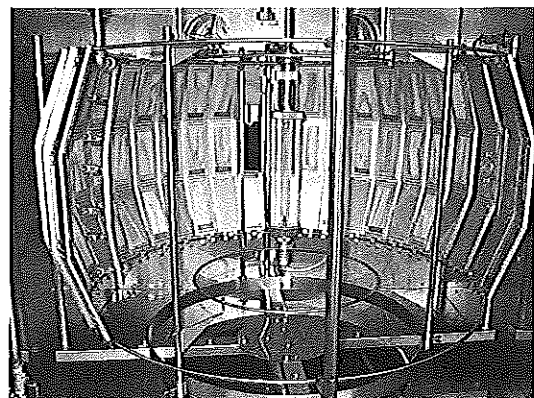


図2-1 ウェザーメータによる促進耐候性試験

試験方法は, JIS K 7350-2 (1995) (JIS K 7350-2) に準じて行った。紫外線照射とスプレー処理を同時に18分間, 続いて紫外線照射のみを102分間, この120分間を1サイクルとして600サイクル (1,200時間) 行った。紫外線照射の方法は連続方式で照度60W/m² (波長域300~400nm), 照射時のブラックパネル温度63℃, 湿度50±5%, ランプから単板までの距離は960mmとした。

材色の測色は, 分光式色差計 (日本電色工業(株)製 SE-2000) を用いてCIE $L^*a^*b^*$ 表色系により評価した。

測色条件はD65光源，10度視野，測定径φ10mmとし，単板の木表側で常に同一となる3箇所を測色した。測色時間は促進劣化処理前，促進劣化処理後10，26，50，76，100，150，200，300，400，500，600，800，1,000，1,200時間ごとに行った。

なお，前述のWMC単板の測色に使用した分光測色計とは異なる分光式色差計を用いている。したがって，促進劣化処理前に改めて供試単板を分光式色差計で測色し，その結果を基に処理後の ΔE^* などを算出した。

2. 3 結果と考察

2. 3. 1 WMC単板のWPGと不溶性無機物の固着率

WMC単板の溶脱処理前後でのWPGを図2-2に示す。WPGはコナラよりもスギで高くなり，溶脱処理前のスギではC溶液50.6%，CB溶液60.7%，B溶液16.5%，コナラではそれぞれ9.4%，17.0%，0.5%となった。これは，スギ材の主要構成細胞は仮道管であるのに対して，コナラ材のそれは木部繊維であり，各単板の全乾時密度はスギ0.31g/cm³，コナラ0.69 g/cm³，空隙率はスギ79.3%，コナラ54.0%となることから，組織構造の違いと全乾時密度（空隙率）の違いが影響しているものと考えられる。また，広葉樹材の浸透・透過性に影響を及ぼす主要通路である道管内のチロースなどの影響（古野ほか，1994）も考えられる。

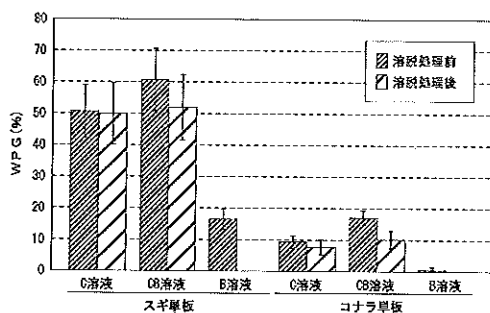


図2-2 WMC単板の溶脱処理前後におけるWPG (%)

無機質複合化処理前後の全乾時密度より固着無機物量(kg/m³)を算出した結果，スギで大きくなり，C溶液153kg/m³，CB溶液182kg/m³となった。B溶液は41kg/m³であったことから，コロイダルシリカ溶液を用いることによって固着無機物量は大きくなるのがわかる。これは，ケイ酸とホウ酸が細胞内腔のみならず細胞壁中にも

存在していること（古野ほか，2001）によるものと考えられる。コナラではC溶液61kg/m³，CB溶液86kg/m³であるのに対して，B溶液では極めて小さくなり，コナラのような空隙率が低く，浸透性も低いと考えられる材であってもコロイダルシリカ溶液を用いることが有効であることがわかった。

溶脱処理後のWPGは，スギではC溶液49.9%，CB溶液52.0%，コナラではそれぞれ7.8%，10.1%であった。溶脱処理前後のWPGより不溶性無機物の固着率を求めると，スギではC溶液98.3%，CB溶液84.9%，コナラではそれぞれ80.0%，58.1%となった。固着率はCB溶液よりもC溶液で高くなる傾向が認められたが，図2-2より，溶脱処理後のWPGはCB溶液がC溶液と同等以上であることから，CB溶液処理での高い無機物の固着性が認められた。なお，B溶液ではスギ，コナラとも固着率は0%となった。既報においてもホウ素化合物の固着率は極めて低くなっており（古野ほか，2001），またホウ酸塩は処理木材中で固着しないため処理木材は土壌などに接地せず，雨水から保護された環境ならば使用できることがわかっている（荒川，2003）。実際の使用環境下でのホウ酸塩の溶脱は処理材表面から周囲の水や土に移行すると生じる（荒川，2003）ことから，この溶脱処理はB溶液処理単板に対しては極めて厳しい条件であったと考えられ，コロイダルシリカ溶液がホウ酸の固着に寄与していることを示す結果となった。

2. 3. 2 無機質複合化処理前後の色調変化

単板の無機質複合化処理前後における測色結果とこれらの ΔE^* を表2-1に，WMC単板の表面状態の一例を図2-3に示す。C溶液では，スギ，コナラともコントロールと比較して明度（以下， L^* と記す）が5.60，8.65減少して ΔE^* が大きくなっている。これは，C溶液のpHが10.0のアルカリ性であったことからアルカリ汚染（井上，1972）によって“やけ”のような変色が生じて L^* が低下したものと考えられる。例えば，スギやミズナラなどではアルカリ汚染の影響が強くなるのがわかっている（武南，1969）が，この無機質複合化処理に伴う変色（汚染）は特にコナラで著しくなることが観察された。

CB溶液は，pH6.4とほぼ中性であり，溶液自体によ

る木材基質へのアルカリ汚染などの影響はなく、 ΔE^* はスギ、コナラとも小さくなった。コントロールと比較すると L^* は4.40, 6.46増加しているが、これは単板表面にも無機物が固着するためにそれらが直接的に L^* 値に影響し、若干白色がかかるようになったためと考えられる。

表 2-1 スギ, コナラ単板の無機質複合化処理前後での測色結果

単板	処理溶液	L^*	a^*	b^*	ΔE^*
スギ	コントロール	74.36	7.35	24.61	—
	C溶液	68.74	6.69	25.19	8.33
	CB溶液	78.76	6.03	23.53	4.52
	B溶液	74.35	5.78	20.55	4.16
コナラ	コントロール	63.29	7.05	23.75	—
	C溶液	54.64	5.47	24.17	9.45
	CB溶液	69.75	3.79	20.41	7.44
	B溶液	70.57	2.98	15.35	13.01

しかし、WPGと明度差（以下、 ΔL^* と記す）との間に相関関係は認められておらず、無機物は主に材中の細胞内腔と細胞壁中に固着することから（古野ほか, 2001）、利用上著しい支障になるものではないと考えられる。

B溶液では、特にコナラで L^* が7.28増加し、色度 b^* が8.40減少して相対的に ΔE^* は大きくなった。B溶液のpHは2.9であったことから、酸汚染（井上, 1972）が生じたものと考えられる。酸汚染はスギで影響が大きいことが報告されている（武南, 1969）が、この無機質複合化処理に伴う酸汚染の影響は特にコナラで著しくなった。

2.3.3 WMC単板の溶脱処理による色調変化

溶脱処理による単板の色調変化の結果を表 2-2 に示す。スギではCB溶液でコントロールとほぼ同じ ΔE^* となり、コナラではCB溶液で ΔE^* が最も小さくなった。この結果から、CB溶液では耐候操作による変色を抑制できると考えられる。不溶性無機物の固着率と色調変化との間に相関関係は認められなかった。しかし、CB溶液で処理した無機質複合体では、細胞内腔に存在している無機物は固体化しており、溶脱処理前後とも細胞内腔

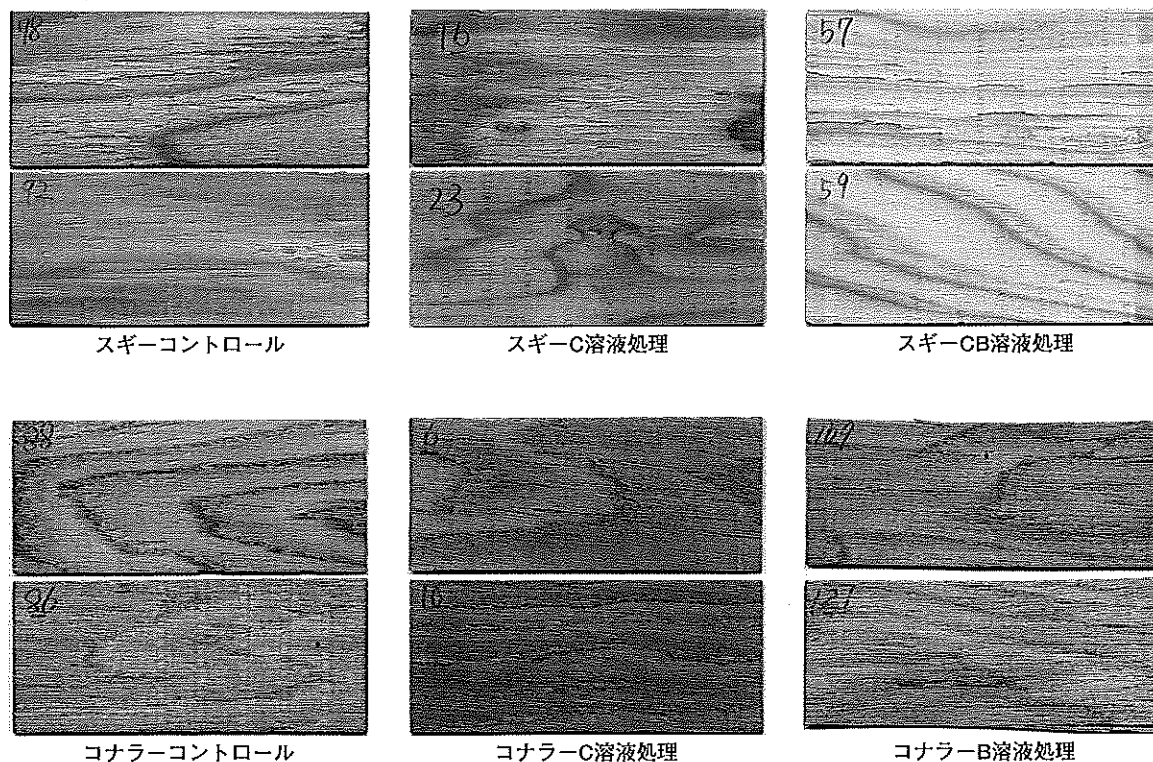


図 2-3 各無機質複合化処理を施したスギ単板とコナラ単板の単板表面の色調

表 2-2 溶脱処理によるWMC単板の色調変化

単板	処理溶液	ΔL^*	Δa^*	Δb^*	ΔE^*
スギ	コントロール	-2.45	-0.89	-1.47	3.57
	C溶液	4.81	-0.94	-2.10	5.63
	CB溶液	-2.59	-0.47	-0.72	3.42
	B溶液	-4.42	-0.45	1.34	4.81
コナラ	コントロール	4.78	-2.92	-4.45	8.81
	C溶液	12.84	-0.82	-2.33	13.23
	CB溶液	-1.78	-0.49	0.19	3.67
	B溶液	-7.21	0.31	0.99	7.41

を充填していることが観察されている(古野ほか,2001)。ケイ素の分布は溶脱処理前後とも主に細胞内腔で観察されているが、細胞壁中にもわずかに存在し、ホウ素は溶脱処理前後とも細胞内腔と細胞壁に一様に分布していることが明らかとなっている(古野ほか,2001)。したがって、ホウ酸はシリカとともに細胞内腔のみならず細胞壁にも存在して不溶性無機物を生成しているものと考えられる。この不溶性無機物によって、溶脱操作における細胞壁実質への直接的な水分の接触を妨げ、木材成分の流動、濃縮による汚染(改訂3版木材工業ハンドブック編集委員会,1982)を防ぎ、揮散操作における温度、湿度による変色(改訂3版木材工業ハンドブック編集委員会,1982)を抑制しているものと考えられる。揮散操作に伴う加熱による変色は、一般に広葉樹は針葉樹に比べて低い温度(50℃~)で変色を起こしやすい(井上,1972)とされていることから、本研究ではコナラで溶脱処理に対する変色抑制の効果が明確に認められたといえる。

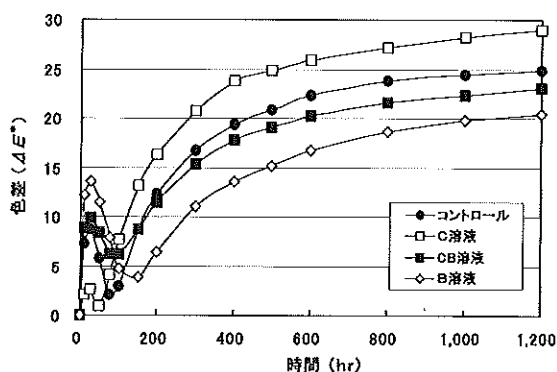


図 2-4 促進耐候性試験における溶脱処理前 WMCスギ単板の色差 (ΔE^*) の変化

C溶液では、各単板とも ΔL^* が高くなって ΔE^* が大きくなる傾向が認められた。B溶液では、 ΔL^* が低下して ΔE^* が大きくなる傾向が認められた。これらは、無機質複合化処理時のアルカリまたは酸による汚染の影響によって単板表面付近の木材基質が劣化し、溶脱処理における水中攪拌と揮散操作の乾湿繰り返しによって細胞壁レベルでの破壊やはく離が生じ、水中攪拌による木材基質の溶脱作用が重なって生じたものと考えられる。

2. 3. 4 WMC単板の促進耐候性試験による単板の色調変化と表面状態の変化

促進耐候性試験における色調の変化として、各WMC単板で溶脱処理前後の ΔE^* についての経時変化を図2-4~2-7に示す。 ΔE^* は、樹種および溶脱処理前後の単板に関わらず、試験初期の26時間目まで増加して100時間目にかけて一度減少し、それ以後1,200時間目まで増加する傾向が認められている。これは、 ΔL^* と色度 a^* および b^* の色度差(以下、 Δa^* および Δb^* と記す)の変化が影響している。ここで、図2-8に溶脱処理前WMCスギ単板の ΔL^* の変化を、図2-9に Δa^* の変化をそれぞれ示す。なお、コナラ単板の明度差と色度差についても同様な傾向が認められた。図2-8から、 ΔL^* は試験26時間目にマイナス側の最小値となり、その後プラスに増加している。図2-9では、 Δa^* は試験26時間目にプラス側の最大値となり、その後マイナスに減少している。したがって、 ΔE^* は試験初期の増加後に一度減少し、再び増加する傾向を示すといえる。

C溶液は、図2-8より試験初期の ΔL^* の低下が小さく、表2-1においても L^* は最も小さくなっていった。

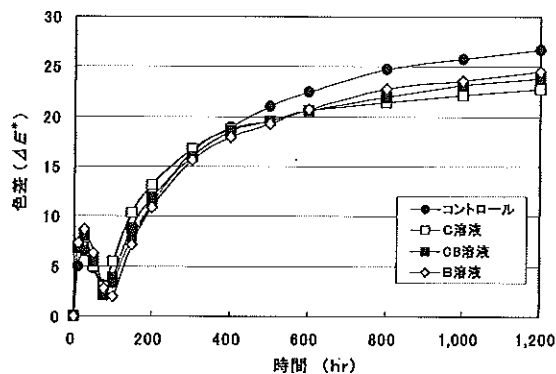


図 2-5 促進耐候性試験における溶脱処理後 WMCスギ単板の色差 (ΔE^*) の変化

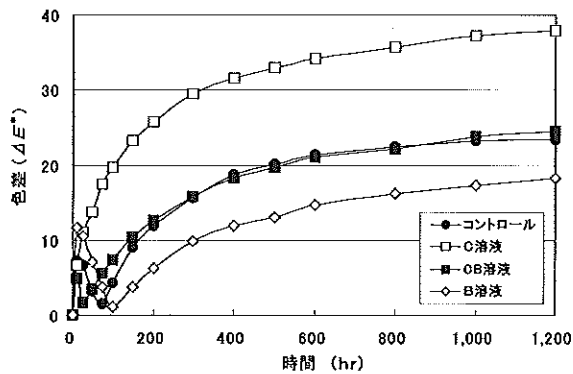


図 2-6 促進耐候性試験における溶脱処理前 WMCコナラ単板の色差 (ΔE^*) の変化

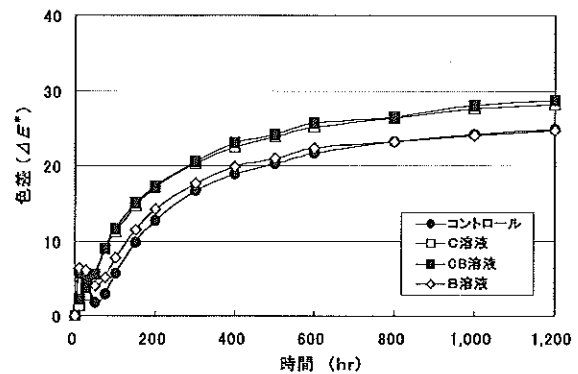


図 2-7 促進耐候性試験における溶脱処理後 WMCコナラ単板の色差 (ΔE^*) の変化

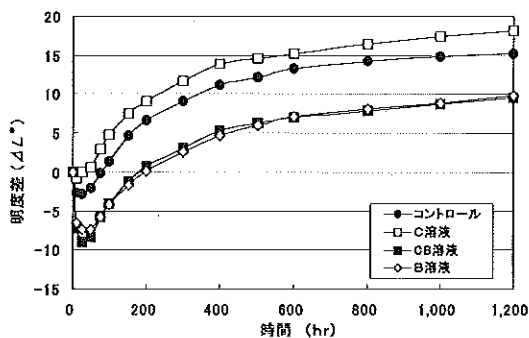


図 2-8 促進耐候性試験における溶脱処理前 WMCスギ単板の明度差 (ΔL^*) の変化

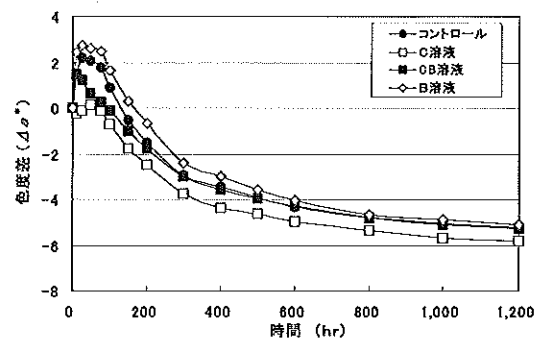


図 2-9 促進耐候性試験における溶脱処理前 WMCスギ単板の明度差 (Δa^*) の変化

また、図 2-9 より Δa^* の低下は最も大きくなったことより、これはアルカリ汚染の影響によるものと考えられる。アルカリ汚染は、暗灰色となって明度が低下し、光によって退色する (井上, 1972) ことがわかっている。したがって、無機質複合化処理時にアルカリ汚染によって L^* が低下し、促進耐候性試験ではアルカリ汚染の影響によって退色が進んだものと考えられる。B 溶液については、図 2-9 より試験初期の Δa^* の増加が最も大きくなっているが、これは酸汚染の影響によるものと考えられる。酸汚染は、いずれの樹種でもほぼ淡赤色となって紫外線に暴露されると呈色が著しくなることが示されており (井上, 1972)、この促進耐候性試験でもその傾向が認められたといえる。

試験初期において ΔL^* は低下後に増加し、 Δa^* などの色度差は増加後に低下してそれぞれ平衡状態となった。試験 26 時間目までは汚染の影響が著しく生じ、試験 100 時間目以降はコントロールでは単板表面からリグニンなどの木材成分が溶脱してセルロースが多く残存している (木口, 1993) ことが予想される。C 溶液と CB 溶

液では不溶性無機物の固着率が高いことから、固着した無機物が色調変化に影響し、B 溶液ではホウ素の溶脱後コントロールと同様な色調変化を呈するものと考えられる。したがって、この促進耐候性試験では試験 26 時間目前後では無機質複合化処理時のアルカリ汚染や酸汚染の影響が生じ、それ以降は木材成分の溶脱や固着した無機物が色調変化に影響したものと考えられる。その結果、 ΔL^* と色度差が低下あるいは増加後に平衡状態になり、 ΔE^* も特徴的な色調変化を示したものと考えられる。

図 2-4 の溶脱処理前 WMC スギ単板では、 ΔE^* は試験 26 時間目で C 溶液は 2.5、その他は 9~14 程度に増加して 100 時間目で 5 程度に減少し、その後 1,200 時間目にかけて 20~30 に増加している。この中で、C 溶液は試験初期の ΔE^* の増減が小さいが、最終的に ΔE^* は最も大きくなっている。これは、アルカリ汚染の影響によるものと考えられる。B 溶液は試験初期の ΔE^* の増加が最も大きくなっているが、これは酸汚染の影響によるものと考えられる。CB 溶液は、試験初期の ΔE^* の増減幅がコントロールよりも小さくなっている。これは、図 2-8

からCB溶液ではコントロールよりも試験26時間目での ΔL^* の低下は大きくなるが、それ以降の増加はコントロールよりも抑えられている。また、図2-9から Δa^* はCB溶液よりもコントロールで増減幅が大きくなっている。これらの ΔL^* と Δa^* 、さらには Δb^* の変化によって、CB溶液の ΔE^* の増減幅はコントロールよりも小さくなったものと考えられる。

図2-5の溶脱処理後WMCスギ単板では、コントロールと各無機質複合化処理での ΔE^* の差異は溶脱処理前のそれより小さくなっている。これは、溶脱処理後に単板表面の無機物が溶脱されるためと考えられる。しかし、試験400時間から1,200時間にかけて各WMC単板の ΔE^* はコントロールよりも小さくなっており、単板内部に固着した無機物が寄与したことが推測されるが、今後検討を要する。

図2-6の溶脱処理前WMCコナラ単板では、各無機質複合化処理の ΔE^* の変化は溶脱処理前スギ単板(図2-4)と同様な傾向を示している。すなわち、C溶液は ΔE^* の変化が特に大きくなり、B溶液では試験初期の ΔE^* の増減が最も大きくなるものの、100時間目以降は最も小さくなっている。これは、溶脱処理前スギ単板と同様にアルカリ汚染と酸汚染の影響によるものと考えられる。コントロールとCB溶液は、試験初期の増減が認められ、試験終了時の ΔE^* はスギ単板のそれと同様に25程度になっている。CB溶液でのWPGは17.0%であり(図2-2)、試験初期の色調変化は抑制するも

の、溶脱処理での不溶性無機物の固着率が58.1%であったことから、試験100時間程度で単板表面の無機物は溶脱され、 ΔE^* の変化はコントロールと同程度になったものと考えられる。

図2-7の溶脱処理後WMCコナラ単板では、全体的な ΔE^* の変化は図2-5の溶脱処理後のスギ単板と同様に、各無機質複合化処理での ΔE^* の差異は小さくなっていることがわかる。

この促進耐候性試験では、スギとコナラの樹種の違いや溶脱処理の前後による色調変化の著しい差異は認められなかった。無機質複合化溶液の違いによる色調変化の差異は、スギとコナラでそれぞれ同様な傾向を示した。CB溶液の ΔE^* は、スギとコナラともに試験初期の増減幅がコントロールよりも小さく、特にWPGが高いスギの ΔE^* はコントロールよりも試験全体にわたって色調変化が抑制されたといえる。一般的に、木材の風化は光劣化による木材表面の変色から始まることから、 ΔE^* の増減幅がコントロールよりも小さくなることは耐候性に効果的であることが期待できる。

促進耐候性試験後の単板の表面状態について、一例としてスギのコントロールとCB溶液処理したものを図2-10に示す。コントロールでは主に早材部に特徴的な木質部のはく離が認められ、晩材部では細かな割れが生じていた。この早材部におけるはく離や拡大した割れの凹凸は $640\mu\text{m}$ 以上であることがわかり、コントロールの表面粗さは極めて大きなものであった。しかし、

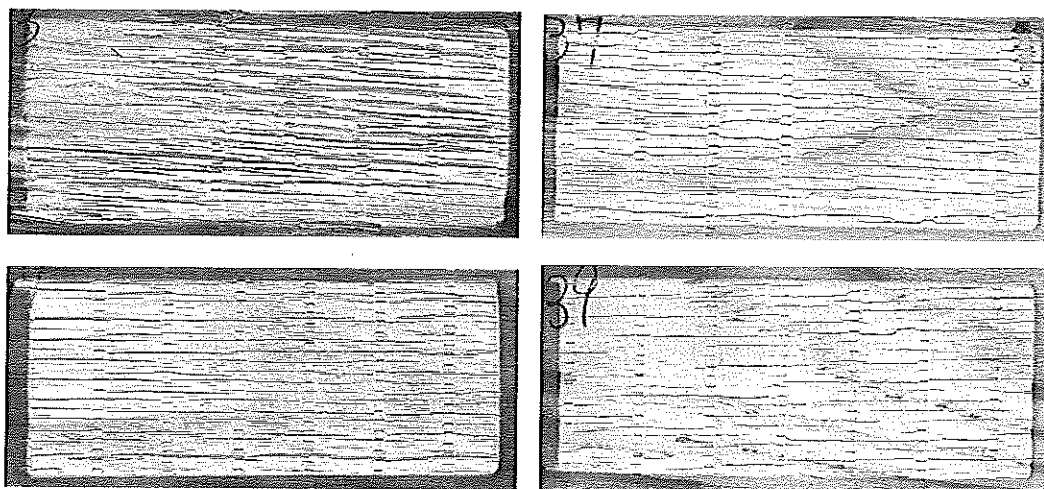


図2-10 促進耐候性試験後の各スギ単板表面の劣化状態

注) 左-コントロール単板, 右-CB溶液処理単板

CB溶液処理したものでは、割れの発生は認められるが、コントロールのような早材部のはく離は全く生じていなかった。

紫外線照射と水中浸せき処理をヒノキに行った場合、放射断面では、有縁壁孔の壁孔膜の破壊から始まり、孔口が拡大して壁孔縁の薄化と崩壊が生じ、開口部が大きくなり、さらに細胞壁の薄化に伴って細胞が崩壊し、損失すると報告されている(朴ほか, 1996)。コントロールではこのような細胞レベルでの劣化が進行するとともに、単板製造時に生じる微細な割れなども拡大して物理的な侵食が進んだものと考えられる。しかし、CB溶液処理は無機物が細胞内腔と細胞壁中に強固に固着し、またコントロールと比較して板目面でのブリネル硬さは26%程度向上している(古野ほか, 1999)ことから、促進耐候性試験による物理的な侵食を抑制したのと考えられる。今後、促進耐候性試験の試験時間に伴う割れの発生数の変化、割れ深さの進展、表面の粗さ増加の測定など定量的評価を行う必要がある。

CB溶液処理は、スギではコントロールと比較して ΔE^* の変化が小さく、促進耐候性試験による木質部の侵食が抑制されていたことから耐候性の向上が期待できる。実際の屋外暴露の状況においては、水分と紫外線の影響の他にカビ、変色菌などの微生物の影響が大きくなる(木口, 1993)。LVLの屋外暴露試験でもそれらの影響が認められているため(Tomoyuki Hayashi *et al.*, 2002)、屋外暴露試験によって屋外の環境下でのWMC単板や無機質複合処理した木材の変色や劣化などを今後検討していく必要がある。

2.4 まとめ

コロイダルシリカ溶液とホウ酸を用いた無機質複合処理をスギ(辺材)とコナラの単板に施し、処理に伴う色調の変化を測色した。また、耐候操作による溶脱処理での不溶性無機物の固着率と色調変化、さらにウェザーメータによる促進耐候性試験での色調変化と単板の表面状態の変化を観察し、コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合処理による耐候性の向上について検討した。

無機質複合処理した単板のWPGは、スギ、コナラともCB溶液処理単板で最も大きくなり、スギ60.7%、コナラ17.0%であった。

無機質複合処理に伴う単板の色調変化を測色した結果、C溶液ではアルカリ汚染の影響が認められ、B溶液では酸汚染の影響が認められた。CB溶液ではこのような汚染などの影響が認められず、 ΔE^* が小さくなり、CB溶液処理単板は利用上支障を及ぼさないことが明らかとなった。

溶脱処理における不溶性無機物の固着率は、C溶液とCB溶液で処理した単板で高くなり、スギで80~90%以上に、コナラで50~80%程度となって、コロイダルシリカ溶液を用いることが有効であることがわかった。また、CB溶液処理では高い無機物の固着性が認められた。色調の変化は、CB溶液処理単板で ΔE^* が最も小さくなった。これは、無機質複合処理時に汚染が生じないことと、細胞内腔と細胞壁中に無機物が固着して耐候操作による変色を防いでいるものと考えられる。

促進耐候性試験における色調変化を測色した結果、全体的な傾向として、 ΔE^* は促進劣化26時間目まで増加し、その後100時間目まで減少してそれ以後増加していく傾向が認められた。これは、試験初期の色調変化は無機質複合処理時のアルカリ汚染と酸汚染が影響し、100時間目以降は木材成分の溶脱や固着した無機物が色調変化に影響したのと考えられる。CB溶液による処理は、試験初期の ΔE^* の増減幅が小さく、またスギではコントロールよりも ΔE^* 値の変化が小さくなっていった。さらに、促進耐候性試験による物理的な木質部の侵食の抑制が観察されたことから、CB溶液による無機質複合処理は、耐候性の向上が期待できるものと考えられる。

第3章 島根県産コナラ材とスギ材の異樹種複合LVLへの適用性の検討 —製材、単板、および異樹種複合LVLの基礎的な強度特性—

3.1 緒言

コナラ(*Quercus serrata* Thunb.ex Murray)は日本の温帯下部から暖帯にかけて広く分布し、2次林の優占種の1つとなっていて、かつては薪炭材として重要な樹種であった(佐竹ほか, 1989)。島根県においても全域に広く分布し、蓄積量は約994万 m^3 を誇っている(島根県農林水産部森林整備課, 2003)。コナラ材の気乾比重

は平均0.75程度で重硬な材質を呈している（平井，1996）が，乾燥による割れや狂いが生じやすく，また若干腐りやすいため用材としてはほとんど利用されていない。現在の用途は直径20cm程度まではシイタケ原木に，それ以上の大径材はチップ用原木などに限られている（最新木材工業事典出版委員会，1999）。

そこで，第3章では，島根県の重要な森林資源の1つであるコナラ材の新たな利用技術の開発を目的として，スギ（*Cryptomeria japonica* D.Don）との複合化による異樹種複合単板積層材（以下，異樹種複合LVLと記す）の製造を試みた。コナラ材は前述のように，乾燥による割れや狂いが生じやすいため，単板化によって乾燥を容易にし，また難燃処理や防腐処理を容易に行うこともねらった。

コナラ材の利用を進める上で，その強度特性に関する資料は極めて少ない。そこで，初めにコナラ製材の曲げ試験と圧縮試験によりその基礎的な強度特性を把握した。次に，異樹種複合LVLに利用するためにコナラ単板とスギ単板を製造し，その曲げヤング係数（以下，MOEと記す）を測定して各単板のMOEの分布特性を検討した。そして，これらの単板を用いて異樹種複合LVLを製造し，曲げ試験を行ってMOEと曲げ強度（以下，MORと記す）を求めるとともに，スギ単板とコナラ単板の構成方法などについて検討を行った。

3. 2 試験方法

3. 2. 1 製材の曲げ試験と圧縮試験

コナラ製材の曲げ試験と圧縮試験は，スギ製材とあわせて，JIS Z 2101（1994）（日本規格協会，1994）に準じて木材用万能試験機（（株）マルイ製10ton）により行った。コナラ製材は島根県下3地域（出雲市，邑智郡，浜田市）のチップ工場に集積された原木について，スギ製材は県西部地域（鹿足郡金城町）で生産された原木を供試した。製材後，含水率を8～15%に乾燥して各試験に用いた。

曲げ試験の試験体寸法は，図3-1に示すように，25（R）×25（T）×400（L）mm，スパンは350mmに調製した。試験体数はコナラ製材162体，スギ製材280体である。中央集中荷重方式により柃目面に載荷し，得られた応力-ひずみ線図によりMOEとMORなどを求めた。

圧縮試験については，コナラ製材は縦圧縮試験と横圧縮試験を行い，スギ製材は縦圧縮試験のみ行ってそれぞれの圧縮強度を求めた。試験体寸法は，図3-2に示すように，辺長25×25mm，高さ75mmに調製し，試験体数は各条件30体とした。

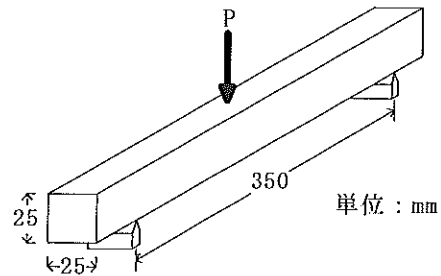


図3-1 コナラ製材とスギ製材の曲げ試験方法

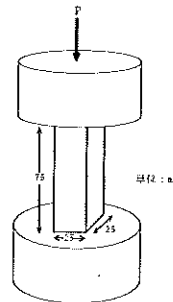


図3-2 コナラ製材とスギ製材の圧縮試験方法

3. 2. 2 単板の製造とMOEの測定

コナラ単板とスギ単板は，島根県合板協同組合浜田針葉樹工場（島根県浜田市治和町）に設備されている針葉樹合板製造用ラインにより製造した。県産のコナラ原木とスギ原木をロータリーレースにより厚さ3mmに単板化し，次に自動制御型ドライヤーによって含水率を約8%に乾燥した。

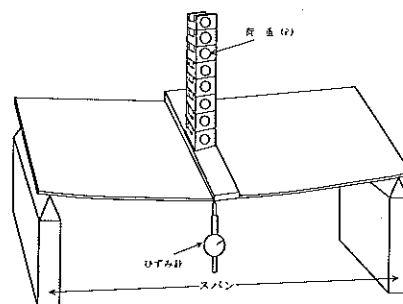


図3-3 重錘法による単板のMOE測定

各単板のMOE測定は、図3-3に示すように、重錘法により行った。単板の寸法は3(R)×300(T)×450ないし650(L)mmに調製し、スパンは400mmないし600mmの2条件とした。試験体数は各スパン条件につきコナラ単板65体、スギ単板105体である。重錘法での荷重量はコナラ単板で0.5kg×10回、スギ単板で0.2kg×10回とし、変位計により荷重毎のたわみ量を測定してMOEを算出した。

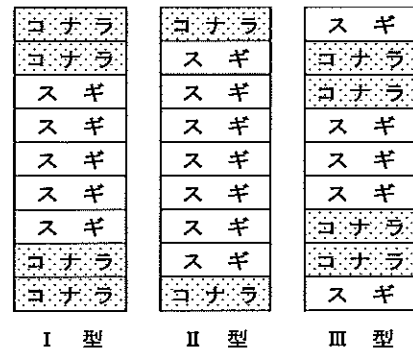


図3-4 異樹種複合LVLの単板構成方法

3. 2. 3 LVLの製造と曲げ試験

異樹種複合LVLの製造は、単板のMOE測定に用いた長さ450mmの単板を供試した。単板構成は、図3-4に示すように、単板積層数は9プライで、高い曲げ強度特性を期待したI型、I型に対してコナラ単板の構成量を減らしたII型、またスギ単板を化粧的に用いてコナラ単板を内層に構成したIII型の3種類とした。なお、コナラ単板のみで構成したIV型、スギ単板のみで構成したV型もあわせて製造した。接着剤はフェノール・レゾルシノール系樹脂(大鹿振興(株)製 大鹿レジンディアノール33N)を用い、350g/m²の割合で両面塗布してホットプレスによって100℃で14分間圧縮した。圧縮圧力はI、II、III型は12kgf/cm²、IV型は15 kgf/cm²、V型は7 kgf/cm²とした。解圧後、約2週間養生し、寸法25(R)×300(T)×450(L)mmのLVLを曲げ試験用として25(R)×25(T)×400(L)mmに小割した。

製造した5種類のLVLは、製材の曲げ試験方法と同様にJIS Z 2101(1994)(日本規格協会, 1994)に準じて平使い方向で曲げ試験を行った。含水率は7.3~13.0%で、試験体数はI、II、III型は各50体、IV型は10

体、V型は40体である。なお、単板はMOEの大きいものを外層部分に構成したが、曲げ試験体は小割したためMOEの構成の違いによる強度特性の変化については検討しなかった。

3. 3 結果と考察

3. 3. 1 製材の曲げ試験と圧縮試験

コナラ製材とスギ製材の曲げ試験および圧縮試験結果を表3-1に示す。曲げ試験結果については、比較として錦織らの報告(錦織ほか, 1989)のミズナラ製材の曲げ強度特性をあわせて示す。コナラ製材の材質特性は、気乾比重0.83、平均年輪幅3.4mmとなり、平井の報告(平井, 1996)以上に重硬な材質であることがわかった。曲げ強度特性は、MOE14.8GPa、MOR141MPa、曲げ比例限度84MPaであり、スギやミズナラと比較してみても非常に高い曲げ強度特性を有することがわかった。

曲げ試験体の破壊形態は、図3-5(a)に示すように、引張り側がフィンガー状となるそぎ割れ引張(財)日本住宅・木材技術センター, 1999)を呈し、粘り強い

表3-1 製材の曲げ試験および圧縮試験結果

樹種	気乾比重	平均年輪幅 (mm)	MOE (GPa)	MOR (MPa)	曲げ比例限度 (MPa)	縦圧縮強度 (MPa)	横圧縮強度 (MPa)
コナラ	0.83 (0.05)	3.4 (1.3)	14.8 (1.6)	141 (22.7)	84 (15.0)	60 (3.7)	19 (5.1)
スギ	0.37 (0.06)	5.2 (1.6)	4.9 (1.6)	52 (11.1)	33 (6.4)	36 (4.7)	—
ミズナラ	0.85 (0.04)	2.4 (0.5)	13.0	107	62	—	—

注) 数値は平均値を示し、()内は標準偏差を示す

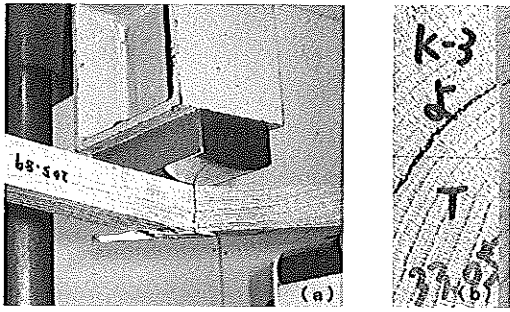


図3-5 曲げおよび圧縮によるコナラ製材の破壊

- (a) 曲げによるそぎ割れ引張破壊
- (b) 横圧縮による孔部部分のせん断破壊

材質であることが見出された。なお、MOEやMORなどの曲げ強度特性と気乾比重や年輪幅などの材質特性の間に明確な相関関係は認められなかった。しかし、ミズナラ材と比較してみても、コナラ材は強度的に利用価値のあるものと考えられる。

圧縮強度特性については、縦圧縮強度は60MPaで、縦方向には非常に高い強度特性を示し、気乾比重と高い相関関係（相関係数0.78）が認められた。しかし、横圧縮試験においては、図3-5 (b)に見られるように、環孔部（孔部）でのせん断破壊が認められ、横圧縮強度は19MPaとなった。横圧縮試験体の高さ方向（製材では木口面にあたる面）に現れる道管の配列角度と横圧縮強度との関係を図3-6に示す。なお、道管配列角度は道管の接線方向の角度を分度器により測定した。図3-6より、これらの間には明確な負の相関関係（相関係数-0.90）が認められた。これは、コナラ材が環孔材であるため、道管の配列角度が大きくなると横圧縮によって孔部部分にせん断応力が集中して破壊が生じやすくなる

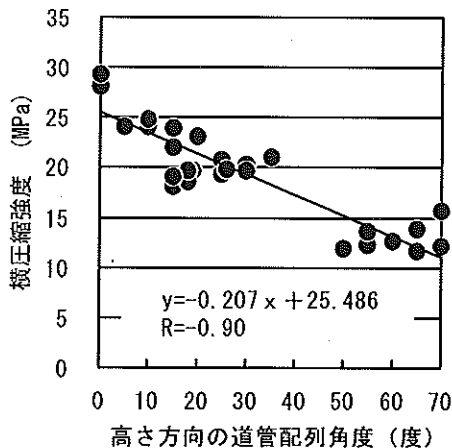


図3-6 コナラ横圧縮試験体での高さ方向の道管配列角度と横圧縮強度との関係

ためと考えられる。LVLでは、原木の単板化によって許容できる小さな欠点は積層接着により製品内に分散される（林，1998）。したがって、コナラ原木の単板化によって孔部道管は分散され、このような影響は小さくなるものと予想できる。

3. 3. 2 単板のMOEの測定

各単板のMOEの測定結果を表3-2に示す。なお、既報（後藤ほか，1999）の北洋産カラマツ単板とニュージーランド産ラジアータパイン単板の測定結果もあわせて示す。各単板のMOEはスパン長による著しい違いは認められず、コナラ単板は11.9～12.4GPa、スギ単板は5.6～6.4GPaであった。単板の気乾比重とMOEとの相関係数は、各単板0.45前後で明確な相関関係は認められなかった。コナラ単板は製材と比較するとわずかにMOEが低下しているが、島根県内の合板工場で主原料として用いられているカラマツ単板やラジアータパイン単板と同等のMOEを示すことがわかった。

コナラ単板とスギ単板のMOEの分布特性を図3-7に示す。コナラ単板は下限側が10.5GPa程度であり、前述のコナラ製材と同様に高い曲げ強度特性の分布を示す

表3-2 各単板のMOE測定結果

樹種	気乾比重	MOE (GPa)	
		材長 450mm	材長 650mm
コナラ	0.72	11.9 (2.0)	12.4 (1.5)
スギ	0.34	5.6 (1.3)	6.4 (1.5)
カラマツ	0.59	12.0 (2.6)	12.6 (2.1)
ラジアータパイン	0.45	7.8 (1.8)	7.7 (1.5)

注) 数値は平均値を示し、()内は標準偏差を示す

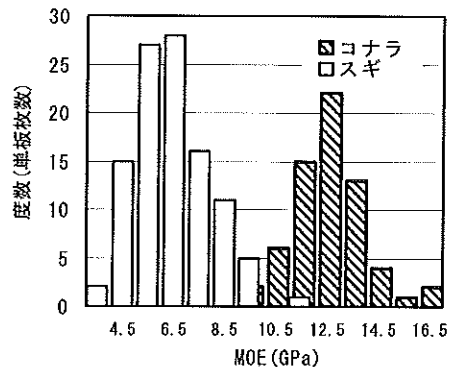


図3-7 コナラ単板およびスギ単板のMOEの分布特性

ことがわかった。したがって、LVLの曲げ強度特性の向上を目的として単板を構成するには、コナラ単板は外層部分に、スギ単板は内層部分に構成することが望ましく、LVLは平使いとして用いることがより効果的であるものと考えられる。

3. 3. 3 異樹種複合LVLの曲げ試験

I型、II型、III型の異樹種複合LVLと、IV型、V型の各LVLの曲げ試験結果を表3-3に示す。異樹種複合LVLとV型を比較すると、異樹種複合LVLはMOEで1.7~2.1倍、MORで1.8倍程度向上することがわかった。

曲げ試験による試験体の破壊形態は、外層部分に構成した単板で、その樹種の製材の破壊形態に類似していた。すなわち、図3-8に示すように、コナラ単板を外層部分に構成した異樹種複合LVLでは、引張り側コナラ単板のそぎ割れ引張破壊から内層部分のスギ単板のぜい性引張破壊（財）日本住宅・木材技術センター、1999）に移行するように破壊が進行していた。コナラ単板の孔圏道管が欠点になることが考えられたが、荷重点付近でのめり込みによる著しい破壊は見られなかった。なお、一部の試験体では内層部分のスギ単板にせん断破壊が生じたが、大半の試験体は引張り側での破壊であり、接着層での破壊もなかった。

異樹種複合LVLのI型に対してII型とIII型は、それぞれコナラ単板の構成量あるいは構成位置が異なっており、最外層にコナラ単板を構成したI型で最も高い



図3-8 異樹種複合LVL (I型) の曲げによる破壊形態

MOEの向上を示した。コナラ単板の構成位置と構成量を検討するため、LVL断面におけるコナラ単板の構成割合とMOE、MORとの関係を検討した（図3-9）。その結果、コナラ単板の構成割合が高くなるほど、そして構成割合44%のI型とIII型との比較から、最外層にコナラ単板を構成することによってMOEが顕著に向上することがわかった。しかし、MORについてはMOEほど明確な向上は認められていない。

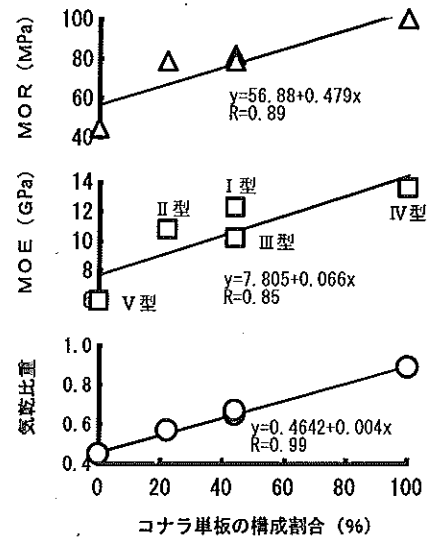


図3-9 各LVLのコナラ単板の構成割合と気乾比重、MOE、MORとの関係

表3-3 異樹種複合LVLの曲げ試験結果

LVL	気乾比重	MOE (GPa)	MOR (MPa)
I型	0.65 (0.02)	12.3 (1.3)	82 (6.3)
II型	0.57 (0.02)	10.8 (1.1)	79 (6.8)
III型	0.67 (0.02)	10.2 (1.3)	79 (5.0)
IV型	0.89 (0.01)	13.6 (1.1)	100 (10.2)
V型	0.45 (0.02)	6.0 (1.2)	45 (9.9)

注) 数値は平均値で、()内は標準偏差を示す

異樹種複合LVL、V型のLVL、そしてスギ製材の曲げ強度特性を図3-10にあわせて示す。異樹種複合LVLの強度性能は、特にMORのパラツキが小さくなっている。しかし、例えばI型とスギ製材の回帰直線を比較すると、I型のそれは傾きが小さくなっている。すな

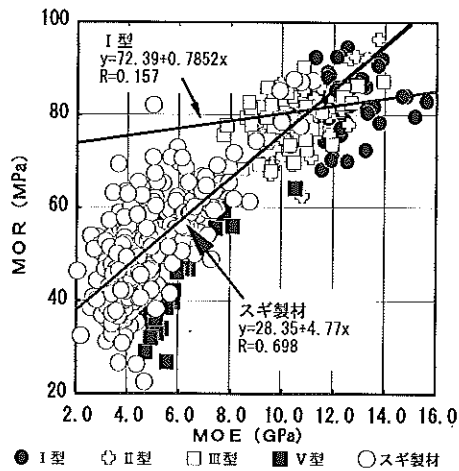


図3-10 異樹種複合LVL、スギLVL (V型) とスギ製材の曲げ強度特性の比較

わち、MOEの高いコナラ単板をLVLの外層部分に構成することによってMOEは向上するが、MORは十分に向上しないことがわかった。このことは、林らの研究結果(林ほか, 1991)と同様に、外層部分に構成したMOEの高いコナラ単板への応力分担が大きくなっているためと考えられる。実大寸法のLVLでの強度特性の検討が必要となるが、異樹種複合LVLについて各構成要素の応力分布を今後検討する必要がある。

3.4 まとめ

島根県の森林資源において、特に天然林に蓄積量の多いコナラ材の利用技術を開発するために、まずコナラ材とスギ材の製材の曲げ試験と縦圧縮試験および横圧縮試験を行い、その基礎的な強度特性を把握した。次に、コナラ単板とスギ単板を製造して重錘法によりMOEを測定し、MOEの分布特性を検討した。さらに、コナラ単板とスギ単板を複合化した異樹種複合LVLを製造して曲げ試験を実施し、異樹種複合LVLの強度特性を把握して単板の構成方法などについて検討した。

コナラ製材は気乾比重0.83で曲げおよび縦圧縮試験において高い強度特性を示し、MOE14.8GPa、MOR141MPa、縦圧縮強度60MPaであった。横圧縮試験においては、試験体木口面の道管配列角度が横圧縮強度に強く影響し、横圧縮強度は19MPaであったが、LVLは欠点分散効果によってその影響は小さくなるものと考えられた。

コナラ単板のMOEは、平均11.9~12.4GPa程度の範囲

にあり、カラマツ単板などと同等であることがわかった。コナラ単板のMOEの分布特性は、MOEの下限側は10.5GPa程度であり、LVLの単板構成としてコナラ単板は外層部分に、スギ単板は内層部分に構成することが望ましいものと考えられた。

異樹種複合LVLは、スギLVLよりもMOEで1.7~2.1倍、MORで1.8倍程度向上することがわかった。そして、異樹種複合LVLの外層部分にコナラ単板を構成することにより、さらにLVL断面におけるコナラ単板の構成割合が44%程度になるとより高いMOEを示した。しかし、MORはMOEほど高い向上は認められなかった。これは、異樹種複合LVLの外層部分に構成したコナラ単板への応力分担が大きくなっているためと考えられた。したがって、今後各構成要素の応力分布の検討が必要である。

第4章 無機質複合化処理単板を積層したLVLの曲げ性能と燃焼処理の影響

4.1 緒言

コロイダルシリカ溶液とホウ酸による無機質複合化処理は、木材に高い難燃性を付与することが期待できる(古野ほか, 2001)。単板積層材(以下、LVLと記す)の構成エレメントは厚さ3mm程度の単板であり、ロータリーレースによる製造工程において裏割れが生じるため、単板中への薬剤の浸透が容易で難燃性の付与が期待できる。また、LVLは集成材と同様に構成エレメントである単板を断面設計することができるため、難燃処理した単板を意図的に外層部分に構成することが可能である。したがって、無機質複合化処理単板(以下、WMC単板と記す)をLVLの外層部分に積層接着すれば、火災の発生時にLVL自体が燃えにくくなり、建築物が焼け落ちにくくなる耐火性(坂本, 2000)を向上させることが可能になるものと考えられる。

コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理に伴う木材の力学的特性の変化について、古野ら(古野ほか, 1997)は、挽き板ではWPGがある範囲以上増加するとバルキングの影響によって曲げヤング係数(以下、MOEと記す)と曲げ強さ(以下、MORと記す)が低下し、複合体がもろくなる傾向があることを報告している。しかし、単板について無機質複合化処理を施した場合の

力学的特性の変化についてはこれまで詳細に検討されていない。

そこで、第4章では、コロイダルシリカーホウ酸溶液による無機質複合化処理をスギ単板とコナラ単板に施して、無機質複合化処理前後における単板のMOEを重錘法により測定し、MOEが挽き板の場合と同様にある範囲以上になると低下するのかどうかについて検討した。次に、WMC単板を積層接着したLVL（以下、複合化LVLと記す）を製造し、その曲げ性能を試験した。加えて、複合化LVLはWMC単板を接着しているため、その接着性能についてJAS（日本農林規格）に準じて評価した。さらに、複合化LVLの耐火性を評価することを目的として、複合化LVLにマイクロバーナーによる焼く処理を施し、その直後に曲げ試験を行って焼く処理前のLVLに対するMORの残存率を求め、WMC単板のLVLへの積層接着による耐火性の向上について検討した。

4. 2 試験方法

4. 2. 1 供試単板

島根県産のスギ (*Cryptomeria japonica* D.Don) およびコナラ (*Quercus serrata* Thunb. ex Murray) の原木を供試し、島根県合板協同組合浜田針葉樹工場（島根県浜田市治和町）に設備されているロータリーレースによって厚さ3mmの単板を製造した。単板は、自動制御型ドライヤーにより含水率を8%程度まで乾燥した。

乾燥された単板は、寸法を3(R)×100(T)×350(L)mmに加工し、各80枚を供試した。単板は60℃で24時間予備乾燥し、次に50℃で24時間以上の真空乾燥（P₂O₅存在下）を行って全乾重量を測定した。そして、室温の水中に飽水状態となるまで1週間以上浸せきした後、無機質複合化処理溶液を拡散浸透させた。なお、飽水時の単板の平均含水率はスギ207%、コナラ84%であった。

4. 2. 2 無機質複合化処理溶液の調製と浸せき処理

無機質複合化処理溶液は、コロイダルシリカ溶液（日産化学工業(株)製 Snow Tex 30、無水ケイ酸含有量30~31wt%）とホウ酸により調製した。コロイダルシリカ溶液にホウ酸を重量比で5%加えて約2時間攪拌し、その後飽水状態の単板を室温下で24時間浸せきさせた。浸せき処理後、単板は室温下で1時間風乾し、次に60℃で

24時間の固着乾燥を行った。そして、前述と同様な方法で全乾重量を測定して重量増加率（%以下、WPGと記す）を算出した。

4. 2. 3 重錘法によるWMC単板のMOEの測定

無機質複合化処理前後における全乾状態の単板について、図4-1に示すように重錘法によってMOEを測定した。測定条件は、スパン300mm、荷重量は0.2kg×10回として単板の中央部に載荷した。そして、変位計により荷重毎のたわみ量を測定してMOEを算出した。



図4-1 重錘法によるWMC単板のMOE測定

4. 2. 4 WMC単板を積層したLVLの製造と接着性能試験

LVLおよび複合化LVLの単板積層数は8プライとし、単板構成方法は表4-1に示す2タイプとした。全乾状態のWMC単板は予め含水率を約10%に調湿し、焼く処理を施す複合化LVLの試験体下面（曲げ試験時には引張り側）に2プライ積層接着した。

LVLの製造において、接着剤はレゾルシノール・フェノール共縮合樹脂接着剤（(株)オーシカ製 D-33N）を用いた。接着剤を単板に350g/m²の割合で両面塗布し、ホットプレスによって100℃で20分間熱圧縮した。圧縮圧力はSタイプで8kgf/cm²、KSタイプで12kgf/cm²とした。解圧後、約1週間養生して寸法を曲げ試験用として

表4-1 LVLの単板構成方法

LVLタイプ	樹種構成
S	S (8p)
KS	K (2p) - S (4p) - K (2p)

注) Sはスギ単板、Kはコナラ単板を示し、(p)は積層枚数を示す

22 (幅) × 22 (せい) × 352 (材長) mmに小割した。試験体数は、WMC単板を積層した複合化LVLと全て無処理単板を積層したLVLについて、試験条件毎に各8体とした。

複合化LVLの接着性能は、構造用単板積層材のJAS (日本農林規格) ((社)日本農林規格協会, 2000) に準じ、浸せきはく離試験と煮沸はく離試験により評価した。試験片は、曲げ破壊試験体の健全部より採取することとし、断面寸法はそのまま材長を75mmに調製した。

浸せきはく離試験は、試験片を室温の水中に24時間浸せきさせた後、60℃の恒温乾燥器中で24時間乾燥させた。試験片の適合基準は、試験片4側面を観察し、4側面における接着層のはく離率が10%以下であり、かつ同一接着層におけるはく離の長さがその接着層の1/3以下であることをとした。

煮沸はく離試験は、試験片を沸騰水中に5時間浸せきし、さらに室温の水中に1時間浸せきした後、60℃の恒温乾燥器中で24時間乾燥させた。試験片の適合基準は、前述の浸せきはく離試験と同様な基準とした。

4. 2. 5 複合化LVLの燃焼処理と曲げ試験

複合化LVLへの燃焼処理は、図4-2に示すように、マイクロバーナーによって行った。燃焼処理は、LVLが曲げ荷重を受ける際に引張り側となる試験体下面中央部に施し、処理時間は5分間または10分間とした。マイクロバーナーとLVLとの距離は100mmとし、火炎の大きさは火炎先端がLVLに接触する程度となるように注意して調節した。そして、燃焼処理を施した後、直ちにJIS Z 2101 (1994) (日本規格協会, 1994) に準じて曲げ試験を行った。

曲げ試験は、図4-3に示すように、木材引張圧縮試

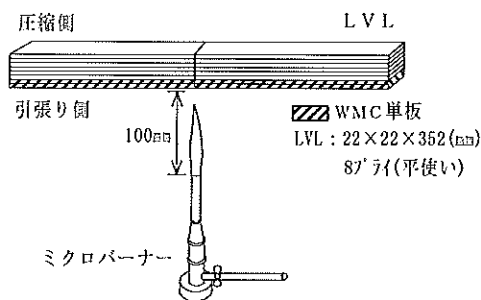


図4-2 LVLへの燃焼処理方法の概要

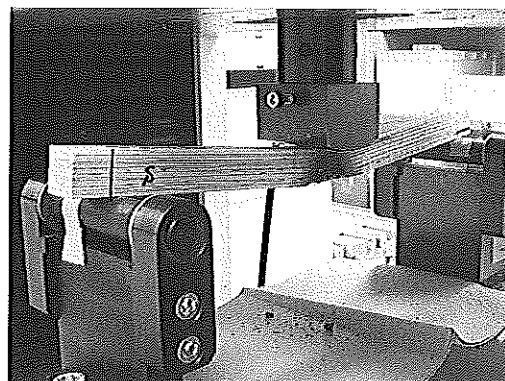


図4-3 燃焼処理を施したLVLの曲げ試験

験機 (ミネベア(株)製 AL-100kNB型) によってスパン308mmとして行い、燃焼処理後のLVLのMOEとMORを算出した。燃焼処理によってLVLには断面欠損が生じているが、MOEとMORの算出時に欠損部分は考慮しなかった。なお、初めに燃焼処理を施さない各条件のLVLについても同様な方法で曲げ試験を行い、複合化LVLのMOEとMORを測定した。

4. 3 結果と考察

4. 3. 1 WMC単板のWPGと固着無機物量

各単板のWPGは、表4-2に示すように、スギ単板で38.7%、コナラ単板で11.8%となった。単板中に固着した無機物量を無機質複合化処理前後の全乾時密度より算出した結果、スギ単板で111kg/m³、コナラ単板で88kg/m³となり、特にこの無機質複合化処理ではスギ単板が難燃材料に相当する結果 (最新木材工業事典出版委員会, 1999) が得られた。しかし、第2章の結果から、コロイダルシリカーホウ酸溶液処理したスギ単板のWPGは60.7%で、その際の固着無機物量は182kg/m³であったことから、処理溶液量と処理単板材積などの関係を改善することによって、さらに高い固着無機物量を得ること

表4-2 WMC単板のWPGと固着無機物量

樹種	WPG (%)	全乾時密度 (kg/m ³)		固着無機物量 (kg/m ³)
		処理前	処理後	
スギ	38.7	310	421	111
	(7.2)	(37.3)	(35.7)	(17.0)
コナラ	11.8	678	766	88
	(1.7)	(44.9)	(36.2)	(32.4)

注) ()内は標準偏差を示す

が期待できる。

4. 3. 2 WMC単板のMOEの測定

無機質複合化処理前後の単板について、重錘法によりMOEを測定した結果を表4-3に示す。MOEはスギ単板とコナラ単板ともに無機質複合化処理により若干高くなっており、処理前に対してスギ単板で9%、コナラ単板で15%向上した。標準偏差と変動係数には無機質複合化処理前後で大きな違いは認められないことから、その分布特性はほぼ同じ状態を呈していることがわかった。

古野ら（古野ほか、1997）によると、挽き板の場合WPGが50%以上になるとパルキングの影響によってMOEとMORが低下すると報告されている。本研究に供試したWMC単板のWPGの平均値はスギで38.7%、コナラで11.8%であった。これらのWPG値では各単板のMOEが著しく低下することはないことがわかったが、今後WPGが50%程度の単板についてさらに詳細に検討する必要がある。

表4-3 無機質複合化処理前後における単板のMOE測定結果

単板	統計値	MOE (GPa)	
		処理前	処理後
スギ	平均値	5.8	6.3
	標準偏差	1.4	1.5
	変動係数(%)	24.5	23.5
コナラ	平均値	10.8	12.4
	標準偏差	1.9	2.2
	変動係数(%)	17.5	17.7

4. 3. 3 WMC単板を積層した複合化LVLの曲げ性能と燃焼処理の影響

複合化LVLと無処理単板を積層接着した無処理LVLの燃焼処理前の曲げ試験結果を表4-4に示す。Sタイプの無処理LVLはMOEが9.88GPa、MORが69.3MPaとなり、一般的なスギLVLよりも高い値となっている。複合化LVLではMOEが7.92GPa、MORが58.3MPaとなった。第3章で示したスギLVL（第3章記述のV型）のMOEが6.0GPa、MORが45MPaであったことと、試験体寸法の違いなどを考慮して検討すると、Sタイプの複合化LVLの曲げ性能は無処理と同等以上になるものと考えられ、WMC単板の積層接着によって曲げ性能が低下することはないことがわかった。

KSタイプの複合化LVLの曲げ性能はMOEが12.71GPa、MORが97.1MPaとなり、KSタイプの無処理LVLのそれらは10.75GPa、92.5MPaであった。KSタイプの複合化LVLについても無処理と同等以上となることがわかった。

なお、複合化LVLの接着性能は、浸せきはく離試験、煮沸はく離試験ともに構造用LVLのJASを満たす結果となり、接着性能に問題はないことが確認できた。曲げ試験の際に、WMC単板の接着層が破壊することもなかった。

燃焼処理後にLVLの曲げ試験を実施してMORを算出した結果について、スギWMC単板を積層したSタイプの複合化LVLと無処理LVLの結果を図4-4に示す。これより、燃焼処理後の複合化LVLのMORは無処理のそれよりも高くなっている。5分間と10分間の燃焼処理後でのMORの残存率は、無処理でそれぞれ30%、25%、複合化LVLで43%、38%となり、WPGが約30%のスギ

表4-4 複合化LVLと無処理LVLの曲げ試験結果

LVL タイプ	統計値	MOE (GPa)		MOR (MPa)	
		無処理	複合化LVL	無処理	複合化LVL
S	平均値	9.88	7.92	69.3	58.3
	標準偏差	0.50	0.48	7.3	7.8
	変動係数(%)	5.0	6.0	10.6	13.3
KS	平均値	10.75	12.71	92.5	97.1
	標準偏差	0.45	0.45	3.4	5.6
	変動係数(%)	4.1	3.6	3.6	5.8

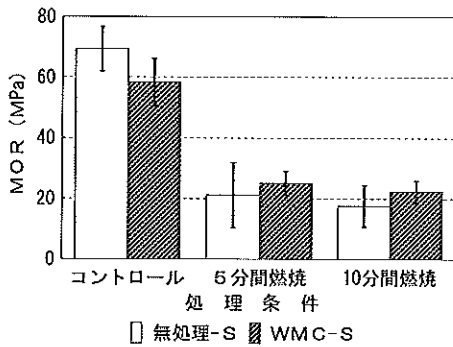


図4-4 スギWMC単板を積層した複合化LVL (WMC-S)と無処理LVL (無処理-S)の燃焼処理後のMORの変化

WMC単板を積層接着することによってMORの残存率の向上が図られたといえる。

燃焼処理後のLVLの断面欠損の発生状況は、図4-5に示すように、スギの無処理LVLでは5分間、あるいは10分間の燃焼処理で炭化を伴う著しい欠損が引張り側2プライまで生じていたが、WMCスギ単板を引張り側に積層接着しているスギ複合化LVLでは欠損は全く生じておらず、外観特性からも耐火性の向上が図られたことがわかった。

次に、KSタイプのLVLで燃焼処理後の複合化LVLと無処理LVLのMORの測定結果を図4-6に示す。図4-4のSタイプのものと比較すると、MORの残存率は小さくなっているが、これはコナラWMC単板のWPGが約10%であったためであると考えられる。

5分間、10分間の燃焼処理後のMORの残存率は、複合化LVLではそれぞれ26%、27%、無処理LVLではそ

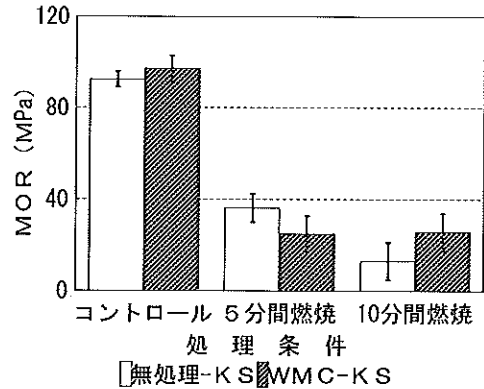


図4-6 コナラWMC単板を積層した複合化LVL (WMC-KS)と無処理LVL (無処理-KS)の燃焼処理後のMORの変化

れぞれ39%、14%となった。10分間の燃焼処理後のMORは、複合化LVLが無処理LVLよりも高い値を示しており、コナラWMC単板の積層接着による耐火性の向上が認められたといえる。しかし、5分間の燃焼処理後のMORの残存率は無処理LVLで高くなっている。

第1章の酸素指数による燃焼性試験の結果から、コナラWMC単板の難燃性は無処理のものより向上していることは明らかである。したがって、本実験のKSタイプの複合化LVLのMORの残存率も、無処理LVLよりも高くなることが予想される。温度上昇速度(加熱速度)等の燃焼処理条件が一定である方法によって、加熱と同時の載荷試験やLVLの燃焼時の温度解析(Bambang Subyaktio *et al.*, 2001)を実施し、WMC単板をLVLに積層することによる耐火性向上の効果をさらに明らかにする必要がある。

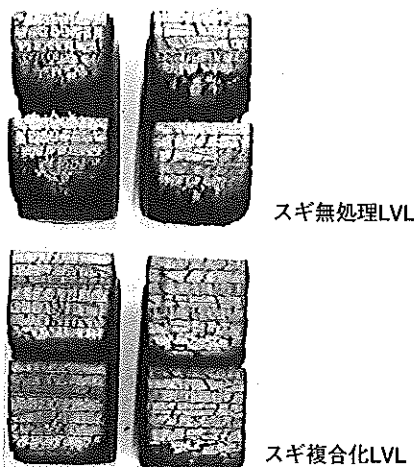


図4-5 5分間の燃焼処理後のスギ無処理LVL(上)とスギ複合化LVL(下)の試験体断面

4.4 まとめ

コロイダルシリカーホウ酸溶液による無機質複合化処理をスギ単板とコナラ単板に施し、無機質複合化処理前後での単板のMOEを測定した。また、WMC単板を積層した複合化LVLを製造し、曲げ性能と接着性能を評価した。そして、複合化LVLに燃焼処理を施した後に曲げ試験を実施し、燃焼処理前に対するMORの残存率を求め、WMC単板のLVLへの積層接着による耐火性の向上について検討した。

無機質複合化処理によるスギ単板の固着無機物量は 111kg/m^3 となり、難燃材料に相当する結果となった。ただし、WPGが約39%でありさらに高いWPGが得られ

れば高い固着無機物量が期待できる。

単板のMOEは、WPGの増加に伴って若干大きくなる傾向が認められた。今後、WPGが50%程度の単板について検討する必要がある。

WMC単板を積層した複合化LVLの曲げ性能は、無処理LVLと同等であり曲げ性能の低下は認められなかった。WMC単板の接着性能について、接着性能は良好でJAS規格を満たす結果であった。

複合化LVLの燃焼処理後のMORの残存率は、スギWMC単板を積層した場合10分間の燃焼処理後38%、コナラWMC単板を積層した場合27%と高くなり、WMC単板の積層による耐火性の向上が図られた。

今後、WMC単板を積層した小、中断面寸法の複合化LVLの曲げ試験と、それらの定量的な燃焼処理条件に伴う曲げ試験を実施し、LVLのWMC単板の積層接着による耐火性の向上についてさらに検討する必要がある。

結 言

島根県産のスギ材とコナラ材より単板を製造し、コロイダルシリカーホウ酸溶液による無機質複合化処理を施し、WPG(%)、難燃性、耐候性などについて評価した。コナラ材の製材と単板の曲げや圧縮の強度性能を評価し、スギとコナラの単板を複合化した異樹種複合LVLを製造して曲げ試験を行った。無機質複合化処理したWMC単板の強度特性を調査し、その後複合化LVLに積層接着して、耐火性についての基礎的な試験を実施した。

コロイダルシリカーホウ酸溶液によって無機質複合化処理したスギ単板とコナラ単板の難燃性を評価した(第1章)。得られた結果は次のとおりである。

- 1) WPGはスギ単板で約50%と高くなり、無機物の固着率も約80%となった。
- 2) 酸素指数、燃焼時間、残炭率は、無機質複合化処理によって著しく向上した。
- 3) WPGと酸素指数との間には正の相関関係が認められ、WPGから酸素指数を推定することが可能となった。
- 4) 無機物は細胞内腔のみならず細胞壁中にも固着し、難燃性に寄与していた。
- 5) 燃焼面の単板のWPGが50%で、その酸素指数が60%

程度になるならば、実際の燃焼挙動に類似した条件下でも高い難燃性が得られた。

コロイダルシリカ溶液による無機質複合化処理単板の色調変化と耐候性を評価した(第2章)。得られた結果は次のとおりである。

- 1) コロイダルシリカ単独溶液やホウ酸単独溶液では、処理に伴ってアルカリ汚染や酸汚染が生じ、促進耐候性試験でも影響が生じた。
- 2) コロイダルシリカーホウ酸溶液は、溶液自体による汚染が生じず、利用上支障がないことがわかった。
- 3) 溶脱処理での色差 ΔE^* は、コロイダルシリカーホウ酸溶液で小さくなった。
- 4) 促進耐候性試験において、コロイダルシリカーホウ酸溶液処理単板は、明度差 ΔL^* と色度差 Δa^* などの増減幅が小さくなり、変色を抑制していた。
- 5) コロイダルシリカーホウ酸溶液処理単板は、木質部の侵食が抑制され、耐候性の向上が期待できた。

島根県産コナラ材とスギ材の異樹種複合LVLへの適用性を検討するために、製材、単板、および異樹種複合LVLの基礎的な強度特性について検討した(第3章)。得られた結果は次のとおりである。

- 1) コナラ材は、曲げヤング係数、曲げ強さ、縦圧縮強度が特に優れていた。
- 2) コナラ材の横圧縮強度は、木口面の道管配列角度と負の相関関係にあった。
- 3) コナラ単板は、高い曲げヤング係数の分布特性を有していた。
- 4) 異樹種複合LVLは、スギLVLよりも高い曲げ強度性能を有していた。
- 5) コナラ単板はLVLの外層部分に構成し、構成割合は40%程度が適切であることがわかった。

無機質複合化処理単板を積層したLVLの曲げ性能と燃焼処理の影響を検討した(第4章)。得られた結果は次のとおりである。

- 1) スギ単板の固着無機物量は、難燃材料に相当することがわかった。
- 2) WMC単板の曲げヤング係数は、WPGの増加に伴っ

て若干大きくなるものの、分布特性に変化は生じなかった。

- 3) 複合化LVLの曲げ性能は、無処理のものと同等であった。
- 4) 複合化LVLの燃焼処理後の曲げ強度の残存率は、無処理LVLより高くなり、耐火性の向上が認められた。
- 5) 今後、定量化された燃焼処理条件下での耐火性の評価が必要である。

本研究において、コロイダルシリカーホウ酸溶液を用いることによってスギ単板とコナラ単板に難燃性と耐候性を付与できることが明らかとなった。また、コナラ材の基礎的な強度特性が把握され、スギ材との複合化による異樹種複合LVLへの適用が可能であることがわかった。そして、コロイダルシリカ溶液により無機質複合化処理したWMC単板をLVLに積層接着すると、耐火性の向上が図られることがわかった。

コロイダルシリカ溶液を用いた無機質複合化処理単板(木材)を今後実用化へつなげていくためには、木材の寸法、含水率、加工工程などの条件が含まれる実用化レベルを想定した製造方法の検討、あるいは屋外や荷重載荷時を想定したような実際の使用環境条件下における詳細な性能評価、さらには使用後のリサイクル(再生利用)方法の検討を要するものと考えられる。しかし、それらについては今後の課題としたい。

本研究で得られた成果が、木材の難燃性と耐候性をはじめとする木材保存技術の向上に、スギ材とコナラ材の利用技術の開発に、そして島根県の林業と木材産業の発展にわずかでも役立てば幸いである。

引用文献

- 雨宮昭二：木材の屋外利用の歴史と今後の方策，木材工業，46 (11)，503-508 (1991)
- 荒川民雄：木質建材のホウ酸塩処理と応用，木材工業，58 (9)，403-408 (2003)
- Bambang Subyakto, Toshimitsu Hata, Isamu Ide, Shuichi Kawai: Fire-resistant performance of a laminated veneer lumber joint with metal plate connectors protected with graphite phenolic sphere sheeting, *Journal of Wood Science*, 47 (3), 199-207 (2001)
- 武南勝美：木材の化学汚染とその対策 (3) 完，木材工業，24 (7)，314-319 (1969)
- Takeshi FURUNO, Tohru UEHARA and Susumu JODAI: Combinations of wood and silicate I. Impregnation by water glass and applications of aluminum sulfate and calcium chloride as reactants, *Mokuzai Gakkaishi*, 37 (5)，462-472 (1991)
- Takeshi FURUNO, Kenta SHIMADA, Tohru UEHARA and Susumu JODAI: Combinations of wood and silicate II. Wood-mineral composites using water glass and reactants of barium chloride, boric acid, and borax, and their properties, *Mokuzai Gakkaishi*, 38 (5)，448-457 (1992)
- Takeshi FURUNO, Tohru UEHARA and Susumu JODAI: Combinations of wood and silicate III. Some properties of wood-mineral composites using the water glass-boron compound system, *Mokuzai Gakkaishi*, 39 (5)，561-570 (1993)
- 古野 毅, 澤辺 攻編：“木材科学講座 2 組織と材質”，海青社，109-110 (1994)
- 古野 毅, 田所隆治, 上原 徹：水ガラス-ホウ素化合物系による無機質複合体の接着性と難燃性，材料，44 (498)，292-296 (1995)
- 古野 毅, 青野重雄, 上原 徹：水ガラス-ホウ素化合物系による木材無機質複合体の力学的性質，材料，45 (6)，687-693 (1996)
- 古野 毅, 栗生 剛, 松岡真吾, 井上唯師, 上原 徹：コロイダルシリカ溶液による木材の無機質複合化とその性質，材料，46 (4)，401-407 (1997)
- 古野 毅, 今村祐嗣, 浅田 修, 加藤定信：コロイダルシリカ溶液による木材無機質複合体の特性—耐蟻性, 耐光性, 硬さ, 耐摩耗性—，材料，48 (3)，245-250 (1999)
- 古野 毅, 後藤崇志, 加藤定信：ケイ酸塩-ホウ素化合物系による木材無機質複合体のEPMA観察と酸素指数法による難燃性評価，材料，50 (4)，383-390 (2001)
- 古野 毅, 勝部雅之, 加藤定信：各種ケイ酸塩溶液系で

- 調製した無機質複合化木材の無機成分分析, 材料, 53 (4), 388-395 (2004)
- 後藤崇志, 池淵 隆, 石橋公雄, 西 政敏, 山根啓義, 二見鎌次郎: 県産スギ材を利用したスギ複合構造用合板の製造と性能評価, 日本木材学会中国・四国支部第11回研究発表会要旨集, 28-29 (1999)
- 後藤崇志, 池淵 隆, 中山茂生: 島根県産スギ材により製造したスギ複合板の性能評価, 日本木材加工技術協会第18回年次大会講演要旨集, 53-54 (2000)
- Takashi Goto, Takashi Ikebuti, Shigeo Nakayama, Akira Fukushima, Takeshi Furuno: THE FOREST RESOURCES AND WOOD INDUSTRY IN SHIMANE PREFECTURE, JAPAN, 16TH INTERNATIONAL WOOD MACHINING SEMINAR PROCEEDINGS PART2: POSTER PRESENTATIONS, 782-789 (2003)
- 後藤崇志, 古野 毅: コロイダルシリカーホウ酸溶液によって無機質複合処理したスギ単板とコナラ単板の難燃性評価, 材料, 53 (4), 381-387 (2004)
- 林 知行, 宮武 敦: スギ複合集成材の強度特性 (第1報) 曲げ, 引張および部分圧縮強度, 木材学会誌, 37 (3), 200-205 (1991)
- 林 知行: “高信頼性木質建材「エンジニアードウッド」”, 日刊木材新聞社, 151-152 (1998)
- 林 知行: スギ構造用LVLの製造上の問題点, 木材工業, 54 (2), 60-65 (1999)
- Tomoyuki Hayashi, Atsushi Miyatake, Masaki Harada: Outdoor exposure tests of Structural laminated veneer lumber I: evaluation of the physical properties after six years, Journal of Wood Science, 48 (1), 69-74 (2002)
- 林 知行: “ここまで変わった木材・木造建築”, 丸善, (2003)
- Tomoyuki Hayashi: Recent development on the processing technology for engineered wood products in Japan, Conference on Forestry and Forest Products Research 2003 (CFFPR 2003) Review, (2003)
- 平井信二: “木の百科 (解説編)”, 朝倉書店, 159-161 (1996)
- 井上嘉幸: “実用木材加工全書10 木材の劣化と防止法”, 森北出版, 274-277, 367 (1972)
- 石川朝之, 堀内清史, 柴田博幸, 戸谷和光, 武田邦彦: 木材の難燃化に及ぼす壁孔の破壊とホウ素化合物の影響, 材料, 52 (3), 301-308 (2003)
- JIS K7350-2: プラスチック実験光源による暴露試験方法第2部: キセノンアーク光源
- 城代 進, 鮫島一彦編: “木材科学講座4 化学”, 海青社, 20 (1993)
- 改訂3版 木材工業ハンドブック編集委員会: “改訂3版 木材工業ハンドブック”, 丸善, 482 (1982)
- 建築知識編集部: “建築知識 [10月号]”, エクスナレッジ, 239-246 (2001)
- 建築知識編集部: “建築知識 [3月号]”, エクスナレッジ, 147 (2002)
- 木口 実: 木材の気象劣化と耐候処理 1. 木材の劣化気象因子と劣化機構, 木材保存, 19 (6), 3-12 (1993)
- 中戸莞二編著: “新編 木材工学”, 養賢堂, 96-99 (1985)
- 日本規格協会: 木材の試験方法 JIS Z 2101-1994
- 日本木材学会地震プロジェクトチーム 有馬孝禮, 飯島泰男, 小松幸平, 高橋旨象, 土居修一: “木造住宅の耐震”, 日本木材学会, 1-10 (1996)
- 日本材料学会木質材料部門委員会編: “木材工学辞典”, 工業出版, 753 (1982)
- 錦織 勇, 安井 昭: 広葉樹小径材の材質調査 (I), 島根県林技セ研報, 40, 61-67 (1989)
- 日産化学工業(株): “スノーテックス コロイダルシリカ” 製品カタログ (2001)
- 日産化学工業(株)化学品事業本部 無機材料事業部: 製品安全データシート N-08 スノーテックス 30, 1-3 (2000)
- 木材活用辞典編集委員会: “木材活用辞典”, 産業調査会, 87 (1994)
- 朴 秉守, 古野 毅, 上原 徹: 紫外線照射による木材表面の顕微化学的变化, 木材学会誌, 42 (1), 1-9 (1996)
- 林野庁 編集: “図説 森林・林業白書 (平成14年度版)”, (社)日本林業協会, 60-62 (2003)

- 最新木材工業事典出版委員会編：“最新木材工業事典”，
 (社)日本木材加工技術協会，60-61，124-125 (1999)
- 坂本 功：“木造建築を見直す”，岩波新書，3 (2000)
- 佐竹義輔，原 寛，亘理俊次，富成忠夫編：“日本の野生植物 木本 I”，平凡社，71 (1989)
- 島根県農林水産部 森林整備課：島根県の森林・林業
 平成15年度版，29 (2003)
- 島根県農林水産部 森林整備課：森林資源関係資料 (平成14年度末現在)，2-59 (2003)
- 島根県林業技術センター，島根県産業技術センター：
 (平成12年度～平成14年度 県立試験研究機関連携推進事業)「地域材を用いた建築部材及び家具・建具用素材の開発」研究報告書，(2003)
- Subyakto, Bambang Subiyanto, Toshimitsu Hata, Shuichi Kawai: Evaluation of fire-retardant properties of edge-jointed lumber from tropical fast-growing woods using cone calorimetry and a standard fire test, *Journal of Wood Science*, 49 (3), 241-247 (2003)
- 鈴木正治，徳田迪夫，作野友康編：“木材科学講座 8 木質資源材料 改訂増補”海青社，63-66 (1999)
- (社)日本農林規格協会：“構造用単板積層材の日本農林規格” (2000)
- (社)全国林業改良普及協会：“林業技術ハンドブック”，
 技秀堂，860-862 (1998)
- 中国四国農政局松江統計・情報センター：農林水産統計
 平成15年木材統計調査結果 (島根県) (平成15年12月31日現在)，1-9 (2004)
- 上杉三郎，原田寿郎，前田 豊，山田 誠：LVLの耐火性能，*木材学会誌*，45 (1)，57-61 (1999)
- 屋我嗣良，河内進策，今村祐嗣編：“木材科学講座12 保存・耐久性”，海青社，161，190-191 (1997)
- 山口東彦：ケイ酸化合物固定木材の調製とその物理的性質，*木材学会誌*，40 (8)，838-845 (1994)
- 吉村 貢，梅村健三：酸素指数法による木材の燃焼試験 (第1報) Up and Down 法による測定，*木材学会誌*，26 (3)，209-214 (1980)
- 吉村 貢，三輪 明：酸素指数法による木材の燃焼試験 (第2報) 日本工業規格法による測定，*木材学会誌*，26 (4)，287-292 (1980)
- (財)日本住宅・木材技術センター：“ティンバーエンジニアマニュアル作成事業報告書 (木造住宅の構造設計の基礎知識)”，2 (1999)
- (財)日本木材総合情報センター：“月刊 WIDE 9月号”，12-15 (2000)
- (財)日本木材総合情報センター：“月刊 WIDE 11月号”，2-7 (2000)

Studies on the Properties of Wood-Mineral Composed Veneers using Colloidal Silica and the Application to Laminated Veneer Lumber

Takahi Goto

ABSTRACT

Japanese cedar (sugi: *Cryptomeria japonica* D. Don) and Japanese oak (konara: *Quercus serrata* Thunb. ex Murray) are considered to be the major tree species in Shimane Prefecture. For the effective utilization of sugi and konara woods and developing the new processing technology of these woods, in this doctoral dissertation, veneers made from sugi and konara woods were treated with the colloidal silica solution to manufacture wood-mineral composed (WMC) veneers, and the properties of WMC veneers were investigated and the application of WMC veneers to laminated veneer lumber (LVL) were attempted.

In Chapter 1, WMC veneers were manufactured with sugi and konara using the colloidal silica-boric acid solution for the purpose of enhancing the fire retardancy of veneers. The evaluation of fire retardancy was experimented by two burning tests with oxygen index (OI) and microburner methods. In addition, the residual char produced after the OI-burning test was observed by electron probe X-ray microanalysis (EPMA).

Weight percent gains (WPGs) for sugi (sapwood and heartwood) and konara veneers were about 50% and 14%, respectively. Ratios of fixation of unleached inorganic substances in WMC veneers were about 80% for sugi and 62% for konara.

OI values of untreated veneers were 22% regardless of wood species and the presence of leaching procedure, whereas WMC veneers of sugi and konara showed OI values of about 57% and 33%, respectively. The burning time and the percent weight of residual char were increased by combination of wood and silicate. As a result of EPMA observation, carbonized cell walls of untreated veneers became thinner, showing an abnormal shrinkage of tracheids and vessels. In the case of WMC veneers of sugi and konara, silica bodies filled up the lumina of tracheids and vessels or sometimes coated the lumen surfaces, and the abnormal shrinkage of cells and the thinning of cell walls hardly occurred. Also, the distribution of silica in the carbonized walls of tracheids, vessel, and wood fibers was found interestingly, giving a fire retardant effect to WMC veneers together with boron compound. The correlation between WPG and OI was recognized and consequently the evaluation of fire retardancy with WPG would be possible.

In the burning test of WMC veneers with a microburner, the increase in temperature on the upper side of specimen was slow. The ignition of WMC sugi veneer was not recognized in 30 minutes and the carbonized area on the under side of specimen was small. When WMC sugi veneer was directly exposed to fire and OI values estimating from the linear regression equation were more than 60%, the fire retardancy could be evaluated to be better.

In Chapter 2, veneers of sugi sapwood and konara were treated with colloidal silica and boric acid solutions to manufacture WMC veneers, and the color changes on the veneer surfaces by treatment were investigated. Then we evaluated the weathering resistances of treated veneers by both leaching procedure and weathering test with a weather meter.

WPG for the colloidal silica-boric acid treatment (CB treatment) was larger than that for the treatment with

only colloidal silica solution or boric acid solution (C or B treatment).

It was found that the CB treatment did not cause any remarkable color change whereas the C or B treatment deteriorated veneer surfaces because of alkalinity or acidity.

The fixation ration of unleached inorganic substances by the leaching procedure was larger in the C or CB treatment than that in the B treatment. Although there was not little correlation between the fixation ration and the color difference (ΔE^*), the ΔE^* value in the CB treatment was the smallest among all the treatments.

In the weathering test, it was observed that the ΔE^* values varied in the initial stage of the test and trended to increase later. The change in ΔE^* for the CB treatment was small in the initial stage, and the ΔE^* value in CB-treated sugi veneers became smaller than control veneer during the test. Furthermore, the CB treatment prevented the portion of earlywood from any physical erosion by weathering test.

In Chapter 3, konara is the most dominant hardwood species in Shimane Prefecture. For developing the new processing technology of unused konara wood, we attempted to manufacture species-mixed laminated veneer lumbers (9 ply-LVLs) by combining with sugi.

We examined strength properties of konara and sugi lumbers such as bending and compressive strengths followed by measuring the modulus of elasticity (MOE) in bending in veneers of both konara and sugi. Three types of species-mixed LVLs composed of konara and sugi veneers were manufactured to test the modulus of rupture (MOR) and the MOE in bending.

Konara lumber was found to have high strength properties in bending and compression parallel to grain, but compressive strength perpendicular to grain was low because konara wood was ring-porous and the concentration of shearing stress occurred in the pore zone.

The MOE of konara veneer showed nearly the same value as that of Dahurian larch (*Larix dahurica* Turcz.).

It was found that species-mixed LVLs enhanced the MOE by 1.7-2.1 times that of LVL composed of sole species of sugi by laminating konara veneer in the face layer and showed the high MOE value when composing konara veneer at the cross-sectional area of about 44%. However, the MOR in bending in species-mixed LVLs did not increase remarkably as much as the MOE.

In Chapter 4, the fire endurance of LVLs laminated WMC sugi or konara veneers in the face layer (WMC-LVL) was examined. The evaluation of fire endurance was experimented by the burning treatment and the bending test. WMC-LVLs were burned by a microburner for 5 or 10 minutes and measuring the MOR in bending. Also we measured the MOE of WMC veneers in bending. In addition, we examined bending properties of WMC-LVLs by the bending test.

The retentions of the MOR of WMC-LVLs laminated WMC sugi veneer and WMC konara veneer after 10 minutes were 38% and 27%, respectively. These retentions of the MOR were larger than that of the control LVLs. The carbonized area on the under side of WMC-LVLs were smaller than that of the control LVLs. The MOE of WMC veneers showed nearly the same value as that of control veneers.

