



Title	気相アセチル化による木材の高耐久化に関する研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	長谷川, 祐
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(農学)
Dissertation Number	甲第13938号
Issue Date	2020-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/77994
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Yu_hasegawa_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学位論文要旨

博士の専攻分野名称：博士（農学）

氏名：長谷川 祐

学位論文題名

気相アセチル化による木材の高耐久化に関する研究

木材は大気中の二酸化炭素を吸収・固定化して生合成され、加えて、持続生産が可能なことから、地球温暖化の進行を抑制する原材料として注目されている。建築材や家具などのマテリアル、特に、木橋や堰堤などの土木資材、輸送コンテナや風力発電の躯体などの屋外製品への木材の利用が広がれば、二酸化炭素の大量かつ長期間の固定化に繋がると予測され、今世紀に入り様々な応用研究が展開されている。しかし木材は、屋外環境下では腐朽や干割れ、ささくれ、シロアリやフナクイムシ等による食害が発生するなど耐久性が低いといった点が課題となっている。これまで、防腐薬剤や塗料等によって木材の耐久性向上が図られてきたが、有効成分の溶脱や劣化を補うために定期的な再塗布処理が必要なことや、重金属類や殺菌・殺虫成分が含まれる試薬の使用による環境負荷が懸念されてきた。

木材のアセチル化は、「木材の高耐久化」と「人や環境に対する高い安全性」を両立させる方法として古くから知られている木材の化学修飾法の一つである。この方法では、木材構成成分中の水酸基がアセチル化されることにより疎水化とバルキング効果が発現して、木材の寸法安定性が向上することが特徴である。同時に、生物劣化に対する抵抗性および耐候性なども大幅に向上し、多くの木材の欠点を改善できる。しかし、アセチル化により、木材の比重が大きくなることがデメリットとして挙げられていた。そこで、本研究では、軽量かつ高耐久性のあるアセチル化木材の開発を目的としている。

一般的な木材のアセチル化は、アセチル化試薬である無水酢酸を木材に含浸させ、加熱を行うという「液相アセチル化」であった。しかし、この方法では、木材が内部まで全てアセチル化されるので、重量化を伴った。この解決法として、常圧下で無水酢酸の蒸気と木材と反応させる「気相アセチル化法」に着目した。この方法では、木材表層のみのアセチル化が可能で、軽量化が期待できる。本研究では、気相アセチル化の進行と寸法安定性や耐腐朽性との関係を検討して、気相アセチル化の有効性を評価した。

【建材サイズ試験体の気相アセチル化とその性能の評価】

一般的な建材に近い大きさのスギ心材の角材状試験体 [30 mm (T) × 30 mm (R) × 180 mm (L)] を用いて気相アセチル化（反応条件：80℃で1～72時間）を行った。この反応では、無水酢酸蒸気を柾目面や板目面から木材内部に拡散させることを目的として、薬剤の浸透・拡散が容易な木口面はシールした。

木材表面からの気相アセチル化の進行は、予想通り反応時間に依存した。耐腐朽性が顕著に発現すると報告されているアセチル基量 [木材に対する重量増加 (WPG)] が15%以上となる表面からの厚さは、24時間の反応では2～3 mmと薄かったが、72時間の反応では、6～7 mmに増大した。このため、24時間反応では、対照試料とした液相アセチル化木材に比べ、褐色腐朽菌のオオウズラタケおよび白色腐朽菌のカワラタケに対する耐腐朽性が著しく劣っていた。一方、72時間の反応では、対照試料と同等の耐腐朽性を示し、JISの木材保存処理の基準を満たしていた。また、寸法安定性に関しても同様な結果が得られた。本実験で用いたアセチル化角材の重量は、72時間の気相反応物の方が液相反応物より約2割軽く、軽量化しても同等の効果が発現することが確認された。加えて、本研究から耐腐朽性を発現させるのに必要なアセチル化層の厚さに関しても、明確な情報を得るに至った。

【針葉樹板材試験体に対する気相アセチル化と耐候性の評価】

前述の耐腐朽性と並んで、屋外使用時に重要な性能となる耐候性について、板材試験体 [12 (R) mm × 65 (T) mm × 130 (L) mm] を用いて評価した。前述のスギ、トドマツに加え、カラマツ心材部の板材試験体を気相アセチル化し、吸・放湿による寸法安定性試験やウェザーメーターによる促進耐候試験を行った。この場合も木口面をシールした状態でアセチル化した。その結果、寸法安定性に対する気相アセチル化の効果は、スギ材で最も高く、吸・放湿に伴う寸法変化は無処理木材に比べ 1/3 以下に抑制された。トドマツも無処理材に比べ寸法変化は 3 割台へと抑制され、顕著な改善が確認できた。

促進耐候試験時の干割れ発生率は、無処理材のトドマツで 60% 以上、カラマツとスギが約 26% であったのに対し、気相アセチル化によってスギは 0%、トドマツは 1% 台、カラマツが 4% 前後と大幅に抑制できた。

【正角材試験体の気相アセチル化時に発生する膨潤挙動の解析】

気相アセチル化では、反応が木材表面から内部へと進行するため、正角材など断面形状の大きな部材を処理対象とした場合、木材表層と内部の反応の進行差に起因する形状変化の発生が予想された。そこで、前項と同様に、構造材への適用を想定し、木口面をシールしたトドマツ心材の正角材試験体 [105 mm 角 × 170 mm (L)] を用いて気相アセチル化時の膨潤挙動を解析した。

その結果、気相アセチル化の進行に伴って板目面が異方的に膨潤し、試験体の形状が“砂時計型”に変形する現象が観察された。なかでも、72 時間の気相アセチル化では、最も変形量が大きく、試験体内に内部割れが発生していた。一方、接線方向の試験体の寸法変化は、処理時間に伴って加速度的に大きくなり、変化率は表層に近いほど大きくなった。また、木材内部では、引張応力の発生が見られた。

トドマツは接線方向の膨潤率が大きく、薬液の浸透性も低い樹種であることが知られている。この樹種の特徴によって、試験体表面は急速に膨潤するのに対して木材内部は膨潤しないために引張応力が生じ、この引張応力が木材の接線方向の引張強度を超えた場合に内部割れにつながるものと推察された。

以上の解析結果から、トドマツのような接線方向への膨潤率が高い樹種では、予め試験体の含水率を調整することや気相アセチル化反応の加熱条件緩和など、試験体表面と内部の寸法変化の差を緩やかにするための処理条件の必要性が明らかとなった。

【結論】

従来の液相アセチル化は、加圧・減圧機能を備えた反応装置を用い、さらに、試験体を完全に浸漬させる多量の薬剤を使用した。加えて、腐朽性などに対して高い信頼性を得るために、完全なアセチル化が要求され、必要以上の重量増加を招き、アセチル化木材の普及の足枷になっていた、本研究によって、簡便な装置を用いた常圧下での気相アセチル化であっても、試験体表層に形成するアセチル化層の厚みが制御でき、実用上十分な高耐久性を保持したアセチル化木材が製造可能であることが明らかとなった。液相アセチル化と比べると、設備に関わるコストが大幅に削減でき、さらに、反応装置内を薬剤蒸気で満たす程度の薬剤使用量で済むことから、製造コストの軽減も十分期待できる。したがって、今後、気相アセチル化は、木材産業界にとって重金属や殺菌・殺虫成分を含まない低環境負荷な高耐久処理として有効な選択肢になるとともに、木材の屋外製品への利用拡大に繋がり、二酸化炭素の長期固定化に貢献するものと期待される。