

熱処理による圧縮変形の永久固定*

井上 雅文**, 則元 京**

Permanent Fixation of Compressive Deformation in Wood by Heat Treatment*

Masafumi INOUE**, Misato NORIMOTO**

(平成3年8月1日受理)

The permanent fixation of compressive deformation of sugi (*Cryptomeria japonica* D. Don) specimens by heat treatment was investigated. The changes of the dimensional stabilities to moisture, mechanical properties, and color changes due to the heat treatment were also examined.

The recovery of deformation of the heat-treated compressed specimens after boiling in water decreased with increasing of heating time and temperature. The perfect fixation of the deformation was achieved at a heating temperature of 180°C, 200°C, and 220°C for 20, 5, and 3 hours, respectively.

Anti-swelling efficiency (*ASE*) of the heat-treated specimens increased with heating temperature and time. A linear relationship between the recovery of deformation and *ASE* was observed. When *ASE* reached 40%, the perfect fixation was obtained. From these facts, it was considered that high dimensional stability of the cell walls given by heat treatment contributed the fixation of compressive deformation. The decreases of modulus of elasticity were 8.91% and 0.72% by 20 and 5 hours heating at 180°C and 200°C, respectively, while those of modulus of rupture at the same conditions were 38.5% and 34.1%, respectively. As for color changes, the decrease of the *L*-value was 28% and ΔE was 29 when the perfect fixation was attained.

概 要

スギ (*Cryptomeria japonica* D. Don) 材を用いて、熱処理による圧縮変形の永久固定について調べた。また、熱処理した木材の寸法安定性、機械的性質、材色変化についても調べた。得られた結果は、次の通りである。

熱処理温度、時間の増加に伴い圧縮変形の回復は減少し、180°Cでは20時間、200°Cでは5時間、220°Cでは3時間の処理によって、変形はほぼ完全に固定された。

圧縮していない木材の抗膨潤能 (*ASE*) は、熱処理温度の上昇、あるいは時間の増加に伴い増加するが、

* 本研究の一部は、第39回日本木材学会大会 (1989年4月、沖縄) および第40回日本木材学会大会 (1990年4月、筑波) において発表した。

** 木質バイオマス部門、物性制御研究室 (Division of Wood Biomass Science, Laboratory of Property Enhancement)。

Keywords: heat treatment, permanent fixation of deformation, dimensional stability, mechanical property, color change

その最大値は約50%であった。ASE が40%程度に達する熱処理により、変形は完全に固定された。ASE と回復度との間には極めて高い負の相関関係があり、圧縮変形の永久固定は、細胞壁実質に付与される寸法安定性によるものと考えられた。

圧縮変形がほぼ完全に固定される熱処理によって、強度の低下や材色変化が顕著であった。例えば、180°C、20時間および200°C、5時間の熱処理による曲げヤング率の変化は、それぞれ-8.96%および-0.72%、曲げ強度の変化は、それぞれ-38.45%および-34.12%であった。また、材色の変化について、L値の変化は、それぞれ-27.8%および-29.3%であり、 ΔE は、それぞれ28.9および29.9であった。

1. 緒 言

軟質の木材の力学的性質や表面物性を向上させるためには、横方向に圧縮大変形を与え、比重を増大させることが有効である¹⁾。マイクロ波加熱の応用²⁾やアルカリ処理³⁾など、新しい木材の軟化の技術が開発され、木材に大変形を与えることが比較的容易となった。著者らは、軟質針葉樹材の長所である比強度を保存したまま、表面硬さや耐摩耗性等の表面物性を改善するため、製材の表面層だけを選択的に圧密化した表面層圧密化処理木材を開発した^{4,5)}。しかし、ドラインセットによって固定された変形は、水分と熱の作用でほぼ元の寸法にまで回復することが知られている^{6,7)}。著者らは、フェノール樹脂初期縮合物を用いて圧縮変形の永久固定化を試み、変形が固定される機構について明らかにした⁸⁾。

熱処理によって木材に寸法安定性が付与されることについては古くから認められている⁹⁾。また、斎藤は、熱圧縮木材の水分による厚さ膨潤と熱板温度の関係を調べ、200°C、2時間の熱処理によってスプリングバックが減少することを示している¹⁰⁾。しかし、熱処理による変形固定の効果を系統的に調べた研究や寸法安定性および他の物理的性質の変化と関連づけて検討した研究は他に例を見ない。

本報告では、横方向に圧縮した木材を熱処理することによって変形の固定化を試みた。また、熱処理が素材および圧縮木材の力学的性質および材色変化に与える影響についても調べた。

2. 実 験

2.1 供試材料

スギ (*Cryptomeria japonica* D. Don) の辺材を用いた。気乾比重および平均年輪幅は、それぞれ0.36、1.70 mmであった。

2.2 圧縮木材の熱処理および水分・熱回復試験

試験片寸法は、30(繊維方向, L)mm×20(放射方向, R)mm×30(接線方向, T)mmとした。熱水抽出した試験片の全乾寸法を測定した後、それを水中に浸漬して水を減圧注入した。飽水状態の試験片を95°Cの熱水で加熱した後、熱板温度を105°Cに設定したプレス機(熱板寸法: 30 cm×30 cm)を用いてR方向に圧縮し、3時間熱板中で乾燥した。セット量は、金属製のディスタンスピースを用いて、0~60%に調整した。圧縮変形を与えず、熱板中で乾燥した試験片をセット量0%とした。得られた圧縮試験片を乾燥状態で保持し、温風乾燥機(ADVANTEC FC-610)を用いて熱処理した。処理温度は、160~220°Cの範囲で4条件、処理時間は、1~30時間の範囲で5~7条件を選択した。試験片個数は、各条件について4個とした。

熱処理された圧縮試験片の中央部から、L方向に厚さ5 mmの木口試験片をそれぞれ2個ずつ採取し、煮沸による回復試験を行った。煮沸試験片は、吸水後の試験片を98°Cの熱水中で1時間煮沸して得た。その後、再び全乾状態とし、R方向寸法を測定した。本報では、セット量および回復度を次式によって定義した。

$$\text{セット量} = \frac{l_0 - l_c}{l_0} \times 100(\%)$$

$$\text{回復度} = \frac{l_R - l_c}{l_0 - l_c} \times 100(\%)$$

ここで、 l_0 は処理前、 l_c は熱処理後、 l_R は回復処理後の全乾状態における R 方向の寸法を示す。

熱処理圧縮試験片の乾燥、吸水および煮沸の繰り返し試験を行った。吸水試験片は、20°C の水中に浸漬して、1 時間減圧した後、常圧に戻し 5 時間水中に放置して得た。乾燥試験片は、風乾の後、40°C で 20 時間、105°C で 4 時間乾燥器中で熱風乾燥して得た。また、煮沸試験片は、吸水試験片を 98°C の熱水中で 1 時間煮沸して得た。乾燥、吸水を 5 回、つづいて煮沸、乾燥を 3 回繰り返し、それぞれの段階で R 方向の寸法を測定し回復度を計算した。

2.3 寸法安定性試験

試験片寸法は、5(L) mm × 30(R) mm × 30(T) mm であった。熱水抽出した試験片の全乾および飽水時の寸法から体積膨潤率を計算した。全乾状態の試験片を圧縮試験片と同時に温風乾燥器中で熱処理した。熱処理した試験片の全乾および飽水時の寸法から処理後の体積膨潤率を計算した。抗膨潤能 (ASE) は、処理前および処理後の体積膨潤率から次式によって計算した。各試験条件につき 5 個の試験片を用いた。

$$ASE = \frac{\beta_{VN} - \beta_V}{\beta_{VN}} \times 100(\%)$$

ここに、 β_{VN} および β_V は、処理前および熱処理後の体積膨潤率を示す。 β_{VN} は平均 11.8% であった。

2.4 曲げ強度試験

圧縮していない試験片と圧縮した試験片 (セット量: 51%) を 2.2 と同時に熱処理した。試験片寸法は、両者とも 160(L) mm × 10(R) mm × 2.5(T) mm であった。得られた熱処理試験片を 20°C、60% RH の雰囲気下で調湿した後、2 点支中央集中荷重方式によって、曲げ強度試験を行い、曲げヤング率と曲げ強さを求めた。スパン長は 100 mm、クロスヘッドスピードは 10 mm/min とした。各試験条件について 5 個の試験片を用いた。

2.5 材色変化の測定

曲げ強度試験を行った試験片について、熱処理による材色の変化を調べた。測定は、JIS Z8722 規格に準じ、測色色差計 (日本電色工業製、Z-1010DP) を用いて行った。受光孔径は 6mm であった。各処理条件について 16カ所まで測色を行い、明度 (L) および色差 (ΔE) を計算した。

3. 結果および考察

3.1 熱処理による圧縮変形の永久固定

160~220°C で熱処理した圧縮試験片 (セット量: 51%) を煮沸回復処理した時の回復度と熱処理時間の関係を図 1 に示す。いずれの熱処理温度においても処理時間の増加に従い回復度は低下する。180°C 以上の熱処理によって回復抑制効果が顕著に現れる。180°C で熱処理した場合の回復度は、最初の 5 時間で急激に低下し、その後の低下は緩やかとなる。変形が完全に固定されるには 20 時間を要する。200°C では 5 時間、220°C では 3 時間程度で、変形は完全に固定される。

熱処理した圧縮試験片を煮沸回復処理した場合の回復度とセット量の関係を図 2 に示す。図中、△は 180°C で 3 時間、▽は 220°C で 1 時間熱処理した試験片、○は熱処理していない試験片を示す。回復度は、各熱処理条件ともセット量に関係なくほぼ一定である。したがって、熱処理によって変形を固定する場合、与えられた変形の程度に依存することなく、各熱処理条件について固有の回復抑制効果が現れる。各処理条件において平均回復度を求めると、無処理で 79.3%、180°C、3 時間で 12.5%、220°C、1 時間で 4.26% である。

180°C で熱処理した圧縮試験片 (セット量: 51%) について、乾燥、吸水および煮沸を繰り返した場合の回復度の変化を図 3 に示す。熱処理時間の短い試験片では、回復度は第 1 回目の吸水で大きく、乾燥、吸水繰り返しに伴い、徐々に増加する。熱処理時間が長くなるに従い、回復度は小さくなり、乾燥、吸水繰り返し

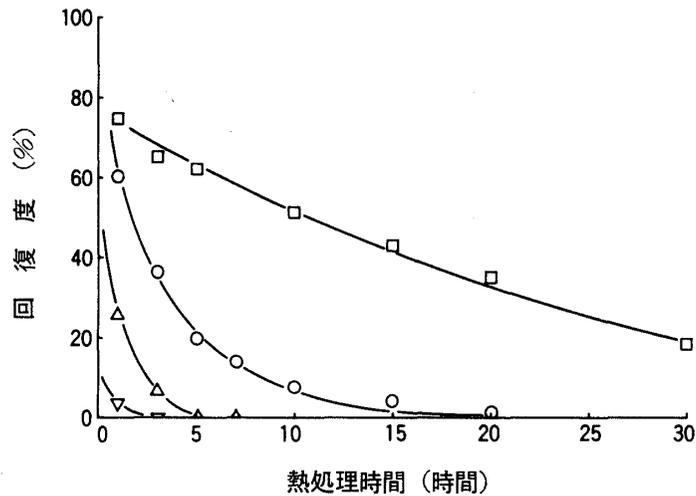


図1. 圧縮木材の水分・熱回復に及ぼす熱処理の影響
 注) セット量は51%。回復処理条件は吸水後1時間煮沸
 熱処理温度は、□が160°C, ○が180°C, △が200°C, ▽が220°C

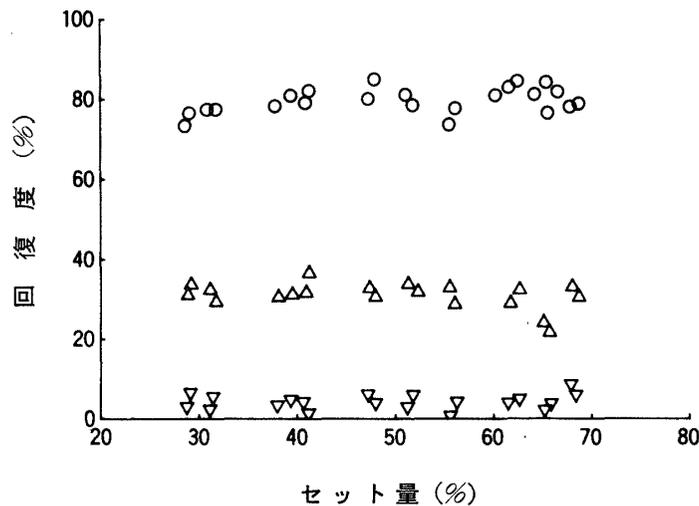


図2. 熱処理圧縮試験片の水分・熱回復における回復度とセット量の関係
 注) 熱処理条件は、○が無処理, ●が180°Cで3時間, △が220°Cで1時間熱処理

の影響を受けにくくなる。また、いずれの処理時間においても煮沸による回復度の増大が顕著である。その後の乾燥、煮沸繰り返しに伴う回復度の増加はほとんど無く、試験片はほぼ一定の膨潤、収縮を繰り返す。

熱処理した圧縮試験片において、25時間までの処理では、処理時間に対しほぼ直線的に重量減少が生じ、回復度と重量減少の間に直線的な関係は認められなかった。したがって、熱処理による変形固定の機構を考えるには、個々の木材成分の変化について検討する必要があるだろう。

木材を熱処理すると、細胞壁を構成する分子に化学変化が生じる。構成成分の分解とともに分子間の架橋やセルロース分子の結晶化などの凝集構造が形成されるものと考えられる。川村¹¹⁾は、150°Cで熱処理した木材の赤外線吸収を調べ、1740、1720 cm⁻¹の吸収強度が増加し、1160 cm⁻¹のそれが低下することを確認

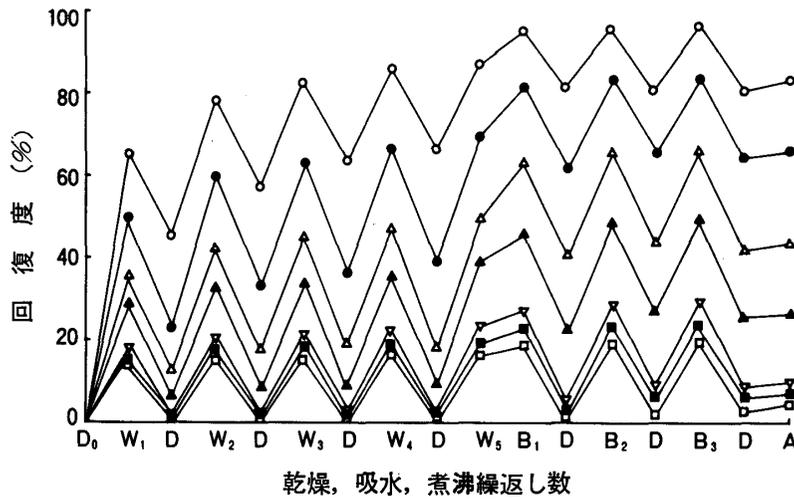


図3. 熱処理圧縮試験片の乾燥, 吸水, 煮沸繰り返しによる回復
 (注) セット量は51%, 熱処理温度は180°C, 熱処理時間は
 ○が0, ●が1, △が3, ▲が5, ●が10, ■が15, □が
 20時間
 図中Dは乾燥, Wは吸水, Bは煮沸, Aは気乾状態を示す

している。前者はカルボニル基の吸収であり、後者はセルロースに由来する吸収である。また、X線回折の結果によると、木材を100~250°Cの温度で加熱した場合、処理の初期に結晶化度の増加が認められている¹²⁾。

ドラインゲットされた圧縮木材が水分・熱の影響を受けて回復する機構は、変形時にマイクロフィブリルに蓄積された弾性エネルギーによるものと考えられている⁷⁾。熱処理によって変形が固定される機構として、吸湿性の高いヘミセルロースが化学変化によって吸湿性の低いものに変化すること、セルロースの重合度の低下によってセルロースマイクロフィブリルに蓄積されていた弾性エネルギーが解放されること、成分鎖分子間に架橋が形成されることによって変形が拘束されることなどが考えられる。

3.2 熱処理による寸法安定性の付与

各温度で熱処理した木材のASEと熱処理時間の関係を図4に示す。220°Cの熱処理条件のものを除けば、処理時間の増加とともにASEは増加する。220°Cで熱処理した場合のASEは、50%をわずかに越えた付近から低下している。また、200°Cで熱処理した場合のASEは、20時間加熱までの範囲では、50%付近で平衡に達していることから、熱処理によって得られるASEの最大値は50%付近であると考えられる。熱処理によって吸湿性の多糖類が化学的に変化し、吸湿性の低い成分となるに伴って寸法安定性が向上するものと考えられる¹³⁾。また、図中点線で示すように、220°Cで5時間以上熱処理した場合のASEが低下しているのは、これらの分解された木材成分が吸水処理によって溶脱され、細胞壁が異常収縮したことによるものと考えられる。なお、一部の細胞壁にコラプスの発生していることは、走査型電子顕微鏡による観察によって確認している。

160~200°C, 0~20時間熱処理した圧縮木材を煮沸によって回復した場合の回復度と、同じ条件で同時に熱処理した木口試験片のASEとの関係を図5に示す。ASEの増加に伴い回復度が低下し、40%程度のASEが得られる熱処理によって、圧縮変形はほぼ完全に固定される。したがって、熱処理による圧縮木材の回復抑制効果は、細胞壁実質に与えられる寸法安定性によって規定されるものと考えられる。ASE 40%以下で回復度(y)とASE(x)の間の回帰直線式を求めると、 $y = -2.01x + 83.7$ となり、相関係数は-0.92

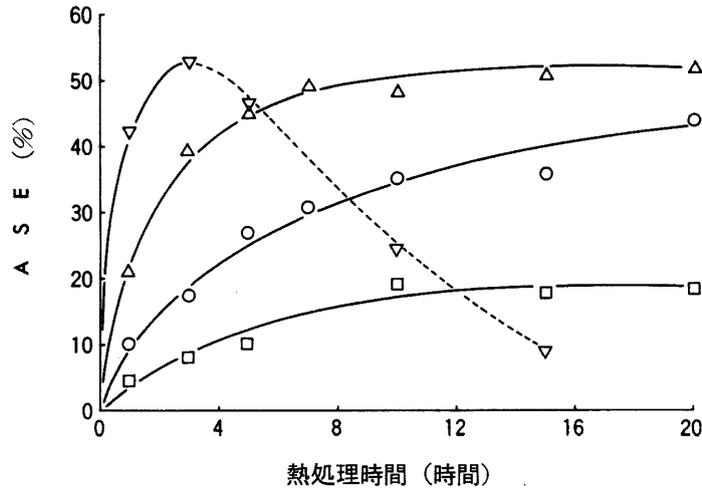


図4. 熱処理試験片の抗膨潤能 (ASE)
注) 熱処理温度は図1に同じ

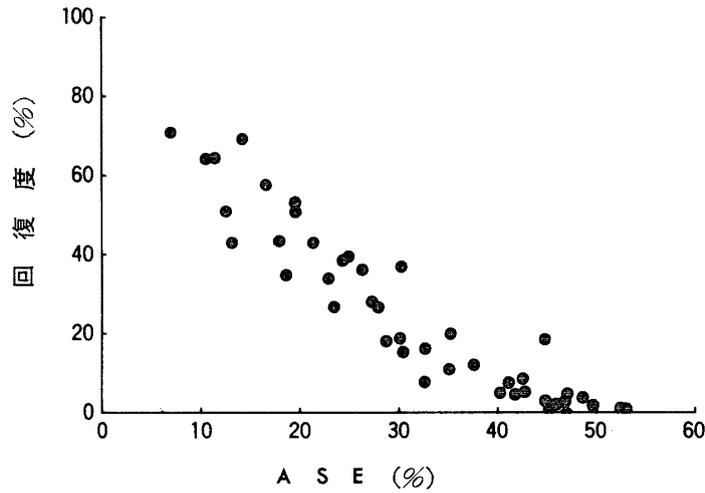


図5. 熱処理試験片の水分・熱回復と ASE の関係
注) 圧縮試験片のセット量は51%, 回復処理条件は吸水後1時間煮沸

であった。y切片は、無処理圧縮試験片の回復度を示し、図2の結果とほぼ一致する。x切片は41.1で、これは熱処理によって圧縮変形がほぼ完全に固定される ASE を示す。

3.3 熱処理による機械的性質の変化

圧縮変形を完全に固定するには、高温で長時間の熱処理を必要とするため、木材の機械的性質の低下が予想される。圧縮していない試験片の繊維方向の熱処理による曲げヤング率の変化率 (ΔMOE) および曲げ強さの変化率 (ΔMOR) を図6に示す。無処理材の MOE および MOR は、それぞれ 107.6×10^3 , 856.6 kgf/cm^2 である。

ΔMOE は、 180°C , 200°C で熱処理した試験片では、加熱の初期に増加し、処理時間の増加とともに若

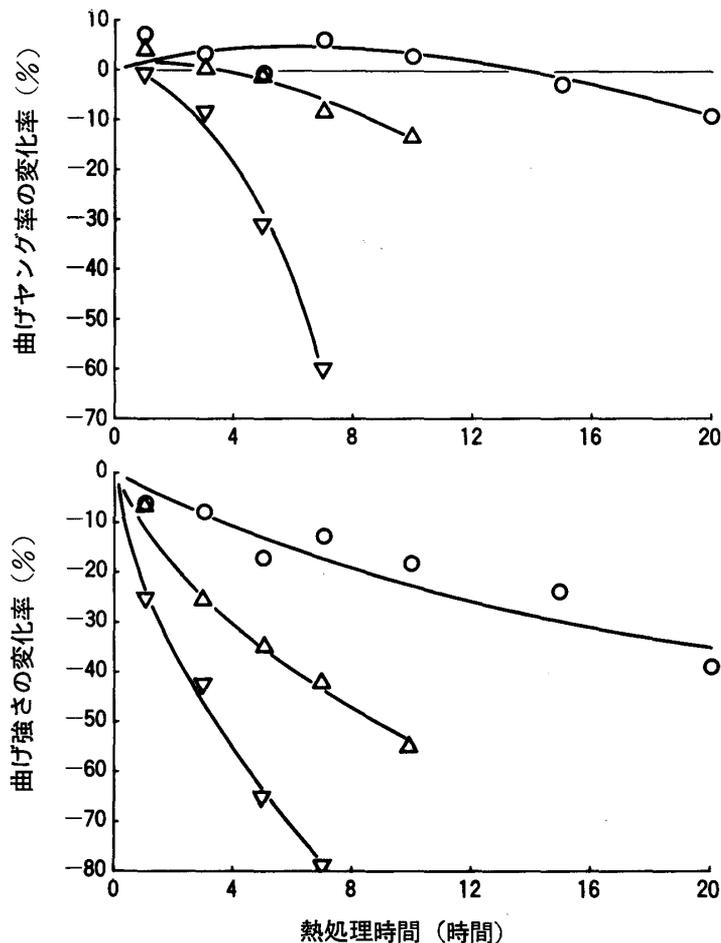


図6. 熱処理試験片の曲げヤング率と曲げ強さの変化率
注) 熱処理温度は図1に同じ

干の減少傾向がみられるものの、実験の範囲では大きな変化は認められない。200°Cで熱処理したものの方が、180°C処理のものに比べ早く減少が現れる。220°Cで熱処理した試験片では、加熱の初期から著しい減少が現れる。熱処理によるMOEの低下は、セルロースの重合度の低下およびその他の構成成分が熱によって減成したことによるものと考えられる。このような影響は熱処理の初期の段階においても起こっているが、この時期ではセルロースの結晶化や成分分子鎖間の架橋による凝集構造の形成効果がより優勢であるため、加熱の初期においてはMOEが増加するのであろう。圧縮変形が完全に固定される熱処理条件、すなわち180°C、20時間および200°C、5時間の熱処理で、 Δ MOEは、それぞれ-8.96%および-70.2%である。

一方、180°Cで熱処理した試験片においても、MORは著しく低下する。MORは、MOEに比べ、低下の割合が大きい。すなわち、セルロースの重合度の低下がMORの低下に与える影響が大きいと考えられる。180°C、20時間および200°C、5時間の処理で、 Δ MORは、それぞれ-38.45%および-34.12%である。

セット量51%に圧縮変形した試験片を熱処理した場合の Δ MOEと Δ MORを図7に示す。熱処理を施していない圧縮試験片のMOEおよびMORは、それぞれ、 202.9×10^3 、 $1,640.6 \text{ kgf/cm}^2$ であり、素材に対して88.9%、85.8%増加している。熱処理によるこれらの変化は、圧縮変形していない試験片の場合とほぼ

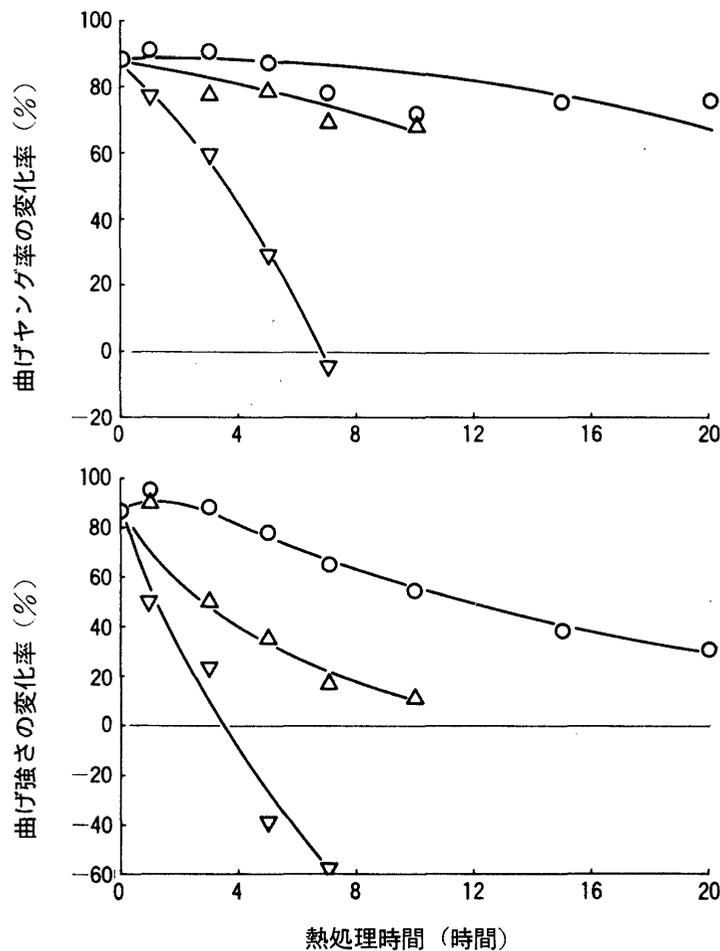


図7. 熱処理圧縮試験片の曲げヤング率と曲げ強さの変化率
注) 熱処理温度は図1に同じ

同様の傾向を示した。

3.4 熱処理による材色変化

鷺見¹⁴⁾は、ベイツガ材を高温乾燥した時の材の変色について調べている。処理温度は最高 120°C であるが、甚だしい材色の変化が確認されている。

図8に、スギ材を熱処理した場合の明度 (L) と色差 (ΔE) の変化を示す。 L 値は処理時間の増加とともに低下し、処理材は著しく暗色化している。また、その変化は、処理温度の高い方が大きい。 L 値に色度 (a 値, b 値) を加味して計算される ΔE は、処理温度、時間の増加とともに増加し、変色が著しいことを示す。また、 ΔE の変化は L 値のそれとはほぼ等しく、色度の変化はほとんどない。したがって、熱処理による材色の変化は、そのほとんどが L 値、すなわち明度の変化によるものであると考えられる。このような木材の変色の原因は、リグニンの変成、フェノール系抽出成分や有機溶剤に不溶の特殊成分の変化などが考えられているが、複雑な変色のメカニズムについてはまだ明らかにされていない部分が多い¹²⁾。圧縮変形が完全に永久固定される熱処理条件、すなわち 180°C, 20時間および 200°C, 5時間の熱処理では、 L 値の変化は、それぞれ -27.8% および -29.3% であり、 ΔE は、それぞれ 28.9 および 29.9 である。圧縮試験片についても、熱処理による材色の変化はほぼ同じ傾向を示した。

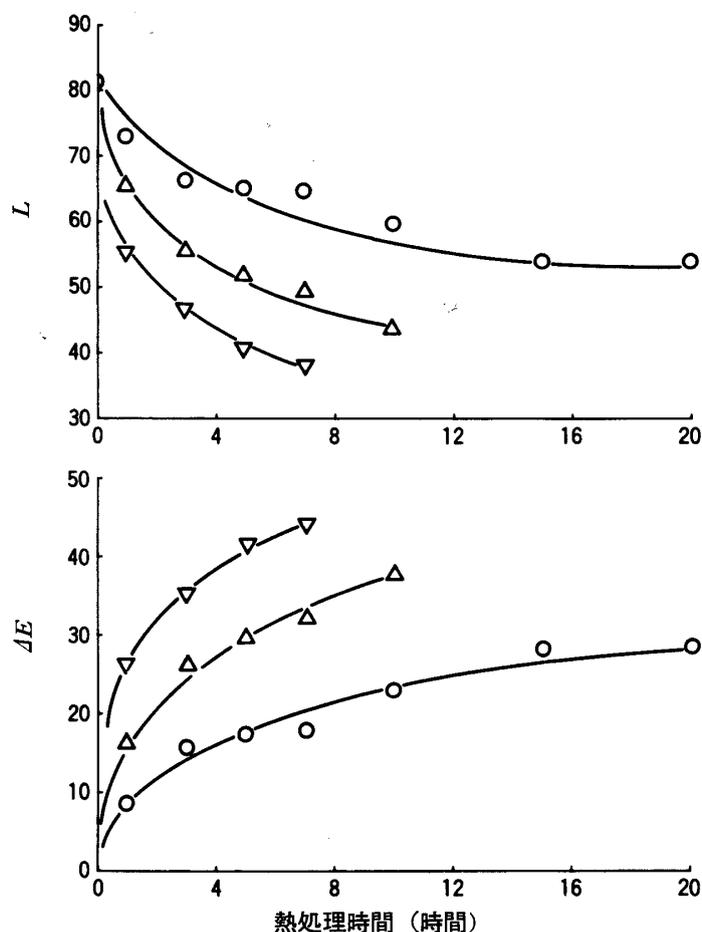


図8. 熱処理試験片の明度 (L) と色差 (ΔE) の変化
注) 熱処理温度は図1に同じ

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、供試材料の調達、実験において多大なるご協力を頂いた和歌山林業センター、大塚康史研究員および越井木材工業株式会社、尾形重行氏、ならびに材色変化の測定においてご指導を頂いた京都大学農学部、仲村国司助手に対し厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) 例えば, A.J. STAMM: Wood & Cellulose Science, The Ronald Press Company, (1964) 312-358.
- 2) Norimoto, M.; GRIL, J.: *J. of Microwave Power and Electromagnetic Energy*, **24** (4), 203-212 (1990)
- 3) 中野隆人: 日本レオロジー学会誌, **16**, 104-110 (1988)
- 4) INOUE, M.; NORIMOTO, M.; OTSUKA, Y.; YAMADA, T.: *Mokuzai Gakkaishi*, **36**(11), 969-975 (1990)
- 5) 井上雅文, 則元 京, 大塚康史, 山田 正: 木材学会誌 **37**(3), 234-240 (1991)
- 6) 有馬孝礼: 木材工業, **33**(8), 13-17 (1978)
- 7) 飯田生穂, 則元 京: 木材学会誌, **33**(12), 929-933 (1987)
- 8) 井上雅文, 則元 京, 大塚康史, 山田 正: 木材学会誌, **37**(3), 227-223 (1991)

- 9) 今村博之, 他 5 名: 木材利用の化学, 共立出版, 270-272 (1983)
- 10) 斎藤藤市: 木材学会誌, **19**(5), 221-226 (1973)
- 11) 川村二郎: 木材学会誌, **35**(5), 447-454 (1989)
- 12) 谷口 線, 中戸莞二: 京都大学農学部演習林報, No. 38: 192 (1966)
- 13) 栗山 旭: 材料, **16**, 772-776 (1967)
- 14) 鷺見博史: 木材学会誌, **24**(6), 391-399 (1978)