

木材の流動成形における高度制御型化学処理手法の開発

田中 聡^{1*}

Development of techniques for highly controlled chemical treatment in wood flow forming

Soichi Tanaka^{1*}

概要

木材の流動成形は、塊状の木材を流動させて自由に形状を付与できる新しい成形技術であるが、安定した成形体を得るためには、成形前の木材に化学処理物質を導入する必要がある。それは、木材の細胞壁の中にある不安定構造が吸放湿することや分解の起点になることを抑制して、成形体の変形、劣化、および分解を防ぐためである。しかしながら現状では、化学処理された細胞とされていない細胞が存在し(巨視的処理ムラ)、さらに細胞壁中にも処理されて安定化された箇所と処理されていない不安定な箇所が存在する(微視的処理ムラ)。そのため成形体には、環境次第で変色・表面荒れが生じる、寸法が不安定であるといった問題が生じている。著者はこれまでに、巨視的および微視的な処理ムラを解消するために、それぞれ「細胞1つ1つを物質溶液で充填する手法の開発」および「細胞壁中の不安定領域を物質で充填する手法の開発」に取り組んできた。本稿では、これらの取組みの概要を説明するとともに、特に後者のための新しい手法として、処理物質溶液含浸木材の養生工程(溶媒を蒸発させる工程)における細胞壁への物質拡散の制御技術について紹介する。

1. 木材の流動成形について

木質資源は人間がわずかなエネルギーを投じるだけで材料として利用できるが、それが十分に進んでいるとは言い難い。これは木質系材料が、大量の材料が使用される産業界の要求に応えられていないためである。産業界では高い安定性、精度や正確さをもつ材料が求められる。そのために材料開発では、一般的に素材の構成要素を小さくしてそれを再構築する。一方で、構成要素を小さくするほど加工に大きなエネルギーが必要なので、小さい構成要素にすることは環境負荷という観点からは好ましくない。木質系材料の要素となる構造は、主に塊状の木材(丸太)、組織構造、細胞構造、微細構造に分類できる。特に、利用促進と低環境負荷を両立させるためには細胞構造を生かした材料開発が必要である(図1)。それは細胞構造が、それ以上細かくするエネルギーを導入せずとも、緻密で強靱な階層構造を持ち、優れた機械特性(例えば細胞1つの引張強度 0.4-1.4 GPa¹⁾)や物性を有するためである。

近年、細胞構造を効果的に利用した加工技術である「流動成形技術²⁾」が注目を集めている。塊状の木材を流動させて自由に形状付与をすることができる成形技術である(図2a)。この成形の過程では、温度・圧力を制御して細胞と細胞の間を軟化させ、外力によって細胞を移動させ、最初隣にいた細胞とは別の細胞と再結合させる(図2b)。従って流動成形技術では、1つ1つの木材細胞の破壊を抑えつつも自由度の高い木材の加工ができる。また、細胞構造を使った他材料(ファイバーボードや紙など)

2016年7月11日受理。

¹⁾〒611-0011 宇治市五ヶ庄 京都大学生存圏研究所学際萌芽研究センター。

* E-mail: soichi_tanaka@rish.kyoto-u.ac.jp

では磨砕工程により細胞構造が部分的に破壊されているため^{3,4)}、流動成形で得られた成形体はそれらよりも細胞構造を「生かした」材料であるといえる。さらに、流動成形体は、高強度(曲げ強度が180 MPa 以上でポリカーボネイトを凌駕)や高寸法安定性(プラスチックより一桁低い線膨張率)を示すことが知られており⁵⁾、産業界で工業材料として通用する高いポテンシャルを秘めている。

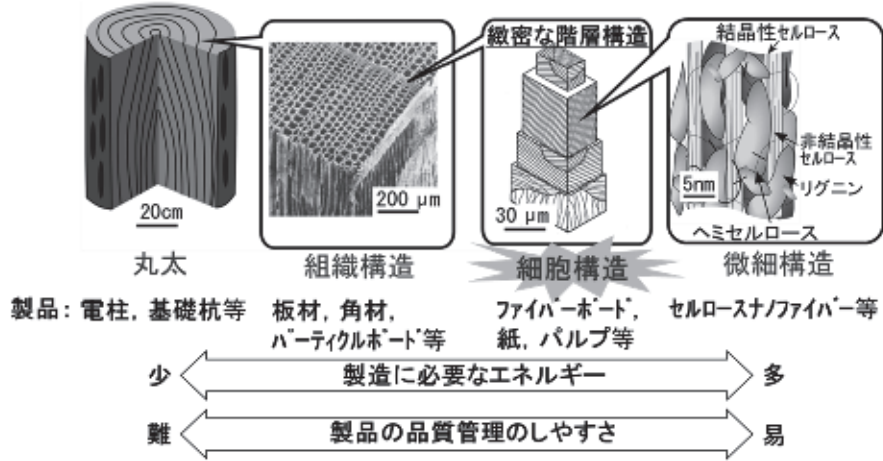


図1：木材の階層構造、それを利用した製品、および加工・管理の問題点

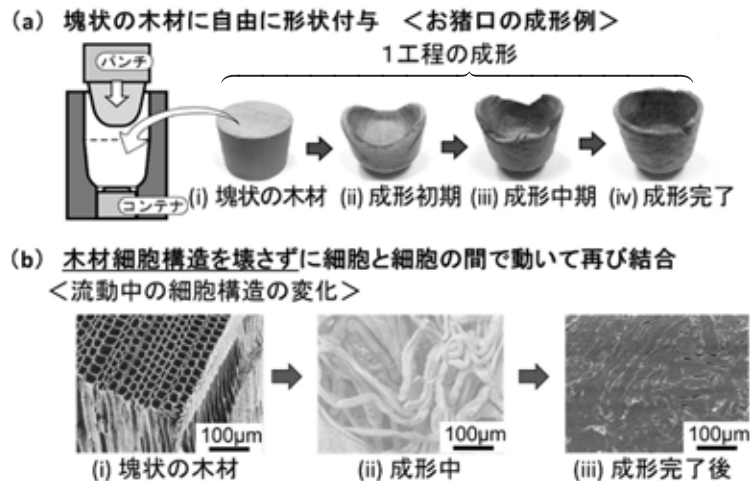


図2：木材の流動成形技術とその特徴

2. 流動成形技術の問題点、課題、および取り組み

無垢の木材を成形したカップを沸騰水中に1時間浸漬すると分解する(図3)。これは、水分が細胞壁中の不安定な非結晶構造に浸入して細胞を膨潤させ、成形時に再結合した箇所が分離するためであると考えられる。また、この不安定な領域は、生分解や熱分解の起点にもなりうる。従って、流動成形で安定した成形体を得るためには、成形前の素材に化学処理を施す必要がある。



図3：無垢の木材の流動成形体の煮沸処理による分解

化学処理は、主に木材細胞壁中に存在する不安定な非結晶構造に化学物質を導入・反応させることで、木質系材料の構造安定化や構造間接着を図る手法である。これまでの検討によると、成形前の木材に化学処理をすると成形体の形状は固定されたが、成形体にはなお変色や表面荒れが生じた(図 4)。これは、そもそも化学処理物質が木材全体の細胞壁に十分に行き渡っていないことに起因する。

従って、問題解決には処理物質を木材全体に均一かつ十分に行き渡らせるという視点からの研究が必要不可欠である。

これは、流動成形以外の木質系材料全般においても未解決な課題であり、この課題を解決することは、産業界の要求に応えられる材料開発のためには極めて重要である。

化学処理には処理物質を液相で木材に作用させる方法と気相で作用させる方法などがあり、より一般的なのは前者である。液相法には、木材に処理溶液を注入する含浸工程(図 5(i))とその後に大気下で溶媒(水の場合が多い)を蒸発させる養生工程(図 5(ii))があるが、各工程について解決すべき課題が数多く残されている。

化学処理した木材
で成形したカップ

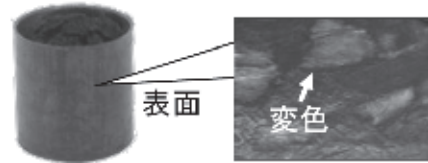


図 4：化学処理木材の流動成形体の表面の変色

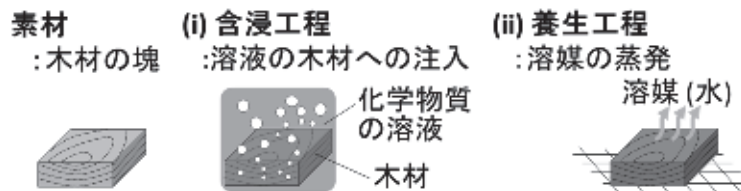


図 5：木材の化学処理工程(液相法)

2.1 含浸工程における課題

含浸工程では、木材細胞の1つ1つまで十分に処理溶液を行き渡らせ、巨視的な処理ムラを防ぐ必要がある。そのためには、主に4通りの方法が考えられ、それぞれに課題がある。

2.1.1 処理溶液注入条件の操作

処理溶液の注入方法は、木材を処理溶液に浸漬し、液を減圧して木材中を真空にした後、液を加圧して生じる木材内外の液圧差を駆動力とし、液体を木材中に流動させるというものである⁶⁾。処理液の注入量は主に圧力スケジュールに依存するが⁷⁾、木材細胞をムラなく処理するという目的を果たすための最適な圧力スケジュールについて一般解は未だ得られていない。

2.1.2 含浸前素材の小型化

素材寸法を小型化すれば、処理溶液のアクセシビリティは向上するため素材の含浸性は向上するが、小型化には木材を切削、破碎、磨砕する必要があるため³⁾、木材細胞が損傷または切断され、元の細胞構造を十分に生かすことができない。細胞壁を壊すことなく素材を小型化する手法が求められる。

2.1.3 含浸前素材の圧密処理

木材の圧密によって処理液の通導阻害組織である閉鎖壁孔を破壊しつつ、変形回復に伴うスポイト効果で木材に処理液を注入する方法であるが⁸⁾、力学的作用では全ての壁孔をムラなく破壊できないことが課題である。

2.1.4 含浸前素材のインサイジング処理

刃物、針、レーザーなどによって木材に刺傷を施す処理であるが⁹⁾、この手法では木材の表層のみしか処理できないため、木材全体を満遍なく刺傷する方法が求められる。

2.2 養生工程における課題および取組み

含浸工程で処理物質の溶液が1つ1つの細胞に行き渡りさえすれば、養生工程はさほど重要ではないと思われがちである。しかしながら、仮に含浸工程で溶液が全ての細胞内腔と細胞壁に行き渡ったとしても、細胞壁中にある不安定な非結晶構造周辺にはまだ多くの溶媒(水)が存在するため(図6(i))、そこは不安定なままとなる。従って、養生工程で不安定領域を残さないように水を除去し、微視的な処理ムラを防ぐことが極めて重要である。そのための足掛りとして、含浸後の養生工程において、処理物質が細胞壁に拡散して非結晶構造周辺の水を置換するという仮説¹⁰⁾に着目した(図6(ii))。この拡散が円滑に起こるように養生工程の周辺雰囲気[相対湿度(RH)や温度]をうまく制御すれば、水の多くを処理物質に置換できる可能性がある。しかしながら、養生工程のRHや温度が細胞壁への物質処理の拡散に及ぼす影響に関する知見はなかった(図6)。

著者はこれまでに、木材に処理溶液を含浸して養生したときの相対湿度(RH)が養生後の細胞壁中の処理物質に及ぼす影響について調べた。なお、処理物質にはポリエチレングリコール(PEG1540)を用いた。同物質を用いたのは、試料寸法から細胞壁中の物質量が算出できるためである¹¹⁾。その結果、次の4つの知見が得られた。

- (1) 化学処理において、処理物質の大部分は含浸工程よりも養生工程で細胞壁に入る¹²⁾。
- (2) 養生後の細胞壁中の物質量は、含浸する溶液の濃度が高すぎても低すぎても少なくなる¹²⁾。
- (3) 養生中の細胞壁への処理物質の拡散量はRHに依存する^{13,14)}。
- (4) 拡散量が最大となるRH条件で強制対流させて養生すると、拡散量を下げることなく短時間で処理できる¹⁵⁾。

以上の知見から、これまで注目されてこなかった養生工程の重要性が確かめられ、養生RHの制御によって細胞壁中の非結晶領域を短時間で従来よりも安定化させ、材料をより均質化・安定化させられることがわかった。今後は、養生温度が物質拡散に及ぼす影響、および他の化学処理物質を用いた場合についても検討する必要がある。本稿では、特に上記の知見(1)~(3)を裏付ける結果について紹介する。

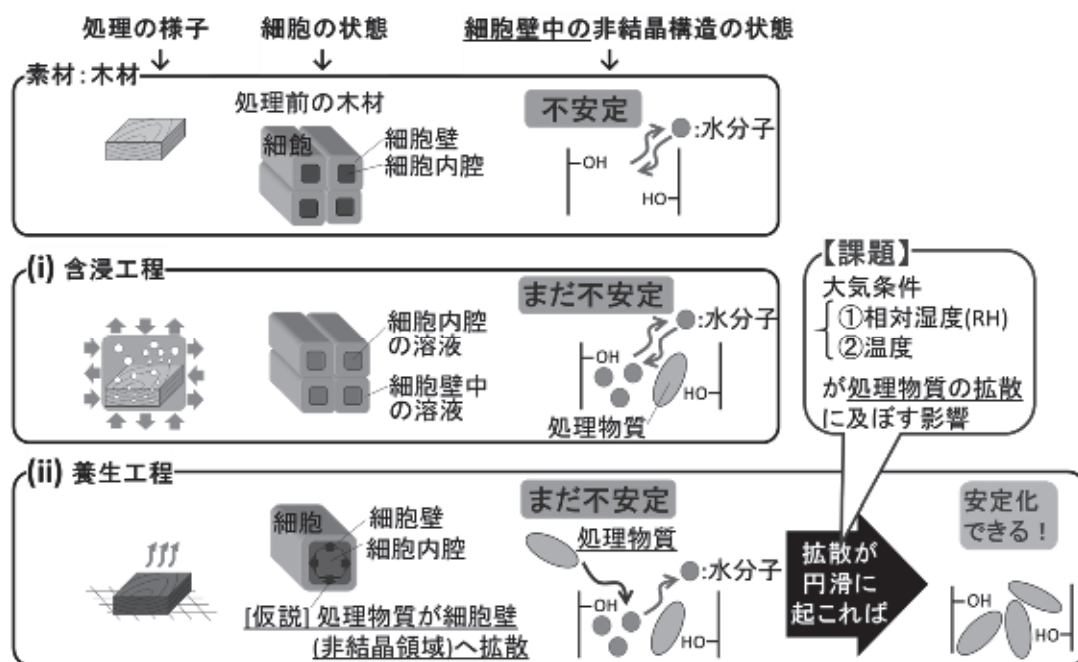


図6：化学処理における非結晶構造の不安定状態および養生工程における課題

2.2.1 含浸工程と養生工程における細胞壁への物質移動量の比較と含浸溶液濃度の影響¹²⁾

ヒノキの木口試験片(繊維方向 5 mm×接線方向 25 mm×放射方向 25 mm)に濃度が 10, 20, 30, 40 または 50 mass%の PEG1540 水溶液を含浸し、続けて RH = 83%で 2161 h 養生したあと RH=11%で 84 h 養生し(温度は 35 °Cで一定)、五酸化ニリン上で減圧乾燥した(35 °C)。養生直前の細胞壁中の PEG の質量および全過程後の試験片の膨潤量を求め、それらを養生直前および養生後の細胞壁の PEG 充填率として正規化した。正規化には極めて複雑な計算を要するため、具体的な計算方法は原著論文¹²⁾を参照されたい。

養生後と養生直前の充填率の差は、養生直前の充填率より大きく、溶液濃度の増加に伴い 20 mass%まで増加したのち減少した(図 7)。これらより、細胞壁中の PEG の大部分は養生中に増加すること、および細胞壁へ拡散する PEG 量は含浸溶液濃度が 20 mass%のときに最大になることが示唆された。

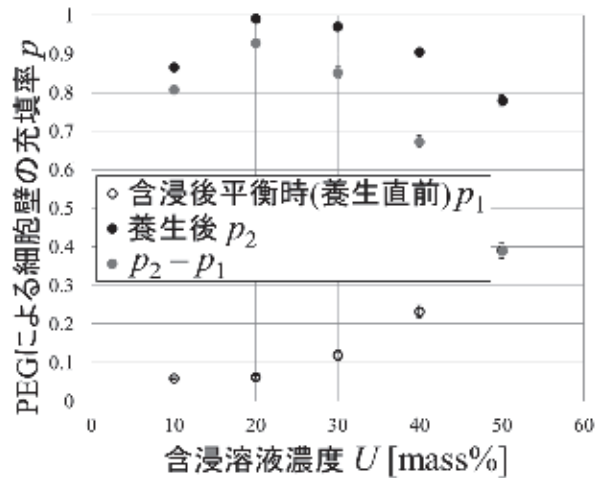


図 7：含浸後と養生後における細胞壁の PEG 充填率と含浸溶液濃度の関係

2.2.2 養生工程の RH が細胞壁への物質拡散に及ぼす影響¹⁴⁾

前節と同様の試験片に 30 mass%の PEG1540 水溶液を含浸したあと、11, 33, 55, 82%の 4 通りの RH(35 °C)で約 900 h 養生した後、五酸化ニリン上で減圧乾燥(35 °C)した。

注入前における減圧乾燥後の試験片の比膨潤率と養生中の RH の関係を図 8 に示す。RH の増加に伴い比膨潤率は増加した。比膨潤率は細胞壁中の PEG の量に比例することから、RH の増加に伴い細胞壁への PEG 拡散量が増加することが示唆された。

RH 増加に伴う比膨潤率の増加率は、RH が高くなるほど低くなる(図 8)。このことから、RH が高くなるほど細胞壁へ拡散を促す因子と、細胞壁への拡散を妨げる因子の両方が存在するといえる。既往の仮説¹⁰⁾によると

「養生中に細胞壁に処理物質が拡散するのは、細胞壁と比べて細胞内腔の溶媒(水)の蒸発が早く進み、その結果、細胞内腔の物質濃度が細胞壁と比べて高くなり、この濃度差が駆動力となるため」である。従って、次の 2 つの因子が、細胞壁への物質拡散を決定すると考えられる。

- ① 細胞壁への処理物質の拡散のしやすさ(拡散係数)
- ② 細胞壁と細胞内腔における処理物質濃度差

これらの因子に基づくと、養生の RH が高くなるほど、処理物質の周辺の水分子量が増えるので拡散性が上がり、その結果、拡散量は増加する傾向になるが、RH が高すぎると水の蒸発量が少なくなり、拡散の駆動力となる細胞壁と細胞内腔の濃度差が生じにくくなるため、物質は拡散しにくくなると解釈できる。この推察は、他の結果^{13, 15)}とも矛盾せず、現状では確からしい考え方であるといえる。

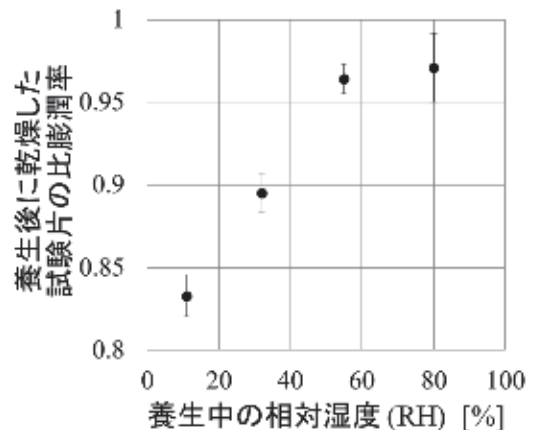


図 8：養生後に乾燥した試験片の比膨潤率と養生中の相対湿度(RH)の関係

3. おわりに

本稿では、木材の流動成形技術について紹介し、同技術における化学処理(含浸・養生工程)の重要性和課題について述べた。また、一見するとさほど重要とは思われない養生工程を制御することの意義について述べ、そのための戦略と結果の一例を紹介した。化学処理工程の制御は、流動成形技術に限らず本質的にはすべての木質系材料の製造技術にとっても重要であり、その達成によって木質系材料全般の信頼性を向上させることができ、木質資源の利用拡大にも繋がるものと考えている。

参考文献

- 1) Groom, L., Mott, L., Shaler, S., Mechanical properties of individual Southern Pine fibers. Part I. Determination and variability of stress-strain curves with respect to tree height and juvenility, *Wood Fiber Sci.*, **34**, 14-27, 2002
- 2) 三木恒久, 木質系材料の新規塑性加工技術(細胞界面のすべり現象による大変形を利用した賦形技術), *木材工業*, **67**, 553-556, 2012.
- 3) Suchsland, O., Woodson, G.E., Fiberboard manufacturing practices in the United States, In: *Agriculture Handbook*, USDA Forest Service, No. 640, 1986.
- 4) 門屋卓, 角祐一郎, 吉野勇, 5. パルプ製造法の曲りかど(無公害パルプ・高収率パルプ), “紙の科学”, 中外産業調査会編, 1977, pp. 85-115.
- 5) 金山公三, 木材の微細構造制御と高機能化, *日本材料学会木質材料部門委員会第288回定例研究会講演要旨集*, 1-7, 2015.
- 6) 大越誠, B.9.1 浸透 流動, “新編木材工学”, 中戸莞二編, 養賢堂, 1985, pp. 89-99.
- 7) 西本孝一, 3・5・3 防腐処理法, “木材工学”, 梶田茂編, 養賢堂, 1961, pp. 546-561.
- 8) 飯田育穂, 圧縮法による木材の浸透性, 乾燥性の改善[II], *木材工業*, **53**, 446-449, 1998.
- 9) 今村祐嗣, 2. 含浸技術, 木材の科学と利用技術 II 2. 木材の化学処理, *日本木材学会研究分科会報告書*, pp. 21-38, 1991.
- 10) Stamm, A.J., Dimensional stabilization of wood with carbonwaxes, *Forest Prod. J.*, **6**, 201-204, 1956.
- 11) 石丸優, PEGと木材のはなし, *木材保存*, **19**, 204-218, 1993.
- 12) Tanaka, S., Seki, M., Miki, T., Shigematsu, I., Kanayama, K., Solute diffusion into cell walls in solution-impregnated wood under conditioning process II: effect of solution concentration on solute diffusion, *J. Wood Sci.*, **62**, 146-155, 2016.
- 13) 田中聡一, 三木恒久, 関雅子, 重松一典, 金山公三, 溶液含浸木材の養生過程における細胞壁への溶質拡散機構の検証: 相対湿度がポリエチレングリコール水溶液含浸木材の膨潤・収縮挙動に及ぼす影響, *材料*, **64**, 369-374, 2015.
- 14) Tanaka, S., Seki, M., Miki, T., Shigematsu, I., Kanayama, K., Solute diffusion into cell walls in solution-impregnated wood under conditioning process I: effect of relative humidity on solute diffusivity, *J. Wood Sci.*, **61**, 543-551, 2015.
- 15) 田中聡一, 関雅子, 三木恒久, 重松一典, 梅村研二, 金山公三, 溶液含浸木材の養生過程における細胞壁への溶質拡散に及ぼす溶媒蒸発速度の影響, *材料*, **65**, 359-364, 2016.

著者プロフィール



田中 聡一 (Soichi Tanaka)

＜略歴＞ 2007 年京都大学工学部工業化学科卒業／2013 年京都大学大学院農学研究科博士後期課程修了(博士(農学))／同年産業技術総合研究所特別研究員／2015 年京都大学生存圏研究所特定研究員／2016 年同研究所ミッション専攻研究員、現在に至る。＜研究テーマと抱負＞木質系材料の工業的利用のために基礎研究で貢献したい。＜趣味＞体軸の回転を伴う運動(陸上競技投擲、野球、卓球等)、音楽鑑賞および楽器演奏(バロック音楽～昭和歌謡まで)。