水蒸気前処理小片を用いたパーティクルボードの寸法安定化のメカニズム† —小片面内の膨潤応力の低減—

関野 登* 井上 雅文**

Mechanism of Dimensional Stabilization of Particleboards Made from Steam Pretreated Particles —Reduction of In-Plane Swelling Stress of Wood Particles—

by

Noboru SEKINO* and Masafumi INOUE**

This paper describes a work which is a part of systematic study for understanding the mechanism of particleboard dimensional stabilization by steam pretreatment. Particular interest was centered on an in-plane swelling stress of wood particles which causes the breakage of adhesive bond between particles. The effects of steam temperature on the following factors were investigated by the use of uncompressed wood blocks: swelling stress by water absorption, hygroscopic swelling, and Young's modulus in the tangential direction. The swelling stress was found to decrease with increasing steam temperature and became one fifth of the control when steamed at 220°C for 10 minutes. The hygroscopic swelling, the maximum swelling, and the Young's modulus also showed a trend of decreasing with increasing steam temperature. Therefore, the elastic model which describes swelling stresses by elastic strain and Young's moduli was applied. The calculated change of swelling stress by steaming was found to agree well with the observed one, which suggests that the decrease of swelling stress can be derived from the synergistic effect of decrease in both swelling and elasticity.

Key words: Particleboard, Steam pretreatment, Swelling stress, Hygroscopicity, Hygroscopic swelling, Young's modulus

1 緒 言

木質材料のうち、圧密化されたエレメントからなるパーティクルボード (PB), MDF (中質繊維板), OSB (配向性ストランドボード) などのボード類は、吸湿あるいは吸水による厚さ膨潤が大きい。その主要因は、製造時の熱圧過程で一時的に固定されたエレメントの変形が、水分の侵入により回復するためである。このような木質ボードの寸法安定化の方法は多岐にわたるが、原理・手法別にその分類・整理が試みられている。^{1)~3)} 其中で水蒸気処理は、エレメントの内部応力を低減させて水分侵入時の変形回復能力を弱める働きをすると考えられている。

水蒸気処理によるボードの寸法安定性改善は多数報告されており、それらは成板前の原料に処理を施す前処理^{4)~6)} 接着剤硬化も同時に行う熱圧同時処理 (蒸気噴射プレス)^{9)~11)} および成板後に行う後処理⁴⁾ に分類できる。後二者では、加水分解を受けやすいユリア系接着剤の使用は不向きで、イソシネート系あるいはフェノール系が適する。したがって、ユリアまたはユリアーメラミン系接着剤を用いるボードの寸法安定性を水蒸気処理によって改善するには前処理が最適と言える。

水蒸気前処理 PB の寸法安定化に関して、Tomimura ら⁶⁾ は 180°C 15 分処理により 24 時間吸水厚さ膨潤が半減することを、また、Hsu ら⁵⁾ は 200°C 5 分処理により同

厚さ膨潤が約 1/4 に低下することを示した。また、施ら⁸⁾ は 140~200°C の範囲で前処理条件と寸法安定性の関係を系統的に調べている。

前処理による PB の寸法安定化メカニズムは、①圧縮変形された木材小片の固定化、②小片間結合の破壊の軽減、という二つの観点から説明できるだろう。①に関して、井上ら^{7), 12), 13)} は木材の圧縮大変形が 180°C 以上の前処理で固定されることを確認し、粘弾性実験および顕微鏡観察によりそのメカニズムを説明している。また、②に関して、関野ら¹⁴⁾ は吸脱水処理による PB の内部結合力の劣化を調べ、前処理により劣化が軽減されることを確認している。しかし、なぜ劣化が軽減されるかについては不明な点が多い。一般に小片間結合の破壊は、小片面内の膨潤収縮に起因するせん断タイプと厚さ回復に起因するはく離タイプに大別できる。そこで本研究では、まず木材接線方向の膨潤応力とその関連物性である吸湿性、膨潤率、弾性率に及ぼす前処理温度の影響を調べ、小片面内の膨潤収縮による結合 (接着) 破壊が軽減されるメカニズムについて検討した。

2 実験方法

2.1 供試材料と水蒸気前処理

下記の各測定方法に記された寸法形状のブロックまたは鋸挽単板をスギ (*Cryptomeria japonica* D. Don.) 辺材部より多数採取し、気乾状態の試験体をオートクレーブ

† 原稿受理 平成 9 年 6 月 27 日 Received June 27, 1997

* 岩手大学農学部応用生物学科 〒020-8550 盛岡市上田, Dept. of Bio-Sci. and Tech., Iwate Univ., Ueda, Morioka, 020-8550

** 正会員 京都大学木質科学研究所 〒611-0011 宇治市五ヶ庄, Wood Res. Inst., Kyoto Univ., Gokanoshio, Uji, 611-0011

により水蒸気処理した。処理温度は、140, 160, 180, 190, 200, 210, 220℃の7条件で、処理時間は10分間とした。ただし、膨潤応力測定については、処理温度を160℃以上の6条件とした。

2・2 膨潤応力の測定

恒温水槽を備えた万能材料試験機を用いて、水蒸気前処理および無処理のブロック試験体 (25mm (T) × 20mm (R) × 15mm (L), 処理前の気乾比重 0.35, 平均年輪幅 2.4mm, 1条件につき6~9体) のT方向に生じる吸水膨潤応力を測定した。手順は以下の通りである。①試験体を全乾 (40℃ 15時間 + 105℃ 3時間) にした後、デシケータ中で放冷, ②空の恒温水槽内で圧縮台座と加圧ロッドの間に試験体を挟む (確実な接触を得るため初期荷重 4.9N を負荷), ③水槽に 20℃の水を注入して試験体に吸水させ、発生する膨潤応力を 30 分間測定, ④排水後、試験体を取り出して重量測定し、全乾重量をベースとした吸水率を算出。

2・3 吸湿性および膨潤率の測定

水蒸気前処理および無処理の二方柱ブロック試験体 (JIS Z 2103 に規定, 30mm (T) × 30mm (R) × 5mm (L), 処理前の気乾比重 0.30, 平均年輪幅 2.1mm, 1条件につき 6 体) を用いて、吸湿膨潤率、平衡含水率、吸水膨潤率を測定した。手順は以下の通りである。①試験体の全乾 (105℃ 24 時間), ② 20℃相対湿度 33, 43, 54, 75, 85, 95% の環境下で順次調湿 (各 2 週間) し、各段階での平衡含水率およびT方向膨潤率を算出, ③ 20℃で試験体を飽水 (減圧吸水 4 時間 + 7 日間常圧放置) にして T 方向最大膨潤率を算出。なお、調湿にはそれぞれ、MgCl₂, K₂CO₃, Mg(NO₃)₂, NaCl, KCl, KNO₃ の飽和塩水溶液を用いた。また、水蒸気処理前後の試験体全乾重量から、処理による重量減少率を算出した。

2・4 弾性率の測定

水蒸気前処理および無処理の鋸挽単板試験体 (50 mm (T) × 2mm (R) × 24mm (L), 処理前の気乾比重 0.36, 平均年輪幅 2.6mm, 1条件につき 10 体) を用いて、比例域内での曲げ試験 (スパン 40mm, 中央集中荷重, 荷重速度 0.05mm/秒, 比例限度の約 7 割まで負荷, Yamaden 製レオメータ RE-33005 使用) を行い、T 方向の弾性率を測定した。手順は以下の通りである。①試験体の全乾 (40℃ 10 時間 + 105℃ 2 時間), ② 20℃相対湿度 33, 66, 95% で順次調湿 (各 2 週間) し、各段階での弾性率を測定。なお、曲げ試験は 1 試験体につき、2 回 (木表面荷重と木裏面荷重) 繰り返した。

3 結果および考察

3・1 膨潤応力に及ぼす前処理温度の影響

Fig. 1 に吸水時間と膨潤応力の関係を示す。無処理では吸水初期に大きな立ち上がりを示し、10 分以降では膨潤応力の変化は比較的小さくなった。これに対し、前処理試験体では初期の立ち上がりが小さく、高温処理ほど緩やかな膨潤応力の増加を示した。

一般に膨潤応力は、水分分布や応力緩和などの時間依存性の問題を含むため複雑な現象であるが、¹⁸⁾ここでは便

宜的に吸水 30 分後の膨潤応力 (σ_{30}) を処理条件間で比較する。

Table I に示すように、 σ_{30} は 160℃処理では無処理の 1 割低下に過ぎないが、処理温度の上昇とともにほぼ直線的に低下し、最高温度の 220℃処理では無処理の 2 割の値となった。一方、吸水率 (吸水 30 分後) も処理温度の上昇とともに低下しており、処理による膨潤応力の低下は親水性の低下と相関が高いと言える。

筆者らは、PB の吸脱水処理後の内部結合力残存率が、210℃・10 分の水蒸気前処理により 5 割から 7 割へ増加することを示した。¹⁴⁾その一要因として、上記のような吸水膨潤応力の低下により、小片間接着点に生ずる応力が軽減され、接着点が破壊されにくくなっていると考えられる。

Fig. 1. Relationship between water absorption time and swelling stress.

Note: Each curve shows an average of 6 - 9 replicates.

Table I. Swelling stress and water absorption after a 30 minutes water soak.

	Swelling stress, σ_{30}				Water absorption	
	Mean, MPa	n ^a	COV (%)	Ratio ^b	%	Ratio ^b
control	2.35	9	19.9	-	93.0	-
160℃	2.15	8	9.7	0.91	72.3	0.78
180℃	1.59	7	21.2	0.68	59.9	0.64
190℃	1.26	8	23.1	0.54	66.1	0.71
200℃	0.86	6	42.4	0.36	59.2	0.64
210℃	0.72	8	24.5	0.31	60.1	0.65
220℃	0.46	8	35.8	0.20	55.6	0.60

^a Sample size

^b Ratio of the steam pretreated samples to the control

3・2 吸湿性および膨潤率に及ぼす前処理温度の影響

平衡含水率および膨潤率測定結果の一覧を Table II に示す。各相対湿度での平衡含水率は、前処理温度の上昇とともに低下し、220℃処理では無処理の 4~6 割 (全湿度域での平均は約 5 割) の値となった。このような吸湿性の低下は、水蒸気処理によるヘミセルロースの低分子化、溶脱に伴う水分吸着点の減少に起因すると考えられる。木材成分の分解、溶脱の程度は、重量減少率に反映されており、220℃処理による重量減少率は約 12% に

Table II. Results of the hygroscopic swelling test (averages of six replicate samples).

Steam temperature (°C)	- Relative humidities -						Average	W.L. ^a (%)
	33%	43%	54%	75%	85%	95%		
Equilibrium moisture content (EMC) index (Indices where the relevant control sample equals 100.)								
140	99	98	99	98	96	93	97	-0.07
160	93	93	92	91	88	82	90	0.29
180	81	81	81	80	78	74	79	1.15
190	74	74	75	75	74	74	74	2.14
200	62	63	66	69	72	72	67	4.20
210	48	52	56	64	67	77	61	6.01
220	41	43	45	51	54	58	49	11.92
EMCs of the control (%)	5.8	7.1	8.6	12.5	15.1	19.8	-	-
Hygroscopic swelling index in tangential direction (Indices where the relevant control sample equals 100.)								
140	103	101	102	100	98	96	100	Wet ^b 99
160	96	94	93	90	86	82	90	85
180	83	81	81	79	77	74	79	74
190	78	77	78	78	78	78	78	74
200	66	65	68	72	75	75	70	65
210	53	53	57	67	71	79	63	59
220	39	40	45	52	57	64	50	52
Swelling of the control (%)	1.31	1.67	2.08	3.12	3.83	5.03	-	7.27

^a Weight loss by steam pretreatment, ^b Maximum swelling by a 7-day water soak at 20°C

も達した。処理の程度が厳しい程、ヘミセルロースの加水分解が進んでフルフラールやオリゴ糖のような親水性物質が増え、これらが処理中に溶脱したものと解釈できる。^{5), 8), 15)}一方、200°C以上の処理では、低湿域に比べ高湿域での平衡含水率の低下割合が小さくなった。施ら⁸⁾は、140~200°Cで水蒸気前処理したPBの平衡含水率が、30°C・相対湿度96%の雰囲気下では無処理よりも高くなると報告している。これらの事実から、水蒸気処理木材は極端な高湿域で特異的な水分吸着挙動を示すものと考えられる。

各相対湿度までの吸湿膨潤率 (T方向) は、前処理温度の上昇とともに低下し、低下の割合は吸湿性低下のそ

れとほぼ一致していた。すなわち、Fig. 2 に示すように、含水率 (吸湿率) と吸湿膨潤率の関係は、前処理温度に係わらず一つの直線上にあった。これより水蒸気前処理は、吸湿量に相応する分だけ膨潤するという木材の性質には影響を与えず、吸湿性の低下分だけ膨潤量を減少させる働きを持つと言える。一方、前処理温度の上昇とともに、飽水時の最大膨潤率も吸湿膨潤率とほぼ同様な割合で低下した (Table II 参照)。そのため、Fig. 2 の回帰直線と最大膨潤率の交点から得られる繊維飽和点 (FSP) も前処理温度の上昇に伴い低下しており、このことは前処理による膨潤率低下が吸湿性低下に由来するという考え方を支持している。

3・3 弾性率に及ぼす前処理温度の影響

Table III に T 方向弾性率の測定結果の一覧を示す。弾性率は前処理温度の上昇とともに低下する傾向があり、220°C 処理では無処理の約 5 割の値となった。また、低・中・高湿度いずれの環境下でも、前処理による弾性率の低下割合はほぼ同様であった。L 方向の場合、水蒸気処理による曲げ弾性率の低下は、200°C 10 分処理で数 %、220°C 10 分処理で 25% 程度というデータが得られている (スギ辺材、試験体寸法; 15mm (R) × 4mm (T) × 125mm (L))。¹⁶⁾L 方向に比べ T 方向の弾性率低下が大きい理由として、マトリックス成分の分解によるセルロース包埋構造の破壊^{8), 17)}およびリグニンに富む細胞間層での損傷などの微細構造の変化が、繊維方向よりも繊維直角方向の弾性率に大きく影響することが考えられる。

3・4 弾性モデルによる膨潤応力低減の解釈

佐々木¹⁹⁾は、木材の収縮応力に弾性モデルを適用してその発生経過を検討した。ここでは同様な手法を用いて、水蒸気前処理による膨潤応力の変化を弾性率および膨潤率の変化から検討する。

Fig. 2. Relationship between moisture content and swelling in tangential direction.

Note: The numbers shown along the regression line indicate the fiber saturation point, as determined by the intersection between the line and the maximum swelling.

Table III. The effect of steaming on Young's modulus in tangential direction.

Steam temperature (°C)	Young's modulus					
	at 33% RH		at 66% RH		at 95% RH	
	Mean, MPa	COV (%) ^b	Mean, MPa	COV (%) ^b	Mean, MPa	COV (%) ^b
Control	145	16.4	142	16.3	82	17.5
140	136 (94) ^a	34.2	142 (100) ^a	32.6	84 (102) ^a	30.4
160	128 (88)	22.0	129 (91)	29.5	72 (88)	28.7
180	131 (90)	22.5	123 (87)	24.0	72 (88)	21.3
190	100 (69)	26.9	93 (66)	26.9	56 (68)	25.1
200	135 (93)	34.2	113 (80)	32.5	68 (83)	40.1
210	103 (71)	19.3	82 (58)	20.3	58 (57)	23.1
220	76 (53)	36.2	68 (48)	35.1	38 (47)	39.6

^a Indices where the relevant control sample equals 100, ^b Sample size was twenty.

含水率を増加させる過程で、外部から膨潤を拘束することで生じる膨潤応力は、膨潤率を弾性ひずみと見なし、フックの法則で表現できる。すなわち、ある時点での膨潤応力 σ_t は、そのときの弾性率 E_t 、ひずみ ε_t および膨潤率 α_t (%) を用いて式 (1) で示される。

$$\sigma_t = E_t \cdot \varepsilon_t = E_t \cdot \frac{\alpha_t}{100 + \alpha_t} \approx E_t \cdot \alpha_t \quad (1)$$

この場合、以下の仮定が必要とされる。¹⁹⁾ ①試験体内の含水率分布は一様、②弾性率および膨潤率は含水率と直線関係にある、③断面積の変化は無視できる。

いま、含水率 0% から飽水状態までの吸水で生じる膨潤応力は、飽水時の弾性率 E_w と最大膨潤率 $\alpha_{\max}$ との積で算出できる。そこで、式 (2) を用いて無処理材に対する前処理材の吸水膨潤応力の比を求めた。ただし、 E_w は実測していないため、相対湿度 95% での弾性率 E_{95} を代用した。

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\text{cont}}} = \frac{E_w}{E_{w,\text{cont}}} \cdot \frac{\alpha_{\max}}{\alpha_{\max,\text{cont}}} \quad (2)$$

Fig. 3. Comparison of the calculated and observed swelling stresses.

Fig. 3 に $\sigma/\sigma_{\text{cont}}$ の計算値と実測値 (σ_{30} を使用) の関係を示す。両者は比較的良好に一致しており、水蒸気前処理による吸水膨潤応力の低下を弾性モデルで表現できることが確認された。すなわち、前処理による吸水膨潤応力の低下は、親水性低下に起因する膨潤率低下と、弾性率低下という力学的な性質変化との相乗効果により発現されると解釈できる。

次に、吸湿時の膨潤応力に及ぼす前処理温度の影響を検討する。一例として、相対湿度 33% → 95% に対応する含水率変化で生じる膨潤応力を考える。弾性モデルでは、この膨潤応力はその含水率変化での膨潤率 α_{33-95} と弾性率 E_{95} との積で算出されることになる。そこで、式 (3) を用いて無処理材に対する前処理材の吸湿膨潤応力の比を求めた。なお、 α_{33-95} は、全乾から相対湿度 33 および 95% までの膨潤率の実測値 α_{33} 、 α_{95} を用いて、式 (4) により算出した。

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\text{cont}}} = \frac{E_{95}}{E_{95,\text{cont}}} \cdot \frac{\alpha_{33-95}}{\alpha_{33-95,\text{cont}}} \quad (3)$$

$$\alpha_{33-95} = \frac{\alpha_{95} - \alpha_{33}}{100 + \alpha_{33}} \cdot 100 (\%) \quad (4)$$

Fig. 4. Effect of steam temperature on swelling stress.

これを処理温度との関係で示したのが Fig. 4 である。比較のために、吸水の場合の実測値をプロットしてある。吸湿膨潤応力は、吸水の場合と同様に前処理温度の上昇とともに低下する傾向が認められるが、200℃以上では吸水に比べて膨潤応力の低減効果は少ないと算出された。

佐々木ら¹⁹⁾は、脱湿による収縮応力を弾性モデルから計算すると、TR 方向の異方度のような相対値はよく表現できるが、計算値が実測値を上回るため、応力の大きさと経過を表現するには、応力緩和を考慮した粘弾性モデルが必要と指摘している。式 (3) は相対値であるため、弾性モデルでも吸湿膨潤応力の変化をある程度表現できると思われる。しかし、水蒸気処理が過酷なほど応力緩和の程度が大きくなることが認められているため、¹³⁾粘弾性モデルを適用すれば、吸湿膨潤応力に及ぼす前処理温度の影響をより正確に表現することが可能であろう。

4 ま と め

水蒸気前処理による PB の寸法安定化メカニズムを解明するため、小片間接着破壊の一要因である小片面内の膨潤応力に着目し、前処理温度と膨潤応力の関係を調べた。その結果、吸水膨潤応力は前処理温度の上昇とともに直線的に減少し、220℃処理では無処理の約 2 割の値となった。また、膨潤応力の関連物性である吸湿性、膨潤率、弾性率についても前処理温度の上昇とともに低下することが分かった。そこで、吸水膨潤応力に弾性モデルの適用を試みたところ、計算値と実測値は比較的よく一致した。このことより、水蒸気前処理による吸水膨潤応力の低下は、親水性低下に起因する膨潤率低下と、弾性率低下という力学的な性質変化との相乗効果により発現されると解釈された。

参 考 文 献

- 1) 鈴木滋彦, “木材の科学と利用技術 5. 寸法安定化”, p.544 (1989) 日本木材学会研究分科会報告書。
- 2) 川井秀一, “木材の科学と利用技術 1. 接着耐久性”, p.59 (1989) 日本木材学会研究分科会報告書。
- 3) 関野 登, 井上雅文, 木材工業, **51**, 194 (1996)。
- 4) G. B. Heebing and F. V. Hefty, Forest Prod. J., **19** (11), 17 (1969)。
- 5) W. E. Hsu, W. Schward and J. Schward, Wood Sci. Technol., **23**, 281 (1989)。
- 6) Y. Tomimura and T. Matsuda, Mokuzai Gakkaishi, **32**, 170 (1986)。
- 7) 関野 登, 井上雅文, 岩手大学農学部報告, **22**, 169 (1996)。
- 8) 施 翔, 梶田 熙, 矢野浩之, 材料, **45**, 369 (1996)。
- 9) K. C. Shen, Forest Prod. J., **23** (3), 21 (1973)。
- 10) B. Subiyanto, S. Takino, S. Kawai and H. Sasaki, Mokuzai Gakkaishi, **37**, 24 (1991)。
- 11) 岡本広志, 佐野誠二, 川井秀一, 岡本 忠, 佐々木 光, 木材学会誌, **40**, 380 (1994)。
- 12) N. Sekino, M. Inoue, M. A. Irle and T. Adcock, Proc. of the Third Pacific Rim Bio-Based Composites Symposium, Kyoto, p.249 (1996)。
- 13) M. Inoue, N. Sekino, T. Morooka and M. Norimoto, Proc. of the Third Pacific Rim Bio-Based Composites Symposium, Kyoto, p.240 (1996)。
- 14) N. Sekino and M. Inoue, Mokuzai Gakkaishi, **43**, 1009 (1997)。
- 15) 原口隆英, 諸星紀幸編著, “木材の化学”, p.66 (1985) 文永堂出版。
- 16) 井上雅文, 関野 登, 未発表データ。
- 17) 諸星紀幸, 飯塚堯介編著, “木質バイオマスの利用技術”, p.23 (1991) 文永堂出版。
- 18) 中戸莞二編著, “新編 木材工学”, p.72 (1985) 養賢堂。
- 19) 佐々木 徹, 山田 正, 木材学会誌, **18**, 169 (1972)。