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

後藤 崇志^{*1*2}, 石原美奈子^{*2}, 古野 毅^{*2}

Color change of veneers treated with some colloidal silica solution systems
and their evaluation of weathering resistance

Takashi GOTO^{*1*2}, Minako ISHIHARA^{*2}, and Takeshi FURUNO^{*2}

Veneers of Japanese cedar (Sugi : *Cryptomeria japonica*) sapwood and Japanese oak (Konara : *Quercus serrata*) were treated with colloidal silica and boric acid solutions to manufacture wood-mineral composed veneers, and the color changes on the veneer surfaces by the treatment were investigated. Then we evaluated the weathering resistance of treated veneers by both leaching procedure and weathering test with a weather meter. Weight percent gain (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 ratio of unleached inorganic substances after the leaching procedure was larger in the C or CB treatment than that in the B treatment. Although there was no correlation between the fixation ratio 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 physical erosion of earlywood by the weathering test.

コロイダルシリカ溶液とホウ酸を用いた無機質複合化処理をスギ（辺材）とコナラの単板に施し、複合化単板の色調変化を検討した。また、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って耐候性を評価した。単板の重量増加率（WPG）はコロイダ

本研究の一部は第54回日本木材学会大会（2004年8月、札幌）において発表した。

* 1 島根県中山間地域研究センター Shimane Prefectural Mountainous Region Research Center, 1207, Iinan, Shimane, 690-3405, Japan

* 2 島根大学総合理工学部 Faculty of Science and Engineering, Shimane University, 1060, Matsue, Shimane, 690-8504, Japan

ルシカーホウ酸溶液（CB 溶液）処理で最大となり、スギ60.7%，コナラ17.0%となった。複合化処理に伴う色調変化は、CB 溶液では単板表面に汚染が生じず、著しい変色がないことがわかった。溶脱処理では、不溶性無機物の固着率はコロイダルシリカ溶液を用いると高くなった。固着率と色差（ ΔE^* ）に相関関係はなかったが、CB 溶液処理で ΔE^* が最も小さくなった。促進耐候性試験では、試験初期に ΔE^* が増減し、その後再び増加していく傾向が認められた。 ΔE^* は樹種による著しい違いはなく、溶脱処理の前後で各複合化処理がそれぞれ同様な傾向を示していた。CB 溶液処理では、この ΔE^* の増減幅が小さく、スギ単板ではコントロールよりも ΔE^* が小さくなり、促進耐候性試験による早材部の物理的な侵食も抑制していることが観察された。

1. 緒 言

コロイダルシリカ溶液とは、水を分散媒とする溶液中に無定形シリカ粒子が分散してコロイド状をなしているものである。この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¹⁻⁵⁾。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²⁾、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も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⁶⁾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していく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⁷⁾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²⁾。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、ホウ酸を添加することによって不溶性無機物の固着率が高くなることがわかっている⁴⁾。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、本研究では、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検討した。次に、これらの無機質複合化単板に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単板の耐候性について評価を試みた。

2. 試験方法

2.1 材料

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 3 mm の単板を製造した。スギ（辺材）とコナラの乾燥単板を 3（R）×65（T）×150（L）mm に調製して各130枚を用いた。なお、乾燥単板の気乾含水率は 5～8%，全乾密度はスギ 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、セバ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 無機質複合化処理

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、コロイダルシリカ単独溶液（以下C溶液）、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溶液（以下CB溶液）、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%）であるホウ酸単独溶液（以下B溶液）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）を算出した。

2.3 溶脱処理

無機質複合化単板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、各無機質複合化単板30枚を溶脱処理前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。

2.4 無機質複合化単板の測色

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、処理前後の色差（以下 ΔE^* ）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。

2.5 無機質複合化単板の促進耐候性試験

促進耐候性試験は、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、紫外線照射と水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。

試験方法は、紫外線照射と水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、促進劣化処理試験10, 26, 50, 76, 100, 150, 200, 300, 400, 500, 600, 800, 1,000, 1,200時間後に行った。

なお、前述の無機質複合化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^* などを算出することとした。

3. 結果と考察

3.1 無機質複合化処理による単板のWPGと不溶性無機物の固着率

無機質複合化単板の溶脱処理前後でのWPGを図1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0.69g/cm³、空隙率はスギ79.3%、コナラ54.0%となることから、組織

図1 無機質複合化処理単板の溶脱処理前後における WPG (%)

注：C 溶液：コロイダルシリカ単独溶液，CB 溶液：コロイダルシリカーホウ酸溶液，
B 溶液：ホウ酸単独溶液，エラーバーは標準偏差を示す

Fig. 1 Weight percent gains(WPGs) of veneers treated with colloidal silica solution systems before and after leaching

Note : C solution : colloidal silica solution, CB solution : colloidal silica-boric acid solution, B solution : boric acid solution, Error bars represent the standard deviation

構造の違いと全乾密度（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⁸⁾も考えられる。

無機質複合化処理前後の全乾密度より固着無機物量を算出した結果、スギで大きくなり、C 溶液 153kg/m^3 、CB 溶液 182kg/m^3 となった。B 溶液は 41kg/m^3 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ことがわかる。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³⁾によるものと考えられる。コナラでは C 溶液 61kg/m^3 、CB 溶液 86kg/m^3 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 1 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³⁾、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⁹⁾。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⁹⁾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。

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 1 に、無機質複合化単板の表面状態の一例を図 2 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^* ）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¹⁰⁾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ことがわかっている¹¹⁾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、pH が 6.4 のほぼ中性であり、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。しかし、WPG と ΔL^* 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³⁾、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¹⁰⁾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¹¹⁾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。

3.3 無機質複合化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 に示す。スギでは CB 溶液でコントロールとはほぼ同じ 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質は固体化しており、溶脱処理前後とも細胞内腔を充填していることが観察されている³⁾。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樣に分布していることが明らかとなっている³⁾。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、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

表 1 スギ、コナラ単板の無機質複合化処理前後の色調変化

Table 1 Color of sugi and konara veneers before and after treatment with colloidal silica solution systems

単 板 Veneers	無機質複合化処理溶液 Treatment solutions	L^*	a^*	b^*	ΔE^*
ス ギ Sugi	コントロール Control	74.36	7.35	24.61	—
	C 溶液 C solution	68.74	6.69	25.19	8.33
	CB 溶液 CB solution	78.76	6.03	23.53	4.52
	B 溶液 B solution	74.35	5.78	20.55	4.16
コナラ Konara	コントロール Control	63.29	7.05	23.75	—
	C 溶液 C solution	54.64	5.47	24.17	9.45
	CB 溶液 CB solution	69.75	3.79	20.41	7.44
	B 溶液 B solution	70.57	2.98	15.35	13.01

注：図 1 の注を参照

Note : Refer to Fig. 1

図2 無機質複合化処理を施したスギ単板とコナラ単板
Fig. 2 Wood-mineral composed sugi and konara veneers

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¹²⁾を防ぎ、揮散操作における温度、湿度による変色¹²⁾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¹³⁾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。

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。

3.4 無機質複合化単板の促進耐候性試験による単板の色調と表面状態の変化

促進耐候性試験における色調の変化として、無機質複合化単板で溶脱処理前後の ΔE^* についての経時変化を図3～6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、明度差(以下 ΔL^*)と色度 a^* と b^* の色度差(以下 Δa^* , Δb^*) の変化が影響している。ここで、図7に溶脱処理前無機質複合化スギ単板の ΔL^* の変化を、図8に Δa^* の変化をそれぞれ示す。なお、コナラ単板の ΔL^* と色度差についても同様な傾向が認められた。図7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8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

表2 溶脱処理による無機質複合化処理単板の色調変化

Table 2 Color changes of treated sugi and konara veneers after leaching

単 板 Veneers	無機質複合化処理溶液 Treatment solutions	ΔL^*	Δa^*	Δb^*	ΔE^*
ス ギ Sugi	コントロール Control	-2.45	-0.89	-1.47	3.57
	C 溶液 C solution	4.81	-0.94	-2.10	5.63
	CB 溶液 CB solution	-2.59	-0.47	-0.72	3.42
	B 溶液 B solution	-4.42	-0.45	1.34	4.81
コナラ Konara	コントロール Control	4.78	-2.92	-4.45	8.81
	C 溶液 C solution	12.84	-0.82	-2.33	13.23
	CB 溶液 CB solution	-1.78	-0.49	0.19	3.67
	B 溶液 B solution	-7.21	0.31	0.99	7.41

注：図1の注を参照

Note: Refer to Fig. 1

を示すといえる。

C 溶液は、図7より試験初期の ΔL^* の低下が小さく、表1においても L^* は最も小さくなっていた。また、図8より Δa^* の低下は最も早期に生じ最大となったことより、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¹⁰⁾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 溶液は、図8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¹⁰⁾、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¹⁴⁾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3の溶脱処理前無機質複合化スギ単板では、 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7からCB溶液ではコントロールより

図3 促進耐候性試験による溶脱処理しない無機質複合化スギ単板の色差 (ΔE^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 3 Changes of color difference (ΔE^*) of un-leached sugi veneers treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

図5 促進耐候性試験による溶脱処理しない無機質複合化コナラ単板の色差 (ΔE^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 5 Changes of color difference (ΔE^*) of un-leached konara treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

図4 促進耐候性試験による溶脱処理した無機質複合化スギ単板の色差 (ΔE^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 4 Changes of color difference (ΔE^*) of leached sugi veneers treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

図6 促進耐候性試験による溶脱処理した無機質複合化コナラ単板の色差 (ΔE^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 6 Changes of color difference (ΔE^*) of leached konara treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

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8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 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4の溶脱処理後無機質複合化スギ単板では、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時間にかけて各無機質複合化単板の 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5の溶脱処理前無機質複合化コナラ単板では、各無機質複合化処理での ΔE^* の変化は溶脱処理前スギ単板(図3)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

図7 溶脱処理しない無機質複合化スギ単板の促進耐候性試験による明度差 (ΔL^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 7 Changes of brightness difference (ΔL^*) of unleached sugi veneers treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

図9 促進耐候性試験後のスギ単板表面の劣化状態
注：上：コントロール，下：CB 溶液処理

Fig. 9 Photographs of the deteriorated surfaces of sugi veneers after the weathering test

Note : Upper : control, Lower : treatment with colloidal silica-boric acid solution

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1)、試験初期の色調変化は抑制するものの、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

図8 溶脱処理しない無機質複合化スギ単板の促進耐候性試験による色度差 (Δa^*) の変化

注：図1の注を参照

Fig. 8 Changes of chroma difference (Δa^*) of unleached sugi veneers treated with colloidal silica solution systems in the weathering test

Note : Refer to Fig. 1

トロールと同程度になったものと考えられる。

図6の溶脱処理後無機質複合化コナラ単板では、全体的な ΔE^* の変化は図4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差異は認められなかった。各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なり、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9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 μm 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、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¹⁵⁾。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²⁾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ものと考えられる。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な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¹⁴⁾ため、屋外暴露試験によって屋外の環境下での無機質複合化処理した単板や木材の変色や劣化などを今後検討していく必要がある。

4. 結 言

コロイダルシリカ溶液とホウ酸を用いた無機質複合化処理をスギ(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、無機質複合化処理による耐候性の向上について検討した。

無機質複合化処理した単板の 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。

無機質複合化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分かった。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、無機質複合化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、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化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ものと考えられる。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化処理は耐候性の向上が期待できるものと考えられる。

引用文献

- 1) 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).
- 2) 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).
- 3) 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).
- 4) 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化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).
- 5) 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).
- 6) 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, 1999, pp.63-66.
- 7) 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).
- 8) 中戸莞二編著: “新編 木材工学”, 養賢堂, 1985, pp.96-99.
- 9) 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).
- 10) 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, 1972, pp.274-277.
- 11) 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).
- 12) 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, 1982, p.482.
- 13) 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, 1997, pp.190-191.
- 14) 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).
- 15) 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).
- (2004.10.14受付)
- (2005. 1. 6 受理)