

熱帯産材の粘弾性(第3報)^{※1}

引張荷重の収縮への影響^{※2}

高橋 徹^{※3}・藤田 晋輔^{※4}・桜井 敏夫^{※3}

Akira TAKAHASHI^{※3}, Shinsuke FUJITA^{※4} and Toshio SAKURAI^{※3}

Rheological Properties of Tropical Wood III^{※1}
The Effect of Tensile Stresses on Shrinkage^{※2}

1. 結 言

我国の木材需要の増大にともなう、輸入材の占める割合は40%を越え、特に熱帯産材は木材工業の各分野に多く使用され、その占める地位は重要なものとなっている。ところで、我国の有用材は50~60種程度であるが、熱帯産樹種は350種を越える。これらは、組織構造が非常に複雑なものとしており、物理的指標の一つである比重で表現すると、0.1(バルサ)から1.2(リグナンバイタ)におよぶから、当然材質の多様性が考えられる。したがって熱帯産材の材質を同一のものとして、特長づけて記述することは不可能と思われる。

一般に、負荷状態において、木材の含有水分を変化させると、木材の変形はその自由な膨潤収縮要素を除いても、水分定常状態の変形にくらべて異常に大きいことが知られている。これは古くから、加圧収縮、Drying Setの現象として知られているものであるが、この現象は最近、Hydrostrainとして注目され^(a)、活発に研究がなされ、乾燥中にいろいろな種類の応力を加えた木材の変形挙動について、データの集積が現在もなおなされつゝある^(b)。

これまで、熱帯産材の熱気乾燥による収縮経過とDrying Set材の強度特性を検討した^(c)が、本報では引張荷重下における乾燥中の収縮挙動とそのクリープについて検討する。用材として使用されている熱帯性3樹種を実験にもちいたが、樹種数がごくわずかで、この研究

結果から熱帯産材の一つの物理的性質の傾向を結論づけようとするものではない。

2. 実験材料と測定方法

試料は前報^(d)と同様に次の3樹種のスライス単板である。

スピナール (*Anisoptera thurifer*)
マコーレ (*Minusops neckelii*)
マンガシノロ (*Shorea philippinensi*)

試片の形状は JIS. Z-2111-63 に準拠したが、試片の厚みは 250 μ である。試片のつかみ部分には添木を接着した。試料の作成方法、形状寸法および実験装置は既報のとおりである。なお、乾燥温度と荷重の実験条件は次の組合わせである。

乾燥温度: 40°, 60°, 80°C

荷 重: 30, 50, 70 gr. (それぞれ 1.13, 1.89, 2.65 kg/cm²)

測定方法は乾燥温度に加熱した生材状態の試片を、乾燥器中に吊り下げ、試片に引張荷重を加えて、所定時間の乾燥を行なう。乾燥中の変形は試片の中央平行部分について、読取顕微鏡で測定された。

3. 結果と考察

3.1. 収縮経過

含水率の経過および引張荷重下 (0, 30, 50, 70 gr) の収縮経過を Fig. 1 に示す。Fig. 1 の収縮経過を Fig. 2 に要約して示す。同図によれば、a 点は負荷時の瞬間ひずみ、a~b 間は自由水の蒸発期間のため、収縮はほとんどなく、引張クリープを示している。次に、b 点ではクリープ速度と収縮速度が相等しい点で、伸縮せず、平衡に達した点である。b~d 間では結合水の蒸発による著しい収縮を示し、収縮速度がクリープ速度よ

※1 (第2報) 日本木材学会誌 15, 271-277 (1969)

※2 本報の一部は第18回日本木材学会大会 (1968-4: 京都大学) で発表した。

※3 木材加工学研究室 Laboratory of Wood Science and Engineering.

※4 静岡大学農学部林産学科木材物理学研究室
Laboratory of Wood Physics, Faculty of Agriculture,
Shizuoka University

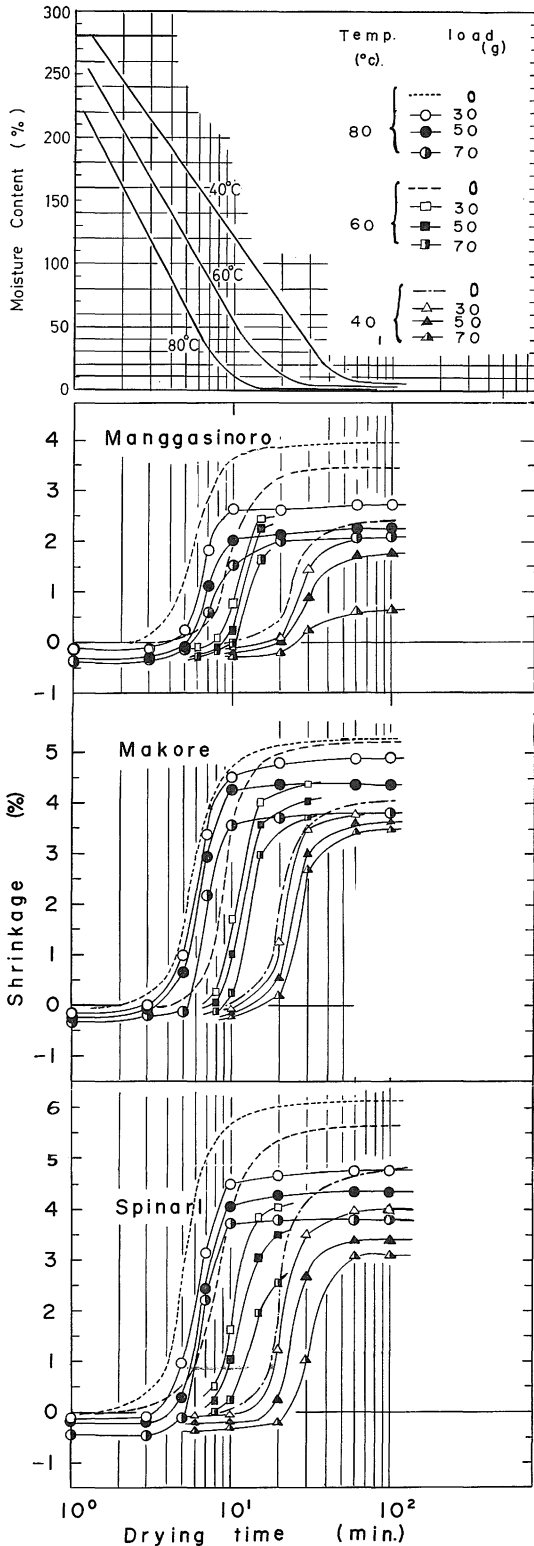


Fig. 1. Relati on between drying time and shrinkage under tensile lead, and moisture contents curves.

りはるかに大きくなる。c点では試片寸法が生材のときと同じである。

なお、b点を基準にして、収縮率、セット量を求めるべきだとの提案⁽⁶⁾もあるが、木材乾燥におけるセットは生材がなんらかの応力をうけて乾燥した時に生じた収縮量と拘束をうけない時に生じた自由収縮によって得た収縮量の差と考えるのが妥当であるから、セット量の計算は生材寸法を基準にとった。

d～f間は収縮終了期で、とくにe～f間ではクリープによる増加がほとんどみられない。これは収縮ポテンシャルが大きいことと、この低含水率状態では顕著なクリープを示すほど荷重が大きくないことなどがあげられる。収縮曲線(b～e)は乾燥温度が高く、荷重が小さいほど、乾燥時間の短時間側へ移動する。また、収縮量は荷重が大きいほど、また乾燥温度が低いほど、小さい値を示している。

次に、Fig. 1によれば、全収縮量(率)はスピナール、マコーレがほぼ同じであるが、マンガシノロはその約半分である。これは収縮挙動に対応する材質のちがいによるためと思われる。クリープおよびクリープ・コンプライアンス (Fig. 4, 6) についてマンガシノロだけが特に低いことはなく、他樹種とほぼ同じ値を示すことからわかる。また、3樹種とも、乾燥中の荷重が小さい程、乾燥温度が高いほど、速く収縮し、収縮率が大きく、ほぼ同じ傾向を示す。しかも、含水率が70～100%で収縮開始しているから、このような薄片でも、水分こゝ配が著しく、クリープ下の収縮と自由収縮の差は顕著に現われる。

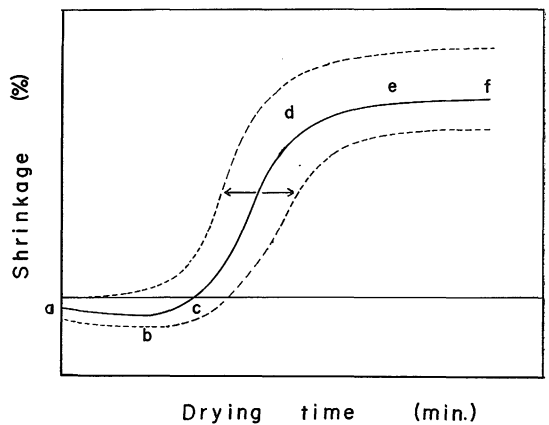


Fig. 2. Relationship between shrinkage and drying time under tensile load.

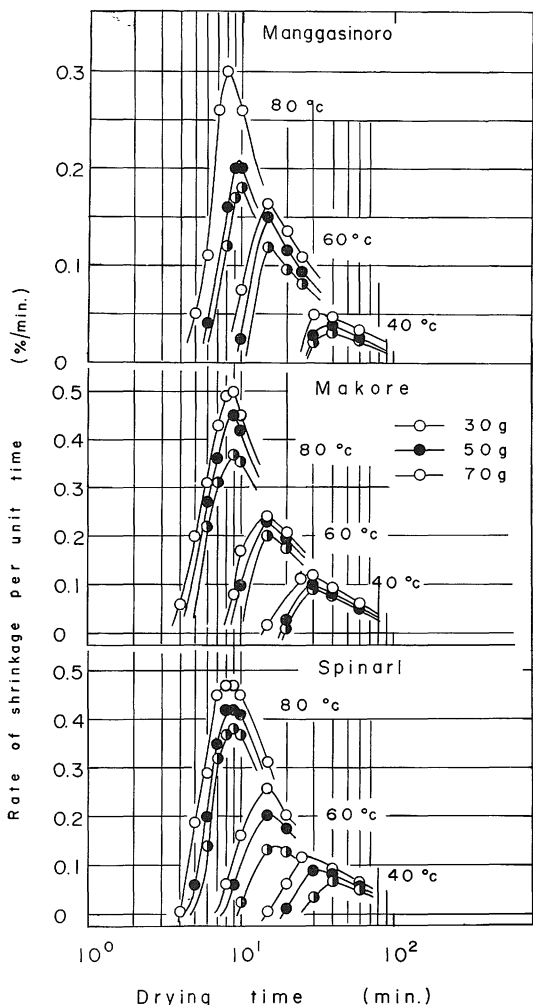


Fig. 3. Rate of shrinkage per unit time under tensile load during drying.

Fig. 1 の収縮曲線から、収縮速度を求め、Fig. 3 に示す。同図によれば、乾燥温度が高く、荷重が小さいほど収縮速度の最大値は大きく、また、短時間側に移る傾向がある。収縮速度の最大値は Table I に示される。同表によれば、(1) シオジの荷重効果は大きい。(2) 最大収縮速度はマコーレ、スピナル、シオジともに同じオーダーであるが、スギとマンガシノロは小さい。

3.2. 乾燥中の引張クリーブ

従来、一部の研究では⁽⁷⁾、収縮要素とクリーブ変形を明確に分離せず検討がなされている。しかし、Drying Set の効果を示すには、著者らが従来よりおこなったように、

無負荷(自由)収縮量 - 負荷収縮量 = 引張クリーブ
 として、収縮要素をのぞいた乾燥中のクリーブを求めた。これを Fig. 1 に示す。したがって、乾燥中のクリーブには、

Drying Set (永久変形量) + クリーブ回復量 + 瞬間回復量の3要素を含んだものである。瞬間回復量はクリーブ開始時の瞬間ひずみの約40%⁽⁶⁾であって、クリーブ回復は0.1%程度とみられる。Fig. 4 によれば、乾燥中のクリーブ曲線は乾燥開始とともに漸増し、繊維飽和点付近で最大値をとり、乾燥時間の経過とともに漸減して平衡に達するかまたはわずかに増加する。

このような現象は日本産広葉樹材(シオジ)⁽⁴⁾でもみられるが、日本産針葉樹(スギ⁽⁴⁾、ヒノキ⁽⁸⁾⁽⁹⁾)の場合には、乾燥中のクリーブが乾燥とともに増加し、最大に達したのに、ごくわずかしから減少しないか、または乾燥終了まで最大値のまま平衡に達する。

以上のことから、水分脱着下のクリーブ挙動は熱帯産材を含めた広葉樹材と針葉樹材とは異なることがわかる。

乾燥開始後、クリーブが最大値に達するのは、平均含水率が30~70%であり、この値は約スギ20~30%⁽⁴⁾、

Table I. Maximum values of shrinking velocity (%/min)

Species	Temp		40°C				60°C				80°C			
	Load(g)		0	30	50	70	0	30	50	70	0	30	50	70
			Makore	0.30	0.12	0.10	0.08	1.22	0.24	0.23	0.20	1.58	0.50	0.45
Spinarl	0.40	0.12	0.08	0.07	1.20	0.26	0.20	0.14	1.74	0.47	0.42	0.38		
Manggasinoro	0.20	0.05	0.04	0.03	0.88	0.16	0.15	0.12	1.18	0.30	0.21	0.18		
Shioji	0.35	0.26	0.26	0.30	0.61	0.47	0.23	0.29	2.17	1.50	1.40	1.12		
Sugi	0.21	0.08	0.06	0.05	0.30	0.20	0.20	0.06	0.76	0.50	0.24	0.11		

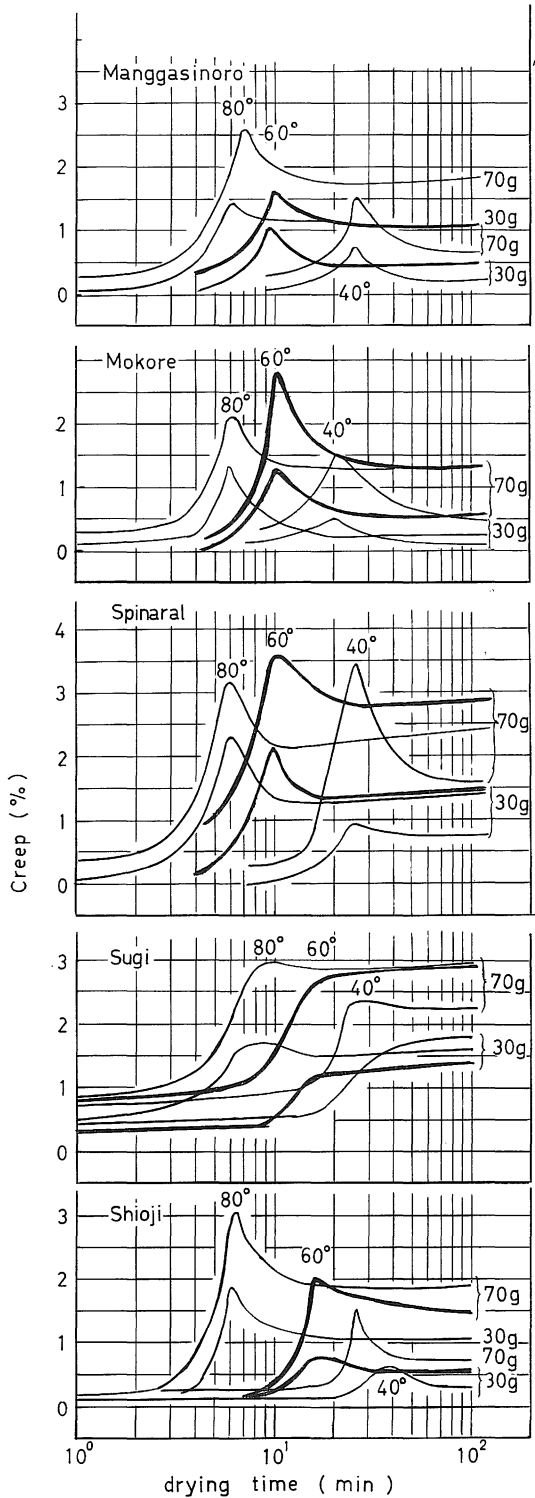


Fig. 4. Creep during drying.

ヒノキ25~40%⁽³⁾、シオジ30~50%⁽⁴⁾に比べて、含水率が比較的高い。水分平衡下のクリープ⁽³⁾と比べて、乾燥中のクリープではピークを持っている。この現象は負荷によって、水分離脱がおくれ、乾燥後半の収縮性能がクリープを上まわったものとも考えられ、熱帯産材の特性のひとつと思われる。

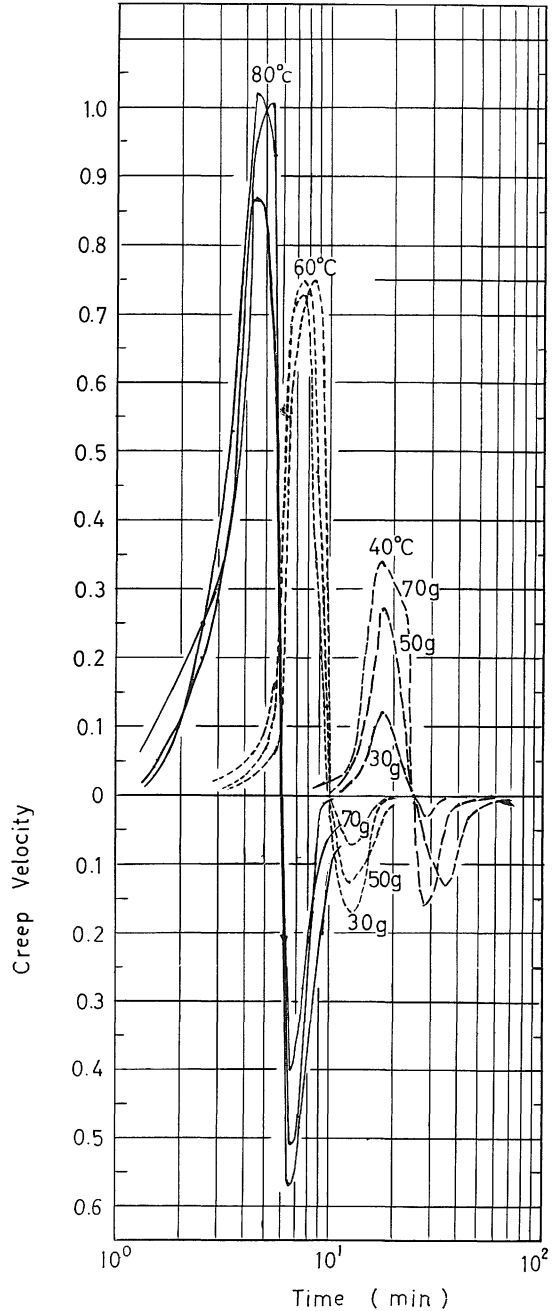


Fig. 5. Creep velocity during drying.

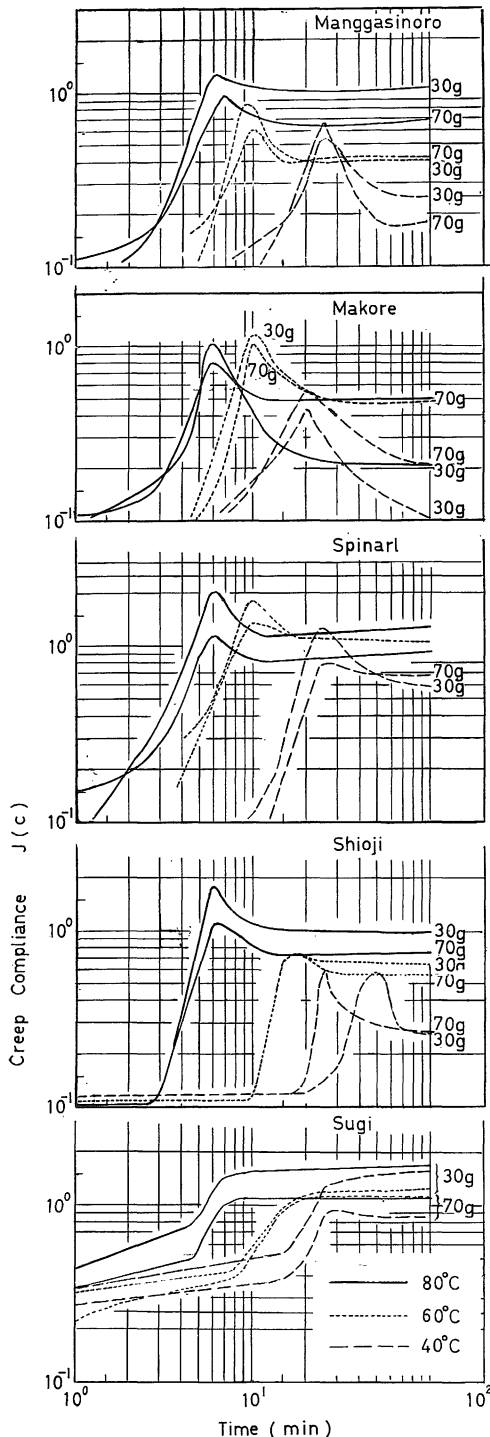


Fig. 6. Creep compliance during drying.

同じ乾燥温度の場合、クリープの最大値は荷重が大きいほど大きく、また、荷重が同じ場合、クリープ最大値が時間的に遅れて温度効果が見られる。

クリープのひずみ速度 dc/dt は Fig. 5 に示される。 dc/dt は乾燥経過とともに、はじめは正、のちに負のピークをもつ曲線を示し、従来の結果⁹⁾(試片の厚さと時間の単位が異なるため、直接比較出来ない)とは、同じ傾向である。クリープ速度への温度効果は明確にあらわれ、しかも温度の高いほど、短時間側に移り、クリープ速度も大きい。また dc/dt の荷重効果は 60°C、30g の 1 例を除けば、主として、荷重の大きいほど、クリープ速度が大きい。最大のクリープ速度を示す平均含水率は 50~75% M. C. (80°C)、65~80% M. C. (60°C)、75~80% M. C. (40°C) を、また、最小のクリープ速度を示す平均含水率は 35% M. C. (80°C、60°C) および 20~40% M. C. (40°C) である。木材の水分こう配が大きいことを考えても、異常変形は比較的高い含水率である。

Fig. 6 はクリープ・コンプライアンスを示す。クリープ・コンプライアンスにおいても、熱帯産材はシオジと同じく、ピークを持つ傾向を示し、スギ材の傾向とは異なる。クリープと同様にクリープ・コンプライアンスも 6~7 分 (80°C)、10~18 分 (60°C) および 20~50 分 (40°C) でピークを示し、その後減少する。また同一の乾燥温度の場合、がいして、クリープ・コンプライアンスは低荷重の方が大きい値を示す。

3.3. 赤外吸収スペクトルによる Drying Set 材の構造変化の検討

以上述べてきたように、木材の乾燥過程で応力が加わると、普通の収縮や水分平衡下のクリープよりも、大きな伸びを示すことが、本研究(熱帯産材)ならびに、従来の研究(温帯産材)からわかった。このように著しい変形はどのようなメカニズムで起るのであろうか? また細胞の高次構造のうちどのオーダーのものが構造変化をうけるのだろうか? などに関して検討されなければならない。

木材は天然高分子として高次構造をもっているから、Drying Setによる異常変形は、木材の細胞膜構造のうち

- 1) 細胞膜形態それ自身の巨視的変化(マクロな変化)
- 2) ミクロファイブリル相互のスリップによる変化
- 3) セルロース非晶領域のスリップによる変化(ミクロな変化)

が考えられる。このうち、マクロ変形は、当然、ミクロ変形の集積、総合したかたちで現われたものと思われる。従来、Drying Set の原因は非晶領域のスリップ、

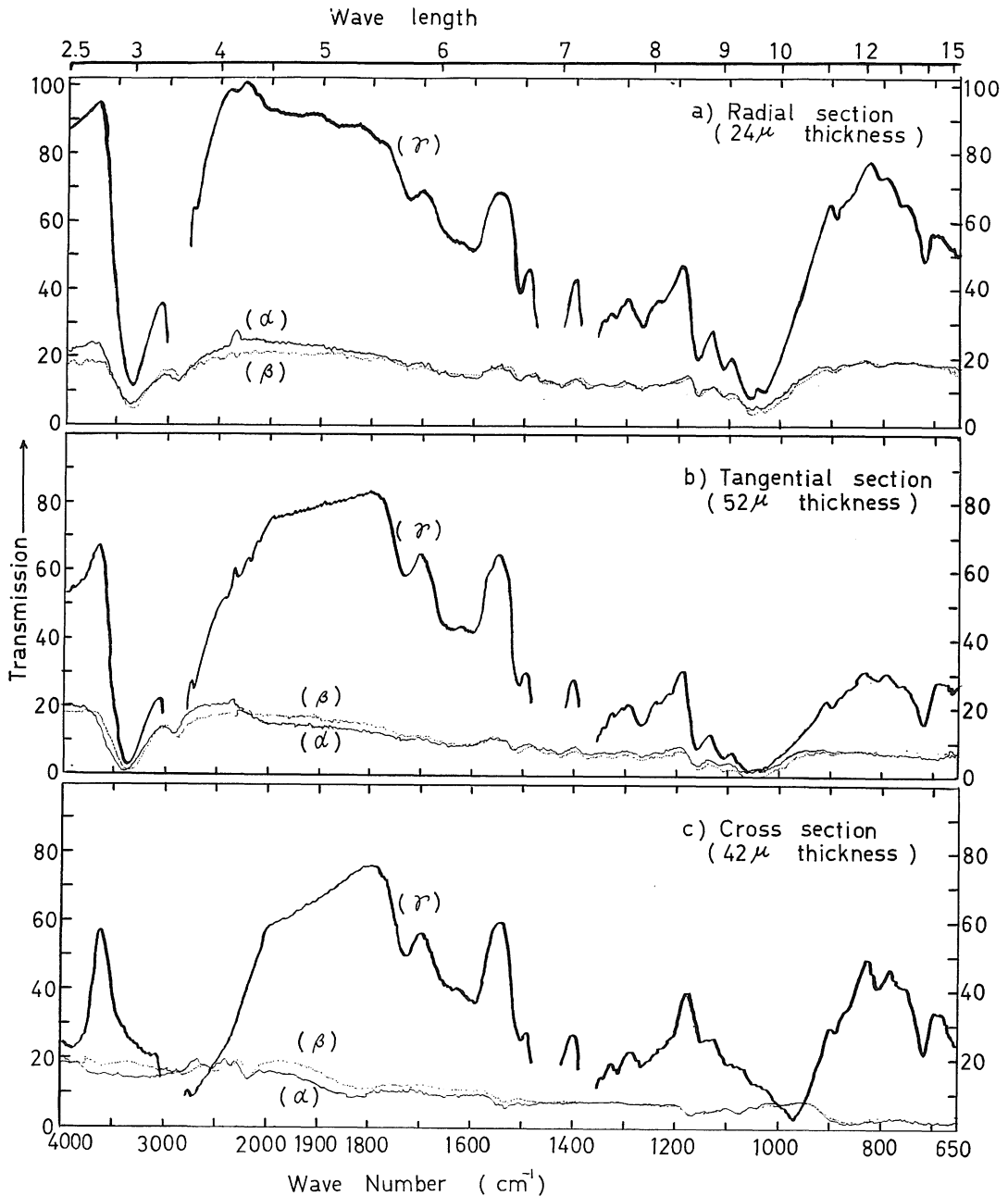


Fig. 7. Infrared spectra of Hinoki-wood² (*Chamaecyparis obtusa*-Endle.)

(α): non-treated

(β): with stretched perpendicular to grain during drying at 60°C

(γ): (β) sample soaked in liquid paraffin

(Electric vector perpendicular to grain)

すなわち、セルロースのミセル相互が滑り、とくに動的水分のなかでのミセル相互間が転移しやすいと想像し、結論づけられてきた。事実、繊維方向に一定の引張荷重下で乾燥したときも、繊維直角方向のそれと同様に、伸

びに異常変形がみられる⁽¹⁾⁽²⁾。角谷⁽³⁾、谷口⁽⁴⁾らがヒノキとポプラの切片を用いて、繊維方向の負荷中の脱湿による異常変形について、分子構造変化の観測手段として赤外吸収スペクトルを用いて測定した。これによると、

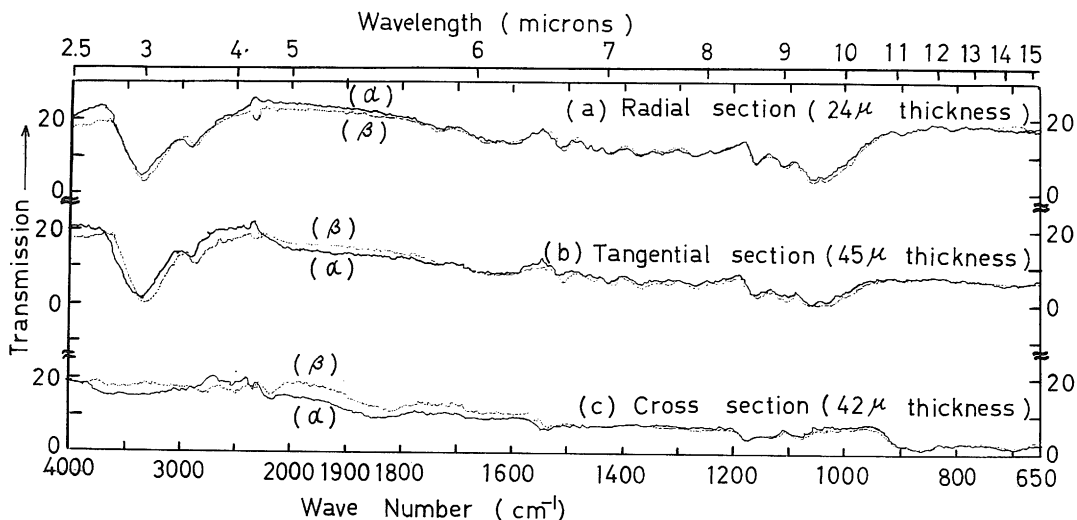


Fig. 8. IR spectra of Hinoki-wood (*chamaecyparis Obtusa* Endl.)

(α) : non-treated

(β) : dried (at 60°C in 2hrs.) for α-sample soaked in water.

(Electric vector perpendicular to grain)

リグニンのベンゼン核振動にもとづく 1490cm^{-1} , リグニンのベンゼン核およびピラン核上の CH_2 の変角振動にもとづく $1460, 1445\text{cm}^{-1}$, セルロース, ヘミセルロースのブリッジ $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 振動にもとづく 1160cm^{-1} などの諸吸収の減少, またセルロースあるいはキシランの OH 面内振動, セルロースの CH_2 面外変角振動の $1340\sim 1320\text{cm}^{-1}$, ピラン環特性結晶性バンドの $1105\sim 1035\text{cm}^{-1}$ の3吸収スペクトルの著しい増加がみられるとしている。(6)

そこで, 筆者らは, ヒノキ材マイクロトーム薄片を用い, 乾燥中に横引張を加えた. この処理材の赤外吸収スペクトル (IR—スペクトル) がどのような変化をするか, またその結果から, 木材の微細構造にどのような変化が生じたかを検討しようと試みた.

気乾状態におけるヒノキ薄片の3断面 (Fig. 7 (a)※1, (b)※2, および (c)※3) の IR スペクトルを記録 (曲線 α) した後, 試片を蒸留水中に浸漬し, 生材状態になってから, 試片を 60°C の乾燥器中に入れて, 荷重下 (約 10g) で乾燥した. 乾燥後, 試片を気乾状態にもどしてから IR スペクトルの記録をした (Fig. 7, 曲線 β). 次いで同じ試料を流動パラフィン中に浸漬したのち, 流動パラフィン添付の試片の IR スペクトルを求めた (Fig. 7, 曲線 γ). そこで, 各断面の IR スペクトル

の曲線 α と β を比べると, 乾燥中の負荷処理によって, IR スペクトルの吸収深さにわずかな差異がみられる. すなわち, Table II に示すように, IR スペクトル吸収域の減少は3断面で異なり, また13波長域で吸収深さや吸収点の移動などに何らかの変化を示した. これらを縦引張における Drying Set の結果(9)(10)と比較すれば, $1420, 1160\sim 1030\text{cm}^{-1}$ だけは一致している. しかしながら, Fig. 8. に示すように, 気乾状態における試片の IR スペクトル (曲線 α) をとり, 次いで, 試片を飽水状態にしてから, 無負荷下で 60°C の熱気乾燥をする. その後, 試片をふたたび気乾状態にもどして, IR スペクトル (曲線 β) をとる. 乾燥処理前後 (無負荷) の IR スペクトルの吸収点などについて比較すれば, Table II に示した IR スペクトルとほとんど同じ波長で, 同じ特徴の変化を示す.

以上のように, 従来 Drying Set の原因と考えた分子の結晶域の相互スリップはやはり赤外線吸収スペクトル観察で $1160\sim 1030$ 領域—分子の結晶性バンド領域—の変化に相当するが, それはまたたんなる熱気乾燥で収縮でも同じ変化を示す※. Drying Set としての独特な分子構造の変化を IR—スペクトル変化 (吸収深さについての比較を無視して) で示さなかったことは, 通常の化学反応機構による反応基や活性基の変化が生じなかったた

※1 柎目面 (RL) において, 乾燥中半径方向に引張荷重を加える.

※2 板目面 (TL) において, 乾燥中切線方向に引張荷重を加える.

※3 木口面 (RT) において, 乾燥中半径方向に引張荷重を加える.

※ 熱気乾燥による収縮と Drying Set の IR スペクトルが吸収深さの点でことなるかも知れない. 吸収深さによる定量的比較は, 木材のような場合問題があるので取扱わなかった.

Table II. Change of IR-spectra band in drying-set treatment of Hinoki-wood

Wave length (cm ⁻¹)	Section of Wood	Band in Spectra of Curve	Assignment of band*	Distinguish
4000-3600	a) b)	4000	CO, CH, CH ₂ stretching, cellulose	Absorbed region of greater intensity
3800-2900	c)	-		Absorbed region of less intensity
3200-2900	a)	-		
2250-1750	b)	-		
3400→3350 (→ shift)	a) b)	3350	Hydrogen-bonded OH stretching, cellulose, hemicellulose and lignin	Absorbed band of increased intensity and of shift
2900→2870	a) b)		CH stretching, cellose hemicellulose, lignin	Shift of absorbed bond
2800→2750	c)	2700		
1515→1505	a) b)	1505	stretching modes of benzene ring, lignin	
1430→1420	ε) b)	1420	CH ₂ scissor motion cellulose	
1165→1155	a) b)	1160	Asymmetric C-O-C bridge stretching cellulose, hemicellulose	Absorbed band of increased intensity
1115→1110	a) b)	1110	Glucose ring stretching	
1060→1055	a) b)	1060-1055	Mainly due to C-O stretching small, contribution to this group of band from C-O stretching, cellulose, hemicellulose	
1040→1030	a) b)	1030		

a) Radial section, b) Tangential section, c) Cross section

* Literature. LIANG, C. Y., BASSETT, K. H., MCGINNES, E. A., and MARCHESSAULT, R. H. : Tappi, 43 : 1017, 1960

めと思われる。したがって **Drying Set** はたんなる熱気乾燥にともなう木材の構造変化—収縮—と機構上同じである。

Drying Set を生ずる原因として、1) 結晶域の相互スリップが応力によって促進されるが、これらはフィブリル中心部の結晶の重ね合せ構造のため生じた、

2) フィブリルないしマイクロフィブリル相互間のスリップによるためと考えられる。電子顕微鏡を用いて、マイクロフィブリルの配向性、再配列に関して検討すれば、何らかの推定がえられるかも知れないが、**Set** が2~3%収縮と異なるだけでは電顕によるマイクロフィブリル配向方向測定で明確に示せないものと思われる。

なお、全乾、気乾、および飽湿の3含水率状態のちがひによるIRスペクトルへの差異(データ略)および熱気乾燥のそれは、IRスペクトル吸収領域の幅および吸収点の移動を次の波長で生ずることがわかった。

3400, 2900, 1700~1600, 1550~1250, 1160~1030 cm⁻¹

4. 摘 要

乾燥中における引張クリープ挙動に関する従来の研究を継続し、これを熱帯産材に適用してみた。その結果、

(1) マンガシノロの収縮量はスピナール、マコーレのその半分であるが、乾燥中のクリープ、クリープコンプライアンスはほぼ同じ値を示した。

(2) 熱帯産材3樹種とも、乾燥中の引張クリープ挙

動は日本産広葉樹材シオジと全く同じ傾向を示し、針葉樹材スギ、ヒノキとは異なることがわかった。

(3) IRスペクトルによれば、**Drying Set** による分子構造の変化は熱気乾燥の収縮で生ずるそれと同じ(定性的に)である。**Drying Set** による異常変形は、収縮のメカニズムの他にマイクロフィブリルないしフィブリルの相互スリップにも大きな原因の1つと考えられる。

文 献

- 1) ARMSTRONG, L. D. and KINGSTON, R. S. T. : Australian J. Appl. Sci. **13** : 257, 1962
- 2) ERIKSON, L. and Norén B : Holz als Roh-u. Werkstoff. **23** : 201-208, 1965
- 3) 藤田晋輔・中戸莞二 : 木材誌 **11** : 36-40, 1965
- 4) 藤田晋輔・高橋 徹 : 島根大農研報 **1** : 100-103, 1967
- 5) 藤田晋輔・高橋 徹 : 木材誌 **15** : 271-277, 1969
- 6) 飯田生穂・福山萬治郎, 浦上弘幸 : 京都府大農研報, **13**, 19-25, 1969
- 7) SCHNIEWIND, A. P. : Holz als Roh-u. Werkstoff **24** : 87-93 1966
- 8) 角谷和男・山田正, 茅原正毅 : 木材学会要旨 **18** : 119, 1968
- 9) 高橋 徹・山田 正 : 木材誌, **12** : 6-10, 1966
- 10) 谷口 麟・吉見 哲・原田 浩 : 木材学会要旨, **18** : 118, 1968

- 11) 山田 正 : 木材研究 **44** : 1-11, 1968
12) JEFFRIES, R. · JONES, D. M. · ROBERTS, J. G.
SELBY, K. · SIMMENS, S. C. and WARWICKER,
- J. O. : Cellulose Chem. Technol., **3** : 255-274,
1969

Summary

The behaviours of the shrinkage and creep-deformation under tensile loads during drying have been studied and discussed in these studies. The shrinkage-curves and tensile creep curves during drying for tropical woods used in this experiment are in similar behavior as those of *SIOJI*-wood in the previous report⁽⁴⁾. IR-spectra of drying-set wood (*HINOKI*) are shown in the same phenomena as those of shrinkage.