

連続熱圧による木材の表面強化*

往西 弘次^{**}, 福田 克伸^{***}, 後藤 輝男^{****}

Hirotsugu ONISHI, Katsunobu FUKUDA and Teruo GOTO
Surface-Densification of Wood by Continuous Hot-Pressing

1. 緒 言

木材はプラスチックとの複合体 (WPC) により、物理的および機械的性質は素材に比較して改質される。しかし、処理に伴う比重の著しい増加、製造価格の高騰など多くの問題点がある。したがって、比重増加が少なく、かつ優れた物性を有し、さらに素材に見られる加工性を維持した材質改良法を研究する必要がある。

著しい比重増加を与えないで、木材の表面硬さを増大させる方法が Elmendorf¹⁾ によって開発され、Tarkow²⁾ら、General Plywood Co.³⁾、又木ら⁴⁾は連続的に表層部のみを加熱圧縮し、表面硬度、表面光沢などを改良させる方法を報告している。また、Eriksson⁵⁾は、表層部を樹脂処理し「Skinpreg」と称して発表している。

本研究では、木材としての特質を大きく変化させないで、より高度な物性を付与させることを目的として、木材の表層部のみを熱ロール圧縮により永久変形させて、ち密な高密度化層を形成させると同時に、オレフィン樹脂フィルムで WPC 化し、表層 WPC 化表面強化材を作製した。また、素材の化粧効果を目的として、単板を接着しながら表面強化を行う表面強化複合材も作製し、これらの材料の物理的および機械的性質について検討した。

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材として、シトカスプルース (*Picea sitchensis*: 以下 スプルース) を用いた。また、表面強化複合材の作製においては、マカンバ (*Betula maximowicziana*:

以下 カバ) を化粧用単板として用いた。

スプルースは比重0.45、平均年輪幅 1.1mm の心材、板目板を、カバは比重0.63、厚さ 0.50mm のスライス単板を用いた。

2.2 表面処理剤

表面処理剤として、三菱油化製ポリプロピレンフィルム (MODIC P-30F: 以下 PP) を用いた。PP の厚さは 60 μ m、融点は 153 $^{\circ}$ C である。

2.3 表面強化材の作製方法

実験試料として、無処理材、熱圧のみの未処理表面強化材 (以下 コントロール) および表層部を熱圧と同時に WPC 化した PP 処理表面強化材を作製した。

コントロールおよび PP 処理表面強化材は Fig.1 に示した材面強化装置 (株式会社南製作所製) を用いて行った。この装置は本実験のために特別に設計、製作したものである。供試材を一對のホットローラーの間に通して、連続的に熱圧縮したのち、クーリングシュで冷却し、表面強化を行った。PP 処理表面強化材では、試料の表面を

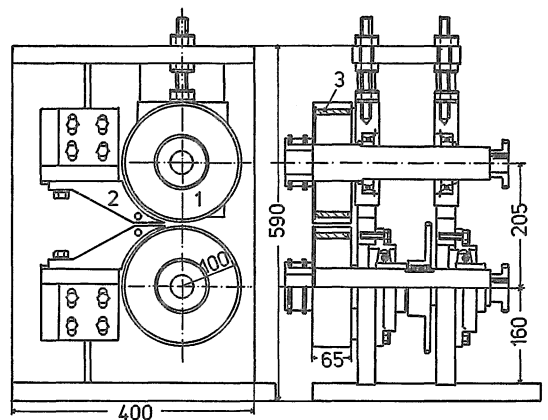


Fig. 1. Apparatus (schematic) for continuously densifying the surface region of wood. 1; Heated roller, 2; Water-cooled shoe, 3; Heater.

* 本報告を「本質材料の改良に関する研究 (第22報)」とする。第33回日本木材学会大会で発表 (1983年 3・4月, 京都)。前報「材料, Vol. 32, 909(1983)」を第21報とする。

** 附属演習林

*** 現在 住友林業 (株)

**** 改良木材研究室

1枚のPPフィルムで覆い、熱圧縮した。カバとスプリュースの接着は、無処理材では両面粘着テープ、コントロールとPP処理表面強化材では1枚のPPフィルムの熱溶融により行った。熱圧条件はロール温度；150℃および200℃、圧縮率；材厚の5%および10%、試料の送り速度；スプリュースでは5cm/min、カバースプリュース複合材では2.5cm/minとした。

3. 結果および考察

3.1 比重および比重傾斜

それぞれの表面強化材の全体の比重を Table 1 に示

Table 1. Overall specific gravity of surface-densified wood at 200℃.

| Species | Spruce | | Birch-Spruce | |
|-----------|--------|------|--------------|------|
| | 5 | 10 | 5 | 10 |
| Ratio(%)* | 5 | 10 | 5 | 10 |
| Control | 0.47 | 0.48 | 0.49 | 0.49 |
| PP | 0.48 | 0.48 | 0.50 | 0.50 |
| Untreated | 0.45 | | 0.46 | |

*; Pressing ratio to original thickness.

Table 2. Increase in specific gravity of surface-densified spruce at compression ratio of 10% in press to original thickness.

| | Temp.(℃) | Surface region* | Inner region** |
|---------|----------|-----------------|----------------|
| Control | 150 | 8.1 | 1.4 |
| | 200 | 9.8 | -2.6 |
| PP | 200 | 21.3 | -3.4 |

* 20% depth of specimen thickness from each side.

** 60% of leaving.

した。無処理材の比重はスプリュースで0.45、カバースプリュース複合材で0.46であり、表面強化材でも著しい比重増加を示さず、比重増加率はスプリュースで5.4~7.1%、カバースプリュース複合材で6.3~8.3%であった。また、処理条件による比重の相違も僅かであった。このように、これまでのWPCのように著しい比重の増加を示さなく、これは表面のみを高密度化する表層WPC化の特徴である。

次に、スプリュース表面強化材の厚さ方向における比重傾斜は軟X線写真を撮影し、島津製CS-920型高速薄層クロマトスキャナで測定した。

表面強化による比重の増加は表層から20%までの部分に見られたので、その部分を表面高密度化層、残りの60

%を中央部とした。Table 2 に表面強化材の表層部および中央部の比重増加率を示した。無処理材と比較して、中央部の比重はほぼ同じであるが、表層部においてはコントロールで8~10%、PP処理表面強化材で約20%比重が増大した。このように短時間熱圧により表層比重が増大する現象は素材^{2,4,6)}、中比重ファイバーボード⁷⁾、パーティクルボード⁸⁾などにも認められている。

クロマトスキャナの吸光度のピークからピークまでの距離を年輪幅とし、圧密化による年輪幅の変化を測定した。スプリュース表面強化材の年輪幅の減少は表層2年輪のみで、無処理材よりも10~20%減少し、中央部ではほとんど変化は認められなかった。

3.2 表面強化材の走査電子顕微鏡観察

表面強化による木材の表層部の組織の変形を日本電子製JXA-733型X線マイクロアナライザを用いて、走査電子顕微鏡観察をした。

Photo 1 はスプリュース(コントロール, 5%, 150℃)の表面組織である。熱圧により組織に座屈が観察され、永久変形している。半径方向の熱圧縮によるスギの細胞変形も仮道管細胞の壁厚の薄い早材部が圧縮され、圧縮率の増加により細胞壁へ折り重なるように座屈されることが報告されている⁹⁾。細胞壁の座屈は圧縮面に最も近い組織において起こるのでなく、年輪界や春材と夏材との移行部において認められた。

Photo 2 はスプリュースPP処理表面強化材(10%, 200℃)の組織である。PP処理により、樹脂は表面に付着しているのではなく、表面の2~3細胞にPPが浸透し、表層がWPC化されている。また圧縮による座屈はコントロールと同様に年輪界において認められ

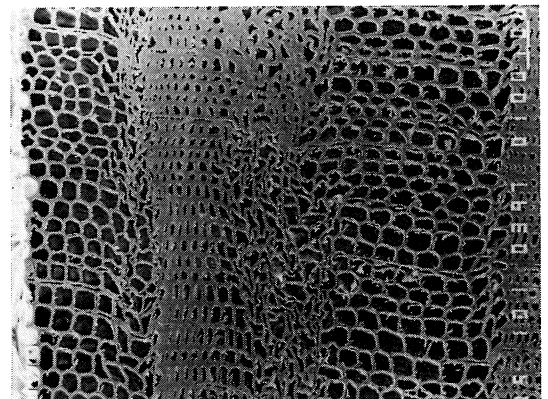


Photo 1. Surface-densified spruce (control) at condition 150℃ densifying temperature and 5% ratio of compression in press to original thickness.

た。

Photo 3 に表層部における PP の浸透状態を拡大した。圧縮面の仮道管はほとんど変形することなく、仮道管内こうに PP がほぼ完全に充てんされ、表層 WPC 化が明らかである。

Photo 4 はカバースプルース複合材の PP 処理表面強化材 (10%, 200°C) におけるカバ表面部を拡大したものである。PP の浸透はカバの道管と木繊維に見られた。また、カバにおいて顕著な座屈は認められず、主にスプルースで生じた。

PP の浸透性が良好なカバに対して、スプルースでは PP の浸透は少なく、表層の 2~3 細胞のみであった。したがって、座屈層まで PP が浸透しないことが多く、座屈層の樹脂による拘束が十分でなかった。今後座屈層

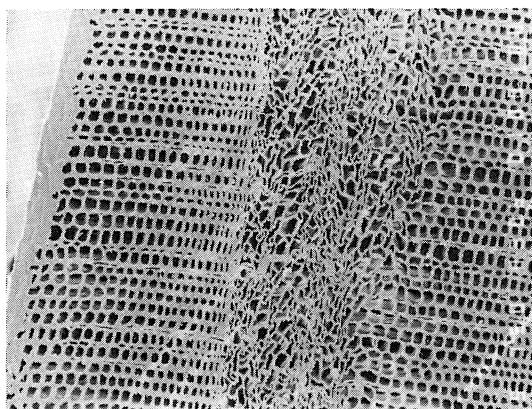


Photo 2. Surface-densified and simultaneously reinforced with polypropylene spruce at condition of 200°C densifying temperature and 10% ratio of compression in press to original thickness.

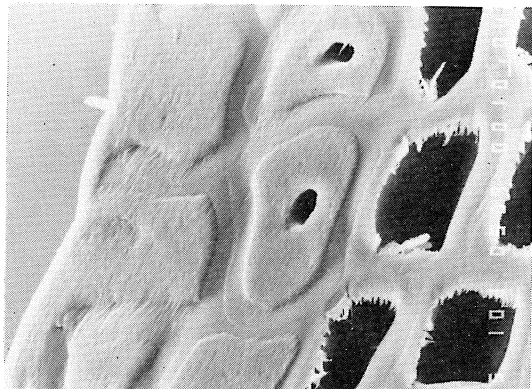


Photo 3. Polypropylene loading into tracheid lumina of spruce surface region which was densified and simultaneously reinforced with polypropylene.

まで WPC 化させる方法について検討する必要があると考える。

3.3 硬さ

表面強化材の表面硬さは JIS Z2117-63 に準じて、ブリネル硬さを測定した。スプルース表面強化材の硬さを Fig. 2 に示した。スプルース無処理材の硬さに比較して、コントロールで 10~15%, PP 処理表面強化材では約 30% 増大した。また、PP 処理表面強化材の硬さは無処理材およびコントロールの硬さに対し、危険率 1% で有意差が認められ、PP 処理の効果が明らかとなった。

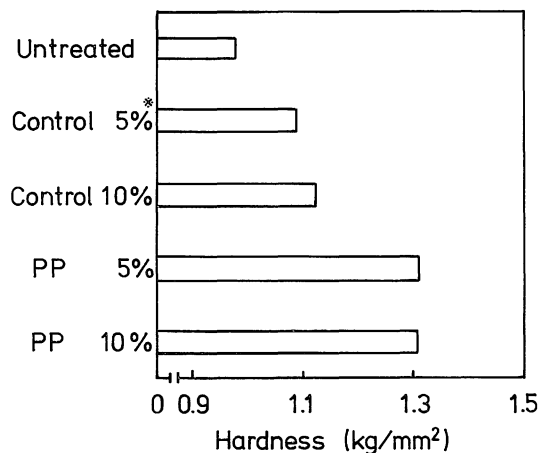


Fig. 2. Brinell hardness of surface-densified spruce at densifying temperature of 200°C.

*; Compression ratio in press to original thickness.

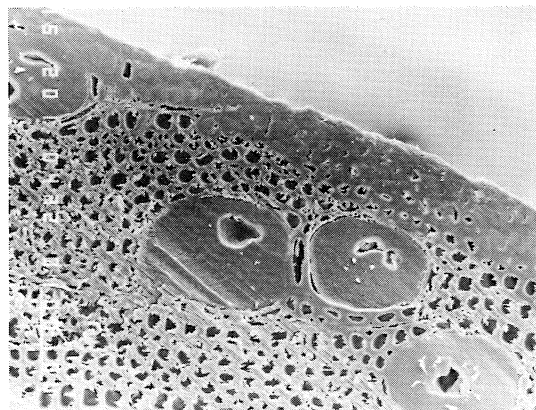


Photo 4. Polypropylene loading into vessel and wood fiber lumina of birch surface region which was densified and simultaneously reinforced with polypropylene at condition of 200°C densifying temperature and 10% ratio of compression in press to original thickness.

Table 3. Increase in abrasion resistance of surface-densified wood and composite material at densifying temperature of 200°C.

| Species | Spruce | | Birch-Spruce | |
|-----------|--------|-----|--------------|-----|
| | 5 | 10 | 5 | 10 |
| Control | 86 | 95 | 107 | 136 |
| PP | 576 | 763 | 207 | 240 |
| Untreated | 100 | | | |

*; Compression ratio in press to original thickness.

また、圧縮率の影響をみると5%および10%程度のわずかな圧縮率は硬さに及ぼす主因子でなく、主として熱圧温度および送り速度が影響することが認められている^{4,6)}。また、表層をWPC化することにより硬さは著しく増大し、その増加率は充てんポリマーのロックウェル硬さに依存する⁹⁾。カバースプルース複合材の硬さも無処理材に対してコントロールで約40%、PP処理表面強化材で70%増加した。

3.4 耐摩耗性

表面強化材の耐摩耗性はテーバー摩耗試験機を用いて測定した。使用摩耗輪はCS-17、荷重は1000gとし、500回転後の重量損失量から1000回転後の重量損失量(テーバー摩耗係数)を求めた。スプルースおよびカバースプルース無処理材の摩耗係数230および182をそれぞ

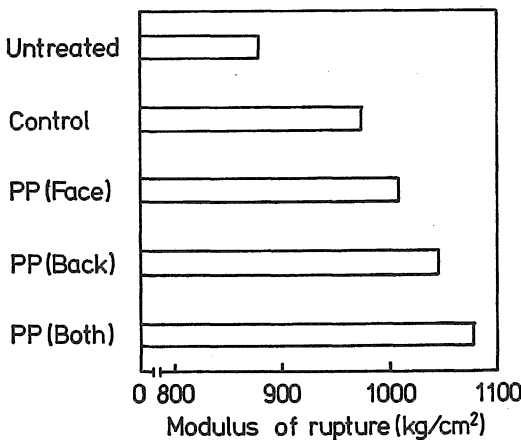


Fig. 3. Modulus of rupture in bending of surface-densified spruce at condition of 200°C densifying temperature and 10% ratio of compression in press to original thickness. PP (Face); Compression side in bending test is reinforced with polypropylene, PP (Back); Tension side in bending test is reinforced with polypropylene.

れ100として、表面強化材の耐摩耗性を相対比で表し、Table 3に示した。

コントロールの耐摩耗性はほとんど改良されないが、PP処理表面強化材では耐摩耗性が向上し、とくにスプルースのPP処理表面強化材の耐摩耗性は無処理材の6~8倍に達した。Redwoodの表面高密度化により耐摩耗性は10~30倍増大することが認められている²⁾。同時に、摩耗に伴う摩耗深さについて検討した結果、スプルースPP処理表面強化材では無処理材の1/8~1/12となった。

摩耗試験による重量損失量および摩耗深さから総合的に耐摩耗性を評価すると、PP処理は表面特性を顕著に向上させることが明らかとなった。

3.5 曲げ挙動

スプルース表面強化材の曲げ強度を Fig. 3に示した。PP処理表面強化材では曲げ強度に及ぼす表層WPC化の寄与を検討するため、荷重方向に対して圧縮サイドをPP処理したPP-Face面処理および引張サイドをPP処理したPP-Back面処理とを実験試料に追加した。

曲げ強度は無処理材と比較して、コントロール、PP処理表面強化材ともすべての条件において、危険率1%で有意差が認められた。また、PP処理間ではPP-Face面処理、PP-Back面処理、両面処理の順に曲げ強度は増加し、曲げ強度の向上には引張サイドをWPC化することが有効である。

Fig. 4にスプルースおよびカバースプルース複合材の曲げ強度を示した。カバースプルース複合材ではカバ単

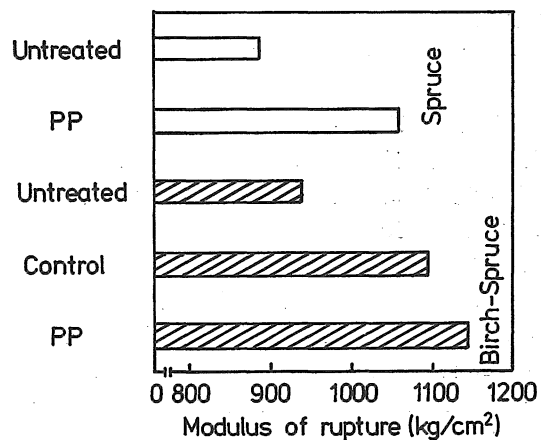


Fig. 4. Modulus of rupture in bending of surface-densified spruce and birch-spruce at condition of 200°C densifying temperature and 5% ratio of compression in press to original thickness.

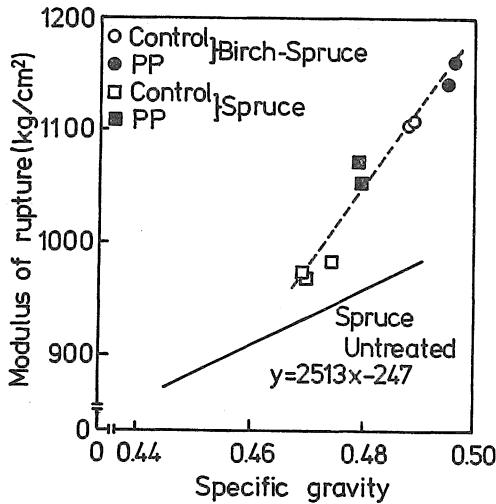


Fig. 5. Relation between modulus of rupture in bending and specific gravity.

板の接着効果により曲げ強度の増加が認められた。しかしながら、曲げ強度はスプルース表面強化材と同様に無処理材、コントロール、PP 処理表面強化材の順に増大し、PP 処理表面強化材では無処理材よりも21~24%曲げ強度が増大した。

スプルースの PP 処理表面強化材とカバー スプルース複合材のコントロールとはほぼ同一の曲げ強度を示し、有意差は認められなかった。これは曲げ強度の低いスプルースを表層 WPC 化表面強化することにより、カバー スプルース複合材と同等になることを示している。すなわち、曲げ強度に及ぼす表層 WPC 化の効果が顕著である。

一般に木材の比重と曲げ強度とは比例関係にある。したがって、表面強化材の曲げ強度について考察する場合熱圧処理による比重増加を考慮する必要がある。表面強化材の曲げ強度と比重との関係を Fig. 5 に示した。

図中の実線は本実験に使用したスプルース無処理材の比重と曲げ強度との回帰直線である。無処理材の平均比重および曲げ強度はそれぞれ0.45および 884kg/cm²であった。表面強化材の曲げ強度を比重に対してプロットすると、図中の破線のように無処理材と異なった直線を与えた。例えば、比重0.45の無処理材を PP 処理表面強化すると、比重は0.48、曲げ強度 1072kg/cm²の材料になる。比重0.48の無処理材の曲げ強度は 959kg/cm²であるので、PP 処理表面強化材の曲げ強度は同一比重でも約12%増大したことになる。同様に、カバー スプルース複合材の PP 処理表面強化材 (1063kg/cm²) では約16%曲げ強度が増大した。このように、同一比重の材

料を使用する場合、表層部が高密度化、WPC 化されている材料を用いる方が曲げ強度に関しては有効である。

曲げ弾性係数は無処理材、コントロールおよび PP 処理表面強化材ともほぼ同じで、有意差はほとんど認められなかった。

無処理材、コントロール、PP 処理表面強化材の順に曲げ仕事量は増大し、この現象は表面強化材の大きな特徴であると考えられる。これは応力-ひずみ曲線において、比例限から破壊までのひずみ量が無処理材に比較して表面強化材では著しく増大するためである。スプルースの PP 処理表面強化材の曲げ仕事量は無処理材の約2倍に達した。これらの関係はヤン力靱性係数からも明らかにされた。表面高密度化による曲げ仕事量の増加は合板、中比重ファイバーボードにも認められた。

次に、表面強化材の衝撃曲げ吸収エネルギーについて検討し、Fig. 6にスプルース無処理材とカバー スプルース複合材の結果を示した。スプルース表面強化材では無処理材、コントロール、PP 表面強化材の衝撃曲げ吸収エネルギーにほとんど有意差は認められなかった。しかし、カバー スプルース複合材では無処理材、コントロール、PP 処理表面強化材の順に衝撃曲げ吸収エネルギーは増大した。これは表層に接着したカバ単板とその WPC 化のためである。その結果スプルース無処理材よりも衝撃曲げ吸収エネルギーは1.3~2倍となり、すべての条件において危険率1%で有意差が認められた。衝撃試験により靱性が増加する現象はホルマル化などの化学処理においてほとんどみられなく、表層高密度化とその WPC 化の特徴であると考えられる。

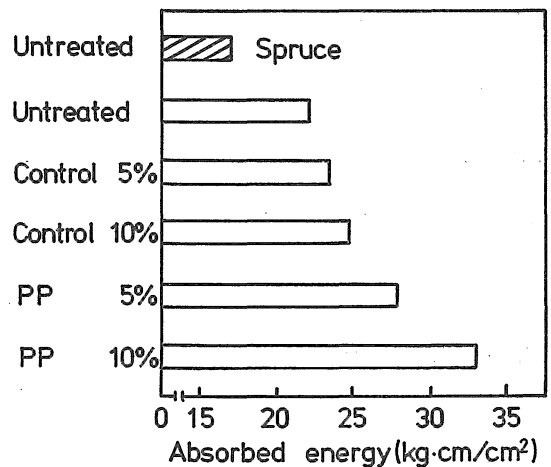


Fig. 6. Absorbed energy in impact bending of surface-densified birch-spruce at densifying temperature of 200°C.

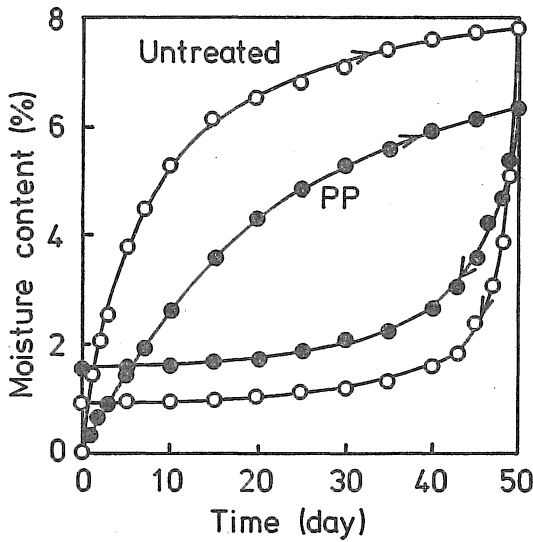


Fig. 7. Relation between moisture content of PP-surface-densified spruce and time. Densifying temperature; 200°C, Compression ratio in press to original thickness; 5%, Absorption; 60% to 93% (20°C), Desorption; 93% to 60% (20°C).

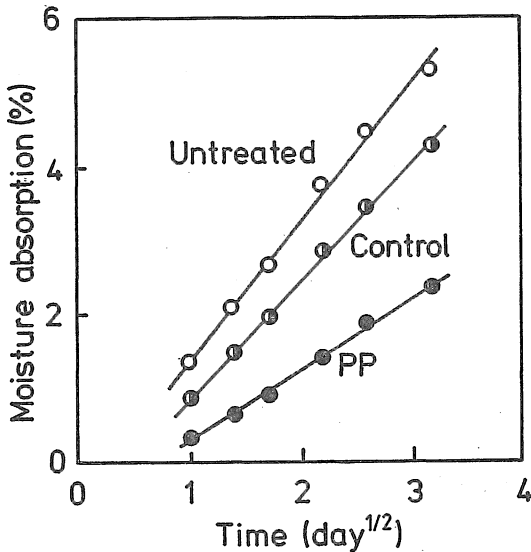


Fig. 8. Relation between moisture absorption of surface-densified spruce at condition of 200°C densifying temperature and 5% ratio of compression in press to original thickness and square root of absorption time in early stage of moisture absorption test.

3.6 吸湿・脱湿挙動

表面強化材の吸・脱湿挙動は 20°C において、60%

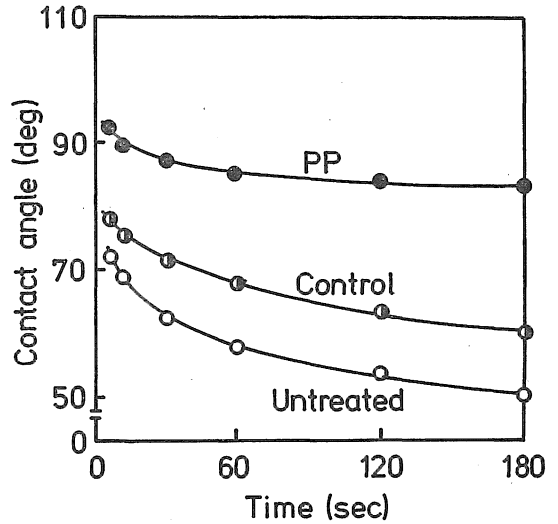


Fig. 9. Relation between contact angle on surface-densified spruce at condition of 200°C densifying temperature and 10% ratio of compression in press to original thickness of water and time.

RH→93% RH (吸湿) および93% RH→60% RH (脱湿) について検討した。

Fig. 7 にスプリュースの吸湿および脱湿率を示した。スプリュースの吸湿率は PP 処理表面強化することによって無処理材よりも抑制され、吸湿50日後においても約2%吸湿率は低下した。この効果は熱圧による表面高密度化にもよるが、主に表層 WPC 化のためであると考えられる。そこで、吸湿初期10日間における吸湿挙動を Fig. 8 に示した。無処理材およびコントロールの初期吸湿速度よりも PP 処理表面強化材のそれは遅く、吸湿の遅延効果が認められた。なお、初期吸湿率は時間の平方根に比例し、水分の拡散に律速されていることが明らかとなった。

表面強化材の吸湿に伴う厚さ方向の膨潤率はコントロールが最も著しく、PP 処理により表層部を疎水性にすると、膨潤率は低下するが、無処理材と同じかそれよりもいくらか大きく、寸法安定性は十分でなかった。これは圧縮により座屈した組織が完全に塑性変形していないので、吸湿過程で回復したためであると考えられる。したがって、圧縮率10%の表面強化材の方が圧密化の程度が大きいので吸湿に伴う回復量が著しく、5%圧縮材よりも膨潤率は増大した。田中も圧縮率が增大すると膨潤率は増加することを認めている。Tarkow らは吸・脱湿によるスプリングバックを測定し、Maple, Redwood 辺材では吸湿により高密度化層が減少し、高相対湿度下

でほとんどスプリングバックするが、Redwood 心材では細胞壁中に存在する抽出成分が圧密時に塑性変形を促進させるためスプリングバックが少ないことを報告している。PP 処理表面強化材のスプリングバックは表層 WPC 化のためコントロールよりも少なかった。

3.7 湿潤性

Fig. 9 にスプルース表面強化材の処理面における水滴 (5 μ l, 20°C) の接触角と経時時間との関係を示した。接触角は無処理材, コントロール, PP 処理表面強化材の順に高く, PP 処理表面では10秒後まで約90度の接触角を維持し, 表面は低エネルギー状態であることが明らかとなった。また, 接触角の経時変化も PP 処理表面が最も少ない傾向を示した。カバ表面についても同様な結果がえられた。

接触角と同時に水滴の幅および高さを測定した。無処理材およびコントロールでは経時変化とともに幅が増大し, 高さが減少した。一方, PP 処理表面強化材では高さはわずかに減少するが, 幅はほとんど変化しなかった。親水性材料では水滴の高さが減少し, 幅は増大する¹⁰⁾ので, PP により表層を WPC 化することによっては水性が向上し, ある程度疎水性をもつ材料を作製することができる。

4. 結 論

木材を短時間熱圧し, 表層部のみを高密度化し, さらに表層部を WPC 化した表層 WPC 化表面強化材を作製することにより, 材料自体の比重を著しく増加させないで, 木材の諸物性を向上させることができた。また, 表面単板の接着と同時に表面強化を行うことも可能であることが明らかになった。

熱圧条件としては, ロール温度が高いほど物性の向上が認められたが, 圧縮率は改質を目的とする物性により検討する必要がある。

今後, 良好な性質をもつ表面強化材をより有効に製造するための熱圧装置の開発と製造条件の確立が必要である。

本実験の実施にあたり, 実験試料をご提供いただいた住友林業(株), 朝日特殊合板(株), 三菱油化(株)また材面強化装置の設計, 製作にご尽力いただきました(株)名南製作所伊藤 匠氏, さらに高速薄層クロマトスキャナの測定にご助言いただきました食品化学研究室 平山 修教授に深謝します。

引 用 文 献

- 1) A. Elmendorf: US Patent 2591448 (1971).
- 2) H. Tarkow and R. Seborg: For. Prod. J., **18**, 104-107 (1968).
- 3) General Plywood Co.: 特許公報 昭37-375 (1962).
- 4) 又木義博, 中島慶二, 村瀬安英: 木材工業, **34**, 63-67 (1979).
- 5) L. Eriksson: 私信.
- 6) 往西弘次, 後藤輝男: 第10回木材の化学加工研究会シンポジウム要旨集, 11-16 (1980).
- 7) 福田克伸, 往西弘次, 後藤輝男: 第31回日本木材学会研究発表要旨集, 247 (1981).
- 8) K. C. Shen: For. Prod. J., **24**(10), 36-39 (1974).
- 9) 田中重盛: 昭和57年度岐阜県工業試験場業務報告, 8-11 (1983).
- 10) 梶田 照, 椋代純輔: 京都府立大学学術報告, 農学, No. 31, 108-116 (1979).

Summary

The physical and mechanical properties of the wood and composite materials which was surface-densified by roll-pressing were investigated.

The surface-densified wood (control) which was simply pressed at high temperature and the PP-surface-densified wood which the surface layer was simultaneously reinforced with polypropylene film (PP) were prepared. Also, the densifying and simultaneously gluing between spruce and birch veneer carried out by roll-pressing using same PP as a hot-melt type adhesives. The pressing conditions were as follows:

Roll temperature; 150 and 200°C, Ratio of compression in press to original thickness; 10%, Feed speed; 10cm/min (spruce) and 5cm/min (birch-spruce composite material).

The results obtained are as follows:

- 1) By varying roll-pressing conditions, the specific gravity gradient developed in the thickness direction of panels, and the increase in specific gravity of the densified layers

of 20% depth from each face side was 8-22% compared with that of untreated wood. The overall increase in specific gravity was only the ranges of 5.4 to 8.3%. The spring-wood cells around annual ring boundary were deformed, and the lumina of 2 to 3 cells from surface were filled entirely with PP during the pressing process.

2) The PP-surface-densification of spruce increased the Brinell hardness of about 30% and abrasion resistance in the ranges of 5.8 to 7.6 times, than untreated wood. The increases of the modulus of rupture and work to maximum breaking load in bending of PP-surface-densified spruce were about 21% and 80%, respectively, than untreated wood. Furthermore, the properties in impact bending were improved, though that of the wood modified chemically reduced generally with increase in the degree of treatment.

3) The PP-surface-densified wood had about 2% lower moisture content at condition of 20°C and 93% RH than untreated spruce. On the other hand, the swelling in thickness direction was slightly greater. The contact angle of water on PP-surface-densified wood was above 90°.