

木質系廃棄物の有効利用に関する研究 (2) — 樹皮ボードの開発とその特性 —

山内正信 吉留竜仁 山本英夫 進藤三幸

Study on utilizing of wood waste (2) — Development of bark board products and their properties —

Masanobu YAMAUCHI, Ryuji YOSHITOME, Hideo YAMAMOTO, Kazuyuki SHINDO

The utilization of the wood wastes such as Sugi (*Cryptomeria japonica*) and Hinoki (*Chamaecyparis obtusa*) bark discharged from wood-processing factory is requested from the standpoint of the resource reusing. Previously, we reported that Sugi and Hinoki bark contained several antifungal compounds including ferruginol, and were stable under natural conditions.

In recent years, the sick house syndrome, which is mainly caused by formaldehyde from building materials, has become a matter of concern. In 2003, the criteria on the formaldehyde emission of the Japanese Industrial Standard (JIS) were revised. Therefore, low-or non-formaldehyde emission products are required.

In this study, we attempted to develop the board that is not containing chemical substances. By hot press forming (10 minutes at 185°C, 2MPa), the board was made from bark (Sugi and Hinoki mixture) and lignin adhesive which was synthesized from the extracts of rice plant. This product satisfied the quality criteria of JIS such as water contents, flexional resistance and formaldehyde emission (F☆☆☆☆) etc. In addition, ferruginol was still stable under this forming condition. Considering these results, the board utilizing Sugi and Hinoki bark can be useful for building materials.

Keywords : bark, board, ferruginol, sick house syndrome, lignin adhesive

はじめに

当所では木質系廃棄物の再資源化、林業経営の健全化及び地域経済の活性化を図るなど循環型社会構築をめざす研究の一環として、平成14年度から木質系廃棄物の有効利用に関する研究を実施しており、前報^{1,2)}ではスギ及びヒノキ樹皮の抗菌性を利用した再資源化の可能性を調査した。その結果、樹皮中に抗菌成分であるフェルギノール³⁻¹³⁾を確認した。フェルギノールは樹皮中の抗菌成分としては比較的多量に存在することが明らかになり、自然条件下の熱及び光に対しては安定であったことから、樹皮の様々な製品原料としての可能性が示唆された。

近年、建材等から発散するホルムアルデヒドなどが原因であるシックハウス症候群が問題となっている¹⁴⁾。従来の建材用の合板は、フェノール樹脂を使用して形成された製品が多く、残存するホルムアルデヒドが放散し、

シックハウス症候群の要因となっていた。そのため、国においてはシックハウス対策を強化することを目的に、平成15年に化学物質を発生する建材の使用規制を中心とした建築基準法の改正を行い、JISとJASのホルムアルデヒド放散量の規格値を統一するなどホルムアルデヒド対策を総合的に推進している。このため、ホルムアルデヒド等化学物質の発散しない建材が強く求められている。一方で、従来の建材では残存するホルムアルデヒドにより建材の抗菌性が保持されていたため、これに変わる安全性の高い抗菌剤の必要性も高まっている。

今回、樹皮の有する抗菌性を利用した製品のひとつとしてアルデヒド類の発生がなく、健康に安全で、かつ環境に優しい樹皮ボードの開発を試みた。樹皮ボードの製作はホットプレスで行い、接着剤には県内のベンチャー企業が開発したホルムアルデヒドを発生しない天然成分由来の接着剤(イネ科植物から抽出したリグニンから合成)を用いた。

実験方法

1. 原料

スギ樹皮及びヒノキ樹皮は、乾式バーカーにより、はく皮されたものである。これをハンマークラッシャー（相互産業株式会社製 HC-2型）で約1cm片に粉碎し、2mm以下の粉末を除去したものを原料とした。

接着には河野新素材開発株式会社（取締役社長 河野剛）の開発したリグニン系接着剤を用いた。

2. 製造方法

2. 1. 試験片の作成

ホットプレス条件を検討するため、200W×200L×10T（mm）および180W×250L×10T（mm）板を次の条件で成型した。まず、乾燥重量比で樹皮100に対しリグニン接着剤10～30%になるように30%水溶液を調製し、スプレーガンで添加して手で混合後、フォーミングボックスに均一に撒き、マットフォーミングを行った後、1cm厚のスペーサーを用いて2.5MPaでプレス成型した。プレス温度は160～200℃の範囲で行った。

2. 2. 製品板の成型

910 W×910 L×10 T（mm）及び910 W×1820 L×10 T（mm）板の成型は次の条件で行った。乾燥重量比で樹皮100に対しリグニン接着剤10%になるように30%水溶液をスプレーガンで添加し、混合機で混合してフォーミングボックスに均一に撒き、マットフォーミングを行った後、1cm厚のスペーサーを用いて125℃（2分）で5回プレスし（蒸気抜き）、その後185℃（10分）、2MPaで成型した。

3. 物性試験

JIS A 5905及び5908に準じて、密度、含水率、曲げ強さ、はく離強さ及びアルデヒド放散量を測定した。

4. フェルギノールの定量

前報^{1, 2)}で単離したものを標準品として用い、ナフタレン-d8を内標準物質としてGC/MSにより定量した。GC/MSはHP 5980/5989Bを使用し、カラムはHP innowax (0.25mm×15m, 膜厚0.15μm)を用い、カラム温度は40℃→12℃/分→250℃（5分）とした。注入方法はスプリットレス、注入温度は250℃、イオン源温度は250℃、イオン化電圧70eVで測定した。

結果及び考察

1. プレス温度の検討

製品サイズ910W×1820Lの成型に先立って200W×200Lの試作板を作成し、プレス温度の検討を行った。プレス温度は160, 170, 180, 190及び200℃と

し、10分間2.5MPaでプレスした。また、試作板の性能評価はJIS規格のうち物性として最も重要と考えられる曲げ強さを測定して指標とした。表1に示したようにプレス温度の上昇に伴い曲げ強さが増すことが確認され、180℃以上においてJIS A 5905 MDF15の規格値である15.0N/mm²を満たしていた。一方で、樹皮に含まれる主要な抗菌成分であるフェルギノールは沸点が175℃であることから¹³⁾、高温で成型することによって揮発する可能性が考えられたため、その残存量を測定した。測定はボードの表面から3mm（表層）、表層を除いた中心部分（中層）に分けて測定した。その結果、図1に示したように今回の温度条件下ではフェルギノールの損失は確認されず、プレス温度200℃の表層においても原料中存在量に対してほぼ100%残存していた。これは、10分間のプレスでは、原料がプレス板の温度までは上昇していないためであると推察された。これらの結果、JIS規格を満たすために高温プレスを行った場合でも、抗菌成分は残存しており、十分な強度とともに樹皮そのものが含有している抗菌性を活かしたボードの成型が可能であることが明らかになった。従って、プレス温度は180℃～200℃の間が最適であると考えられた。

表1 プレス温度の違いによる曲げ強さの変化

| 加熱温度 (°C) | 曲げ強さ (N/mm ²) | 規格参考値 JIS A 5905 MDF15 |
|-----------|---------------------------|---------------------------|
| 160 | 13.8 | 15.0N/mm ² 以上 |
| 170 | 14.9 | |
| 180 | 18.2 | |
| 190 | 18.3 | |
| 200 | 17.7 | |

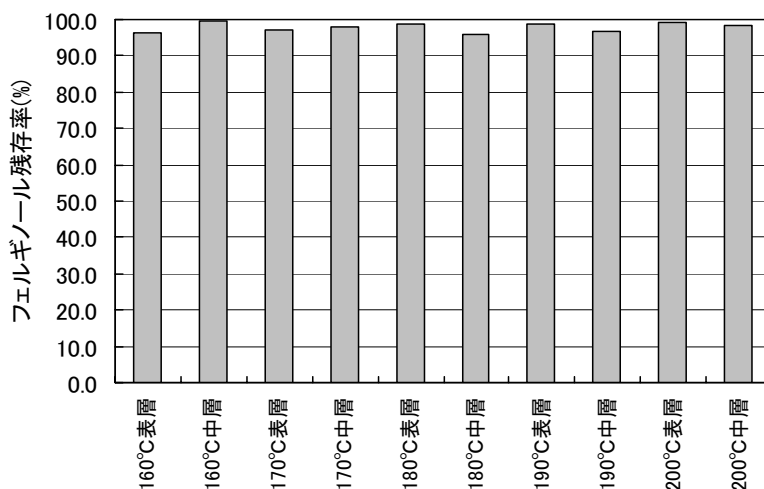


図1 プレス温度の違いによるボード中のフェルギノール残存率

原料中のフェルギノールを100とした場合の成型後の温度別表層及び中層のフェルギノール存在割合

2. 接着剤添加量の検討

180W×250Lの試作板を200℃で10分間プレス成形した。この際、リグニン接着剤を樹皮の乾燥重量100に対して10、15及び20%になるよう添加し、曲げ強さを指標として接着剤添加量の検討を行った。その結果、表2に示したとおり接着剤10～20%の間では曲げ強さに変化は認められず、すべてJIS A 5905 MDF15の規格値15.0N/mm²を満たしていたことから、使用する接着剤は10%で十分であると判断した。

表2 接着剤添加量による曲げ強さの変化

| 接着剤添加量 (%) | 曲げ強さ (N/mm ²) | 規格参考値 JIS A 5905 MDF15 |
|------------|---------------------------|---------------------------|
| 10 | 22.5 | 15.0N/mm ² 以上 |
| 15 | 22.6 | |
| 20 | 21.6 | |

3. 製品板の製作

予備試験として910W×910Lサイズで試作を行った。まず、200W×200L板の成型と同条件の200℃で10分間プレスしたところ、ボード表面に割れが発生した。この原因としてリグニン接着剤や原料である樹皮中に含まれる過剰の水分が抜けきらず亀裂が生じたものと考えられた。割れの生じたボードの表面を観察したところ、外部に抜けることのできない水により、樹皮中の成分が抽出されたように中心部での黒色変化が認められた。また、中心部に残存する加熱・加圧された水がプレス終了後、大気圧に戻る際に、水が急激に膨張し、亀裂が生じていることが推察された（図2）。

割れに対する水分の関与を確認するため、水分量の少ないジフェニルメタンジイソシアネート（MDI）（水分量15%含有）を用いて成型したところ、割れは生じなかった。リグニン接着剤の場合は、約1.4Kgの水を接着剤の溶解に用いたが、MDIでは接着剤中の水分が約0.14Kgであり、接着剤由来の水分量が10倍異なることが割れの原因であると推測された。

そのため、リグニン接着剤を溶解するための水分量を減らす必要があると考えられた。水分量を減らした高濃度のリグニン接着剤水溶液を調製してボードの製作を試みたところ、接着剤スプレー用のノズルに詰まりが生じたため、高濃度溶液では使用できなかった。他の方法として、接着剤溶解用の水分量はそのまま、成型前に水分除去工程を行うことを検討した。方法としては、本成型前に125℃で2分間の5回プレスを行うことで水分除去を試みた。上下125℃に設定したプレス機で加圧・常圧を繰り返すことでボードから水蒸気が発生し、除去効

果が確認できた。その後、185℃で10分間本成型を行った結果、ひび割れのないボードが成型でき、910L×1820Wにスケールアップしても問題なく成型できた（図3）。なお、プレス圧力除去の際に、ボードからの水蒸気発生を確認しながら徐々に圧力を弱める必要があり、一気に圧力を弱めるとひび割れの原因になった。また、今回使用した樹皮中の水分量は事前に測定し、20%前後であることを確認したうえで脱水条件を検討したが、樹皮中の水分量は保存状態によって大きく異なることが予想されるため、安定した品質を保つには樹皮中の水分量を一定にすることも重要であると考えられた。そのため、実際のライン上で製造する際には、まず、絶対乾燥状態まで乾燥し、適切な含水率になるように水分添加する必要があると思われた。

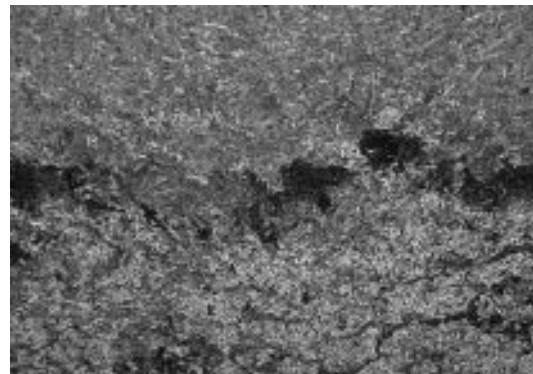


図2 ひび割れの生じた樹皮ボード表

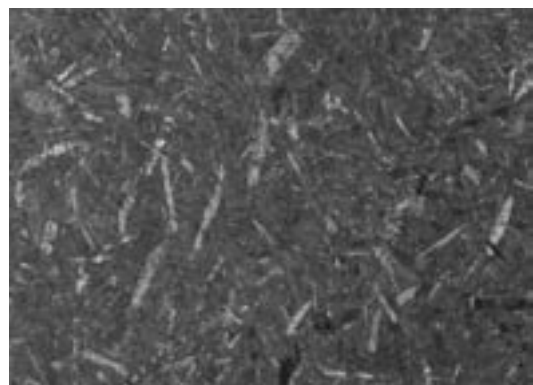


図3 水分除去処理を行った樹皮ボード表

今回確立した樹皮ボードの製造工程を図4に示した。

表3には樹皮ボードの性能を一覧表にまとめてみた。本樹皮ボードはJIS A 5905に規格化された繊維板（Fiberboards）のうち、密度により、ミディアムデンシティファイバーボード（MDF）に区分され、曲げ強さは15タイプに相当する性能を有していた。

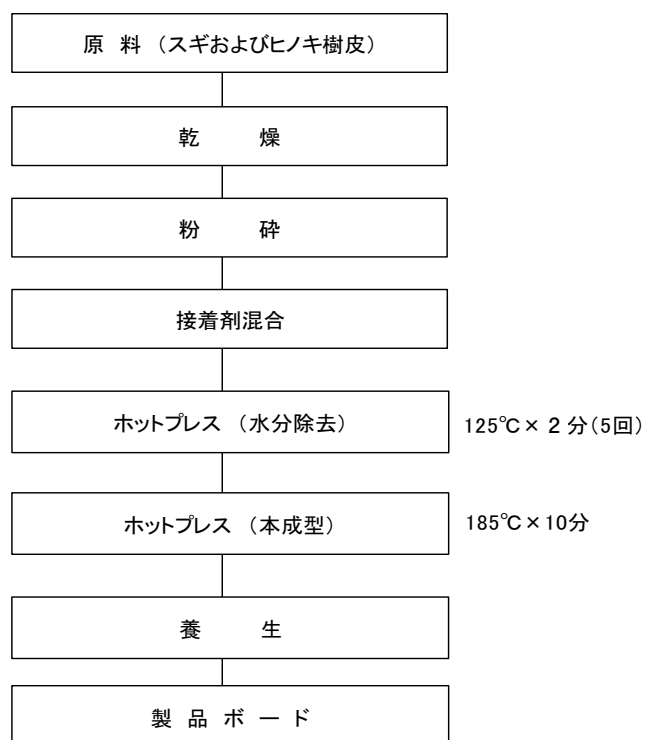


図4 樹皮ボードの製造工

表3 樹皮ボードの性能一覧

| 項目 | 単位 | 測定結果 | 規格参考値 (JIS A 5905 MDF15) |
|-------------|-------------------|------|-----------------------------|
| 密度 | g/cm ³ | 0.86 | 0.35以上 |
| 含水率 | % | 7.5 | 5以上13以下 |
| 曲げ強さ | N/mm ² | 19 | 15.0以上 |
| 曲げヤング率 | N/mm ² | 2200 | 1300以上(参考値) |
| はく離強さ | N/mm ² | 0.35 | 0.3以上 |
| ホルムアルデヒド放出量 | mg/L | <0.1 | F☆☆☆☆(平均値0.3以下, 最大値0.4以下) |
| フェルギノール量 | % | 0.5 | - |

また、ホルムアルデヒド放散量はJIS規格のうち最も厳しい規格であるF☆☆☆☆（平均値0.3mg/L以下、最大値0.4mg/L以下）を満たしており、内装材としてシックハウス対策に有効な素材であるといえる。なお、抗菌成分のフェルギノールはボード中に重量あたり0.5%含有されており、200W×200Lの試験片作成時と同様にホットプレスによる存在量の低下は認められなかった。

4. 表面処理

本樹皮ボードは建材用途としては十分な強度を有していたが、スギやヒノキの樹皮には心材部と比較すると粉

末に成り易い部分が多いことから、表面が比較的削れ易い性質が認められた。そのため、内装材等に使用する場合には表面処理の必要性が考えられた。今回、二次加工としては、ラミネートシートの圧着、ウレタン樹脂による表面塗装及び化粧板（スギ、ヒノキ及びメープルの薄板）の貼り付けを検討した。その結果、これらの処理上、特に問題点は見当たらず、樹皮ボードは良好な表面加工性を示すとともに表面処理により多くの用途が拓けるものと考えられた。図5に今回作製した樹皮ボードの一例を示した。

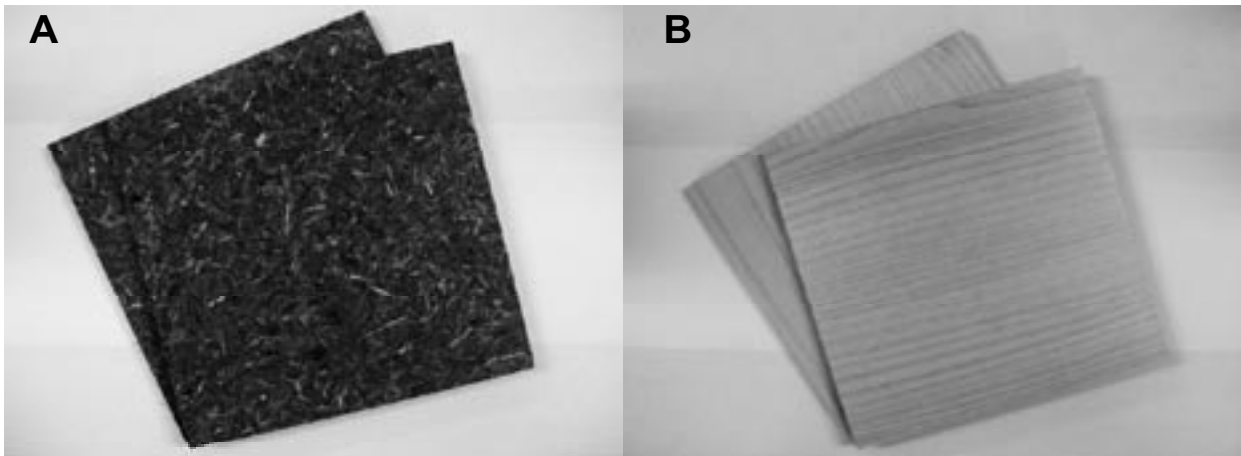


図5 樹皮ボード製品 (A, 表面未処理; B, ヒノキ薄板貼り付け処理)

まとめ

県内で多量に発生する木質系廃棄物のうちスギ及びヒノキ樹皮の有効利用の一環として、シックハウスの原因とされているアルデヒド類の発生がなく、健康に安全で、かつ環境に優しい樹皮ボードの開発を試みた。

接着剤に県内のベンチャー企業が開発したホルムアルデヒドを発生しないリグニン系接着剤を採用した結果、プレス時に水分除去の必要がある以外は特に煩雑な操作無しにボードの作成が可能であった。また、このボードはホルムアルデヒド放散量では最も厳しい基準であるF☆☆☆☆(平均値0.3mg/L以下、最大値0.4mg/L以下)を満たしていた。さらに今回採用した成型条件においては樹皮の有する抗菌成分の損失は無く、樹皮が本来有する特性がボードにも活かされていた。また、表面加工性も良好であり、今後、広範囲における本樹皮ボードの利用が期待される。なお、本樹皮ボードについては、特許出願中である。

謝辞

原料のスギ及びヒノキ樹皮を提供いただいた久万広域森林組合久万事業所、接着剤を提供いただいた河野新素材開発株式会社、並びにボードの試作にあたり、技術指導いただいた木村化工機株式会社の関係各位に深謝いたします。

文献

- 1) 山内正信ほか：第12回環境化学討論会講演要旨集, 65 (2003)
- 2) 山内正信ほか：愛媛県立衛生環境研究所年報, 5, 51-57 (2002)
- 3) 小藤田久義ほか：木材学会誌, 47 (6), 479-486 (2001)
- 4) 羽成修康ほか：木材学会誌, 44 (5), 342-350 (1998)
- 5) 中島健ほか：木材学会誌, 26 (10), 698-702 (1980)
- 6) 河内進策ほか：木材学会誌, 37 (10), 971-975 (1991)
- 7) 松井隆尚ほか：木材学会誌, 47 (1), 58-2 (2001)
- 8) S. -T. Chang et al : *Holzforchung*, 53, 487-490 (1999)
- 9) P. Rudman : *Holzforchung*, 19, 57-58 (1965)
- 10) H. Fukui et al : *Agric. Biol. Chem.*, 42 (7), 1419-1423 (1978)
- 11) I. Muhammand et al : *Phytotherapy Research*, 6, 261-264 (1992)
- 12) L. Moujir et al : *Phytotherapy Research*, 10, 172-174 (1996)
- 13) 化学大辞典編集委員会：化学大辞典 7, 共立出版, 744 (1980)
- 14) 厚生省生活衛生局企画課：シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会, 中間報告書-第1回～第3回のまとめについて (2000)