

MDF 製造時の解繊条件の最適化に関する研究
Study on the optimization of defibration conditions
in MDF manufacturing.

2020 年 9 月

高澤 良輔
Takazawa Ryosuke

目次

緒論.....	1
第一章 既往の研究と本研究の目的	5
1.1 既往の研究	5
1.2 本研究の目的	13
第二章 蒸煮による木材チップの含水率及び化学成分の変化.....	14
2.1 実験方法	14
2.1.1 蒸煮モデル実験	14
2.1.1.1 供試材料およびその調製.....	14
2.1.1.2 蒸煮条件と換算含水率	17
2.1.2 細胞壁構成成分の分析	19
2.1.2.1 供試材料	19
2.1.2.2 ホロセルロールおよび α -セルロースの定量.....	19
2.1.2.3 Klason リグニンの定量	19
2.2 結果と考察	19
2.2.1 蒸煮による含水率変化.....	19
2.2.2 蒸煮による化学成分変化	25
2.3 本章の要約	28
第三章 チップの初期含水率及び蒸煮時間が MDF の物性に及ぼす影響.....	29
3.1 実験方法	29
3.1.1 供試材料およびその調整	29
3.1.2 解繊.....	29
3.1.3 解繊繊維形状の評価	33
3.1.4 MDF の成形.....	35
3.1.5 MDF の物性評価.....	36
3.1.5.1 曲げ試験	36
3.1.5.2 剥離試験	36
3.1.5.3 吸水厚さ膨張率および吸水率の測定	36
3.1.5.4 目視外観評価	36
3.2 結果と考察	36
3.2.1 解繊繊維形状.....	36
3.2.2 MDF の物性.....	44
3.2.2.1 曲げ強度	44
3.2.2.2 剥離強度	50
3.2.2.3 吸水厚さ膨張率および吸水率.....	50
3.2.2.4 表面性.....	50
3.3 本章の要約	57

第四章 解繊時加水による物性改善効果	58
4.1 実験方法	58
4.1.1 供試材料およびその調整	58
4.1.2 解繊と加水	58
4.1.3 解繊繊維形状の評価	61
4.1.4 MDF の成形	62
4.1.5 MDF の物性評価	63
4.1.5.1 曲げ試験	63
4.1.5.2 剥離試験	63
4.1.5.3 吸水厚さ膨張率および吸水率の測定	63
4.1.5.4 目視外観評価	63
4.2 結果と考察	63
4.2.1 解繊繊維形状	63
4.2.2 MDF の物性	70
4.2.2.1 曲げ強度	70
4.2.2.2 剥離強度	74
4.2.2.3 吸水厚さ膨張率および吸水率	74
4.2.2.4 表面性	74
4.2.3 加水処理のメリット, デメリット	74
4.3 本章の要約	82
結論	83
謝辞	85
文献	86
学会発表および報文の一覧	92
学会発表	92
報文	92

緒論

MDF (Medium density fiberboard) は、木材チップを細胞に近いレベルにまで機械解繊し、これに接着剤や撥水剤等を混合した乾式マツトを加熱圧縮し、成形される材料である。

MDF は木質材料、木質ボードおよび繊維板に分類される。木質材料とは、木材をいったんエレメントに分解し、それを再構成した材料であり、集成材、合板、LVL、繊維板、パーティクルボードなどエレメントの形状や構成の異なる様々なものが存在する。そのうち面材料である繊維板及びパーティクルボードを併せて、木質ボードと呼ばれている。繊維板は、木材チップを解繊し、板状に成形したものであり、古くから様々な分類、呼称が用いられてきた¹⁻⁹⁾。現在、わが国では日本工業規格 JISA5905 において、密度、用途、及び製法により、MDF、ハードボード及びインシュレーションボードに区分されている。そしてそれぞれに対し、形状、寸法、寸法の許容差及び品質の基準が規定されている¹⁰⁾。

木質ボードに共通する主な特徴として、製品面では製品寸法のバリエーションが広いこと、均質で異方性が少ないこと、そして製造面においては原材料選択の幅が広く、小径木、工場残廃材、建築解体材等を利用可能なこと¹¹⁾が挙げられる。

木質ボードである各種材料、パーティクルボード、インシュレーションボード、ハードボード及び MDF にはその構成や製法等にそれぞれ特徴がある。

繊維板と同様に木質ボードの一種であるパーティクルボードは、木材をハンマーミルなどで小片 (パーティクル) 化したものに、接着剤を添加し、熱圧成形した材料である³⁾。JIS においては、表裏面の状態、曲げ強さ、耐水性及びホルムアルデヒド放散量による区分が定められている¹²⁾。特徴として、建築解体材や小径材などからも製造でき、原材料に制約が少ないこと、厚い製品が製造可能であること、面内せん断弾性係数は合板の 2 倍以上あることが挙げられる。主な用途は、家具、木工、電機機器、建築材料である。

インシュレーションボード及びハードボードは、いずれも湿式製法により製造される。木材チップを機械解繊し、これを水中に懸濁させ、抄き上げて成形される。インシュレーションボードは乾燥によって成形され、ハードボードは熱圧プレスにより成形される。繊維間の主な結合力は、接着剤に加えて繊維のフェルト化、つまり繊維同士の絡み合いによるところが大きいいため、MDF と比較すると解繊繊維形状は大きく繊維束が多い。インシュレーションボードの密度の区分は、畳床用のタタミボードが 0.27 g/cm^3 未満、内装下地、断熱用の A 級インシュレーションボードが 0.35 g/cm^3 未満、外壁下地用のシーリングボードが 0.40 g/cm^3 未満となっている。また JIS において難燃性による区分が定められている¹⁰⁾。インシュレーションボードはその軽量性から、断熱、吸音性が高く、また調湿性能を有する。ハードボードは、建築、梱包用途で用いられており、密度の区分は 0.80 g/cm^3 以上とされている。JIS において、油、樹脂などの特殊処理及び表面の状態、曲げ強さ及び難燃性による区分が定められている¹⁰⁾。

ハードボードは、表面が平滑で硬く、曲げ加工を得意としており、自動車の内装材用途等に用いられる。

MDF は、上述の通り、木材チップを解繊した微細な繊維を再成形した材料であるが、乾式製法にて製造される。製品は、JISA5905 において密度の区分が定められており、家具、造作などに用いられる普通 MDF は密度 0.35 g/cm^3 以上であり、構造用途に用いられる構造用 MDF は 0.70 g/cm^3 以上、 0.85 g/cm^3 未満とされている。また表裏面の状態、曲げ強さ、接着剤、ホルムアルデヒド放散量及び難燃性による区分が定められている¹⁰⁾。MDF はその用途について、特にその加工性の高さや緻密な表面性を活かし、化粧シートや紙を貼るための化粧下地材として、具体的には家具や内装建材の用途に広く用いられてきている^{13,14)}。さらにこれらの木質ボードの中における MDF の優位性は、割れや裂けなどを生じにくいこと、加工性が高いこと、表面、側面ともに緻密であることである¹⁵⁾。

今日の MDF の源流にあたる繊維板工業は 1920 年代に誕生した。1926 年の米国における Masonite 法、そして 1932 年のスウェーデンにおける Asplund 法といった解繊手法の発明により近代化され、以降、発展してきた¹⁻³⁾。Masonite 法は、反応容器内に木材チップを入れ、数十気圧の高圧水蒸気を吹き込み、瞬間的に大気圧に放出して爆砕する手法である。Asplund 法は、高圧加熱により木材中のリグニンを軟化させた状態のままディスク型のミルにより連続的に解繊する手法である。現在の繊維板工業においても広く一般的にこの手法が採用されている。また当時の製造手法は、紙の製造と同様に、水中に懸濁、分散させたスラリー状の繊維を抄き上げて成形を行う湿式製法によるものだった。この手法は現在もインシュレーションボード、ハードボードの製造手法に採用されている。その後 1950 年代に、米国で繊維を乾燥した状態で成形を行う乾式製法が開発された。この乾式製法が今日の MDF の製造手法の原型となっている¹⁶⁾。製品として MDF が誕生したのは 1965 年で、米国のセロテックス社により製造された。国内では、1972 年にホクシン社が生産を開始したのが最初である。

繊維同士の結合方法は湿式製法と乾式製法で異なる。湿式製法ではリグニン、ヘミセルロースなどの木材成分が膠着剤として働き、繊維同士の絡みの効果も強い。従って添加される接着剤は比較的少量で補強剤として作用する。一方で MDF に適用される乾式製法では別途添加される結合剤の働きで繊維の結合が行われるため、湿式製法と比較して多量の結合剤を必要とし、結合剤に用いられる樹脂の性能、組成、添加量などでボードの物性が大きく影響される。木質ボード製造用の接着剤には、ユリア樹脂、メラミン樹脂などのホルムアルデヒド系樹脂接着剤が、コストや扱いやすさといった観点から用いられてきた¹⁷⁻¹⁹⁾。その後、気中へのホルムアルデヒド放散によるシックハウス症候群などの問題により、1997 年に厚生省がホルムアルデヒドの室内濃度指針値を策定して以降、製品の低ホルムアルデヒド化が急速に進んだ。非ホルムアルデヒド接着剤としてイソシアネート樹脂接着剤がその特徴を生かして多く用いられるようになった。

熱圧成形工程は、接着剤を塗布した繊維を所定の厚さに積層したマットを、熱をか

けながら圧縮し、繊維同士が密着した状態で接着剤を硬化させる工程である。1977年に登場した連続プレス（Küsters press）により、MDFの生産手法が飛躍的に進化した²⁰⁻²²。連続プレスは、スチールベルトでフォーミングマットを挟み、連続的に熱圧成形を行うことが可能で、従来の多段プレスではマットの挿入から締め込みまでに若干の時間のずれがあるが、連続プレスでは圧力と熱が同時に加わるため、接着剤の前硬化がなく表面密度の高い、厚さの正確なボードが製造可能となる。また製品寸法について特に長さ方向においては、多段プレスのように熱板寸法に依存することなく、任意に調整が可能となるため歩留まりが改善される。さらに熱圧成形前の繊維を積層したマットの挿入、熱板昇降、ボードの取り出しといった、製品の厚さに依らず発生していた非生産時間がなくなるため、非常に生産効率が高く、熱板やシリンダーといった重量物を間欠的に動かす必要がないため、運転動力も小さい。以上のことから現在ではMDFの製造では連続プレスが広く用いられている。

1965年の誕生以来、MDFの製造工場の数、生産量は年々増加の一途を辿り、2018年の各地域の年間生産能力は、欧州で27,614,000 m³、北米で5,829,000 m³、その他の地域で72,155,000 m³、合計105,598,000 m³となっている^{23,24}。中でも最大の生産国は中国であり、生産能力は45,548,000 m³となっている。このように事業環境としては、競合企業も多くなっており、今後もMDF産業を持続的に発展させていくために、MDFのさらなる需要を喚起する新たな用途開発が必要となる。

近年、我が国では、MDFの新たな需要として、従来はラワン材を主な基材としていたフローリング台板への適用が増加してきている²⁵。フローリング台板は部分的に強い荷重が作用し、また室内の環境変化に曝される用途であるため、圧縮強度や耐水性が必要となる。また2018年3月に耐力壁の改正告示が施行され、厚さ9 mmの構造用MDFが大臣認定を取得しなくても耐力壁として使用できるようになった。耐力面材は建物の躯体構造を支持し、屋内外の環境変化の影響を受ける用途であるため、一定以上の強度、耐水性を必要とする。これらのフローリング台板や耐力面材のような新しい用途においては、一般的な家具などに比べ、より高い強度や耐水性など従来よりも高い性能が求められる。今後もMDFの新たな用途への適用を進めていくためには、それぞれの用途における、これまでとは違った新たな要求性能に見合うよう、MDFの品質を継続的に改善、制御していくことが重要だと考える。

詳細は後段に記載するが、原材料、接着剤、製造方法、物性の改善など、MDFに関してはこれまでに多くの検討がなされている。MDFの各製造工程の中で、特に蒸煮及び解繊は、MDFの物性に影響を与える重要な工程と考えられていることから、種々の研究が行われてきている。Benthien²⁶らやXing²⁷らが示した結果などから、いくつかの樹種について、温度・圧力や蒸煮時間といった蒸煮の処理条件によって解繊繊維の形状が変化し、最終的なMDFの物性にも影響を及ぼすことが定性的には明らかになっている。しかしながら、蒸煮工程中に原材料である木材チップに生じる水分の変化挙動や、何によって解繊繊維の形状が変化して最終的なMDFの物性に影響するかに

については十分に明らかにされていない。

これまでに取り上げられていなかった蒸煮工程における木材中の水分や成分の変化、それらの変化と解繊繊維形状及び最終的な **MDF** の物性との関係性が明らかになれば、製造条件を最適化することによる **MDF** の物性の向上や安定性の改善、ひいては現行用途における製品品質向上への貢献や、これまでにない新しい用途への適用につながることを期待される。

本論文は四章で構成されている。第一章では、既往の研究や本研究の目的について明らかにした。第二章では、蒸煮により木材に生じる水分、成分の変化について検討した。第三章では、チップの初期含水率及び蒸煮時間が **MDF** 物性に及ぼす影響について検討した。第四章では、蒸煮直後、すなわち解繊直前に木材チップに対して水を添加する効果について検討した。全四章を通じて、**MDF** 製造時、特に解繊時における水分の解繊繊維形状及び **MDF** の物性への影響について考察を行った。

第一章 既往の研究と本研究の目的

本章では、MDF に関する既往の研究および本研究の目的について述べる。

1.1 既往の研究

MDF に関する研究はこれまでに数多くなされているが、研究内容は多岐にわたり、また Fig.1-1 に示すように、MDF の製造には、原材料である木材の収集、チップ化から出荷に至るまでに多数の工程があるため、以下、いくつかのテーマに分類して整理した。

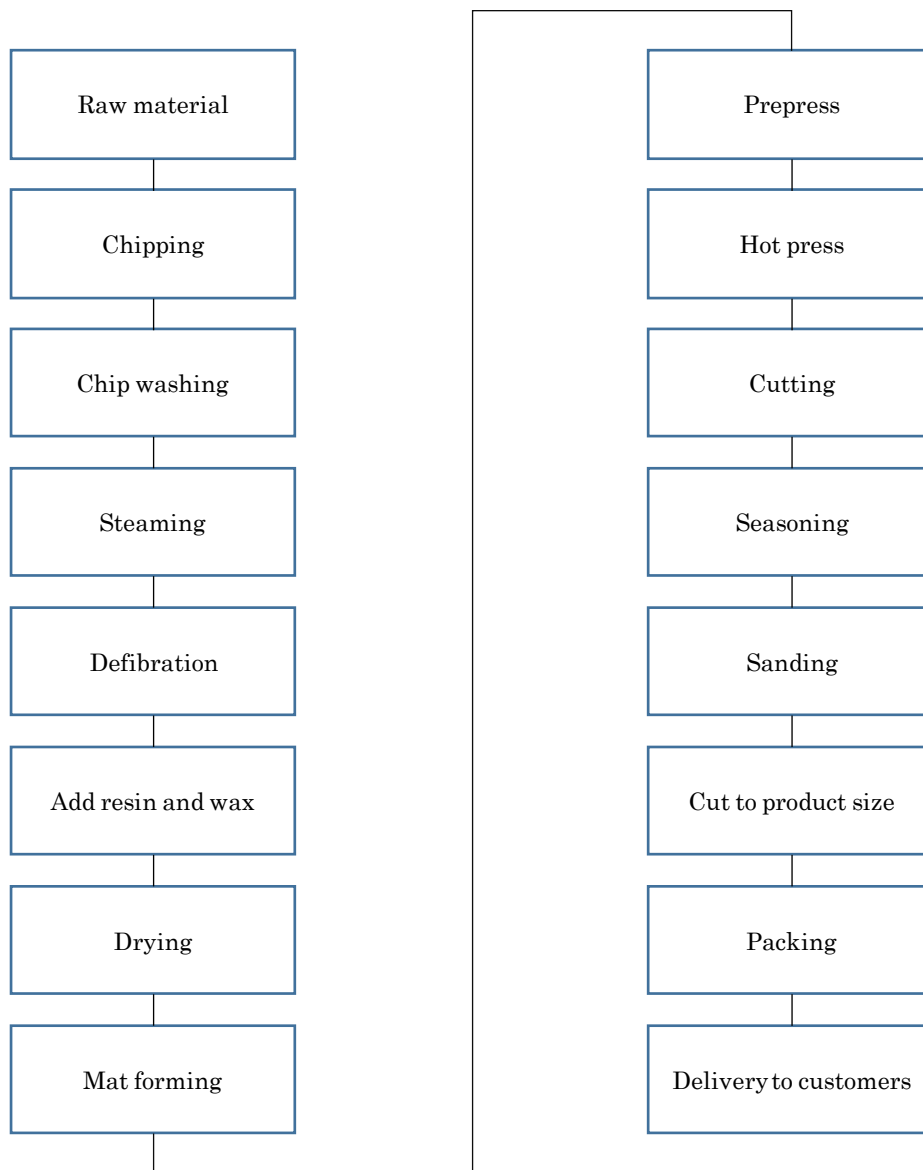


Fig.1-1 Standard process for commercial production of MDF.

<原材料に関する研究>

MDFの製造に用いられる原材料は、主に丸太や製材端材、建築解体材²⁸⁾などから製造される木材チップである。日本繊維板工業会によると繊維板製造に用いられる原材料使用割合は、その約半数が「合板・製材工場等残材」であると報告されている²⁹⁾。木材チップの原材料樹種は、幅広く、世界各国のそれぞれのMDF製造事業者が製造を行っている地域における森林資源と利用の状況によって大きく異なるものと思われる。原材料として用いる樹種がMDFの性能に及ぼす影響について、各国の研究者より多くの報告がなされている。例えばXingらは、カナダ東部の4樹種、ハイブリッドポプラ(*Populus canadensis*)、ホワイトスプルース(*Picea glauca*)、ジャックパイン(*Pinus banksiana*)、アカマツ(*Pinus resinosa*)を比較検討し、ホワイトスプルースの剥離強度が他と比較して低いこと、またジャックパインの吸水厚さ膨張率、吸水率が他よりも低く抑えられていることを示している³⁰⁾。またKartalらは、パイン(*Pinus nigra Arnold var. pallasiana*)、ビーチ(*Fagus orientalis* Lipsky)、オーク(*Quercus robur* L.)を原材料としたMDFのかび抵抗性、耐蟻性を比較し、オークが良好なかび抵抗性を示し、耐蟻性についてはいずれも抵抗性が認められなかったことを報告している³¹⁾。Parkらは、イタリアンポプラ(*Populus canadensis*)、ユーカリ(*Eucalyptus*)、ヘムロック(*Tsuga canadensis*)、針葉樹と広葉樹の混合繊維(針葉樹(ブラックスプルース、モミ):75%、広葉樹(ブナ):25%)を用いてMDFの物性を比較評価し、混合繊維を用いた場合に特に高い曲げ強度、剥離強度が得られたことを報告している³²⁾。これらの結果から、木材を解繊繊維というエレメントに分解し、繊維板に再構成した場合においても各樹種の特徴が、強度や耐水性などのMDFの性能差として発現することが明らかにされている。

木材が持つどのような特性がMDFの性能に影響を及ぼすかについても多くの研究がなされている。Nelsonは、フェノール樹脂接着剤を用いた乾式ハードボード製造の検討において、ボードの強度特性は、木材の比重、繊維のマットかさ密度との間に負の相関があり、一方で繊維のpHとの間には正の相関が認められたことを報告している³³⁾。またParkらも上述の研究において、解繊繊維長、繊維形状分布、繊維かさ密度、繊維の酸度(pH)がMDFの物性に影響を与えることを指摘している³²⁾。またXingらは、ポプラ(*Populus spp.*)、ホワイトスプルース(*Picea glauca*)、ジャックパイン(*Pinus banksiana*)、レッドパイン(*Pinus resinosa*)を用いて、同一条件下で解繊を行い、得られた繊維の形状、かさ密度、pH、アルカリ緩衝能が、ユリア樹脂接着剤を用いて製造されたMDFの物性にどのように影響するか調べ、原材料のpH、アルカリ緩衝能は解繊後の繊維では低下し、繊維のpHの変化は、使用するユリア樹脂接着剤の硬化速度に影響を及ぼし、特に接着性能が表れる剥離強度に強い影響を及ぼすことを報告している。また繊維形状については、上述のNelsonの指摘した傾向とは異なり、繊維のかさ密度が高いと、長繊維の間に短繊維が入り込む、より密な構造となるため、機械物性(曲げ強度、曲げヤング率、剥離強度)に好影響を及ぼすこと、また粗繊維の比率が増加すると機械物性に悪影響を及ぼすことを指摘している³⁴⁾。

非木質系バイオマスを MDF の原材料としての適性を評価する研究も数多くなされている。松本らは、モウソウチク (*Phyllostachys heterocycle var. pubscens*) の原材料化を検討し、竹繊維がトドマツ (*Abies sachalinensis*) と比較してより通直な長繊維であり、得られる MDF については、曲げ強度が低いものの剥離強度や吸水厚さ膨張率については良好な結果となったことを報告している³⁵⁾。Halvarsson らは、麦作で発生する麦わらの原材料化を検討し、麦わらの解繊繊維に対してユリア樹脂接着剤を 12.5~14.0% 添加した厚さ 12 mm の MDF を作製し、吸水厚さ膨張率 10% 以下という良好な結果が得られたことを報告している³⁶⁾。他にもサトウキビ搾汁後の残渣であるバガス³⁷⁾や稲作の副産物である稲わら³⁸⁾、大豆わら³⁹⁾の原材料化を検討した研究がある。一般的にこれらの非木質系バイオマスは、木材と比較して MDF の原材料適性に優れているとは言えないものも多く、工業的に利用していくためには課題があるが、未利用資源の有効利用という点で今後の活用が大いに期待される。

近年、事業の継続性、そして環境保護という観点から、人工的に植林された早生樹の MDF の原材料への活用が期待されており、多くの樹種について原材料としての適性が比較検討されている。例えば Krzysik らは、ブラジル産の植林木、ユーカリサリグナ (*Eucalyptus saligna*) を用いて厚さ 6, 13, 19 mm, 接着剤 (ユリア樹脂) 添加率 12% の条件で成形した MDF を評価し、いずれも ANSI 規格⁴⁰⁾の要求性能を満たしていたことを報告している⁴¹⁾。吹野らは、熱帯の植林木である 6 樹種、ターミナリア (*Terminalia calamansanai*)、キャンプノスペルマ (*Camptosperma brevipetiolata*)、アカシヤマンギウム (*Acacia mangium*)、ファルカタ (*Paraserianthes falcataria*)、メリナ (*Gmelina arborea*)、ユーカリデグラプタ (*Eucalyptus deglupta*) を用いて、厚さ 12 mm, 密度 0.65 g/cm³, メラミンユリア樹脂接着剤を添加率 15% の条件で MDF を作製し、評価した結果、すべての樹種で JIS 規格における 25 タイプの要求性能を満たしており、特にキャンプノスペルマ、ファルカタ、メリナ、ユーカリデグラプタが MDF の原材料としての適性が高いことを報告している⁴²⁾。このとき、解繊繊維の絡み合いの程度を表す形状係数 (派生する細毛を含めた繊維の支配面積を繊維の骨格部のみの面積で除した値) を算出し、MDF の剥離強度との間に負の相関があることを見出した^{16,42)}。また高澤らも熱帯早生樹の原材料適性について比較検討し、各樹種の中でアカシヤマンギウム (*Acacia mangium* Willd.) やファルカタ (*Paraserianthes falcataria*) を用いて作製した MDF が、コントロールとして設定したレッドメランティ (*Shorea* spp.) と比較して良好な曲げ強度、吸水厚さ膨張率を示したことを報告している⁴³⁾。

これらの研究の中で優れた物性を示した植林木樹種の中でも、特にアカシヤマンギウムは、良好な MDF の物性を示すという多くの報告がなされている^{44,45)}。アカシヤ種は東南アジアにおいて幅広く植林されており、中でもアカシヤマンギウムは特に多く、主に紙パルプ用途として 2013 年時点でマレーシア、インドネシア、ベトナムにおいて 1,350,000 ha の植林がなされている⁴⁶⁾。またアカシヤマンギウムは大面積の産業

植林だけではなく，熱帯荒廃地の森林再生にも有望な早生樹の一つとして植林されてきた^{47,48)}。Matsumura は，3～11 年生のアカシアマンギウムの単位面積 (ha) あたりの年平均林分材積生長量 (mean annual increment, MAI) が $20 \text{ m}^3\text{ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ 以上であると報告しており⁴⁸⁾，病害や連作による生産力の変化など課題はあるものの，非常に成長性の高い品種であると言える⁴⁹⁾。原材料である木材チップの調達安定性は MDF 事業の継続性において非常に重要である⁵⁰⁾。これらのことから，アカシアマンギウムはこれからの MDF の原材料として有望な樹種であると考え，本研究の主な検討樹種として採用した。

< 蒸煮，解繊に関する研究 >

飽和蒸気による木材チップの蒸煮は，解繊の前処理として古くから木質繊維板や紙パルプの製造に利用されてきた。この蒸煮処理では，木材中のヘミセルロース，リグニンが低分子化し，細胞間，あるいはマイクロフィブリル間の結合が弱くなり，次工程のリファイナーによる解繊処理で容易に解繊されることが指摘されている^{51,52)}。

MDF の製造における蒸煮処理の検討について，Kelley らはテーダマツ (*Pinus taeda* L.) を用いて蒸煮圧の化学成分への影響を調べ，高い蒸煮圧で抽出成分，グルコースの割合が増加し，キシロース，ガラクトース，マンノースの割合が減少することを報告している⁵³⁾。Benthien らは，ヨーロッパアカマツ (*Pinus sylvestris* Linnaeus) を用いて，3 種類の条件 (蒸煮圧 0.4 MPa + 蒸煮時間 1 分，蒸煮圧 0.8 MPa + 蒸煮時間 4 分，蒸煮圧 1.6 MPa + 蒸煮時間 8 分) で蒸煮を行った場合，高圧，長時間の蒸煮条件で，解繊繊維は長さ 1～3mm の短繊維の割合が増加し，MDF の曲げ強度，はく離強度が低下し，吸水厚さ膨張率が低く抑えられることを報告している²⁶⁾。また Benthien らは，蒸煮時間，蒸煮温度，磨砕盤の刃の間隔，樹種，リファイナーからの排出方法及びチップのサイズといった各種条件が解繊繊維長に与える影響を調べ，特に磨砕盤の刃の間隔と樹種が繊維長に対して最も強い影響を与えていることを示した⁵⁴⁾。また Xing らは，ブラックスプルース (*Picea mariana* (Mill.) Britton, Sterns and Poggenb) を用い，蒸煮圧 0.6～1.2 MPa，蒸煮時間 3～7 分で蒸煮を行った結果，蒸煮圧が曲げヤング率，吸水厚さ膨張率，吸水率，線膨張率に，一方，蒸煮時間は剥離強度に大きな影響を与えることを示した²⁷⁾。Xing らは，テーダマツを用いて原子間力顕微鏡を用いた繊維表面の観察により，蒸煮による解繊繊維への損傷の程度について評価を行った。解繊繊維の細胞壁断面の状態は，0.2～0.4 MPa の蒸煮圧では，目立った損傷は認められず，0.6～1.2 MPa ではナノサイズのクラックが，1.4～1.8 MPa では幅 5 μm 以上のマイクロサイズのクラックが発生したことを報告している⁵⁵⁾。また Labosky らは，レッドメープル (*Acer rubrum* L.) を用いて，蒸煮圧の変化など各種蒸煮条件を検討し，その中で特にチップの含水率が繊維や MDF の特性に影響を及ぼす因子であり，解繊前のチップに対する水分の添加により MDF の曲げ強度，曲げヤング率，剥離強度，吸水厚さ膨張率が改善したことを報告している⁵⁶⁾。

これらの研究から，いくつかの樹種について蒸煮，解繊条件より繊維形状が変化し，MDF の物性に影響を及ぼすということが明らかにされている。

MDF 製造における蒸煮、解繊工程は、紙パルプ製造における機械パルプの一種である TMP (Thermomechanical pulp) の製造と基本的に同様の手順で行われる。すなわち木材チップを所定の時間蒸気により加熱しリファイナーで解繊して繊維を得る。機械パルプにおける繊維化は、繊維の単離と、繊維表面を剥ぎ、叩いて柔軟にするフィブリル化の二つの作用が働いている⁵⁷⁻⁶⁰⁾。一般に強度の高いパルプは、繊維の単離及びフィブリル化が十分に行われ、繊維同士がお互いに絡まりあう状態となっている。

繊維の単離とフィブリル化には、木材の軟らかさが大きく影響する。繊維の単離について、繊維径が大きく、細胞壁が薄い組織を持ったチップは、解繊時に圧縮の力を受けた際に、各細胞が圧縮され、全体として大きく変形し、特に最外部の細胞の変形が著しく、隣接する細胞との間で破断が進む。一方で、繊維径が小さく細胞壁が厚い組織を持つチップは、全体の変形は小さく、最外部の細胞が外部よりかかる力の多くを負担し、細胞間層ではなく細胞壁の部分で破断を生じる。フィブリル化は、解繊時に繊維細胞が外力により押しつぶされ、回転する力が作用し、層状に構成される細胞壁の外側と内側での動きのずれからラメラの剥離を生じることで進む。このため、繊維の単離と同様、圧力を受けた際に変形の生じやすい、細胞壁が薄い繊維細胞の方が、フィブリル化が進みやすいとされている⁶¹⁾。

通常密度域 (0.6~0.8 g/cm³) の MDF においては、抄紙における水素結合のように繊維同士が密接に結合しておらず、大部分の結合は別途添加する接着剤に依存するため、フィブリル化による製品物性の改善の期待は低いように思われるが、Kojima が行った研究では、解繊繊維と解繊繊維をボールミルで粉砕して得たナノ化繊維を 8:2 の重量割合で混合して作製した繊維板は、解繊繊維のみで製板したものと比較して曲げ強度、曲げヤング率、剥離強度、吸水厚さ膨張率が改善し、これはナノサイズまでフィブリル化した繊維と解繊繊維の物理的な絡み合いによる効果であるという報告がなされている⁶²⁾。

<接着剤、添加剤に関する研究>

一般的な製造工程においては、接着剤は高圧の解繊設備から排出される解繊直後の繊維及び水蒸気が通過する配管 (ブローパイプ) にて添加され、その後、乾燥工程へと進む²²⁾。

古くから木材製品の製造に用いられているユリア樹脂接着剤⁶³⁾が、MDF の製造においても同様に広く一般的に使用されている。ユリア樹脂接着剤は、安価であること、硬化条件の自由度の高さ、硬化温度の低さ、硬化時の強度といった利点がある。一方で、フェノール樹脂接着剤やイソシアネート樹脂接着剤と比較すると、湿潤環境の、特に熱がかかる場合の抵抗性が不足している。

他の木材製品と同様、MDF においても用途、つまり要求性能によって用いられる接着剤は異なる。JISA5905¹⁰⁾における接着剤による区分でも、U タイプはユリア樹脂系またはこれと同等以上の接着剤、M タイプはユリアメラミン共縮合樹脂系またはこれと同等以上の接着剤、P タイプはフェノール樹脂系またはこれと同等以上の接着剤を

使用することが規定されている。タイプごとの主な用途は、U タイプでは家具、キャビネットなど、M、P タイプでは、床、内壁、外壁、屋根の建築下地や造作材などである。実際に、家具などの汎用用途ではユリア樹脂接着剤が、一方、一定の耐水性を必要とする窓枠、フローリング台板、構造用などでは、ユリアメラミン共縮合樹脂接着剤やイソシアネート樹脂接着剤が一般的に用いられる^{64,65)}。

国内ではシックハウス対策を強化するための建築基準法改正を受け、ホルムアルデヒド、揮発性有機化合物 (VOC) の放散が少ない接着剤の開発がなされてきた。特にホルムアルデヒドに関して、近年では製品のホルムアルデヒド放散量が JIS の F☆☆☆☆等級 (平均値で 0.3 mg/L 以下, 最大値で 0.4 mg/L 以下) を満たす接着剤が大半となっている^{11,66,67)}。

21 世紀に入った頃より、上述した製品からの遊離ホルムアルデヒドが人体に悪影響を及ぼす問題や接着剤原料のホルムアルデヒド生産に石油資源を使用する環境負荷の観点から、原料にホルムアルデヒドを含まない、地球環境への負荷の少ない接着剤の使用が期待されてきた。このため、特に天然由来の接着剤の研究が盛んに行われている。

近年では、大豆たんぱく質やキトサンの MDF 接着剤への適用化が検討されてきた。Zhang らは、稲わらを原材料として、大豆たんぱく質分離物(SPI)と尿素の分散液にエポキシ化オレイン酸(EOA)を加えたものを接着剤とし、接着剤添加率 12%、密度 0.75 g/cm³ の厚さ 5 mm の MDF を作製し、曲げ強度 22 MPa、剥離強度 0.8 MPa、吸水厚さ膨張率 25 %という物性を得た⁶⁸⁾。またカニやえびの殻に含まれるキトサンの接着剤への活用について、Ji らは、キトサンを主成分、グルタルアルデヒドを架橋剤としてそれぞれを比率 1 : 0.25 で配合した接着剤を用いて、接着剤添加率 12%、密度 0.80 g/cm³、厚さ 5 mm の MDF を作製したところ、得られた物性はそれぞれ曲げ強度 29 MPa、剥離強度 1.2 MPa、吸水厚さ膨張率 26 %であった⁶⁹⁾。また Ji らは、キトサンにリグノスルホン酸アンモニウムを混合した接着剤についても検討し、それぞれを比率 2 : 1 で混合した接着剤を用いて、添加率 6%、密度 0.80 g/cm³、厚さ 5 mm の MDF を作製したところ、曲げ強度 25 MPa、剥離強度 1.1 MPa、吸水厚さ膨張率 15 %の物性が得られたことを報告している⁷⁰⁾。

他にもユリア樹脂接着剤の使用量を低く抑えるための助剤として新しい接着剤を検討した研究がある。Savov らは、リグノスルホン酸カルシウム (0~20%) をユリア樹脂接着剤 (5%) と併用したとき、リグノスルホン酸カルシウムの添加率増加に従い MDF の吸水厚さ膨張率、吸水率が低減されることを示した⁷¹⁾。また Doosthoseini らは、硝酸や二クロム酸カリウムといった酸化剤を用いて繊維表面の活性化処理により繊維間の共有結合を形成することで、併用するユリア樹脂接着剤の使用量低減を検討した。硝酸が 8%、ユリア樹脂接着剤が 7%をそれぞれ添加したときに、最も良い MDF の物性が得られ、ANSI 規格⁴⁰⁾の 120-grade に適合したことを報告している⁷²⁾。

これらの天然由来の接着剤や非石油系の接着剤の検討の多くに共通した実用化への課題は、現行の化石資源由来の接着剤と比較した際の製品品質、製造適性、コストの改善にあると思われる。

接着剤の有効的な利用や添加技術についても研究が進められている。Grigsbyらは、蛍光ラベリングを用いた接着剤，ワックスの可視化技術により，接着剤とワックスの添加順による繊維状への分布の違いについて検討した⁷³⁾。ワックスを先に添加した場合，成形後のMDF内部の繊維表面でワックス液滴の凝集を生じ，接着剤との重なりが少なく，一方で接着剤を先に添加，もしくは混合して添加した場合，繊維上のワックスは接着剤の上あるいは混合して存在し，より細かい液滴の状態を保持することが明らかになった。Murtonらは，共焦点顕微鏡を用いた接着剤の可視化技術により，解繊後の繊維が通過する配管（ブローパイプ）における蒸気の流量や接着剤添加位置と繊維への接着剤被覆率の関係を明らかにした⁷⁴⁾。

<乾燥，熱圧成形に関する研究>

接着剤や添加剤を添加された解繊繊維は，気流乾燥設備により乾燥され，フォーミングマットが形成される。JIS¹⁰⁾によると，乾式製法ではフォーミングマットの含水率が20%以下とされている。その後，フォーミングマットは仮圧縮を経て熱圧プレスにより熱圧成形される。

Latibariらは，広葉樹繊維を用いて，繊維の乾燥温度のMDFの物性への影響を調べ，繊維の乾燥温度が110℃のとき，繊維の濡れ性が上がり，より高温で乾燥した場合と比べてMDFの曲げ強度，剥離強度値で良好な値を示したと報告している⁷⁵⁾。

熱圧成形時のマットの圧縮率について，張は，ジュート繊維と広葉樹繊維の複合繊維板を検討し，比重の高いジュート繊維の添加率を上げた場合やボードの密度を下げた場合にマットの圧縮率が低下し，繊維間の密着性が悪くなることから，ボードの曲げ強度の低下につながることを指摘している⁷⁶⁾。

Caiらは，ユリア樹脂接着剤を添加し，各含水率（10.8～18.5%）に調整した繊維で密度を変えてマットを作製し，熱圧成形時のマット芯層の温度及び内部蒸気圧の変化を調べ，マットの含水率とMDFの密度が内部蒸気圧とMDFの剥離強度に大きな影響を及ぼすことを明らかにした⁷⁷⁾。

Winandyらは，熱圧プレス工程における木繊維の熱分解の程度について，複数の広葉樹樹種を混合した繊維を用いて，プレス温度（180～220℃）及びプレス時間（180～2,500秒）の条件で検討し，マット温度が150℃を超えない範囲では熱分解はほとんど生じないことを報告している⁷⁸⁾。

Wangらは，熱圧プレスによる段階的な圧縮スケジュールを実験室レベルで検討し，得られるMDFの厚さ方向の密度分布について，ピークの位置と強度を圧縮スケジュールによって調整可能であることを報告している⁷⁹⁾。

<新たな性能の付与や評価技術に関する研究>

MDFに新たな性能を付与する技術として，木材繊維や成形後のMDFに対する化学処理や添加剤の活用が検討されてきた。

Rowellらは，アスペン（*Populus tremuloides*）を用いて，アセチル化処理，水蒸気

処理といった前処理を行った解繊繊維による MDF の低密度化を検討し、密度 0.2 g/cm^3 でも断熱材や梱包材、軽量芯材などの用途に対しては十分な強度をもった性能が得られ、前処理については特にアセチル化処理で非常に良い寸法安定性改善効果が得られたことを報告している⁸⁰⁾。

また岡本らは、マツ (*Pinus densiflora* Sieb et Zucc.)、スギ (*Cryptomeria japonica* D. Don)、そして国産針葉樹チップおよびラワンチップをそれぞれ 7 : 3 で混合したものをを用いて、熱圧成型時に蒸気噴射プレスを用いた高圧水蒸気処理による MDF への高耐水性の付与を検討した。その結果、高圧水蒸気処理と共に機械物性は低下するものの、極めて寸法安定性に優れた MDF が製造可能なことが明らかになった⁸¹⁾。

Ayrlimis は、主に床材などの表面化粧用に用いられるメラミン含浸紙の端材を添加剤として加えることで、得られる MDF の曲げ強度、剥離強度、吸水厚さ膨張率に改善が認められたことを報告している⁸²⁾。

Wang らは、ユーカリの繊維にバーミキュライトを所定の割合 (21.7~38.0%) で混合して MDF を成形し、難燃性を評価した。結果、バーミキュライト混合率の増加に伴い、限界酸素指数 (LOI, Limiting oxygen index) が増加し、難燃性の付与が可能であることを示した。但し MDF の曲げ強度及び曲げヤング率は低下したことを報告している⁸³⁾。

MDF の様々な品質に関する評価技術についても研究がなされている。

Bal らは、CNC (computerized numerical control, コンピュータ数値制御) マシニングセンタによる加工後の MDF に対して化粧シート貼りを行う際の加工適性として、MDF の表面粗さを検討した。MDF の密度、含水率、そして加工の切削深さが MDF の表面粗さに与える影響について検討した結果、表面粗さは MDF が低密度、高含水率、切削深さが深い場合増加にそれぞれ増加することを明らかにした⁸⁴⁾。

Chen らは、家具などで一般的に用いられているダボ接合について、強度の最適化を検討した。長さ 40 mm の木ダボ及び厚み 18 mm の MDF を用いた 2 箇所のだぼ接合について、実験とシミュレーションを行った結果、最大引張強度が得られた条件は、ダボ径 10 mm、ダボ径とダボ穴径の差 0.2 mm、ダボ穴の間隔が 64 mm であり、最大曲げ強度が得られた条件は、ダボ径 10 mm、ダボ径とダボ穴径の差 0.1 mm、ダボ穴の間隔が 48 mm であったことを報告している⁸⁵⁾。

Sedlecký らは、厚み 18 mm の MDF を用いて端部を機械切削した際の端部表面のうねりについて評価した。切削速度、MDF の供給速度、切削刃の種類を条件として検討し、切削速度が速い場合、また MDF の供給速度が遅い場合に MDF 端部表面のうねりの程度が軽減したと報告している⁸⁶⁾。

日本木材学会木質パネル研究会が行った木質パネル第二次耐久性評価プロジェクトでは、パーティクルボード、MDF、OSB、合板を対象として、国内 8 地域 (旭川、盛岡、能代、つくば、静岡、岡山、真庭、都城) での屋外暴露試験、屋内暴露試験、促進劣化試験が実施された⁸⁷⁾。MDF は、イソシアネート樹脂接着剤を用いた厚み 9 mm の製品と、メラミンユリア共縮合樹脂接着剤を用いた厚み 12 mm の製品が用いられた。

1~5年目までの屋外暴露の結果では、MDFは暴露機関が長くなると曲げ強度、剥離強度は共に緩やかに低下したが、非常に高い残存率を示し、これはMDFを構成する繊維の密着性が高く、雨水の浸入が防がれたためであると報告されている⁸⁸⁾。

1.2 本研究の目的

MDFに関する様々な研究がこれまでになされてきたが、中でも蒸煮、解繊工程は、MDFの主要な構成要素である木材繊維の形状や特性を決定し、最終的なMDFの物性に影響を与える重要な工程と考えられている。蒸煮、解繊について、これまでに様々な研究が行われてきている。その中で温度・圧力や蒸煮時間といった蒸煮の処理条件によって解繊繊維の形状が変化し、最終的なMDFの物性にも影響を及ぼすことが定性的には明らかになっている。しかしながら、蒸煮工程中に原材料である木材チップに生じる水分の変化挙動や、何によって解繊繊維の形状が変化して最終的にMDFの物性に影響するのかについては十分に明らかにされていない。特に工業的なMDFの製造に用いられる木材チップの解繊前含水率は、生材（高含水率）や建築解体材（低含水率）まで、原材料となる木材によって様々である。また木材チップの含水率は、蒸煮により逐次変化し、最終的に解繊繊維の形状やMDF物性に影響を及ぼす、非常に重要な要因であると考えられる。

そこで本研究では、MDF製造時に目的に応じて物性を最大化する、また工業製品として品質を安定化させる最適な解繊条件を設計できることを最終的な目標とし、蒸煮工程における木材中の水分や成分の変化、各種蒸煮条件で解繊したときの解繊繊維形状やそれを用いて作製したMDFの物性を検討・評価することで、最終的なMDFの物性に及ぼす水分の働きを明らかにした。

MDFの製造、販売という経済活動を継続するために、原材料である木材チップは、永続的に調達が可能で、かつ得られるMDFの品質が良好なものが必要となる。本研究では、短伐期で収量の高い早生植林木であり、また既往の研究においてMDFの物性面で良好な結果を示したアカシアマンギウムを主な供試材料として選定した。

第二章 蒸煮による木材チップの含水率及び化学成分の変化

蒸煮処理は、飽和蒸気の熱と水により木材中のヘミセルロース、リグニンを低分子化させ、細胞間、あるいはマイクロフィブリル間の結合を弱めることで、次工程のリファイナーによる解繊処理を容易にさせる役割を担っている。前章で述べたように、これまでに MDF の製造方法や物性について様々な研究がなされており、蒸煮処理については、Kelley らのように、高い蒸煮圧の条件下で蒸煮を行った場合の木材の化学成分への影響を調べた研究⁵³⁾や、また Benthien ら、Xing らのように、蒸煮圧や蒸煮時間など蒸煮処理の条件を変えた場合に得られる解繊繊維の形状や最終的な MDF の物性に生じる変化を論じた研究^{26,27)}は多く存在する。しかしながら、蒸煮処理により木材に生じる水分の変化に着目した研究や、その水分の変化と解繊繊維の形状や最終的な MDF の物性を関連づけた研究は未だなされていない。蒸煮工程で生じ得る木材中の水分の変化は、成分の変化と同様に、解繊時の繊維形状、最終的な MDF の物性に非常に大きな決定的な影響を与える因子であるものと考えられる。

本章では、種々の条件下で木材試料に対して蒸煮を行い、蒸煮によって生じる含水率及び化学成分の変化について検討を行った。なお、成分分析については後述する理由でアカシアマンギウムのみについて行った。

2.1 実験方法

2.1.1 蒸煮モデル実験

2.1.1.1 供試材料およびその調製

供試材料にはマレーシア産の 13 年生アカシアマンギウム (*Acacia mangium* Willd., 平均気乾密度 0.54 g/cm³) 及び秋田県産の 60 年生スギ (*Cryptomeria japonica* D. Don, 平均気乾密度 0.34 g/cm³) を用いた。これらのひき板から繊維方向 (長さ) 30 mm, 放射方向 (幅) 30mm, 接線方向 (厚さ) 2.5, 4.0, 8.0 mm の柾目面試料を調製した。試料の厚さについては、その差による水分、成分変化への影響を考慮し、実際の MDF 製造で用いられる切削・破砕チップの厚さに近い範囲として、2.5, 4.0, 8.0 mm を設定した。また実際の切削・破砕チップは形状にばらつきがあるが、形状差による影響を避けるため全て同一形状の製材試料を用いた。この試料に対し、重量を計測しながら筆やスポイトを用いて所定量の水を試料の面全体に均一に塗布し、ポリエチレン製のチャック付き袋に入れ密閉した状態で室内に静置することで、蒸煮を行う前に予め 4 種類の含水率 (目標含水率 10, 30, 60, 90%) に調製した。試料の調製条件 (調製後の実際の含水率など) を Table.2-1 および 2-2 に示した。スギ材については使用した原料形状の関係から、エンドマッチした厚さが 8.0 mm の試料を十分に採集できなかった。そのため Table.2-2 では試験を実施した気乾条件を除き記載を省略した。

Table.2-1 Specifications for the steaming tests (*A. mangium*).

Sample thickness (mm)		Acacia mangium											
		2.5mm				4mm				8mm			
Target MC*	Steaming	Density **	Standard Deviation	Weight ***	Actual MC	Density	Standard Deviation	Weight	Actual MC	Density	Standard Deviation	Weight	Actual MC
(%)	(min)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)
10	untreated	0.49	0.08	1.02	11.1	0.52	0.11	1.95	12.2	0.62	0.04	4.39	12.5
	1	0.55	0.06	1.18		0.52	0.12	1.89		0.62	0.04	4.43	
	3	0.56	0.11	1.19		0.50	0.10	1.86		0.63	0.01	4.54	
	6	0.57	0.15	1.26		0.54	0.12	1.96		0.60	0.04	4.31	
	12	0.51	0.07	1.10		0.54	0.13	1.99		0.58	0.06	4.19	
	18	0.53	0.10	1.15		0.50	0.06	1.87		0.60	0.03	4.31	
30	untreated	0.48	0.07	1.25	36.7	0.52	0.09	2.21	29.7	0.62	0.03	5.21	32.1
	1	0.56	0.08	1.37		0.51	0.11	2.17		0.62	0.04	5.15	
	3	0.53	0.10	1.33		0.50	0.09	2.12		0.64	0.02	5.36	
	6	0.53	0.11	1.30		0.54	0.12	2.25		0.59	0.04	4.83	
	12	0.51	0.09	1.26		0.52	0.11	2.20		0.57	0.06	4.72	
	18	0.52	0.08	1.23		0.51	0.06	2.16		0.61	0.03	5.08	
60	untreated	0.47	0.08	1.44	60.7	0.53	0.09	2.79	62.1	0.62	0.05	6.31	60.2
	1	0.57	0.09	1.79		0.55	0.09	2.80		0.62	0.03	6.27	
	3	0.54	0.10	1.63		0.52	0.10	2.72		0.63	0.01	6.42	
	6	0.52	0.10	1.64		0.51	0.13	2.81		0.59	0.05	5.96	
	12	0.51	0.09	1.59		0.48	0.10	2.50		0.57	0.07	5.70	
	18	0.54	0.05	1.62		0.52	0.06	2.77		0.62	0.02	6.76	
90	untreated	0.48	0.15	1.81	95.7	0.59	0.07	3.66	95.4	0.60	0.08	6.96	87.2
	1	0.63	0.04	2.32		0.63	0.01	3.73		0.60	0.02	7.23	
	3	0.49	0.13	1.83		0.56	0.08	3.51		0.62	0.03	7.50	
	6	0.63	0.02	2.36		0.64	0.01	3.75		0.57	0.13	6.92	
	12	0.55	0.14	2.07		0.55	0.07	3.40		0.56	0.09	6.75	
	18	0.58	0.12	2.20		0.60	0.08	3.60		0.62	0.03	7.35	

*MC: Moisture content.

**Density at air dry condition. Average value for 3 samples.

***Sample weight after seasoning. Average value for 3 samples.

Table.2-2 Specifications for the steaming tests (*C. japonica*).

Sample thickness (mm)		Japanese cedar											
		2.5mm				4mm				8mm			
Target MC*	Steaming	Density **	Standard Deviation	Weight ***	Actual MC	Density	Standard Deviation	Weight	Actual MC	Density	Standard Deviation	Weight	Actual MC
(%)	(min)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(%)
10	untreated	0.34	0.01	0.79	9.5	0.33	0.01	1.21	9.3	0.33	0.02	2.60	9.3
	1	0.32	0.01	0.71		0.33	0.01	1.23		0.33	0.01	2.34	
	3	0.34	0.01	0.81		0.34	0.01	1.26		0.33	0.01	2.40	
	6	0.34	0.01	0.80		0.33	0.01	1.23		0.34	0.01	2.38	
	12	0.35	0.02	0.82		0.34	0.02	1.25		0.33	0.01	2.36	
	18	0.33	0.01	0.72		0.33	0.01	1.25		0.33	0.01	2.35	
30	untreated	0.33	0.00	0.87	19.6	0.33	0.01	1.33	21.3				
	1	0.33	0.02	0.82		0.34	0.02	1.33					
	3	0.34	0.01	0.89		0.34	0.01	1.38					
	6	0.34	0.01	0.87		0.33	0.01	1.37					
	12	0.35	0.01	0.84		0.34	0.02	1.41					
	18	0.33	0.01	0.78		0.34	0.01	1.38					
60	untreated	0.34	0.01	1.06	50.5	0.33	0.01	1.70	50.1				
	1	0.34	0.01	1.04		0.33	0.01	1.72					
	3	0.35	0.01	1.05		0.34	0.01	1.68					
	6	0.34	0.01	1.07		0.34	0.01	1.71					
	12	0.34	0.01	1.06		0.34	0.02	1.75					
	18	0.33	0.01	1.03		0.33	0.01	1.77					
90	untreated	0.34	0.02	1.25	76.1	0.33	0.01	2.00	76.9				
	1	0.34	0.00	1.25		0.33	0.01	2.03					
	3	0.34	0.01	1.28		0.33	0.01	2.02					
	6	0.35	0.01	1.32		0.34	0.02	2.04					
	12	0.33	0.01	1.22		0.34	0.02	2.02					
	18	0.33	0.01	1.20		0.33	0.01	1.98					

*MC: Moisture content.

**Density at air dry condition. Average value for 3 samples.

***Sample weight after seasoning. Average value for 3 samples.

2.1.1.2 蒸煮条件と換算含水率

蒸煮実験における換算含水率の変化についてアカシアとスギを比較すると、プロット数がアカシアの方が多く、また結果の傾向もはっきりしているため、結果を良く説明できるものと考え、成分分析はアカシアについてのみ実施した。Fujii らが、リグニンの含量や化学的性質、そして高温高圧の飽和水蒸気で処理された際の分解挙動は樹種により異なることを報告している⁸⁹⁾が、今回の実験では、サンプルロットや操作のばらつきを考慮して、アカシアとスギが同等であると判断した。

蒸煮は高温、高圧条件下で行われるため、装置内にある木材チップの状態を知るとは困難である。今回、実験室レベルで簡易的に蒸煮を行うことのできる小型の実験装置 (Fig.2-1) を考案した。装置の作製にあたり、蒸気の導入・排出を迅速に行えるように容器を小型化し、操作を手動のボールバルブ制御にした。そして蒸煮が終わった後の試料を素早く取り出せるように手動で開閉可能なヘルール継ぎ手を採用した。また実験手順として、所定時間の蒸煮が終わった後、試料中の水分の変動をなるべく少なくするために圧力容器から取り出した試料は速やかに秤量びんに移し、常温まで冷却後、重量を測定した。

蒸煮は本実験装置を用いて蒸気ゲージ圧力 0.7 MPa (約 170°C)、蒸煮時間 1~18 分で行った。各条件につき試料数は 3 とした ($n=3$)。蒸煮により木材構成成分の分解、脱離を生じる可能性がある。その場合、試料中の水分量を試料全乾重量で除して算出する、通常含水率の算出式に従うと、含水率の変化に加えて木材構成成分の分解、脱離の影響も受けてしまうことが懸念される。ここでは含水率の変化のみを精度よく捉えるために、蒸煮後の含水率は、未蒸煮試料を基にした換算含水率を適用した。換算含水率は次式により算出した。

$$\text{換算含水率 (\%)} = \frac{(W_2 - W_0)}{W_0'} \times 100$$

$$W_0' = \frac{W_1}{100 + Mc} \times 100$$

ここで W_0 を蒸煮後試料全乾重量、 W_1 を蒸煮前試料重量、 W_2 を蒸煮後試料重量、 Mc を未蒸煮エンドマッチ試料から算出した蒸煮前含水率、 W_0' を Mc から算出した試料全乾重量とした。

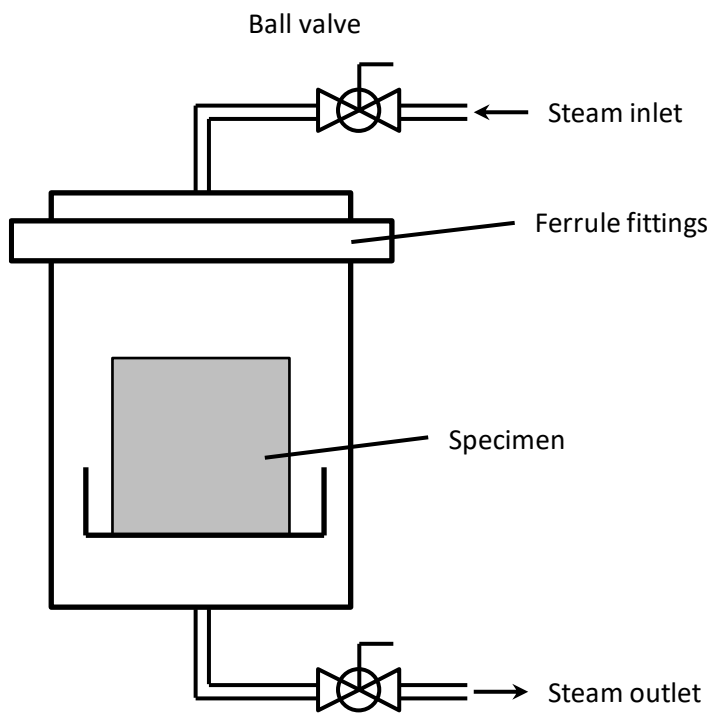


Fig.2-1 Device for the steaming test.

Notes: Top; overview of device, Bottom; schematic diagram.

2.1.2 細胞壁構成成分の分析

2.1.2.1 供試材料

蒸煮試験を行ったアカシアマンギウムの試料を振動ボールミルで粉碎して木粉とした。木粉はステンレスふるいを用いて篩目 200 μm 通過分かつ 100 μm 非通過分に分級し、得られたものをソックスレー還流式抽出器（エタノール・ベンゼン混液（1:2））で 6 時間脱脂処理したものを乾燥させて試料とした⁹⁰⁾。

2.1.2.2 ホロセルロースおよび α -セルロースの定量

ホロセルロースの定量は亜塩素酸塩法に依った。脱脂試料 0.5 g に蒸留水 30 ml，亜塩素酸ナトリウム 0.2 g，および氷酢酸 0.04 ml を加え 80°C の湯浴中で攪拌しながら 1 時間加温した。さらに亜塩素酸ナトリウム 0.2 g および氷酢酸 0.04 ml を加えて攪拌しながら 1 時間加温する処理を反復処理とし，これを 3 回行った。得られた白色残渣をガラスフィルター（GA100, Advantec, 東京, 保持粒子径 > 1 μm ）で吸引濾過し，冷水 200 ml，アセトン 20 ml を用いて洗浄し，105°C で恒量になるまで乾燥し秤量したものをホロセルロース量とした⁹⁰⁾。

20°C の恒温水槽中でホロセルロース 0.2 g を 100 ml 容のビーカーに入れ，17.5% 水酸化ナトリウム溶液を 5 ml 加え均一に湿潤させた。30 分後，蒸留水 5 ml を添加し，さらに 5 分放置し，蒸留水で洗浄，上記と同様に吸引濾過した。残渣に 10% 酢酸 8 ml を注ぎ 5 分間放置した後，蒸留水 500 ml で洗浄し，105°C で恒量になるまで乾燥し秤量し，得られた値を α -セルロース量とした⁹⁰⁾。

2.1.2.3 Klason リグニンの定量

Klason リグニンは硫酸法により定量した。脱脂試料 0.5 g に 72% 硫酸 7.5 ml を加えて 4 時間放置し，次に蒸留水 280 ml で 1 l 容の三角フラスコに移し変えて 4 時間煮沸した。放冷後，500 ml の熱蒸留水で洗浄し，予め重量を測定したガラスフィルター（GA100, 同上）で吸引ろ過した後，フィルターごと 105°C で恒量になるまで乾燥し秤量して Klason リグニン量を算出した⁹⁰⁾。

2.2 結果と考察

2.2.1 蒸煮による含水率変化

Fig.2-2 および Fig.2-3 に蒸煮時間と蒸煮後の換算含水率の関係を，Fig.2-4 および Fig.2-5 に単位面積あたりの吸水量の変化を示した。

アカシアマンギウム，スギともに初期含水率が 10，30，60% の試料については，蒸煮時間とともに含水率が増加した。蒸煮容器内は完全な閉鎖系ではなく，容器内に設置した試料は水蒸気の流入と蒸気ドレンの排出がバランスを保った飽和水蒸気に曝される環境にあり，試料の含水率が低い場合には試料表面から内部へと水分の濃度差に基づく水の拡散を生じて含水率が増加することが推測された。このとき，高密度であるアカシアマンギウムはスギと比べて含水率上昇の速度が遅い傾向があり，特に初期含水率が 10% の試料では顕著に差が現れた。木材中の水の拡散は，壁孔の数などの広

葉樹と針葉樹の組織構造の差による影響があり、材の密度と負の相関があると言われている⁹¹⁾。今回の結果から、蒸煮条件下でも同様の傾向があることが示唆された。Fig.2-2 で同じ初期含水率試料で比較すると、試料の厚さが大きいほど蒸煮による含水率の上昇が抑えられていた。一方、これらを単位面積あたりの吸水量で見ると (Fig.2-4)、各厚みの試料ともほぼ同様の挙動を示した。このとき、試料の木口面の見かけの表面積は厚さ 2.5 mm と 8 mm でそれぞれ約 150 mm²、480 mm² と 3 倍以上の差があるにも関わらず、単位面積あたりの吸水量の差が小さいことから蒸煮時の吸水量は表面積に依存すること、表面の異方性による差は小さいことが推測された。

一方で、初期含水率が 90% の試料については、アカシアマンギウム、スギともに多くが蒸煮開始初期 (1 分) に含水率が減少し、その後の蒸煮 (3~18 分) においても変化は小さく、漸減する傾向となった。高含水率試料の場合、蒸煮開始初期においては試料最外部位に存在する水が高温に曝されることで蒸散するが、試料外部環境が安定 (≒ 水蒸気による飽和) すると、試料と環境間の水分濃度差が低含水率の試料に比べ小さいため変化が小さくなるものと推測された。

以上の実験結果から、本実験用に考案した蒸煮実験装置を用いることにより、蒸煮による含水率変化挙動を精度よく捉えることができるものと推察された。

なお、本実験では、蒸煮後の含水率が最も低くなる初期含水率 10%、蒸煮時間 3 分という条件においても、蒸煮後の換算含水率は 36% と繊維飽和点以上となった。ここで高村らの示した木材主要成分の含水率と熱軟化温度の関係⁹²⁾に従い軟化温度は低下しているものと考えられる。しかし工業生産の現場では、例えば初期含水率が 10% のような低含水率チップを短時間蒸煮の後に解繊した場合、未解繊の繊維束が多く発生し、MDF 成形後にシート貼り加工を行った際、繊維形状が表面に現れるなど問題が生じている。このことから、温度や時間の条件により軟化の程度が十分ではない可能性や、また得られた蒸煮後の換算含水率は試料全体の平均値であり、試料内部における水分の分布は一樣ではないことが予想されるため、水分の影響は否定できないものの、解繊の程度には木材成分の軟化条件 (温度・含水率) だけではなく、他の機構も関与していることが推測された。また低初期含水率試料は蒸煮によって含水率が増加し、長時間の蒸煮を行うことで各初期含水率の差は小さくなるが、実際の MDF 製造において現実的な蒸煮時間、すなわち 3~6 分程度では、初期含水率差に起因する含水率の差が依然として存在することが確認された。

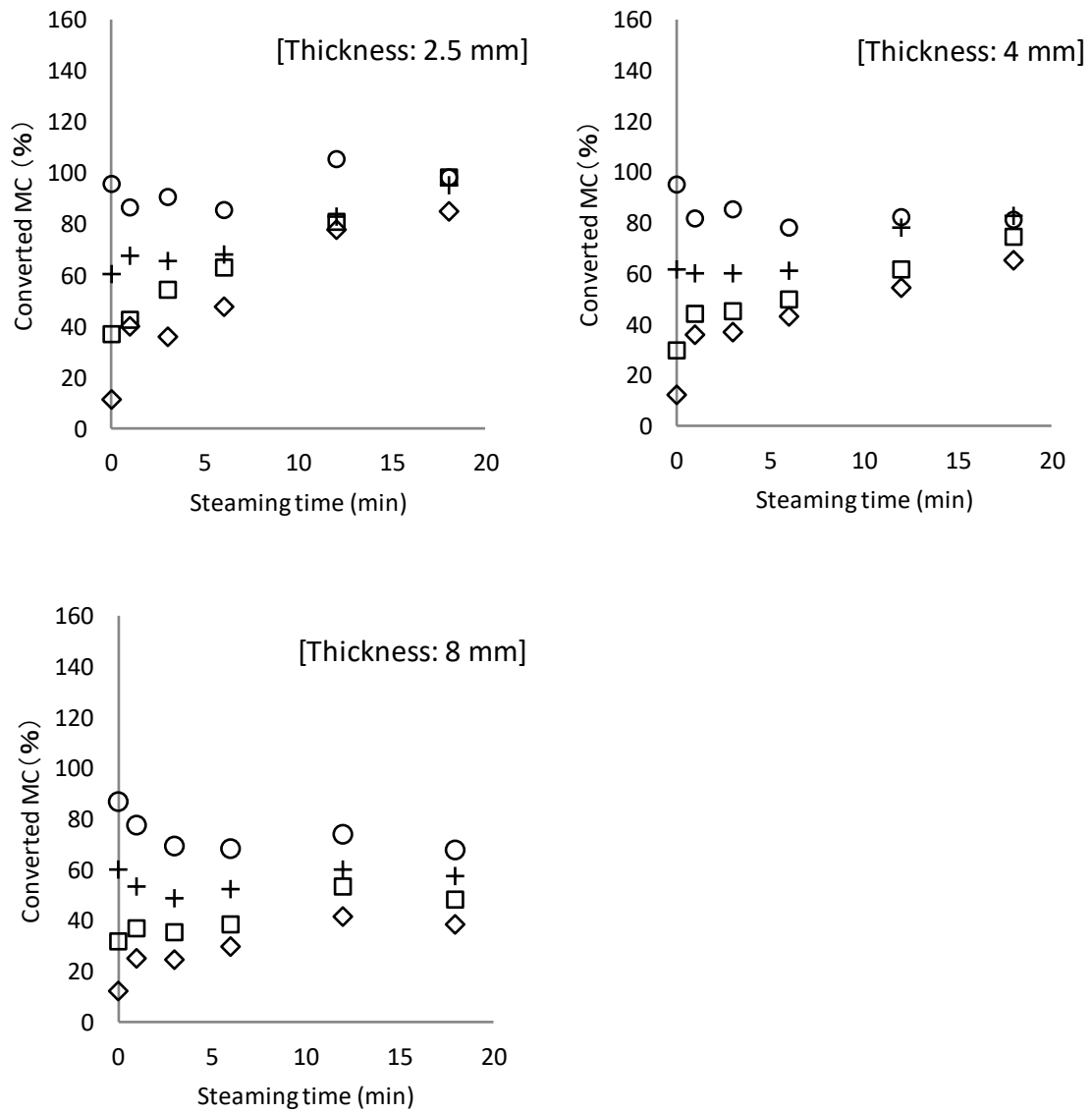


Fig.2-2 Changes of moisture content of wood with different initial moisture content by the steaming test for each chip size (*A. mangium*).

Notes: Initial moisture content of the sample: ◇;10%, □;30%, +;60%, ○;90%.

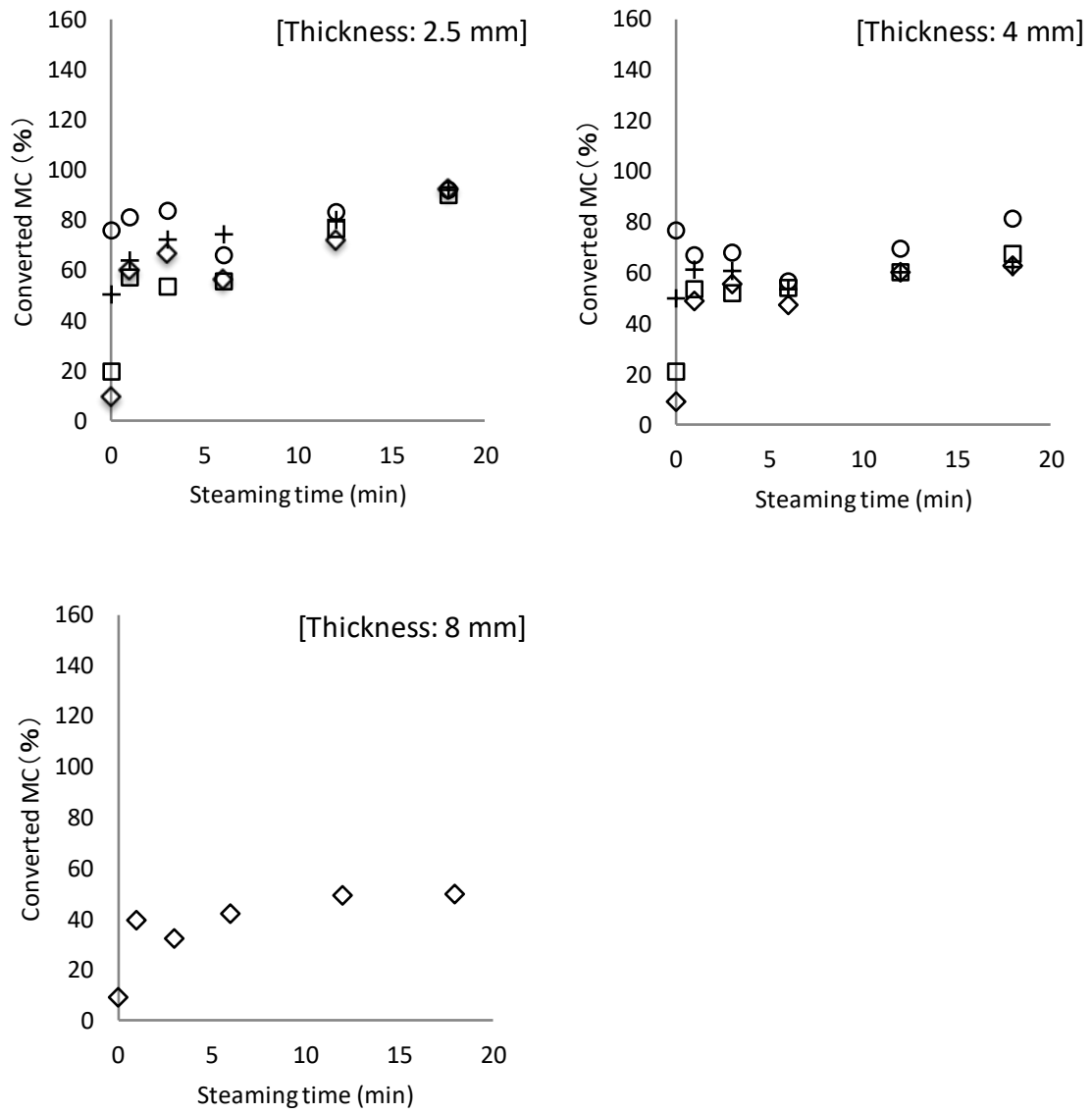


Fig.2-3 Changes of moisture content of wood with different initial moisture content by the steaming test for each chip size (*C. japonica*).

Notes: Initial moisture content of the sample: \diamond ;10%, \square ;30%, $+$;60%, \circ ;90%.

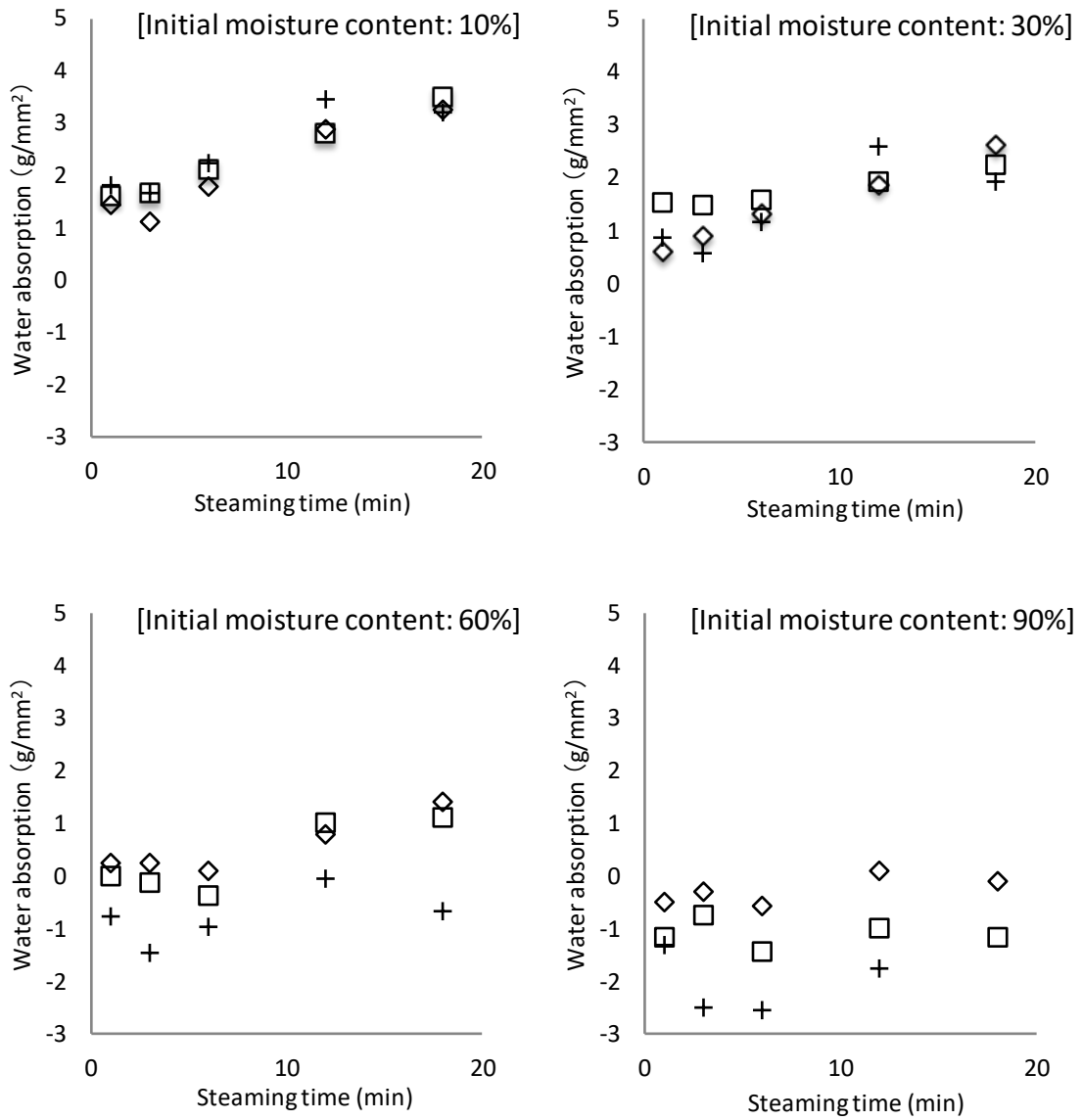


Fig.2-4 Water absorption for various initial moisture content conditions in the steaming test (*A. mangium*).

Notes: Thickness of sample: \diamond ; 2.5 mm, \square ; 4 mm, $+$; 8 mm

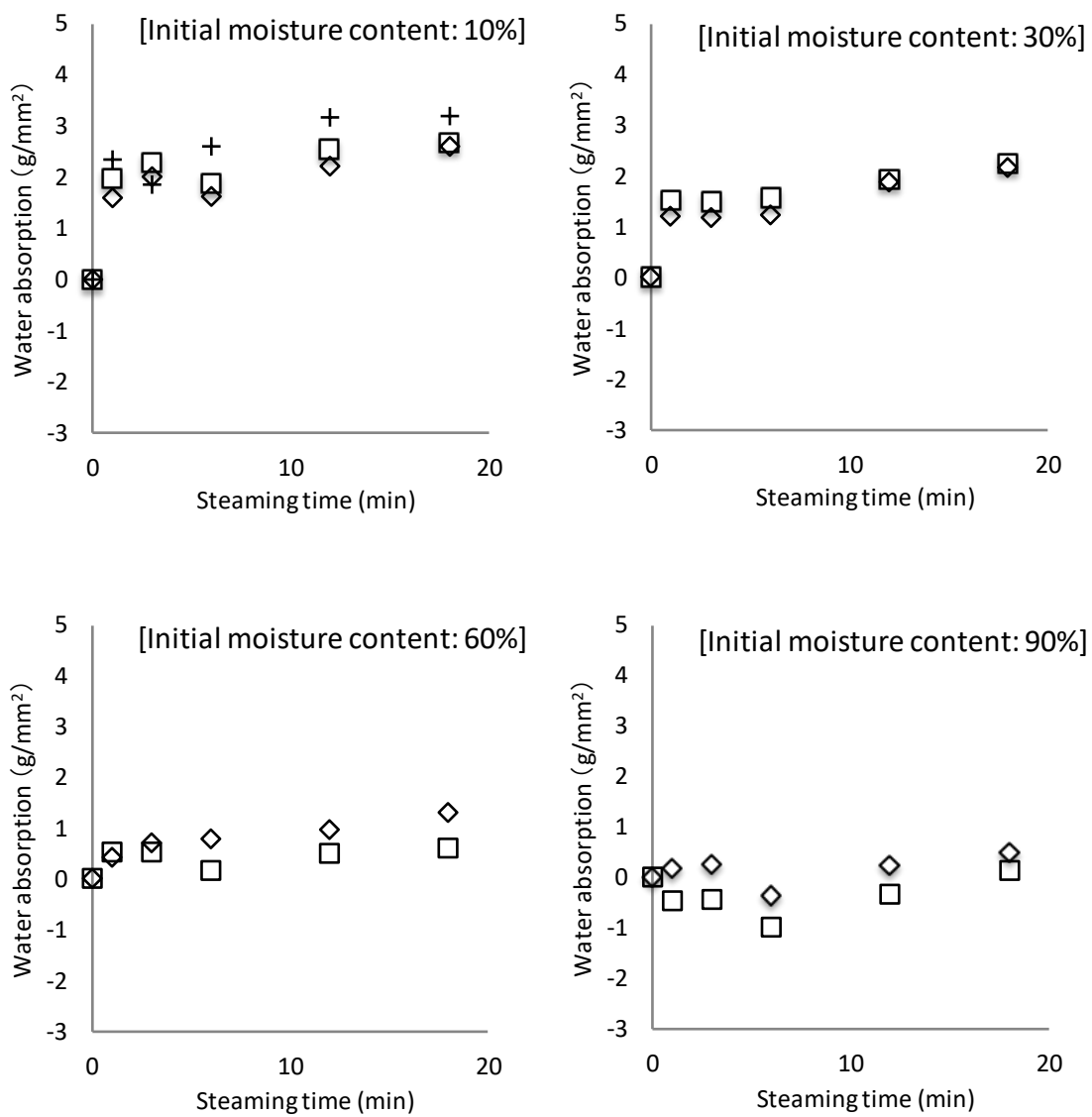


Fig.2-5 Water absorption for various initial moisture content conditions in the steaming test (*C. japonica*).

Notes: Thickness of sample: \diamond ; 2.5 mm, \square ; 4 mm, $+$; 8 mm

2.2.2 蒸煮による化学成分変化

蒸煮によるアカシアチップ試料の化学成分変化を Table.2-3 に示す。各値は全乾木粉試料に対する割合である。 α -セルロースは、ホロセルロースから定量した値を試料全体中の値に換算した。表中のホロセルロースと α -セルロースの差をヘミセルロースとして Fig.2-6 に示す。

各初期含水率の試料はいずれも蒸煮時間の経過とともにヘミセルロースが減少する傾向が見られた。蒸気による処理は主としてヘミセルロースの加水分解を引き起こすと言われており^{52,53,93)}、また本実験の圧力条件 (0.7 MPa) では結晶性セルロースへの影響は小さいことが指摘されていることから⁹⁴⁾、本実験のホロセルロースの減量は主にヘミセルロースであるものと推察される。解繊繊維のようなほぼ細胞壁単体レベルではなく、細胞間層の凝集力も強度要素となる組織構造を持った木材に対する熱処理や水蒸気処理ではヘミセルロースの低分子化により曲げ強度が低下すると言われており^{94,95)}、また成形後の MDF に対し水蒸気処理を行った場合にも強度の低下が報告されている⁸¹⁾。しかしながら長時間蒸煮によるヘミセルロースの低下した繊維にて MDF が製造されることを考えた場合、セルロースに富む繊維で MDF が形成されることになるため、上記の木材や成形後の MDF に対する熱処理の知見とは異なる結果が得られる可能性もある。Klason リグニンは 12 分の蒸煮でも 3 分と比べて 1% 程度の減少となっておりほとんど変化がなかった。試料の初期含水率の違いによる成分変化の差はほとんどなく、蒸煮における成分変化には蒸煮時間の影響が支配的であることが明らかになった。

Table.2-3 Chemical composition of specimens after steaming tests (*A. mangium*).

Initial MC (%)	Steaming (min)	Ethanol-benzene extractives (%)	Klason lignin (%)	Holocellulose (%)	α -cellulose (%)
-	untreated	3.9	27.2	82.3	48.1
10	3	3.4	26.7	79.5	50.7
	6	3.8	26.3	75.4	48.6
	12	4.3	25.8	71.6	50.3
30	3	3.7	26.6	80.6	52.5
	6	4.0	26.6	78.4	50.9
	12	4.3	25.7	72.8	51.7
60	3	2.2	27.2	80.9	52.9
	6	3.8	27.0	77.3	50.1
	12	3.2	26.3	72.6	49.8

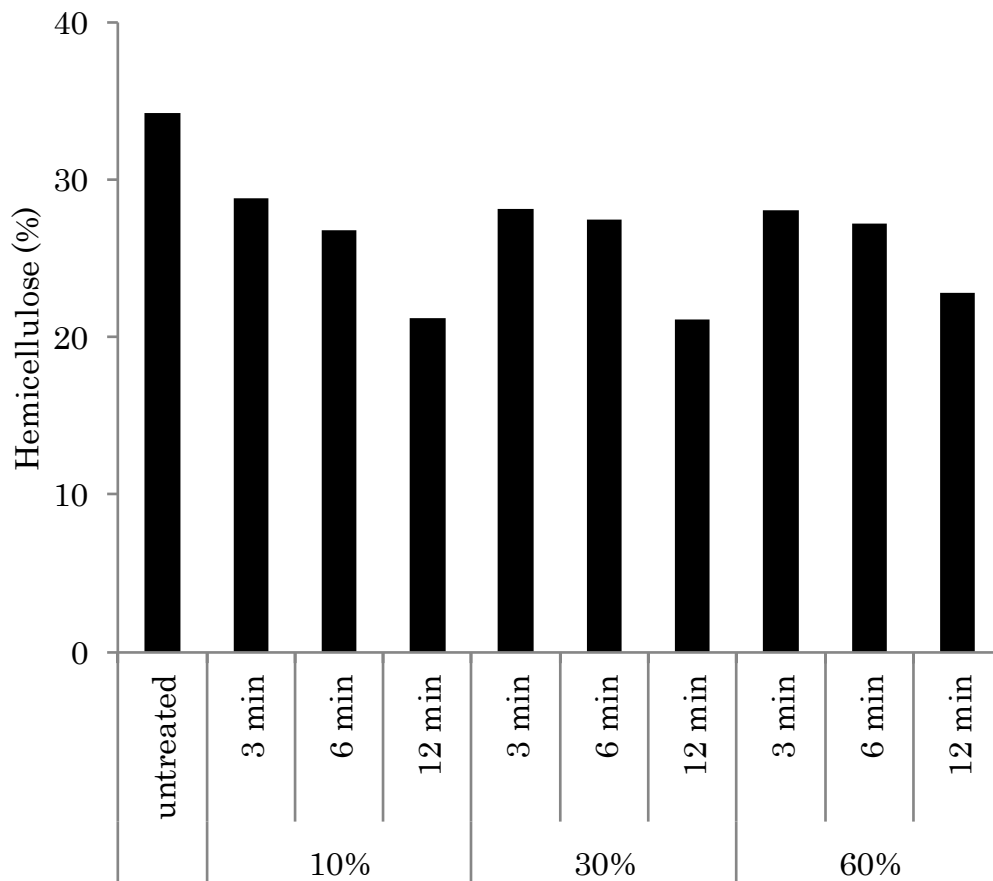


Fig.2-6 Changes of Hemicellulose by the steaming test (*A. mangium*).
 Note: Steaming time is 3, 6 and 12 minutes for each initial moisture content, 10, 30 and 60%.

2.3 本章の要約

各条件下で試料の蒸煮試験を行い、含水率、成分の変化を比較した結果、以下の結論を得た。

- 1) アカシアマンギウムおよびスギについて、初期含水率が 10, 30, 60%の試料は、蒸煮時間とともに含水率が増加した。単位面積あたりの吸水量の変化で比較すると試料厚さの差は小さいことから、木材の木取り方向による差は小さく、試料の表面積に応じて表面から内部へと水分の濃度差に基づく水の拡散を生じることが示唆された。
- 2) アカシアマンギウムおよびスギについて、初期含水率が 90%の試料は、蒸煮開始初期に含水率が減少し、その後の蒸煮においても変化は見られなかった。高含水率試料の場合、蒸煮開始初期においては試料最外部位に存在する水が昇温により蒸散し、その後の蒸煮では試料外部環境との水分濃度差が小さいため変化が小さくなるものと推測された。
- 3) 今回の実験結果から、本実験用に考案した蒸煮実験装置を用いることにより、蒸煮による含水率変化挙動を精度よく捉えることができるものと推察された。
- 4) 蒸煮中に木材に生じる含水率の変化は、その大部分が蒸煮本来の目的である木材成分の軟化に影響する結合水領域（含水率で約 25～30%以下）に留まらず、繊維飽和点以上の自由水の領域での増減であることが明らかになった。また長時間の蒸煮を行うことで各初期含水率の差は小さくなるが、実際の MDF 製造において現実的な蒸煮時間、すなわち 3～6 分程度では、初期含水率差に起因する含水率の差が依然として存在することが確認された。
- 5) アカシアマンギウムの成分変化について、試料の初期含水率（10, 30, 60%）による差はほとんどなく、蒸煮時間とともにホロセルロース量が低下する傾向があった。これは、ヘミセルロースが蒸煮の影響を受けて溶脱しやすくなったことによるものと示唆された。

第三章 チップの初期含水率及び蒸煮時間が MDF の物性に及ぼす影響

第一章で述べた通り，蒸煮圧や蒸煮時間など蒸煮処理の条件によって解繊繊維の形状が変化し，最終的な MDF の物性にも影響を及ぼすことが定性的には明らかになっている。しかしながら，蒸煮処理により木材に生じる水分の変化挙動や，何によって解繊繊維の形状が変化して最終的な MDF の物性に影響するかについては十分に明らかにされていない。

前章では，蒸煮処理によって木材チップに生じる水分や化学成分の変化を検討し，特にアカシアマンギウムでは，蒸煮工程で時間とともに低含水率チップは含水率が増加し，高含水率チップは含水率が漸減する傾向があり，蒸煮中に木材に生じる含水率の変化は，その大部分が蒸煮本来の目的である木材成分の軟化に影響する結合水領域ではなく，それ以上のいわゆる自由水領域での増減であることが明らかになった。また長時間の蒸煮を行うことで各初期含水率の差は小さくなるが，実際の MDF 製造において現実的な蒸煮時間，すなわち 3～6 分程度では，初期含水率差に起因する含水率の差が依然として存在することが確認された。また含水率に依らず蒸煮工程ではヘミセルロースの分解，溶脱が進むことが明らかになった。

本章では，アカシアマンギウムのチップについて初期含水率，蒸煮時間を変化させて蒸煮，解繊を行い，得られた繊維についての形状評価及び MDF の物性評価を行うことで，前章で得られた蒸煮による水分や成分の変化が解繊繊維形状，MDF の物性にどのような影響を及ぼすのかについて検討した。

3.1 実験方法

3.1.1 供試材料およびその調整

供試材料にはマレーシア産の 13 年生アカシアマンギウム (*Acacia mangium* Willd.) を用いた。伐採した丸太を厚さ 15 mm，幅 60 mm，長さ 2 m の板材とした後，ドラムチップパー（秋木機械製，KMV-603）を用いて切削チップを作製した。切削チップをふるいで分級して 6～25 mm を供試材料とした。このときチップの含水率は 10%であった。このチップをポリエチレン製の袋に入れ，所定の含水率となるよう緩やかに攪拌しながらハンドスプレーで霧化した水を均一に添加し，密閉した状態で 20℃の恒温室内に 2 週間静置し，4 段階の含水率（10，30，60，90%）となるよう調整した。なお，含水率調整を行ったチップの一部（約 50g）を採取し，その重量と 105℃の乾燥機（タバイ製，PHH-200）で一晩乾燥させた後の重量から含水率を算出し，目標の含水率に達していることを確認した。

3.1.2 解繊

加圧解繊には熊谷理機工業株式会社製の加圧シングルディスクリファイナー（BRP-300SS, Fig.3-1）を使用し，刃は J タイプ（Fig.3-2）を用いた。この刃は，溝にダム（円周方向の刃）がなく，またプレート外周部で溝の間隔が急激に狭くなる形状のた

め，繊維長さ方向に比較的損傷の少ない繊維が得られるという特徴を有する。蒸煮条件は，蒸気ゲージ圧力 0.7 MPa（約 170℃），蒸煮時間 3～18 分とし，解繊時の刃の間隔は 0.10 mm とした。チップの初期含水率及び蒸煮，解繊の各条件を Table.3-1 に示す。



Fig.3-1 Single disk refiner (BRP-300SS).



Fig.3-2 Refiner segment (J-type).

Table.3-1 Specifications for the defibration tests.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Gauge pressure (MPa)	Segment gap (mm)
10	3	0.7	0.10
	6		
	12		
	18		
30	3	0.7	0.10
	6		
	12		
	18		
60	3	0.7	0.10
	6		
	12		
	18		
90	3	0.7	0.10
	6		
	12		
	18		

3.1.3 解繊繊維形状の評価

解繊実験で得られた繊維について、Metso 社製の繊維長測定設備 (Kajaani FS-300) を用いて繊維形状の評価を行った。繊維長の測定の原理は、繊維の有する偏光特性に基づいている。光源からの光は集光レンズ、偏光フィルターを経て、キャピラリーの中を配向して通過する水中に分散した解繊繊維に投射される。キャピラリーの中の繊維を通過して光軸が変わった光が二つ目の偏光フィルターを経てディテクターに到達する。ディテクター上で繊維長に比例する光の像が形成され、信号がデジタル化され繊維長が計算される⁹⁶⁻⁹⁸⁾。繊維長は、繊維の湾曲など非線形の形状を考慮し、直線に引き延ばしたときの中心線長さを採用した。繊維幅は、繊維長測定と同時に別途、キャピラリーを通過する解繊繊維に対してキセノン光を投射し CCD カメラを利用した画像解析により測定した。

本設備を用いた測定により、解繊繊維の長さ加重平均繊維長及び繊維長分布、そして長さ加重平均繊維幅を得た。長さ加重平均繊維長 (length-weighted mean length) : L_L 及び長さ加重平均繊維幅 (length-weighted mean width) : W_L は次式により算出した。

$$L_L = \frac{\sum n_i l_i^2}{\sum n_i \times l_i}$$

$$W_L = \frac{\sum n_i l_i w_i}{\sum n_i l_i}$$

ここで、 n_i をフラクション i の繊維の数、 l_i をフラクション i の繊維の平均長、 w_i をフラクション i の繊維の平均幅とした。長さ加重平均繊維長、長さ加重平均繊維幅の各フラクションの範囲はそれぞれ 50 μm 、1 μm である。チップの初期含水率、蒸煮時間と得られた解繊繊維の長さ加重平均繊維長及び長さ加重平均繊維幅を Table.3-2 に示す。

Table.3-2 Fiber morphology in various defibrillation conditions.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Fiber length	Fiber width
		L _L mm	W _L um
10	3	0.97	22.82
	6	0.72	20.75
	12	0.79	18.24
	18	0.84	17.57
30	3	0.99	24.25
	6	0.84	20.12
	12	0.8	18.09
	18	0.91	17.51
60	3	1.13	24.96
	6	0.89	20.7
	12	0.93	18.11
	18	0.84	18.15
90	3	0.78	22.37
	6	0.97	19.74
	12	0.92	17.78
	18	0.96	17.68

3.1.4 MDF の成形

各解繊条件につき 1 枚の MDF を作製した。MDF の成形条件を Table.3-3 に示す。目標密度 0.75 g/cm^3 ，目標寸法 $350 \times 350 \times 3 \text{ mm}$ とした。接着剤は，M タイプ製品など耐水性を必要とする用途向けの製品に広く用いられており，また尿素メラミン樹脂接着剤に比べて合成後の可使時間が長いため取り扱いの容易なイソシアネート系樹脂接着剤（東ソー，450SS，以下，MDI と表記）を用い，全乾木質重量比で 6% 添加した。接着剤が添加された繊維を寸法 $350 \times 350 \text{ mm}$ の樹脂製枠内に手撒きすることでフォーミングマットを成形した。熱圧プレス条件は，温度 160°C ，時間 1 分とし，圧縮による目標厚さへの制御はプレス装置の位置制御機構により行った。成形した MDF は 20°C の室内環境下で 24 時間放冷した後，表裏面をベルトサンダー（ペーパー粒度 #150）で研磨し，厚さを 2.7 mm に調整した。研磨した MDF を $20^\circ\text{C}65\% \text{RH}$ 下で恒量となるまで調湿し，物性評価に供した。

Table.3-3 Parameters for MDF board making.

Processing parameter	Value
Target density (g/cm^3)	0.75
MDI* resin content (%)	6
Dimension (mm)	350 x 350
Thickness after hot pressing (mm)	3
Press temperature (deg.C)	160
Press time (min)	1
Thickness after sanding (mm)	2.7

* MDI: 4,4'-Diphenylmethane diisocyanate.

3.1.5 MDF の物性評価

各試験にて得られた結果は、試験体密度の影響を排するために各値に（全試験体の平均密度/試験体密度）を乗ずることで密度補正を行った。

3.1.5.1 曲げ試験

曲げ試験は 20℃の室内環境下で行った。幅 50mm，厚さ 2.7 mm の試験体を 1 条件につき各 5 体供試した。試験設備はエー・アンド・デイ社製万能材料試験機 (TENSILON, RTF-2325) を用い，スパン 150 mm，中央集中荷重方式で行った。このときクロスヘッドスピードは 10 mm/min とした。

3.1.5.2 剥離試験

剥離試験は 20℃の室内環境下で行った。長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 3 体供試した。前項と同じ万能材料試験機を用い，クロスヘッドスピードは 2 mm/min として試験した。

3.1.5.3 吸水厚さ膨張率および吸水率の測定

長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 3 体供試した。厚さ，重量を測定した試験体を 20℃の常温水に 24 時間浸漬した後，再度厚さと重量を測定し，浸漬前の値を基準値として吸水厚さ膨張率および吸水率を算出した。

3.1.5.4 目視外観評価

長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 1 体供試した。目視にて比較的寸法の大きな繊維の有無を評価した。

3.2 結果と考察

3.2.1 解繊繊維形状

各初期含水率（10，30，60，90%）のチップを一定時間（6 分間）蒸煮した後に解繊して得られた繊維の繊維長分布を Fig.3-3 に示す。初期含水率 10% で 0.3 mm 付近に存在するピークが初期含水率増加に伴い減少し，一方で 1.0 mm 付近のピークが増加した。次に一定の初期含水率（60%）のチップを各蒸煮時間（3，6，12，18 分）蒸煮した後に解繊して得られた解繊繊維長分布を Fig.3-4 に示す。蒸煮時間を長くした場合でも，短繊維の割合が減少し，1.0 mm 付近のピークが増加し，初期含水率の増加と同様の繊維形状分布の変化を示した。アカシアマンギウムの木繊維細胞の繊維長は 1 mm 程度⁹⁹⁾と言われており，初期含水率が高い場合，あるいは 12 分以上の長い蒸煮時間の場合の解繊においては，繊維長さ方向の切断が抑えられ，多くが細胞繊維長に近い形状で排出されることが示唆された。

これらの繊維長の変化について，前章の蒸煮実験で明らかになった蒸煮後の含水率の影響を考える。各解繊条件における蒸煮後の換算含水率と短繊維割合を Table.3-4 に，

そして両者の関係を Fig.3-5 に示す。短繊維は、繊維が長さ方向に切断され、木繊維細胞よりも短くなることを想定し、繊維長が 0.5 mm 以下のものに設定した。蒸煮後の換算含水率と短繊維割合の間には負の相関が認められ、高初期含水率、あるいは長蒸煮時間のように解繊時の含水率が高くなった場合に、繊維長さ方向の切断が抑えられる傾向となった。短時間の蒸煮では木材成分の軟化程度が低いこと、また長時間の蒸煮では水分の増加に加えて成分の変化の影響を考慮する必要があるが、解繊時に繊維が形成される状況、すなわち蒸煮された木材チップが刃の間で繊維化される状況では、自由水が多く存在することで繊維が長さ方向に切断、摩砕される頻度が減少することが示唆された。

各解繊条件における蒸煮後の換算含水率と粗繊維割合を Table. 3-5 に、そして両者の関係を Fig.3-6 に示す。粗繊維は、アカシアマンギウムの木繊維細胞の平均繊維長が 1 mm であるため、十分に解繊されていない繊維束の状態を想定し、繊維長 2 mm 以上に設定した。蒸煮後の換算含水率と粗繊維割合の間には負の相関が認められ、解繊時の含水率が高くなった場合に、解繊の程度がより進み、繊維束の少ない繊維となることが示唆された。

以上の結果から、初期含水率が高いチップを用いる、あるいは長時間蒸煮を行うといった解繊時にチップが高含水率の状態になった場合、短繊維、粗繊維の割合が共に減少し、細胞繊維に近い、より均一な繊維形状が得られるということが明らかとなった。これは、解繊時の解繊繊維の形成に、過去の知見で木材成分の軟化に影響を及ぼすとされている細胞壁中の結合水だけではなく、それ以外のいわゆる自由水の存在が大きな影響を与えていることを示唆している。

実際の MDF 生産で現実的な蒸煮時間は 6 分程度までであり、解体材などを原材料とした低含水率チップを用いた場合、解繊時の含水率は蒸煮により増加するものの依然として低いと考えられ、その場合、短繊維が多く発生し、そのばらつきも大きくなること、一方で生材など高含水率の原材料の場合では細胞繊維長に近い、より均一な繊維形状となることが予想され、同じ条件でも用いる原材料の含水率によって得られる繊維形状が異なることが示唆された。従って蒸煮前の段階で含水率を調整することが繊維長分布の制御に有効であることが推察された。

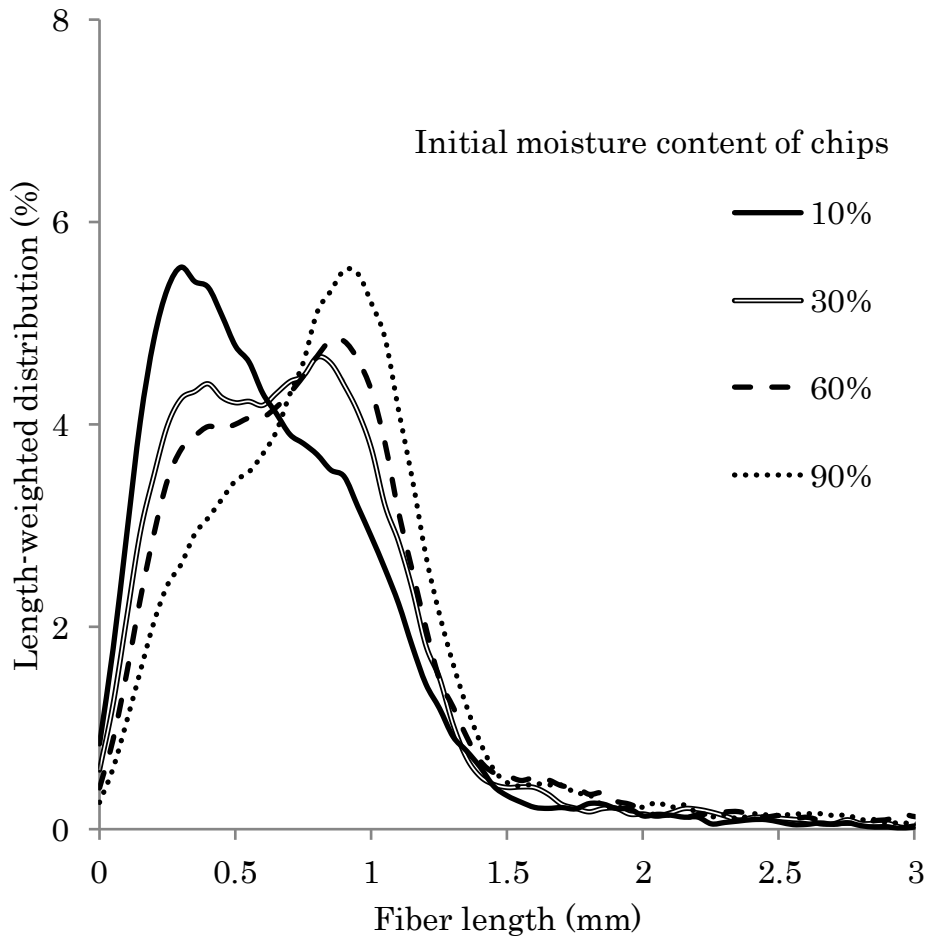


Fig.3-3 Fiber length distribution in various initial chip MC with steaming time (6min).

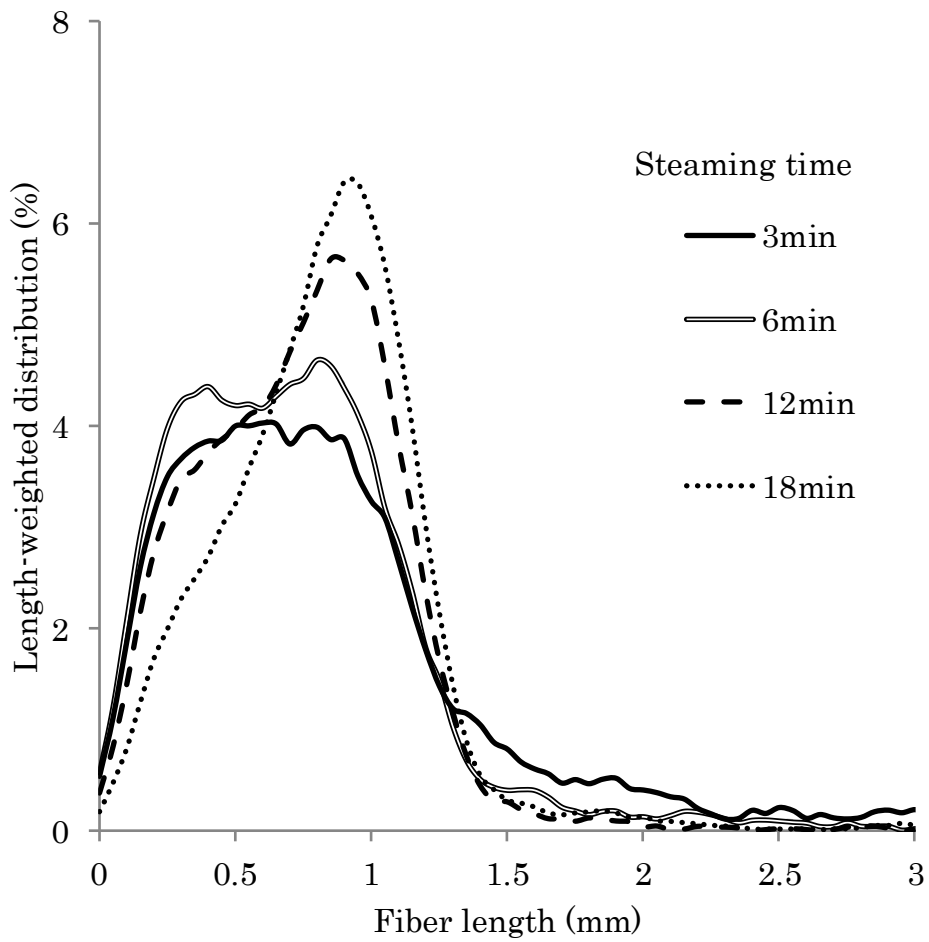


Fig.3-4 Fiber length distribution at various steaming times with initial moisture content of chips (30%).

Table.3-4 Moisture content after steaming and short fiber ratio in various refining conditions.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Converted MC after steaming *	Short fiber ≤ 0.5 mm (%)
10	3	36	32
	6	48	41
	12	78	27
	18	85	22
30	3	54	28
	6	63	32
	12	81	25
	18	98	17
60	3	66	25
	6	68	27
	12	83	15
	18	95	22
90	3	91	38
	6	85	20
	12	105	14
	18	98	14

*Converted MC after steaming: Values obtained in Chapter 2.

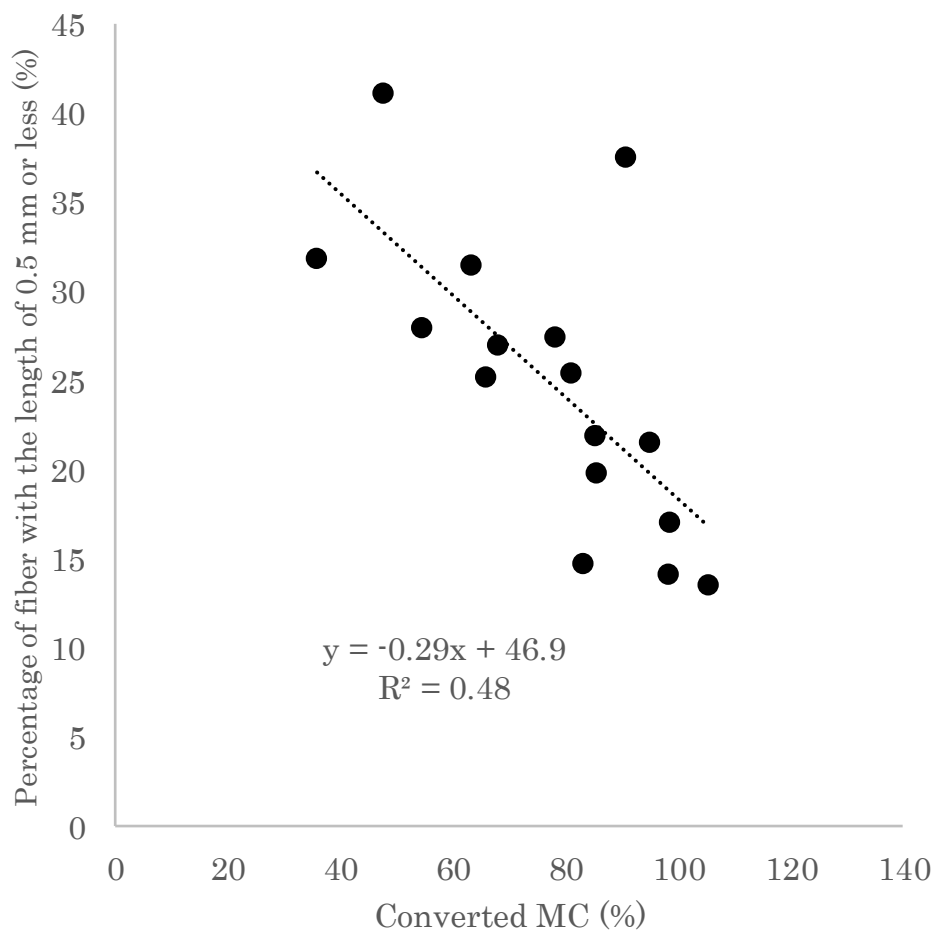


Fig.3-5 Relationship between converted MC and short fiber ratio.

Table.3-5 Moisture content after steaming and coarse fiber ratio in various refining conditions.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Converted MC after steaming *	Coarse fiber ≥ 2 mm (%)
10	3	36	8
	6	48	2
	12	78	1
	18	85	1
30	3	54	8
	6	63	4
	12	81	1
	18	98	2
60	3	66	12
	6	68	4
	12	83	2
	18	95	1
90	3	91	4
	6	85	5
	12	105	1
	18	98	3

*Converted MC after steaming: Values obtained in Chapter 2.

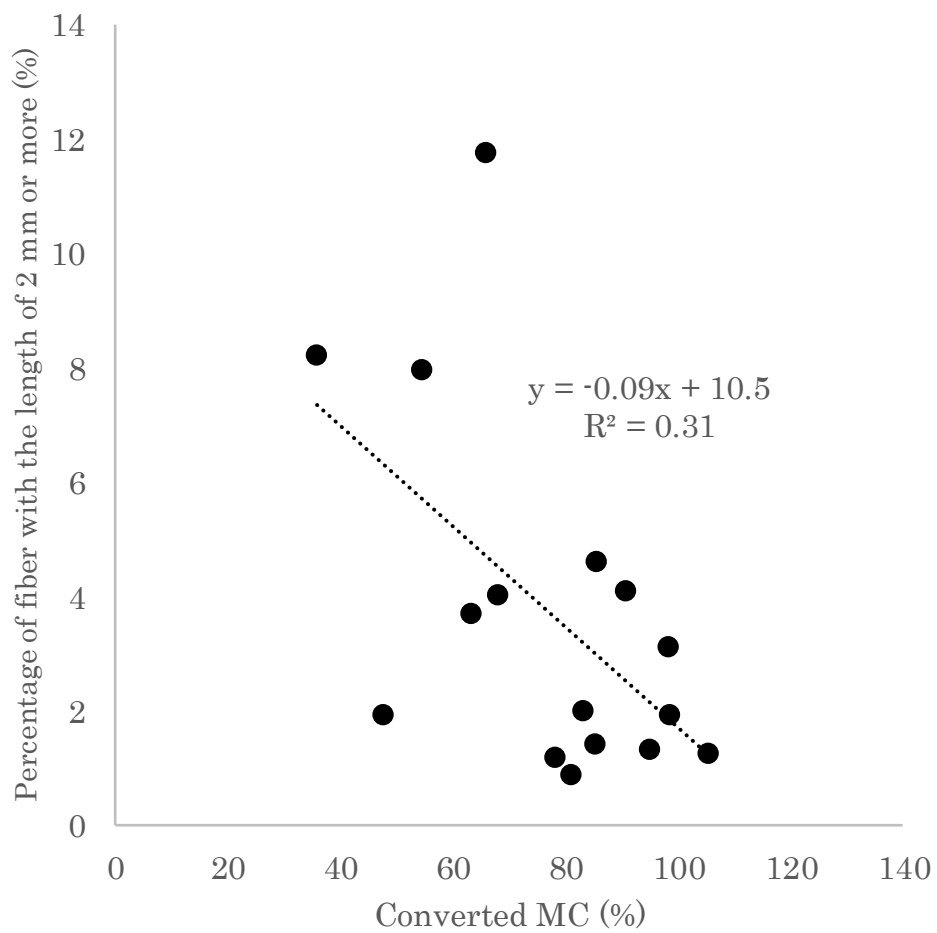


Fig.3-6 Relationship between converted MC and short fiber ratio.

3.2.2 MDF の物性

3.2.2.1 曲げ強度

MDF の曲げ強度の密度補正後の平均値とチップの初期含水率の関係を Fig.3-7 に示す。チップの初期含水率が高いほど高い曲げ強度を示す傾向が認められた。またいずれの水準においても JIS 30 タイプの区分における基準値 30 MPa を上回る結果となった。次に曲げ強度の密度補正後の平均値と繊維長分布における長さ 0.5 mm 以下の短繊維割合の関係を Fig.3-8 に示す。蒸煮 6 分、12 分の試料では曲げ強度と短繊維割合の間に負の相関が認められた。蒸煮条件間、初期含水率間で分散分析を行った結果、5% 有意水準で有意差があった。3.2.1 で述べたように解繊時、チップが高含水率であるほど短繊維の割合は減少し、MDF 成形時、繊維同士の接着剤による結合点が増加することで、強度改善に寄与したものと推察される。蒸煮時間 6 分、12 分の試料で決定係数 R^2 がそれぞれ 0.94、0.85 と高いのに対して、蒸煮時間 3 分、18 分の試料では相関が低くなった。この理由として、蒸煮 3 分間では、Fig.3-4 の繊維長分布において、アカシアマンガウムの木繊維細胞の平均繊維長 1 mm よりも長い繊維の割合が他よりも高く、また目視でも単繊維化されていない繊維束が多く確認できることから、太い繊維束の存在が単位体積あたりの繊維本数の減少、上述した繊維同士の結合の頻度の低下につながり、成形した MDF の均質性が低下したものと推察される。蒸煮時間 18 分における値のばらつきは、後述する蒸煮後の成分変化による影響が大きくなったためと考えられる。

曲げ強度の平均値と蒸煮時間の関係を Fig.3-9 に示す。曲げ強度は蒸煮時間の経過とともに低下する傾向が認められた。3.1 で述べたように初期含水率が高いチップを用いた場合と長時間蒸煮を行った場合で繊維形状は良く似た分布となるが、後者で曲げ強度が低下した。これについては蒸煮による木材成分の変化の影響が考えられる。前章で得られた各蒸煮条件におけるホロセルロースの割合とそれぞれに対応した曲げ強度を Table.3-6 に示す。そしてホロセルロースの割合と曲げ強度の関係を Fig.3-10 に示す。ホロセルロースの割合と曲げ強度の間には正の相関が認められた。前章で述べた通り、表中の蒸煮 3~12 分において、蒸煮時間とともに減少するホロセルロースは、特にヘミセルロースの溶脱によるものと推測される。このことは本章で実施した蒸煮 18 分ではホロセルロースの割合はさらに減少することが予想される。これらのことから、蒸煮時間が長い場合、ヘミセルロースの低分子化、溶脱を生じ、それが MDF の強度低下に関与しているものと推察された。また、細胞の連続した木材や成形後の MDF を高温の水蒸気により処理した場合、ヘミセルロースが低分子化し強度が低下することが報告^{79,91,92)}されているが、本実験の場合、ヘミセルロースが低分子化、溶脱した後のセルロースに富む繊維で成形された MDF であるため、強度低下の原因は、細胞壁中に不均一に分布するヘミセルロースが消失したことによる解繊繊維自身の強度低下によるものと考えられる。また、ヘミセルロースの減少は接着性能にも影響を及ぼす可能性があるが、次項の剥離強度の結果から、その影響はそれほど大きくないと思われる。

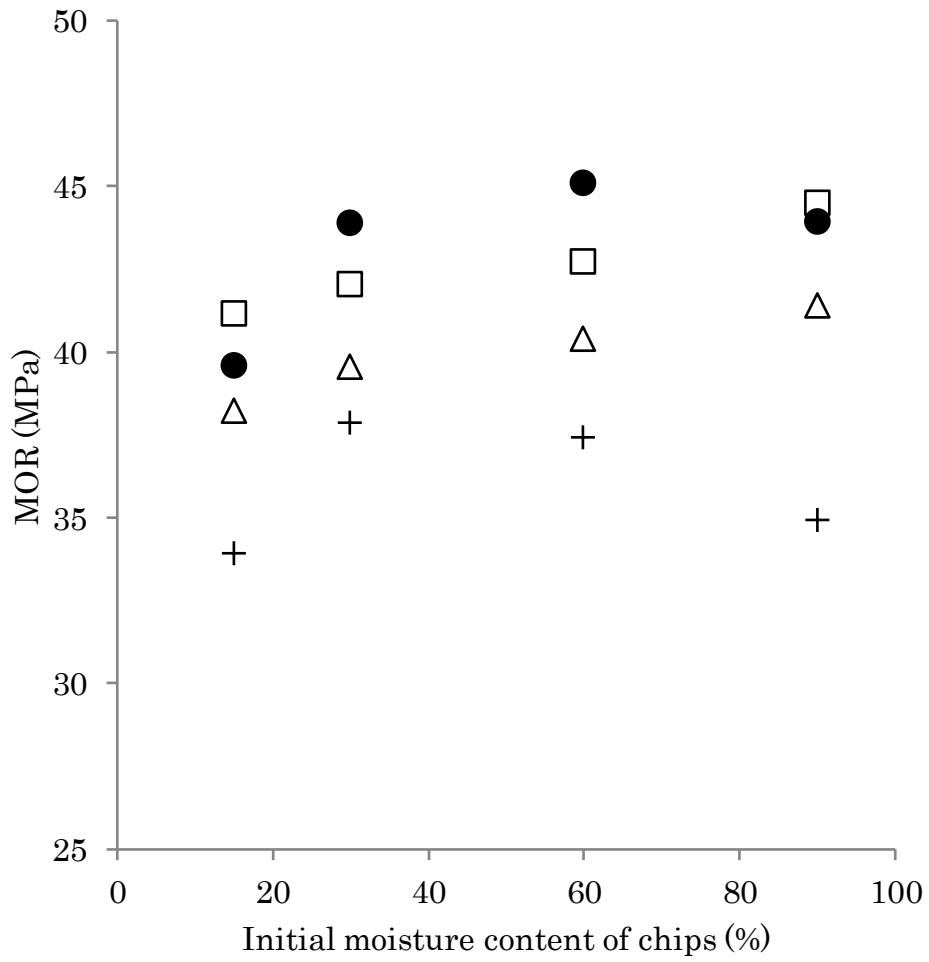


Fig.3-7 Relationship between initial moisture content of chips and modulus of rupture (MOR).

Notes: Steaming time, ●: 3 min; □: 6 min; △: 12 min; +: 18 min.

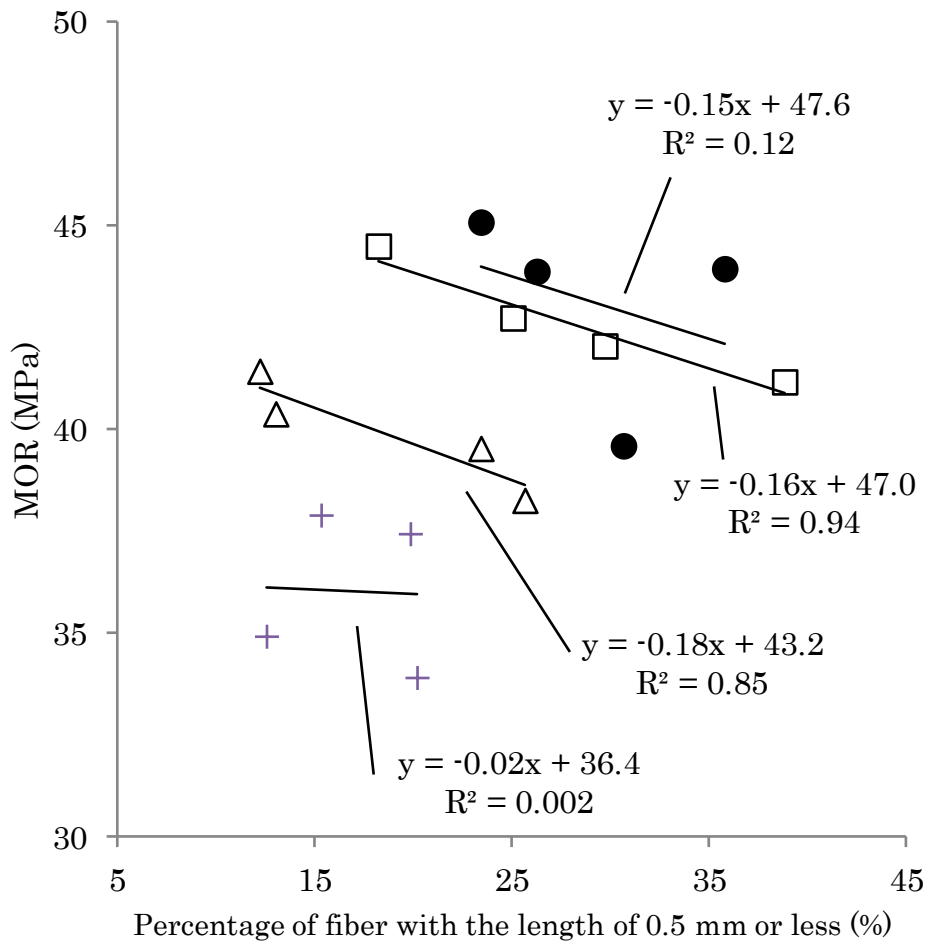


Fig.3-8 Relationship between short fiber ratio and modulus of rupture (MOR).

Notes: Steaming time, ●: 3 min; □: 6 min; △: 12 min; +: 18 min.

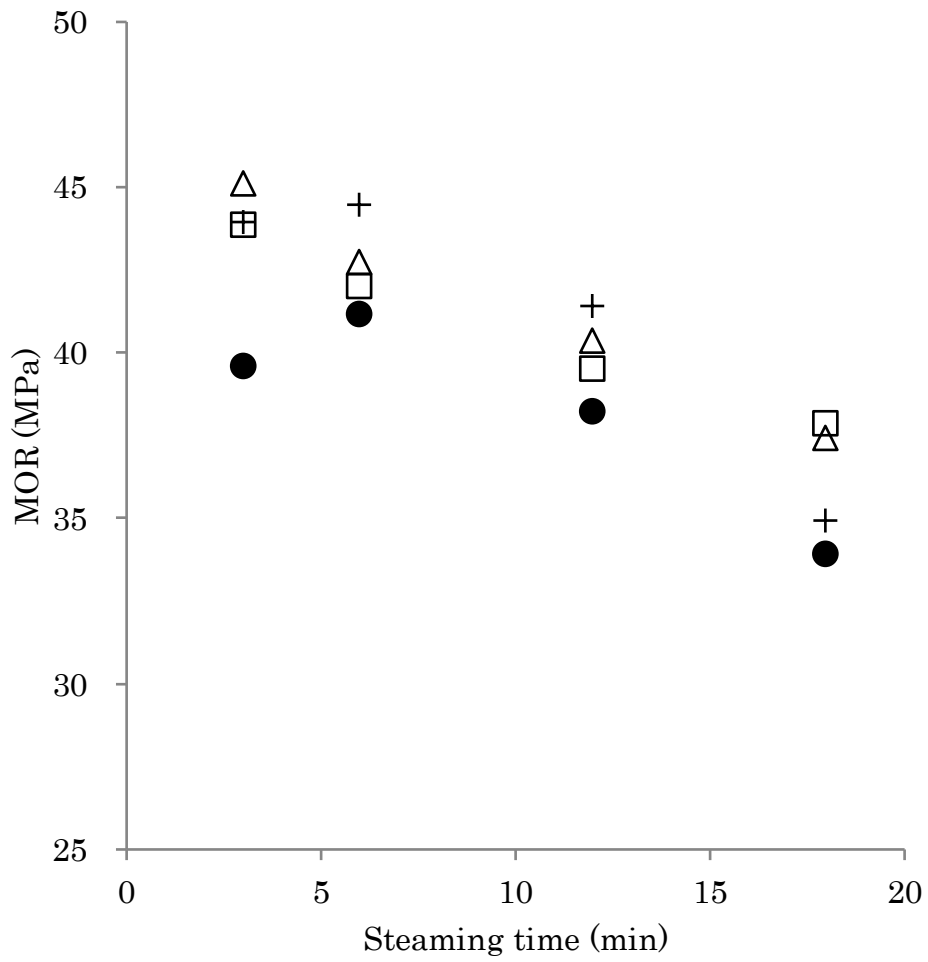


Fig.3-9 Relationship between steaming time and modulus of rupture (MOR).
 Notes: Initial moisture content of sample, ●: 10%; □: 30%; △: 60%; +: 90%.

Table.3-6 Holocellulose and MOR in various refining conditions.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Holocellulose* (%)	MOR (MPa)
10	3	80	40
	6	75	41
	12	72	38
30	3	81	44
	6	78	42
	12	73	40
60	3	81	45
	6	77	43
	12	73	40

*Holocellulose: Values obtained in Chapter 2.

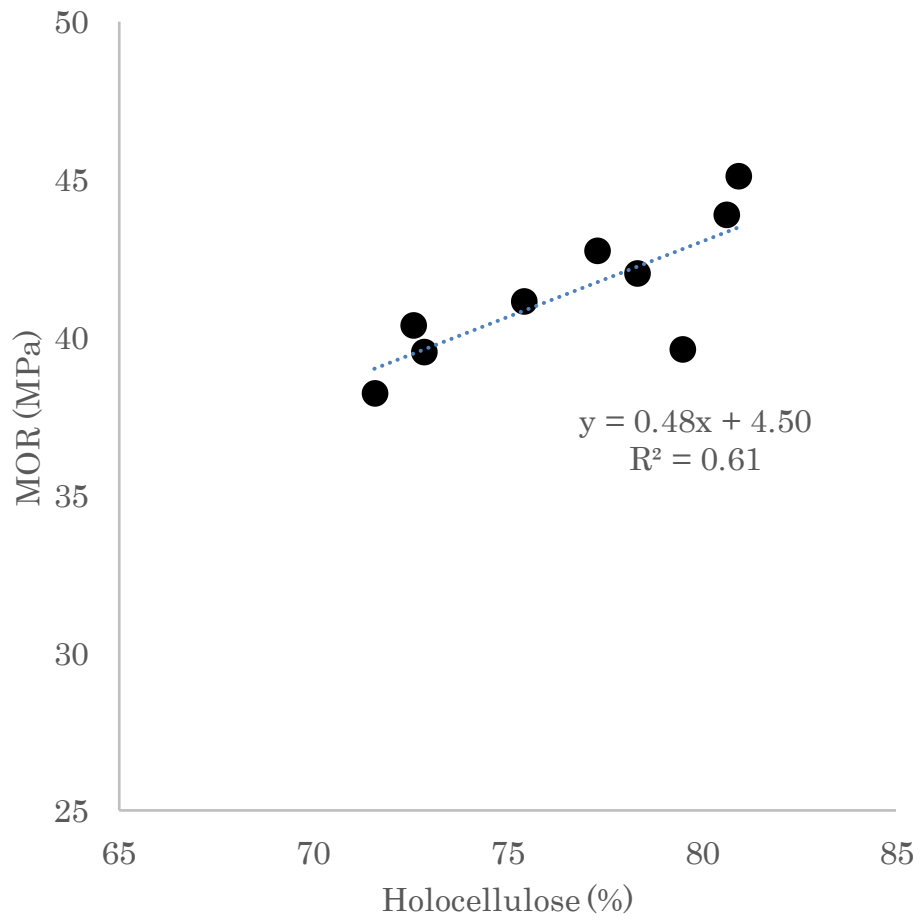


Fig.3-10 Relationship between Holocellulose in wood fiber and modulus of rupture (MOR) of MDF.

3.2.2.2 剥離強度

各初期含水率試料の剥離強度の密度補正值と蒸煮処理時間の関係を Fig.3-11 に示す。チップの初期含水率の剥離強度への影響は認められなかった。また蒸煮時間による剥離強度の低下の傾向は認められなかった。このことから蒸煮による繊維間の接着性能への影響は小さいものと推測された。剥離強度は、値にばらつきが大きいものの、JIS 30 タイプの区分における基準値 0.5 MPa に対して、いずれの水準においても十分な強度が得られた。

3.2.2.3 吸水厚さ膨張率および吸水率

各初期含水率試料の吸水厚さ膨張率の平均値と蒸煮処理時間の関係を Fig.3-12 に示す。初期含水率、蒸煮時間ともに吸水厚さ膨張率への影響は小さい結果となった。JIS 30 M タイプ、厚さ 7 mm 以下の製品に適用される基準値 17% に対して、いずれの水準においても低く値が抑えられている結果となった。次に各初期含水率試料の吸水率と蒸煮時間の関係を Fig.3-13 に示す。吸水率は蒸煮時間とともに増加する傾向が認められた。結果は密度補正を行った値であり、前章において蒸煮と共にヘミセルロース変性によるものと考えられるホロセルロースの減少が見られたことから、蒸煮により細胞壁中に不均一に分布するヘミセルロースが溶脱し、その部分に水が浸入した可能性が考えられる。

3.2.2.4 表面性

各水準の MDF 試料表面の写真画像を Fig.3-14 に、また表面状態の視認性を向上させるために、試料表面の写真画像を画像解析ソフト、Image J に取り込み、共通のしきい値を用いて 2 値化を行った画像を Fig.3-15 に示す。目視による外観評価結果を Table.3-7 に示す。MDF はその緻密な表面性から紙やシートなどの化粧貼り用の基材として用いられることが多い。化粧貼りされる際、MDF 表面に粗繊維が存在すると、製品の表面に欠点として現れるので、できるだけ少ない方が品質管理上の望ましい。そこで目視における判定基準は、試料表面がほぼすべて微細な繊維で構成されており、目立って大きな繊維が数本以内の状態を良好とし、一方で、試料表面に目立って大きな繊維が多く存在する場合を不良とした。評価の結果、蒸煮時間が 3 分のものはいずれの初期含水率においても大きな繊維が試料表面上に多く存在し、表面性は不良となった。これは蒸煮時間が短いため木材成分の軟化の程度が十分でなく、解繊が十分になされなかったことが原因と推察される。また初期含水率 10%、蒸煮時間 6 分の条件で表面性は不良となった。これは 6 分の蒸煮では含水率が十分に増加しておらず、解繊時の含水率が未だ低いことが影響しているものと考えられる。3.2.1 で述べたように、解繊繊維形状の評価では、高い初期含水率チップを用いることや蒸煮時間を長くすることで、解繊時の含水率が高くなり、繊維長 2 mm 以上の粗繊維の割合が減少する傾向が認められた (Fig.3-6)。このことから、解繊時に多くの水分が存在することで、解繊の程度がより進み、繊維束の少ない良好な表面性となることが確認された。

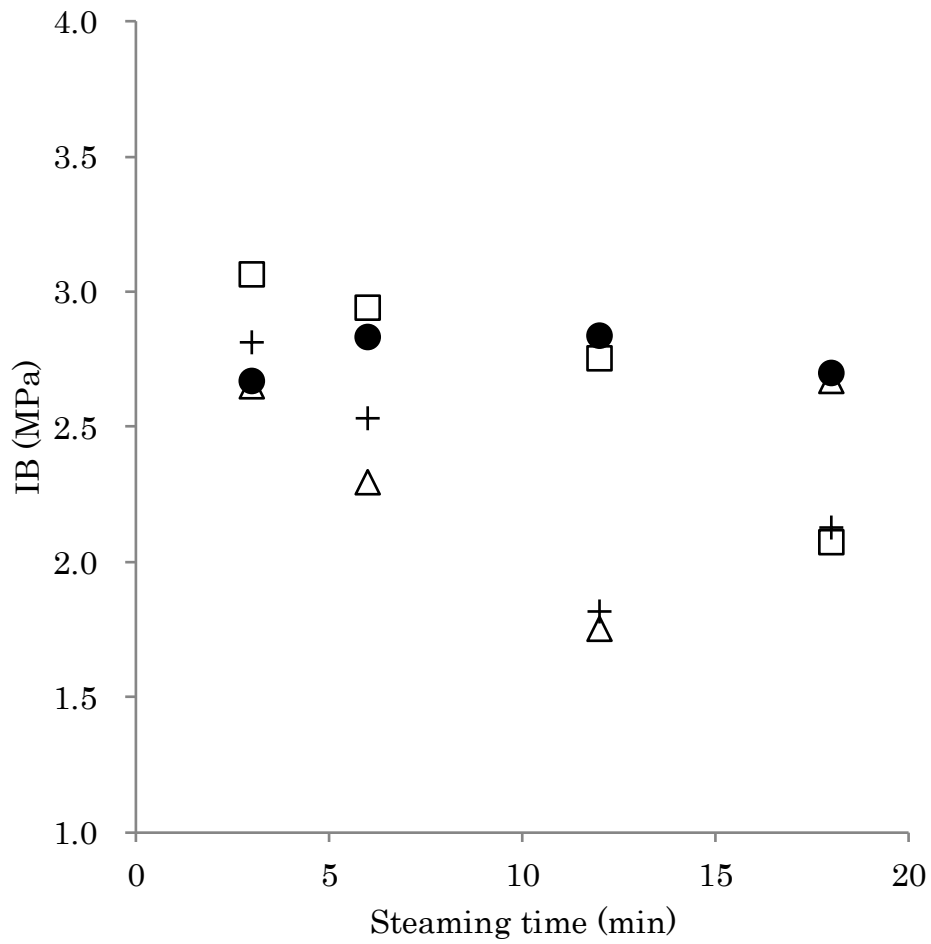


Fig.3-11 Relationship between steaming time and internal bonding.
 Notes: Initial moisture content of sample, ●: 10%; □: 30%; △: 60%; +: 90%.

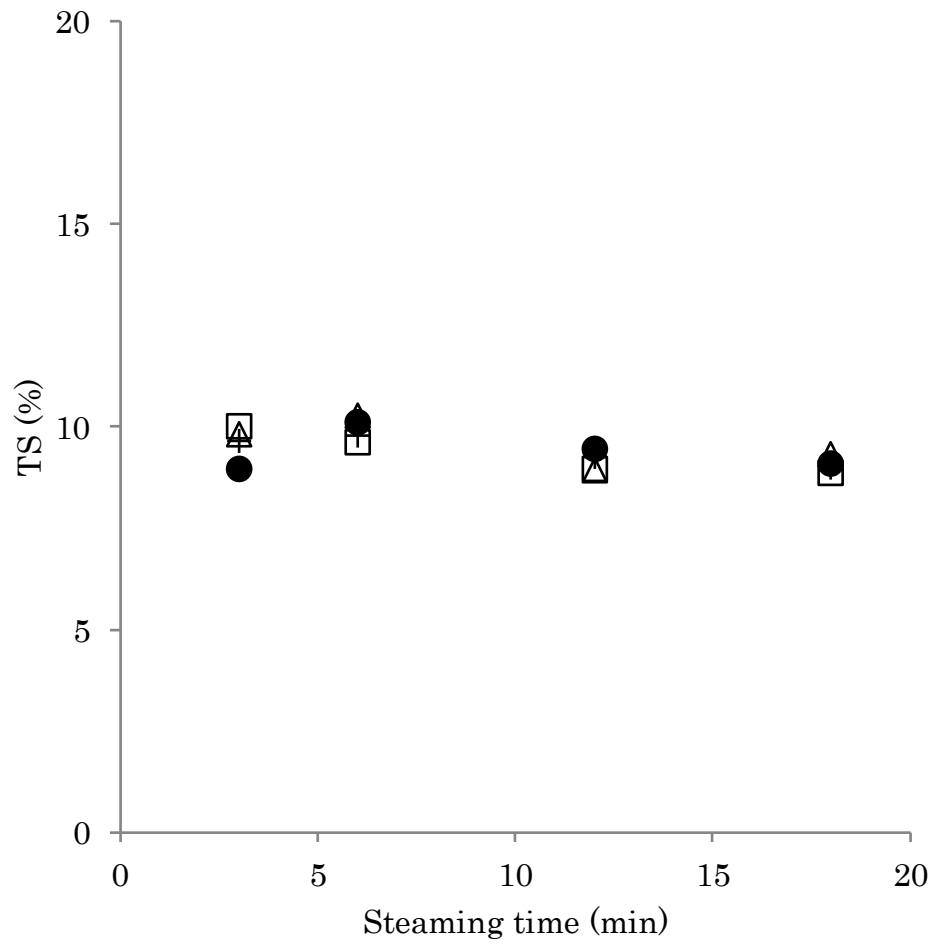


Fig.3-12 Relationship between steaming time and thickness swelling (TS).
 Notes: Initial moisture content of sample, ●: 10%; □: 30%; △: 60%; +: 90%.

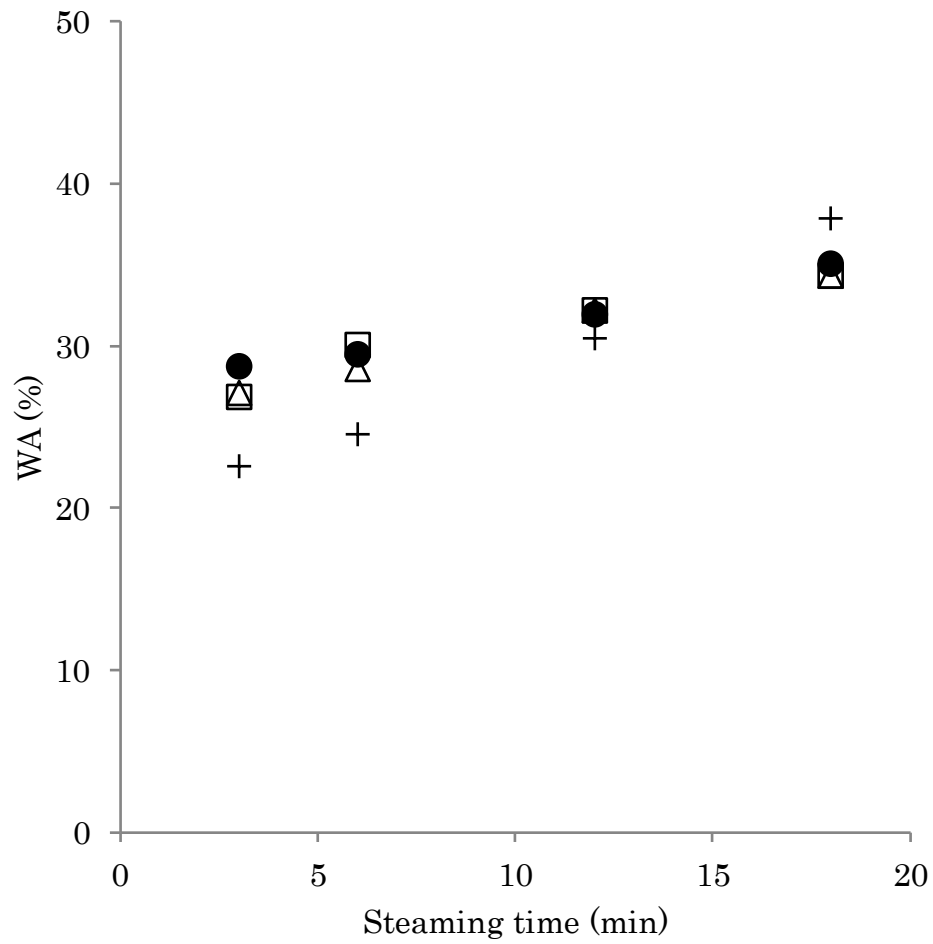


Fig.3-13 Relationship between steaming time and water absorption (WA).
 Notes: Initial moisture content of sample, ●: 10%; □: 30%; △: 60%; +: 90%.

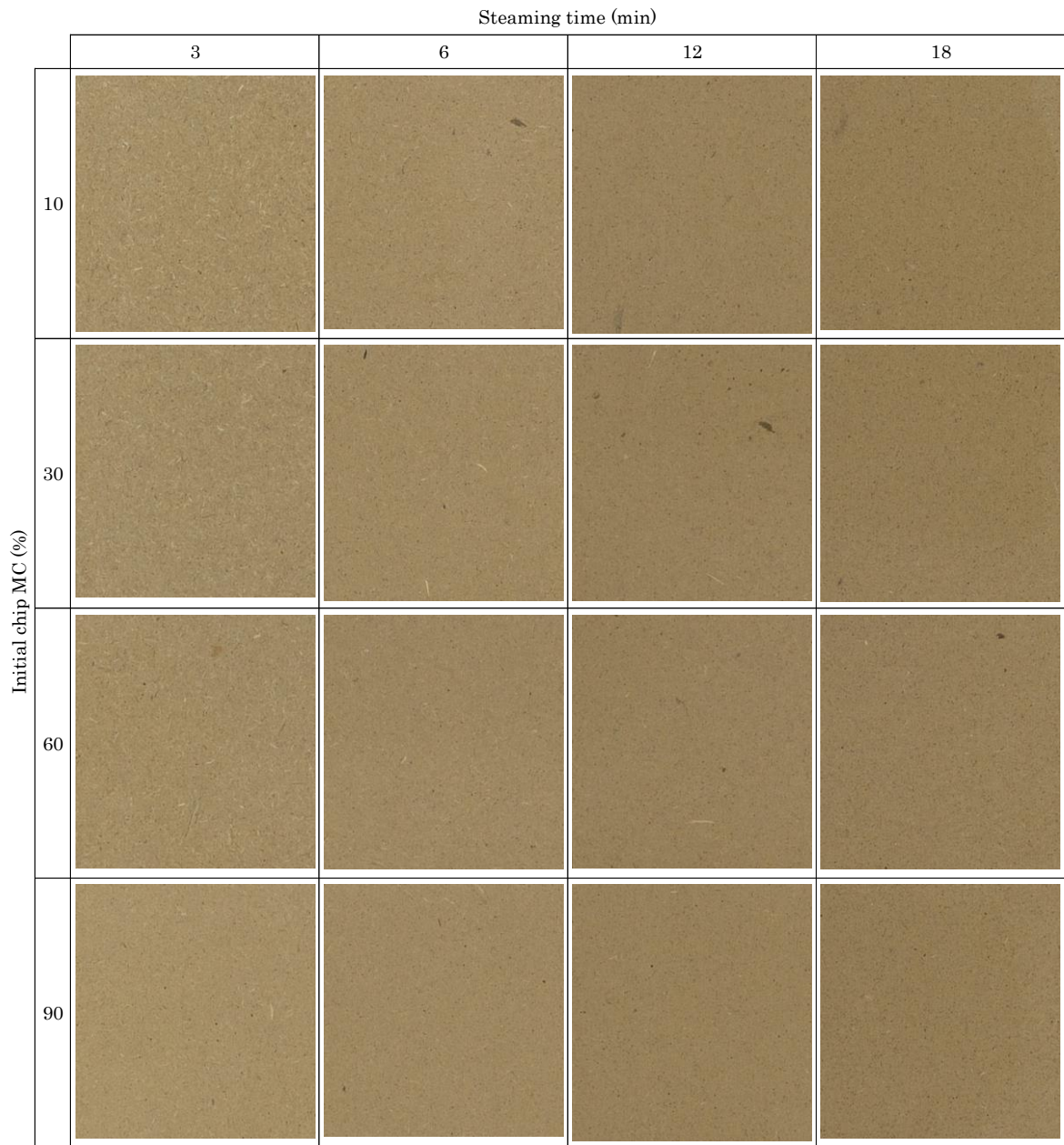


Fig.3-14 Surface appearance of MDF in various refining conditions.

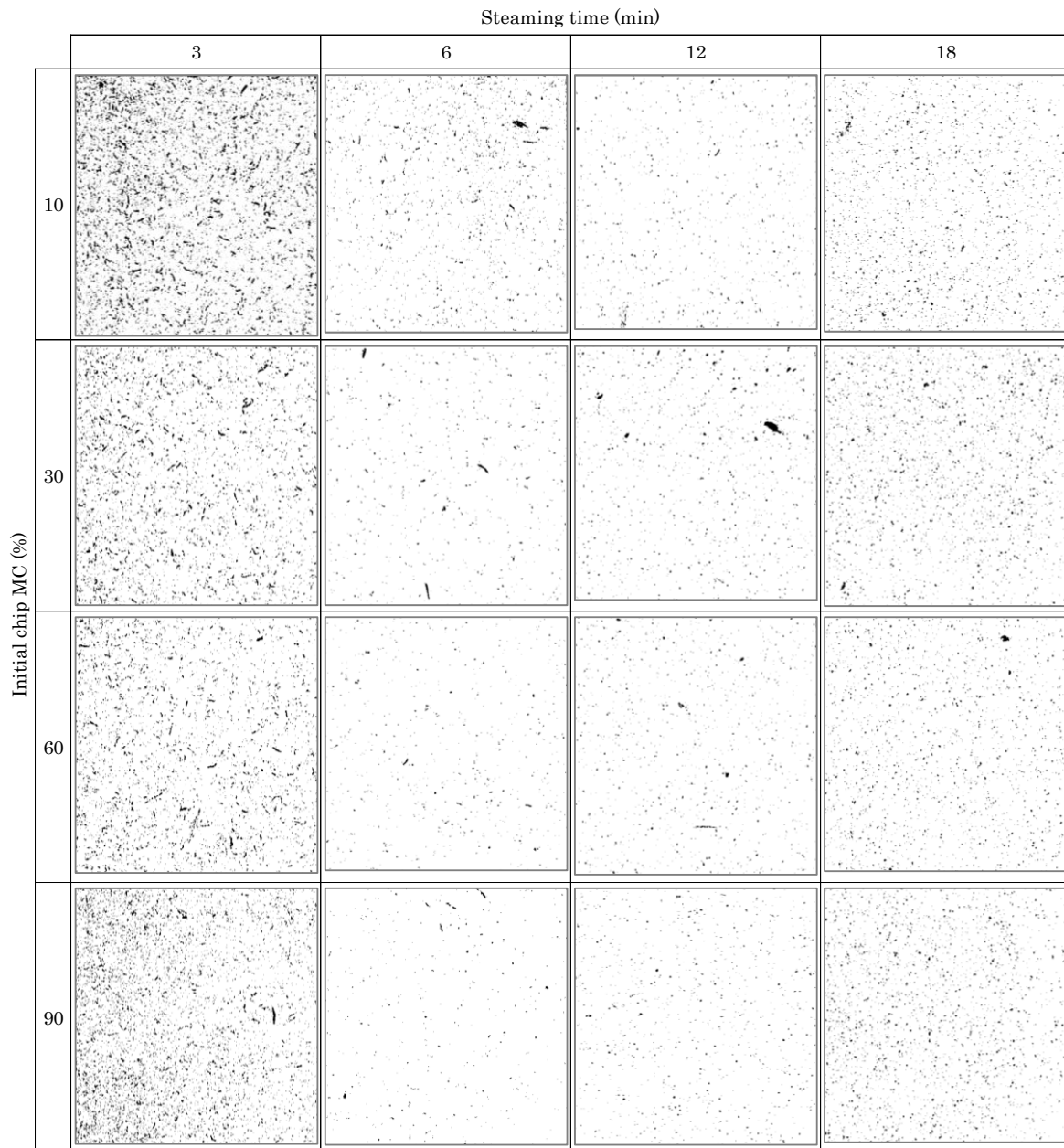


Fig.3-15 Binarized image of surface appearance of MDF in various refining conditions.

Table.3-7 Results of visual evaluation of surface appearance.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)			
	3	6	12	18
10	No good	No good	Good	Good
30	No good	Good	Good	Good
60	No good	Good	Good	Good
90	No good	Good	Good	Good

Notes: Criteria for visual evaluation, Good: The board surface is mostly occupied with fine fibers (coarse fiber within a few pieces), No good: Many coarse fibers on the board surface.

3.3 本章の要約

各蒸煮条件にて解繊された繊維およびそれを用いて作製された MDF を比較検討した結果、以下の結論を得た。

- 1) アカシアマンギウムの解繊繊維長の分布は、高初期含水率チップを用いた場合や蒸煮時間を長くした場合に、それぞれ含水率、蒸煮時間に依存して 0.3 mm 付近の短繊維ピークが減少し、1.0 mm 付近の木繊維細胞繊維長に近いピークが増加する傾向を示した。前章で得られた蒸煮後の換算含水率は、繊維長 0.5 mm 以下の短繊維の割合及び繊維長 2 mm 以上の粗繊維の割合のいずれとの関係においても負の相関を示したことから、蒸煮後、すなわち解繊時に自由水が多く存在する場合に繊維が長さ方向に切断、摩砕される頻度が減少するなど、蒸煮時にチップが持つ水分量が解繊繊維をより木繊維細胞の形状決定に重要な要素であることが示唆された。
- 2) MDF の曲げ強度は短時間の蒸煮で最も高く、長時間になるとヘミセルロースの溶脱によるものと推定される低下が認められた。また使用する木材チップの初期含水率が高いほど解繊繊維の短繊維割合が減少し、MDF 曲げ強度が増加する傾向が認められた。これらのことから、アカシアマンギウムを原材料とする場合、高初期含水率チップを用い、短時間の蒸煮で解繊を行うことで高い曲げ強度を有する MDF を製造可能なことが明らかとなった。
- 3) MDF の剥離強度には、蒸煮時間の影響は見られなかった。
- 4) MDF の吸水厚さ膨張率について、初期含水率や蒸煮時間の影響は小さく、吸水率は蒸煮時間が長いほど高い値を示した。
- 5) MDF の表面性は、蒸煮時間が 3 分ではチップの初期含水率に依らず、大きな繊維が試料表面上に多く存在し、不良となった。これは蒸煮時間が短いため木材成分の軟化の程度が十分でなく、解繊が十分になされなかったことが原因と推察された。また初期含水率 10%、蒸煮時間 6 分の条件でも表面性は不良となった。これは、解繊繊維長分布における粗繊維割合が解繊時の水分が多いほど低下したことから、6 分間の蒸煮ではチップの含水率が十分に増加していなかったためであると推察された。これらのことから、繊維束の少ない良好な MDF の表面性を得るためには、解繊時に多くの水分を持たせる必要があることが示唆された。

第四章 解繊時加水による物性改善効果

これまでの検討で、初期含水率が高いチップを使用する、あるいは長時間の蒸煮を行うといった解繊時に自由水が多く存在する場合に、解繊繊維の短繊維及び粗繊維の割合が小さくなることが明らかになった。そして長時間蒸煮による成分変化の影響を除けば、短繊維割合の低減により、MDFの曲げ強度が改善され、また粗繊維割合の低減によりMDFの表面性が改善されることが明らかになった。

本章では、解繊時の水の働きを明らかにすることを目的として、初期含水率が高いチップを使用する、あるいは長時間の蒸煮を行うといった木材中に含まれる水分（結合水＋自由水）を増加させるのではなく、木材チップの空隙率から計算される最大含水率に見合う水分を解繊時に外部から直接添加することを検討した。具体的には初期含水率の低いアカシアマンギウム（*Acacia mangium* Willd.）のチップを用いて、所定時間（6分）の蒸煮を行った直後のチップに対して加水処理を行った。加水処理が解繊繊維形状、そしてMDFの物性に及ぼす影響について評価を行った。

4.1 実験方法

4.1.1 供試材料およびその調整

供試材料にはマレーシア産の13年生アカシアマンギウム（*Acacia mangium* Willd.）を用いた。伐採した丸太を厚さ15 mm、幅60 mm、長さ2 mの板材とした後、ドラムチップパー（秋木機械製、KMV-603）を用いて切削チップを作製した。切削チップをふるいで分級して6～25 mmの供試材料とした。このときチップの含水率は10%であった。このチップを含水率の変動を生じないようにポリエチレン製の袋に入れ、密閉した状態で20℃の恒温室内に2週間静置した。チップの一部（約50g）を採取し、その重量と105℃の乾燥機（タバイ製、PHH-200）で一晩乾燥させた後の重量から含水率を算出し、目標の含水率に達していることを確認した。

4.1.2 解繊と加水

加圧解繊には熊谷理機工業株式会社製の加圧シングルディスクリファイナー（BRP-300SS）を使用し、刃はJタイプのものを用いた。蒸煮条件は、蒸気ゲージ圧力0.7 MPa（約170℃）、蒸煮時間6分とした。蒸煮後、スクリーフィーダーにて磨砕盤へと払い出されるチップに対し、日機装社製ポンプ設備（2S2AZ-0.4-28DIK）を用いて250～1000mlの加水処理を行った（Fig.4-1）。加水処理時に添加する水分量については、解繊に供されるチップの含水率に換算した場合に50～200%となるよう流量を調整した。各水準の解繊は、2～6回実施した。解繊時の刃の間隔は0.10 mmとした。チップの初期含水率、蒸煮時間、加水流量、蒸煮圧及び磨砕盤間隔の条件をTable.4-1に示す。

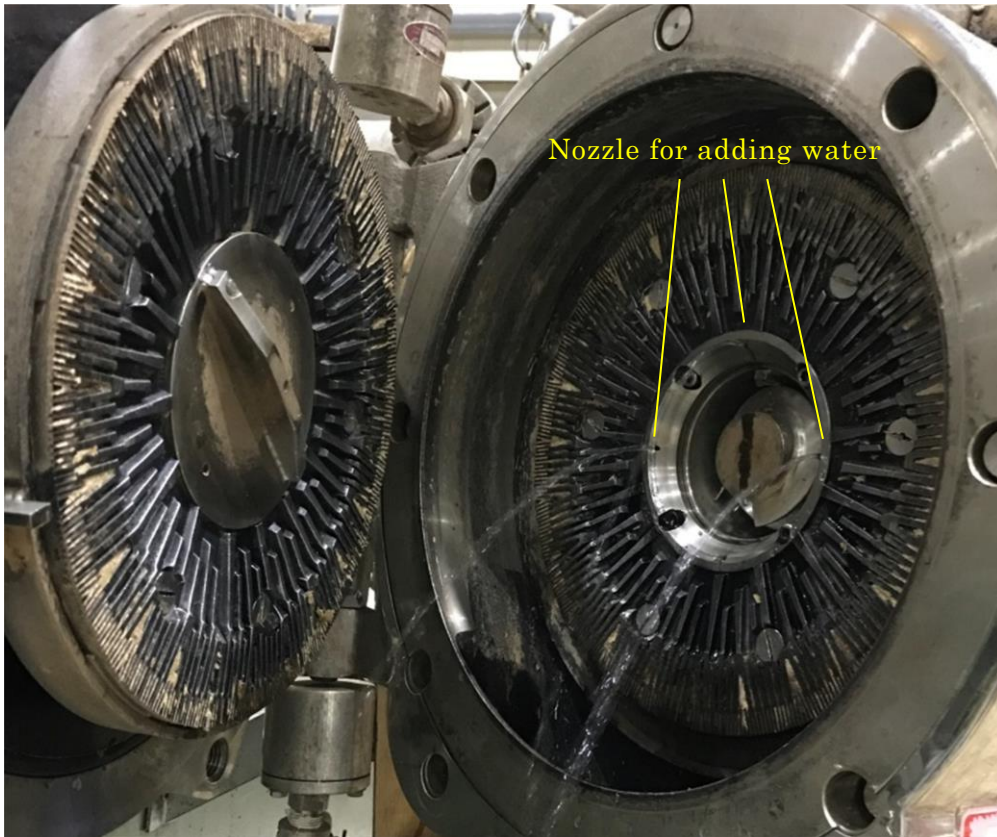


Fig.4-1 Adding water at the end of screw feeder, just before refining.

Table.4-1 Specification for defibration tests.

Initial chip MC	Steaming time	Water flow rate	Chip MC converted from water flow rate	Gauge pressure	Segment gap
(%)	(min)	(ml/min)	(%)	(Mpa)	(mm)
10	6	0	-	0.7	0.10
		250	50		
		500	100		
		750	150		
		1,000	200		

4.1.3 解繊繊維形状の評価

解繊実験で得られた繊維について、Metso 社製の繊維長測定設備 (Kajaani FS-300) を用いて繊維形状の評価を行った。

本設備を用いた測定により、解繊繊維の長さ加重平均繊維長 L_L 及び繊維長分布、そして長さ加重平均繊維幅 W_L を得た。チップの初期含水率、蒸煮時間と得られた解繊繊維の長さ加重平均繊維長及び長さ加重平均繊維幅を Table.4-2 に示す。

Table.4-2 Fiber morphology in various defibration conditions.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Water amount (ml/min)	Water amount, convert to chip MC (%)	Fiber length L_L mm	Fiber width W_L um		
10	6	0	-	0.79	20.81		
				0.87	22.96		
				1.07	23.07		
				0.92	22.86		
				0.92	20.62		
				0.91	23.00		
				250	50	0.88	21.52
				0.83	21.48		
				1.03	21.31		
				500	100	0.88	20.72
				0.86	21.05		
				0.91	21.73		
				0.90	21.46		
				1.02	20.16		
				750	150	0.91	21.14
0.95	21.36						
0.94	21.72						
0.97	21.41						
1.21	22.88						
0.97	20.17						
1,000	200	0.92	21.09				
0.93	21.64						

4.1.4 MDF の成形

各解繊条件につき 1 枚の MDF を作製した。MDF の成形条件を Table.4-3 に示す。成形条件は、目標密度 0.75 g/cm^3 、目標寸法 $350 \times 350 \times 3 \text{ mm}$ とした。接着剤は MDI (東ソー, 450SS) を用い、全乾木質重量比で 6% 添加した。接着剤が添加された繊維を寸法 $350 \times 350 \text{ mm}$ の樹脂性枠内に手撒きすることでフォーミングマットを成形した。熱圧プレス条件は、温度 160°C 、時間 1 分とした。成形した MDF は 20°C の室内環境下で 24 時間放冷した後、表裏面をベルトサンダー (ペーパー粒度 #150) で研磨し、厚さを 2.7 mm に調整した。研磨した MDF を $20^\circ\text{C} 65\% \text{RH}$ 下で恒量となるまで調湿し、物性評価に供した。

Table.4-3 Parameters for MDF board making.

Processing parameter	Value
Target density (g/cm^3)	0.75
MDI* resin content (%)	6
Dimension (mm)	350 x 350
Thickness after hot pressing (mm)	3
Press temperature (deg.C)	160
Press time (min)	1
Thickness after sanding (mm)	2.7

* MDI: 4,4'-Diphenylmethane diisocyanate.

4.1.5 MDF の物性評価

各試験にて得られた結果は、試験体密度の影響を排するために各値に（全試験体の平均密度/試験体密度）を乗ずることで密度補正を行った。

4.1.5.1 曲げ試験

曲げ試験は 20℃の室内環境下で行った。幅 50mm，厚さ 2.7 mm の試験体を 1 条件につき各 5 体供試した。試験設備はエー・アンド・デイ社製万能材料試験機 (TENSILON, RTF-2325) を用い，スパン 150 mm，中央集中荷重方式で行った。このときクロスヘッドスピードは 10 mm/min とした。

4.1.5.2 剥離試験

剥離試験は 20℃の室内環境下で行った。長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 3 体供試した。前項と同じ万能材料試験機を用い，クロスヘッドスピードは 2 mm/min として試験した。

4.1.5.3 吸水厚さ膨張率および吸水率の測定

長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 3 体供試した。厚さ，重量を測定した試験体を 20℃の冷水に 24 時間浸漬した後，再度厚さと重量を測定し，浸漬前の値を基準値として吸水厚さ膨張率および吸水率を算出した。

4.1.5.4 目視外観評価

長さ 50 mm，幅 50 mm の試験体を 1 条件につき各 1 体供試した。目視にて比較的寸法の大きな繊維の有無を評価した。

4.2 結果と考察

4.2.1 解繊繊維形状

初期含水率 10% のチップを一定時間 (6 分間) 蒸煮した後に各添加量 (0, 250, 500, 750, 1,000 ml/min) の加水を行った後に解繊して得られた解繊繊維の繊維長分布を Fig.4-2 に示す。加水流量 0 ml/min (チップ含水率 10%) では，0.3~1.0 mm 付近をピークとするブロードな分布となったが，加水流量の増加に伴い，短繊維の割合は減少し，細胞繊維長に近い 1.0 mm 付近のピークが増加し，加水流量 750ml/min 以上の条件で繊維形状分布は安定した。この傾向は，前章で述べたチップの初期含水率の解繊繊維に対する影響と非常によく似ている。加水流量と短繊維割合の関係を Fig.4-3 に，加水流量と粗繊維の割合の関係を Fig. 4.4 に示す。前章で述べたように，短繊維割合の低減が MDF の曲げ強度の改善に，そして粗繊維割合の低減が MDF の表面性の改善にそれぞれ寄与する傾向が認められたが，短繊維割合，粗繊維割合はいずれも加水流量増加に伴い低減する結果となった。解繊繊維の形成において，木材成分の軟化に影響

響を及ぼす細胞壁中の結合水以外の水分を，解繊時に予め木材に担持させておく必要がないということが，今回の加水処理の結果から明らかになった。つまり解繊繊維形状は，蒸煮前後など水分の与えられるタイミングに依らず，解繊時に木材の細胞内腔に存在する自由水や繊維近傍に存在する水によって強く影響を受けるとことが推察された。加水処理は，解体材など低含水率の材料を利用する場合にも有効となる。鈴木らは，解体材をハードボードの原材料として利用する際に，解体材を予め水中に浸漬し，含水率を 180% と高くすることで，未解繊物のない良質な解繊繊維が得られたと報告している¹⁰⁰⁾が，今回の加水処理によれば，低含水率チップを用いた場合や短時間の蒸煮であっても，生材など高含水率の原材料と同様の細胞繊維長に近い，より均一な繊維形状が得られ，原材料の予備調整などがなくなると考えられる。

加水を行うことで得られる解繊繊維から短繊維が除かれる機構の考察を行うために，先ず蒸煮・解繊工程における繊維化の流れの概要について説明する。一定時間の蒸煮を終えたチップは加圧状態を保持したまま，スクリーフィーダーによって磨砕盤の中心部に供給される。そしてチップは磨砕盤中心部から放射状に外周部に向かって押し出され，その際，回転する磨砕盤の刃の間で細かくほぐされ，解繊繊維となる (Fig.4-5)。機械解繊では，製紙における化学解繊で行われるような薬剤によるリグニンの除去を実施していないため，得られる解繊繊維の形状は，細胞間層で分離された細胞繊維形状と一致するような十分にほぐされたものだけでなく，複数の細胞繊維の束になっているような解繊が不十分なもの (粗繊維) や，長さ方向に切断されるもの (短繊維) が含まれ，その分布は比較的ブロードな形となる傾向がある。

磨砕盤の刃の間の繊維の状態のモデルを Fig.4-6 に示す。ここで磨砕盤の刃の間を流動するチップから解繊繊維への変化の過程にある繊維化中間体を考える。この中間体は，磨砕盤の中心部から放射方向に向かって，飽和水蒸気により押し出されながら解繊が進み解繊繊維となる。低含水率チップ使用時など，解繊時に水が少ない場合，進行方向に対する中間体の繊維の配向角は不規則になることが推測されるため，進行の垂直方向 (円周方向) の磨砕盤の刃による負荷を，様々な角度で受けることになり，繊維長が切断される機会や，解繊が不十分なまま通過する機会が多いものと考えられる。一方で，高含水率チップの使用や加水処理など解繊時に自由水や繊維近傍に存在する水を多く介在させた場合には，中間体は水と共に磨砕盤の刃の間を流動することになる。実際には，中間体の大きさや個体間の距離，磨砕盤による負荷などの影響があるため非常に複雑であるが，定性的には Jeffery が明らかにしたニュートン流体の均質な流れ場におかれた回転楕円体粒子の運動理論¹⁰¹⁻¹⁰³⁾に従い，中間体は水の中を流動することで，中間体の長軸方向，つまり繊維方向が，流動方向に配向するものと考えられる。そのとき，磨砕盤の刃による円周方向の負荷は中間体における繊維方向の R, T 方向で受けることになるため，繊維長切断の機会および解繊が不十分なまま通過する機会が減少し，結果，短繊維および粗繊維割合の減少につながるものと推察される。

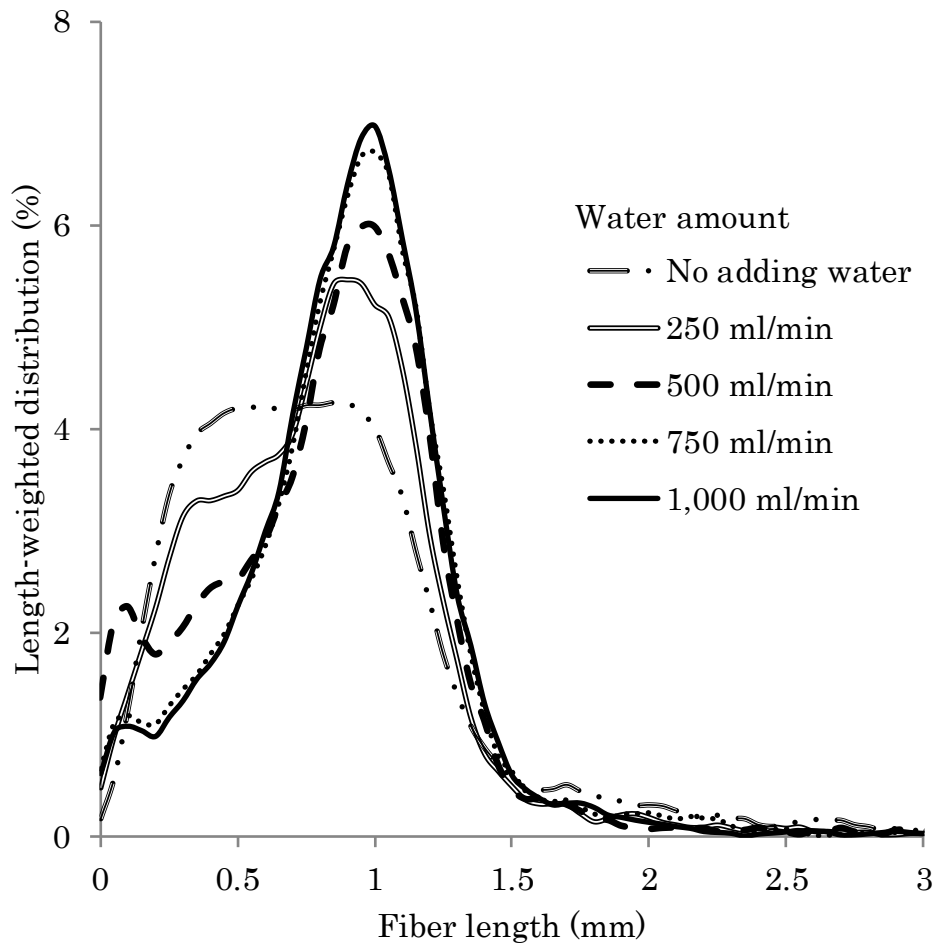


Fig.4-2 Fiber length distribution of wood chip with an initial moisture content of 10% defibrated by adding water at various flow rates.

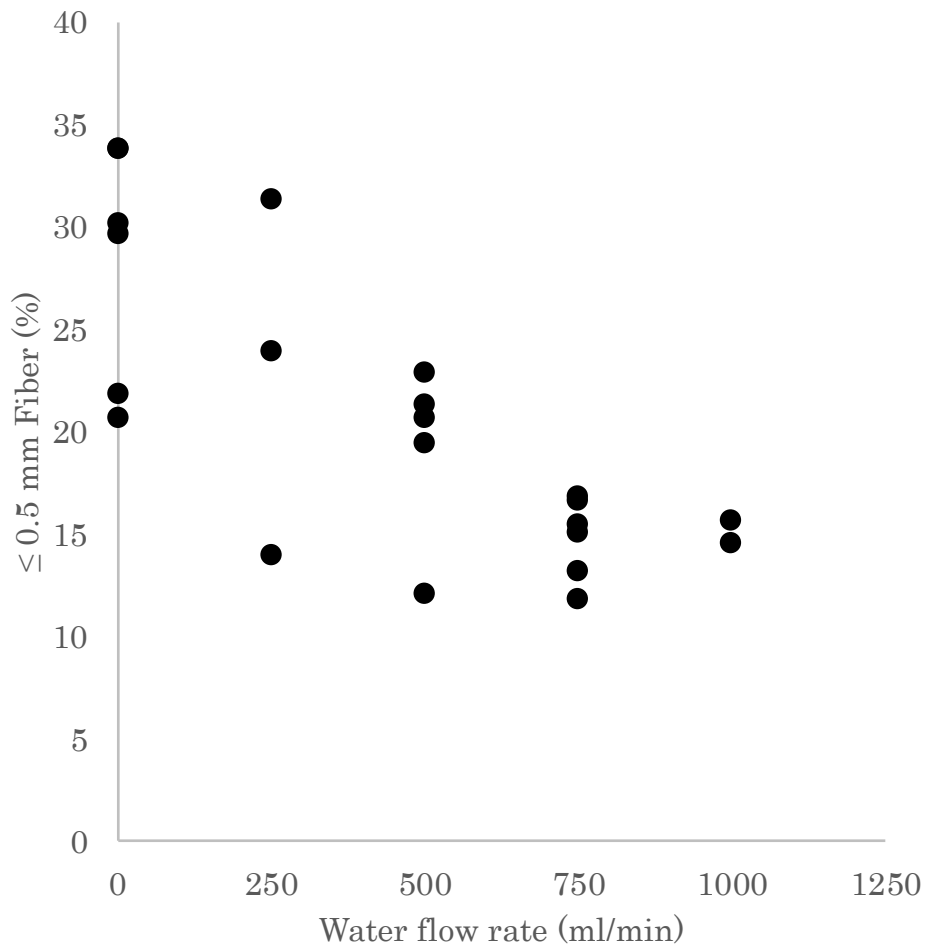


Fig.4-3 Relationship between water flow rate and short fiber ratio.

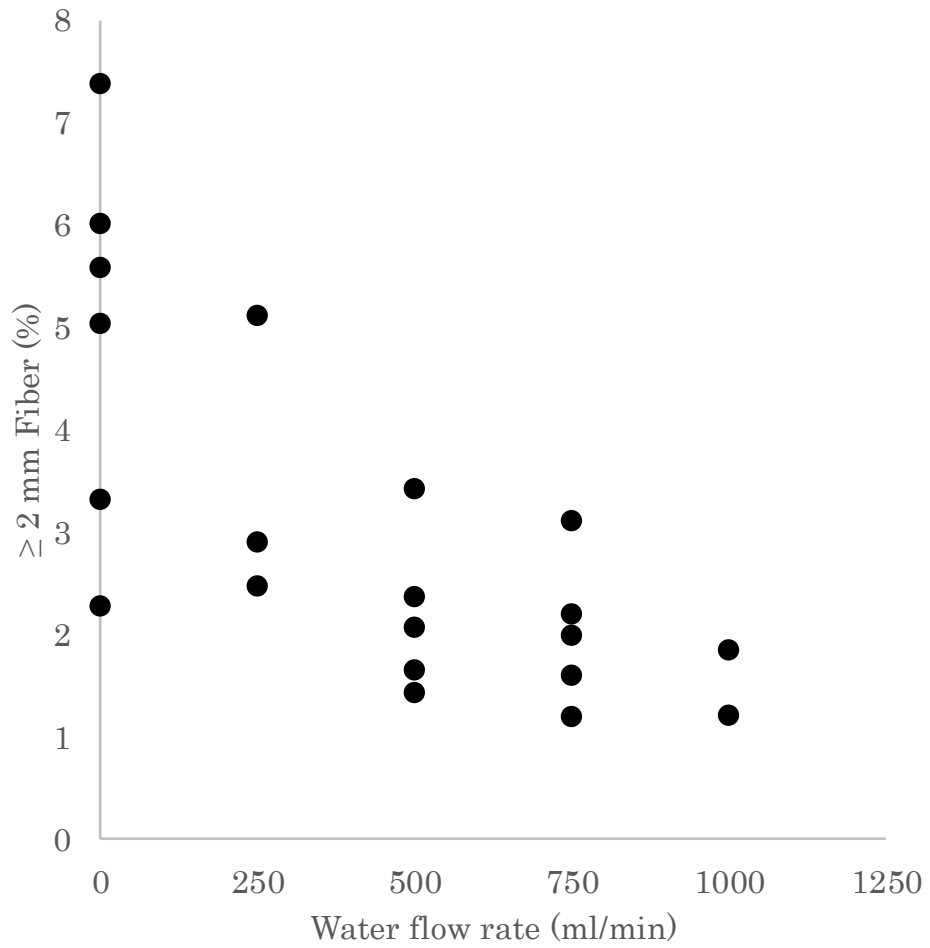


Fig.4-4 Relationship between water flow rate and coarse fiber ratio.



Fig.4-5 Inside the refiner (Stator side).

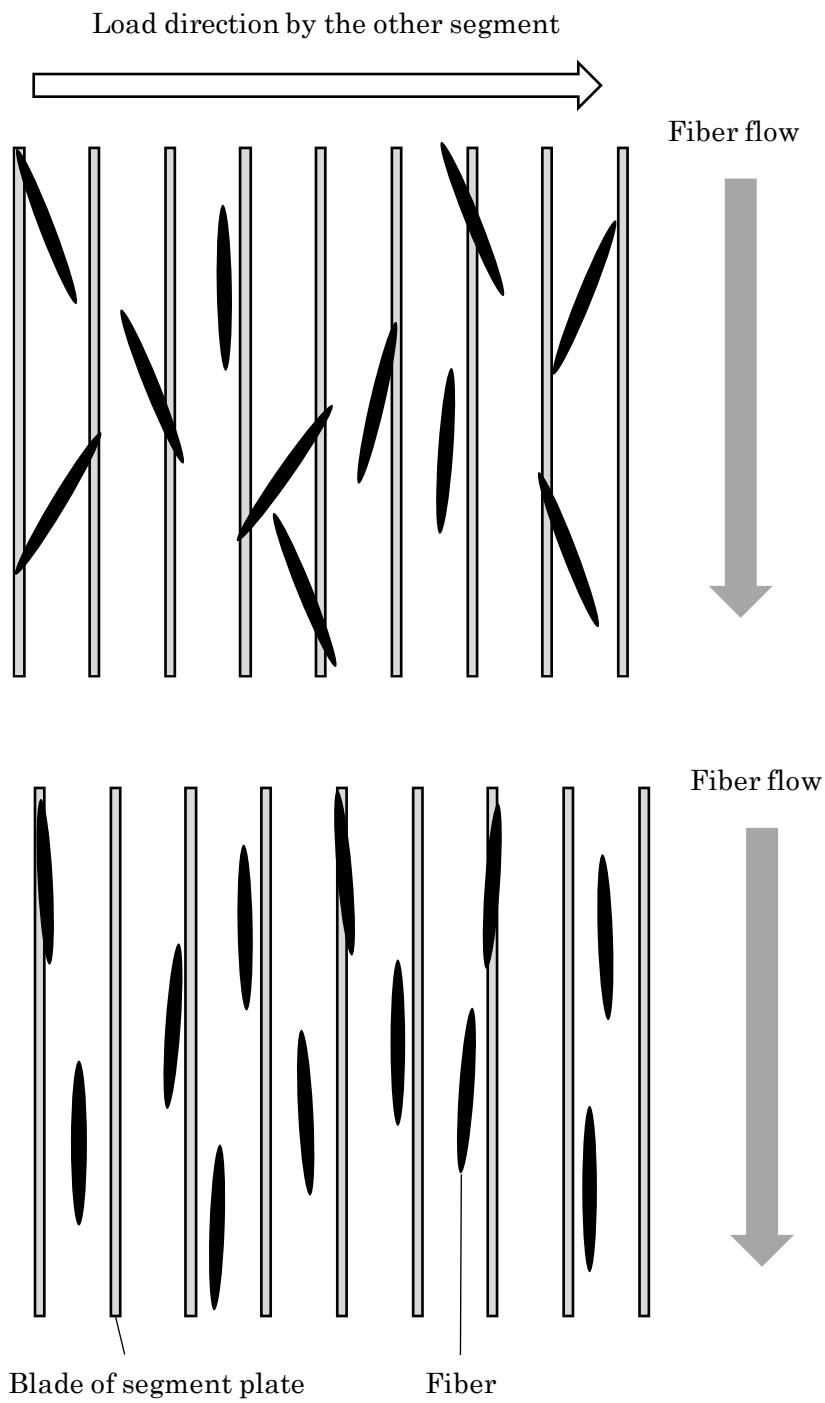


Fig.4-6 Schematic diagram of fiber flow on the segment plate inside the refiner.
 Notes: Top; condition without adding water, Bottom; with adding water.

4.2.2 MDF の物性

4.2.2.1 曲げ強度

MDF の曲げ強度の密度補正後の平均値と加水流量の関係を Fig.4-7 に示す。無処理（加水なし，初期含水率 10%）で曲げ強度が 35.8 MPa（標準偏差 4.4 MPa）であったが，加水処理を行った結果，250 ml/min では曲げ強度が 38.8 MPa（標準偏差 4.0 MPa），500 ml/min では同じく 38.9 MPa（標準偏差 2.1 MPa），750 ml/min では 38.4 MPa（標準偏差 3.1 MPa），1,000 ml/min では 38.8 MPa（標準偏差 2.2 MPa）となり，加水処理を行った場合，3MPa 程度，曲げ強度が改善される傾向が認められた。また曲げ強度の値のばらつきに関しても，500 ml/min 以上の流量ではばらつきの低減が認められ，加水処理により，高く，安定した MDF の曲げ強度の発現が可能であることが示唆された。

次に MDF の曲げ強度の密度補正後の平均値と繊維長分布における長さ 0.5 mm 以下の短繊維割合の関係を Fig.4-8 に，さらに凡例を無処理と加水処理で分けたものを Fig.4-9 に示す。短繊維割合と曲げ強度の間に負の相関が認められ，前章で述べたチップの初期含水率の変化が及ぼす影響と同様，短繊維割合の低減が曲げ強度の改善に寄与する傾向が認められた。そして 4.2.1 でも述べたように，加水処理により短繊維割合の低減し，そのことが曲げ強度の改善に寄与したものと考えられる。

前章の結果を併せて考えると，チップを高含水率とする場合や長時間蒸煮を行う場合のような多くの自由水の存在と同様に，加水処理により解繊時に外部から潤滑作用のある液体の水分を存在させることで，解繊繊維の形状は短繊維の少ない，より均一な形状分布となり，そのことが，MDF 成形時，繊維同士の接着剤による結合点の増加につながり，強度改善，安定化に大きく寄与したものと推察される。

前章の実験結果において，同じ蒸煮条件（蒸煮時間：6 分）での解繊繊維の短繊維割合と MDF の曲げ強度は，初期含水率 10%では短繊維割合 45.9%，曲げ強度 41.2 MPa であり，30%では 35.7%，42.0 MPa，60%では 31.0%，42.7 MPa，90%では 23.2%，44.5 MPa であった。これらを今回の結果と比較すると，総じて今回の結果の方が，同じ短繊維割合における曲げ強度が低い結果となった。この曲げ強度の差の原因として繊維の密度差を考えた。MDF 成形時のフォーミングマット高さを比較すると，前章での MDF 製板時には平均 142 mm であったのに対し，本章での製板時は 123 mm であった。同密度の MDF を成形する際にマットがかさ高いということは，繊維の密度が低く，より多くの繊維によりボードが構成されることを指す。この繊維本数の増加により，繊維同士の結合の頻度が上がり，曲げ強度に寄与したことが推測された。前章と本章では用いたチップのロットが異なっており，個体差に起因するものと考えられる。このように MDF の曲げ強度に影響を及ぼす他の因子の存在を考慮する必要があるが，同一ロット内においては短繊維割合の曲げ強度への影響は傾向が明確に表れているものとする。

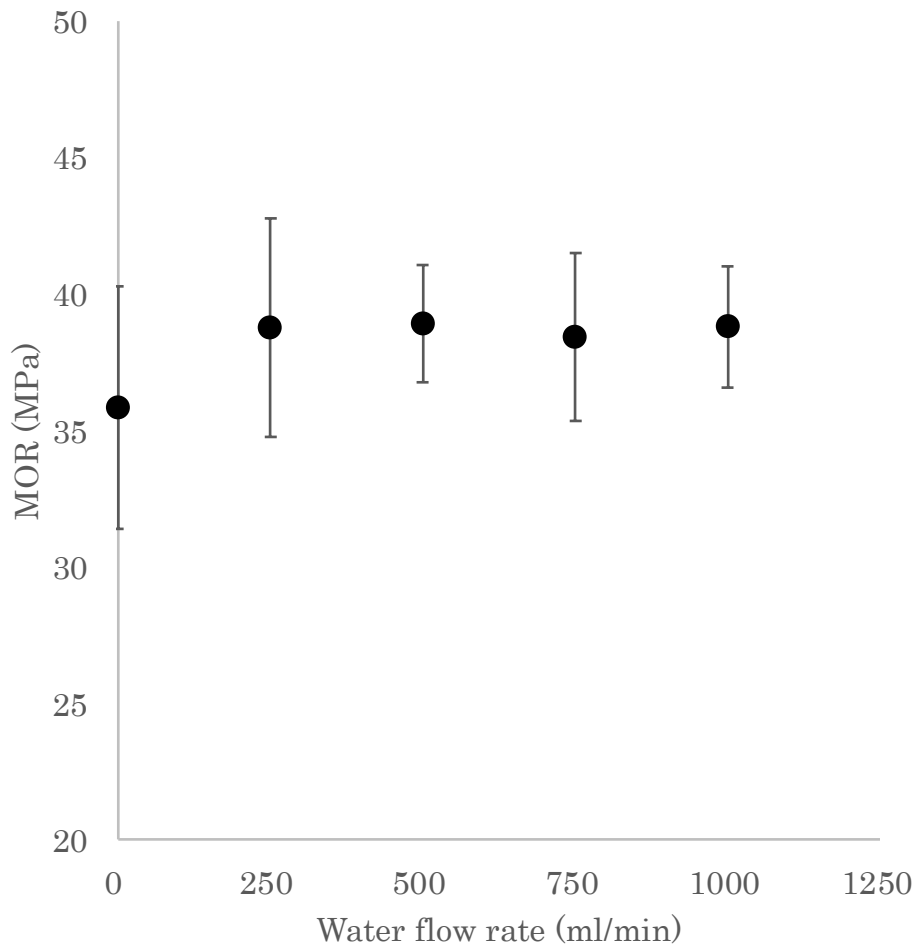


Fig.4-7 Relationship between water flow rate and modulus of rupture (MOR).
Notes: Error bars indicate standard deviations.

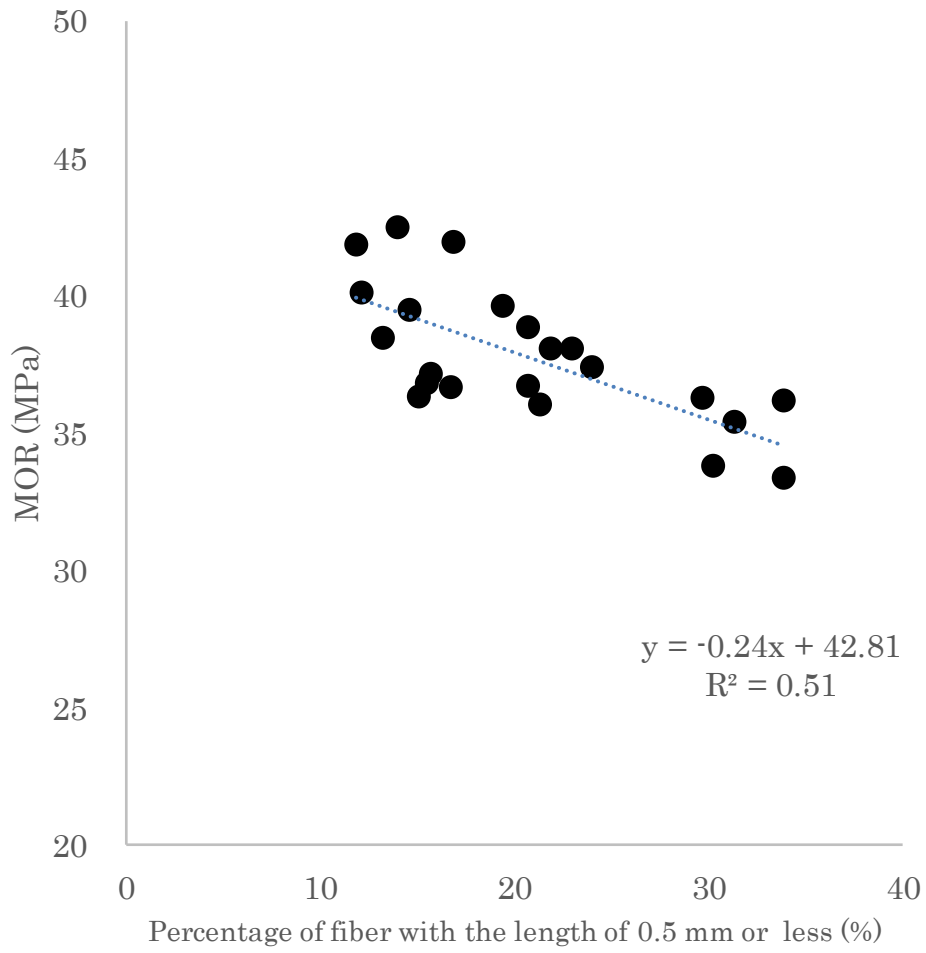


Fig.4-8 Relationship between short fiber ratio and modulus of rupture (MOR).

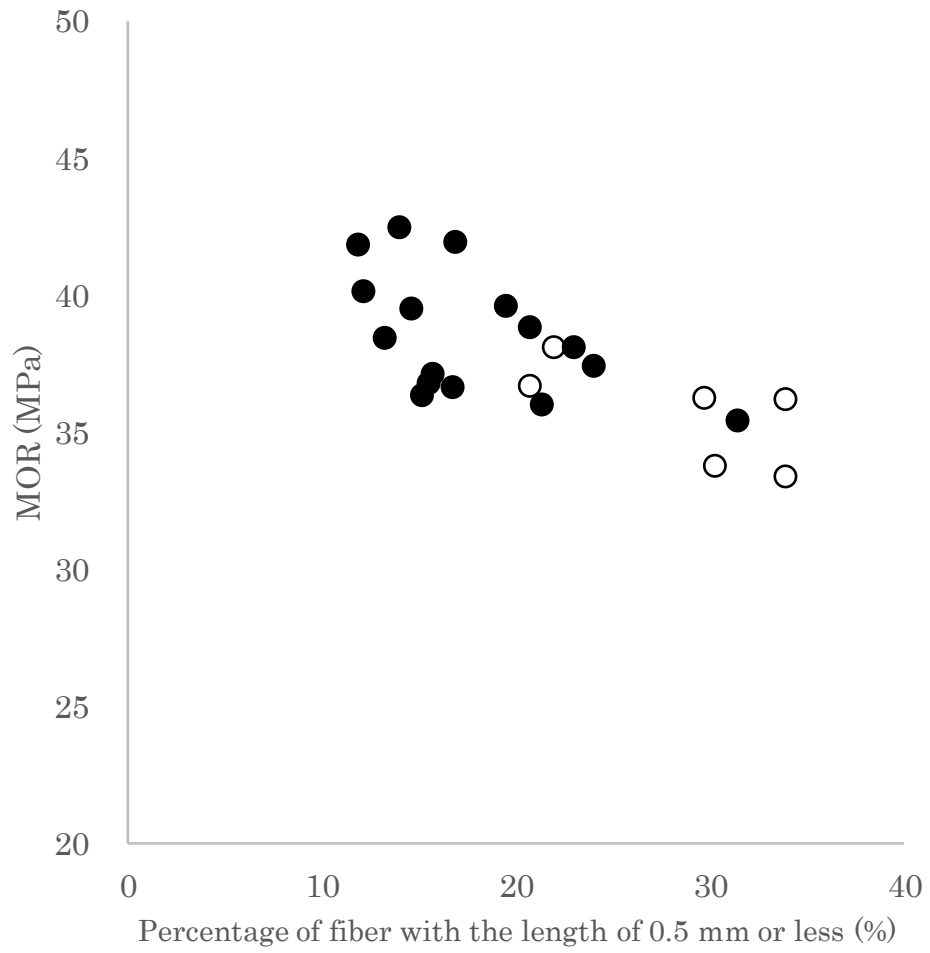


Fig.4-9 Relationship between short fiber ratio and modulus of rupture (MOR).

Notes: ○; no adding water, ●; adding water.

4.2.2.2 剥離強度

MDF の剥離強度の密度補正後の平均値と加水流量の関係を Fig.4-10 に示す。剥離強度は、無処理（加水なし、初期含水率 15%）で 2.0 MPa（標準偏差 0.4 MPa）、加水処理 250 ml/min で 2.1 MPa（標準偏差 0.5 MPa）、500 ml/min で 1.7 MPa（標準偏差 0.5MPa）、750 ml/min で 1.9 MPa（標準偏差 0.5 MPa）、1,000 ml/min で 1.6 MPa（標準偏差 0.6 MPa）となり、ばらつきが大きいですが、全体的にわずかに低下する傾向が認められた。剥離強度は繊維間の接着性能を示すものであり、加水処理が繊維間の接着性能に対して悪影響を及ぼす原因は不明であるが、JIS 30 タイプにおける剥離強度の基準値 0.5 MPa に対して、いずれの水準も 1.6~2.1 MPa と基準値を大きく上回っており、実用上問題のないレベルであると考えられる。また短繊維割合と剥離強度の間に明確な相関は認められなかったことから、剥離強度に対しては、曲げ強度で見られたような繊維形状の影響は小さいことが示唆された。

4.2.2.3 吸水厚さ膨張率および吸水率

MDF の吸水厚さ膨張率の密度補正後の平均値と加水流量の関係を Fig.4-11 に、そして吸水率の密度補正後の平均値と加水流量の関係を Fig.4-12 に示す。吸水厚さ膨張率、吸水率ともに各水準で大きな差は認められなかった。このことから加水処理による MDF の耐水性への影響は小さいものと推測された。

4.2.2.4 表面性

MDF 試料表面の写真画像を Fig.4-13 に、そして表面状態の視認性を向上させるために、試料表面の写真画像を画像解析ソフト、Image J に取り込み、共通のしきい値を用いて 2 値化を行った画像を Fig.4-14 に示す。目視による外観評価結果を Table.4-4 に示す。加水処理を行ったもので、試料表面上に目立って大きな繊維は少なくなり、MDF の表面性は改善される結果となった。4.2.1 で述べたように、加水処理により、繊維長 2 mm 以上の粗繊維は低減する傾向が認められた (Fig. 4-4)。従ってチップを高含水率とする場合や長時間蒸煮を行う場合と同様に、加水処理によって解繊時に自由水や繊維近傍に存在する水が存在することになり、そのことにより解繊の程度がより進み、繊維束の少ない良好な表面性となることが推察された。

以上のことから、加水処理は、短繊維割合の低減に基づく曲げ強度改善、安定化の効果に加え、粗繊維低減による MDF 表面性改善効果もあることが明らかとなった。

4.2.3 加水処理のメリット、デメリット

ここまでの検討で、加水処理による MDF の物性面への影響、効果について述べてきたが、実際の製造ラインへの適用を想定した場合の製造面における加水処理のメリット、デメリットについて考えてみたい。

メリットについては、まず処理方法が安価、簡便であることが挙げられる。処理に必要なものは、接着剤を添加する際に使用するような耐圧ポンプとノズル、そして添加する水を用意すれば良い。また処理が製造設備や作業環境に悪影響を与える可能性が

低いことも挙げられる。水による処理であるため、酸による金属腐食劣化や有毒ガスの発生など、深刻なリスクを懸念する必要がなく、設備保全、労働環境の改善に寄与する。

一方でデメリットとしては、加水処理により多量の水を解繊時に添加することになるため、次工程である乾燥工程にて、従来以上に乾燥エネルギーを必要とすることが考えられる。物性の改善効果をもたらす必要最小限の適切な加水流量の調整が必要になるものとする。

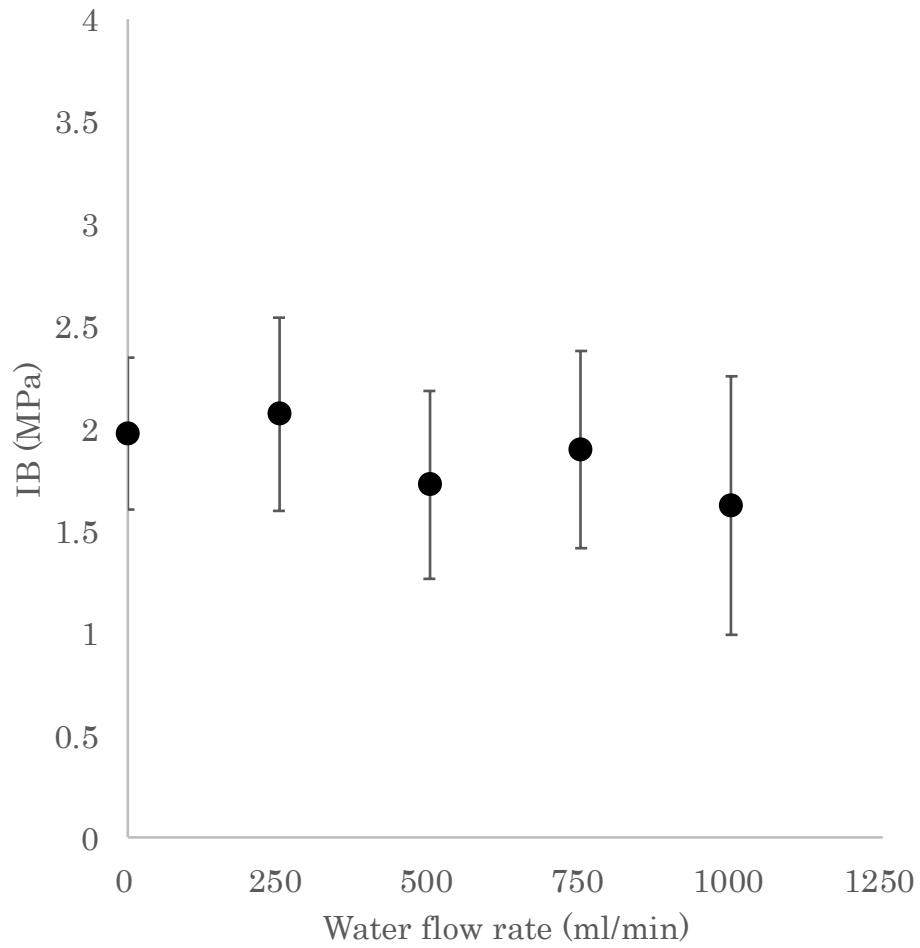


Fig.4-10 Relationship between water amount and internal bonding (IB).
Notes: Error bars indicate standard deviations.

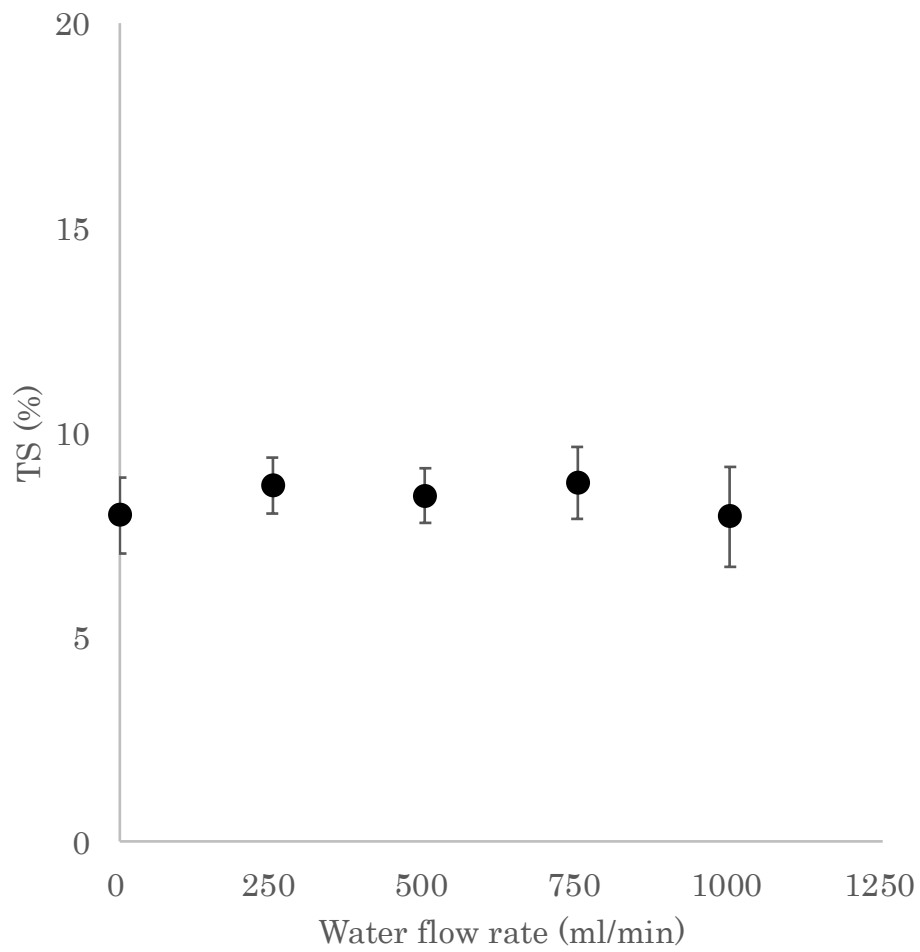


Fig.4-11 Relationship between water amount and thickness swelling (TS).
Notes: Error bars indicate standard deviations.

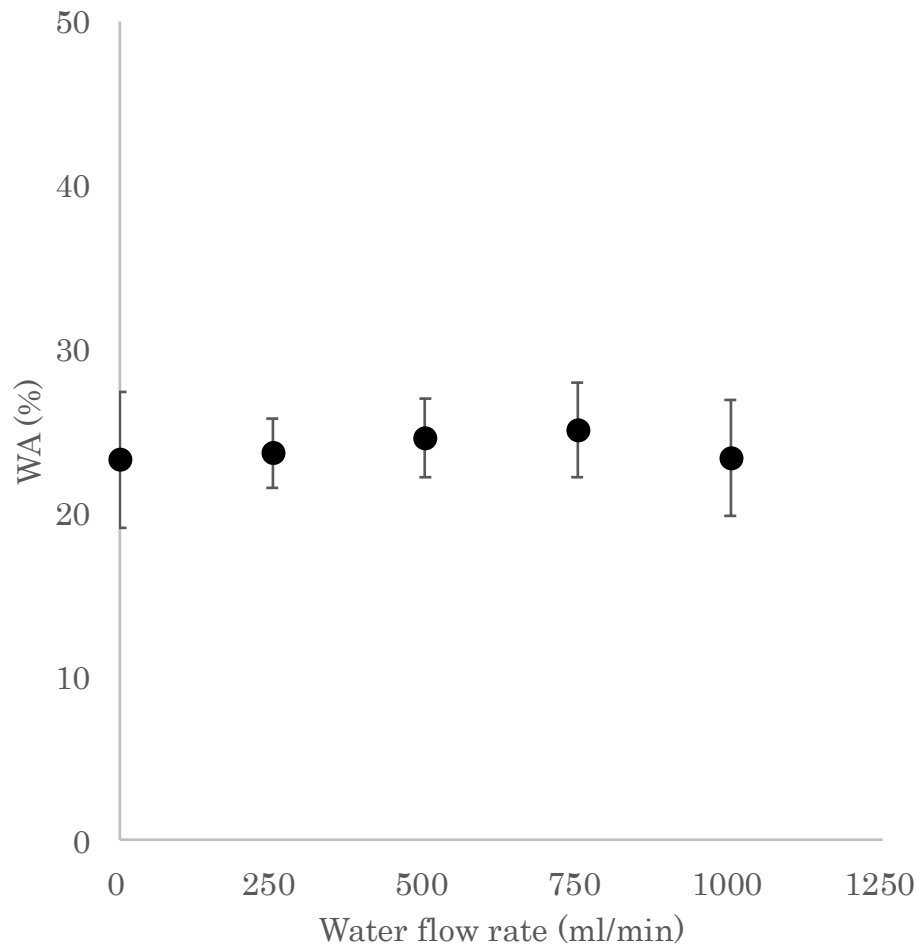


Fig.4-12 Relationship between water amount and water absorption (WA).

Notes: Error bars indicate standard deviations.



Fig.4-13 Surface appearance of MDF.
Top; No adding water, Bottom; Adding water (1,000 ml/min).

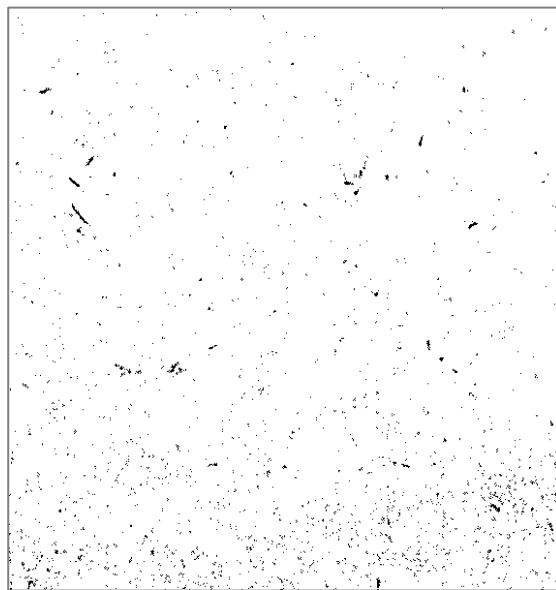
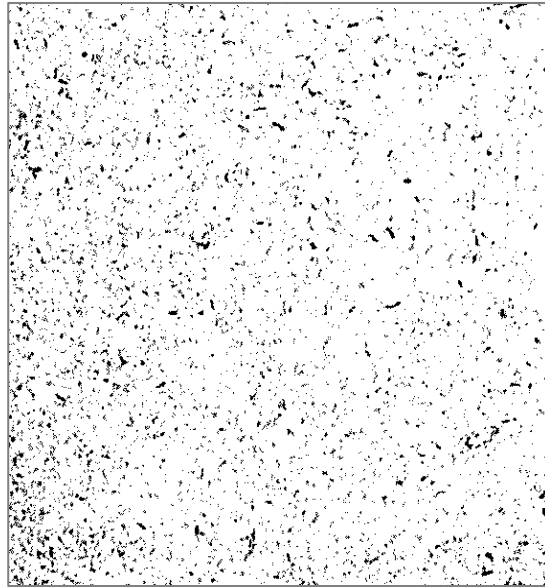


Fig.4-14 Binarized image of surface appearance of MDF.
Top; No adding water, Bottom; Adding water (1,000 ml/min).

Table.4-4 Results of visual evaluation of surface appearance.

Initial chip MC (%)	Steaming time (min)	Water amount (ml/min)	Surface appearance
10	6	0	No good
		250	Good
		500	Good
		750	Good
		1,000	Good

Notes: Criteria for visual evaluation, Good: The board surface is mostly occupied with fine fibers (coarse fiber within a few pieces), No good: Many coarse fibers on the board surface.

4.3 本章の要約

本章では、初期含水率が高いチップを使用する、あるいは長時間の蒸煮を行うことなく、解繊時に水を多く存在させる手法として、蒸煮を行った直後のチップに対する加水処理を検討した。加水処理を行い、解繊された繊維形状およびそれを用いて作製した MDF の物性を比較検討した結果、以下の結論を得た。

- 1) アカシアマンギウムの解繊繊維長の分布は、解繊直前の加水流量の増加とともに 0.3 mm 付近の短繊維ピークが減少し、1.0 mm 付近の木繊維細胞繊維長に近いピークが増加する傾向を示した。このことは、高初期含水率チップを用いた場合や蒸煮時間を長くした場合と同様の傾向である。この結果から、解繊繊維形状は、蒸煮前後など水分の与えられるタイミングに依らず、解繊時の自由水や繊維近傍に存在する水の量によって強く影響を受けるということが明らかとなった。その原因について、解繊時に水が多く介在することによって、水流が生まれ、チップ（繊維）が進行方向に対し繊維方向に配向するため、解繊負荷が繊維の R、T 方向にかかりやすくなり、繊維長の切断及び未解繊繊維発生のお機会の低減に寄与していることが推察された。
- 2) MDF の曲げ強度は、加水処理により解繊繊維の短繊維（繊維長 0.5 mm 以下）の割合が低減し、改善、安定化する傾向が認められた。この傾向は、使用する木材チップの初期含水率が高い場合と同様であった。このことから、アカシアマンギウムを原材料とする場合、仮に低い含水率のチップであったとしても解繊直前に加水処理を行うことにより、安定して高い曲げ強度を有する MDF を製造可能であることが明らかとなった。
- 3) MDF の剥離強度がわずかに低下する傾向が認められたが、強度吸水厚さ膨張率、吸水率に変化は見られず、加水処理によるこれらの物性への影響は軽微であることが推察された。
- 4) MDF の表面性は、加水処理により解繊繊維の粗繊維（繊維長 2 mm 以上）の割合が低減し、改善する傾向が認められた。
- 5) 製造面における加水処理のメリットとして、処理方法が安価、簡便であること、そして処理が製造設備や作業環境に悪影響を与える可能性が低いことが挙げられる。一方でデメリットとしては、加水処理により多量の水を解繊時に添加することになるため、次工程である乾燥工程にて、従来以上に乾燥エネルギーを必要とすることが考えられる。物性の改善効果をもたらす必要最小限の適切な加水流量の調整が必要になるものと考えられる。

結論

本研究では、MDF 製造時に目的に応じて物性を最大化する最適な解繊条件を設計できることを最終的な目標とし、全四章を通して蒸煮工程における木材中の水分や成分の変化、各種蒸煮条件で解繊したときの解繊繊維形状やそれを用いて作製した MDF の物性を検討・評価することで、最終的な MDF の物性に及ぼす蒸煮解繊時の水分の働きについて考察を行った。

蒸煮工程における木材の含水率変化について、蒸煮モデル実験により評価を行った。アカシアマンガウムおよびスギは、蒸煮前の初期含水率が比較的低い（10, 30, 60%）場合、蒸煮時間とともに含水率が増加する傾向が認められた。この水分の増加を、単位面積あたりの吸水量の変化で比較すると、試料厚さの差は小さいことから、チップ程度の寸法では木材の異方性による差は小さく、試料の表面積に応じて表面から内部へと水分の濃度差に基づく水の拡散を生じることが示唆された。一方で、初期含水率が高い（90%）場合、蒸煮開始初期に含水率は減少し、その後の蒸煮において漸減する傾向が認められた。これは蒸煮開始初期においては試料最外部位に存在する水が昇温により蒸散し、その後の蒸煮では試料外部環境との水分濃度差が小さいため変化が小さくなるものと推測された。長時間の蒸煮を行うことで各条件間の含水率差は小さくなるが、実際の MDF 製造において現実的な蒸煮時間である 3~6 分程度では、初期含水率差に起因する含水率の差が依然として存在することが確認された。さらに蒸煮中に木材に生じる含水率の変化は、その大部分が蒸煮本来の目的である木材成分の軟化に影響する結合水領域（含水率で約 25~30%以下）ではなく、それ以上のいわゆる自由水領域での増減であることが明らかになった。

蒸煮工程における木材の成分変化について、アカシアマンガウムは、初期含水率（10, 30, 60%）による差はほとんどなく、蒸煮時間が長くなるとともにホロセルロース量が低下する傾向があった。これは、蒸煮によりヘミセルロースが蒸煮の影響を受けて溶脱しやすくなったことによるものと示唆された。他の成分については、蒸煮による大きな変化は認められなかった。

アカシアマンガウムを用いて各種蒸煮条件で解繊したときの解繊繊維形状やそれを用いて作製した MDF の物性を評価した。

解繊繊維長の分布は、高初期含水率チップを用いた場合や蒸煮時間を長くした場合に、それぞれ含水率、蒸煮時間に依存して 0.3 mm 付近の短繊維ピークが減少し、1.0 mm 付近の木繊維細胞繊維長に近いピークが増加する傾向を示した。蒸煮モデル実験で得られた蒸煮後の換算含水率と、解繊繊維長分布における繊維長 0.5 mm 以下の短繊維の割合及び繊維長 2 mm 以上の粗繊維の割合のいずれとの関係においても負の相関を示した。このことから、蒸煮後、すなわち解繊時に自由水が多く存在する場合に、繊維が長さ方向に切断される頻度及び不十分な解繊状態となる頻度が減少し、より均一な解繊繊維形状となることを示しており、蒸煮時にチップが持つ水分量が解繊繊維

の形状決定に重要な要素であることが示唆された。

上述した繊維を用いて作成した MDF の物性について、特に曲げ強度について使用する木材チップの初期含水率、蒸煮時間の条件により、顕著な変化が認められた。初期含水率が高いほど曲げ強度が増加する傾向となった。これは解繊繊維の短繊維割合が減少したことによるものと推察された。また蒸煮時間は長くなるほど曲げ強度が低下する傾向となった。これはヘミセルロースの溶脱によるものと推定された。これらの結果から、アカシアマンギウムを原材料とする場合、高初期含水率チップを用い、短時間の蒸煮で解繊を行うことで高い曲げ強度を有する MDF を製造可能なことが明らかとなった。

MDF の表面性は、蒸煮時間が 3 分ではチップの初期含水率に依らず、大きな繊維が試料表面上に多く存在し、不良となった。これは蒸煮時間が短いため木材成分の軟化の程度が十分でなく、解繊が十分になされなかったことが原因と推察された。また初期含水率 10%、蒸煮時間 6 分の条件でも表面性は不良となった。これは、解繊繊維長分布における粗繊維割合が解繊時の水分が多いほど低下したことから、6 分間の蒸煮ではチップの含水率が十分に増加していなかったためであると推察された。これらのことから、繊維束の少ない良好な MDF の表面性を得るためには、解繊時に多くの水分を持たせる必要があることが示唆された。

さらに実用的な技術開発に向けた検討として、解繊直前のチップへの直接加水による MDF 物性改善を試みた。

アカシアマンギウムの解繊繊維長の分布は、解繊直前の加水流量の増加とともに 0.3 mm 付近の短繊維ピークが減少し、1.0 mm 付近の木繊維細胞繊維長に近いピークが増加する傾向を示した。このことは、高初期含水率チップを用いた場合や蒸煮時間を長くした場合と同様の傾向である。この結果から、解繊繊維形状は、蒸煮前後など水分の与えられるタイミングに依らず、解繊時の自由水や繊維近傍に存在する水の量によって強く影響を受けるということが明らかとなった。その原因について、解繊時に水が多く介在することによって、水流が生まれ、チップ（繊維）が進行方向に対し繊維方向に配向するため、解繊負荷が繊維の R、T 方向にかかりやすくなり、繊維長の切断及び未解繊繊維発生のお機会の低減に寄与していることが推察された。

解繊繊維長分布における短繊維、粗繊維の割合の低減が、それぞれ MDF の曲げ強度及び表面性の改善に寄与することが確認された。これらの結果から、供給されるチップの含水率に応じ、解繊直前に適宜加水処理を行うことにより、安定して高い曲げ強度及び表面性を有する MDF を製造できる可能性があることが明らかとなった。

結論として、MDF 製造時の蒸煮過程における含水率変化挙動が初期含水率に依存すること、解繊時の制御によって得られる繊維を MDF により有利な形状に整えて MDF の物性を向上させることなどを初めて明らかにできたことに加え、それを工業的に制御できる技術的可能性をも示唆することができた。

謝辞

本研究の遂行ならびに本論文の作成にあたり，懇切なご指導とご教示を賜りました秋田県立大学木材高度加工研究所教授山内秀文先生ならびに秋田県立大学名誉教授林知行先生に衷心より感謝申し上げます。本論文のとりまとめに際し，多くのご教示とご指導を賜りました秋田県立大学木材高度加工研究所准教授澁谷栄先生ならびに秋田県立大学木材高度加工研究所准教足立幸司先生に深く感謝申し上げます。

また私の研究生活を支えてくださいました秋田県立大学木材高度加工研究所の皆様ならびに大建工業株式会社 R&D センターの皆様に感謝申し上げます。

2020年9月
高澤良輔

文献

- 1) 米沢保正：繊維板について．日本林学会誌 **35** (5), 149-153, (1953).
- 2) 保坂秀明：繊維板工業について．林産試験場林業指導月報 **52**, 1-5, (1956).
- 3) 満久崇麿：ファイバーボード，パーティクルボード．高分子 **9** (5), 288-291, (1960).
- 4) 新納守：ファイバーボードの動向．木材工業 **21** (1), 7-11, (1966).
- 5) 佐々木光：木質材料学の領域と最近の発展．木材研究・資料 **23**, 22-31, (1987).
- 6) 鈴木滋彦：木質材料のこれまでの発展と今後の展開．木材学会誌 **51** (1), 29-32 (2005).
- 7) 鈴木滋彦：木質ボード類．木材工業 **60** (7), 329-331 (2005).
- 8) Chapman, K. M. : Wood-based panels: particleboard, fibreboards and oriented strand board. "Primary Wood Processing", Springer , 2006, pp.427-475.
- 9) Stark, N. M., Cai, Z., Carll, C. : Chapter 11. Wood-based composite materials panel products, glued-laminated timber, structural composite lumber, and wood-nonwood composite materials. "Wood handbook", Forest products laboratory, 2010, pp.1-26.
- 10) JISA5905：繊維板．日本規格協会 (2014).
- 11) 渋谷龍也：木材加工技術のこれまでとこれから 6.木質ボード．木材工業 **63** (11), 510-512 (2008).
- 12) JISA5908：パーティクルボード．日本規格協会 (2015).
- 13) 渋谷龍也：問答集 14. 木質ボード類の特徴と違いは？．木材工業 **65** (11), 538 (2010).
- 14) 澤田紀年：MDF の利用と開発の方向．木材工業 **53** (4), 180-181 (1998).
- 15) 工藤修：木質ボードの性能 (2) ．林産試だより **1**, (1992).
- 16) 高橋裕，森山実，大沢清志，遠藤展，鈴木弘，平野晴望，遠藤一夫：乾式解繊木材ファイバーの処理工程に関する研究．北海道林産試験場研究報告 **60**, (1973).
- 17) 中村暢孝：木材用接着剤について．熱硬化性樹脂 **4** (1), 15-22 (1983).
- 18) 田村靖夫：木質ボードの製造技術および装置・プラントの進展 1. 接着剤．木材工業 **42** (12), 550-553 (1987).
- 19) 宮本康太：木質建材・家具からの VOC 放散の現状 3.パーティクルボード・MDF．木材工業 **60** (11), 563-565 (2005).
- 20) 大熊幹章：木質ボードの製造技術および装置・プラントの進展 3. 連続プレス．木材工業 **42** (12), 557-561 (1987).
- 21) 山本昭夫：新しい木質ボード材料 4. 薄物中質繊維板, TFB. 木材工業 **42** (12), 577-581 (1987).
- 22) 山本昭夫：ミディアムデンシティファイバーボード「MDF」．木材工業 **51** (3), 127-131 (1996).
- 23) Rhodes, G : Focus on MDF part 1: Wood based panel international. June/July, 14-27 (2019).

- 24) Rhodes, G : Focus on MDF part 2: Wood based panel international. August/September, 13-34 (2019).
- 25) Housing Tribune Online : 業界動向 日本繊維板工業会 床台板向けの商品開発が活発化, <https://honline.sohjusha.co.jp/576-053/> 2020年6月1日参照.
- 26) Benthien, J. T., Bähnisch, C., Heldner, S., Ohlmeyer, M. : Effect of fiber size distribution on medium-density fiberboard properties caused by varied steaming time and temperature of defibration process. *Wood and Fiber Sci.*, **46** (2), 1-11 (2014).
- 27) Xing, C., Deng, J., Zhang, S. Y., Riedl, B., Cloutier, A. : Properties of MDF from black spruce tops as affected by thermomechanical refining conditions. *Holz Roh Werkst*, **64**, 507-512 (2006).
- 28) 鈴木滋彦 : 住宅解体木材からの木質ボードの製造. 木材保存 **30** (2), 46-50 (2004).
- 29) 瀧川充朗 : 木質ボードの需給および原料動向. 木材工業 **71** (11), 455-458 (2016).
- 30) Xing, C., Deng, J., Zhang, S. Y., Riedl, B. : Impact of bark content on the properties of medium density fiberboard (MDF) in four species grown in eastern Canada. *Forest product journal*, **56** (3), 64-69 (2006).
- 31) Kartal, S. N., Green III, F. : Decay and termite resistance of medium density fiberboard (MDF) made from different wood species. *International biodeterioration & biodegradation*, **51**, 29-35 (2003).
- 32) Park, B. D., Kim, Y. S., Riedl, B. : Effect of wood-fiber characteristics on medium density fiberboard(MDF) performance. *Journal of the Korean Wood Science and Technology*, **29** (3), 27-35 (2001).
- 33) Nelson, N. : Effects of wood and pulp properties on medium-density, dry-formed hardboard. *Forest Products Journal*, **23** (9), 72-80 (1973).
- 34) Xing, C., Deng, J., Zhang, S. Y., Deng, J., Riedl, B., Cloutier, A. : Medium-density fiberboard performance as affected by wood fiber acidity, bulk density, and size distribution. *Wood Sci Technol*, **40**, 637-646 (2006).
- 35) 松本久美子 : モウソウチクを原料としたファイバーボードの作製と材質. 木材学会誌 **47** (2), 111-119 (2001).
- 36) Halvarsson, S., Edlund, H., Norgen, M. : Wheat straw as raw material for manufacture of straw MDF. *Bioresources*, **5** (2), 1215-1231 (2010).
- 37) Ashori, A., Nourbakhsh, A., Karegarfard, A. : Properties of medium density fiberboard based on Bafasse fibers. *Journal of Composite Materials*, **43** (18), 1927-1934 (2009).
- 38) Salim, H., Piyawade, B., Vallayuth, F., Worakit, S., Songklod, J. : Selected properties of medium density fiberboard(MDF) panels made from bamboo and rice straw. *Forest Products Journal*, **57** (6), 46-50 (2007).

- 39) Ye, X. P., Julson, J., Kuo, M., Womac, A., Myers, D. : Properties of medium density fiberboards made from renewable biomass. *Bioresource Technology*, **98**, 1077-1084 (2007).
- 40) ANSI A208.2 : Medium density fiberboard (MDF) for interior applications. Composite panel association (2016).
- 41) Krzysik, A. M., Youngquist, J. A., Muehl, J. H., Franca, F. S. : Medium density fiberboards from plantation-grown *Eucalyptus saligna*. *International conference on effective utilization of plantation timber*, 156-160 (1999).
- 42) 吹野信, 佐藤司, 小川尚久 : 熱帯造林木の材質評価および加工適性評価. 北海道林産試験場研究報告, **87**, 82-87 (1999).
- 43) 高澤良輔, 吹野信, 関一人, 朝倉靖弘, 小川尚久, 上野真義, 中新絵里 : 南洋材代替 MDF 原材料の探索 (I) 国産針葉樹, 熱帯早生樹の MDF 原材料適性. 第 64 回日本木材学会大会研究発表要旨集, 愛媛, 2014, I14-110-1000.
- 44) Tomimura, Y., Choon, K., Suzuki, I. : Manufacture of medium density fiberboard from Malaysian *Acacia mangium*. 木材学会誌 **33** (4), 335-338 (1987).
- 45) Matsuda, T., Tomimura, Y., Choon, K. : Manufacture of medium density fiberboard from Malaysian fast growing tree species and bamboo. 森林総研研報 **369**, 177-187 (1995).
- 46) Nambiar, E. K. S., Harwood, C. E. : Productivity of acacia and eucalypt plantations in Southeast Asia 1. Biophysical determinants of production: opportunities and challenges. *International Forestry Review*, **16** (2), 225-248 (2014).
- 47) Hegde, M., Palanisamy, K., Yi, J. S. : *Acacia mangium* Willd. A fast growing tree for tropical plantation. *Journal of Forest Science*, **29** (1), 1-14 (2013).
- 48) Matsumura. : Yield prediction for *Acacia mangium* plantations in Southeast Asia. *FORMATH*, **10**, 295-308 (2011).
- 49) 藤間剛 : 東南アジアの早生樹産業植林の生産力. 海外の森林と林業, **101**, 14-19 (2018).
- 50) Othman, M. S., Samad, A. R. A.: A preliminary study of strategic competitiveness of MDF industry in Peninsular Malaysia by using SWOT analysis. *International Journal of Business and Management*, **4** (8), 205-214 (2009).
- 51) Goring, D. A. I. : Thermal softening of lignin, hemicellulose and cellulose. *Pulp and Paper Magazine of Canada*, **64** (12), T517-527 (1963).
- 52) 志水一允 : 木質系資源の蒸煮・爆砕処理. 紙パ技協誌 **42** (12), 22-38 (1988).
- 53) Kelley, S. S., Elder, T., Groom, L. H. : Changes in the chemical composition and spectroscopy of loblolly pine medium density fiberboard furnish as a function of age and refining pressure. *Wood and Fiber Sci.*, **37** (1), 14-22 (2005).

- 54) Benthien, J. T., Heldner, S., Ohlmeyer, M. : Investigation of the interrelations between defibration conditions, fiber size and medium-density fiberboard(MDF) properties. *European Journal of Wood and Wood products*, **75**, 215-232 (2017).
- 55) Xing, C., Wang, S., Pharr, G. M., Groom, L.H. : Effect of thermos-mechanical refining pressure on the properties of wood fibers as measured by nanoindentation and atomic force microscopy. *Holzforschung*, **62**, 230-236 (2008).
- 56) Labosky, P., Jr., Yobp, R. D.J., Janowiak, J. J., Blankenhorn, P. R. : Effect of steam pressure refining and resin levels on the properties of UF-bonded red maple MDF. *Forest products journal*, **43** (11/12), 82-88 (1993).
- 57) 磯田清蔵: 紙パルプ機械講座 第2章 機械パルプ. 紙パ技協誌 **24** (8), 41-56 (1970).
- 58) 岡作次郎: 機械パルプ概論. 紙パ技協誌 **52** (9), 1145-1158 (1998).
- 59) 中野準三: 紙・パルプ. 繊維学会誌 **40** (9), 214-220 (1984).
- 60) 小野木重治: 紙のかたさ. 高分子 **2** (11), 506-510 (1953).
- 61) 近藤民雄: 木材の軟らかさと高収率パルプ. 紙パ技協誌 **35** (8), 657-667 (1981).
- 62) Kojima, Y., Kawabata, A., Kobori, H., Suzuki, S., Ito, H., Makise, R., Okamoto, M. : Reinforcement of fiberboard containing lingo-cellulose nanofiber made from wood fibers. *Journal of Wood Science*, **62** (6), 518-525 (2016).
- 63) Conner, A. H. : Urea-formaldehyde adhesive resins. *Polymeric materials encyclopedia*, 8496-8501 (1996).
- 64) Marcinko, J. J., Phanopoulos, C., Newman, W. H. : The nature of the MDI/wood bond. The 29th Washington state university international particleboard/composite materials symposium, 175-183 (1995).
- 65) 元木英生: 木質ボードの性能発現性に及ぼすイソシアネート樹脂の化学反応特性について. 木材と技術 **53**, 1-8 (1983).
- 66) 竹村彰夫: 木材加工技術のこれまでとこれから 3. 接着. 木材工業 **63** (11), 501-502 (2008).
- 67) 田中博史, 兼城健司: 製造技術の発展 2. 接着剤—木質ボード及び二次加工—. 木材工業 **71** (11), 491-494 (2016).
- 68) Zhang, W., Sun, H., Zhu, C., Wan, K., Zhang, Y., Fang, Z., Ai, Z. : Mechanical and water-resistant properties of rice straw fiberboard bonded with chemically-modified soy protein adhesive. *Royal Society of Chemistry Advances*, **8**, 15188-15195 (2018).
- 69) Ji, X., Li, B., Yuan, B., Guo, M. : Preparation and characterizations of a chitosan-based medium-density fiberboard adhesive with high bonding strength and water resistance. *Carbohydrate Polymers*, **176**, 273-280 (2017).
- 70) Ji, X., Guo, M. : Preparation and properties of a chitosan-lignin wood adhesive. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, **82**, 8-13 (2018).
- 71) Savov, V., Mihailova, J. : Influence of the content of lignosulfonate on physical properties of medium density fiberboard. *Pro Ligno*, **13** (4), 247-251 (2017).

- 72) Doosthoseini, K., Hosseinabadi, H. Z., Moradpour, P. : Low resin medium density fiberboard made from chemical activated hardwoods fibers. *Journal of the Indian Academy of Wood Science*, **7**, 36-42 (2010).
- 73) Grigsby, W., Thumm, A. : The interactions between wax and UF resin in medium density fibreboard. *European Journal of Wood and Wood Products*, **70**, 507-517 (2012).
- 74) Murton, K., Grigsby, W., Thumm, A. : Steam, fibre and resin dynamics within a medium density fibreboard (MDF) blowline. *Appita Journal*, **67** (1), 58-65 (2014).
- 75) Latibari, A. J., Ghasebinasab, H., Roohnia, M., Karagarfard, A. : The effect of fiber moisture and drying temperature on hardwood fiber physical chemistry and strength of medium density fiberboard. *Lignocellulose*, **1** (1), 3-12 (2012).
- 76) 張敏 : リグノセルロース系原料を用いた高性能木質複合ボードの開発研究. 木材研究・資料 **33**, 33-70 (1997).
- 77) Cai, Z., Muehl, J. H., Winandy, J. E. : Effects of panel density and mat moisture content on processing medium density fiberboard. *Forest Products Journal*, **56** (10), 20-25 (2006).
- 78) Winandy, J. E., Krzysik, A. M. : Thermal degradation of wood fibers during hot-pressing of MDF composites: part 1. Relative effects and benefits of thermal exposure. *Wood and Fiber Science*, **39** (3), 450-461 (2007).
- 79) Wang, S., Winistorfer, P. M., Young, T. M., Helton, C. : Step-closing pressing of medium density fiberboard; Part 1. Influences on the vertical density profile. *Holz als Roh- und Werkstoff*, **59**, 19-26 (2001).
- 80) Rowell, R. M., Kawai, S., Inoue, M. : Dimensional stabilized, very low density fiberboard. *Wood and Fiber Science*, **27** (4), 428-436 (1995).
- 81) 岡本広志, 佐野誠二, 川井秀一, 岡本忠, 佐々木光 : 高温高圧水蒸気を用いた高寸法安定性 MDF の製造. 木材学会誌 **40** (4), 380-389 (1994).
- 82) Ayrilmis, N. : Enhancement of dimensional stability and mechanical properties of light MDF by adding melamine resin impregnated paper waste. *International journal of adhesion & Adhesives*, **33**, 45-49 (2012).
- 83) Wang, J., Wang, F., Gao, Z., Zheng, M., Sun, J. : Flame retardant medium-density fiberboard with expanded vermiculite. *BioResources*, **11** (3), 6940-6947 (2016).
- 84) Bal, B. C., Gündeş, Z. : Surface roughness of medium-density fiberboard processed with CNC machine. *Measurement*, **153** (3), 218-226 (2020).
- 85) Chen, M., Lyu, J. : Properties of double dowel joints constructed of medium density fiberboard. *Ciencia y tecnologia*, **20** (3), 369-380 (2018).
- 86) Sedlecký, M., Kvietková, M. S. : Surface waviness of medium-density fiberboard and edge-glued panel after edge milling. *Wood research*, **62** (3), 459-470 (2017).
- 87) 小島陽一, 足立幸司 : 木質材料の耐久性評価手法の確立 進展と今後の課題. 木材学会誌 **61** (3), 178-185 (2015).

- 88)高麗秀昭：屋外暴露した中質繊維板の耐久性．木材学会誌 **58** (6), 347-356 (2012).
- 89)Fujii, T., Shimizu, K., Yamaguchi, A. : Enzymatic saccharification on ultrathin sections and ultraviolet spectra of Japanese hardwoods. 木材学会誌 **33** (5), 400-407 (1987).
- 90)島田謹爾, 志水一允, 安田征市：第4章 木材分析."木材科学実験書 II 化学編" 日本木材学会・化学編編集委員会編, 内外産業調査会, 東京 1985, pp. 145-165.
- 91)横田徳郎：木材中における水の拡散．材料 **21**, 58-64 (1971).
- 92)高村憲男：ファイバーボードの熱圧乾固に関する研究（第3報）ファイバーマットの熱圧による塑性化．木材学会誌 **14** (2), 75-79 (1968).
- 93)Hsu, H. E., Schwald, W., Schwald, J., Shields, J. A. : Chemical and physical changes required for producing dimensionally stable wood-based composites. *Wood Sci. Technol.*, **22**, 281-289 (1988).
- 94)東原貴志：水蒸気処理による圧縮木材の変形固定とその機構．林育研報 **23**, 255-308 (2007).
- 95)Esteves, B. M., Pereira, H. M. : Wood modification by heat treatment: A review. *BioResources*, **4** (1), 370-404 (2009).
- 96)野口昌彦：パルプ品質を評価するためのカヤーニの新技术．紙パ技協誌 **46** (9), 1126-1136 (1992).
- 97)カウピネンマルコ, 坂田秀実：繊維形態の紙質に与える影響及び新型繊維長測定器 FiberLab. 紙パ技協誌 **52** (9), 1219-1228 (1998).
- 98)JISP8226：パルプー光学的自動分析法による繊維長測定方法－第1部：偏光法．日本規格協会 (2006).
- 99)Kojima, M., Yamamoto, H., Yoshida, M., Ojio, Y., Okumura, K. : Maturation property of fast-growing hardwood plantation species: A view of fiber length. *Forest Ecology and Management*. **257**, 15-22 (2009).
- 100) Jeffery, G. B. : The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. *Royal society* **102**, 161-179 (1922).
- 101) 保田和則, 西村太良, 中村喜代次：放射状流れにおける短繊維分散流体中の配向状態の観察．機械繊維学会誌 **50** (3), 61-67 (1997).
- 102) 北野武：流体中の繊維の流動挙動に関する研究の展望．機械繊維学会誌 **34** (5), 245-253 (1981).
- 103) 鈴木岩雄：ボード原料としての建築解体材－リサイクルの観点から－.木材工業 **32** (12), 543-546 (1977).

学会発表および報文の一覧

学会発表

- 1) 第 67 回日本木材学会大会（2017 年 3 月，福岡）口頭発表
- 2) 第 68 回日本木材学会大会（2018 年 3 月，京都）口頭発表

報文

- 1) 高澤良輔，山内秀文，澁谷栄，林知行：MDF 製造時の木材チップ蒸煮工程における木材チップの含水率及び化学成分の変化．木材学会誌 64 (5), 205-212 (2018).
- 2) 高澤良輔，山内秀文，林知行：チップの初期含水率及び蒸煮時間が MDF 物性に及ぼす影響．木材学会誌 65 (1), 13-18 (2019).