

氏名	たかざわ りょうすけ 高澤 良輔
授与学位	博士 (生物資源科学)
学位授与年月日	令和2年9月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科専攻	秋田県立大学大学院生物資源科学研究科 博士後期課程 生物資源科学専攻
学位論文題目	MDF 製造時の解繊条件の最適化に関する研究
指導教員	教授 山内 秀文
論文審査委員	主査 教授 山内 秀文 副査 准教授 澁谷 栄、准教授 足立 幸司 特別 秋田県立大学名誉教授 林 知行

## 論文内容要旨

### 研究の背景と目的

中密度繊維板 (MDF) は繊維板の一種で、原材料である木材チップを構成要素である細胞に近いレベルにまで機械解繊し、そこに接着剤や撥水剤等を添加・堆積させた乾式マットを加熱圧縮・成形して得られる面材料である。わが国では JIS によって材質と特性が規定され、例えば密度は造作用の普通 MDF で  $0.35 \text{ g/cm}^3$  以上、構造用 MDF で  $0.70 \text{ g/cm}^3$  以上・ $0.85 \text{ g/cm}^3$  未満と定められている。他に表裏面の状態、曲げ強さ、接着剤、ホルムアルデヒド放散量や難燃性などによる区分がある。

木質材料としての MDF の特長は、微細な木材繊維を構成エレメントとしているため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が挙げられる。このため、それらの特長を生かし、家具や内装材に化粧用のシートや紙を貼るための下地材として用いられることが多い。また、近年は家具などより高い力学性能や耐水性が求められるフローリング台板や構造用の耐力面材といった新しい用途も開拓されてきている。一方で、MDF 工業は国際商品として競争が激しい分野であり、今後も競争力を維持しつつ新たな用途展開を図るためには、新たな要求性能に見合うように MDF の品質を継続的に改善、制御していくことが重要である。

MDF に関する学術的な研究は、原材料、接着剤、製造方法、物性の改善など様々な分野について行われてきた。MDF の製造工程のうち、蒸煮及び解繊は MDF の主要構成要素となる木材繊維の形状や特性を決定することから種々の研究が行われてきた。例えば Benthien らは、ヨーロッパアカマツを用い、高圧、長時間の蒸煮条件で解繊を行った場合、解繊繊維における短繊維の割合が増加するため、MDF の曲げ強度、はく離強度が低下し、一方で、吸水厚さ膨張率が低く抑えられることを報告している。また Xing らは、ブラックスプルスを用い、蒸煮圧、蒸煮時間の条件を変えて蒸煮を行った結果、蒸煮時の蒸気圧が曲げヤング率、吸水厚さ膨張率、吸水率、線膨張率に影響すること、剥離

強度には蒸煮時間が大きな影響を与えることを報告している。これらの研究により、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て最終的な MDF の物性にも影響を及ぼすことが定性的に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で水分などがどのような変化を示し、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。

本研究は、近年熱帯早生樹として植林が進み、今後の持続的な材の利用が期待されているアカシアマンギウムを主な供試材料として、MDF 製造時における最適な解繊条件を設計するための一助として、最終的な MDF の物性に及ぼす蒸煮・解繊工程における水分の働きを検討したものである。

#### 研究 I : 蒸煮による木材チップの含水率及び化学成分の変化

供試材料として、アカシアマンギウム (平均気乾密度  $0.54 \text{ g/cm}^3$ ) 及び秋田県産の 60 年生スギ (平均気乾密度  $0.34 \text{ g/cm}^3$ ) を用いた。30 (L) × 30 (R) mm、厚さ (T) 2.5、4、8 mm の柎目面試料を作製し、予め 4 水準の含水率 (10、30、60、90%) に調製した。これらの試験体を、本実験用に開発した小型圧力容器内において蒸気ゲージ圧力 0.7 MPa (約  $170^\circ\text{C}$ )、蒸煮時間 1~18 分で蒸煮した際の含水率変化を測定した。この際、蒸煮後の含水率はエンドマッチの未蒸煮試料を基にした換算含水率を適用した。含水率測定後のアカシアマンギウムの試料について、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、亜塩素酸塩法によりホロセルロースを、硫酸法により Klason リグニンを定量した。ホロセルロースに水酸化ナトリウムを加えヘミセルロースを除去して  $\alpha$ セルロースを得た。

実験の結果、初期含水率が低い試料 (10、30、60%) は、蒸煮時間とともに含水率が増加した。一方で、初期含水率が高い試料 (90%) は、蒸煮開始から含水率が漸減することから、蒸煮時にも常態での調湿と同様に一定の平衡値を持つことが確認された。このとき、低含水率からの含水率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異方性の影響は小さく、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が主体の含水率変化が生じることが示唆された。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、MDF 製造時の工業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。

成分変化については、試料の初期含水率 (10、30、60%) に依らず、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こと、その減少主体はヘミセルロースと推定されることが明らかになった。他の成分についてはリグニン量が蒸煮時間とともにわずかに減少し、抽出成分はわずかに増加する傾向が見られたが、ヘミセルロース量の変化に比べてその変化の程度は小さかった。

### 研究Ⅱ：チップの初期含水率および蒸煮時間がMDFの物性に及ぼす影響

供試材料として、ふるいで6～25 mm間に分級したアカシアマンギウムの切削チップを用いた。これらを予め4段階の含水率(10、30、60、90%)となるよう調整した。解繊実験には加圧シングルディスクリファイナー(熊谷理機工業、BRP-300SS)をJタイプの刃とともに用いた。蒸煮条件は、蒸煮圧0.7 MPa、蒸煮時間3～18分とし、解繊時のディスククリアランスは0.10 mmとした。得られた繊維を繊維長測定設備(Metso、Kajaani FS-300)を用い、水中に分散させた繊維の投影画像から繊維長を測定した。

各条件につき、目標密度0.75 g/cm<sup>3</sup>、目標寸法350(w1)×350(w2)×3(t)mmのMDFを1枚作製した。接着剤としてイソシアネート系樹脂接着剤(東ソー、450SS)を全乾木質重量比で6%添加した。これを寸法350×350 mmの枠内に手撒きフォーミングした後、160℃・1分の条件で熱圧成形した。作製したMDFは20℃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で研磨し、厚さを2.7 mmに調整した。研磨したMDFを20℃65%RH下で恒量となるまで調湿した後に物性評価に供した。曲げ強度、剥離強度、吸水厚さ膨張率、吸水率の測定を行い、さらに目視にて外観の評価を行った。

実験の結果、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、蒸煮時間の増加に伴って0.3 mm付近の短繊維ピークが減少し、0.9 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。

研究Ⅰで得られた蒸煮後の換算含水率と、本実験で得られた繊維長0.5 mm以下の短繊維の割合の関係には負の相関、すなわち蒸煮後(≒解繊時)に水分が多く存在する場合に繊維長の切断頻度が減少することが認められ、このことから、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る。

MDFの曲げ強度は、上述の短繊維割合低減により改善される傾向が認められたが、蒸煮時間が長くなると曲げ強度が低下する傾向が認められた。これは研究Ⅰで観察されたヘミセルロースの減少によるものと推定される。以上の結果から、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を製造できることが明らかとなった。

### 研究Ⅲ：解繊時加水による物性改善効果

供試材料として、研究Ⅱと同様のアカシアマンギウム切削チップを含水率10%に調整して用いた。これを研究Ⅱと同じ装置を用いて蒸煮圧0.7 MPa、蒸煮時間6分の条件で蒸煮後、蒸煮釜からスクルーフィーダーで磨砕盤へと払い出される直前に、解繊装置に付属するポンプ設備を用いて250～1000ml(添加水の総量でチップ含水率換算50～250%)の加水をしながら解繊を行った。得られた繊維を研究Ⅱと同様の方法でボード化して物性評価を行った。

実験の結果、解繊繊維形状は直前加水量の増加に伴い0.3mm付近の短繊維ピークが減少するとともに0.9 mm付近の繊維長ピークが増加し、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を示した。この結果から、機械解繊される際の繊維形状は、蒸煮前後など水分の与えられるタイミングに依らず、解繊時にチ

チップ近辺に存在する水分量によって強く影響を受けることが明らかとなった。

MDF の曲げ強度についても、加水量の増加に伴って改善する傾向が見られ、チップを高含水率にした場合と同様の傾向となった。以上のことから、供給されるチップの含水率に応じて解繊直前に適宜加水処理を行うことにより、安定した曲げ性能を持つ 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

MDF の構成要素である木材繊維の形成過程である蒸煮・解繊工程に着目し、蒸煮時にチップ上で生じる水分量および成分の変化とそれが解繊後の木材繊維形状および MDF の物性に及ぼす影響を検討した。結論として、蒸煮過程におけるチップ上の含水率変化は蒸煮時間の経過とともに繊維飽和点を大きく超えた含水率領域の平衡値に向かうこと、工業的な MDF 製造時の蒸煮条件では解繊時に初期含水率差の影響が残ること、解繊時にチップ周辺の水分量が多くなるほど MDF 物性が向上すること、調湿のための長時間の蒸煮は繊維の成分変化を招き同じ高含水条件では物性が低下することなどが明らかになった。これらから、これまでの木材物理学的見地では軟化・解繊に対して余剰と思われていた自由水領域での水分制御が解繊工程で得られる木材繊維の形状を整え、最終的な MDF の物性を決定づける 1 要因である事を明らかにできた。さらに、解繊時の水分供給方法が直接・間接を問わないことを確認し、種々の含水条件を持つ原料チップの繊維形状を工業的に極めて安全かつ簡便な方法にて安定・制御できる技術的可能性を示すことができた。

## 論文審査結果要旨

高澤良輔氏は2015年10月本学大学院博士後期課程に社会人学生として入学し、2018年9月に単位取得後退学となっていた。2020年9月の学位取得に向けた博士学位論文審査にあたり、単位取得退学後2年以内での申請であることから課程博士に準じる基準にて審査を行うこと、旧規程下の2015年入学であるため外部審査委員は必須でないことを確認し審査に入ることとした。

審査委員として、主査に木材高度加工研究所・教授の山内秀文があたり、審査委員に同・准教授の澁谷栄、足立幸司の2名を選任し、加えて、高澤氏在学時に主査と協働で研究指導にあたった秋田県立大学名誉教授（木材高度加工研究所前所長）の林知行氏に特別審査員として加わってもらうこととした。

高澤氏から提出された学位論文「MDF製造時の解繊条件の最適化に関する研究」について、審査員は生物資源科学研究科が定める論文審査基準に準じて審査を行い、以下のように判断した。

・専門性 MDFは主要な木質材料の一種であり、高澤氏は所属機関におけるMDF製造上の問題点に着目して課題を設定し、その解明および解決に向けて論理的な検討を行うことができおり、本学博士として、また今後この分野において主要な研究者となり得る十分な専門性を修得したものと判断できる。

・研究テーマの適切性 MDFの製造は木質材料学における主要なテーマの1つであり、その未解明課題に取り組むということで十分適切である。

・研究方法および論旨の適切性 高澤氏は社会人学生であることから、研究目的は明確であり、課題解決のために実験方法を工夫しながら研究を進め、学術的な新事実の発見に加えて実用性も念頭に置いた結論を破綻無く導くことに成功している。研究方法や論文展開は博士学位論文として十分な水準にあると判断できる。

・独創性 学術的に重要なテーマであるもののこれまでブラックボックスとなっていた蒸煮過程における挙動解明に取り組んでおり、また、そこに本学ならではの要素が含まれており、独創性に疑問の余地はない。

以上、提出された論文が本学の博士学位論文として十分なものである事を認める。なお、これに先立ち、2020年7月8日に公開予備審査会、同8月27日に公開での博士学論文発表会を、本学で初めてzoomを用いた遠隔形式で行った。両日を通して論文内容およびそれに関連する幅広い内容について試問を行った結果、相手の反応を見ながら話すことができないという不利な環境の中でも博士論文のディフェンスとして十分に話ができており、人物的にも博士の学位を授与されるものとして十分な資質を有していることが確認できた。