

氏名	かわらさき まさゆき 河原崎 政行
授与学位	博士(生物資源科学)
学位授与年月日	令和3年3月23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	難燃処理された内装用及び外装用木材の燃焼性状と 経年変化
指導教員	教授 中村 昇
論文審査委員	主査 教授 中村 昇 副査 教授 栗本 康司 学外 森林総合研究所研究ディレクター 原田 寿郎 特別

論文内容要旨

研究の背景と研究概要

難燃処理木材は、難燃剤を注入することで燃焼を抑制した木材であり、火災安全性が要求される建築物の内外装を木質化する際に使用されている。難燃剤はリン酸アンモニウム等のリン系薬剤が多く、それらはセルロースの熱分解過程を変換して可燃性ガスの生成を抑制し、水と炭素残渣の生成を促進させることで木材の燃焼を抑制する。近年、建築物への地域材の利用促進が進められる中、公共施設の内装並びに都市部の中高層建築物の外装への難燃処理木材の需要が高まっている。しかし、難燃処理木材は、内装用及び外装用のそれぞれに問題が指摘されている。内装用の問題は、高湿度雰囲気下に曝されると処理木材内の難燃剤が水分を吸収して表面に溶け出し、乾燥により結晶を生じる現象(以下、白華)により、美観が劣化すること及び防火性能の低下が懸念されることである。外装用の問題は、屋外での難燃処理木材の使用実績が少ないため、経年劣化により燃焼抑制作用の低下が懸念されることである。

内装用の白華発生の抑制は、助剤による再処理や難燃剤の改良により処理木材の吸湿性の低下を試みた報告があるが、それらは製品の生産性低下や製造コスト上昇を招く。そこで本研究では、防火上の制限が適用されるほとんどの部分に使用できる準不燃材料の実用化を前提に、これまで検討されていない製造条件として、白華発生が少ない難燃剤と白華抑制に有効な塗料を組み合わせによる方法を試みた。

また、それらの成果を製品となる長さ3~4mの長尺処理木材に反映するには、材内の難燃剤が不均一に分布し、燃焼性状がばらつくことが問題になる。一般的に材料の燃焼性状は発熱性試験で評価されるが、試験体の寸法が小さいため、長尺処理木材の全体的な評価が困難である。材料の燃焼試験には中規模燃焼試験である模型箱試験があり、試験体の寸法が大きいため、長尺処理板材の材内のバラツキを含めた全体的な

燃焼性状を評価できる。ただし、模型箱試験で難燃処理木材を評価した事例は限られており、発熱性試験の結果との関係は不明である。また、既往の限られた報告から、準不燃材料の性能を付与する薬剤固形分量は、模型箱試験における長尺処理木材と発熱性試験における小試験体で大きく変わらないことが推測される。そこで、前述の製造条件の検討結果に基づいて製造した長尺処理板材について、採取した小片の発熱性試験の結果を基に準不燃材料に必要な薬剤固形分量を推定し、準不燃材料の性能を有するとする長尺処理板材については模型箱試験により全体の燃焼性状を評価するとともに準不燃材料の性能を確認した。更に、模型箱試験に供したのと同じ薬剤固形分量の長尺処理板材については、長さ方法の薬剤固形分量の分布状態を分析し、模型箱試験の結果への材内のバラツキの影響を考察した。本研究のように小試験体での検討結果を基に、実用化を念頭に長尺処理材を試作して、部分的及び全体的な燃焼性状の比較まで行った報告は少なく、得られる知見は難燃処理木材の製造に関わる者にとって非常に有用なものである。

一方、外装における難燃処理木材の燃焼抑制作用の経年劣化は、海外では10年間の屋外暴露による報告があり、知見が蓄積されている。しかし、国内では促進耐候操作と4年間の屋外暴露による難燃処理木材の経年劣化挙動の報告があるが、暴露期間が短く、海外で使用される樹脂成分を含む耐溶脱性難燃剤が評価されていない。また、塗装による難燃処理木材の燃焼抑制作用の維持効果は明らかにされているが、塗装の種類が限られている。外装への難燃処理木材の需要に応えるには、屋外耐候性を有する難燃処理木材の開発が必要であるが、現状では基盤となるデータの蓄積が不十分である。そこで本研究では、燃焼抑制作用の経年劣化に係る基盤データの収集を目的に、処理板材を試験体に5年間の屋外暴露を実施し、燃焼抑制作用の経年劣化挙動について、耐溶脱性を含む難燃剤の種類の影響及びこれまで検討されていないフッ素樹脂系塗料の効果を含めて把握した。

【内装材の白華抑制】

準不燃材料を想定した難燃処理木材について、難燃剤と塗料の選定による白華抑制に有効な製造条件を検討した。

難燃剤の選定

試験体は、長さ140×幅105×厚さ18mmのスギ板材に、3種類の市販難燃剤を3水準の薬剤固形分量(100, 150, 200kg/m³)に注入処理した処理板材とした(表1)。難燃処理木材の耐久性に関する欧州規格EN16755を参考にした高湿度雰囲気(温度30℃、湿度70, 80, 90%RH)への放置試験における、試験体の最大吸湿量を図1に示す。最大吸湿量は、薬剤固形分量の増加及び雰囲気湿度の上昇により高くなる傾向があった。難燃剤では、リン酸グアニジン系は、リン・ホウ素混合系及びポリリン酸カルバメート系よりも最大吸湿量が低く、種類間に差異が見られた。EN16755では、難燃処理木材の吸湿性の基準として温度27℃、湿度90%RHの雰囲気において、含水率が28%を超えないことを設けている。試験体の最大吸湿量と含水率の関係から含水率28%に相当する最大吸湿量を算出し、湿度90%RHの最大吸湿量と比較すると、リン酸グア

ニジン系の薬剤固形分量 $100\text{kg}/\text{m}^3$ のみが平均値で基準値を満たした。

更に EN16755 では、放置中の試験体に水滴（写真 1）が発生しないことが基準とされている。図 1 において EN16755 の基準含水率に相当する最大吸湿量を超える試験体は、概ね表面に水滴が発生した。また、リン酸グアニジン系の薬剤固形分量 $100\text{kg}/\text{m}^3$ の試験体は、雰囲気湿度 90%RH において 7 体中 2 体に水滴が発生した。しかし、それらの水滴は、放置期間の経過とともに小さくなり、恒量に達するまでに全て消えた。試験体の質量には水滴の消失の影響が見られないことから、水滴の水分が処理板材内に移動したことが考えられた。

準不燃材料の性能付与に必要な薬剤固形分量の目安は、厚さ 15mm では $150\text{kg}/\text{m}^3$ 、厚さ 18mm では $100\text{kg}/\text{m}^3$ であった。このことを踏まえると、試験に用いた難燃剤は、準不燃材料の難燃処理木材の白華を抑制できないと判断された。また、3 種類の中では最大吸湿量が小さく、水滴の発生が少ないリン酸グアニジン系が適していると判断された。

塗料の選定

先述の結果に基づきリン酸グアニジン系難燃剤を用いて、準不燃材料の薬剤固形分量の目安を超える $126\sim 167\text{kg}/\text{m}^3$ の処理板材を作成し、表 2 に示す無色透明の造膜系塗料で塗装して試験体とした。雰囲気湿度 90%RH への放置試験による、各試験体の水滴の発生状況を図 2 に、平均吸湿量の推移を図 3 に示す。塗装試験体は、全て放置中に水滴が発生しなかった。平均吸湿量の推移から、塗装は放置直後または雰囲気湿度を上げた直後の処理板材の急激な吸湿を抑制する作用が見られた。前項で見られた水滴の水分が処理板材内に移動することを踏まえると、塗膜が処理板材の急激な吸湿を抑制することで、水分が表面に滞留せず内部へ移動することが可能になり、水滴が発生しなくなったと推測された。4 種類の塗料では、入手し易さ及び価格から、一般木材用ウレタン樹脂系塗料が適していると判断された。

塗装試験体の発熱性試験の結果、塗膜の燃焼による総発熱量は $2.0\sim 2.8\text{MJ}/\text{m}^2$ であった。準不燃材料における総発熱量の基準 $8\text{MJ}/\text{m}^2$ を考慮すると、処理板材の総発熱量は $5\text{MJ}/\text{m}^2$ を上限とする必要があると考えられた。

【長尺処理材内の薬剤固形分量の変動と燃焼性状】

長さ $4000\times$ 幅 $90\times$ 厚さ 15mm の長尺スギ板材 200 枚にリン酸グアニジン系難燃剤を注入処理し、薬剤固形分量 $100\sim 200\text{kg}/\text{m}^3$ の範囲を 60 枚選定した。選定した長尺処理板材は、一方の端から 100mm 間隔で切断して小片を採取し、算出した全乾密度と採取した長尺処理板材の処理前の全乾密度との差から薬剤固形分量を求めた。全処理小片の薬剤固形分量の分布範囲（図 4）を 6 区分し、各区分から無節の 6 小片を採取し、3 体の発熱性試験用試験体を作成した。各試験体の薬剤固形分量と発熱性試験で得られる総発熱量の関係から、塗膜の燃焼を考慮して準不燃材料の性能が得られる薬剤固形分量を考察した結果、 $135\text{kg}/\text{m}^3$ であった（図 5）。しかし、製造した長尺処理板材から、薬剤固形分量 $135\sim 165\text{kg}/\text{m}^3$ の範囲を 19 枚選び、採取された小片の薬剤固形分量の分布を分析した結果、端部は中央部より大きく、中央部では薬剤固形分量が

135kg/m³に満たない部分が33%あることが分かった(図6)。

模型箱試験による燃焼性状の評価

長尺処理板材は中央部に薬剤固形分量が135kg/m³に満たない部分もあるが、中規模燃焼試験である模型箱試験で室内火災を想定した加熱試験により、基準を満たせば実用化が可能である。そこで、薬剤固形分量135~165kg/m³の長尺処理板材65枚について、一般木材用ウレタン樹脂塗料で塗装した後に模型箱試験を行った。試験に用いる供試箱及び加熱中の様子を写真2に、加熱中の発熱速度及び総発熱量の推移を図7に示す。試験の結果、塗装処理板材は準不燃材料の評価基準を満たし、材内のバラツキの影響を受けないことが分かった。

【屋外における燃焼抑制作用の経年劣化】

国内で一般的なリン・ホウ素混合系難燃剤、並びに海外で屋外用の耐溶脱性に優れた難燃処理木材に用いられるリン酸アミノ樹脂系難燃剤を使用した処理スギ板材の試験体(長さ140×幅105×厚さ18mm)を作成し、国内3箇所(北海道旭川市、千葉県野田市、大阪府大阪市)で5年間の屋外暴露を行った。また、処理板材は、鉄骨等への耐候性付与に実績のあるフッ素樹脂系塗料で塗装した仕様も用意した。試験体は、暴露面を南向きとし、地面に対して垂直に設置した。暴露後の試験体は、発熱性試験で燃焼性状を評価するとともに、全乾密度から残存薬剤固形分量を算出した。

無塗装試験体の総発熱量は、残存薬剤固形分量の低下とともに増加し、リン・ホウ素混合系では3ヶ月、リン酸アミノ樹脂系では12ヶ月から増加した(図8)。また、塗装試験体は、塗膜による薬剤固形分量の保持効果が見られ、当初の燃焼抑制作用を60ヶ月維持した(図9)。ただし、リン・ホウ素混合系の塗装試験体は、36ヶ月から塗膜の剥離が見られ(写真3)、それに応じて残存薬剤固形分量が低下したことから、塗膜の効果には難燃剤の影響があると考えられた。

表1 試験体の概要

難燃剤	薬剤固形分量 (kg/m ³)	
	想定値	試験体の範囲
リン・ホウ素混合系 ^{a)}	100	88~107
	150	133~165
	200	186~220
ポリリン酸カルバメート系	100	86~100
	150	135~161
	200	191~220
リン酸グアニジン系	100	81~111
	150	132~169
	200	182~214

a) 主成分：リン酸アンモニウム、八ホウ酸ナトリウム四水和物
試験体数：7体

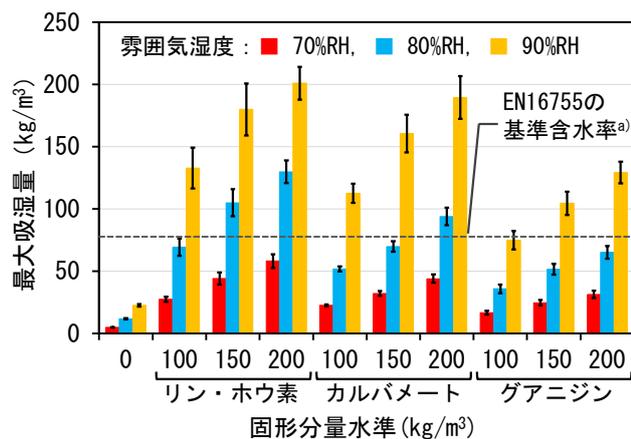


図1 各雰囲気湿度における最大吸湿
値：平均値，エラーバー：標準偏差，試験体数：7体

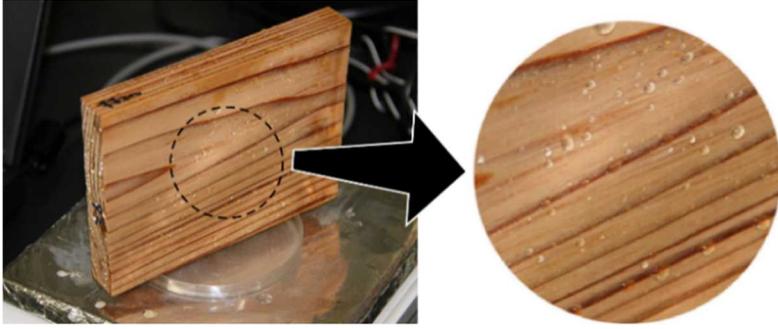
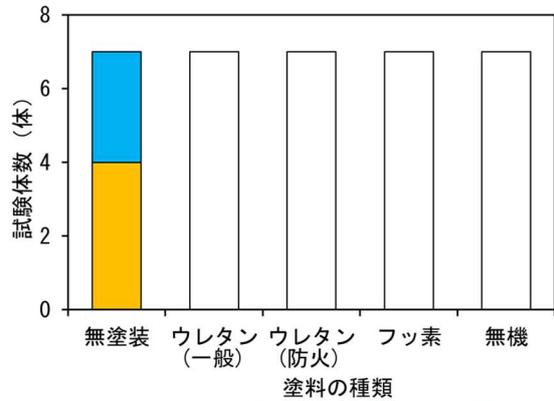


写真1 試験体の表面に生じた水滴

表2 塗装試験体の概要

塗料	塗布量 (g/m ²)	
	下塗り	中・上塗り
無し		
ウレタン樹脂系 (一般木材用, 溶剤系)	90	90
ウレタン樹脂系 (防火木材用, 溶剤系)	90	90
フッ素樹脂系 (溶剤系)	90 ^{a)}	110
無機系 (水系)	下塗り	93
	中塗り	99
	上塗り	99

a) 平林等の報告を参考に一般木材用ウレタン樹脂系樹脂系塗料を用いた



凡例：□ 無し, ■ 微量, ■ 一部, ■ 全面

図2 湿度90%RHにおける水滴の発生状況 (試験体数：7体)

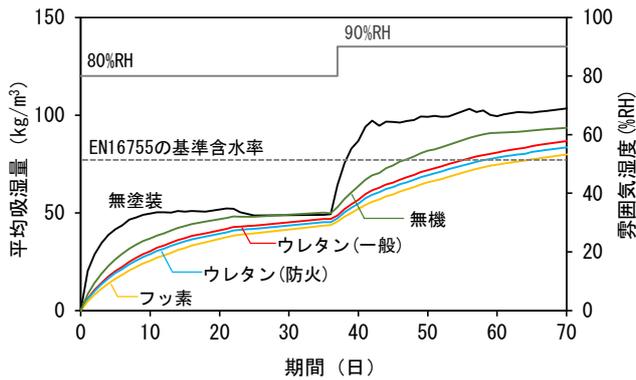


図3 試験体の平均吸湿量の推移 (試験体数：7体)

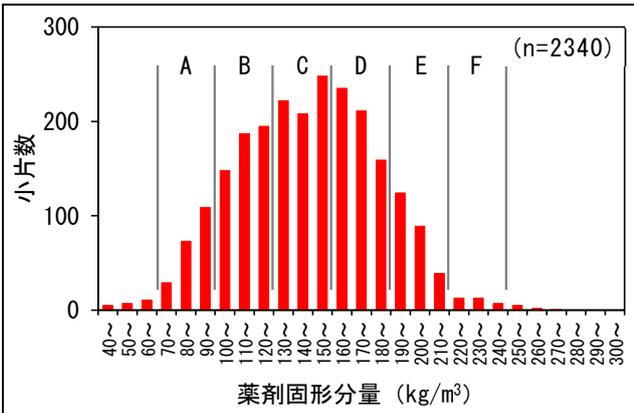


図4 処理小片の薬剤固形分量の分布
(長尺処理板材 (薬剤固形分量 100~200kg/m³) 60枚)

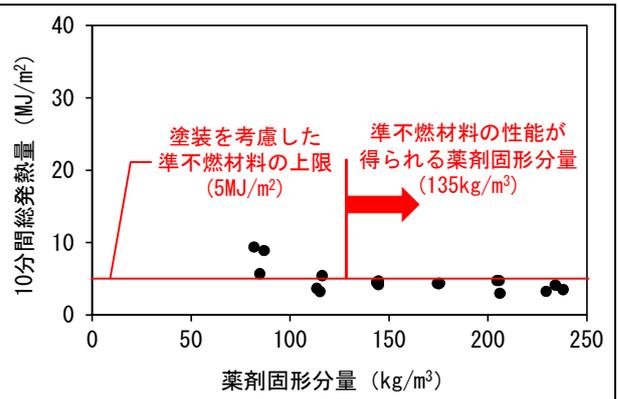


図5 処理小片の薬剤固形分量と総発熱量の関係

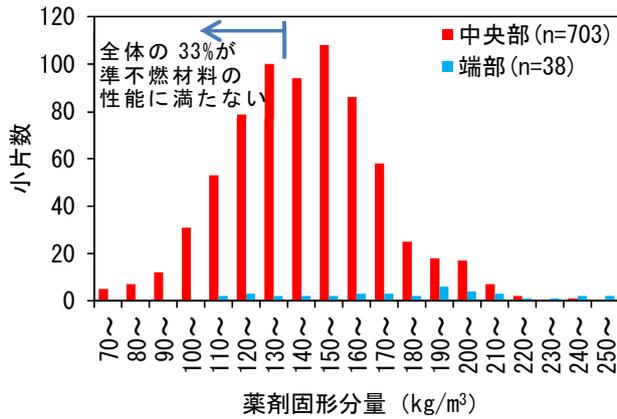


図6 端部と中央部の薬剤固形分量の分布
(長尺処理板材 (薬剤固形分量 135~165kg/m³) 19枚)



写真2 模型箱試験の様子

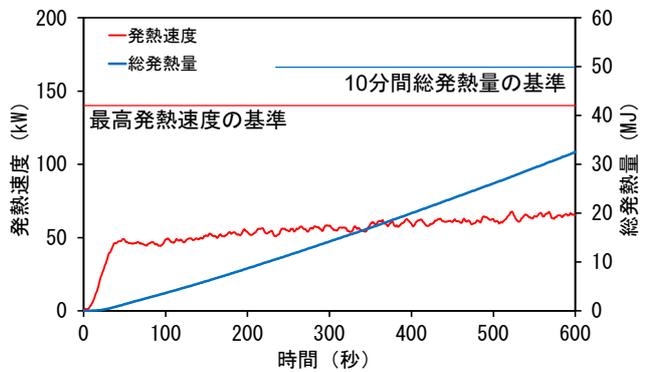


図7 発熱速度及び総発熱量の推移

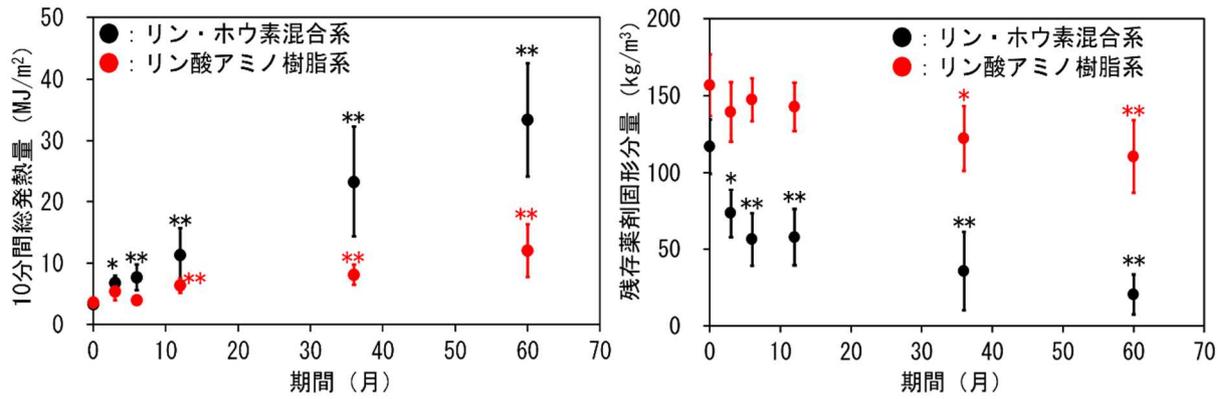


図8 無塗装試験体の屋外暴露による総発熱量及び残存薬剤固形分量の変化
Shirly-williamsの方法による多重比較の結果：* 有意水準5%で有意差有り，** 有意水準1%で有意差有り，試験体数：9体

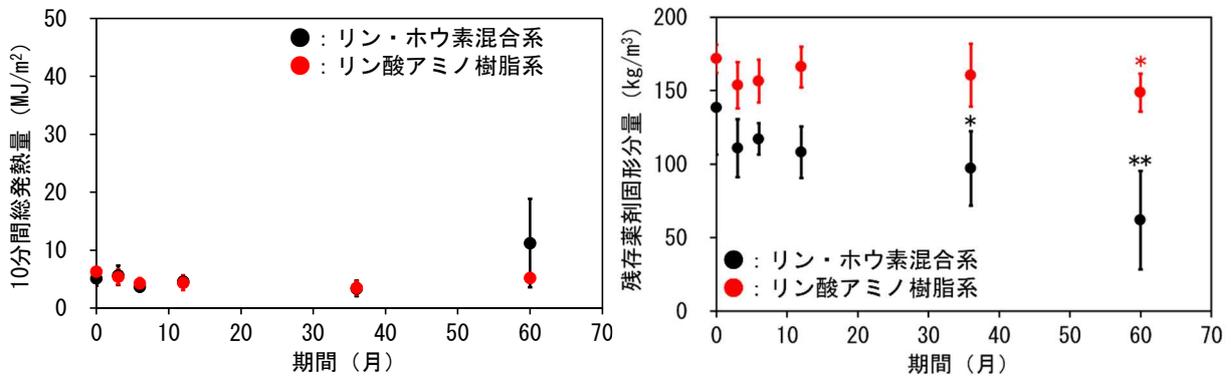


図9 塗装試験体の屋外暴露による総発熱量及び残存薬剤固形分量の変化
Shirly-williamsの方法による多重比較の結果：* 有意水準5%で有意差有り，** 有意水準1%で有意差有り，試験体数：9体



写真3 屋外暴露後の塗装試験体の状態
(旭川市 暴露60ヶ月後)

論文審査結果要旨

河原崎政行氏は2020年4月、短期履修制度における優れた業績を上げた者と認められ、入学者選抜試験に合格し、本学大学院博士後期課程に社会人学生として入学した。審査は、主査に木材高度加工研究所・教授の中村 昇があたり、副審査委員に同・教授の栗本康司を選任し、学外審査委員として、国立研究開発法人 森林研究・整備機構 森林総合研究所 研究ディレクターの原田寿郎を加えた3名で行った。

河原崎氏から提出された学位論文「難燃処理された内装用及び外装用木材の燃焼性状と経年変化」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：伐採期に達した国産材の需要開拓が期待されており、都市部中層建築物の内装用及び外装用木材は需要が見込める。建築基準法や防火上、内装用及び外装用木材には準不燃材料が求められ、木材を難燃処理することが必要となる。河原崎氏は、所属機関において、長年難燃処理木材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検討を行うことができている、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：難燃処理木材の製造は、木質材料学における主要なテーマの1つであり、適切な製造条件に関する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：河原崎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、これまで実用性の観点から十分でなかった一般的な薬剤や塗料を用いた最適な製造条件の解明に取り組んでおり、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が認められる。なお、これに先立ち、2020年12月22日に公開予備審査会、2021年2月18日に公開での博士学論文発表会を行った。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関する質疑に対し、適切に回答していた。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。