

学 位 論 文 題 名

木質材料の親環境的な耐久性向上技術に関する研究

学位論文内容の要旨

環境問題への関心が高まっているなか、木材保存の分野においても環境に与える負荷の小さい木材保存剤が求められている。なかでも天然物由来成分を利用した木材保存剤の開発に対する期待は大きい。実用化に至るまでの事例は少なく、抗菌活性成分の幅広い探索が要求されている。一方、従来の汎用的な加圧注入用の木材保存剤であったクロム・銅・ヒ素化合物（CCA）の代替として低毒性の木材保存剤（AAC, ACQ, CuAz 等）が開発されつつあるが、これらの道産材等に対する処理適性や様々な環境における木材保存剤としての性能については未知な部分も多く、工業的に使用していくためにはこれらが有する諸性能を明確にするとともに、これらを利用した親環境的な木材保存処理技術を確立することが重要である。本研究は、上記の諸問題を解決するために、樹木由来成分や微生物を用いた抗菌活性成分の検索を行うとともに、低毒性木材保存剤の諸性能を検討し、木質材料の親環境的な耐久性向上技術に寄与することを目的とした。

(1) 木材保存剤として適用可能な樹葉成分および樹皮成分の検索を行い、木材腐朽菌等に対する抗菌活性について検討した。ヒノキ樹葉抽出物がナミダタケに対して比較的強い抗菌活性を示したが、単独で木材保存剤として適用できるまでの抗菌活性は示さなかった。一方、ホオノキ樹皮アセトン抽出物が大半の木材腐朽菌の成長を強く抑制することが明らかとなり、分離・精製の結果、これらの抗菌成分はセスキテルペンである *eudesmols*、ビフェニル型ネオリグナンである *magnolol* および *honokiol* と同定された。しかし、いずれも供試した全ての木材腐朽菌の成長を完全に抑えたり、死滅させたりするまでには至らなかったことから、他の木材保存剤との混用や静菌作用を付与した製品への応用が期待できると考えられた。木質系油吸着剤を製造する過程で排出される木酢液および木タールの木材腐朽菌に対する成長抑制力を調べた結果、汎用の木材保存剤に比べて防腐効力が劣ることがわかったが、処理条件や溶脱に対する対策を検討することにより、腐朽を抑制するための薬剤として利用することが示唆された。

(2) 食用菌の栽培培地の汚染菌として分離した *Trichoderma*、あるいは培養操作時に混入した *Penicillium* を分離して、木材腐朽菌に対する抗菌活性を調べ結果、これらの代謝産物が生物的防除に利用できる可能性を明らかにした。

(3) 比較的毒性が低いホウ酸の溶解度を向上させるために、アミン溶液を用いて調製されたホウ酸高濃度溶液の木材保存剤への適用を検討した結果、北米等で木材保存剤として使用されている八ホウ酸二ナトリウム四水和物（Tim-bor）と比較しても遜色のない防腐効果を示し、木材保存剤としての適用が可能であると判断された。一方、Tim-bor を注入処理した *Paraserianthes falcataria*（ファルカータ）をコア材に用いたランバーコア合板を、住宅用途に用いた場合を想定してその防腐効力を調べた結果、ホウ酸が溶脱する危険性が低い環境では木材腐朽菌に対して強い効力を示すことが明らかとなり、住宅部材等の保存処理に適用できることが示された。

(4) 低毒性木材保存剤の道産材に対する注入性および溶脱性を検討するとともに、針（釘）式インサイジングによる注入性の改善を検討した。その結果、ACQ や AAC 等の低毒性木材保存剤は、CCA と同等もしくはそれ以上の注入性を示すことが明らかとなった。また、これらの淡水に接する条件下での溶脱性を、カラマツ心材および辺材を用いた室内でのモデル試験により調べた結果、辺材および心

材における各保存剤の溶脱挙動が把握でき、それぞれ異なった挙動を示すことが明らかとなった。また、大半の保存剤成分において心材よりも辺材からの溶脱が顕著であったことから、辺材と心材における各保存剤成分の定着および溶脱のメカニズムが異なることを示唆していると考えられた。人工海水あるいは蒸留水を用いて溶脱操作を行った結果、各保存剤成分の溶脱挙動は樹種によって違いが見られ、DDAC の溶脱は人工海水より蒸留水を用いた場合の方が多かった。一方、CuAz 成分の溶脱挙動については、ホウ酸は蒸留水において、銅は人工海水においてそれぞれ溶脱量が多くなることがわかった。釘を用いた針式インサイジングにより、カラマツ心材に対する AAC の注入性を改善するための検討を行った結果、釘の直径 2.8 mm、刺傷深さ 10 mm、密度 8,300 / m² の条件でインサイジングを行った場合に飛躍的な注入性改善効果が認められ、強度低下も従来のインサイジングと同等なレベルに抑えられることが明らかとなった。

(5) 低毒性木材保存剤で処理されたカラマツおよびトドマツの野外暴露試験の結果、銅系の保存剤である ACQ あるいは CuAz 処理材の効果が顕著で、両者の耐用年数は 10 年以上であることが予想され、低毒性の保存剤を用いた場合でも、道産材の耐用年数を十分に延長できることが示された。一方、木製屋外施設の腐朽調査を行った結果、AAC で処理された部材で構成された施設は、塗布処理が行われた施設に比べて耐久性が高いことが明らかとなった。また、土木構造物の腐朽調査を行った結果、無処理材ではおよそ 8～9 年程度で耐用年数に達するのに対し、CuAz を加圧注入した部材は設置後 10～11 年を経過しても健全な状態を維持していた。また、各部材がおかれている環境によって、4 つの腐朽の進行パターンに分類できることがわかった。河川環境に設置された木材の耐朽性を調べた結果、JAS 等の規格に規定された低毒性木材保存剤を用いることにより耐朽性を向上できることが示され、反対に、これらの規格に規定されていない薬剤等で処理したものは耐朽性が低いことがわかった。AAC あるいは CuAz 処理した木材の海洋環境における性能について検討した結果、無処理のスギおよびブナでは設置後 24 ヶ月以内に崩壊したのに対し、CuAz 処理のスギは 52 ヶ月を経過しても健全な状態を維持し、海虫に対して高い抵抗性を示すことが明らかとなった。

(6) 適切な保存剤の使用あるいは適切な保存処理・維持管理を目的として、低毒性木材保存剤で処理したカラマツ等を使用したファンガスセラー試験（室内促進劣化試験）およびカラマツ丸太材等の野外暴露試験により、木材あるいは木製土木構造物の耐久性の推定・予測手法を検討した。ファンガスセラーによる腐朽の促進効果を評価したところ、無処理のカラマツ心材の場合は 10～12 倍程度促進されていると推定され、カラマツを用いたファンガスセラー試験法を確立できたことが示された。ファンガスセラー試験および野外暴露試験の結果から、被害度（腐朽程度）と残存強度の関係を明らかにすることができた。これらの関係式と、前述(5)で得られたカラマツ製土木構造物における被害度（腐朽程度）と経過年数との関係式を用いて、経過年数と残存強度（残存断面積）の関係を表す推定式を算出し、土木構造物の各部材における強度低下の予測が可能となった。また、ここで得られた各部材における強度低下の推定式を土木構造物の安定計算式に適用することで、土木構造物としての耐力変化の予測が可能となり、設計段階での耐用年数の予測、あるいは必要な耐用年数まで機能させるための適切な保存処理方法の選択を可能とした。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	寺 沢	実
副 査	教 授	高 橋	邦 秀
副 査	教 授	矢 島	崇
副 査	助教授	小 島	康 夫
副 査	助教授	玉 井	裕

学 位 論 文 題 名

木質材料の親環境的な耐久性向上技術に関する研究

本論文は、図 98、表 112、および引用文献 167 編を含む 253 ページからなる邦文論文である。別に 14 編の参考論文が添付されている。

本研究は、生物等、天然物由来の抗菌活性成分の検索を行うとともに、既往の加圧注入用木材保存剤であったクロム・銅・ヒ素化合物 (CCA) の代替として開発された低毒性木材保存剤 (AAC, ACQ, CuAz 等) の諸性能を検討し、木質材料の親環境的な耐久性向上技術に寄与することを目的とした。

(1) 木材保存剤として適用可能な樹葉成分および樹皮成分の検索を行い、木材腐朽菌等に対する抗菌活性について検討した結果、特にホオノキ樹皮アセトン抽出物が大半の木材腐朽菌の成長を強く抑制することが明らかとなり、分離・精製の結果、これらの抗菌成分はセスキテルペンの *eudesmols*、ビフェニル型ネオリグナンの *magnolol* および *honokiol* と同定された。しかし、いずれも供試した全ての木材腐朽菌の成長を完全に抑えたり、死滅させたりするまでには至らなかったことから、他の木材保存剤との混用や静菌作用を付与した製品への応用が期待できると考えられた。また、木酢液および木タールの木材腐朽菌に対する成長抑制力を調べた結果、汎用の木材保存剤に比べて防腐効力が劣ることがわかったが、処理条件や溶脱に対する対策を検討することにより、腐朽を抑制するための薬剤として利用できることが示唆された。

(2) 食用菌の栽培培地の汚染菌として分離した *Trichoderma*、あるいは培養操作時に混入した *Penicillium* を分離して、木材腐朽菌に対する抗菌活性を調べ結果、これらの代謝産物が生物的防除に利用できる可能性を明らかにした。

(3) 低毒性であるホウ酸の溶解度を向上させるために、アミン溶液を用いて調製されたホウ酸高濃度溶液の木材保存剤への適用を検討した結果、北米等で汎用されている八ホウ酸二ナトリウム四水和物 (Tim-bor) と比較しても遜色のない防腐効果を示した。一方、Tim-bor を注入処理した *Paraserianthes falcata* (ファルカータ) をコア材に用いたランバーコア合板の防腐効力を調べた結果、ホウ酸が溶脱する危険性が低い環境では木材腐朽菌に対して強い効力を示すことが明らかとなり、住宅部材等の保存処理に適用できることが示された。

(4) ACQ や AAC 等の低毒性木材保存剤は、CCA と同等もしくはそれ以上の注入性を示すこと

が明らかとなった。また、これらの淡水に接する条件下での溶脱性を、カラマツ心材および辺材を用いて調べた結果、辺材および心材における各保存剤の溶脱挙動が把握でき、それぞれ異なった挙動を示すことが明らかとなった。また、大半の保存剤成分において心材よりも辺材からの溶脱が顕著であったことから、辺材と心材における各保存剤成分の定着および溶脱のメカニズムが異なることを示唆していると考えられた。DDAC の溶脱は人工海水より蒸留水を用いた場合の方が多かった。一方、CuAz 成分の溶脱挙動については、ホウ酸は蒸留水において、銅は人工海水においてそれぞれ溶脱量が多くなることがわかった。カラマツ心材に対する注入性改善のために、釘を用いた針式インサイジングを検討した結果、釘の直径 2.8 mm、刺傷深さ 10 mm、密度 8,300 / m² の条件で飛躍的な注入性改善効果が認められ、強度低下も従来のインサイジングと同等なレベルに抑えられることが明らかとなった。

(5) 木製屋外施設等、野外接地環境における低毒性木材保存剤の耐朽性を調べた結果、銅系木材保存剤の ACQ あるいは CuAz 処理材の耐用年数は 10 年以上であることが予想され、AAC 処理材も既往の保存剤を塗布された部材に比べて高い耐久性が期待された。また、河川環境に設置された木材の耐朽性を調べた結果、低毒性木材保存剤を用いることにより耐朽性を向上できることが明らかとなった。一方、AAC あるいは CuAz 処理した木材の海洋環境における性能について検討した結果、無処理のスギおよびブナでは設置後 24 ヶ月以内に崩壊したのに対し、CuAz 処理のスギは 52 ヶ月を経過しても健全な状態を維持し、海虫に対して高い抵抗性を示すことが明らかとなった。

(6) 低性木材保存剤で処理したカラマツ等を使用したファンガスセラー試験（室内促進化試験）方法を確立し、ファンガスセラーで促進腐朽させたカラマツ等における被害度（腐朽程度）と残存強度の関係を明らかにし、カラマツ丸太材等の野外暴露試験においても同様の関係を明らかにすることができた。これらの関係式と、前述(5)で得られたカラマツ製土木構造物における被害度（腐朽程度）と経過年数との関係式を用いて、経過年数と残存強度（残存断面積）の関係を表す推定式を算出し、これを土木構造物の安定計算式に適用することで、設計段階での耐用年数の予測、あるいは必要な耐用年数まで機能させるための適切な保存処理方法の選択を可能とした。

本研究は、木質材料の新環境的な耐久性向上技術に関して業界に貢献する数々の提言を行ったもので、木材学会、木材工業界において高い評価を得ている。よって、審査員一同は、森 満範が博士（農学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認めた。