

## 未利用広葉樹の有効利用に関する基礎的研究 ( I )

### コナラ, クヌギ単板の光変色について\*

大賀 雅 司\*\* · 作野 友 康\*\* · 古川 郁 夫\*\*

岸 本 潤\*\*

## Studies on Utilization of Unused Hardwoods ( I )

### Color Changes of Konara and Kunugi Veneers\*

Masashi OHGA,\*\* Tomoyasu SAKUNO,\*\* Ikuo FURUKAWA\*\*

and Jun KISHIMOTO\*\*

#### Summary

This paper describes the effect of light on the following three woods; Konara (*Quercus serrata* Thunb.), Kunugi (*Q. acutissima* Carruth.), Mizunara (*Q. mongolica* var. *grosseserrata* Rehd. & Wils.). And the effect of molecular weight of PEG and the amount of spread with PEG on preventing color changes, and the components of cause of color changes are discussed. The results of this study are as follows:

1) In Konara and Kunugi heartwoods,  $L^*$  was decreased at the beginning of irradiate time, then  $L^*$  was increased gently,  $b^*$  was increased largely, and the color changed to be yellowish.

2) In Konara and Kunugi sapwoods,  $L^*$  was decreased as irradiate time,  $a^*$  was unchanged, and  $b^*$  was increased largely. The color changed to be darkly yellowish.

3) Woods spread with a solution of PEG prevented color change. And larger molecular weight and larger spread with PEG prevented color changes.

4) Color changes were not caused by hot-water and alkali extractives but were caused by dioxan extractives of Konara and Kunugi woods.

---

\* 第33回日本木材学会にて発表(1983, 京都)

\*\* 鳥取大学農学部林学科木材工学及び林産化学研究室; Laboratory of Wood Technology and Forest Products Chemistry, Department of Forestry, Faculty of Agriculture, Tottori University.

## I 緒 言

鳥取大学広葉樹開発実験室を中心とした国産未利用広葉樹の有効利用に関する研究の一環として、現在までに、コナラ、クヌギの接着性<sup>10)</sup>、小径広葉樹の材質調査<sup>1)</sup>、ニセアカシア、ネムノキの変色と接着性<sup>8,9)</sup>等の研究を行ってきた。特に、表面化粧単板への適応性については、これまで全く利用されていないニセアカシア、ネムノキにおいても、その木目が美しく、接着性等が良好であることから、十分に利用できることを明らかにした<sup>8,9)</sup>。

Quercus属は、木目が美しいことより、民芸家具として好まれ、また床板等の表面化粧材としてもかなりの需要がある。しかしながら、現在そのほとんどが北海道産のミズナラを使用している状態である。一方、コナラ、クヌギ材は、直径10～20 cm程度の小径木は、シイタケ原木として利用されているが、それ以外の材は、ほとんどパルプ用材として利用されているのが現状である。また、蒜山地区を含む岡山県北部に大量に蓄積があるコナラ、クヌギの中大径木を用材として有効に利用するための基礎的研究をすることは、急務となっている。そこで本研究では、両樹種のスライス単板の光変色状態についてミズナラと比較検討し、コナラ、クヌギが表面化粧用単板として利用できるかどうかについて検討した。

また、Quercus属の単板は、かなりの光変色をすることが知られている<sup>2,6)</sup>ため、その変色防止方法として、比較的安価で、取扱いも容易であり、変色防止効果のみられるポリエチレングリコール(以下PEGと略記する)による処理の効果について検討した。なお、これまでの研究でPEGは淡色な材については顕著な変色防止効果が見られるが、濃色の材についてはあまり効果がないといわれており、さらに、PEGを塗布すると明度が増加することもよく知られている<sup>4,6,8,11)</sup>。そこで本研究では、PEGの分子量と塗布量が変色防止効果におよぼす影響および材中成分の光変化とPEGとの関係についても検討した。

## II 実験方法

### 1. 実験材料

#### 1) 供試単板

鳥取大学蒜山演習林産のコナラ、クヌギを用いた。両樹種の生材よりフリッチを作成し、ただちに、辺材および心材より厚さ1 mmのスライス単板を切削した。また、心材フリッチの一部は、気乾状態にした後、75℃で約20時間温水軟化処理を行い、生材と同様にスライス単板を切削した。さらに、比較のため、現在大量に使用されている北海道産のミズナラ温水軟化心材より、2.4 mm厚のロータリー単板を切削した。

これらの単板を60×80 mmに切削し、表面をサンドペーパー #240で素地調整し、供試単板とした。

## 2) PEG処理単板

変色防止剤として分子量400, 1,000, 4,000のPEG 10%水溶液を用いた。これらの水溶液を、各供試単板に固形分換算で5, 10, 20 g/m<sup>2</sup>になるように塗布した後、50℃で20時間乾燥した。

## 3) 抽出液塗布ろ紙

クヌギ心材材の木粉(20~60メッシュ)を温水(50℃, 12時間), アルカリ(1%NaOH, 沸とう水中1時間), および水・ジオキサン(1:9)で抽出した。これらの抽出液をろ紙に噴霧し、50℃で20時間乾燥した。一方、抽出液にPEG 4,000を加えた溶液(3:1 v/v)も同様にろ紙に噴霧し、乾燥した。

## 2. 光照射および測色

供試単板, PEG処理単板, 抽出液塗布ろ紙について、それぞれ光照射し、変色状態を観察した。

光照射は、キセノンランプを装着したフェードメーター(スガ試験機製, FAL-25 AX-HC型)を用いて、100時間行った。照射条件は、ブラックパネル温度63±3℃, 放電電圧170~180V, 放電電流38~40A, 器内温度40±1℃, 器内湿度55~65%とした。

光照射0, 1, 2, 5, 10, 25, 50, 100時間後の各試料の色を、色差計(SMカラーコンピューター: スガ試験機製, SM-2型)を用いて測定し、CIE(L\* a\* b\*)表色系で表記した。測定結果より、照射前の値を基準として、変色度ΔE\*を次式によって計算した。

$$\Delta E^* = [(L_i^* - L_0^*)^2 + (a_i^* - a_0^*)^2 + (b_i^* - b_0^*)^2]^{1/2}$$

L<sub>0</sub><sup>\*</sup>, a<sub>0</sub><sup>\*</sup>, b<sub>0</sub><sup>\*</sup>; 照射前の値

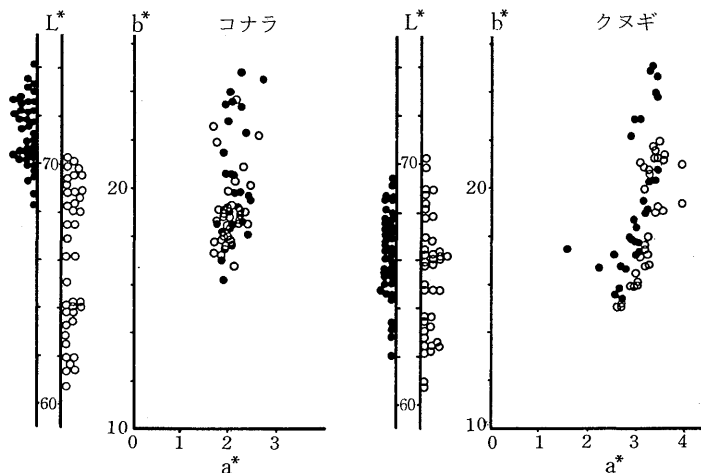
L<sub>i</sub><sup>\*</sup>, a<sub>i</sub><sup>\*</sup>, b<sub>i</sub><sup>\*</sup>; 照射後の値

## III 結果と考察

## 1. 供試単板の変色

光照射前のコナラ, クヌギの心材材色分布を第1図に示す。

コナラのL\* (明度)は、生材の方が温水軟化材よりも高かったが、コナラのa\*, b\*, およびクヌギのL\*, a\*, b\* においては、生材と温水軟化材とはほぼ同程度の値を示した。また、両樹種とも



第1図 コナラ, クヌギ心材の材色分布

● 生材 ○ 温水軟化材

辺材は心材に比べて、 $L^*$ 、 $b^*$ がともに高い値であった。すなわち、辺材は心材よりも明色で、黄色味を帯びていた。なお、ミズナラにおいてはコナラ、クヌギ心材とほぼ同程度の値を示した。

次に、各樹種温水軟化心材単板の $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$ の経時変化を第2図に示す。

3樹種とも光照射初期に $L^*$ が急激に減少し、その後若干の増減を繰返しながら、50時間以上では増加傾向を示し、100時間照射後には照射前に比べてコナラ、クヌギは多少増加したが、ミズナラは減少した。

$a^*$ は100時間後でもほとんど変化しなかったが、 $b^*$ は3樹種ともほぼ直線的に増加し、材は黄色を呈した。その増加割合はミズナラ、コナラ、クヌギの順に大きかった。

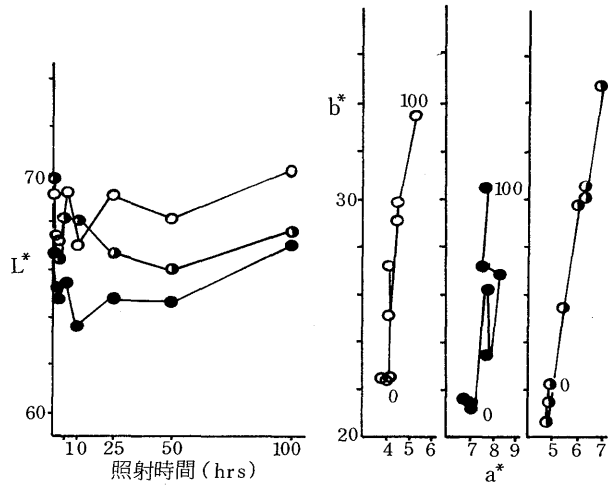
ついで、クヌギの各供試単板の $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$ の経時変化を第3図に示す。

辺材単板は心材単板に比べてかなり高い明度を示し、光を照射すると $L^*$ は10時間まで急激に減少し、その後は徐々に減少した。 $a^*$ はわずかに増加し、 $b^*$ は時間とともに急激に増加し材は暗黄色化した。

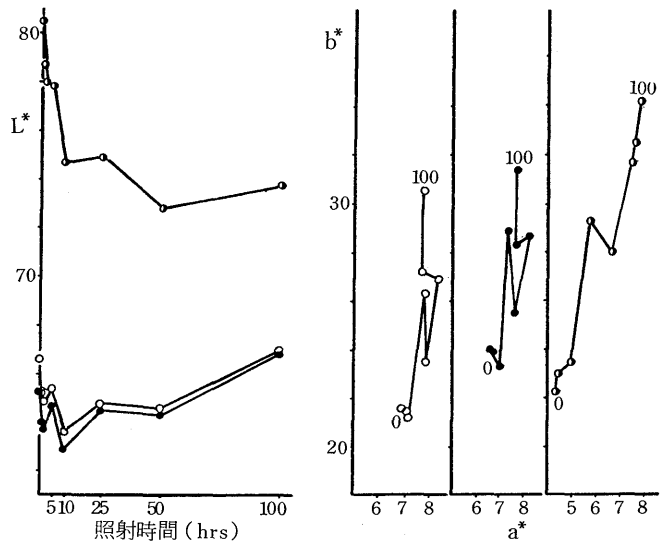
心材単板は生材、温水軟化材とも、 $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$ において同様な変化傾向を示した。すなわち、 $L^*$ は光照射初期に減少し、その後ゆるやかに増加した。また、 $b^*$ は増加し $a^*$ はほとんど変化せず、材は黄色を呈した。

コナラについても同様な傾向であった。

ニセアカシア、ネムノキにおいて、温水軟化処理をしても生材と変色傾向が同じであるという高畠らの報告<sup>8,9)</sup>と同様なことがコナラ、クヌギについても言える。このことより、単板の切削に際して省力、省エネルギーのために、生材をそのまま切削した方がより有効的に利用できるのではないかと



第2図 コナラ、クヌギ、ミズナラ温水軟化心材の光変色  
○コナラ ●クヌギ ●ミズナラ



第3図 クヌギ単板の光変色  
○温水軟化心材 ●生材心材 ●生材辺材

と思われる。

心材と辺材の変色傾向の違いは、峯村らの報告<sup>6)</sup>中の淡色材と濃色材の変色傾向の違いによく一致していた。すなわち、淡色材においては明度が時間とともに減少し暗色化したが、この傾向はコナラ、クヌギの辺材単板の変色傾向と一致していた。また、濃色材においては明度が光照射初期減少し、その後ゆるやかに増加したが、この傾向はコナラ、クヌギの心材単板の変色傾向と一致していた。

さらに、ミズナラとコナラ、クヌギの変色傾向は類似しており、変色度 $\Delta E^*$ はミズナラで12.9、コナラで11.1、クヌギで9.2とコナラ、クヌギはミズナラより小さく、ミズナラにかわる表面化粧用単板への適応性が十分あると思われる。

## 2. PEG 処理単板の変色

前述のように、コナラ、クヌギおよびミズナラは光を照射することにより、大きく変色することが確認された。そこで、PEGで変色防止処理した単板の変色状態について以下に述べる。

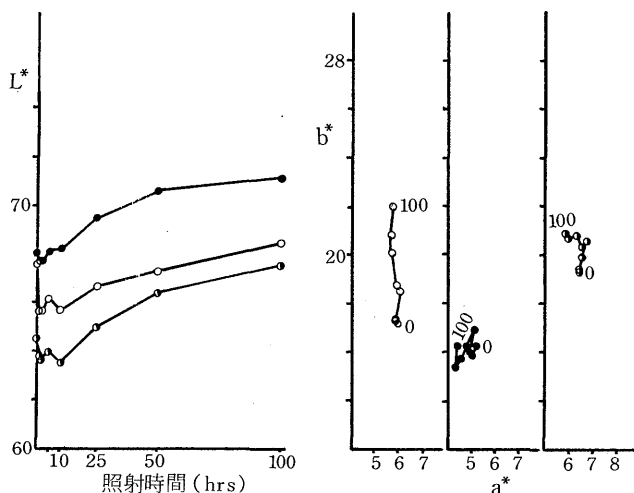
### 1) PEG分子量の影響

コナラ心材、クヌギ心材およびミズナラに異なる塗布量のPEGを塗布した場合、同様な傾向を示したので、ここでは、クヌギ生材心材にPEG 400, 1,000, 4,000を固形分換算で $10\text{ g/m}^2$ 塗布した単板の $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$ の経時変化を第4図に示す。

いずれの分子量を用いた場合も $L^*$ の変化は同様の傾向を示し、これまでの研究で報告<sup>4~6,8,11)</sup>されているように、PEGを塗布すると明度は100時間照射後に上昇した。そして、分子量が大きくなるほど明度の増加量は、0.9, 3.1, 2.9と大きくなった。 $b^*$ は若干増加し、 $a^*$ はほとんど変化しなかった。 $b^*$ の増加量はPEG 1,000が最も小さく、PEG 400が最も大きかった。

次に、クヌギ生材辺材に $10\text{ g/m}^2$ 塗布した時の変色状態を第5図に示す。

$L^*$ は無処理単板と同様に減少し、材は暗色化した。 $a^*$ はわずかに増加したが $b^*$ はかなり増加し、その増加量はPEG 1,000, 4,000, 400の順に大きかった。



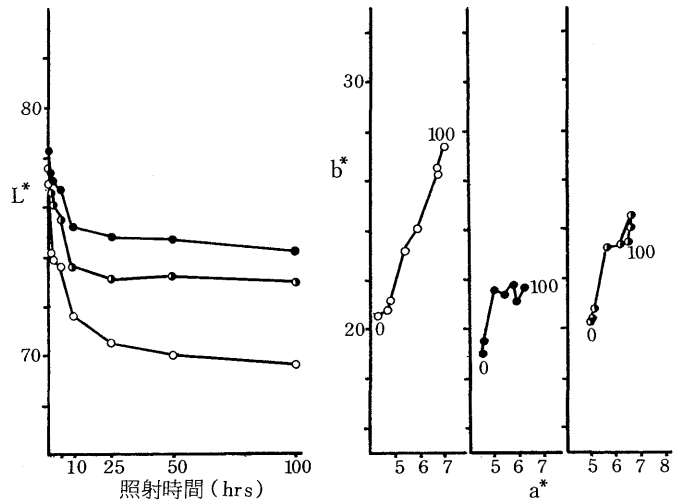
第4図 クヌギ生材心材の変色におよぼすPEG分子量の影響  
(塗布量 $10\text{ g/m}^2$ )

○ PEG 400    ● PEG 1,000    ● PEG 4,000

コナラについても、同様の傾向であった。

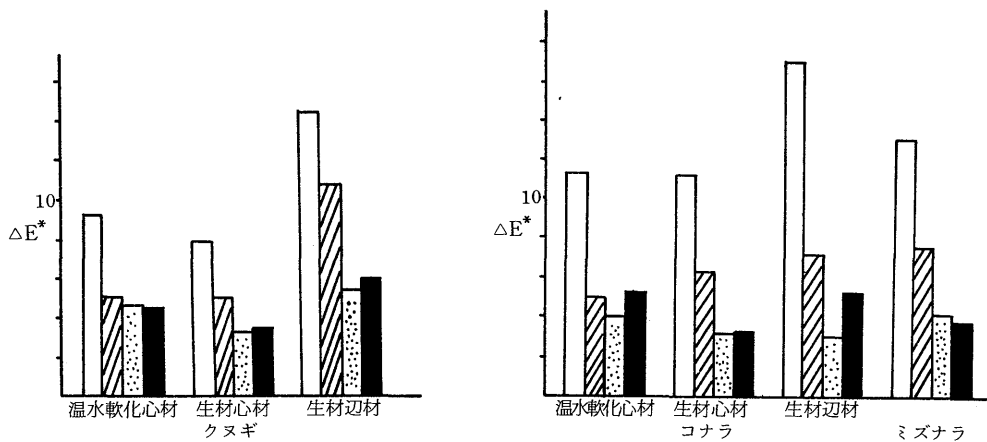
心材と辺材を比較するとb\*は両者とも光照射後増加し、その増加量は、PEG 400の場合が特に大きかった。a\*は心材ではほとんど変化しなかったが、辺材ではわずかに増加した。L\*は心材が増加したのに対し、辺材では減少した。そして、分子量が大きくなるほど心材のL\*の増加量が大きくなり、辺材のL\*の低下割合は小さくなった。

次に、100時間光照射後の変色度ΔE\*を第6図に示す。



第5図 クスギ生材辺材の変色におよぼすPEG分子量の影響 (塗布量10g/m<sup>2</sup>)

○ PEG 400 ● PEG 1,000 ● PEG 4,000



第6図 100時間光照射後の変色度(塗布量10g/m<sup>2</sup>)

□ 無処理    ▨ PEG 400    ▩ PEG 1,000    ■ PEG 4,000

PEG処理したものは無処理に比べてΔE\*がかなり低い値となり、変色防止効果が明らかに表われている。中でもPEG 1,000で処理した場合が最も低い値となり、効果が大きいことを示している。また、処理剤として使用する場合、PEG 1,000は常温では固形であるが、比較的水に溶けやすく取扱いが容易であることから最適であると思われる。

2) PEG塗布量の影響

各分子量について実験を行った結果PEG 1,000が最も典型的な傾向を示したので、以下はPEG 1,000

について述べる。

PEG 1,000 を用いて、異なった塗布量で処理したクヌギ生材心材の変色状態を第7図に示す。

$L^*$  はいずれの塗布量でも照射初期に若干減少し、その後ゆるやかに増加した。 $a^*$ 、 $b^*$  の変化をみると、塗布量  $5g/m^2$  における  $b^*$  を除いてほとんど変化しなかった。塗布量  $5g/m^2$  の場合、 $b^*$  が大きく増加し、材は黄色化した。このことより、同一分子量の場合でも塗布量が少なければ  $b^*$  の変化を抑制できないことがわかった。

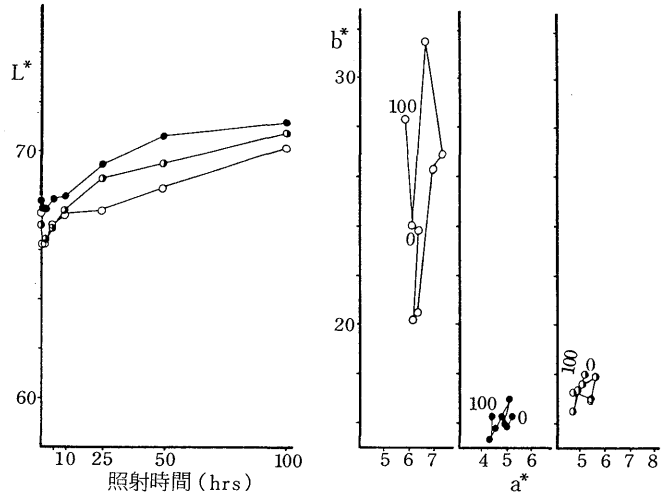
クヌギ温水軟化心材、コナラ心材、およびミズナラについても同様の傾向を示した。

次に、クヌギ生材辺材について同様の処理をした場合の変色状態を第8図に示す。

$L^*$  はいずれの塗布量でも減少し材は暗色化した。この傾向は無処理のものと同様であった。 $a^*$  は全ての塗布量でわずかに増加した。 $b^*$  は  $5g/m^2$  塗布した場合を除いてわずかに増加した。 $5g/m^2$  塗布した場合は  $b^*$  が大きく増加し、材は黄色化した。

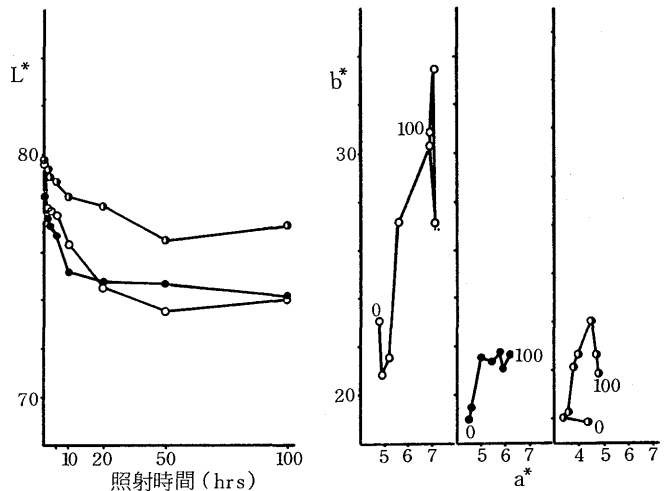
心辺材を比較すると、心材で  $L^*$  が増加したのに対し、辺材では  $L^*$  が減少し逆の傾向を示した。しかしながら、心辺材とも塗布量が多い場合、 $b^*$  の変化を抑制できることがわかった。このことより、PEGの変色防止効果は  $b^*$  の変化を抑制することであるといえる。

次に、 $\Delta E^*$  は  $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$  の総合的な変化量であるので、各々の要因について細かく検討した。その結果、 $a^*$  の変化は他のカラーパラメーターの変化に比べかなり小さかった。そこで、これを除く  $\Delta L^*$ 、 $\Delta b^*$  について第9、10図に示す。



第7図 クヌギ生材心材の変色におよぼすPEG塗布量の影響 (PEG 1,000)

○  $5g/m^2$     ●  $10g/m^2$     ●  $20g/m^2$



第8図 クヌギ生材辺材の変色におよぼすPEG塗布量の影響 (PEG 1,000)

○  $5g/m^2$     ●  $10g/m^2$     ●  $20g/m^2$

第9図に示すように、コナラ、クヌギ心材においては塗布量が増加すると $\Delta L^*$ が大きくなり、照射前に比べて材は明色化した。コナラ、クヌギ辺材においては塗布量が増加すると $\Delta L^*$ が大きくなり、照射前に比べて材の暗色化が抑制された。ミズナラにおいては $5g/m^2$ の場合、無処理材より暗色化し、他の単板と異なる傾向を示した。しかしながら塗布量が $10g/m^2$ になると $\Delta L^*$ は大きく増加し、材は明色化した。以上のことより高畠、峯村らが報告<sup>6,8,9)</sup>しているように、PEGを塗布すると材が明色化することを確認した。

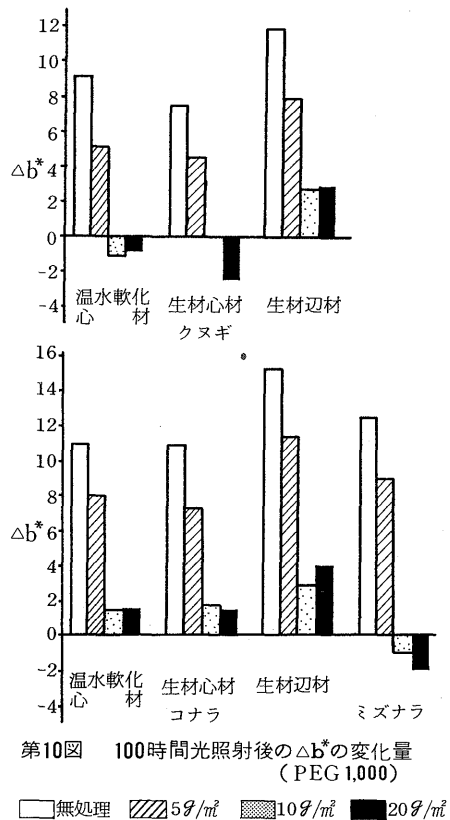
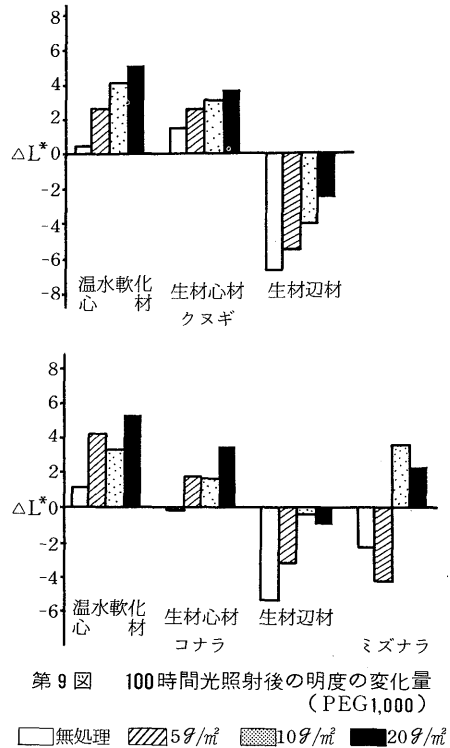
第10図に示すように、塗布量が増加すると $\Delta b^*$ は小さくなり、材の黄色化はPEGを塗布することによって防止できることがわかる。しかし、 $20g/m^2$ 塗布した材ではクヌギ心材、ミズナラにおいて $\Delta b^*$ が負になり、材色が本来の色と異なってしまうことがわかる。従って、塗布量には適量があると思われるので、PEG使用前には最適塗布量について検討しておかなければならない。

次に、 $\Delta L^*$ 、 $\Delta a^*$ 、 $\Delta b^*$ 全てを含む変色度 $\Delta E^*$ を第11図に示す。

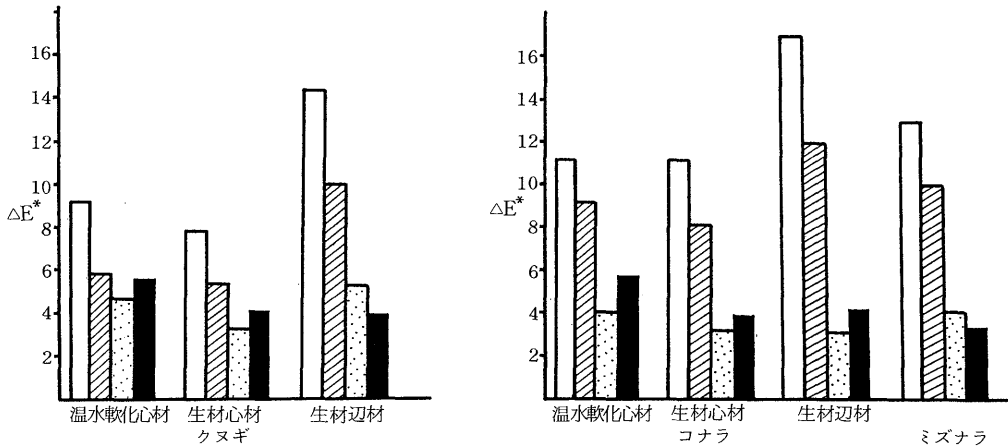
PEG処理単板は、無処理単板に比べて $\Delta E^*$ の値が塗布量が増加するほど小さくなり、明らかに変色防止効果のあることがわかる。しかし、塗布量が $20g/m^2$ の場合、心材では $10g/m^2$ 塗布の場合より若干高い値であった。このような結果から判断すると、この実験の範囲では $10g/m^2$ の塗布量が最適な処理条件であるといえる。

心材の $\Delta E^*$ の減少量は辺材に比べて小さく、濃色の材ではPEGの変色防止効果は小さいとする峯村らの報告<sup>6)</sup>と同様の結果となった。これは、PEGを塗布することによって材色が明色化するため $\Delta L^*$ が心材において大きくなり、その影響が大きく $\Delta E^*$ が大きな値になるものと考えられる。

1), 2)の結果より、同一塗布量ではPEGの分子







第11図 100時間照射後の変色度 (PEG 1,000)

□ 無処理    ▨ 5g/m<sup>2</sup>    ▩ 10g/m<sup>2</sup>    ■ 20g/m<sup>2</sup>

量を大きくするほど変色防止効果は大きくなり、同一分子量では塗布量が多くなると防止効果は大きくなった。しかしながら、分子量によって最適塗布量があるので、使用前には塗布量を検討する必要がある。また、変色防止効果は心材では $b^*$ の変化を抑制することによって生じ、辺材では $L^*$ および $b^*$ の変化を抑制することによって発揮される。

木材の光変色はリグニンが関与しているといわれており<sup>7,12</sup> PEGは木材表面を被覆し、照射光を遮断する物理的效果と、光分解された材中成分とPEGが化学反応を起こす化学的效果とが考えられる。PEGはリグニンモデル化合物の変色を抑制するという報告<sup>6</sup>もあり、変色防止剤として十分利用できると思われる。また、PEGは比較的安価でかつ取扱いも容易であり、経済的な面からも有効な変色防止剤であると思われる。

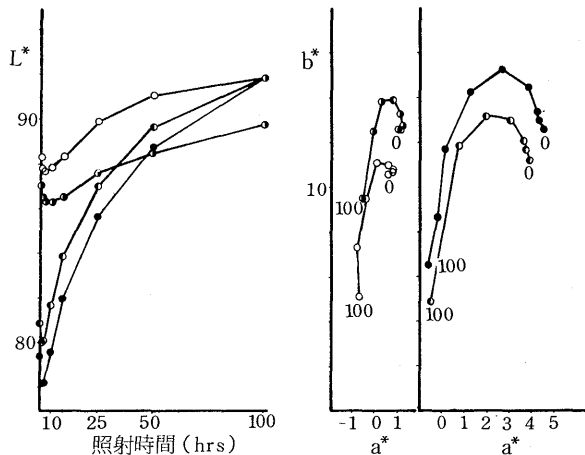
### 3. 抽出液塗布ろ紙の変色

PEGと材中成分の関係を検討するために、抽出物の光変色に及ぼすPEGの影響について実験を行った結果を以下に述べる。

クヌギ生材心材の温水抽出液、アルカリ抽出液を塗布したろ紙の変色状態を第12図に示す。

PEG添加および無添加の温水抽出液塗布ろ紙はともに同様の傾向を示した。

すなわち、 $L^*$ が増加し $a^*$ が減少し、 $b^*$



第12図 クヌギ心材の温水およびアルカリ抽出液塗布ろ紙の光変色

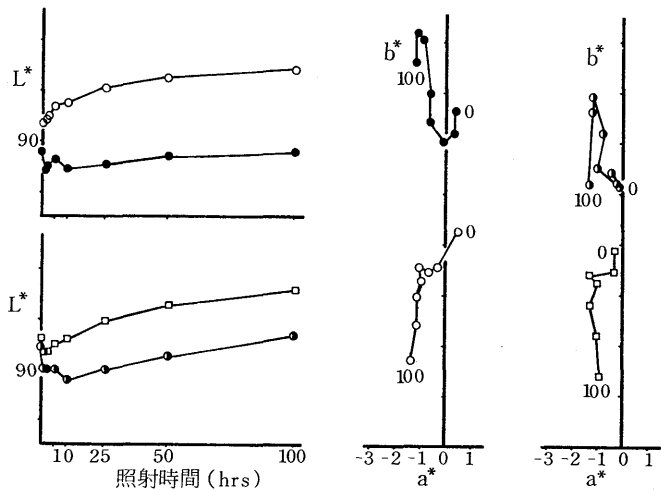
○ 無添加 } 温水抽出液    ● 無添加 } アルカリ抽出液  
● PEG添加 } 温水抽出液    ● PEG } アルカリ抽出液

も光照射初期に増加した後、大きく減少した。

また、アルカリ抽出液塗布ろ紙においても、添加、無添加とも同様な傾向を示した。すなわち、 $L^*$ が大きく増加し  $a^*$ は減少し、 $b^*$ も照射初期増加した後、大きく減少した。これらの変色状態は単板の変色状態と一致せず、温水抽出物およびアルカリ抽出物はクヌギ材の光変色の主要原因とはならないと考えられる。

次に、クヌギ心辺材の水・ジオキサン抽出液塗布ろ紙の  $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$ の経時変化を第13図に示す。

心辺材とも、PEG無添加では  $b^*$ が光照射初期に減少し、その後50時間まで増加し、100時間後には減少した。 $L^*$ は光照射初期には減少したがその後増加傾向を示し、100時間照射後には照射前とほぼ同じ値になった。一方、PEGを添加したろ紙は心辺材とも  $b^*$ が時間とともに減少し、 $a^*$ も減少した。また、 $L^*$ は増加した。



第13図 ジオキサン抽出液塗布ろ紙の光変色

● 無添加	} クヌギ辺材	○ 無添加	} クヌギ心材
○ PEG添加		□ PEG添加	

以上のことより、光変色の主原因となっているものは、温水およびアルカリ抽出液中の成分（遊離

糖、タンニン類等）ではなく、ジオキサン抽出液中の成分（リグニン）であると考えられる。また、PEG処理によって  $b^*$ が減少する原因は、ジオキサン抽出物とPEGとがなんらかの化学反応を起こすためではないかと思われる。木材に紫外線を照射すると、細胞間層に存在するリグニンが分解されるという報告<sup>12)</sup>もあり、これらの分解されたリグニンとPEGが反応して変色原因となる着色成分の合成を抑制するのではないかと推測される。

### IV 結 論

コナラ、クヌギ単板におよぼす光照射の影響ならびに、変色防止剤PEGの分子量および塗布量の影響について検討し、また、光変色の原因となる成分の検討も併せて行った。その結果、次の結論が得られた。

- 1) コナラ、クヌギ心材は  $L^*$ が照射初期に減少し、その後ゆるやかに増加した。 $a^*$ はほとんど変化せず  $b^*$ は大きく増加し、材は黄色化した。温水軟化材と生材は変色傾向が類似していた。
- 2) コナラ、クヌギ辺材は  $L^*$ が照射時間とともに減少した。 $a^*$ はわずかに増加し、 $b^*$ が大きく増加して材は暗黄色を呈した。

3) PEGを塗布することによって変色が防止でき、分子量を大きくするほど、また塗布量を多くするほどその効果は大きくなった。しかし、分子量によって最適塗布量があるので、使用に際しては塗布量を考慮しなければならない。

4) PEGの変色防止効果は $b^*$ の変化を抑制することによって得られた。また、PEGを塗布すると $L^*$ が増加するので、 $\Delta E^*$ が最小となる塗布量を検討しなければならない。本実験では、PEG 1,000において $10 g/m^2$ が最適塗布量であった。

5) クヌギ材では、温水およびアルカリ抽出成分は光変色の主要な原因ではなく、ジオキサン抽出成分が主な変色の原因であると考えられる。ジオキサン抽出成分にPEGを添加したろ紙の変色傾向から、光照射によって材中成分とPEGが化学反応して、変色を防止しているのではないかと考えられる。

## 謝 辞

本研究を遂行するに当たり、材料を提供していただいた旭木材工業株式会社および種々御協力いただき、便宜を計っていただいた鳥取県工業試験場木材工業科ならびに有益な御助言をいただいた同試験場の岸研究員に深謝いたします。

## 文 献

- 1) 古川郁夫・世古口昌子・松田雅子・作野友康・岸本 潤：広葉樹研究，**2** 103-134(1983)
- 2) Gray V. R. : *Jour. Inst. Wood Sci.* **3** 35-57(1961)
- 3) 児玉孝彦・小川健作：木材工業，**34** 50-54(1979)
- 4) 峯村伸哉：木材学会誌，**24** 587-588(1978)
- 5) 峯村伸哉：林産試験場月報，**315** 1-5(1978)
- 6) 峯村伸哉・梅原勝男：林産試験場研究報告，**68** 92-145(1979)
- 7) 荻原桂作・岸本 潤：鳥大演習林報告，**5** 43-52(1971)
- 8) 作野友康・高畠幸司・岸本 潤・岸 孝雄：第31回日本木材学会研究発表要旨集，P.200(1981)
- 9) 高畠幸司：鳥大修論，(1981)
- 10) 植村甲二郎：鳥大卒論，(1982)
- 11) 梅原勝雄：林産試験場月報，**325** 7-9(1979)
- 12) Shang-Tzen Chang・David N. S. Hon・William C. Feist：*Wood and Fiber.* **14** 104-117(1982)