

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

2-1906 木質材料における接着剤由来温室効果ガス排出量の推定
および削減対策に関する研究
(JPMEERF20192006)
令和元年度～令和3年度

Estimation and Reduction of Greenhouse Gas Emission from Adhesives for Wood Based Materials

〈研究代表機関〉
京都大学

〈研究分担機関〉
秋田県立大学

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和4年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 木材用接着剤フロー推定およびCO ₂ 排出削減シナリオ分析	17
（京都大学）	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-2 天然系木材用接着剤の開発とその評価	33
（京都大学）	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-3 接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発	49
（秋田県立大学）	
要旨	

1. 研究開発目的
2. 研究目標
3. 研究開発内容
4. 結果及び考察
5. 研究目標の達成状況
6. 引用文献

III. 研究成果の発表状況の詳細・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 64

IV. 英文Abstract・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 66

I. 成果の概要

課題名 2-1906 木質材料における接着剤由来温室効果ガス排出量の推定および削減対策に関する研究

課題代表者名 平井 康宏 (京都大学環境安全保健機構環境管理部門・部門長/教授)

重点課題 主：【重点課題⑧】地球温暖化現象の解明・予測・対策評価
副：【重点課題⑨】3Rを推進する技術・社会システムの構築

行政要請研究テーマ (行政ニーズ)

(2-1) 建築等用途の廃木質材料に含まれる石油成分由来のCO₂排出削減対策に関する研究

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

87,027千円 (合計額)

(各年度の内訳：令和元年度：29,009千円、令和2年度：29,009千円、令和3年度：29,009千円)

研究体制

(サブテーマ1) 木材用接着剤フロー推定およびCO₂排出削減シナリオ分析 (京都大学)

サブテーマ代表者：平井康宏

研究分担者：矢野順也、酒井伸一

(サブテーマ2) 天然系木材用接着剤の開発とその評価 (京都大学)

サブテーマ代表者：梅村研二

(サブテーマ3) 接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発 (秋田県立大学)

サブテーマ代表者：山内秀文

研究分担者：足立幸司

研究協力機関

研究協力機関はない。

本研究のキーワード 木材用接着剤、木質材料、温室効果ガス排出インベントリ、化石由来炭素、天然系接着剤、スクロース、微量塗布、超音波霧化、カーボンフットプリント

1. はじめに (研究背景等)

建材や家具等に使用される木質材料 (合板、パーティクルボード等) は、原料の大半がカーボンニュートラルな木材であり、脱炭素社会を担う素材として期待される。一般に、木質材料はエレメントとなる木材原料に接着剤を塗布して接着成形される。そのため、接着剤は木質材料にとって必要不可欠な存在である。昨今の木材用接着剤は、フェノール樹脂やユリア樹脂といったホルムアルデヒド系樹脂をはじめとした様々な合成樹脂が使用されている。これらが廃棄物となり焼却処理や熱利用された場合には、化石由来の温室効果ガスが排出されるが、気候変動枠組み条約における、各国の温室効果ガス排出インベントリでは、本発生源を明示的に推計した国はなく、実態に即した排出量推計手法の開発が求められる。日本は、2050年温室効果ガス80%削減を掲げており (研究開始当初の2019年4月時点における政府目標。2020年10月には、2050年カーボンニュートラルに目標が引き上げられた)、木質材料のさらなる活用を図る上でも、本発生源に対する早急な対策が必要である。

建築物等に使われた木質材料の既存ストックへの対策としては、住宅の長寿命化や合板等のマテリ

アルリサイクルがある。新規製造される接着剤向けの対策としては、天然系接着剤への切り替えや、微量塗布などの方策がある。既存の天然系接着剤は合成系接着剤に比べると耐水性などの接着性能が低く、調製方法や作業性についても問題となることが多い。研究は、中国やアメリカといった海外で活発に行われており、国内での研究開発は極めて遅れているのが現状である。また、接着剤自体の改良は積極的に研究されてきたが、接着剤の利用技術に関しては、接着剤塗布方法のような最も基本的な技術に関しても研究例は少ない。これまで木質材料へ微量塗布方技術を適用する方法として検討されてきたものにインクジェット法やエアスプレー法がある。インクジェット法は極めて少量の液体材料をロスなく正確に塗布できる一方、接着剤や塗布量の選択幅が狭く、装置や液体経路が複雑でメンテナンスが煩雑であることなどの問題がある。また、エアスプレー法は工業的にも広く使われ、比較的安価で技術の柔軟性も高いが、塗布時のロスが多く、系外に飛散する材料を処理する設備が必要となるなどの問題がある。

2. 研究開発目的

本研究では、木質材料におけるさらなる低炭素化対策の進展に寄与することを研究全体の目的とした。具体的には、木質材料における接着剤由来CO₂排出量の推計手法の開発ならびに、天然系接着剤や微量塗布技術の開発と評価に取り組み、これらの成果を踏まえて、対策技術の将来導入見通しをつけ、対策シナリオを策定し、対策効果を推定した。

3. 研究目標

全体目標	研究課題全体では、木質材料の廃棄・焼却時に発生する接着剤からの化石由来CO ₂ 排出量の推定手法を開発するとともに、将来的な発生量を低減させる天然系接着剤や微量塗布技術の開発と評価に取り組み、木質材料の環境性能を向上させて、低炭素化対策の進展に寄与することを目標とする。
サブテーマ1	木材用接着剤フロー推定およびCO ₂ 排出削減シナリオ分析
サブテーマリーダー /所属機関	平井康宏／京都大学
目標	<p>サブテーマ1では、木材用接着剤の動的フロー推定モデルとして、1970年から2050年までの日本国内での木材（製材、集成材、合板、パーティクルボード、繊維板）および接着剤（ユリア樹脂系、メラミン樹脂系、フェノール樹脂系（レゾルシノール樹脂系を含む）、水性高分子イソシアネート系）のフロー・ストックを、用途別（コンクリート型枠用合板、建築物、フローリング材、家具）に推定する。</p> <p>また、木質材料区別に化石由来炭素比率を算出し、IPCCインベントリデータベースへの収載を目指す。</p> <p>さらに、接着剤含有量分析方法の開発として、接着剤既知濃度試料・市販木質材料・木くず試料各30検体計90検体の元素組成分析を行い、元素組成に基づく接着剤量推定式を得る。開発した手法を用い、統計調査では推定が困難な、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定する。</p> <p>さらに、CO₂排出削減シナリオの分析として、住宅長寿命化や原料リサイクル強化、サブテーマ2および3で取り組んでいる天然系接着剤や微量塗布技術の導入によるCO₂削減量を算定する。シナリオ検討に際し、木質材料メーカー、関連分野の専門家、行政担当者の参画を得て、対策の導入に向けた各種施策を提言する。</p>

サブテーマ2	天然系木材用接着剤の開発とその評価
サブテーマリーダー /所属機関	梅村研二/京都大学
目標	<p>サブテーマ2では、天然系接着剤の研究動向調査を行うとともに、新たな天然系接着剤の開発を行うことを全体の目標としている。</p> <p>研究動向調査では、文献データベースによって研究論文を抽出し、特に過去5年間の詳細な研究動向を調べ、問題点や課題を明らかにする。</p> <p>新たな天然系接着剤の開発では、出来る限り化石資源への依存を抑え、かつ接着剤の調製および作業性に優れ、高い接着性能を示す接着剤の開発に取り組む。具体的には、接着剤に占める天然物の割合を70%以上とし、接着剤の調製は混合水溶液もしくは若干の熱処理のみとする。また作業性では、噴霧塗布が可能な溶液粘度とし、接着性能は合板の日本農林規格の1類やJIS A 5908の18タイプに匹敵する性能を目指す。</p>

サブテーマ3	接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発
サブテーマリーダー /所属機関	山内秀文/秋田県立大学
目標	<p>サブテーマ3では、課題の大きな目標である「木質材料における接着剤由来の温室効果ガスの将来的な排出量を低減する」ことを目指す手法として、既存木質材料の接着剤使用量を低減することに主眼を置いた検討を行う。</p> <p>具体的には、既存の木質材料、特に生産量の多さとそれに伴って接着剤使用量が大きくなっている合板に対して微量塗布接着技術を適用することへの技術的検討を中心に行い、</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 合板等の既存木質材料に微量塗布接着技術を適用した際の材料性能への影響 2) 実生産に適用できる可能性のある塗布技術の検討 3) 接着剤塗布以外の生産時排出量に対する影響評価 <p>を行い、最終的に実生産への適用可能性評価を行う。</p>

4. 研究開発内容

上記の研究目的のため、3サブテーマ体制で研究に取り組んだ。サブテーマ1で木質材料の廃棄・焼却時に発生する接着剤からの化石由来CO₂排出量の推定手法を開発し、サブテーマ2で天然系接着剤の開発と評価を、サブテーマ3で微量塗布技術の開発と評価を実施した。サブテーマ2, 3の成果は、サブテーマ1でのCO₂排出削減シナリオ分析に反映させた。

4. 1 サブテーマ1：木材用接着剤フロー推定およびCO₂排出削減シナリオ分析

サブテーマ1では、以下の研究開発を実施した。

- 1) 合板・LVL製造工程における原燃料消費量調査
- 2) 接着剤含有量分析方法の開発
- 3) 木材用接着剤の動的フロー推定モデルの開発
- 4) 木材用接着剤からのCO₂排出削減シナリオの分析

1) および2)は、3)のフローモデルで用いる主要なパラメータ（木質材料種類別の接着剤種類別使用量）を把握するための調査である。

1) は、当初、接着剤使用量の把握を主な目的とした木質材料製造工場の視察やヒアリングを予定していたが、アドバイザリーボード会合において、木材用接着剤に含まれる化石由来炭素からのCO₂排出だけでなく、接着剤製造時や木質材料の製造時の原燃料消費に由来するCO₂排出も含めたライフサイクル全体での排出を把握することが望ましいとの意見を踏まえ、内容を拡充して実施した。日本合板工業組合連合会と全国LVL協会の協力を得て、2019年に合板およびLVLの製造に用いた丸太、接着剤、燃料、電力、梱包材などをアンケート調査した。この調査結果と、丸太生産や接着剤製造などの既存のCO₂排出原単位とを組み合わせ、合板・LVLのライフサイクル全体でのCO₂排出量を算定した。

2) は、応募時点では予定していなかったが、統計情報や工場へのヒアリング調査のみでは、輸入木質材料の接着剤使用量を把握するのは困難であるとの指摘を受け、キックオフ会合時に着想段階の方法として紹介し、研究目標提出時まで、実現の見込みありと判断して、研究目標に設定した。主要な木材用接着剤であるユリア/メラミン/フェノール樹脂系接着剤の3種に特有な元素に着目し、元素分析による接着剤量の把握を試みた。ユリア/メラミン樹脂系接着剤には窒素が含まれ、木材中の窒素含有量は一般に低いことから、窒素含有量から接着剤量を推定可能か検討した。また、フェノール樹脂は、木材の主成分の1つであるリグニンと類似しており、リグニンと区別してフェノール樹脂のみを測定することは困難であるが、使用時には、小麦粉、炭酸カルシウム、水酸化ナトリウムなどが配合される。そこで、カルシウムやナトリウム含有量で接着剤量を推定可能か検討した。まず接着剤濃度既知の合板試料の元素分析を実施し、元素濃度と接着剤塗布量とに相関関係が得られるか、つまり、検量線を作成可能か調べた。次に、この手法が、市販木質材料にも適用可能であるかを調べ、最後に、使用済み製品である廃家具や、解体材等を原料とした木くずチップ、パーティクルボードの原料チップに適用した。

3) では、1) および2) で得た情報や、各種統計、文献などの情報をもとに、木材および木材用接着剤の1970年から2050年までのフロー及びストックを推定するモデルを開発し、木質材料を焼却処理・熱利用した際の接着剤由来CO₂排出量を推定した。本モデルは、木質材料のライフサイクルを、木質材料製造、最終製品製造、製品利用（ストック）、使用済み製品排出、処理・リサイクルの5段階で捉え、木質材料および木質材料用接着剤の各段階におけるフロー量および使用中のストック量を推定するモデルである。対象とする木質材料種類、接着剤種類、製品用途は、研究目標に記載の通りとした。

4) では、天然系接着剤の導入、微量塗布技術の導入、建築物の長寿命化、原料リサイクルの強化の4対策について、サブテーマ2, 3での開発成果や、アドバイザリーボード会合での意見を踏まえて導入シナリオを設定した。各対策を個別に導入した場合および組み合わせて導入した場合の効果を、3) で作成したモデルを用いて算定した。この算定結果をもとに、木材用接着剤由来CO₂排出量を削減するための施策を提言した。

4. 2 サブテーマ2：天然系木材用接着剤の開発とその評価

サブテーマ2では、以下の研究開発を実施した。

- 1) 天然系接着剤に関する研究動向調査
- 2) スクロース系接着剤の硬化特性の把握
- 3) スクロース系接着剤のパーティクルボードへの適用

1) では、学術データベースWeb of Scienceを用いて1990～2020年までの天然系接着剤に関する研究論文数の推移をキーワード検索によって調べた。さらに2015～2020年までの論文については、使用されている原材料や開発手法、課題についてまとめた。

2) では、1) の結果も踏まえ、天然系接着剤として、スクロース（ショ糖）系接着剤の開発に取り組んだ。スクロースは親水性であるため、接着剤として用いるには、耐水性の付与が必要である。このため、スクロースを加熱して高分子化させるが、この際に種々の添加物を加え、加熱条件を変えることで、接着性能の向上を図る。本研究では、スクロースに添加する酸触媒として*p*-トルエンスルホン酸(PTSA)に着目し、スクロースとPTSAとの混合比や熱処理温度を変え、その硬化挙動を調べた。

3) では、2) の結果に基づいて、スクロースとPTSAの混合水溶液を接着剤とし、パーティクルボードを製造して、ボードの性能を評価した。パーティクルボードを製造する際の熱圧条件は、合板を製造

する際の熱圧条件よりも、一般に高い温度であり、熱圧温度を高めることで性能が向上する傾向にあるスクロース系接着剤の導入を図るには、パーティクルボードが適していると判断した。スクロースとPTSAの混合比や、パーティクルボード製造時の熱圧温度、熱圧時間を変え、ボード性能への影響を調べることで、最適な混合比や熱圧条件を検討した。ボード性能としては、パーティクルボードに関するJAS規格（JIS A5908）に準拠して、曲げ強さ試験、はく離強さ試験、吸水厚さ膨張率試験を実施した。しかし、スクロースとPTSAの混合物のみでは、規格の定める基準のうち、吸水厚さ膨張率を満たすことはできなかった。そこで、さらなる改善のため、リン酸二水素アンモニウム（ADP）の併用を試みた。先行研究においてADPはスクロースの硬化触媒として利用されているため、PTSAとの併用による効果を期待し、PTSAとADPの混合比の影響を検討した。

4. 3 サブテーマ3：接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発

サブテーマ3では、以下の研究開発を実施した。

- 1) 微量塗布技術を適用した合板の性能評価
- 2) 新たな微量塗布技術である超音波霧化技術の検討
- 3) 微量塗布技術の適用による副次的な効果の評価

1) では、微量塗布技術としてエアスプレー法を用い、接着剤塗布量を現状の標準的な塗布量である接着面あたり 85 g/m^2 から、その1/10以下である 8 g/m^2 まで数段階設定して、単板5層からなる合板を作成し、その接着性能を「合板の日本農林規格」に準じて評価した。接着剤としては、フェノール樹脂系接着剤を用いた。特に、塗布量の設定においては、社会実装を視野に入れた提案とするために、従来の塗布量の1/10以下といった極端な条件ではなく、もう少し緩い条件を検討しても良いのではないかと指摘を受け、従来比3割減や従来比5割減といった塗布量条件も設定した。また、微量塗布において接着性能に与える要因として、樹種の違いや、単板含水率の違いが与える影響についても検討した。

2) では、微量塗布技術のうち従来からあるエアスプレー法やインクジェット法に対し、新たな微量塗布技術として、超音波霧化技術の検討を行った。本研究では、150 mm 幅を4列のヘッドで塗布する実験用装置を導入し、接着性能試験を行った。接着剤にはフェノール樹脂系接着剤を用い、被着剤（木材）には、厚さ7.5 mm の樹種カバの挽き板（ひきいた：天然木をのこぎりで挽いた板）を用いた。接着性能試験は、JIS K6851（接着剤の木材引張りせん断接着強さ試験）に準じた。また、超音波霧化技術とエアスプレー法とで、塗布効率（塗布した接着剤のうち塗布面に実際に使われた割合）を比較した。

3) では、合板に微量塗布技術を適用した際に、接着剤使用量そのものが減る効果に加え、接着剤が持ち込む水分の減少などによって、副次的に得られる効果があるかを検討した。1) で実施した微量塗布実験の結果を用いた。

また、サブテーマ1との連携として、接着剤濃度既知合板を作成した。さらに、サブテーマ2との連携として、スクロース系接着剤の合板への適用についても検討した。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

5-1. 1 サブテーマ1：木材用接着剤フロー推定およびCO₂排出削減シナリオ分析

1) 合板・LVL製造工程における原燃料消費量調査

合板メーカー7社9工場（国内生産量の約1/3）、LVL 4工場（国内生産量の8割）に製造工程の原燃料消費量調査を実施した。この回答をもとに、育苗から合板・LVL製造、焼却処理までのCO₂排出量を求めた（図1-1）。接着剤製造時と焼却処理時を合わせた接着剤関連の排出が合板で約1/2、LVLで約1/3を占め、ライフサイクル全体の観点からも接着剤対策の重要性が示された。

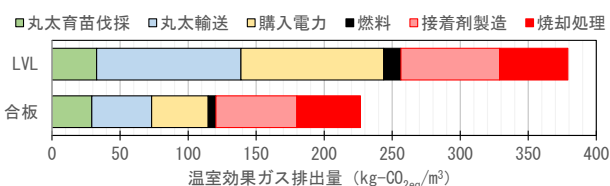


図1-1. 合板・LVL 1m³製造および焼却処理時のCO₂排出量算定結果

2) 接着剤含有量分析方法の開発

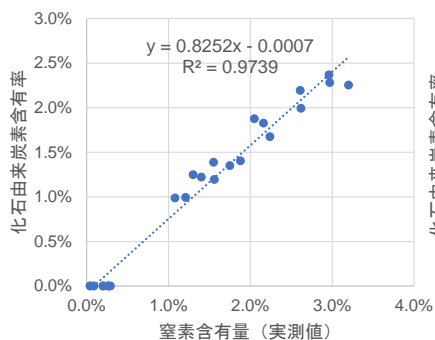


図1-2. 濃度既知合板および単板における窒素濃度と化石由来炭素含有率の関係

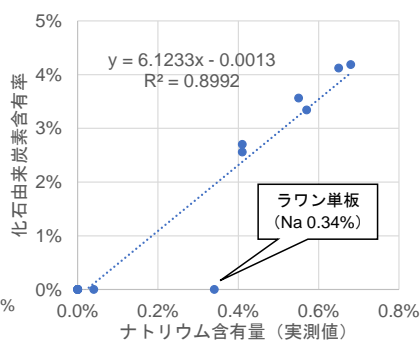


図1-3. 濃度既知合板および単板におけるナトリウム濃度と化石由来炭素含有率の関係

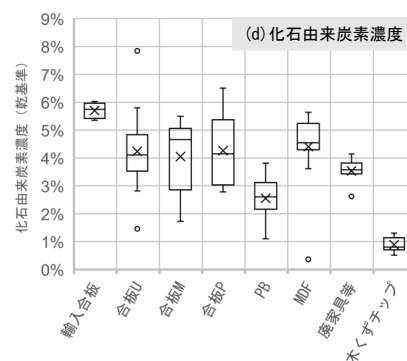


図1-4(d). 市販木質材料および廃家具類、木くずチップ中の化石由来炭素濃度推定結果

接着剤濃度既知合板試料の元素分析により、ユリア (U) /メラミン (M) 樹脂系接着剤を用いた合板で窒素濃度と化石由来炭素濃度との相関関係 (図1-2) を、フェノール (P) 樹脂系接着剤を用いた合板でナトリウム濃度と化石由来炭素濃度との相関関係 (図1-3) を確認した。接着剤塗布前の単板試料から0.34%と高いナトリウム濃度が検出されたが、これは海面貯木による海水吸収の影響と考え、塩素濃度で補正することとした。以上の結果を踏まえ、式(1)に示す化石由来炭素含有率の推定式を得た。

$$FossilC = 0.825 N + 6.12 \times \max(Na - 0.648 \times Cl, 0) \quad (1)$$

$FossilC$: 化石由来炭素含有率、 N : 窒素含有率、 Na : Na含有率、 Cl : 塩素含有率

本手法を用いて市販木質材料や廃家具、木くずチップの化石由来炭素含有率 (乾ベース) を測定し図1-4(d)の結果を得た。合板・パーティクルボード (PB) を原料とした廃家具等では、それら木質材料と同程度の値であった。木くずチップは他よりも低く、その主な原料が解体材 (接着剤不使用の製材を多く含む) であることを反映していた。

なお、化石由来炭素とバイオマス炭素との識別手法としては、放射性炭素同位体 ^{14}C の測定による方法もあるが、木質材料への適用は困難である。木材のような長期間生育したバイオマスは、1960年代の大気核実験により ^{14}C 濃度が2倍にまで上昇した影響 (Bomb effect) を受けるため、 ^{14}C 法でのバイオマス割合が100%を超えて測定されることが一般的であり、その程度は生育時期に依存する。特に合板のように丸太を桂剥きにして使う場合には、年輪方向の混合・平均化がなされないため、 ^{14}C 濃度のばらつきが大きくなる。このため、木材バイオマス中に少量の接着剤 (化石由来炭素) が含まれる合板では、バイオマス部分の ^{14}C 濃度の振れ幅が大きく、化石由来炭素量の推定値がマイナスになりうるなど大きな誤差を持つ。本研究で開発した手法は、 N , Na , Cl 含有量のみに基づいており、上記の影響を受けない。

3) 木材用接着剤の動的フロー推定モデルの開発

1) の合板工場における原燃料調査での接着剤使用量や、2) で開発した接着剤含有量分析手法の市販木質材料への適用結果などをもとに、木質材料別の接着剤使用量原単位を設定し、木材および木材用接着剤の日本におけるフロー・ストックを推定するモデルを開発した。モデル推定結果の一部として、2020年における木材フローの推定結果を図1-8(a)に、木材用接着剤の化石由来炭素フローの推定結果を図1-9(a)に示した。木質材料の焼却による接着剤由来 CO_2 排出量は1990年の27万 $t-CO_2$ /年から、2020年に41万 $t-CO_2$ /年、2050年に46万 $t-CO_2$ /年と増加すると予測された (図1-10(e))。

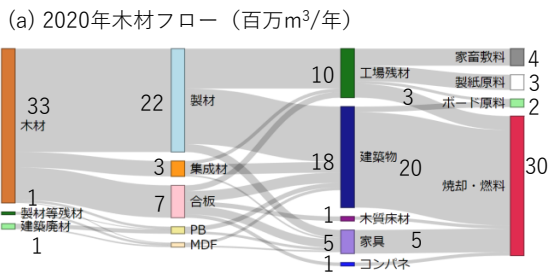


図1-8(a) 木材フロー推定結果

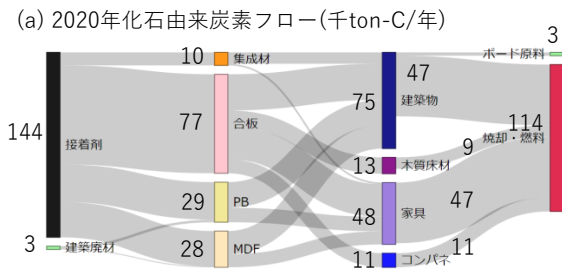


図1-9(a) 木質材料中の化石由来炭素フロー推定結果

(e) 化石由来CO₂排出量 (用途別)

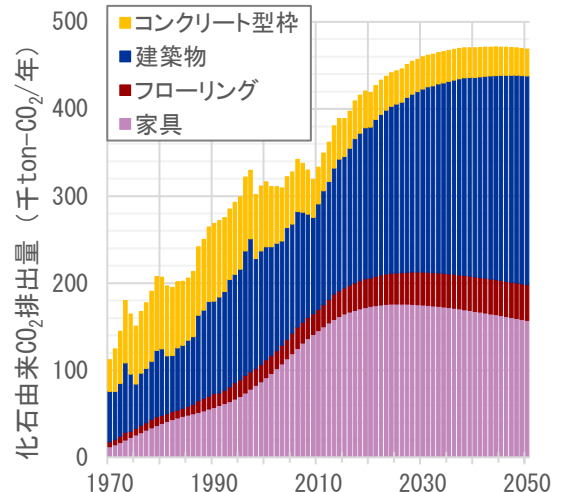


図1-10(e). 木材および木材用接着剤のフロー・ストック推定結果 (用途別化石由来CO₂排出量)

4) CO₂排出削減シナリオの分析

天然系接着剤の導入、微量塗布技術の導入、建築物の長寿命化、原料リサイクル強化の4対策を導入した際のCO₂排出量の推移および対策別の効果の内訳を図1-11に示した。全対策を実施することにより、2050年のCO₂排出量は25万t-CO₂/年となり、現状推移ケースに比べ、約45%減少すると推定された。また、4対策のうち、原料リサイクル強化の効果は限定的であり、残る3対策は同程度の大きさのCO₂排出削減効果を持つと評価された。

これらの推定結果を踏まえ、効果の大きい3対策の推進策をそれぞれ提言した。

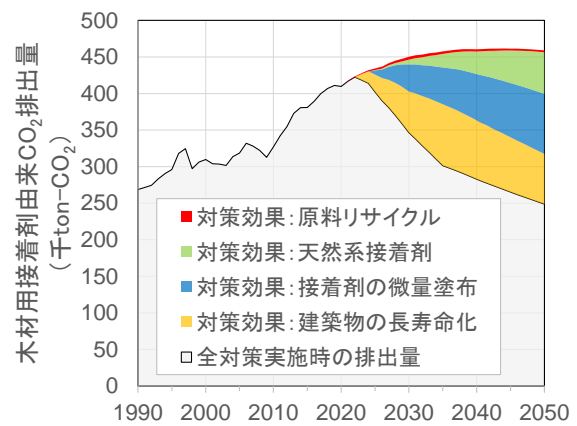


図1-11. 木材用接着剤由来CO₂排出削減効果内訳

5-1. 2 サブテーマ2 : 天然系木材用接着剤の開発とその評価

1) 天然系接着剤の研究動向調査

文献データベース Web of Science を用いて1995年~2020年の英文で書かれた研究論文を精査した。その結果、本研究では糖類系接着剤 (82報)、タンパク系接着剤 (166報)、リグニン系接着剤 (76報)、タンニン系接着剤 (58報)、バイオオイル系接着剤 (53報)、その他 (46報) が抽出され、タンパク系接着剤の研究が最も活発に報告されていることが分かった。天然系接着剤全般の開発手法としては、(1) 合成樹脂接着剤の原料代替、(2) 天然物質の化学修飾、(3) 樹脂や添加物の利用、(4) (1)~(3)の組み合わせに大別できた。しかし、接着性能は低い場合が多く、特に耐水性の低さが課題であった。また開発にあたっては、化石資源由来の物質や高価で特殊な物質を用いる場合が散見された。

2) スクロース系接着剤の硬化特性の把握

スクロースとPTSA (p-トルエンスルホン酸) を100:0~85:15の混合比で水溶液を調整し、予備乾燥後、120~180℃で10分間熱処理を施して、熱水不溶物の生成比率を求めた。スクロースのみでは熱水不溶物は生成しなかったが、PTSAを添加した場合、熱水不溶物が生成し、熱処理温度が高くなるにつれて熱水不溶物の割合が高くなった。また、熱分析の結果、PTSAを添加したスクロースは、先行研究のリン酸二

水素アンモニウム（ADP）を添加した場合に比べ、10～20℃低温で反応を起こすことが明らかになった。これらの結果から、スクロースとPTSAの混合水溶液は耐水性を有する接着剤として利用できる可能性が高いことが分かり、開発の次の段階である木質材料の製造に適用しての接着性能の評価を実施した。

3) スクロース系接着剤のパーティクルボードへの適用と高性能化

スクロースとPTSAの混合比、接着剤添加量、熱圧温度、熱圧時間の各条件を変えてパーティクルボードを製造し、ボード物性との関係を調べた。その結果、本研究での最適条件では、曲げ強度やはく離強さは、パーティクルボードのJIS規格（JIS A5908）の13タイプ相当を示したが、吸水厚さ膨張率は規格（12%以下）を満たさなかった。そこで、スクロースとPTSAに加え先行研究で用いていたADPの添加を試みた。スクロースの割合を90%で固定し、PTSAとADPの混合比、熱圧温度、熱圧時間を変えてボードを製作し、ボード物性との関係を調べた結果、最適条件（スクロース：PTSA：ADP=90：5：5、200℃、7.5分）において、曲げ強度、はく離強さ、吸水厚さ膨張率とも、JIS A5908の（13タイプよりも強度が高い）18タイプの規格を満たした（図2-27、図2-28、図2-29）。

【熱圧時間7.5分】

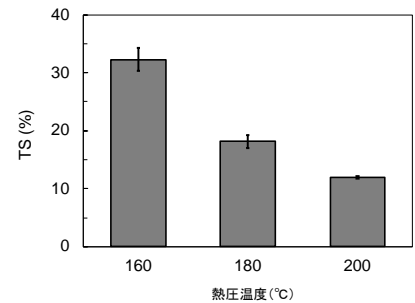
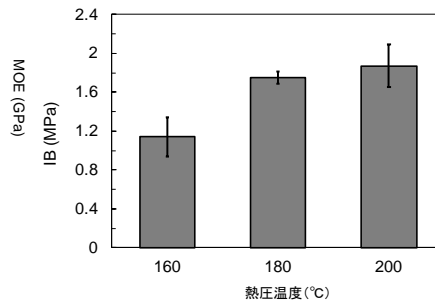
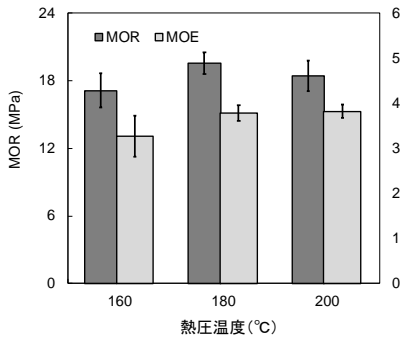


図2-27. 各ボードの曲げ性能

図2-28. 各ボードのはく離強さ

図2-29. 各ボードの吸水厚さ膨張率

5-1. 3 サブテーマ3：接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発

1) 微量塗布技術を適用した合板の性能評価

接着剤塗布量を従来塗布量からその約1/10まで数段階に設定して、JAS規格に定める性能試験（常態接着性能試験と接着耐久性試験）を実施し、以下の結果を得た。

常態接着性能では、針葉樹を用いた合板でのJAS規格基準が0.7 MPa以上であるところ、従来塗布量の1/10とした場合でも1.2 MPa程度であり、基準を満たした（図3-8）。

接着耐久性では、針葉樹を用いた合板でのJAS規格基準が72時間連続煮沸後に0.7MPaであるところ、従来塗布量の3割減で0.73 MPa（図3-9）、5割減で0.9 MPa（図3-16）であり、基準を満たした。従来塗布量の約1/10では、0.68 MPa（図3-9）であり、ほぼ基準に相当する性能を示した。

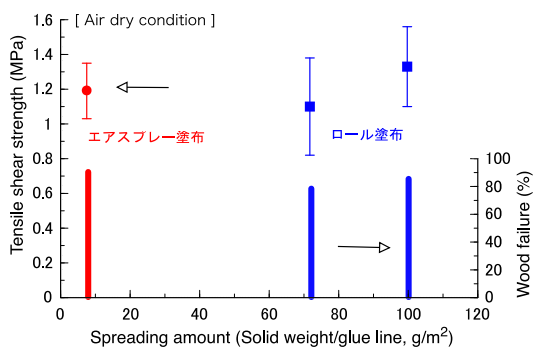


図3-8. 塗布量と常態接着性能（スギ合板）

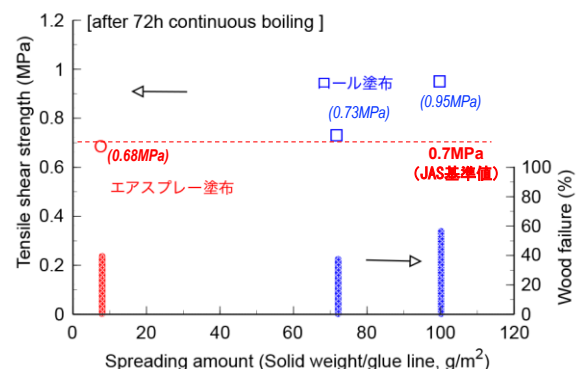


図3-9. 促進劣化処理後の接着性能残存率（スギ合板）

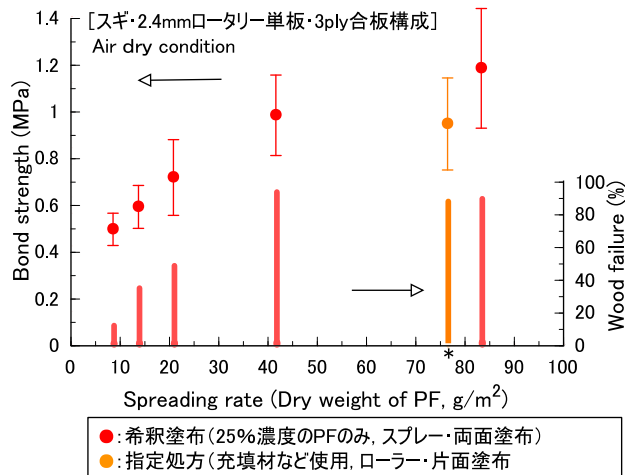


図3-15. エアスプレー塗布量と常態接着性能

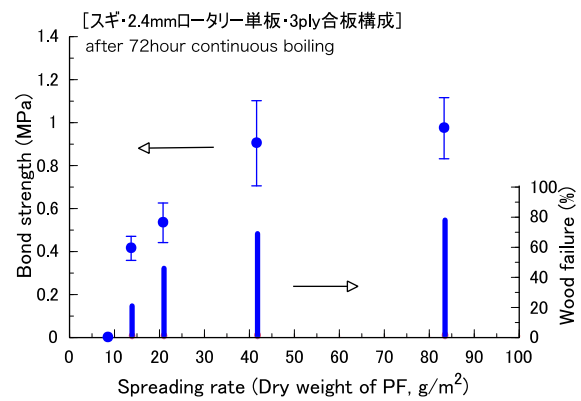


図3-16. エアスプレー塗布量と接着耐久性

2) 新たな微量塗布技術である超音波霧化技術の検討

新たな塗布技術として超音波霧化技術を応用した塗布技術を検討し、図3-5に示す超音波霧化ヘッドを持つ塗布装置を用い、接着性能の評価を実施した。その結果、常態接着性能は、インクジェット法やエアスプレー法による過去の測定値に比べて2倍近い値を示しており、その差は主に接着剤の塗布方法の差よりも、使用する木材の強度の差によると考えられた。72時間連続煮沸後の耐久性においても同様であった。つまり、超音波霧化技術は、他の微量塗布技術と比べ、十分な接着性能を持つことが確認された。

また、超音波霧化法とエアスプレー法とで、接着剤の塗布効率を比較したところ、超音波霧化技術で効率ほぼ100%に対し、エアスプレー法では80%から90%にとどまった(図3-21)。これより、超音波霧化法が、エアスプレー法に対して、塗布効率の面で優位性を持つことを確認できた。

この他、超音波霧化ヘッド部分までの経路の幅が広く、インクジェット法やエアスプレー法で生じやすい目詰まりを起こさないこと、目詰まりを起こさないため、接着剤の糊液に小麦粉などの充填剤を混合して用いることも可能であり、糊液選択の広範さを持つこと、などのメリットがあることを確認した。

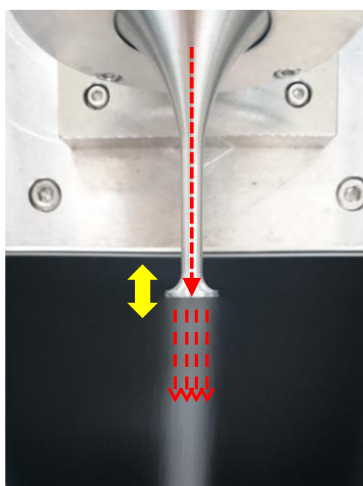


図3-5. 超音波霧化ヘッドの動作概要

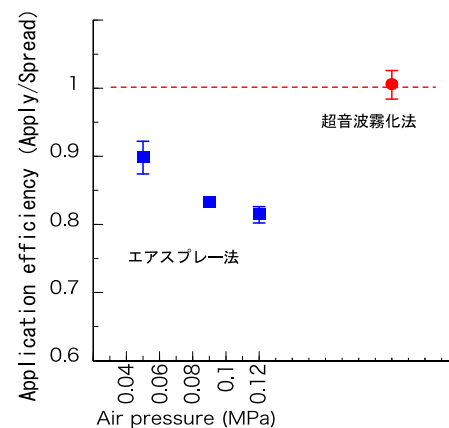


図3-21. 超音波霧化法の塗布効率

3) 微量塗布技術の適用による副次的な効果の評価

合板に微量塗布技術を適用した際に、接着剤使用量そのものが減る効果に加え、以下の副次的効果が見られる可能性を見出した。

- A) 熱圧時間を1/2まで短縮できる可能性
- B) 熱圧時の部減り（熱圧前後での合板の厚さの減少）をほとんどなくせる可能性
- C) 単板の乾燥負荷の軽減の可能性

A)について、従来法のロール塗布で675秒かけて到達する温度に、微量塗布では320秒で到達した（図3-11）。これは、微量塗布では、接着剤塗布量が少ないため、接着剤が持ち込む水分が少なく、温度上昇が早いことによると推察された。この結果より、微量塗布においては、熱圧時間を従来の1/2まで短縮できる可能性が示唆された。

B)について、従来法では圧縮前の合板の厚さ15 mm から、プレス時に13 mm程度まで下がり（図3-12 青線）、最終的に得られる合板の厚さは13.8 mm であったのに対し、微量塗布法では、プレス時に14.5 mm程度までしか下がり（図3-12赤線）、最終的に得られる合板の厚さは14.9 mm であった。合板などの木質材料においては、製品の数量は、重量ではなく体積を基準にして取引されており、厚さの減少の回避は、合板の生産性の向上に直結する工業的に重要な知見である。

C)について、単板含水率は高すぎても低すぎても接着性能の低下を引き起こす。従来塗布法では接着剤が持ち込む水分が多いため、接着剤塗布前の単板の含水率を5%以下にまで乾燥させ、接着剤塗布後の単板含水率が高すぎることがないようにしていた。一方、微量塗布法においては、接着剤が持ち込む水分が少ないため、接着剤塗布前の単板の含水率が5%よりも高くても接着性能を維持できる。図3-17より、塗布前の単板含水率を6.5%から13%としても接着性能を維持した。したがって、塗布前の単板含水率の条件を緩和（5%まで減らさなくてもよい）できると見込まれた。

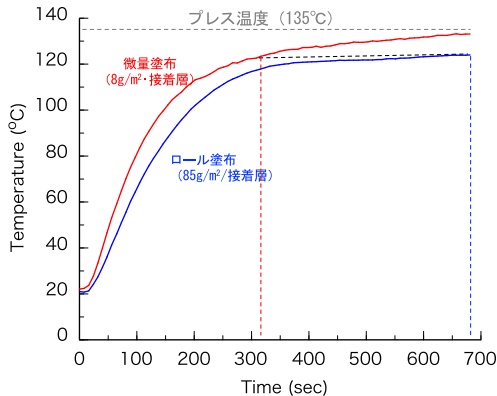


図3-11. 合板成形時の時間-温度経過

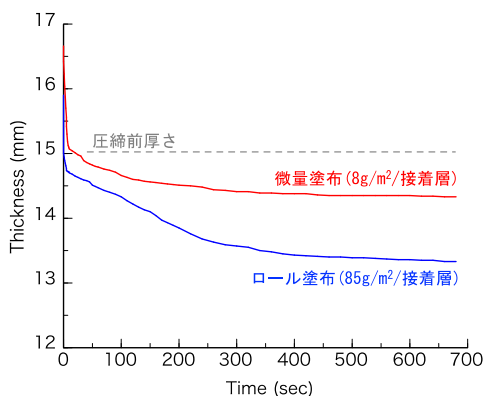


図3-12. 合板成形時の時間-厚さ変化

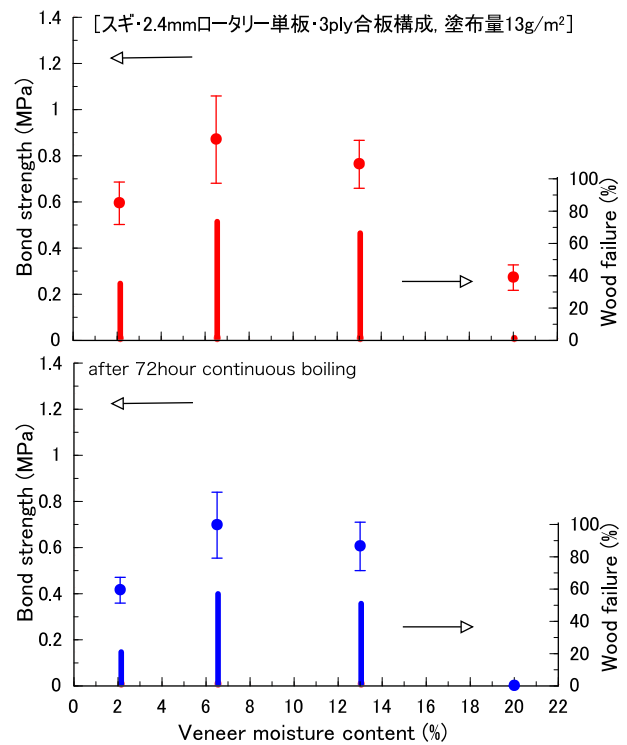


図3-17. 単板含水率と接着性能

5-2. 環境政策等への貢献

<行政等が既に活用した成果>

環境省温室効果ガス排出量算定方法検討会廃棄物分科会にて、2020年1月25日、2020年11月25日、2021年11月5日、2022年1月17日の4回にわたり、本研究の進捗状況を報告し、木くず中の合成接着剤の焼却による化石由来温室効果ガス排出量の算定見通しや、削減対策の実施による削減量見通しについて情報提供した。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

温室効果ガス排出削減対策として、木材の利用拡大が期待される中、廃木質材料に含まれる化石由来の非エネルギー起源温室効果ガス排出量は、正確な実態がつかめておらず、排出量を把握することが環境政策上重要である。サブテーマ1で開発した木質材料からのCO₂排出量推定モデルや排出量の推定結果、木質材料中の接着剤使用量推定方法は、これまでも温室効果ガス排出量算定方法検討会廃棄物分科会にて情報提供しており、今後同分科会での検討などを経て、我が国におけるインベントリ作成への反映が期待される。これらの算定方法や排出係数などは、IPCCにおける国際的なガイドラインの策定や排出係数データベースへの登録により、途上国でのインベントリ開発・高度化・削減対策の導入等に貢献することも期待される。また、サブテーマ1で実施した対策シナリオの導入効果の評価は、原料リサイクル、建築物長寿命化、天然系接着剤、微量塗布技術による2050年までの削減ポテンシャルを明らかにしており、本発生源への対応策を考える上で活用されることが見込まれる。

本発生源からの排出量を削減する技術を開発することは、本発生源からの直接の排出を減らすだけでなく、他の材料と比べて相対的に温室効果ガス排出量の低い木質材料の利用拡大を促す効果も期待され、環境政策を進めるうえで重要である。サブテーマ1で実施した合板のライフサイクルCO₂排出量調査は、カーボンフットプリントに基づく施策の基板情報としての活用が期待される。サブテーマ2で開発を進めた天然系接着剤や、サブテーマ3で開発した微量塗布技術は、本発生源からの排出削減対策として有効である。微量塗布技術は、合板製造プロセスにおける熱圧時間の短縮により、製造プロセスの低炭素化・低コスト化の効果も期待され、木質材料製造事業者の関心も高い。また、天然系接着剤と微量塗布技術を組み合わせることで、天然系接着剤の適用範囲を拡大する効果も期待される。本課題終了後には、試験プラント等での実用化研究への展開や、設備導入の補助事業などにより、本研究で開発した新技術の社会実装を進めることで、環境政策への貢献が期待される。

5-3. 研究目標の達成状況

各サブテーマにおいて、目標どおりの成果をあげ、課題全体としても目標どおりの成果をあげた。また研究推進のためサブテーマ間の連携や環境省担当課室への協力依頼をした。詳細は以下のとおり。

サブテーマ1は、以下の通り、目標どおりの成果をあげた。

目標1-1	サブテーマ1では、木材用接着剤の動的フロー推定モデルとして、1970年から2050年までの日本国内での木材（製材、集成材、合板、パーティクルボード、繊維板）および接着剤（ユリア樹脂系、メラミン樹脂系、フェノール樹脂系（レゾルシノール樹脂系を含む）、水性高分子イソシアネート系）のフロー・ストックを、用途別（コンクリート型枠用合板、建築物、フローリング材、家具）に推定する。
達成状況	上記記載の項目を網羅したモデルを開発し、木材用接着剤のフロー・ストックを推定した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	図1-8（木材フロー推定結果） 図1-9（木質材料中の化石由来炭素フロー推定結果） 図1-10（木材および木材用接着剤のフロー・ストック推定結果）

目標1-2	木質材料区別に化石由来炭素比率を算出し、IPCCインベントリデータベースへの収載を目指す。
達成状況	合板工場の原燃料使用量調査(4.1)や既往文献の調査、目標1-3で開発した接着剤含有量分析手法(4.2)により、木質材料区別に化石由来炭素比率を算出した。2022年6月29日・30日に開催されるIPCC 排出係数データベース(EFDB) 専門家会合に、紙ごみの化石由来炭素含有率に関する情報提供を行うため、研究代表者がオンライン出席予定であり、木質材料の化石由来炭素含有率についても調査していることを頭出しし、収載に向けた働きかけを行う。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-7(木質材料種類別の接着剤使用量および化石由来炭素含有量) 図1-5(木質材料への接着剤使用量の比較)
目標1-3	接着剤含有量分析方法の開発として、接着剤既知濃度試料・市販木質材料・木くず試料各30検体計90検体の元素組成分析を行い、元素組成に基づく接着剤量推定式を得る。開発した手法を用い、統計調査では推定が困難な、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定する。
達成状況	接着剤既知濃度試料34検体、市販木質材料70検体、木くず試料23検体、計127検体の元素分析を実施し、元素組成(N, Na, Cl)に基づく接着剤量推定式を得た。開発した手法を用いて、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定した。 フェノール樹脂系接着剤については、木材の主要構成要素の1つであるリグニン成分と類似しているため、化学分析での識別は当初困難と思われたが、製造時に使われるNaOHに由来するNaとの高い相関を見出すことができた。また、接着剤が使われていないはずの単板試料から高いNa濃度を検出するという予想外の結果が得られたが、海面貯木に由来する海水塩分の存在に気づき、これを塩素濃度で補正することで、推定式を改良することができた。 分析検体数について、木くず試料のみ目標の30検体に至らなかったが、全体としては、合計90検体の目標を大幅に上回る127検体を分析した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-1(元素分析対象とした試料一覧) 図1-2, 図1-3(窒素濃度、ナトリウム濃度と化石由来炭素含有率との関係) 式(4)(N, Na, Cl 濃度からの木材用接着剤由来化石炭素濃度推定式) 図1-4(市販木質材料および木くずチップ等の元素分析結果、化石由来炭素推定値)
目標1-4	CO ₂ 排出削減シナリオの分析として、住宅長寿命化や原料リサイクル強化、サブテーマ2および3で取り組んでいる天然系接着剤や微量塗布技術の導入によるCO ₂ 削減量を算定する。シナリオ検討に際し、木質材料メーカー、関連分野の専門家、行政担当者の参画を得て、対策の導入に向けた各種施策を提言する。
達成状況	上記4対策の導入によるCO ₂ 削減量を算定し、2050年に現状推移ケースと比べ4割削減可能との結果を得た。シナリオ検討に際して、コロナ禍の影響もあり、当初予定していたワークショップの開催には至らなかったが、AD会合等でアドバイザーや行政担当者の意見の反映をした。また、対策の導入に向けた施策を提言した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-4(対策シナリオの設定) 表1-9(CO ₂ 削減対策の個別および組合せ導入による2050年における対策効果)、 図1-11(木材用接着剤由来CO ₂ 排出削減効果内訳) II-1 4.3.5(木材用接着剤由来CO ₂ 排出量を削減するための政策提言)

追加された目標	木質材料に含まれる合成接着剤の焼却処理に由来するCO ₂ 排出量だけでなく、木質材料の製造工程や接着剤の製造過程なども含めた、ライフサイクル全体からのCO ₂ 排出量を明らかにする。
達成状況	当初研究目標には記載していなかったが、AD会合等での意見を踏まえて実施した。合板・LVL製造工程の原燃料調査を、環境省および林野庁からの協力を得て、日本合板工業組合連合会および全国LVL協会と共同で実施し、合板・LVL製造・廃棄のライフサイクル全体からのCO ₂ 排出量を算定した。国内既往LCAに比べ、代表性の高いデータを収集できた。また、これを機会に全国LVL協会との協力関係を深め、難燃LVLのLCA評価の共同研究を実施した。
自己評価	目標を上回る成果をあげた
エビデンス	図1-1（合板・LVL 1 m ³ 製造および焼却処理時のCO ₂ 排出量算定結果） 表1-5（合板・LVL 1 m ³ 製造あたりの原材料・燃料等投入量、丸太輸送距離）

サブテーマ2は、以下の通り、目標どおりの成果をあげた。

目標2-1	研究動向調査では、文献データベースによって研究論文を抽出し、特に過去5年間の詳細な研究動向を調べ、問題点や課題を明らかにする。
達成状況	学術データベースWeb of Scienceを用いて1990～2020年までの研究論文数の推移をキーワード検索によって調べた。さらに2015～2020年までの論文については、使用されている原材料や開発手法、課題についてまとめた。その上で、スクロースを原料とした接着剤の優位性を示した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	II-2 4.1 研究動向調査としてレビュー結果を記載。4.1節の最後に、既往研究の開発手法、課題、スクロース系接着剤の優位性を述べている。 表2-6（糖類系接着剤に用いられている原料） 表2-7（タンパク系接着剤に用いられている原料） 表2-8（リグニン系接着剤に用いられている原料） 表2-9（タンニン系接着剤に用いられている原料） 表2-10（バイオオイル系接着剤に用いられている原料）
目標2-2	新たな天然系接着剤の開発では、出来る限り化石資源への依存を抑え、かつ接着剤の調製および作業性に優れ、高い接着性能を示す接着剤の開発に取り組む。具体的には、①接着剤に占める天然物の割合を70%以上とし、②接着剤の調製は混合水溶液もしくは若干の熱処理のみとする。また作業性では、③噴霧塗布が可能な溶液粘度とし、④接着性能は合板の日本農林規格の1類やJIS A 5908の18タイプに匹敵する性能を目指す。
達成状況	スクロース（天然物）とPTSA(p-トルエンスルホン酸)+ADP(リン酸二水素アンモニウム)の混合比を90：10とした混合水溶液を接着剤として、最適条件（熱圧温度および熱圧時間）で製造したパーティクルボードがJIS A 5908タイプに匹敵する性能（曲げ性能：18 MPa以上、はく離強さ：0.3 MPa以上、吸水厚さ膨張率：12%以下）を持つことを明らかにした。 ①天然物割合70%以上との目標に対し、90%と目標を上回って達成した。 ②接着剤の調整は、上記3物質を混合水溶液とするのみである。（目標通り） ③溶液粘度が噴霧塗布可能かは未確認 ④接着性能は、JIS A 5908の18タイプに匹敵する（目標通り） ①から④の目標のうち③を除く目標を達成した。特に優先度の高い①および④を達成しており、目標はほぼ達成できた。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	図2-27（曲げ性能）、図2-28（はく離強さ）、図2-29（吸水厚さ膨張率） 熱圧温度200℃の条件で、平均値がJIS A5908 の18タイプの性能を満たす。

サブテーマ3は、以下の通り、目標どおりの成果をあげた。

目標3-1	合板等の既存木質材料に微量塗布接着技術を適用した際の材料性能への影響
達成状況	<p>代表的な木質材料であり生産量や接着剤使用量が最も多い合板を用いて、接着剤塗布量を従来塗布量からその約1/10まで数段階に設定して、JAS規格に定める性能試験（常態接着性能試験と接着耐久性試験）を実施し、以下の結果を得た。</p> <p>従来塗布量を5割程度まで減じることはJAS規格で用途無制限で使える性能を十分に有しており、塗布量を1/10に減らした場合も、これにほぼ相当する性能が得られる可能性が高いことを明らかにした。また、樹種変動や単板含水率制御に対する知見など、実生産への実装に向けた多くの知見が得られた。</p>
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	<p>1) 常態接着性能：（針葉樹でのJAS規格基準 0.7 MPa以上） 従来塗布量の約1/10 基準を満たす（図3-8で 1 MPa超、スギ）</p> <p>2) 接着耐久性：（針葉樹でのJAS規格基準 72時間連続煮沸後に 0.7 MPa以上） 従来塗布量の3割減 基準を満たす（0.73 MPa 図3-9、スギ） 従来塗布量の5割減 基準を満たす（0.9 MPa 図3-16、スギ） 従来塗布量の約1/10 ほぼ基準に相当する（0.68 MPa 図3-9、スギ）</p> <p>3) 樹種の影響：基材となる単板の樹種の力学的強度が強いほど接着性能は高い。 アカマツ 約1.5 MPa 従来塗布量の接着耐久性（図3-18） スギ 約1.0 MPa 従来塗布量の接着耐久性（図3-16）</p> <p>4) 単板含水率の影響：単板の含水率が低すぎても高すぎても接着性能は低下する。接着性能に関し、単板含水率には、最適な範囲がある（図3-17）。</p>
目標3-2	実生産に適用できる可能性のある塗布技術の検討
達成状況	<p>新たな塗布技術として超音波霧化技術を応用した塗布技術を検討し、糊液選択の広範さや塗布効率、メンテナンス性（目詰まりを起こさない）において、実験的に使ったインクジェット法や工業的に使われているエアスプレー法に対して優位性を持つことを確認できた。比較的新しい技術であり、コスト面などの課題は残るものの、将来的に十分に実用化しうる技術的可能性を見いだすことができた。</p>
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	<p>図3-21：接着剤の塗布効率を比較し、超音波霧化技術で効率ほぼ100%に対し、エアスプレー法では80%から90%にとどまった。</p>
目標3-3	接着剤塗布以外の生産時排出量に対する影響を評価する。
達成状況	<p>合板に微量塗布技術を適用した際に、接着剤使用量そのものが減る効果に加え、以下の副次的効果が得られる可能性を見出した。</p> <p>1) 熱圧時間を1/2まで短縮できる可能性</p> <p>2) 熱圧時の部減りをほとんどなくせる可能性</p> <p>3) 単板の乾燥負荷の軽減の可能性</p> <p>以上のように、工程由来のCO₂排出量削減や工業的な課題解決に資する多くの知見を見いだすことができ、目標を大幅に超えた成果が得られたと考えている。</p>
自己評価	目標を大きく上回る成果をあげた
エビデンス	<p>1) 熱圧時間を1/2まで短縮できる可能性：図3-11 従来法のロール塗布で675秒かけて到達する温度に、微量塗布では320秒で到達。接着剤塗布量が少ないため、接着剤が持ち込む水分が少なく、温度上昇が早い。</p> <p>2) 熱圧時の部減りをほとんどなくせる可能性：図3-12および本文 従来法では圧縮前の合板の厚さ15 mm から、プレス時に13 mm程度まで下がり、最終的に得られる合板の厚さは13.8 mm 微量塗布法では、プレス時に14.5 mm程度まで下がり、最終的に得られる合板の</p>

	<p>厚さは14.9 mm であった。</p> <p>3) 単板の乾燥負荷の軽減の可能性：図3-17</p> <p>単板含水率は高すぎても低すぎても接着性能の低下を引き起こす。従来塗布法では接着剤が持ち込む水分が多いため、接着剤塗布前の単板の含水率を5%以下にまで乾燥させ、接着剤塗布後の単板含水率が高すぎることがないようにしていた。</p> <p>一方、微量塗布法においては、接着剤が持ち込む水分が少ないため、接着剤塗布前の単板の含水率が5%よりも高くても接着性能を維持できる。図3-17より、塗布前の単板含水率を6.5%から13%としても接着性能を維持した。</p> <p>したがって、塗布前の単板含水率の条件を緩和（5%まで減らさなくてもよい）できると見込まれる。</p>
--	---

課題全体では、以下の通り、目標どおりの成果をあげた。

全体目標	<p>研究課題全体では、木質材料の廃棄・焼却時に発生する接着剤からの化石由来CO₂排出量の推定手法を開発するとともに、将来的な発生量を低減させる天然系接着剤や微量塗布技術の開発と評価に取り組み、木質材料の環境性能を向上させて、低炭素化対策の進展に寄与することを目標とする。</p>
達成状況	<p>1) 木質材料の廃棄・焼却時に発生する接着剤からの化石由来CO₂排出量の推定手法を開発する</p> <p>サブテーマ1にて実施し、目標どおりの成果をあげた。</p> <p>本研究では、木材用接着剤フロー推定モデルを開発し、1970年から2050年までの木材用接着剤からの化石由来CO₂排出量を算定する手法を示した。また、実際のインベントリ作成を念頭においた、より簡易的な算定のために、木質材料種類別の化石由来炭素含有量を推定しており、これに各木質材料の焼却・燃料利用量を乗じることで、簡易的な算定も可能である。</p> <p>2) 将来的な発生量を低減させる天然系接着剤や微量塗布技術の開発と評価</p> <p>サブテーマ2にて天然系接着剤の開発と評価を、サブテーマ3にて微量塗布技術の開発と評価を実施し、目標どおりの成果をあげた。</p> <p>3) 木質材料の環境性能を向上させて、低炭素化対策の進展に寄与する</p> <p>サブテーマ2, 3で開発した、天然系接着剤や微量塗布技術の導入により、木質材料の焼却時の化石由来CO₂排出量を削減でき、環境性能を向上させることができる。さらに、微量塗布技術においては、接着剤塗布量削減以外の副次的な効果の可能性も見出しており、さらなる環境性能の向上が期待できる。これらの技術開発に加え、サブテーマ1で実施した対策導入効果の評価や、施策の提言により、本研究課題は、低炭素化対策の進展に寄与する成果を得た。</p>
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	各サブテーマの目標達成状況の評価で示したとおり。

研究の推進のため、以下の様に、サブテーマ間の連携や、環境省担当課室への支援依頼をした。

- 1) サブテーマ1「目標1-3 接着剤含有量分析方法の開発」において、研究の着想、試料の作成、結果の解釈に関して、サブテーマ2, 3の協力を得た。
- 2) サブテーマ1「目標1-4 CO₂排出削減シナリオの分析」では、サブテーマ2, 3での開発成果を踏まえて天然系接着剤および微量塗布技術の導入シナリオを設定した。
- 3) サブテーマ1「追加された目標 合板製造のライフサイクル全体からのCO₂排出量の把握」では、日本合板工業組合連合会への協力依頼を、サブテーマ2, 3の研究者を通じて、また環境省から林野庁への依頼を通じて働きかけていただいた。
- 4) サブテーマ2, 3の連携として、サブテーマ2で開発した天然系接着剤を、サブテーマ3での合板製造・性能評価に用いた。

特に、1) について、サブテーマ1の研究者は環境工学・廃棄物工学を専門とし、木質材料や木材産業についての知見を有していなかった。木材分野の経験と知見を持つサブテーマ2, 3の研究者との共同研究により、接着剤含有量分析方法の開発が可能となった。具体的には、以下の点で連携した。

研究の初期構想時点において、サブテーマ2, 3より、接着剤使用時に同時に使用される添加物について情報提供を受け、当初困難と考えていたフェノール樹脂系接着剤をも対象とした分析方法の開発に踏み込むことができた。

分析対象とする試料の作成・入手においても連携した。サブテーマ3は、接着剤既知合板を製造し、検量線作成用の試料として提供した。この試料は接着剤濃度を厳密に管理して作成されており、接着剤量と元素含有量との相関関係を分析することが可能になった。また、コロナ禍で廃材チップ等の試料の入手に苦労する中、サブテーマ2よりパーティクルボード工場の原料チップの提供を受けた。

元素分析結果をサブテーマ2, 3の研究者と共有、議論し、Na濃度の外れ値の原因として、海面貯木による影響を検討することが出来た。(サブテーマ1の研究者のみでは思いつかなかった。)

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

0件

6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表(査読なし)	1件
口頭発表(学会等)	16件
「国民との科学・技術対話」の実施	1件
マスコミ等への公表・報道等	0件
本研究に関連する受賞	1件

7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

8. 研究者略歴

研究代表者

平井 康宏

京都大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、京都大学 環境安全保健機構 教授

研究分担者

1) 梅村 研二

京都大学大学院農学研究科修了、現在、京都大学 生存圏研究所 教授

2) 山内 秀文

京都大学大学院農学研究科修了、現在、秋田県立大学 木材高度加工研究所 教授

II. 成果の詳細

II-1 木材用接着剤フロー推定およびCO₂排出削減シナリオ分析

京都大学

環境安全保健機構環境管理部門教授	平井 康宏
環境安全保健機構環境管理部門助教	矢野 順也
環境安全保健機構環境管理部門教授	酒井 伸一（現在 京都高度技術研究所副所長）

〔要旨〕

木質材料はカーボンニュートラルな材料として期待されるが、合成接着剤も含まれており、焼却・燃料利用時には化石由来CO₂が排出される。しかし、その排出量は各国の排出インベントリで未推定であった。そこで本研究では、木材および木材用接着剤の動的フロー推定モデルを開発し、1970年から2050年までの木材用接着剤からのCO₂排出量を推定するとともに、その削減対策の評価に取り組んだ。また、木質材料中の接着剤含有量の把握のため、合板およびLVL工場への原燃料使用量調査と、木質材料の化学分析による接着剤含有量測定手法の開発を実施した。

原燃料使用量調査により合板・LVLでの接着剤使用量を明らかにするとともに、原木の育苗から合板の焼却処理までのCO₂排出量を算定した。接着剤の製造時と焼却処理時の接着剤由来の排出が全排出量の約半分を占め、接着剤対策がライフサイクルの視点からも重要であることが分かった。

接着剤含有量測定手法として、窒素、ナトリウム、塩素濃度から化石由来炭素濃度を推定する式を得た。これを輸入合板を含む市販木質材料や木くずに適用し、化石由来炭素含有量を明らかにした。

これらにより得た木質材料中の接着剤使用量の情報を用い、木材および木材用接着剤の種類別・用途別フロー・ストックを推定し、木材用接着剤の焼却による化石由来CO₂排出量を算定した。排出量は2013年の37万t-CO₂から、2020年に42万t-CO₂に増加しており、現状推移ケースでは、2030年に45万t-CO₂、2050年に46万t-CO₂と推定された。これに対し、1) 天然系接着剤導入、2) 微量塗布技術導入、3) 建築物長寿命化、4) 原料リサイクル強化を全て実施すると、2050年のCO₂排出量は25万t-CO₂/年となり、現状推移ケースから約45%減少すると推定された。対策種類別には、既に導入が進んでいる原料リサイクルの追加的な寄与は小さく、その他3対策の寄与が大きいことが明らかになった。最後に、対策の導入に向けた施策を提言した。

1. 研究開発目的

解体建築物や廃家具から発生する廃木質材料の将来発生量および廃接着剤発生量を予測する「木質材料・接着剤フロー推定モデル」を構築し、木質材料における接着剤由来CO₂排出量を推計することを目的とした。また、住宅長寿命化やマテリアルリサイクル強化、サブテーマ2, 3で開発する対策技術の導入シナリオを策定し、開発したモデルを用いて、CO₂排出量削減効果を評価し、対策の導入に向けた各種施策を提言することを目的とした。

2. 研究目標

サブテーマ1では、以下を研究目標とした。

木材用接着剤の動的フロー推定モデルとして、1970年から2050年までの日本国内での木材（製材、集成材、合板、パーティクルボード、繊維板）および接着剤（ユリア樹脂系、メラミン樹脂系、フェノール樹脂系（レゾルシノール樹脂系を含む）、水性高分子イソシアネート系）のフロー・ストックを、用途別（コンクリート型枠用合板（コンパネ）、建築物、フローリング材、家具）に推定する。木質材料区分別に化石由来炭素比率を算出し、IPCCインベントリデータベースへの収載を目指す。

また、接着剤含有量分析方法の開発として、接着剤既知濃度試料・市販木質材料・木くず試料各30検体計90検体以上の元素組成分析を行い、元素組成に基づく接着剤量推定式を得る。開発した手法を用い、統計調査では推定が困難な、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定する。

さらに、CO₂排出削減シナリオの分析として、住宅長寿命化や原料リサイクル強化、サブテーマ2および3で取り組んでいる天然系接着剤や微量塗布技術の導入によるCO₂削減量を算定する。シナリオ検討に際し、木質材料メーカー、関連分野の専門家、行政担当者の参画を得て、対策の導入に向けた各種施策を提言する。

3. 研究開発内容

上記の目標を達成するため、1) 合板およびLVL製造工場の原燃料使用量調査、2) 接着剤含有量分析方法の開発、3) 木材用接着剤の動的フローモデルの開発、4) 木材用接着剤からのCO₂排出削減シナリオの分析、に取り組んだ。1) および2) は、3) のフローモデルで用いる主要なパラメータ（木質材料種類別の接着剤種類別使用量）を把握するための調査である。

1) は、当初、接着剤使用量の把握を主な目的とした木質材料製造工場の視察やヒアリングを予定していたが、アドバイザリーボード会合において、木材用接着剤に含まれる化石由来炭素からのCO₂排出だけでなく、接着剤製造時や木質材料の製造時の原燃料消費に由来するCO₂排出も含めたライフサイクル全体での排出を把握することが望ましいとの意見を踏まえ、内容を拡充して実施した。

2) は、応募時点では予定していなかったが、統計情報や工場へのヒアリング調査のみでは、輸入木質材料の接着剤使用量を把握するのは困難であるとの指摘を受け、キックオフ会合時に着想段階の方法として紹介し、研究目標提出時まで、実現の見込みありと判断して、研究目標に設定した。

3) のモデル開発と4) の削減シナリオ分析は同じモデルを用いた研究内容であるため、3) にまとめて記載した。

3. 1 合板およびLVL製造工場の原燃料使用量調査

合板およびLVL (Laminated Veneer Lumber) の製造過程および焼却処理時における化石資源由来CO₂排出量を推定するため、日本合板工業組合連合会（日合連）及び全国LVL協会所属の企業を対象に、2019年における合板・LVL製造過程で投入された原燃料使用量を調査した。本調査の機能単位は、合板またはLVL 1 m³の製造とした。調査方法は、一般社団法人サステナブル経営推進機構の「カーボンフットプリントプログラム」における木材・木質材料向けの算定基準¹⁾に準じた。ただし、上記算定基準では対象とするライフサイクル段階を、原材料の調達から製品の製造までとしているが、本研究では、製品使用後の廃合板・廃LVLの焼却処理時の接着剤由来CO₂排出量も評価対象範囲に含めた。より詳細には木材の育苗から伐採、輸送、単板製造、合板・LVLの製造および使用後の焼却処理とし、接着剤などの原料や、梱包材の製造工程ならびに、工場残材を用いたボイラーでの蒸気供給や発電工程も調査範囲に含めた。工場残材の木くずは、カーボンニュートラルな燃料とした。国産丸太の輸送経路は、出荷都道府県の森林から工場に最も近い木材流通センターを経て工場に至るとした。輸入丸太の輸送経路は、出荷国の森林から輸出港を出て工場最寄りの国内輸入港に至り、工場に到着するとした。輸送に係る積載率などは前述の算定基準¹⁾に従った。二次データ（合板工場およびLVL工場に投入される原料の製造時の温室効果ガス排出量）として、丸太は林野庁報告書のデータ²⁾を、その他接着剤等についてはLCIデータベースIDEA version2.3³⁾を使用した。

3. 2 接着剤含有量分析方法の開発

木質材料や木くず試料の元素濃度から接着剤含有量（化石由来炭素含有量）を求める手法を開発した。主要な木材用接着剤であるユリア/メラミン/フェノール樹脂系接着剤の3種に特有な元素に着目した。ユリア/メラミン樹脂系接着剤には窒素が含まれ、木材中の窒素含有量は一般に低いことから、窒素含有量から接着剤量を推定可能か検討した。また、フェノール樹脂は、木材の主成分の1つであるリグニン

と類似しており、その識別は困難であるが、使用時には、小麦粉、炭酸カルシウム、水酸化ナトリウムなどが配合される。そこで、カルシウムやナトリウム含有量で接着剤量を推定可能か検討した。

まず接着剤濃度既知の合板試料の元素分析を実施し、元素濃度と接着剤塗布量とに相関関係が得られるか、つまり、検量線を作成可能か調べた。次に、この手法が、市販木質材料にも適用可能であるかを調べ、最後に、使用済み製品である廃家具や、解体材等を原料とした木くずチップ、パーティクルボードの原料チップに適用した。

3. 2. 1 分析対象とする試料の作成および入手

分析対象とした試料一覧を表1-1に示した。接着剤濃度既知合板等は、サブテーマ3と連携し、秋田県立大学にて作成した。作成手順の詳細はII-3. 3.3.1および4.3.1に記載した。市販木質材料は、通販会社での購入またはパーティクルボードメーカーからの提供により入手した。廃家具等13検体は、使用済みの家具およびフローリング材から採取した。木くず試料のうち、パーティクルボード工場における原料チップは、サブテーマ2を通じて提供を受けた。

3. 2. 2 試料前処理および元素測定方法

木質材料は丸鋸を用いて15 cm角に切り出し、これを一軸破砕機(三力製作所 SF-1)でチップ状に破砕した。次に小型のミル(大阪ケミカル D3V-10)で粒径が1mm以下になる程度に粉砕した。一軸破砕機が必要ない小サイズの試料は小型ミルでの粉砕のみを行った。また、一部の試料はさらに凍結粉砕機(日本分析工業製JFC5000)により微粉とした。次に、粉砕試料を24時間105°Cで乾燥させた。乾燥試料を約50 mg 秤量し、CHNコーダー(ジェイ・サイエンス・ラボ製JM1000HCN)でC, H, N 含有量を測定した。また、乾燥試料約 0.2 g に硝酸0.5 ml、過酸化水素0.5 ml、蒸留水 5 ml を加え、マイクロ波酸分解装置(アントンパール製 Multiwave GO Plus)にて分解し、分解液を希釈して、ICP-OES(日立ハイテクサイエンスSPS6100)でNa, Ca濃度を、イオンクロマトグラフィー法によりCl濃度を測定した。

表1-1. 元素分析対象とした試料一覧

試料分類	種類	検体数	内訳
接着剤濃度 既知合板等	合板	22	ユリア樹脂系接着剤(スギ6、アカマツ2、ラワン2)、 メラミン樹脂系接着剤(スギ6)、フェノール樹脂系接着剤(スギ6)
	単板	8	スギ3、アカマツ3、ラワン2 (接着剤含まず)
	接着剤固化物	4	ユリア、メラミン、フェノール樹脂系接着剤の固化物各1、 ユリア・メラミン樹脂系接着剤に小麦粉等を配合した固化物1
市販木質材料等	合板	41	通販4社で購入。規格別では特類9、1類10、2類15、コンパネ3、 不明4。うち輸入合板5(2類4、不明1)
	パーティクル ボード	15	通販1社での購入6 パーティクルボードメーカー2社からの提供6+3=9
	MDF	14	通販4社での購入14 うち1検体のみウレタン系接着剤を使用したカラーMDF
	廃家具等	13	廃家具12、フローリング施工残材1
木くず等	木くずチップ	10	パーティクルボード工場での原料チップ2、産業廃棄物処理業 (木くずチップ化)でのボード原料用チップ4、燃料用チップ4
合計		127	

3. 3 木材用接着剤の動的フローモデルの開発およびCO₂排出削減シナリオの分析

3. 3. 1 フローモデルの概要

「木質材料・接着剤フロー推定モデル」は、木質材料のライフサイクルを、木質材料製造、最終製品製造、製品利用(ストック)、使用済み製品排出、処理・リサイクルの5段階で捉え、木質材料および木質材料用接着剤の各段階におけるフロー量および使用中のストック量を推定するモデルである。

本モデルにおけるCO₂排出量の推定対象期間は1970年から2050年とした。本モデルで使用済み製品の排出量を精度よく推定するには、排出年から製品寿命と同程度まで過去に遡った出荷量データが必要である。この点も考慮し、モデル内部の計算は、接着剤出荷量がピーク時の約1/50となる1950年まで遡って

実施し、ストック量や排出量の推定結果は1970年以降のみ示した。

モデルの対象とする地理的範囲は、日本国内とした。輸入された木質材料・木材製品はモデルの対象として扱い、輸入木質材料・木材製品を国外で生産・加工した時に発生し国内に持ち込まれない残材等はモデルの対象外とした。

モデルの対象とする木質材料、接着剤、製品の用途は、2. 研究目標の通りとした。ただし、木質材料種類のうち、繊維板は、MDF (Medium Density Fiberboard 中密度繊維板) のみを対象とした。繊維板には、MDFの他に、ハードボード、インシュレーションボードなどがあるが、繊維板の国内需要量の約8割をMDFが占め、3種類のうち接着剤が使われているのはMDFのみであることによる。

製品の用途によって、木質材料に求められる接着剤の耐水性は異なるため、表1-2に示す対応関係があったとした。耐水性の高いフェノール樹脂系接着剤は建築物の下地材などに使用され、これに次ぐ耐水性を有するメラミン樹脂系接着剤はコンクリート型枠用合板や家具、建築物の造作材(内装材)に、耐水性に劣るユリア樹脂系接着剤は、フローリング材や家具、建築物の造作材に使われるとした。木質材料と接着剤との組み合わせでは、MDFにはフェノール樹脂系接着剤は使われず、集成材には水性高分子イソシアネート系接着剤が使われるとした。

本モデルの対象とする木くずの発生工程、接着剤有無、処理方法を表1-3に示した。工場残材は丸太を加工する際の残材とし、接着剤を含まないとした。合板工場では、丸太からの残材に加え、接着剤を含む合板の端材も発生するが、前者の量が多く、合板工場の残材中の接着剤量は無視しうるとした。パーティクルボードおよびMDFの製造時に発生する残材は、製材・集成材・合板から生じる残材に比べて少なく、工程内で利用されるとして推定の対象外とした。工場残材は、接着剤を含まないため、家畜敷料や製紙原料にも利用されるとした。

表1-2. 本モデルで想定した接着剤種類と木質材料種類および用途との対応関係

接着剤種類	木質材料種類	用途
接着剤なし	製材	建築物、家具
水性高分子イソシアネート系	集成材	建築物、家具
フェノール樹脂系接着剤	合板(特類)	建築物
	パーティクルボード	建築物、家具
メラミン樹脂系接着剤	合板(コンクリート型枠用)	コンクリート型枠用合板
	合板(1類)	建築物、家具
	パーティクルボード	
	MDF	
ユリア樹脂系接着剤	合板(フローリング台板)	フローリング材
	合板(2類)	建築物、家具
	パーティクルボード	
	MDF	

表1-3. 本モデルで想定した木くずの種類と接着剤の含有の有無、処分方法

発生段階	木質材料・用途	木くず名称	接着剤の有無	処理方法・利用先
木質材料製造	製材	工場残材	無し	家畜敷料・製紙原料 ボード原料 焼却・熱利用
	集成材			
	合板			
木質材料使用	フローリング材	フローリング施工残材	有り	焼却
	建築物(新築)	建築残材	有り	ボード原料
製品廃棄	建築物(解体)	解体材	有り	焼却・熱利用
	コンクリート型枠用合板	廃コンパネ	有り	焼却・熱利用
	フローリング材	廃フローリング	有り	焼却・熱利用
	家具	廃家具	有り	焼却・熱利用

3. 3. 2 モデルパラメータの設定

モデルの入力データは、製材・木質材料および接着剤の種類別国内需要量、木質材料種類別の接着剤種類別使用量、木質材料製造時の歩留まり、製品用途別の木質材料種類別需要量、建築物新築時およびフローリング施工時の残材発生率、製品用途別の残存率関数、工場残材の処理方式別割合、パーティクルボードおよびMDFの原料に占める解体材割合、接着剤種類別の化石由来炭素含有量である。

木質材料の需要量実績値はFAOSTAT⁴⁾の統計値および日本合板工業組合連合会による合板百年史⁵⁾を、製品用途別の製材・木質材料別の需要量はKayoら(2018)⁶⁾による推定値を用いた。Kayoら(2018)は、木材用途を紙、建築物、家具、燃料に分類しており、コンクリート型枠用合板やフローリング材は分離されていない。コンクリート型枠用合板およびフローリング材はKayoら(2018)では、建築物に含まれていると考え、これら2用途の合板需要量を推定し、残りを本研究での建築物用需要量とした。コンクリート型枠用合板は近年の出荷実績とコンクリート需要量との相関から、フローリング材は近年の出荷実績と建築着工床面積との相関から、過去の生産量を推定した。また、接着剤生産・出荷量の実績値は日本接着剤工業会による調査結果⁷⁾を用いた。繊維板等の原料に占める解体材比率は、日本繊維板工業会による調査結果⁸⁾を用いた。

木質材料別の接着剤種類別使用量は、本研究で実施した3. 1の合板工場調査および3. 2の市販木質材料の接着剤含有量分析結果、既往LCA研究⁹⁻¹²⁾での木質材料への接着剤使用量をもとに設定した。

製品用途別の寿命分布について、コンクリート型枠用合板は出荷と同年廃棄されるとした。家具の寿命分布はNomura and Momose(2008)¹³⁾の推定結果を用いた。フローリング材の寿命分布は、建築物の寿命分布と同じとした。建築物の寿命分布は、小松(2008)¹⁴⁾の調査データをもとに、新たに残存率関数を推定した。従来用いられてきたワイブル分布関数は、建築後30~40年程度は実測データとよく一致するが、その後は残存率を過小評価するという課題がある。ワイブル分布におけるハザード関数(瞬間故障率)が経過年数とともに指数関数的に増大するのに対し、実測データは経過年数とともに頭打ちとなることが予測値と実測値の乖離の原因であると考え、ハザード関数として一定値で飽和するロジスティック曲線を採用した(式1)。ハザード関数 $h(t)$ は、残存率関数 $S(t)$ を用いて式(2)で定義される。この関係より、積分を解析的に行い式(3)の残存率関数を導出した。 K は $t \rightarrow \infty$ での $h(t)$ の極限值、 r は形状パラメータ、 t_0 は位置パラメータで $h(t) = K/2$ となる t である。モデルパラメータ K, r, t_0 は、ハザード関数の観測値と式(1)による推定値との残差二乗和が最小となるように推定した。

$$h(t) = \frac{K}{1 + \exp(rK(t_0 - t))} \dots (1)$$

$$h(t) = -\frac{dS(t)}{S(t)dt} = -\frac{d}{dt} \ln(S(t)) \dots (2)$$

$$S(t) = \exp\left(-\int_0^t h(u) du\right) = \left[\frac{1 + \exp(-rKt_0)}{1 + \exp(rK(t - t_0))}\right]^{\frac{1}{r}} \dots (3)$$

3. 3. 3 用途別需要量の将来予測

建築物向け木質材料およびフローリング材の需要量は、新築着工床面積に比例するとした。新築着工床面積は、先に建築物ストック面積を推定しておき、この各年度の変化量が、各年度の建築物着工面積と解体面積の差に一致するよう設定した。世帯当たり建築物の床面積は現状のトレンドのまま2050年まで推移するとし、これに世帯数の将来予測値を乗じて、各年度末の建築物ストック面積を求めた。

コンクリート型枠用合板の需要量は、セメント国内需要量に比例するとした。セメント国内需要量は、2020年における実績値と、セメント協会による2050年需要量見通しとを線形補完して推定した。

家具用木材の需要量は、人口に比例するとした。

3. 3. 4 対策シナリオの設定

木材用接着剤からのCO₂排出量を削減する対策として、1) 天然系接着剤の導入、2) 微量塗布技術の導入、3) 建築物の長寿命化、4) 解体材の原料リサイクルを対象に、2050年までの導入シナリオを設定し(表1-4)、その導入効果を、木材用接着剤フロー推定モデルにより評価した。

1) 天然系接着剤として、サブテーマ2で開発に取り組んだスクロース系接着剤を想定した。スクロースは本来水溶性であり、添加物や熱圧条件によって不溶性を得ることが開発の第一条件となっている。このため、接着剤に求められる耐水性の要求水準が低い方が、導入しやすい。これを踏まえ、スクロース系接着剤が代替する接着剤の種類は、ユリア・メラミン樹脂系接着剤とし、より高い耐水性を持つフェノール樹脂系接着剤は代替対象からは除外した。また、スクロース系接着剤は、熱圧温度が高い方が、曲げ強さや吸水厚さ膨張率などの性能が良い傾向にあることから、製造時に比較的高い熱圧温度が使われるパーティクルボードやMDFへの導入が先行して進み、低い熱圧温度が好まれる合板への導入は5年遅れで進むとした。また、サブテーマ2で開発したスクロース系接着剤の天然物割合は90%であることから、従来のユリア・メラミン樹脂系接着剤に比べ、化石由来CO₂排出量は90%減少するとした。

2) 微量塗布技術の導入シナリオは、サブテーマ3での開発成果を踏まえて設定した。微量塗布技術は平面への塗布方法であることから、合板を導入対象とした。また、超音波霧化技術により、インクジェット法の課題であった経路の目詰まりが解消されていることから、天然系接着剤も含む全ての接着剤に導入可能とした。微量塗布による接着剤の削減割合とその時期について、塗布量を従来の1/2とした実験では、十分な接着性能が得られており、塗布量を50%削減する技術は早期に導入可能とした。従来塗布量の1/10とした条件では、わずかにJAS規格の水準に及ばない(規格値が0.7 MPaのところ0.68 MPa)ものの、追加的な技術開発により、将来的にはこの削減率が実現するとした。

3) 建築物の長寿命化は、2022年から2035年にかけて進展するとした。建築物の残存率関数のパラメータを変化させ、建築物寿命の中央値(残存率が50%となる築年数)が2022年時点の55年から75年に延びるとした。また、建築物ストック量は、長寿命化がないケースと同水準を保つとした。これにより、建築物解体量が減少し、新規着工量も減少するとした。

4) 原料リサイクルについては、国産パーティクルボードおよび国産MDFの原料木材のうち、建築廃材・解体材由来の木くずチップの割合が増加し、製材残材の割合が減少するとした。これにより、焼却処理される木くず中の接着剤量が減少する。2020年時点でパーティクルボードおよび繊維板(MDFを含む)の原料木材に占める建築廃材・解体材の割合は70%(パーティクルボードで86%、MDFで40%)であり、最大限に導入可能な割合として100%を2030年までに達成するとした。

表1-4. 対策シナリオの設定

対策名	天然系接着剤	微量塗布技術	建築物長寿命化	原料リサイクル
適用対象	【合板・PB・MDF】 ユリア樹脂系接着剤 メラミン樹脂系接着剤	【合板】 ユリア樹脂系接着剤 メラミン樹脂系接着剤 フェノール樹脂系接着剤	全ての建築物	建築廃材・解体材を PB・MDF用原料に
導入率・普及率	天然物割合90%超の 天然系接着剤普及率 【PB・MDF】 2025年普及開始 2030年25%普及 2050年80%普及 【合板】 2030年普及開始 2035年25%普及 2055年80%普及	微量塗布による接着 剤消費削減率 【合板】 2025年普及開始 2030年50%削減 2050年90%削減	建築物寿命中央値 残存率パラメータ 2022年：55年 t_0 ：32 r ：5.0 K ：0.029 2035年：75年 t_0 ：40 r ：4.0 K ：0.020	原料のうち建築廃 材・解体材の割合 【PB】 2020年：86% 2030年：100% 【MDF】 2020年：40% 2030年：100%
削減効果	新規木質材料への合 成系接着剤使用量を 天然系接着剤で代替	新規合板への接着剤 使用量を削減	建築物解体量減 新規着工面積減	解体材の焼却を回避 使用済み接着剤を PB・MDFに蓄積

4. 結果及び考察

4. 1 合板およびLVL製造工場の原燃料使用量調査

調査票を日本合板工業組合連合会および全国LVL協会を通じて配布し、11社13工場から回答を得た。回答企業の合板生産量合計は108万 m^3 （2019年の国内普通合板生産量334万 m^3 の約1/3）、LVL生産量合計は14.9万 m^3 （2019年の国内LVL生産量18.8万 m^3 の約8割）であった。国内の合板製造の既往LCA研究は対象地域を限定したもの^{9,15)}や、2000年の統計調査に基づくもの³⁾であり、LVLの国内事例は見当たらなかった。既往研究に比べて、代表性の高いデータを入手することができた。

本調査で得た原燃料等の投入量および丸太の輸送距離の加重平均値および標準偏差を表1-5に示した。合板での接着剤使用量は、フェノール樹脂系接着剤が $45.5 \pm 2.84 \text{ kg}/\text{m}^3$ であり、工場間のばらつきは小さかった。小麦粉や炭酸カルシウムが増量剤として使われているが、他の接着剤使用量は2桁以上低かった。国産インベントリデータベースのデファクトスタンダードであるIDEA³⁾においては、ユリア樹脂系接着剤やメラミン樹脂系接着剤が多くを占めており、接着剤の構成比率は大きく異なっていた。2000年ごろから室内VOC対策として接着剤種類が大きく変化しており、これを反映した結果となった。

原料丸太の育苗から焼却処理までの1 m^3 あたり CO_2 排出量は、合板227 $\text{ kg-CO}_2\text{eq}/\text{m}^3$ 、LVL 379 $\text{ kg-CO}_2/\text{m}^3$ となった（図1-1）。プロセス別の内訳では、接着剤製造時と焼却処理時をあわせた接着剤関連の排出が合板で約1/2、LVLで約1/3を占めた。接着剤微量塗布技術により、焼却時の CO_2 排出だけでなく接着剤製造工程からの排出削減も期待できることが明らかになった。

接着剤関連以外の工程では、丸太輸送工程や工場での電力消費の寄与が大きかった。合板・LVL工場での燃料消費の寄与はそれらに比べると小さく、梱包材の寄与は微小（ライフサイクル全体の0.3%未満）であった。原料木材に占める国産丸太の比率は合板で約90%、LVLで約83%を占めるが、国産材比率をさらに高めることで、丸太輸送からの温室効果ガス排出を削減することが期待される。調査した全ての工場で木くず燃料が利用されており、燃料消費由来の温室効果ガス排出が低い理由と考えられた。丸太から合板・LVLを製造する際の歩留まりは6割程度であり、木くずが多く発生するために導入が進んでいると推測された。これに対し、木くずを用いた自家発電は一部の工場でしか導入されておらず、導入拡大の余地がある。なお、燃料由来からの CO_2 排出量が少ないため、合板やLVL製造における乾燥工程の効率化は CO_2 削減効果が低いように見えるが、合板・LVL製造工程で使用する木くずが減ることで、外部への木くず供給量が増え、他工場等での化石燃料代替により CO_2 の削減につながると考えられる。

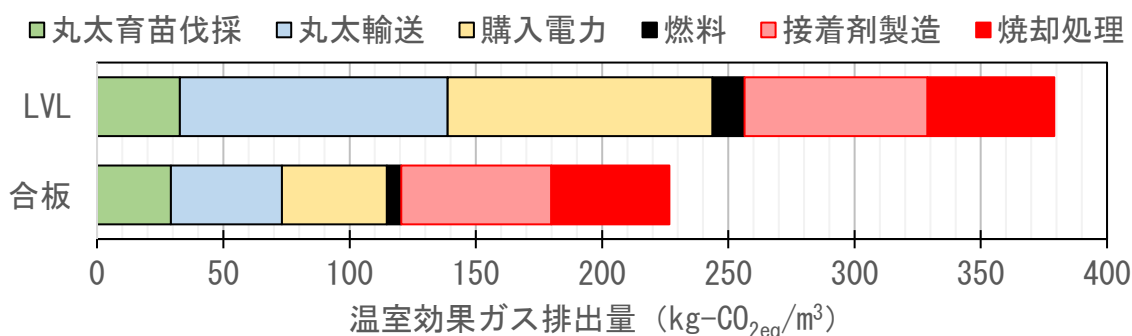


図1-1. 合板・LVL 1 m^3 製造および焼却処理時の CO_2 排出量算定結果

表1-5. 合板・LVL 1m³製造あたりの原材料・燃料等投入量、丸太輸送距離の加重平均・標準偏差

原材料・燃料等種類/ 輸送距離区分	単位	合板		LVL	
		加重平均	標準偏差	加重平均	標準偏差
原料用木材投入量					
国産材（丸太＋購入単板）	m ³ /m ³	1.48	0.177	1.68	0.740
輸入材（丸太＋購入単板）	m ³ /m ³	0.167	0.126	0.336	0.449
原料用木材合計	m ³ /m ³	1.65	0.0757	2.02	0.327
接着剤等投入量					
ユリア樹脂系接着剤	kg/m ³	-	-	-	-
メラミン樹脂系接着剤	kg/m ³	0.0920	0.215	4.41	10.5
フェノール樹脂系接着剤	kg/m ³	45.5	2.84	46.4	19.9
レゾルシノール樹脂系接着剤	kg/m ³	-	-	0.756	0.479
イソシアネート系接着剤	kg/m ³	0.000297	0.000695	0.924	1.43
小麦粉	kg/m ³	4.64	1.42	4.30	2.60
炭酸カルシウム	kg/m ³	10.6	1.17	7.97	5.24
炭酸ナトリウム	kg/m ³	1.70	0.324	1.27	0.893
尿素	kg/m ³	0.00288	0.00672	0.294	0.786
塩化アンモニウム	kg/m ³	0.000671	0.00157	0.00212	0.00328
梱包材投入量					
梱包材：段ボール	kg/m ³	0.000987	0.00205	-	-
梱包材：PPバンド	kg/m ³	0.0112	0.00592	0.0131	0.0138
梱包材：PE製ストレッチ	kg/m ³	0.00164	0.00742	0.0145	0.0180
梱包材：栈木	kg/m ³	0.728	1.51	-	-
電力・燃料投入量等					
購入電力量	kWh/m ³	80.8	51.8	210	31.8
発電量	kWh/m ³	49.8	50.9	-	-
売電量	kWh/m ³	4.96	7.85	-	-
自工場消費量	kWh/m ³	44.8	44.7	-	-
電力総消費量	kWh/m ³	126	23.7	210	31.8
燃料：ガソリン	L/m ³	0.0107	0.0118	-	-
燃料：軽油	L/m ³	1.19	0.399	4.84	6.61
燃料：灯油	L/m ³	0.0333	0.0569	-	-
燃料：A重油	L/m ³	0.930	1.21	0.0205	0.0548
燃料：LPG	kg/m ³	0.0128	0.0141	-	-
丸太輸送距離					
国産材輸送距離：陸路	km	179	14.4	260	64.5
国産材輸送距離：海上	km	46.1	40.8	4.45	12.5
輸入材輸送距離：国内陸路	km	66.9	22.5	122	4.89
輸入材輸送距離：海外陸路	km	917	70.3	625	137
輸入材輸送距離：海上	km	7,260	1,830	2,540	2,370
輸入材輸送距離：鉄道	km	966	1,140	4,360	1,550

注：輸送距離の加重平均・標準偏差は各社の国産材投入量または輸入材投入量で重みづけした。

4. 2 元素分析に基づく接着剤含有量分析方法の開発

4. 2. 1 濃度既知合板等の分析

接着剤固化物の分析結果を表1-6に示した。ユリア樹脂系接着剤およびメラミン樹脂系接着剤では窒素濃度が高く、フェノール樹脂系接着剤にはNaが10%含まれていた。フェノール樹脂系接着剤においては、増量剤の小麦粉や炭酸カルシウムとの配合時にNaOHが加えられるだけでなく、接着剤の糊液そのものをアルカリ性に保つために水酸化ナトリウムが添加されている。フェノール樹脂系接着剤には、酸性触媒で反応させた固形状のノボラック型とアルカリ性触媒で反応させた液状のレゾール型があり、合板では液状のレゾール型が使われる。今回測定されたナトリウム含有量は、フェノール樹脂系接着剤のLCAインベントリデータでの原料組成¹⁶⁾とも整合する値であった。

表1-6：接着剤固化物の元素分析結果

接着剤種類	C %-dry	H %-dry	N %-dry	Na %-dry	Ca %-dry	C/N	C/Na
ユリア・メラミン樹脂系接着剤	33.4	5.61	39.2	0.08	<0.01	0.852	
メラミン・ユリア樹脂系接着剤	36.3	5.31	45.6	0.08	<0.01	0.796	
フェノール樹脂系接着剤	58.8	5.59	0.01	10.0	<0.01		5.88

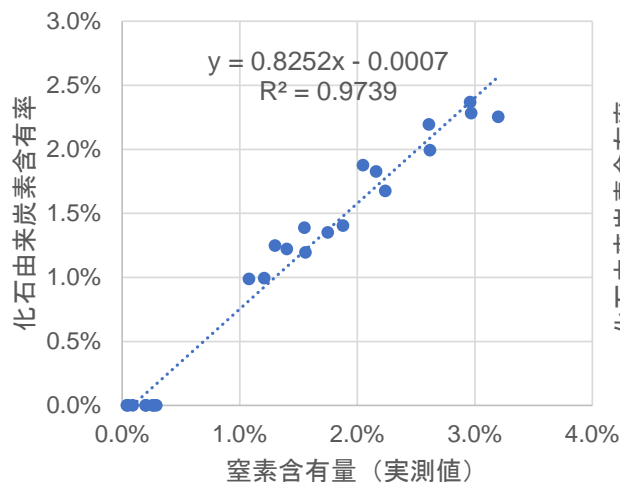


図1-2. 濃度既知合板および単板における窒素濃度と化石由来炭素含有率の関係

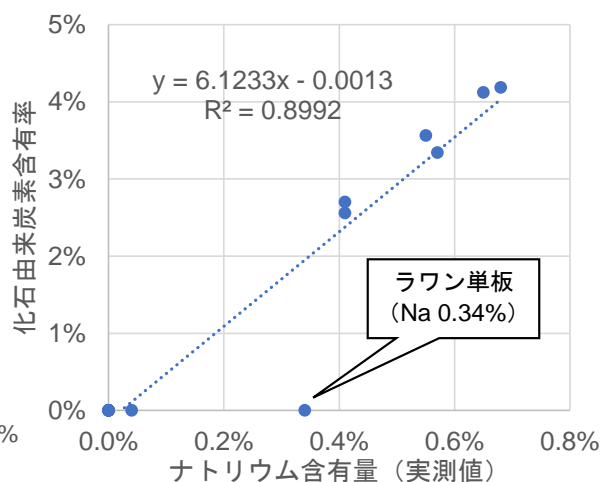


図1-3. 濃度既知合板および単板におけるナトリウム濃度と化石由来炭素含有率の関係

濃度既知合板中の窒素およびナトリウム含有量と化石由来炭素含有率との関係を図1-2および図1-3に示した。ユリア樹脂系およびメラミン樹脂系接着剤を用いた合板では、窒素含有量と化石由来炭素含有量とに高い相関が見られた。また、フェノール樹脂系接着剤を用いた合板では、ナトリウム含有量と化石由来炭素含有量とに高い相関があった。これらの回帰直線の傾き（C/N比、C/Na比）はユリア系およびメラミン系の接着剤固化物のC/N比や、フェノール樹脂系接着剤固化物のC/Na比と近い値であった。

図1-3では、接着剤塗布前の単板（樹種ラワン）から、0.34%のナトリウム濃度が検出されており、この外れ値の原因として、海面貯木による海水中塩分の吸収が考えられた。そこで、木材中の塩素濃度で補正を行うこととし、Naの原子量23.0とClの原子量35.5との比から、Cl濃度の23.0/35.5=0.648倍が海水由来ナトリウムであるとした。

なお、当初フェノール樹脂系接着剤において注目していた増量剤中のカルシウムは、合板中の濃度が低いこと、接着剤利用者が任意で調整でき接着剤との比率が安定しないことから、接着剤量を推定するには不向きであると判断した。

以上の結果を踏まえ、合板中のN、Na、Cl濃度から化石由来炭素濃度を推定する式(4)を得た。

$$FossilC = 0.825 N + 6.12 \times \max(Na - 0.648 \times Cl, 0) \quad (4)$$

$FossilC$ ：化石由来炭素含有率、 N ：窒素含有率、 Na ：Na含有率、 Cl ：塩素含有率

4. 2. 2 市販合板試料および木くず試料等への適用

市販合板試料および木くず試料の元素濃度および式(4)による化石由来炭素濃度を図1-4に示した。

ナトリウム濃度はフェノール樹脂系接着剤を使用した合板（合板P）で平均0.5%を示し、他の市販木質材料よりも明らかに高かった（図1-4(a)）。他に市販合板試料でナトリウム濃度が0.1%を超えたのは、パーティクルボード1検体とユリア樹脂系接着剤を使用した合板（合板U）1検体とであった。前者は製品説明よりフェノール樹脂系接着剤の使用を確認した。後者は塩素濃度が約0.25%とやや高く（図1-4(b)）、海水由来と推察された。以上の結果より、木質材料中のナトリウムは主にフェノール樹脂系接着剤に由来し、海水由来分は塩素濃度である程度補正でき、他のナトリウム源の影響は小さいことが示唆された。

窒素濃度は、フェノール樹脂系接着剤を用いた合板で平均1%と他の木質材料よりも低く（図1-4(c)）、ユリア樹脂系接着剤やメラミン樹脂系接着剤を使用した木質材料で窒素濃度が高い傾向が確認できた。また、MDF試料1検体（ウレタン樹脂系接着剤を使用）で窒素濃度0.4%と極端に低く、ウレタン樹脂系接着剤の窒素濃度が、ユリア樹脂系やメラミン樹脂系接着剤に比べて低いことを反映していた。

化石由来炭素濃度推定値は、木質材料で平均約4%であり、輸入合板でやや高く、パーティクルボードでやや低かった（図1-4(d)）。廃家具等では、その材料である合板やパーティクルボードと同程度の濃度であった。木くずチップでは、木質材料よりも低く、原料の解体材に、接着剤を使わない製材を多く含むことを反映していた。

ウレタン樹脂系接着剤を用いたMDFの化石由来炭素濃度は式(4)により0.4%と推定された。ウレタン樹脂系接着剤のC/N比率は、ユリア樹脂系接着剤やメラミン樹脂系接着剤に比べて低く、式(4)は実際の化石由来炭素濃度を過小評価している。しかし、木質材料向けのウレタン樹脂系接着剤出荷量は874トン/年であり、ユリア樹脂系（28,000トン/年）やメラミン樹脂系（29,000トン/年）に比べ2桁少ない⁷⁾。このため、多数の試料を測定した際の平均値に、この過小評価が与える影響は軽微と推測された。

本測定結果と4.1工場アンケート調査および既往LCAにおける接着剤使用量を4.3.1で比較した。

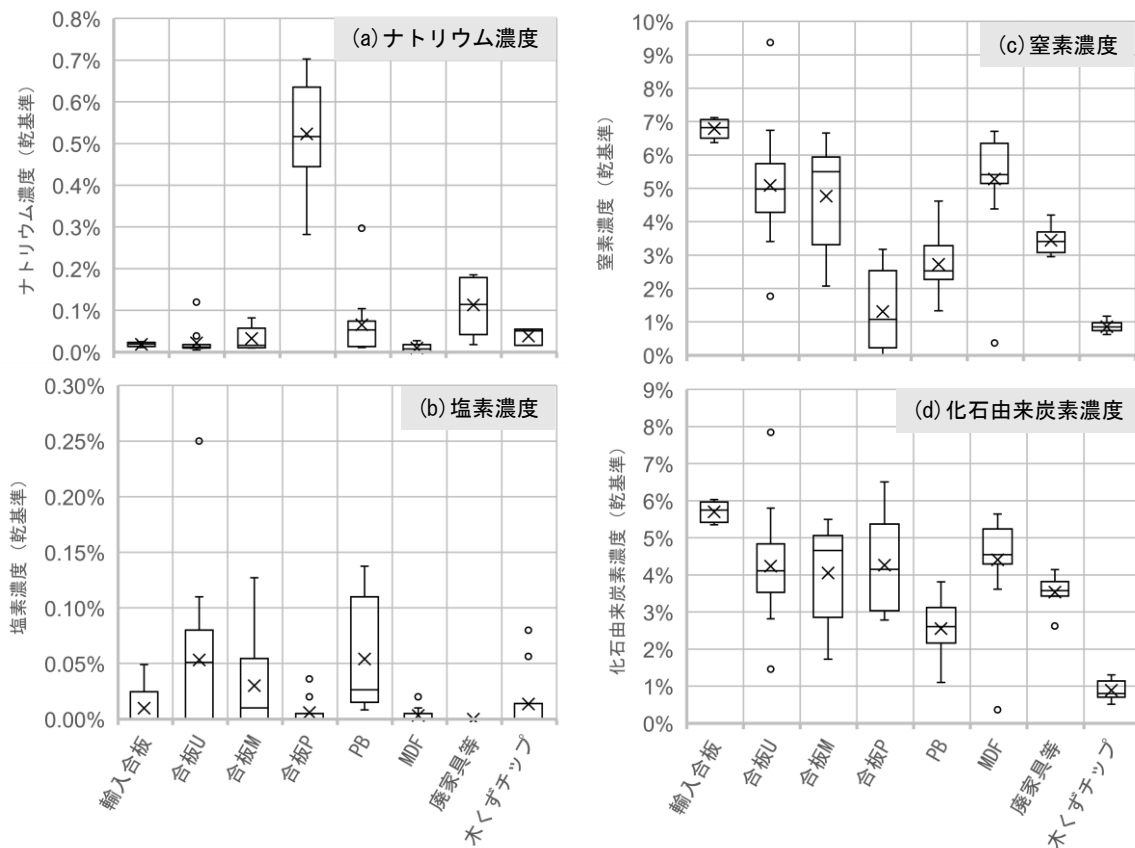


図1-4. 市販木質材料および廃家具類、木くずチップ中の(a)Na濃度、(b)Cl濃度、(c)N濃度測定結果および(d)化石由来炭素濃度推定結果。合板U/M/Pはユリア/メラミン/フェノール樹脂系接着剤に対応。

4. 3 木材用接着剤の動的フローモデルの開発とCO₂排出削減シナリオの分析

4. 3. 1 木質材料種類別の接着剤使用量および化石由来炭素含有量

本研究での工場アンケート調査（4.1）および市販木質材料の元素分析（4.2）での接着剤使用量および化石由来炭素含有量を、既往LCA調査における木質材料への接着剤投入量とあわせて表1-7、図1-5で比較した。木質材料種類別の接着剤投入量は、おおむね標準偏差の範囲内で一致していた。

これらの結果を踏まえ、木材用接着剤のフローモデルで用いる接着剤使用量原単位として、本研究での合板に対する工場調査の結果、および、Nakanoら（2018）¹⁰⁾によるパーティクルボードおよびMDFに対する工場調査の結果を用いることとした。

表1-7. 木質材料種類別の接着剤使用量および化石由来炭素含有量

木質材料	接着剤種類	接着剤使用量*2		化石由来炭素含有量*2		調査方法	出典・備考
		kg-wet/m ³	kg-dry/m ³	kg-C/m ³	kg-C/kg-dry		
合板	P	54.6±15.3	24.3±6.8	15.3±4.3	4.26±1.22%	元素分析	1. 本研究 n=12
合板	P	45.5±2.8	19.1±1.2	12.7±0.8		工場調査	2. 本研究 国内8工場 2019年度実績
合板	P:M+U=85:15	57.6	26.3			工場調査	3. 北海道の2工場 9)
合板	P	33.1±16.2	14.7±7.2			工場調査	4. 米国南東部8工場 11)
合板	P	26.4±12.9	11.7±5.7			工場調査	5. 米国北西部9工場 11)
合板	P	30.9	13.7			工場調査	6. カナダ6工場 12)
合板	U+M	112±48	60.2±25.8	21.0±9.0	4.43±1.35%	元素分析	7. 本研究 n=29
合板	U+M	75.2	43.7	16.7		工場調査	8. 本研究 2019年度実績
PB	P	75.4	33.5	21.1	3.12%	元素分析	9. 本研究 n=1
PB	U+M	74.1±35.7	39.8±19.2	13.9±6.7	2.51±0.69%	元素分析	10. 本研究 n=14
PB	P+M+U	84.3	47.9			工場調査	11. 国内6工場 2004年度実績 10)
PB	U+M	88.4	47.5			工場調査	12. 米国4工場、カナダ4工場 11)
MDF	U+M	109±45	58.5±24.3	20.4±8.48	4.72±0.59%	元素分析	13. 本研究 n=13
MDF	U+M	150	80.6			工場調査	14. 国内2工場 2009年度実績 10)
MDF	U+M	129	69.6			工場調査	15. 米国4工場、カナダ5工場 11)

*1: P/M/Uは、フェノール樹脂系接着剤、メラミン樹脂系接着剤、ユリア樹脂系接着剤を表す。

*2: ゴシック体の数字は各調査から直接得られた数値。斜体の数字は以下の仮定をおいて計算した。

・接着剤の固形分含有量は、P:44.4%、M:55.2%、U:52.3%

・接着剤固形分あたりの化石由来炭素量は、P:63.1%、M:36.3%、U:33.4% Pの化石由来炭素には増量剤の炭酸カルシウム中の炭素を含む。

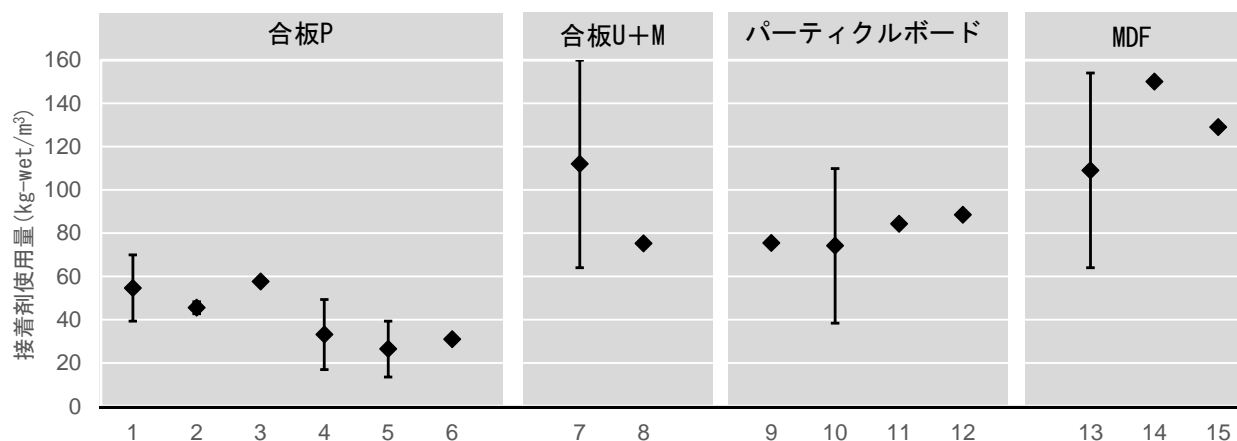


図1-5. 木質材料への接着剤使用量の比較。横軸番号は表1-8の出典・備考欄に対応。

4. 3. 2 建築物残存率関数の推定結果

建築物寿命に関するハザード関数の推定結果を図1-6に、残存率関数の推定結果を図1-7に示した。従来用いられてきたワイブルモデルを観測値の全期間分のデータを用いてフィッティングすると、実測データの減失率とのあてはまりは全期間にわたって悪い。初期の30年間のみを対象にワイブルモデルでフィッティングすると、初期の30年間程度までは良い当てはまりを示すが、その後減失率は観測値を大きく上回る。本研究で提案したロジスティック曲線をハザード関数に当てはめたモデル（ロジスティックハザードモデルと呼ぶ）では、ハザード関数が頭打ちになる様子をうまく再現できており、全期間にわたって良好な当てはまりを示した。残存率の推定結果においても、ロジスティックハザードモデルは、従来のワイブルモデルに比べ、観測値を良く再現した（図1-7）。

ロジスティックハザードモデルのパラメータは3変数と簡潔であり、様々な耐久消費財の残存率関数の推定への適用が期待される。

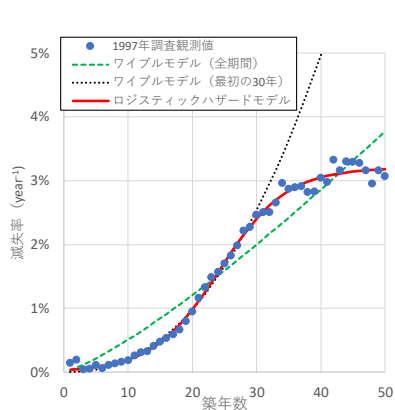


図1-6. 建築物ハザード関数（滅失率）の推定結果

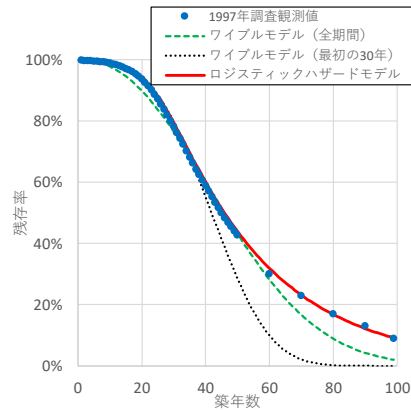


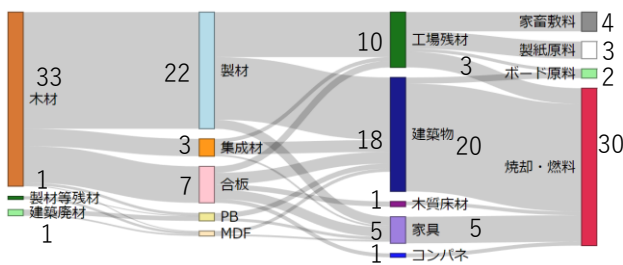
図1-7. 建築物残存率の推定結果

4. 3. 3 木材用接着剤フローおよび化石由来CO₂排出量の推定結果

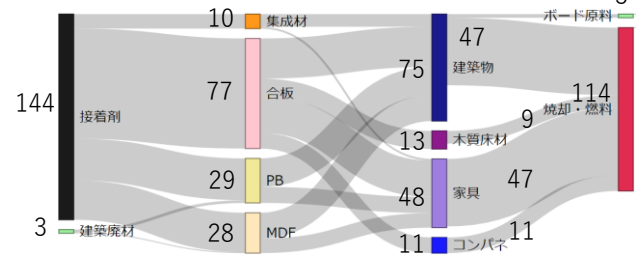
2020年および2050年の木材フローを図1-8に示した。製材の投入先は、建築物が最も大きく、合板の投入先は、建築物と家具とが同程度である。建築物から発生する建築残材・解体材の一部はボード原料としてリサイクルされるが、焼却・燃料利用量に比べると少ない。これは、ボード原料の利用先であるパーティクルボードやMDFの生産量が、製材や合板などに比べて小さいことによる。

2020年および2050年の木質材料中の化石由来炭素フローを図1-9に示した。集成材と合板を比較すると、木材フローでは、集成材は合板の1/2程度の量を占めていたが、化石由来炭素フローでは集成材は合板の1/8~1/7程度にとどまった。これは集成材の接着剤使用量の少なさを反映したものである。建築物と家具を比較すると、木材フローでは建築物は家具の4~5倍であったが、化石由来炭素フローでは、1~1.5倍にとどまった。これは、建築物への製材や集成材の投入割合が高いことを反映している。

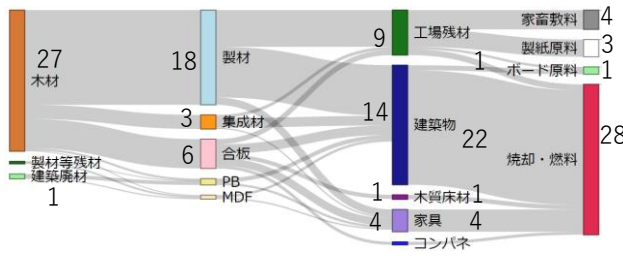
(a) 2020年木材フロー（百万m³/年）



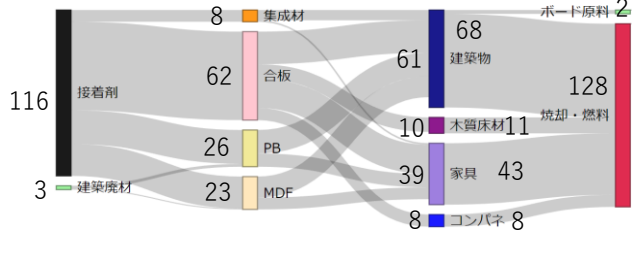
(a) 2020年化石由来炭素フロー(千ton-C/年)



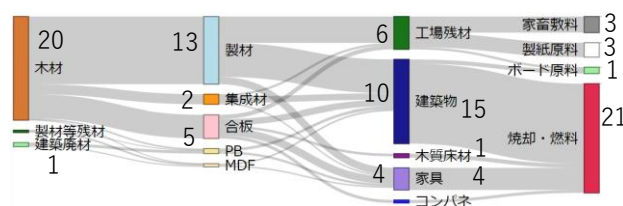
(b) 2050年木材フロー-BaUケース（百万m³/年）



(b) 2050年化石由来炭素フロー-BaUケース(千ton-C/年)



(c) 2050年木材フロー対策ケース（百万m³/年）



(c) 2050年化石由来炭素フロー対策ケース(千ton-C/年)

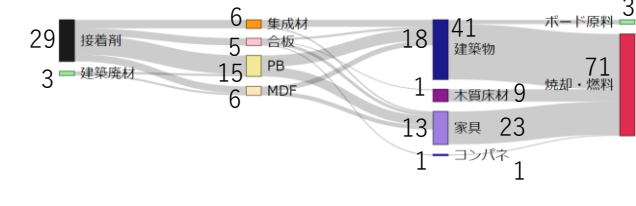


図1-8. 木材フロー推定結果

図1-9. 木質材料中の化石由来炭素フロー推定結果

図1-10に、1970年（投入量は1950年）から2050年までの木材および木材用接着剤のフローおよびストックの推移を示した。木材投入量は、1950年から1970年にかけて急増し、2010年にかけて約半減、その後は緩やかに減少した（図1-10(a)）。接着剤投入量は1990年代後半まで増加した後に減少しており（図1-10(b)）、製材を除いた合板等の木材投入量と類似した推移をたどった。建築物や家具などのストックは、1970年から直線的に増加し、2007年ごろから増加が鈍化するものの、2038年まで増加を続け、その後減少に転じた（図1-10(c)）。用途別では建築物中の炭素ストックが最も大きく、2010年ごろから家具ストックは横ばいとなるが、建築物ストックはその後も増加を続けた。接着剤別ではユリア樹脂系接着剤が最も大きいと2010年ごろから減少に転じ、フェノール樹脂系接着剤が増加する（図1-10(d)）。

木質材料の焼却による接着剤由来CO₂排出量は1990年の27万t-CO₂/年から、2020年41万t-CO₂/年、2050年46万t-CO₂/年と増加すると予測された（図1-10(e)）。用途別では、建築物と家具からの排出が同程度となった（図1-10(e)）。接着剤別では、ユリア/メラミン樹脂系接着剤の寄与が大きかった（図1-10(f)）。

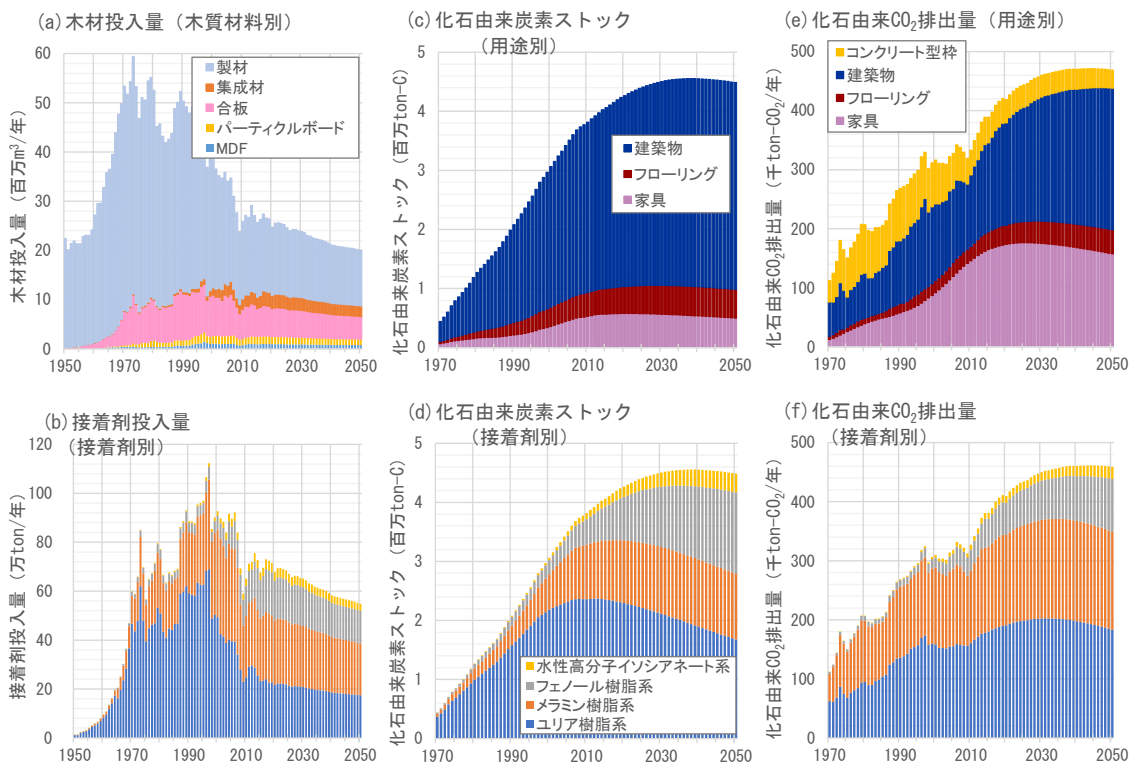


図1-10. 木材および木材用接着剤のフロー・ストック推定結果。(b)(d)(f)の接着剤種類の凡例は共通。

表1-8. 2020年末から2050年末にかけての木材用接着剤中化石由来炭素のマスパランス（CO₂換算）

投入側	千t-CO _{2eq}	産出側	千t-CO _{2eq}	産出側（再掲）	千t-CO _{2eq}
(1)2020年末ストック =(3)+(4)+(5)	15,648	(3)焼却・熱利用	7,472	(9)焼却・熱利用 =(3)+(6)	13,538
		(4)原料リサイクル	232	(10)原料リサイクル =(4)+(7)	290
		(5)2050年末ストック	7,943		
(2)2021年～2050年新規追加 =(6)+(7)+(8) (うち原料リサイクル)	14,639 (290)	(6)焼却・熱利用	6,066	(11)2050年末ストック =(5)+(8)	16,458
		(7)原料リサイクル	58		
		(8)2050年末ストック	8,515		

2020年末から2050年末までの木材用接着剤中炭素のマスパランスを表1-8に示した。2020年末時点の木材製品ストックに含まれる化石由来炭素はCO₂換算15,600千t-CO_{2eq}であり、2021年から2050年までの30年間に新規に投入される接着剤中の化石由来炭素量14,600千t-CO_{2eq}と同程度と予想された。それぞれの約5割、6割が2050年末に木材製品中にストックとしてとどまり、原料リサイクルに向かう290千t-CO₂を除いた残り13,500千t-CO₂が焼却・熱利用によって大気に排出されると試算された。

4. 3. 4 対策シナリオによるCO₂排出量削減効果の評価

1) 天然系接着剤導入、2) 微量塗布技術導入、3) 建築物長寿命化、4) 原料リサイクル強化の4対策を個別におよび組み合わせ実施した際の木材用接着剤由来CO₂排出量の削減効果を表1-9に示した。2050年時点のCO₂排出量削減効果は、微量塗布技術導入が10万t-CO₂/年削減と最も大きく、建築物長寿命化と天然系接着剤導入が約8万t-CO₂/年削減で続いた。原料リサイクルによる削減効果は2千t-CO₂/年と他の対策に比べて小さかった。2050年時点の化石炭素蓄積量への影響を比べると、天然系接着剤や微量塗布では大幅に削減しているのに対し、建築物長寿命化ではその1割程度の減少であり、原料リサイクルでは蓄積量は増加した。天然系接着剤や微量塗布技術は、2020年時点の既存接着剤ストックの排出を遅らせる効果はなく、新規に追加される合成接着剤を減らしていくことで、化石由来炭素のストック量が顕著に減少する。これに対し建築物長寿命化では、2020年時点の既存接着剤ストックの排出を遅らせつつ、新規着工面積を削減することで、新規に追加される合成接着剤を減らす。建築物ストックへの化石由来炭素の流入と流出を同時に減らすため、ストックの変化量はBaUケースに比べて2%以下と小さい。原料リサイクルは、新規製造されるパーティクルボードやMDFの中に使用済みの接着剤由来炭素を蓄積する効果を持ち、接着剤化石炭素ストックを増加させるが、新規の合成接着剤を減らす効果はない。

4対策を組み合わせ実施した場合の木材・接着剤のフロー変化を図1-8(c)、図1-9(c)に、削減量内訳の推移を図1-11に示した。全対策を実施することにより、2050年のCO₂排出量は25万t-CO₂/年となり、BaUケースから約45%減少すると推定された(図1-11)。また、新規接着剤に含まれる化石由来炭素の投入量は、BaUケースの116千t-C/年から、29千t-C/年へと大幅に減少すると推定された(図1-9(c))。

表1-9. 木材用接着剤由来CO₂削減対策の個別および組合せ導入による2050年における対策効果

対策内容	合成接着剤消費量 千t-CO _{2eq} /年	化石炭素蓄積量 千t-CO _{2eq}	CO ₂ 排出量 千t-CO ₂ /年
BaUケース	435	16,460	459
天然系接着剤	▲171	▲1,530	▲79
微量塗布	▲205	▲2,310	▲104
建築長寿命化	▲86	▲230	▲81
原料リサイクル	±0	+82	▲2
全対策実施	▲318	▲2,710	▲210

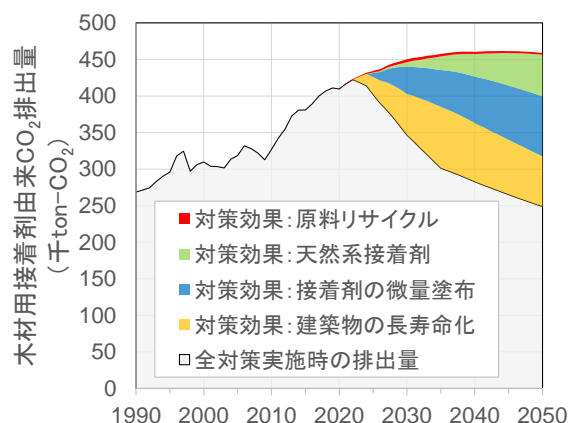


図1-11. 木材用接着剤由来CO₂排出削減効果内訳

4. 3. 5 木材用接着剤由来CO₂排出量を削減するための政策提言

4対策のうち、微量塗布技術、天然系接着剤、建築物長寿命化は、2050年までのCO₂削減効果が同程度に大きいことを明らかにした。本研究成果を踏まえ、これら3対策の推進策を以下の通り提言する。

微量塗布技術においては、現状の合板への塗布量から半減しても性能的には問題ないことをサブテーマ3で明らかにしており、早期の社会実装を進めることが望まれる。これを推進するための、装置開発への支援や、設備導入への支援を行うことが期待される。

天然系接着剤の導入について、パーティクルボード向けのJIS規格をほぼ満たすスクロース系接着剤の開発に成功しており、合板を対象とした微量塗布技術と補完的な関係にあるため、パーティクルボードやMDF向けの開発に注力することが効率的であると考えられる。追加的な技術開発の支援に加え、需要拡大のために、グリーン調達基準に含めることも有効と考えられる。なお、天然系接着剤としては、木材のリグニン成分をフェノール樹脂系接着剤に組み入れてバイオマス割合を高めたものも開発されている。この技術の評価にあたっては、日本ではリグニンが黒液として回収され、ほぼ全量が既にエネルギー利用されていることに留意が必要である。

建築物の長寿命化は、耐震基準の強化や長期優良住宅認定制度などによって、これまでも進められている。本研究では、建築物の長寿命化は、追加的なメンテナンスなしに実現するとして簡易的に評価し

たが、実際には、メンテナンス・リフォーム需要が増加することとなる。長寿命化によるCO₂排出削減効果を発揮させるには、CO₂排出の少ない建築物のメンテナンス・リフォーム技術の開発が有効である。

5. 研究目標の達成状況

サブテーマ1の研究目標の達成状況は以下のとおりである。

目標1-1	サブテーマ1では、木材用接着剤の動的フロー推定モデルとして、1970年から2050年までの日本国内での木材（製材、集成材、合板、パーティクルボード、繊維板）および接着剤（ユリア樹脂系、メラミン樹脂系、フェノール樹脂系（レゾルシノール樹脂系を含む）、水性高分子イソシアネート系）のフロー・ストックを、用途別（コンクリート型枠用合板、建築物、フローリング材、家具）に推定する。
達成状況	上記記載の項目を網羅したモデルを開発し、木材用接着剤のフロー・ストックを推定した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	図1-8（木材フロー推定結果） 図1-9（木質材料中の化石由来炭素フロー推定結果） 図1-10（木材および木材用接着剤のフロー・ストック推定結果）
目標1-2	木質材料区別に化石由来炭素比率を算出し、IPCCインベントリデータベースへの収載を目指す。
達成状況	合板工場の原燃料使用量調査（4.1）や既往文献の調査、目標1-3で開発した接着剤含有量分析手法（4.2）により、木質材料区別に化石由来炭素比率を算出した。2022年6月29日・30日に開催されるIPCC 排出係数データベース（EFDB）専門家会合に、紙ごみの化石由来炭素含有率に関する情報提供を行うため、研究代表者がオンライン出席予定であり、木質材料の化石由来炭素含有率についても調査していることを頭出しし、収載に向けた働きかけを行う。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-7（木質材料種類別の接着剤使用量および化石由来炭素含有量） 図1-5（木質材料への接着剤使用量の比較）
目標1-3	接着剤含有量分析方法の開発として、接着剤既知濃度試料・市販木質材料・木くず試料各30検体計90検体の元素組成分析を行い、元素組成に基づく接着剤量推定式を得る。開発した手法を用い、統計調査では推定が困難な、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定する。
達成状況	接着剤既知濃度試料34検体、市販木質材料70検体、木くず試料23検体、計127検体の元素分析を実施し、元素組成（N, Na, Cl）に基づく接着剤量推定式を得た。開発した手法を用いて、輸入木質材料中の接着剤含有量を推定した。 フェノール樹脂系接着剤については、木材の主要構成要素の1つであるリグニン成分と類似しているため、化学分析での識別は当初困難と思われたが、製造時に使われるNaOHに由来するNaとの高い相関を見出すことができた。また、接着剤が使われていないはずの単板試料から高いNa濃度を検出するという予想外の結果が得られたが、海面貯木に由来する海水塩分の存在に気づき、これを塩素濃度で補正することで、推定式を改良することができた。 分析検体数について、木くず試料のみ目標の30検体に至らなかったが、全体としては、合計90検体の目標を大幅に上回る127検体を分析した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-1（元素分析対象とした試料一覧） 図1-2, 図1-3（窒素濃度、ナトリウム濃度と化石由来炭素含有率との関係） 式(4)（N, Na, Cl 濃度からの木材用接着剤由来化石炭素濃度推定式） 図1-4（市販木質材料および木くずチップ等の元素分析結果、化石由来炭素推定値）

目標1-4	CO ₂ 排出削減シナリオの分析として、住宅長寿命化や原料リサイクル強化、サブテーマ2および3で取り組んでいる天然系接着剤や微量塗布技術の導入によるCO ₂ 削減量を算定する。シナリオ検討に際し、木質材料メーカー、関連分野の専門家、行政担当者の参画を得て、対策の導入に向けた各種施策を提言する。
達成状況	上記4対策の導入によるCO ₂ 削減量を算定し、2050年に現状推移ケースと比べ4割削減可能との結果を得た。シナリオ検討に際して、コロナ禍の影響もあり、当初予定していたワークショップの開催には至らなかったが、AD会合等でアドバイザーや行政担当者の意見の反映をした。また、対策の導入に向けた施策を提言した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	表1-4（対策シナリオの設定） 表1-9（CO ₂ 削減対策の個別および組合せ導入による2050年における対策効果）、 図1-11（木材用接着剤由来CO ₂ 排出削減効果内訳） II-1 4.3.5（木材用接着剤由来CO ₂ 排出量を削減するための政策提言）
追加された目標	木質材料に含まれる合成接着剤の焼却処理に由来するCO ₂ 排出量だけでなく、木質材料の製造工程や接着剤の製造過程なども含めた、ライフサイクル全体からのCO ₂ 排出量を明らかにする。
達成状況	当初研究目標には記載していなかったが、AD会合等での意見を踏まえて実施した。合板・LVL製造工程の原燃料調査を、環境省および林野庁からの協力を得て、日本合板工業組合連合会および全国LVL協会と共同で実施し、合板・LVL製造・廃棄のライフサイクル全体からのCO ₂ 排出量を算定した。国内既往LCAに比べ、代表性の高いデータを収集できた。また、これを機会に全国LVL協会との協力関係を深め、難燃LVLのLCA評価の共同研究を実施した。
自己評価	目標を上回る成果をあげた
エビデンス	図1-1（合板・LVL 1 m ³ 製造および焼却処理時のCO ₂ 排出量算定結果） 表1-5（合板・LVL 1 m ³ 製造あたりの原材料・燃料等投入量、丸太輸送距離）

以上より、サブテーマ1全体では、目標どおりの成果をあげた。

6. 引用文献

- 1) (一社)サステナブル経営推進機構 (2019) PCR (木材・木質材料) PA-120000-BC-01
- 2) 林野庁木材利用課 (2016) 平成27年度木材利用推進・省エネ省CO₂実証業務報告書
- 3) 産業技術総合研究所 安全科学研究部門 IDEAラボ (2019) LCIデータベース IDEA version 2.3
- 4) FAOSTAT Forestry Production and Trade. <https://www.fao.org/faostat/>
- 5) 日本合板工業組合連合会 (2008) 合板百年史
- 6) Kayo C et al. (2018) *Journal of Industrial Ecology*. 23(3), 635-648
- 7) 日本接着剤工業会 (2018) 接着剤実態調査
- 8) 日本繊維板工業会 (2018) 木質ボード用原料使用割合
- 9) 古俣寛, 加藤幸浩, 高山光子, 石川佳生 (2010) *林産試験場報* 539, 1-5
- 10) Nakano K, Ando K, Takigawa M, Hattori N. (2018) *Int. J. LCA*. 23(4), 957-969
- 11) CORRIM (2018-2020) Library of LCA's on Wood Products.
- 12) Athena Sustainable Materials Institute (2018) A Cradle-to-Gate Life Cycle Assessment of Canadian Plywood.
- 13) Nomura K. and Momose F. (2008) Measurement of Depreciation Rates based on Disposal Asset Data in Japan. OECD Working Party on National Accounts, 14-16 October.
- 14) 小松幸夫 (2008) *日本建築学会計画系論文集* 73(632), 2197-2205.
- 15) 高村秀紀, 吉岡耕 (2017) *エネルギー・資源学会論文誌* 38(6), 1-8
- 16) 澤田幸伸, 安藤恵介, 服部順昭, 田村靖夫 (2006) *木材学会誌* 52(4), 235-240

II-2 天然系木材用接着剤の開発とその評価

京都大学

生存圏研究所教授

梅村 研二

〔要旨〕

木質材料はカーボンニュートラルである木材を原料としているために環境に優しい材料であるが、その製造には接着剤が必要不可欠となっている。昨今の木材用接着剤は、化石資源由来の原料を用いた合成樹脂接着剤が多用されているが、脱炭素の観点から今後はできる限り使用を控える必要がある。そこで、本研究ではバイオマスを原料に用いた天然系木材用接着剤の開発とその評価を目的として、天然系接着剤の研究動向の調査を行うとともに、スクロースおよびp-トルエンスルホン酸（PTSA）を用いた接着剤の開発とパーティクルボードへの適応性に関する研究を行った。研究動向の調査では、学術データベースWeb of Scienceを用いて1990～2020年までの研究論文数の推移をキーワード検索によって調べた。さらに2015～2020年までの論文については、使用されている原材料や開発手法、課題についてまとめた。スクロースおよびPTSAを用いた接着剤の開発については、硬化挙動や硬化メカニズムを熱水不溶化率や熱分析、FT-IRにより明らかにした。この結果をもとに、パーティクルボードを製造し、製造条件とボード物性との関連を調べ、最適条件や問題点を明らかにした。さらに、ボードの高性能化を目指し、廃糖蜜の利用やリン酸二水素アンモニウム（ADP）の添加効果を調べたところ、廃糖蜜の利用によるボード性能の向上は認められなかったが、ADPをPTSAと併用するとボード物性の向上と熱圧時間の短縮を図ることができた。

1. 研究開発目的

木質材料は、カーボンニュートラルな木材を主原料としているために環境に優しい材料として知られ、持続可能な社会の構築に大きく貢献すると考えられている。一般に、木質材料はエレメントとなる木材原料に接着剤を塗布して接着成形される。そのため、接着剤は木質材料にとって必要不可欠な存在である。昨今の木材用接着剤は、フェノール樹脂やユリア樹脂といったホルムアルデヒド系樹脂をはじめとした様々な合成樹脂接着剤が使用されている。この合成樹脂接着剤は、化石資源由来の化合物を原料として製造され、性能、作業性、経済性に優れ、戦後の木質材料の発展に大きく貢献してきた。しかし、接着剤中に含まれるホルムアルデヒドの毒性問題など、合成樹脂接着剤の人体や環境に及ぼす影響が社会問題になるとともに、最近では世界的な脱炭素化に向けた取り組みから、合成樹脂接着剤の使用の見直しが望まれている。これらを背景に、バイオマスを原料に用いた天然系接着剤が注目され、研究が活発化している。これまでに、糖類やタンパク、リグニン、タンニン、バイオオイル等を原料に用いた研究開発が進んでおり、一部実用化も進んでいる。しかし、既存の天然系接着剤は合成系接着剤に比べると耐水性などの接着性能が低く、調製方法や作業性についても問題となることが多い。また、実用化されているものは、ホルムアルデヒドなどの化石資源由来の化合物を多く含んでいる場合がほとんどである。研究は中国やアメリカといった海外で活発に行われており、国内での研究開発は極めて遅れている。そこで、高い接着性能を有するとともに、調製方法や作業性に優れ、なおかつ化石資源への依存を抑えた新たな天然系接着剤を開発することを最終目的とし、天然系接着剤の研究動向の調査を行うとともに、スクロースとp-トルエンスルホン酸を用いた天然系接着剤の開発を行った。

2. 研究目標

サブテーマ2では、天然系接着剤の研究動向調査を行うとともに、新たな天然系接着剤の開発を行うことを全体の目標としている。

研究動向調査では、文献データベースによって研究論文を抽出し、特に過去5年間の詳細な研究動向を調べ、問題点や課題を明らかにする。

新たな天然系接着剤の開発では、出来る限り化石資源への依存を抑え、かつ接着剤の調製が容易で作業性に優れ、高い接着性能を示す接着剤の開発に取り組む。具体的には、接着剤に占める天然物の割合を70%以上とし、接着剤の調製は混合水溶液もしくは若干の熱処理のみとする。また作業性では、噴霧塗布が可能な溶液粘度とし、接着性能は合板の日本農林規格の1類やJIS A 5908の18タイプに匹敵する性能を目指す。

3. 研究開発内容

3. 1 研究動向調査

研究動向の調査については、クラリベイト・アナリティクスにより提供されている学術データベース Web of Scienceを用い、学術論文に絞った検索を行った。学術論文には総説やプロシーディングなども含まれるが、ここでは原著論文のみとした。このデータベースには日本語の論文は含まれていないが、日本での研究状況を踏まえると影響は小さく無視できると考えた。まず、1990～2020年までの天然系木材用接着剤の論文数の推移をキーワード検索によって調べた。具体的には、「natural, wood, adhesive」および「bio, wood, adhesive」をキーワードとした。また、「wood, adhesive」をキーワードとして木材用接着剤全般の論文数の推移についても調べた。次に、「wood, adhesive」のキーワード検索で得られた結果から、2015～2020年の範囲に限定し、タイトルや要旨に基づいて天然系木材用接着剤に関連する論文を手作業で抽出した。

3. 2 接着剤の硬化特性の把握

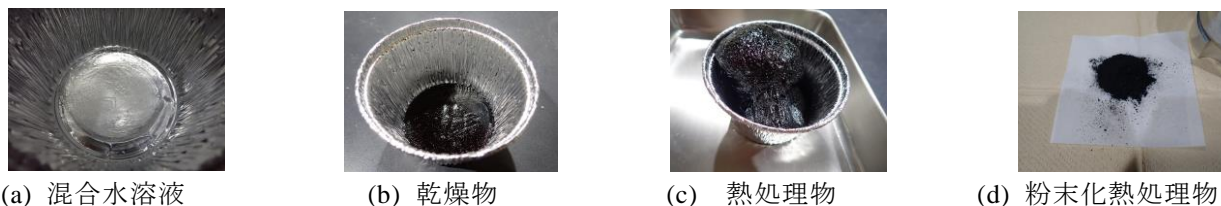
スクロースの硬化に対するp-トルエンスルホン酸 (PTSA) の効果について検討した。我々はこれまで、スクロースにリン酸二水素アンモニウム (ADP) を添加して加熱すると、スクロースが硬化することを見出すとともに¹⁾、この混合水溶液が接着剤として利用できることを報告している²⁻⁴⁾。しかし、十分な接着性を発現させるためには、多量のADPの添加や高い加熱温度が必要であった。そこで、酸触媒として工業的に広く用いられているp-トルエンスルホン酸 (PTSA) に着目した。スクロースは強酸下で加熱するとフラン化合物を生成することが知られており、PTSAがスクロースを容易に硬化することが予想される。ここでは、スクロースとPTSAの混合物の硬化挙動を調べ、基礎的知見を得ることとした。

3. 2. 1 試料調製

試料調製条件および水溶液の pH を表2-1 に示す。スクロースとPTSA (ともに試薬特級) を 100 : 0 ~ 85 : 15の混合重量比で蒸留水に溶かし、50 wt%濃度水溶液を調製した。各水溶液の pH は pH メーターを用いて測定した。各水溶液はアルミカップに 20 gずつ分け (写真2-1a)、60℃のオーブンで 24 時間予備乾燥を行い (写真2-1b)、続いて 120, 140, 160, 180 °Cで 10 分間熱処理を施した (写真2-1c)。得られた熱処理物は60℃で 15 時間減圧乾燥を行った後、粉碎機を用いて60 メッシュパスに粉碎した (写真2-1d)。試料は、1 条件につき 3 個調製した。

表2-1. 試料調製条件および水溶液の pH

スクロース : PTSA	pH (50 wt%)	熱処理温度 (°C)	熱処理時間 (分)
100 : 0	5.79		
98 : 2	0.84		
95 : 5	0.54	120, 140, 160, 180, 200	0, 2, 5, 10, 20
90 : 10	0.29		
85 : 15	0.18		



(a) 混合水溶液

(b) 乾燥物

(c) 熱処理物

(d) 粉末化熱処理物

写真2-1.試料調製

3. 2. 2 不溶化率測定

スクロースとPTSAの混合比および熱処理温度がスクロースの硬化特性に及ぼす影響を評価するため、熱水不溶化率測定を行った。熱処理物の粉末 4 gを沸騰水 500 mL中に4 時間浸漬した。浸漬後、熱水不溶物は吸引ろ過により回収した。ろ紙はあらかじめ 105 °Cで 6 時間乾燥させて全乾とした。回収後、ろ紙ごと 60 °Cで 15 時間減圧乾燥を行った。減圧乾燥後、重量を測定し、ろ紙の重量を減算することで熱水不溶物の重量を算出した。処理前後の粉末の重量変化から不溶化率を求めた。

3. 2. 3 熱分析

スクロースとPTSA混合物の熱に対する反応を検討するため、予備乾燥物を一部採取し、熱重量測定 (TGA) および示差走査熱量測定 (DSC) を行い、昇温における試料の重量および熱流束の変化を観察した。測定は、窒素雰囲気下において、昇温速度 10°C/分、室温から 400°Cまで測定を行った。

3. 2. 4 FT-IR測定

スクロースとPTSA混合物の熱に対する化学的变化を観察するため、FT-IR 測定を行った。試料は、熱処理物および熱水不溶物から一部採取し、60°Cで 15 時間減圧乾燥したものを用いた。各試料は、KBr粉末と混合して錠剤とし、FT-IRに供した。測定時の分解能は4 cm⁻¹、積算回数は32回、測定波数は 400 ~ 4000 cm⁻¹とした。

3. 3 パーティクルボードの基礎物性評価

3. 3. 1 原料

パーティクルボード用リサイクルチップを用いた。チップは篩を用いて0.9~5.9 mmのものを使用し、予め80 °Cのオープン中に15時間静置し、含水率を約2 %とした。また、スギチップについても同様に準備した。接着剤はスクロースとPTSAを蒸留水に溶かし、70 wt%混合水溶液を用いた。

3. 3. 2 パーティクルボードの製造

チップをブレンダーに投入して、接着剤をスプレーガンで固形分重量比が10~30 wt%となるように噴霧塗布した。その後、80°Cの送風乾燥機により15時間乾燥して含水率を約2 %とした(写真2-2a)。乾燥後、30 × 30 cmのフォーミングボックスを用いてマット成形した。成形後、マットをホットプレス(写真2-2b)に挿入し、熱圧プレスを行った。9 mmのディスタンスバーによって厚みを制御し、120 ~ 200°Cで2~20分間熱圧することで、寸法300×300× 9 mm、目標密度0.8g/cm³のパーティクルボードを製造した(写真2-2c)。表2-2にパーティクルボードの製造条件を示す。得られたパーティクルボードは20°C、湿度約53±2 %の恒温恒湿室で1週間養生した。



(a) 接着剤塗布後チップ



(b) ホットプレス



(c) パーティクルボード

写真2-2. ボード製造写真

表2-2. パーティクルボードの製造条件

スクロース： PTSA混合比	接着剤添加率 (wt%)	熱圧温度(°C)	熱圧時間(min)	
95:5	20	120	10	
		140		
		160		
		180		
		200		
95:5	20	180	2	
			5	
			10	
			20	
100:0 98:2 95:5 90:10 85:15	20	180	10	
95:5				10
				15
				20
				25
	30			

3. 3. 3 物性評価方法

JIS A 5908に準拠して曲げ強さ試験、はく離強さ試験、吸水厚さ膨張率試験を行った。曲げ強さ試験は、精密万能試験機を用いて3点曲げ試験を行った。試験片寸法は200×30×9 mm、スパンは150mm、変位速度は10mm/分とし、曲げ強さ (MOR) と曲げヤング係数 (MOE) を算出した。得られたMORおよびMOEは、密度に対する回帰直線を求め、0.8 g/cm³での密度補正を行った。はく離強さ試験は、試験片を専用アルミブロックに接着させ、精密万能試験機を用いて厚さ方向に引張荷重を加えた。試験片寸法は50×50×9 mm、変位速度は2 mm/分とし、はく離破壊時の最大荷重 (Pmax) を測定した。得られた最大荷重と実測断面積 (A) からはく離強さ (IB) を算出した。IBは、MORおよびMOEと同様に試験片の密度を0.8 g/cm³に換算する密度補正を行った。各試験片は各試験につき5個とした。吸水厚さ膨張率試験は、試験片を20°Cの水中に24時間浸漬した後、浸せき前後の厚み変化から吸水厚さ膨張率 (TS) を算出した。試験片寸法は50 × 50 × 9 mmとした。また、浸漬後の溶液のpHを求めた。

3. 4 パーティクルボードの高性能化の試み

高性能化の試みとして、廃糖蜜およびリン酸二水素アンモニウム (ADP) の利用を検討した。廃糖蜜は、サトウキビから砂糖を得る際に生成する副産物で既に熱処理されているために茶褐色で粘性の高い物質である。本研究では、製糖会社から原料糖蜜と精製糖蜜の2種類を得た。原料糖蜜はサトウキビから原糖を生産する際に得られる糖蜜であり、精製糖蜜は三温糖を製造する際に得られる糖蜜である。各糖蜜の成分分析結果を表2-3に示す。この2種類の糖蜜を使用し、前述と同様の手順で表2-4に示す条件でパーティクルボードを製造した。ADPを利用した検討では、表2-5に示すようにPTSAとの比率を変えるとともに、熱圧温度や熱圧時間を変えてボードを製造した。物性評価方法は、前述と同様とした。この他、スクロース：PTSA:ADP混合比を90：5：5とし、接着剤添加量20wt%、熱圧温度200°C、熱圧時間10分の製造条件にてスギチップを用いてパーティクルボードを製造するとともに、合成樹脂 (pMDI) を用いた場合との性能比較を行った。pMDIの場合、チップ含水率は6.4%とし、添加率8wt%、熱圧条件は160°C、10分とした。

表2-3. 原料糖蜜と精製糖蜜の成分分析結果

糖蜜	固形分速算	カテキン換算	糖類HPLC: 製品当たり				陽イオン: イオンクロ製品重量当たり					陰イオン: イオンクロ製品重量当たり				
	固形分 (%)	ポリフェノール含量 (ppm)	フルクトース (w/w%)	グルコース (w/w%)	スクロース (w/w%)	糖類 (w/w%)	Na(ppm)	K(ppm)	Mg(ppm)	Ca(ppm)	NH4(ppm)	陽イオン (ppm)	Cl	PO4	SO4	陰イオン (ppm)
精製糖蜜	78.9	160.52	8.60	7.36	35.79	51.7	1471	31879	2339	5407	48	41145	22465	—	7866	30331
原料糖蜜	77.2	167.57	7.16	4.17	35.95	47.30	719	46945	3443	7767	277	59151	25339	—	29740	55079

表2-4. 糖蜜を使用したパーティクルボードの製造条件

糖蜜 (wt%)	PTSA (wt%)	接着剤添加量(wt%)	熱圧温度(°C)	熱圧時間(min)
原料糖蜜	90	10	200	10
精製糖蜜	90	10		

表2-5. ADP添加パーティクルボード

スクロース	PTSA:ADP	接着剤添加率 (wt%)	熱圧温度(°C)	熱圧時間(min)
90	10 : 0	20	180	10
	7.5 : 2.5			
	5 : 5			
	2.5 : 7.5			
	0 : 10			
90	5 : 5	20	160	7.5
			180	
			200	
			160	10
			180	
200				

4. 結果及び考察

4. 1 研究動向調査

1990～2020年の天然系木材用接着剤に関する論文数推移を「natural, wood, adhesive」および「bio, wood, adhesive」によるキーワード検索にて調査するとともに、「wood, adhesive」をキーワードとした木材用接着剤全般の論文数推移についても調査した。その結果を図2-1に示す。木材用接着剤全般の論文数は、2000年頃から急増の傾向が見られ、2020年は390報であった。一方、天然系接着剤に関する論文は、2005年以降に徐々に増加していることが分かった。2020年の論文数は76報であり、木材用接着剤全般の論文数に占める天然系接着剤に関する論文は約19%であった。しかしながら、昨今の天然系接着剤の関心の高さを考えると、得られた値は低いように思われたので、2020年における木材用接着剤全般の論文の中から表題や要旨から天然系接着剤に関する論文を手作業で抽出したところ122報が該当し、全体の約31%を占めていることが判明した。これは、簡易なキーワード検索では、正確な論文の抽出が難しいことを示し、「糖類」や「タンパク」といったより詳細なキーワードによる調査が必要であることが分かった。次に、最近の研究動向を明らかにするために、2015～2020年の天然系木材用接着剤について表題や要旨から手作業で抽出を行ったところ、糖類系接着剤（82報）、タンパク系接着剤（166報）、リグニン系接着剤（76報）、タンニン系接着剤（58報）、バイオオイル系接着剤（53報）、その他（46報）が得られた。そこで、各接着剤について研究動向を調査した。

糖類系接着剤は、多糖類を原料とした研究が多く行われている。使用されている原料を表2-6にまとめた。糖類は一般に親水性のために耐水性の付与を行う研究が多い。これまで、架橋、酸化、グラフト重合、エステル化といった化学修飾が行われ、最近ではポリビニルアルコールや酢酸ビニルを用いたグラフト重合による性能向上化が試みられている。また、これら化学修飾を組み合わせることによって更なる性能向上を目指した研究も行われている。グルコースやスクロースなどの低分子量の糖を用いた研究では、化学修飾を行わずに直接接着剤として利用する方法が提案されている。

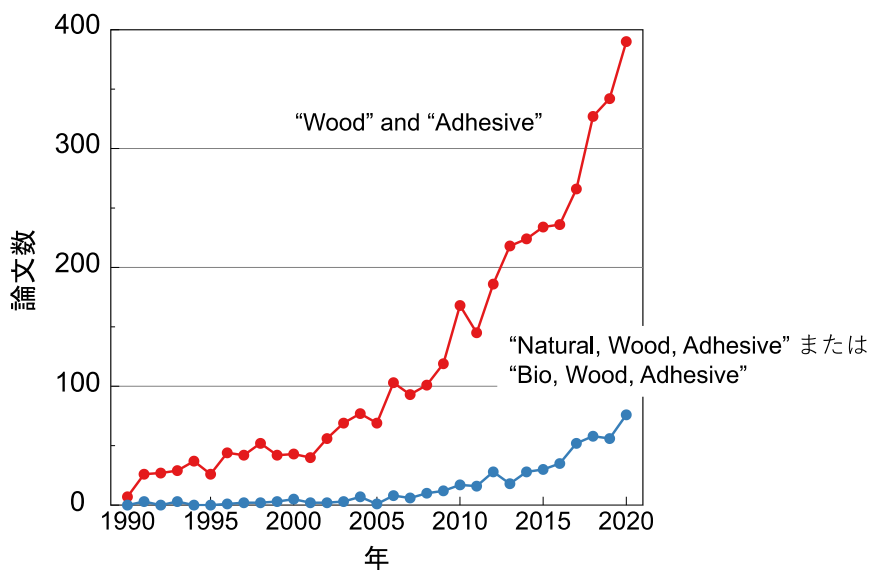


図2-1. キーワード検索による論文数推移

表2-6. 糖類系接着剤に用いられている原料

Raw materials	Starch (oxidized, hydrolyzed, high-amylose contained)
	Dextrin
	Chitosan
	Bacterial polysaccharides (xanthan gum, levan microbial, exopolysaccharide)
	Soybean polysaccharide
	Seaweed polysaccharide
	Cellulose (microcrystalline, dialdehyde, cellulose acetate, nanofibers)
	Hemicellulose (xylan)
Mono- and di- saccharides (glucose, sucrose)	

タンパク系接着剤は、天然系接着剤の中で最も論文数が多く、活発な研究が行われていることが分かった。タンパク系接着剤に使用されている原料を表2-7にまとめた。最近の傾向として、大豆タンパクを原料に用いる研究が非常に多いことが挙げられる。接着剤化には、架橋剤の利用、樹脂の添加、熱や化学処理、酵素処理、無機物の添加などが行われている。同様な手法を用い、綿実タンパク質やゼラチン、さらには菌類由来のタンパク質を原料とした接着剤についても研究が行われている。研究の多くは耐水性の改善を目指し、内装用接着剤を目指した研究であるが、構造用にも使用できる接着剤も報告されている。この場合、大豆たんぱくを熱化学処理等によって分子構造を変性させるとともに、反応性の高い架橋剤の添加が必要となる。

表2-7. タンパク系接着剤に用いられている原料

Raw materials	Plant	Soy protein (soybean meal, defatted soy flour (DSF), soy protein isolate (SPI)) Cotton seed protein (cottonseed meal (CSM), cottonseed flour (CF), water-washed cottonseed meal (WCSM), cottonseed protein isolate (CSPI)) Gluten Camelina protein Canola meal Walnut meal Peanut meal Sesame meal Lupine flour Distillers dried grains with solubles Leaf protein (<i>Broussonetia papyrifera</i> , alfalfa)
	Animal	Gelatin and Collagen Casein <i>Serishoom</i> Blood protein Animal hairs (chicken feathers, wool) Mussels Swim bladders Slaughterhouse by-products
	Fungi	Yeasts (<i>Rhodotorula rubra</i> , <i>Pichia pastoris</i> and <i>Saccharomyces cerevisiae</i> , commercial yeast hydrolysate)

リグニン系接着剤では、リグニンをフェノール樹脂接着剤などの原料代替とする研究が多く、リグニンのヒドロキシメチル化による反応性の向上を目指した研究などが行われている。しかし、フェノール樹脂接着剤では毒性の強いホルムアルデヒドを使用することが課題となっている。そのため、その代替にグリオキサールを用いる方法が検討されている。また、アルデヒド化合物を使用しない接着剤化についても研究が進められている。タンニン系接着剤についてもリグニン系接着剤と同様にタンニンをフェノール樹脂接着剤などの原料代替とする研究が多い。また、タンニンはリグニンに比べると反応性が高いため、パラホルムアルデヒドやヘキサメチレンテトラミンとの反応による接着剤化についても研究が進められている。表2-8、2-9にリグニン系およびタンニン系接着剤に使用されている原料をそれぞれまとめた。

表2-8. リグニン系接着剤に用いられている原料

Raw materials	Corn cob Corn stover Poplar wood Wheat straw Pine wood Beech wood Spruce wood Sugar cane bagasse Liquefaction Oak wood Oil palm empty fruit bunch Residue of the bio-ethanol conversion Rice straw Sugar maple Black liquor
---------------	---

表2-9. タンニン系接着剤に用いられている原料

Raw materials	<i>Acacia mearnsii</i> Radiata pine Grape pomace Valonia Barbatimão Mahogany Maritime pine Mimosa Wattle Turkish red pine Chestnut Larch Spent coffee grounds <i>Pinus oocarpa</i> <i>Aningre (Aningeria spp.)</i> Sumac (<i>Rhus tripartitum</i>) root <i>Aucoumea klaineana</i> Pierre (Okoume) Abies alba Mill African mahogany Tunisian pomegranate
---------------	--

表2-10. バイオオイル系接着剤に用いられている原料

バイオオイル系接着剤は、熱化学プロセスによって得られる液化物と、植物に含まれる油脂に分類できる。液化物を用いた接着剤化では、フェノール樹脂との混合が多く、pMDIとの反応も行われている。植物油脂は鎖状分子であるので、ポリウレタン樹脂のポリオール原料としての検討が多く行われている。表2-10にバイオオイル用接着剤に使用されている原料を示す。その他の接着剤としては、天然ゴム、クエン酸、セルロースナノファイバーを利用した研究が報告されている。

今回調査した研究論文について、研究手法を大別すると以下ようになる。

- ① フェノール樹脂やポリウレタン樹脂などの合成樹脂接着剤の原料代替
- ② 天然物質の化学修飾（架橋、酸化、グラフト重合、エステル化、熱処理など）
- ③ 樹脂や添加剤（pMDI、架橋剤、無機物など）の利用
- ④ ①～③の組み合わせ

天然系接着剤の欠点として低い接着性能が課題として知られているが、今回調査した研究論文の多くについても上述の研究手法に基づいた接着性能の向上、特に耐水性の向上を目指した研究であった。また多くの場合、化石資源由来の物質や高価な物質を用いた開発が行われている。よって、既存の天然系接着剤の開発では、化石資源による補間が必要であるばかりでなく、経済的にも問題があるように思われた。これらのことから、開発にあたっては安価な原料で化石資源への依存を減らすとともに、高い接着性を示す接着剤を見出すことが重要であると考えられた。この他、十分な接着試験を行わずに性能を結論付けている論文が散見され、接着性能の信頼性に疑問を抱く研究も見受けられた。

我々の研究グループでは、化学合成が不要で化石資源への依存を抑えた手法として、スクロースとクエン酸の混合水溶液や、スクロースとリン酸二水素アンモニウムの混合水溶液をそのまま接着剤として用いることを提案している。これらを用いて得られた結果については、構造用途に匹敵する性能が得られている。これらを踏まえると、スクロースを主原料とした接着剤の開発は有用な手法の一つであると考えられた。

	Utilization methods	Raw materials
Liquefaction	Introduction into formaldehyde resin adhesives	Scots pine wood Straw Corn stalks Oil palm fronds Larch wood White birch bark White spruce bark <i>Ziziphus mauritiana</i> Endocarps Hydrolysis lignin Waste wood European beech wood
	Introduction into epoxy resin adhesives	Banana pseudo stem Reed <i>Cryptomeria japonica</i> American hardwood
	Introduction into polyurethane adhesives	Beech wood Banana pseudo stem Pine wood Cork closures Oil palm trunk <i>Acacia mangium</i> wood Tropical hard wood species Eucalypt globulus bark and branches
Vegetable oil	Introduction into polyurethane adhesives	Castor oil Linseed oil Soybean oil Crude glycerol
	Substrate for Polyhydroxyalkanoate	Olive oil

4. 2 接着剤の硬化特性の把握

4. 2. 1 不溶化率

図2-2にスクロースとPTSAの混合比ならびに熱処理温度が熱水不溶化率に及ぼす影響を示す。スクロースのみ（100：0）の場合、熱処理温度に関わらず全て熱水に溶解する結果となった。一方、PTSAを添加した場合、熱水不溶化率は熱処理温度が高くなるにつれて高い値を示した。すなわち、スクロースはPTSAの添加によって熱水不溶性の物質に変化することが分かった。PTSAの添加量に着目すると、5 wt% 添加（95：5）の場合、120や140℃では低い値を示したが、160℃以上では高い値を示した。添加量が10（90：10）や15wt%（85：15）の場合は、低温でも不溶化率を示したが、加熱温度が高くなると5wt%と同様な不溶化率を示した。熱処理温度180℃、混合比 95：5の不溶化率は約 80 %であり、既報¹⁾ のリン酸二水素アンモニウムを同混合比で用いた場合よりもやや高い値であった。このことから、PTSA はリン酸二水素アンモニウムよりも少ない添加量でスクロースをより不溶化させることが出来ると推察された。

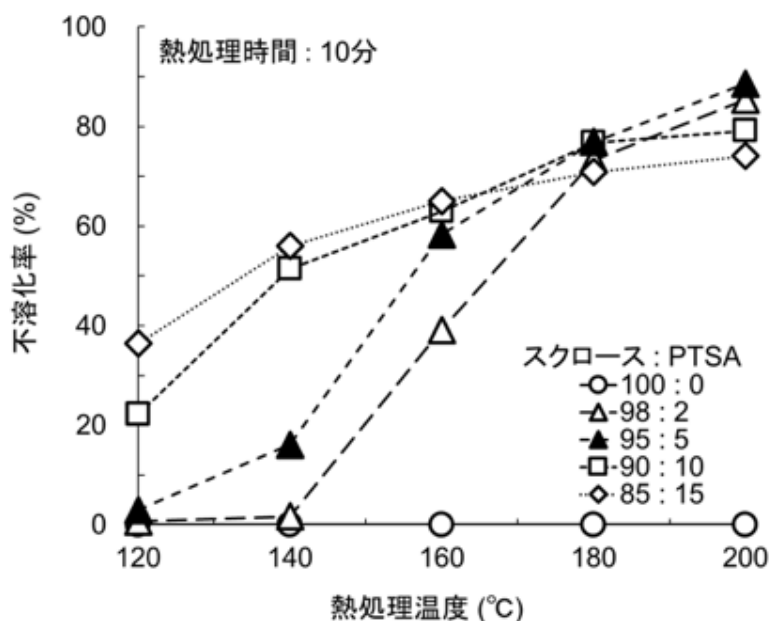


図2-2. 混合比および熱処理温度が不溶化率に及ぼす影響

次に、熱処理温度を180℃一定とし、スクロースとPTSAの混合比および熱処理時間が不溶化率に及ぼす影響について検討した。その結果、2～5分といった比較的短い熱処理時間では、PTSAの添加量が多いほど不溶化率が高くなり、不溶化物の生成を促進する効果があると推察された。一方で、10分以上の熱処理時間では、PTSAの添加量が少なく、スクロースの割合が多いほど多くの不溶化物の生成が多くなる傾向が見られた。

4. 2. 2 熱分析

各混合比での予備加熱物の TG (a), DTG (b), DSC (c) 曲線を図2-3に示す。TGやDTGを見ると、スクロースのみ（100：0）での著しい重量低下は200℃付近から見られた。なお、100℃付近の重量低下は、水分によるものと考えられる。一方、PTSAを添加した場合の重量低下は低温側にシフトし、120℃付近から起こることが観察された。DSCの結果では、スクロースのみの場合、200℃前後に吸熱ピークが確認された。これは、スクロースの融解やカラメル化によるものと考えられる。一方、PTSAを添加した場合には、120～130℃付近で大きな吸熱ピークが見られ、それより高い温度でのピークは観察されなかった。すなわち、PTSAを添加することでスクロースの融解や著しい重量低下を伴う変化が低温で起こることが示唆された。既報のリン酸二水素アンモニウムの場合¹⁾ では、140～154℃付近で同様の変化が観察されている。

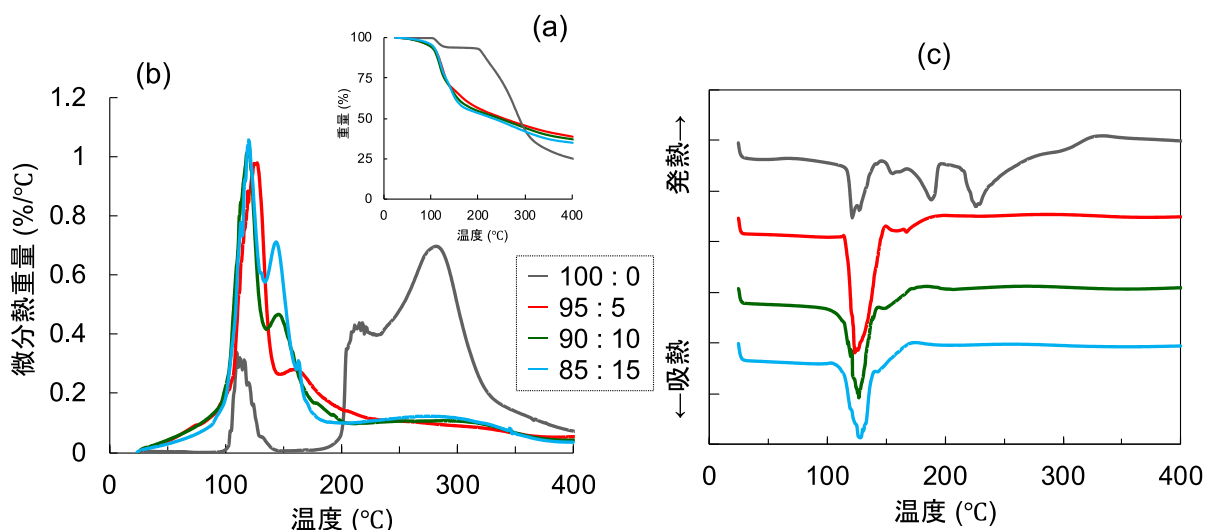


図2-3. 予備加熱物の (a) TG 曲線、(b) DTG 曲線、(c) DSC 曲線

この他、熱処理による硬化反応の進行を調べるため、スクロース/PTSA混合比を95：5とした予備乾燥物を120～200°Cで10分間熱処理した試料の熱分析を行った。その結果、180°Cや200°Cで熱処理した場合、熱分析の挙動は、室温から400°Cまでブロードな曲線を示し、熱処理によってスクロースが既に硬化していることが示唆された。

4. 2. 3 FT-IR測定

混合比 95：5で混合した予備乾燥物③、180°C、10分の熱処理物②、さらに熱水不溶物①のFT-IRスペクトルを図2-4に示す。熱処理物②および熱水不溶物①とも1510 cm^{-1} および 780 cm^{-1} 付近にピークが確認された。これらのピークは、フラン環由来の C=C 結合および CH 結合に起因すると考えられる。すなわち、図2-5に示すように、スクロースはPTSAとの加熱によってフラン化合物に変化したと考えられる。また、熱処理物②では、678 cm^{-1} および 561 cm^{-1} 付近にピークが認められたが、熱水不溶物①には観察されなかった。これらのピークは、PTSAのスルホ基 (-SO₃H) およびベンゼン環由来の C=C 結合に起因すると帰属され、PTSAが熱水処理により溶出したと推察される。したがって、PTSAはスクロースの硬化反応において触媒として作用している可能性が示唆された。

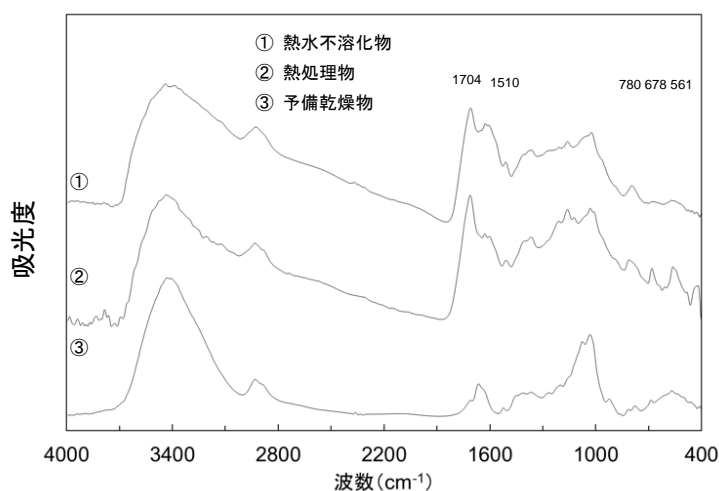


図2-4. 予備乾燥物、熱処理物および熱水不溶物の赤外スペクトル

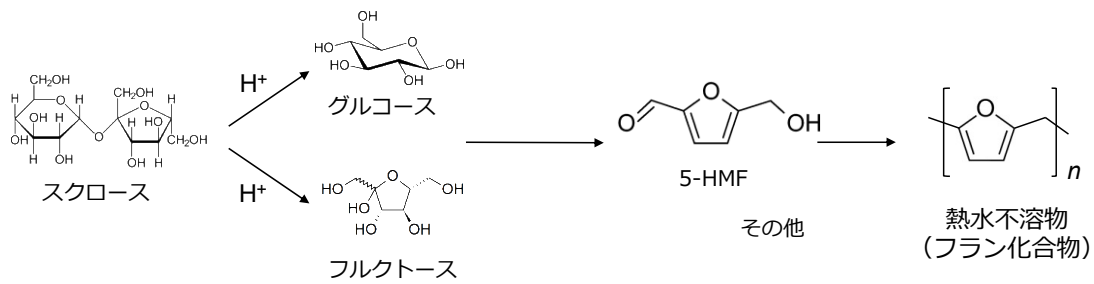


図2-5. スクロースのポリマー化反応

以上の結果、スクロースとPTSAの混合比や熱処理条件が硬化特性に及ぼす影響を熱水不溶化率の測定や熱分析、FT-IR分析によって検討した。スクロースはPTSAとの加熱によって熱水不溶物に変化することが明らかとなり、混合比98：2～90：10、熱処理温度180℃以上、熱処理時間10分以上で十分な硬化に達することが示唆された。また、硬化メカニズムはスクロースがPTSA存在下での加熱によってヒドロキシメチルフルフラールを生成し、さらにフラン環を含むポリマーへと変化すると考えられた。

4. 3 パーティクルボードの製造とその評価

上記の結果に基づいて、スクロースとPTSAの混合水溶液を接着剤とし、スクロース/PTSA混合比、接着剤添加率、熱圧温度、熱圧時間を変化させてパーティクルボードを製造した。まず熱圧温度の影響を見ると（図2-6～図2-8）、温度が高くなるにつれて物性が向上した。本研究では、180℃以上の熱圧温度で高い性能を示すことが分かった。次に、熱圧時間の影響を検討したところ（図2-9～図2-11）、曲げ性能やはく離強さの力学物性は熱圧時間2分では著しく低い性能を示したが、5分以上ではほぼ同等の性能を示すことが分かった。寸法安定性については、熱圧時間が10分と20分のボードで同等の性能を示すことが分かった。次に、熱圧条件を180℃、10分としてスクロースとPTSAの混合比を変えたところ（図2-12～図2-14）、95：5の場合で力学物性と吸水厚さ膨張率が優れた結果となった。さらに、接着剤添加率を変えたところ（図2-15～図2-17）、力学物性は著しい変化は認められなかったが、吸水厚さ膨張率は20wt%以上必要であることが認められた。以上の結果を踏まえると、スクロースとPTSAの混合水溶液を接着剤としたパーティクルボードの基本的な製造条件は、熱圧温度180℃、熱圧時間10分、スクロース・PTSA混合比95：5、接着剤添加率20wt%であることが分かった。この条件での各物性は、MOR:17.7MPa、MOE:4.4GPa、IB:1.2MPa、TS:13.5%であった。JISA5908の規格を参照すると、曲げ性能やはく離強さは13タイプの基準を満たしたが、吸水厚さ膨張率は規格（12%以下）を満たさず、改善の必要が認められた。スクロース/ADPの最適製造条件²⁾と比較すると、スクロース/PTSA接着剤の方が酸触媒の混合比を低く抑えることが出来たが、各物性はスクロース/ADPの場合の方が高い結果となった。

【熱圧温度の影響】

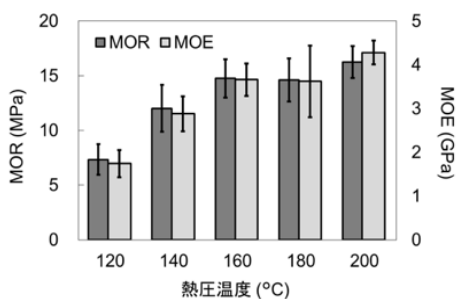


図2-6. 各ボードの曲げ性能

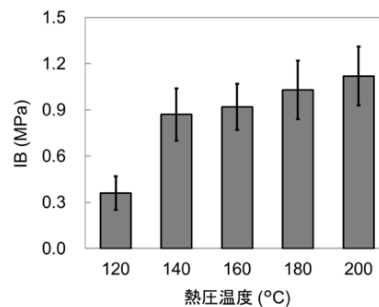


図2-7. 各ボードのはく離強さ

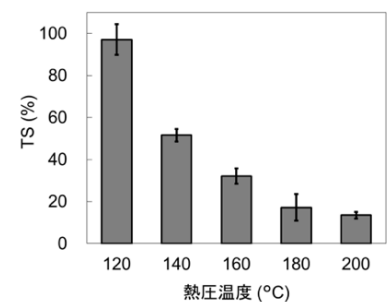


図2-8. 各ボードの吸水厚さ膨張率

【熱圧時間の影響】

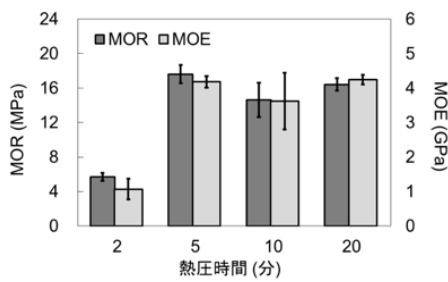


図2-9. 各ボードの曲げ性能

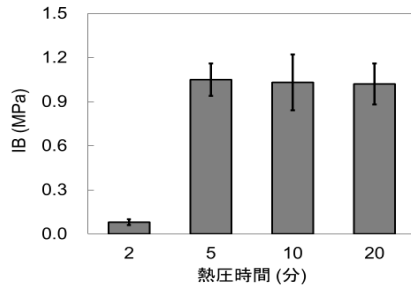


図2-10. 各ボードのはく離強さ

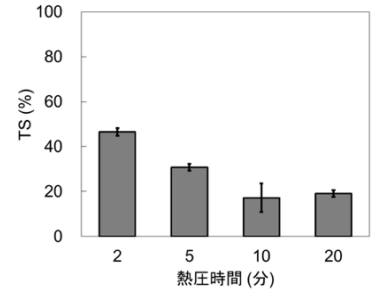


図2-11. 各ボードの吸水厚さ膨張率

【スクロースとPTSAの混合比の影響】

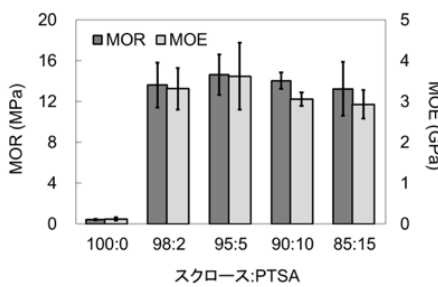


図2-12. 各ボードの曲げ性能

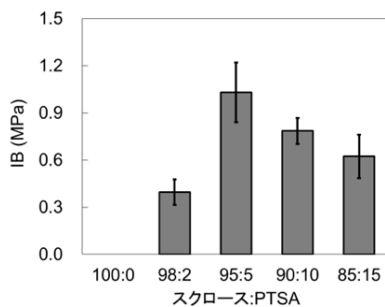


図2-13. 各ボードのはく離強さ

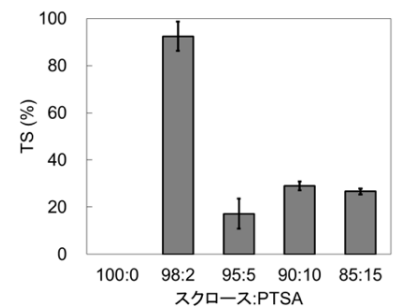


図2-14. 各ボードの吸水厚さ膨張率

【接着剤添加量の影響】

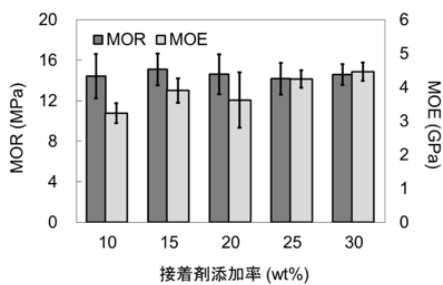


図2-15. 各ボードの曲げ性能

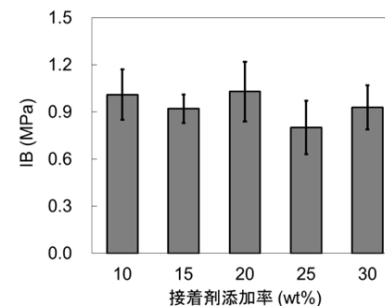


図2-16. 各ボードのはく離強さ

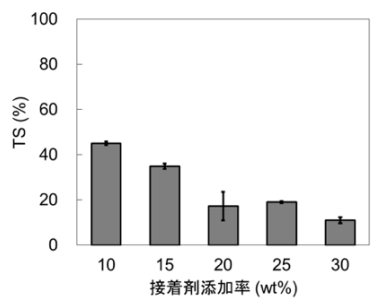


図2-17. 各ボードの吸水厚さ膨張率

4. 4 パーティクルボードの高性能化の試み

前項で基本的な製造条件が得られたものの、規格を満たすためには更なる改善が必要であることが明らかとなった。そこで、スクロースの代替として糖蜜の利用を検討するとともに、ADPの併用を試みた。

4. 4. 1 糖蜜の利用

糖蜜は砂糖を作る際の副産物であり、熱処理されているために褐色で高粘性の液体である。そのため、接着剤としてより適切に作用する可能性がある。そこで、原料糖蜜と精製糖蜜の2種類の糖蜜を用い、予備試験や前述の製造条件を参考にしながら、ボードを作製した。PTSAを10wt%とし、接着剤添加率20wt%、熱圧温度200℃、熱圧時間10分で製造したボード物性の結果を図2-18～2-20に示す。原料糖蜜と精製糖蜜によるボード物性の著しい相違は認められなかった。スクロースの場合と比較すると、曲げ性能やはく離強さはほぼ同等の値を示した。しかし、吸水厚さ膨張率は2倍程度高い値を示し、寸法

安定性に劣る結果となった。これらの理由として、常態での力学物性は糖類の高分子化による凝集力が影響しているためにスクロースの場合と同等の性能を示したと考えられる。一方、糖蜜はカリウムやマグネシウムといった各種無機成分を多く含むことから、これらが水との親和性を高めて寸法安定性を低下させたと考えられる。以上の結果、糖蜜の利用によるボード物性の向上は難しいと考えられた。

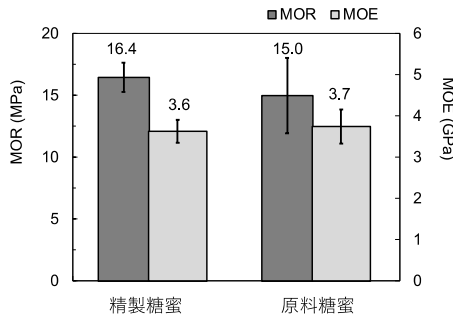


図2-18. 糖蜜を用いたボードの曲げ性能

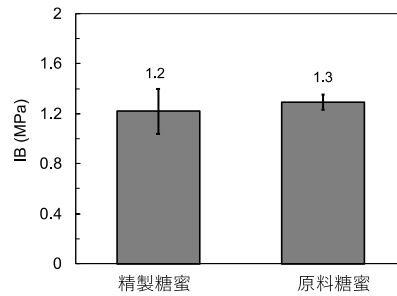


図2-19. 糖蜜を用いたボードのはく離強さ

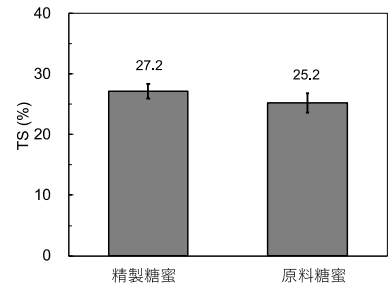


図2-20. 糖蜜を用いたボードの吸水厚さ膨張率

4. 4. 2 ADPの利用

先行研究においてADPはスクロースの硬化触媒として利用されているため、PTSAとの併用による効果が期待できる。そこで、PTSAとADPの混合比の影響を検討した。スクロースとPTSA/ADPの比率を90:10とし、PTSAとADPの比率を10:0~0:10までの5条件とした。熱圧温度と熱圧時間は180℃、10分とした。結果を図2-21~2-23に示す。ADPを添加することによってボード物性が向上し、PTSAとADPの比率が5:5で最も高くなる傾向が見られた。また、ADPのみの場合(0:10)よりも高くなった。PTSAとADPの比率が5:5のボード物性はMOR:18.6MPa、MOE:3.4GPa、IB:1.7MPaであった。JISA5908の規格を参照すると、曲げ性能やはく離強さの平均値は18タイプの基準を満たした。しかし、吸水厚さ膨張率は18.6%であり、依然基準値の12%を上回る結果となった。

【PTSAとADPの混合比の影響】

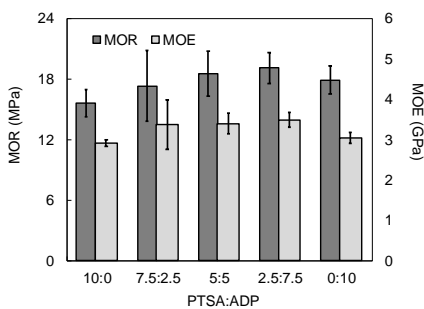


図2-21. 各ボードの曲げ性能

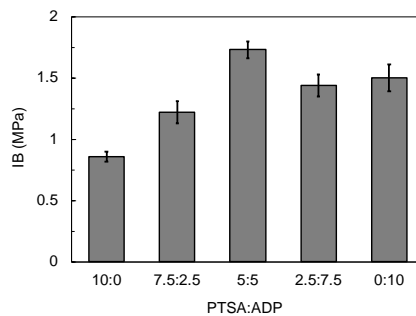


図2-22. 各ボードのはく離強さ

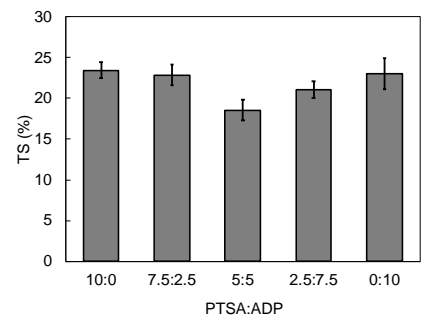


図2-23. 各ボードの吸水厚さ膨張率

次に、熱圧温度を160℃や200℃とした場合について検討した。結果を図2-24~2-26に示す。熱圧温度160℃の場合、180℃に比べてはく離強さおよび吸水厚さ膨張率とも劣る結果となり、熱圧温度の低下はボード物性の低下に繋がった。熱圧温度を200℃にした場合、曲げ性能は180℃の場合と同等であったが、はく離強さや吸水厚さ膨張率は向上することが分かった。特に、吸水厚さ膨張率は10.1%とJISA5908の基準値(12%以下)を満たす結果となった。これらの結果に基づくと、PTSAとADPの混合比を5:5(1:1)とし、熱圧温度を200℃にするとボード性能が向上することが分かった。次に、製造条件の改善を目指し、熱圧時間の短縮について検討した。熱圧時間を7.5分としてボードを製造した結果を図2-27~2-29に示す。熱圧温度が160℃の場合、熱圧時間10分と比べてボード物性はやや低下する傾向が見られた。180℃や200℃の場合、力学物性は熱圧時間10分と同程度であったが、吸水厚さ膨張率は幾分劣る結果と

なった。しかし、熱圧温度200℃の場合は12.0%の平均値であり、JISの基準値と同等であった。すなわち、ADPを添加することで熱圧時間を10分から7.5分に短縮してもボード物性はほぼ変わらずJISの基準値をほぼ満たし、熱圧時間の改善に成功した。

【熱圧温度の影響】

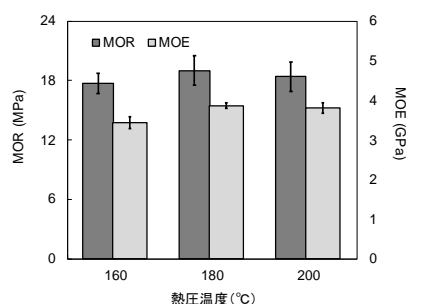


図2-24. 各ボードの曲げ性能

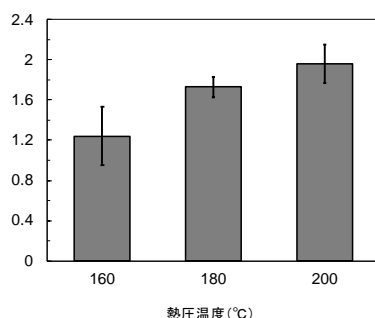


図2-25. 各ボードのはく離強さ

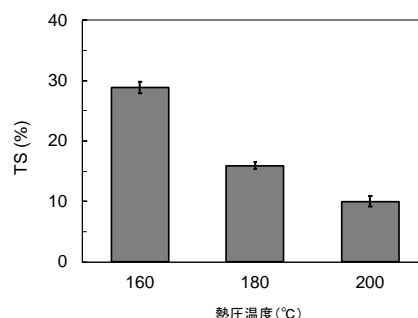


図2-26. 各ボードの吸水厚さ膨張率

【熱圧時間7.5分】

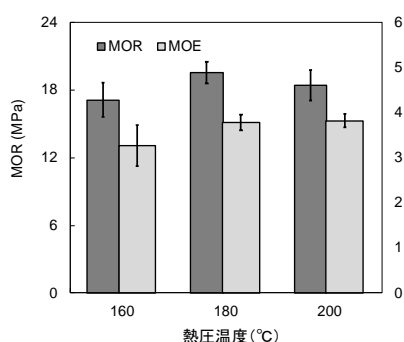


図2-27. 各ボードの曲げ性能

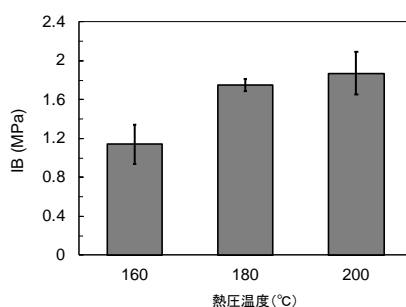


図2-28. 各ボードのはく離強さ

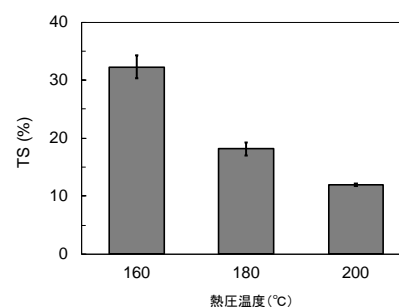


図2-29. 各ボードの吸水厚さ膨張率

次に、スギチップを原料とし、スクロース/PTSA+ADP接着剤と合成樹脂接着剤pMDIを用いてそれぞれパーティクルボードを製造した。結果を図2-30～2-32に示す。曲げ性能を見ると（図2-30）、スクロース/PTSA+ADP接着剤の場合はMOR：23.1 MPa、MOE：4.3 GPaであり、pMDIの場合は、MOR：49.4 MPa、MOE：3.94 GPaであった。MOEは接着剤の種類で大きな差は見られなかったが、MORではpMDIの方が2倍以上高い結果となった。また、はく離強さ（図2-31）についてもスクロース/PTSA+ADP接着剤では1.21 MPa、pMDIでは1.92 MPaを示し、スクロース/PTSA+ADP接着剤はpMDIと比較すると常態接着性に劣った。前述のリサイクルチップとスクロース/PTSA+ADP接着剤によるパーティクルボードと比較すると、スギチップを用いることで曲げ強度は幾分向上したが、はく離強さは低下する結果となった。この理由の詳細については今後の課題であるが、原料密度の違いが影響した可能性がある。吸水厚さ膨張率（図2-32）は、スクロース/PTSA+ADPで8.65%、pMDIでは11.6%となり、スクロース/PTSA+ADPの方が優れた値を示した。この理由として、PTSA+ADPの酸と200℃の熱圧温度によって原料チップの熱酸化劣化が生じ、結果として低い値に抑制された可能性がある。また、pMDIの場合は塗布量が少ないために同じボード密度条件下ではパーティクル量が多くなり、吸水による膨潤がやや大きくなった可能性がある。リサイクルチップとスクロース/PTSA+ADP接着剤によるパーティクルボードと比較すると、スギチップを用いることで吸水厚さ膨張率が低く抑えられることが分かった。以上の結果、スギチップを用いた場合、スクロース/PTSA+ADP接着剤は、pMDIより劣るもののJISA5908の18タイプの基準値を満たす結果となり、構造用としての利用の可能性が示された。

【スギチップを用いたパーティクルボード】

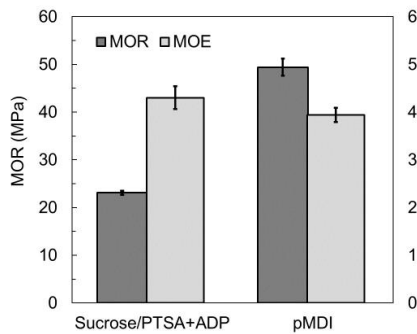


図2-30. 各ボードの曲げ性能

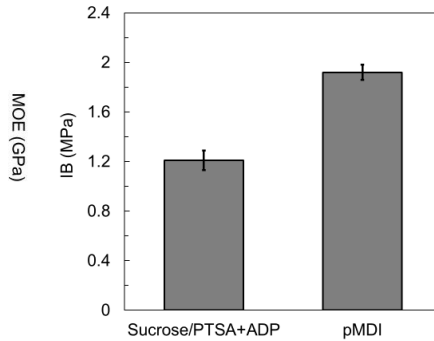


図2-31. 各ボードのはく離強さ

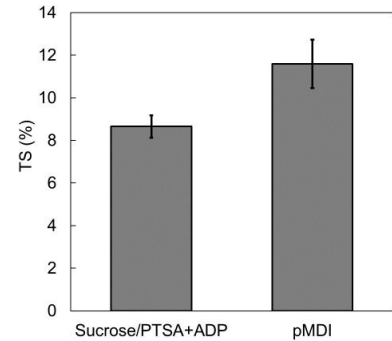


図2-32. 各ボードの吸水厚と膨張率

5. 研究目標の達成状況

目標2-1	研究動向調査では、文献データベースによって研究論文を抽出し、特に過去5年間の詳細な研究動向を調べ、問題点や課題を明らかにする。
達成状況	学術データベースWeb of Scienceを用いて1990～2020年までの研究論文数の推移をキーワード検索によって調べた。さらに2015～2020年までの論文については、使用されている原材料や開発手法、課題についてまとめた。その上で、スクロースを原料とした接着剤の優位性を示した。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	II-2 4.1 研究動向調査としてレビュー結果を記載。4.1節の最後に、既往研究の開発手法、課題、スクロース系接着剤の優位性を述べている。 表2-6 (糖類系接着剤に用いられている原料) 表2-7 (タンパク系接着剤に用いられている原料) 表2-8 (リグニン系接着剤に用いられている原料) 表2-9 (タンニン系接着剤に用いられている原料) 表2-10 (バイオオイル系接着剤に用いられている原料)
目標2-2	新たな天然系接着剤の開発では、出来る限り化石資源への依存を抑え、かつ接着剤の調製および作業性に優れ、高い接着性能を示す接着剤の開発に取り組む。具体的には、①接着剤に占める天然物の割合を70%以上とし、②接着剤の調製は混合水溶液もしくは若干の熱処理のみとする。また作業性では、③噴霧塗布が可能な溶液粘度とし、④接着性能は合板の日本農林規格の1類やJIS A 5908の18タイプに匹敵する性能を目指す。
達成状況	スクロース (天然物) とPTSA (p-トルエンスルホン酸)+ADP (リン酸二水素アンモニウム) の混合比を90 : 10とした混合水溶液を接着剤として、最適条件 (熱圧温度および熱圧時間) で製造したパーティクルボードがJIS A 5908タイプに匹敵する性能 (曲げ性能: 18 MPa以上、はく離強さ: 0.3 MPa以上、吸水厚さ膨張率: 12%以下) を持つことを明らかにした。 ①天然物割合70%以上との目標に対し、90%と目標を上回って達成した。 ②接着剤の調整は、上記3物質を混合水溶液とするのみである。(目標通り) ③溶液粘度が噴霧塗布可能かは未確認 ④接着性能は、JIS A 5908の18タイプに匹敵する (目標通り) ①から④の目標のうち③を除く目標を達成した。特に優先度の高い①および④を達成しており、目標はほぼ達成できた。
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	図2-27 (曲げ性能)、図2-28 (はく離強さ)、図2-29 (吸水厚さ膨張率) 熱圧温度200℃の条件で、平均値がJIS A5908の18タイプの性能を満たす。

以上より、サブテーマ2では目標どおりの成果をあげた。

6. 引用文献

- 1) Kenji Umemura, Shin Hayashi, Soichi Tanaka, Kozo Kanayama: Changes in physical and chemical properties of sucrose by the addition of ammonium dihydrogen phosphate, *Journal of The Adhesion Society of Japan*, 53(4), 112-117 (2017)
- 2) Zhongyuan Zhao, Shin Hayashi, Wei Xu, Zhihui Wu, Min Zhang, Soichi Tanaka, Shijing Sun, Kozo Kanayama, Kenji Umemura: A novel eco-friendly wood adhesive composed by sucrose and ammonium dihydrogen phosphate, *Polymers*, 10(11), 1251 (2018)
- 3) Zhongyuan Zhao, Shijing Sun, Di Wu, Min Zhang, Caoxing Huang, Kenji Umemura, Qiang Yong : Synthesis and Characterization of Sucrose and Ammonium Dihydrogen Phosphate (SADP) Adhesive for Plywood. *Polymers*, 11, 1909 (2019)
- 4) Zhongyuan Zhao, Shunsuke Sakai, Di Wu, Zhen Chen, Nan Zhu, Chengsheng Gui, Shijing Sun, Min Zhang, Kenji Umemura, Qiang Yong: Investigation of Synthesis Mechanism, Optimal Hot-Pressing Conditions, and Curing Behavior of Sucrose and Ammonium Dihydrogen Phosphate Adhesive, *Polymers*, 12(1):216 (2020)

II-3 接着剤微量塗布等の低炭素型木質材料製造技術の開発

秋田県立大学

高度木材加工研究所教授

山内 秀文

高度木材加工研究所准教授

足立 幸司

〔要旨〕

既存の木質材料は、カーボンニュートラルな木質基材と主に化石由来成分から合成した接着剤の組み合わせで作られる。その接着剤使用量を低減することは、木質材料が将来的に廃棄される際の接着剤由来CO₂排出量の削減に直接的に貢献できる。そこで、サブテマリーダーらが持つ微量塗布接着技術の知見を既存の木質材料の製造技術へ応用することを目的に、主に1) 合板等、既存木質材料にこれを適用したときの性能評価、2) 実用化を見据えた新しい塗布技術の探求、3) 接着剤削減に伴うCO₂排出削減への副次的効果の評価、を目標とした研究を行った。

微量塗布接着技術の適用研究においては、モデル木質材料として合板を選択した。接着剤には商業合板製造用として最も多量に使われている市販のフェノール樹脂（PF）接着剤を用いた。メーカーの標準処方・標準塗布量（PF固形分量で85g/m²/接着層）でロール塗布した合板の性能を対照に、エアスプレー法にて8g/m²/接着層の微量塗布にて作成した合板の性能を比較した結果、常態性能は遜色なく、接着耐久性を評価する72時間連続煮沸試験後の残存性能についても、JAS規格上で用途制限無く使える性能にわずか3%弱及ばない程度の極めて高い性能が得られること、さらなる向上策が期待できることを明らかにした。また、単板性能が異なる際などの接着性能は塗布量に依存すること、単板含水率の制御が重要であることなどの知見が得られた。さらに、その副次的効果として、接着時の圧縮時間削減効果や厚さ減りの抑制（歩留まり向上）、高含水率単板が使用できることによる単板乾燥負荷低減などが期待できることを明らかにした。さらに、実用化を見据え、超音波霧化技術を用いた先進的な微量塗布技術開発にも取り組み、既存塗布法に対する優位性などを明らかにできた。

以上の結果から、サブテマ3について、設定した目標に対して十分な成果が得られたと考えており、特に、微量塗布接着技術がもたらす副次的効果に関しては目標を大きく超える成果が得られた。

1. 研究開発目的

建材などに多く使用されている合板に代表される木質材料は、カーボンニュートラルである木質系原料を基材に用い、それらを主に石油由来の合成により製造された接着剤で結合する事で形成される。このため、将来的に排出されることになる木質材料に使用されている接着剤由来CO₂排出量を削減するためには、接着剤を天然系に置き換えること（サブテマ2）と同時に、既存木質材料に使用されている接着剤の使用量そのものを低減することは極めて有効な手段となり得る。本サブテマリーダーである山内からは、インクジェットプリンターのインク射出技術を木材の接着剤塗布技術に応用し、木材接着力の評価で一般的に使われているカバ材を試験体に用いた検討を行った¹⁾。その結果、これまで木材接着に用いられてきた一般的な接着剤塗布量（使用量）を1/10～1/20に低減しても十分な接着性能が維持できる可能性が示唆された。この知見を既存の木質材料製造技術として応用することができれば、信頼性や生産性が十分に確立している既存の接着剤をそのまま用いた場合でも、将来的な木質材料の接着剤由来CO₂排出量を大幅に削減できる可能性があること、接着剤変更を伴わない点で実用化へのハードルが大きく下げられること、さらにサブテマ2で検討される天然系接着剤との併用できれば、その将来的なCO₂排出量削減割合をさらに大幅に向上できる可能性などが期待できる。そこで、将来的な木質材料の接着剤由来CO₂排出量低減を最終目的に、この「微量塗布接着技術」を既存の木質材料製造技術として応用するための基礎的知見の獲得と実用的な接着剤塗布技術開発を目指して、以下の検討を行った。

2. 研究目標

サブテーマ3では、課題の大きな目標である「木質材料における接着剤由来の温室効果ガスの将来的な排出量を低減する」ことを目指す手法として、既存木質材料の接着剤使用量を低減することに主眼を置いた検討を行う。

具体的には、既存の木質材料、特に生産量の多さとそれに伴って接着剤使用量が大きくなっている合板に対して微量塗布接着技術を適用することへの技術的検討を中心に行い、

- 1) 合板等の既存木質材料に微量塗布接着技術を適用した際の材料性能への影響
- 2) 実生産に適用できる可能性のある塗布技術の検討
- 3) 接着剤塗布以外の生産時排出量に対する影響評価を行い、最終的に実生産への適用可能性評価を行う。

3. 研究開発内容

3. 1 微量塗布接着技術の適用とその接着性能等に関する検討

3. 1. 1 合板への微量塗布接着技術適用の可能性とその効果

合板は、木質材料として最も生産量が多く^{2,3)}、また生産量が多いため接着剤の絶対的な使用量が最も大きな木質材料である⁴⁾。そのため、合板の接着剤使用量を低減することは、本研究が目的とする将来的な接着剤由来CO₂排出量低減に最も有効であると考えられること、合板は材料構造が比較的単純で、接着試験方法や評価も確立していることなどから、微量塗布接着の実用的可能性を検討するモデル木質材料として合板を選定した。

合板原料として、秋田県産、約60年生のスギ丸太から自家調整した厚さ約3 mmのロータリー単板を400 mm角に調整して供試した。単板は予め105℃の恒温機を用いて全乾状態として重量を定量しておき、後に接着剤塗布量などが定量できるようにした。接着剤として水溶性のフェノール樹脂 (PF) 接着剤 ((株)オーシカ製・D-117) を用い、比較対照用としてロール塗布でPF固形分塗布量で85 g/m² (接着剤メーカー標準指定処方⁵⁾および塗布量で、PFが占める固形分重量から選定) を目標に塗布したもの、ここから接着剤量を約30%減じたもの (PF固形分塗布量55 g/m²)、および、過去の検討⁶⁾を参考に、十分な接着性能が得られると考え



図3-1. エアスプレー微量塗布装置

られた微量塗布条件として、図3-1の装置を用いたエアスプレー法によって8g/m²を目標に微量塗布したものを作成した。実験は5plyの合板構成 (隣り合う各層の木理方向が互いに直交する構成) 材料で行うこととし、ロール塗布時は、メーカーの標準処方に準じて、固形分量が44.4%wのPF接着剤100重量部に対し水と小麦粉10重量部、およびソーダ灰3重量部を加えたものを糊液として用いた。単板セットの2・4層両面に所定量の接着剤を塗布後、圧縮圧力1.0MPaで30分間冷圧した。一方、エアスプレー法については、口径0.35 mmのエアブラシヘッド (ホルベイン画材(株)製・TH-2) を用い、空気圧力0.09MPa、塗布距離40mm、塗布幅5mm、ヘッド移動速度1.1 m/secで行った。熱圧前に単板含水率換算で5%分の水を噴霧して単板の含水率を調整した単板に、ロール塗布と同じPF接着剤を水で接着液固形分25%に希釈したものを糊液として用いた。このとき、PF樹脂以外に添加剤や充填材は使用せず、希釈糊液を5plyの各接着面に所定量噴霧塗布して積層し、熱圧に備えた。熱圧前の冷圧は行わなかった。

上述した単板セットを熱板温度135℃・圧縮圧力0.8 MPa一定の条件で熱圧製板した。熱圧時間は接着剤を十分に硬化させることを優先し、メーカー指定の最大値である被熱圧材料の厚さ1mmあたり45秒 (本実験の合板厚さは約15mmのため675秒) とした。このとき、変位計と熱電対を用いて圧縮開始から終了までの単板セット全体の厚さ変動と5ply芯層の両面の温度経過を測定した。ホットプレス時の実験概要を図3-2に示す。各条件2枚の合板を作成した。製板後の合板は熱いまま105℃下で12時間乾燥し、製板後の

全乾重量を測定した後、20℃・65%RH下に移して恒量になるまで養生した（約2週間）。

養生後の各合板の接着性能を「合板の日本農林規格」⁷⁾に準じて試験した。各合板から規格に準じた木取りにて12片ずつ（1塗布条件24片）の試験片を切り出し（図3-3）、半数を常態接着試験に、半数を接着耐久性（72時間連続煮沸）試験に供し、それぞれ万能試験機による引張せん断試験にてせん断強度および木部破断率（木破率）を求めて接着性能評価を行った。

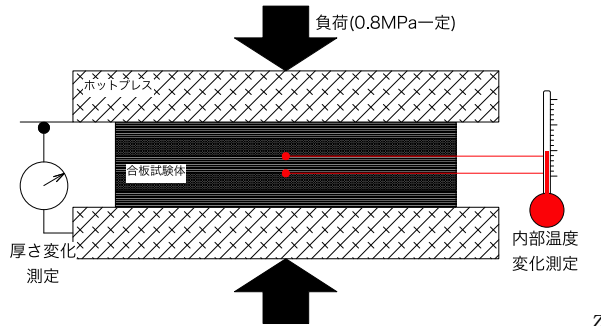


図3-2. ホットプレス時の測定概要



図3-3. 接着性能試験片

3. 1. 2 噴霧塗布条件および裏割れ補強による接着性能向上の可能性検討

丸太を円周方向に切削して得られるロータリー単板では、内外の周距離差に起因した「裏割れ」と呼ばれる細かな割れが生じる。3.1.1項での検討において、対照条件と微量塗布条件での接着性能差にこの裏割れ存在の影響が考えられたことから、それを検討する目的で、特殊な塗布装置（図3.4）を開発し、それを用いた塗布・実験を行った。

図3-4の装置は、φ150mmの円筒状ホルダーに単板の裏割れ面を外面にして円周面に押しつけながら巻き付け、裏割れを開いた状態で接着剤を塗布することで、裏割れ部分にも接着剤を侵入させて補強する効果を狙ったもので、実用的にもコンベアとの組み合わせで極めて容易に実現できる条件である。

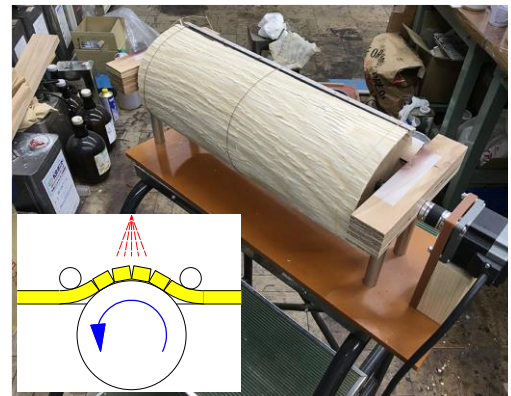


図3-4. 裏割れ補強検証用塗布装置

供試材料として、3.1.1項と同様のスギ・ロータリー単板、およびPF接着剤を用いた。塗布はエアスプレー法を用い、目標塗布量は $8\text{g}/\text{m}^2$ とした。合板の製造条件および評価条件は3.1.1項と同様とした。

3. 1. 3 社会実装を意識した中量塗布による接着性能評価

3.1.1項で検討した微量塗布条件の $8\text{g}/\text{m}^2$ という塗布量は、メーカー処方による接着剤塗布量や現状の合板製造現場で用いられている接着剤塗布量に対して1/10以下の極めて微量な塗布条件であり、社会実装を視野に入れた提案とするためにもう少し緩い条件を検討しても良いのではないかと指摘を受け、より社会的理解や検討が行いやすい塗布量での検討を行った。

評価材料として3plyの合板を選定し、供試材料として3.1.1項と同様のスギ・ロータリー単板を用いた。また、構造用合板用として要求される可能性があるより高強度な単板での接着評価を行う目的で、アカマツのロータリー単板も用いた。塗布量定量のため、塗布前の単板セットは全乾条件とし接着剤塗布直前まで密封した。接着剤については3.1.1項に準じて25%wに水希釈したPF接着剤をスプレー法にて85、40、20、 $15\text{g}/\text{m}^2$ を目標塗布量条件として単板接着面に塗布した。

熱圧成形条件および成形後の養生等の条件は3.1.1項に準じた。対照として、3.1.1項で検討した $8\text{g}/\text{m}^2$ およびロール塗布条件（充填材等使用，3.1.1項参照）での材料作成も行った。製板後の接着性能試験についても、3.1.1項と同様、日本農林規格⁷⁾に準じて行った。

3. 1. 4 高含水率単板での接着性能検討

現状の国内製造合板では、接着剤由来のホルムアルデヒド放散抑制のためにPF接着剤が最も多く用いられている。PF接着剤は糊液中の水分量が多く、硬化に必要な温度も尿素樹脂接着剤などに比べ高いため、パンク（水蒸気圧力によって層間の接着層が破壊して剥離が生じる現象）による歩留まり低下を防ぐ目的で、単板乾燥時に極めて低い含水率（3%以下）での乾燥条件が要求されている。この乾燥条件を実現するため多量の熱が必要であり、合板製造時のCO₂排出に大きな影響を与えていることが推定される。そこで、接着剤由来の水分添加量が極端に少なくなる微量塗布条件の特性を生かし、より高い単板含水率条件で接着できる可能性を検討することで、合板製造時のCO₂排出低減に資する可能性を検討した。

評価材料としてスギ・ロータリー単板を用いた3plyの合板を選定した。単板は全乾重量を測定した後、目標含水率 5、10、15、20%になるよう加水して密封養生して接着剤塗布に備えた。また、より低含水率で供試される可能性を考慮し、全乾のまま密封した単板も使用した。接着剤については3.1.1項に準じ、25% wに水希釈したPF接着剤をスプレー法にて13g/m²を目標塗布量条件とした。熱圧成形条件および養生等の条件、および製板後の接着性能試験は3.1.1項に準じた。

3. 2 超音波霧化技術を用いた新しい微量塗布技術の開発

3. 2. 1 超音波霧化技術の概要とそれを用いた新しい微量塗布技術

インクジェット法とエアスプレー法での接着性能比較結果から、微量塗布接着条件下での木材接着での接着性能に接着剤塗布方法の影響はほとんど見られず、塗布量が支配的であることが明らかになっている⁶⁾。一方で、現状の生産技術として用いられているロール塗布では微量塗布条件のような極端な低塗布量での作業は不可能であり、微量塗布接着を社会実装するためには微量塗布に適した接着剤塗布技術の開発が必須である。

これまで微量塗布条件で検討してきた塗布方法のうち、インクジェット法は塗布量や塗布位置の精度が極めて高く、接着剤のロス量をほぼゼロにできる、多列化で大面積にも対応できる可能性があるなどの優位性を持つ一方、塗布液を供給する経路が狭く、接着剤の選択が極端に限定されること、バブルジェット法のように射出時に加熱を伴う方法は適用できないなどの問題がある。また、エアスプレー法はかなり一般的な技術であり、他産業でも様々な用途で広く使用されており、塗布装置が比較的安価で導入しやすいことなどの優位性を持つが、塗布液供給量に対し実際にワークへ付着する量が少なくなり歩留まりが悪く排気の浄化などに付加設備が必要なこと、木材生産現場ではダストの影響で頻繁にノズル詰まりを起こすなどで運用が難しいなどの問題があった。

それらの問題点を解決した新しい微量塗布技術として、秋田県産業技術センターと矢島小林工業(株)で開発された超音波霧化技術を接着剤塗布に応用した塗布技術について検討を行った。超音波霧化技術とは、樹脂フィルム面などに極薄の機能層を形成させる目的で開発されたもので、超音波振動により発生させた往復運動エネルギーを塗布液を飛散させるエネルギーに変換して塗布面に供給する技術である。本研究で適用した塗布装置のヘッド部分の動作模式図を図3-5に示す。定量ポンプによって供給された塗布液は、ヘッド内の垂直経路を通じてヘッド先端に供給され、表面張力によりヘッド下面全体に拡散する。このとき、ヘッドは25kHz近辺の超音波域で往復振動しており（図3-5 黄矢印）、塗布液はヘッド下面方向への振動時の運動エネルギーによりヘッドから引き剥がされる際に霧化され、ヘッド反対方向

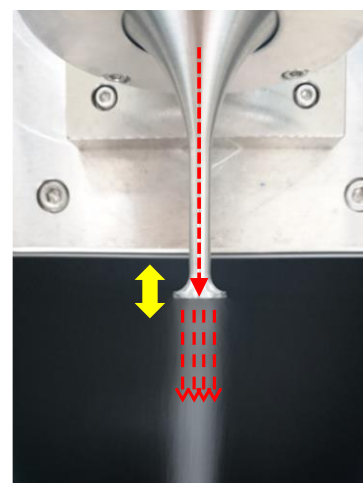


図3-5. 超音波霧化ヘッドの動作概要

へ飛散する。このとき、飛散方向に被塗布ワークを設置し受け止めることで塗布が可能となる。このときの霧化ミストは極めて指向性の高い運動エネルギーを持つため、エアスプレー法のようにミストの飛散が抑制され、均一な塗布と高い被着効率が期待できること、塗布液の経路が広く、将来的に充填材との混用など接着剤液の選択幅が広いことなどが期待できる。一方で、塗布範囲の拡大にはインクジェット法と同様に多列配置する必要があること、まだまだコストが高いことなどの問題もある。本研究では、基礎研究用に150mm幅を4列のヘッドで塗布する実験用装置（図3-6）を導入して、装置の改良研究や接着性能等を評価する実験を行った。



図3-6. 導入した超音波霧化塗布装置

3. 2. 2 超音波霧化技術を用いた微量塗布条件下の接着性能

超音波霧化法による塗布技術が接着性能に及ぼす影響を検討するため、導入した超音波霧化装置を用いて接着性能試験を行った。被着材に厚さ7.5 mmのカバ・挽き板を用いた。接着剤には、文献値^{1,6)}や他の実験結果と比較できるように、3.1.1項と同じPF接着剤を用い、これをPF固形分が25%になるよう水希釈して用いた。充填材や硬化触媒等は使用しなかった。これらを装置に配置・装填し、塗布ヘッドの振動数25 kHz、駆動電圧±24 V、被着材と塗布ノズルの距離25 mmに設定して塗布を行った。塗布量は被着材面積を塗布するのに要する時間と接着剤の供給速度により決定した。

同じ塗布条件で接着剤を塗布した1対の板材の接着剤塗布面を木理方向が平行になるよう重ね合わせ、熱板温度140℃、圧縮圧力1.5 MPa一定、15分間（厚さ1 mmあたり60秒）の条件でホットプレスして熱圧・接着した。接着後、20℃・65%RH下で恒量になるまで養生した（約3週間）。

接着・養生が終わった原板から、図3-7(a)に示した試験片（約60x15x15 mm）を各条件から8枚ずつ調製した。接着性能試験はJIS K 6851⁸⁾に準じ、万能試験機にて接着強度を求めた（図3-7(b)）。8体の試験片のうち5体は常態にて試験を行い、3体は72時間連続煮沸法にて接着耐久性評価に供した。

また、エアスプレー法との比較によって塗布時のロス量差について検討した。接着試験時と同様の接着剤を接着液固形分量25%にて用いた。被塗布材には坪量157 g/m²の上質紙を用いた。超音波霧化条件は振動数26 kHz、駆動電圧±24 Vとし、より広範な塗布時のロスを検討するために被着材と塗布ノズルの距離80 mm、塗布速度20 m/minとした。エアスプレー法の装置および塗布条件は、3.1.1に準じ、空気圧力を0.05、0.09、0.12 MPaの3条件で変動させた。いずれも装置に接着液を定量ポンプで供給し、霧化・塗布した。塗布量の定量は、ポンプの液送速度と塗布面積から算出できる計算上の固形分重量と、紙上に実際に塗着された固形分重量を求め、それらの比率から塗布効率（ロス量）を算出した。



(a) 試験片

(b) 引張せん断試験

図3-7. 接着試験片と接着試験概要

3. 3 サブテーマ間での協業研究

3. 3. 1 木質材料廃棄物中の接着剤の化学分析用モデル材料の作成

文献や統計などからの接着剤使用量の推定が困難な廃材中の木質材料や輸入木質材料中の接着剤使用量について、サブテーマ1にてそれを化学分析的に推定する技術を検討できるよう、木質材料中の木質原料と接着剤の量的比率を正確に定量した木質材料を提供した。モデル材料として単板3層から構成される(3ply)の合板を選定した。合板原料として、3.1.1項で用いたものと同じスギ・ロータリー単板を用いた。また樹種間差の影響も検討できるよう、アカマツ丸太から調製した同様のロータリー単板、および室内保管していたラワン製材から得た厚さ3 mmのソード単板(鋸引き単板)も用いた。スギ単板については単板を気乾重量で軽、中、重の3水準に分け、樹種およびスギは密度別の各グループ内の単板3枚づつを1セットとして合板用原料とした。これを105℃の恒温機にて恒量まで乾燥し、各単板セット毎の全乾重量を得て、これを作成する合板の木質部重量とした。

接着剤として、ユリア・メラミン樹脂接着剤((株)オーシカ製・大鹿レジン605, 以下"UF")、メラミン・ユリア樹脂接着剤((株)オーシカ製・大鹿レジンPWP-733, 以下"MUF")、およびフェノール樹脂接着剤((株)オーシカ製・D-117, 以下"PF")を用いた。UFおよびMUFについては充填材と硬化剤(塩化アンモニウム)を、PFには充填材と硬化触媒(ソーダ灰)を、表3-1の配合にて混合して接着糊液を得た。

表3-1. 接着液の配合

接着剤	糊液 (重量部)	糊液(樹脂) 固形分量 (%)	小麦粉 (重量部)	塩化アン モニウム (重量部)	ソーダ灰 (重量部)	水	接着液 固形分量	プレス温 度(℃)	圧縮時間 (秒/mm)
ユリア・メラミン	100	52.3	18	2	-	10	54.1%	115	35
メラミン・ユリア	100	55.2	18	2	-	10	56.3%	130	35
フェノール	100	44.4	10	-	3	10	46.7%	135	45

目標厚さ約9 mmで合板を作成した。文献⁹⁾を基に、基準の接着剤塗布量を1接着層あたり接着液固形分量で70 g/m²とし、それより接着剤量が多い条件(85 g/m²)と少ない条件(55 g/m²)の3条件を設定した。スギ単板については、セット重量が中庸なものに基準塗布量、重いものに少塗布量条件、軽いものに多塗布量条件を与え、組み合わせ条件下でより広い木質/接着剤比が得られるようにした。アカマツおよびラワンには基準塗布量を適用した。接着液は3plyの中単板両面にロール塗布法にて塗布した。塗布後の単板セットを積層し、常温下・圧縮圧力1 MPaにて30分間冷圧後、スギ・アカマツについては0.8 MPa、ラワンについては1.2 MPa一定の条件で熱圧した。熱圧時のプレス温度および圧縮時間は接着剤毎にメーカー処方書の最大値を設定した(表3-1)。成形後の合板を105℃の恒温機で全乾状態まで乾燥させ、全乾合板と予め測定した単板セットの全乾重量の差を合板中の接着剤重量として定量した。

さらに、木材のみの化学分析を想定し、合板と同ロットの単板を接着層にあたる部分に水を約10 g(1セットあたり約20 g)噴霧塗布した後、冷圧から熱圧まで合板製造と同様の履歴を与えた。このときの熱圧条件(温度・時間)はPFに準じた。また、接着剤のみの化学分析を想定して、合板製造時と同じ温度条件にて接着剤のみを硬化させたもの、またUFについては小麦粉を入れて硬化させたものも作成した。

3. 3. 2 糖ベース接着剤の合板への展開と要素技術の検討

糖ベースの接着剤を用いた合板の接着剤塗布量の低減時の接着性能を評価し、導入・普及に向けた課題抽出と対応を検討した。天然系接着剤の原料としてクエン酸とスクロースに着目した。糖ベースの接着剤を用いた合板の導入には、既存の合板製造ラインが対応しやすい接着剤の配合や接着条件の提案が必要であり、特に接着剤の塗布工程と熱圧工程の製造条件の最適化を検討した。

単板3層あるいは5層構成の合板(3ply)とし、原料用スギ単板は厚さ2.5mm、寸法180mm×180mm、接着剤塗布時の含水率は8.2%であった。接着剤原料として、クエン酸(CA)とスクロース(Suc)、p-トルエンス

ルホン酸 (PTSA) を用いた。CA と Suc、PTSA の混合接着剤水溶液は 60wt% となるように全て調整した。それらの混合重量比は、CA および Suc の単体 100, Suc:PTSA=90:10, CA:Suc=75:25, 50:50, 25:75, CA:Suc:PTSA = 24:74:2, 74:25:1 とした。一接着層あたりの接着剤固形分量を 15, 30, 60, 120g/m² の 4 水準あるいは 13, 25, 50, 100g/m² の 4 水準とし、刷毛塗りにて片面塗布条件では積層面の偶数番号の単板 (2層目と 4層目) に塗布、両面塗布条件では全ての単板接着面に塗布した。塗布後の単板は、20℃にて 1 週間、40℃にて 24時間、60℃にて 24時間の送風乾燥、あるいは、乾燥なしの 4 条件で予備乾燥した。熱圧温度 120℃, 140℃, 160℃あるいは 180℃、プレス圧力 0.5MPa、プレス時間 10分間の条件で 3ply 合板を作製した。各条件につき 3 体作製した。作製した合板は、恒温恒湿室で養生後に JIS-K6851 に準じた引張りせん断接着強さ試験に供した。

4. 結果及び考察

4. 1 微量塗布接着技術の適用とその接着性能等に関する検討

4. 1. 1 合板への微量塗布接着技術適用の可能性とその効果

図3-8に、接着剤塗布量と常態での接着強度および木部破断率 (接着面積に占める木部で破壊した面積の割合、木破率) の関係を示した。「Tensile shear strength」はせん断接着強度を、「Wood failure」は木部破断率 (木破率) を示している。木破率とは破断面において木部破壊した部分の面積割合を%で示したもので、100%は接着凝集力が基材 (木材) を上回る、すなわち十分な接着性能が得られていることを表す。図の塗布量は、接着剤塗布前に測定した単板セットの全乾重量と成形後に合板で測定した全乾重量との重量差を接着面積で除して塗布量に換算した実測値である。ロール塗布で標準塗布量から約 30%塗布量を低減すると、接着強度と木破率が低下し、そのバラツキも大きくなった。ロール塗布で塗布量を極端に下げたことにより塗布ムラが生じた可能性がある。一方、エアスプレー法による微量塗布条件では塗布量を 1/10 以下にしても常態接着性能にほぼ差は見られず、バラツキも小さくなる傾向が確認された。

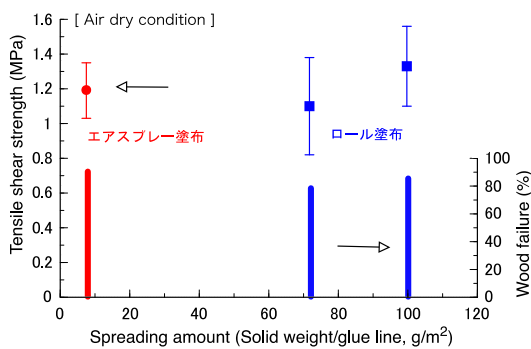


図3-8. 塗布量と常態接着性能 (スギ合板)

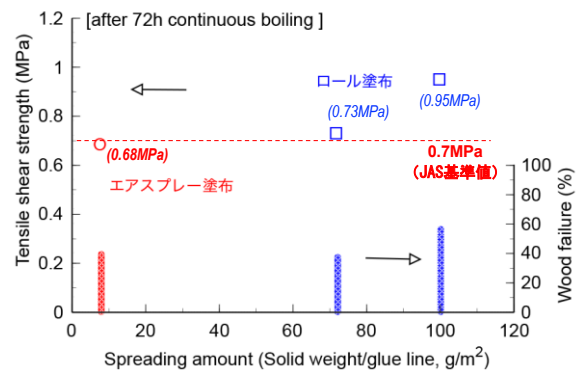


図3-9. 促進劣化処理後の接着性能残存率 (スギ合板)

図3-9に、構造用合板など最も高い接着耐久性が要求される際の評価に使われる72時間連続煮沸試験後の接着強度を示した。塗布量の減少に伴って接着耐久性が低下する傾向が見られる。常態では十分な性能を発揮した微量塗布条件は強度値・木破率とも低下した。この原因として、合板を構成する単板には切削に伴って生じる裏割れの影響が考えられた。合板の引張接着試験時には、木取りと引張方向によって裏割れに起因する2つの典型的な破壊形態が見られる (図3-10)。このうち、特に「Rolling Shear」と呼ばれる破壊型の低減には裏割れの補強が効果的と考えられるが、平板へのエアスプレー法では塗布時に影になる裏割れ内に接着剤が侵入できず、また塗布量が微量なため

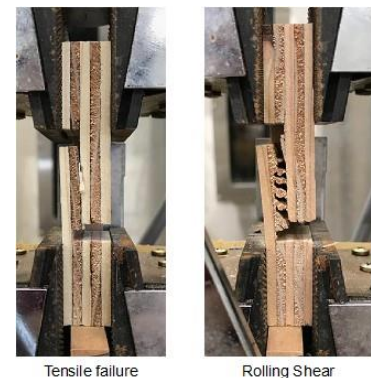


図3-10. 合板の引張破壊形態

塗布後の拡散・侵入も期待できないことから、裏割れ部分を接着剤で補強できる要素が全くないのに対し、塗布量が多いロール塗布では、塗布後の接着剤膜に圧力が作用し、裏割れにまで樹脂が浸透することで、ある程度の補強効果が期待できること、この樹脂により水分侵入を遅延させる効果があることなどが差を生んだと考えられた。合板の日本農林規格（JAS規格）において、針葉樹単板を用いた最も厳しい接着耐久性基準のせん断強さの基準は、72時間連続煮沸試験後に0.4 MPa以上（木破率80%以上）、0.5 MPa以上（木破率65%以上）、0.6 MPa（木破率50%以上）、0.7 MPa以上（木破率不問）とされている。今回の微量塗布条件での木破率は50%未満であり、せん断強さ0.7 MPa以上が求められるところ、試験結果は平均0.68 MPaであり、わずかに及ばなかった。この評価基準はJASで最も厳しい構造用合板に準じるものであり、微量塗布技術を用いた場合でも接着耐久性をわずかに改善できれば、規格上ほぼ制限無く適用できる可能性があることが示唆された。

図3-11に、プレス時の内側接着層部分における温度の時間経過を示した。85 g/m²を目標にロール塗布したものに比べ、微量塗布したものは全体的に昇温が早くなる傾向となった。これは、接着剤塗布操作によって添加される水分量がロール塗布と微量塗布で異なり、より水分量が多くなるロール塗布の温度上昇が遅れるためと考えられる。また、ロール塗布で水分気化に伴う温度の停滞が100℃ではなく115℃付近に現れるのは、0.8 MPa・400 mm角の成形条件で芯層の接着層がほぼ密閉されているためであり、実大寸法の挙動をほぼモデル化できていることを示している。図は接着剤処方に書かれる推奨圧縮時間の最大値（45秒/mm＝15 mm厚で675秒）までの時間経過を示しているが、この推奨時間が接着剤が十分に硬化する「温度」に達するまでの時間を示すと仮定すると、微量塗布の適用によりそれを約1/2にまで短縮できることを示している。これにより、微量塗布接着技術が接着剤使用量低減の効果に加え、成形時のCO₂排出抑制にも寄与できる可能性が示唆された。さらに、糊液中の溶媒（水分）量が多くなりがちな天然系接着剤の社会実装に向けて、有効な接着剤塗布技術になり得るものと考えられた。

図3-12に成形時のプレス内における厚さ変化を示した。ロール塗布時の厚さ変化は微量塗布条件に比べ顕著で、最終的に得られる合板の厚さも薄くなった（微量塗布14.9 mmに対しロール塗布13.8 mm）。木材は一定応力下で内部水分変化（移動）を伴う時のクリープ変形量が大きくなることが知られており¹⁰⁾、塗布された接着剤量の差によってプレス前に保持していた水分量に差が生じたことによると考えられる。力学性能の低いスギが合板原料に用いられるようになって以降、圧縮操作時に伴う厚さ歩留まりの低下は合板工業で大きな問題となっており、微量塗布技術が接着剤使用量低減の外にその改善技術にもなり得る可能性があることが示された。

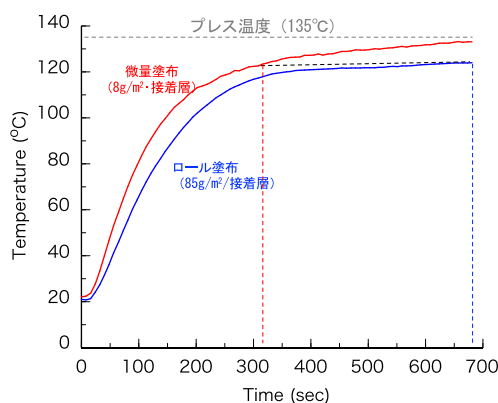


図3-11. 合板成形時の時間-温度経過

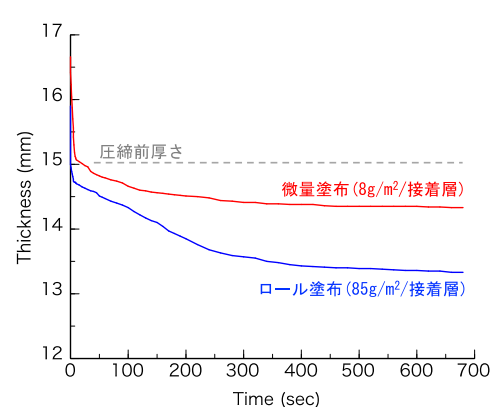


図3-12. 合板成形時の時間-厚さ変化

4. 1. 2 噴霧塗布条件および裏割れ補強による接着性能向上の可能性検討

裏割れ補強の検討に先立ち、スプレー塗布時のノズルと被着材の距離と常態接着性能の関係を検討した結果を図3-13に示した。図から、測定範囲においてノズル距離の影響はほとんどないことが明らかになった。また、接着耐久性への影響も同様であった。

図3-4で示した円筒状塗布法によって裏割れ補修を試みた結果を、図3-14に示す。この結果は、図の赤矢印で示した位置、円筒軸から20mmオフセットした位置で噴霧した条件、すなわち、計算上はノズル距離40+約3mm、裏割れの開き角約15°の条件の結果である。72時間連続煮沸後の強度残存率（促進劣化処理後の強度/常態強度）を見ると、従来の平板法にて塗布したものから大きく改善は見られず、わずかに性能が低下することが確認された。この原因として、このオフセット量では裏割れ内への十分な接着剤塗布が行われなかったこと、オフセットしたことにより、設定上の塗布量に対して塗布面積が5%程度大きくなったためと考えられた。図3-13の結果から、塗布距離の影響は小さいことから、より大きなオフセットを取って裏割れ深部への接着剤塗布と、それに合わせた裏割れ補強分の接着剤を追加するなど、諸条件についてさらなる検討が必要と考えられた。

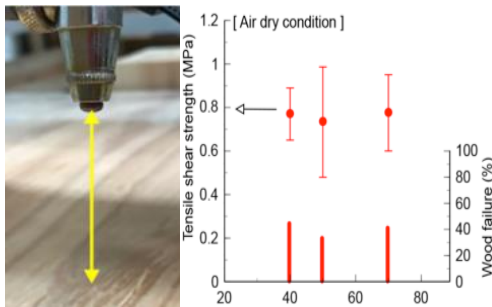


図3-13. ノズル距離と接着性能

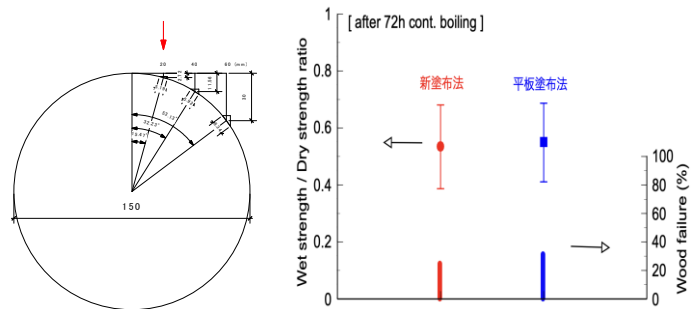


図3-14. 裏割れ補強を目指した新塗布法の効果

4. 1. 3 社会実装を意識した中量塗布による接着性能評価と単板含水率の影響

図3-15にスギ単板を用いた際の、エアスプレー法による接着剤塗布量と常態接着強度の関係を示した。フェノール樹脂 (PF) 固形分換算での塗布量約80g/m²前後で、エアスプレー法と従来の技術であるロール塗布法による結果を見ると、ほぼ同じPF塗布量でも、エアスプレー法を用いた場合に接着強度が高くなった。この結果は、ロール塗布法では被着単板の表面凹凸の影響を受けて面内での塗布量にバラツキが生じ、破壊時に欠膠や部分的な応力集中などの影響を受けて破壊荷重値が低く測定されるためと考えられ、処方上や文献上で十分とされる塗布量を与えた場合でも、接着剤の均一分散が性能発現に影響する可能性があることが示唆された。

塗布量を順次減じていくと、塗布量20g/m²（基準塗布量の約1/4）で常態接着強度の低下が見られ、4. 1. 1項で示した8g/m²の塗布量では基準塗布量時の約1/2と低くなり、常態ではロール塗布法と遜色なかった4. 1. 1項の結果

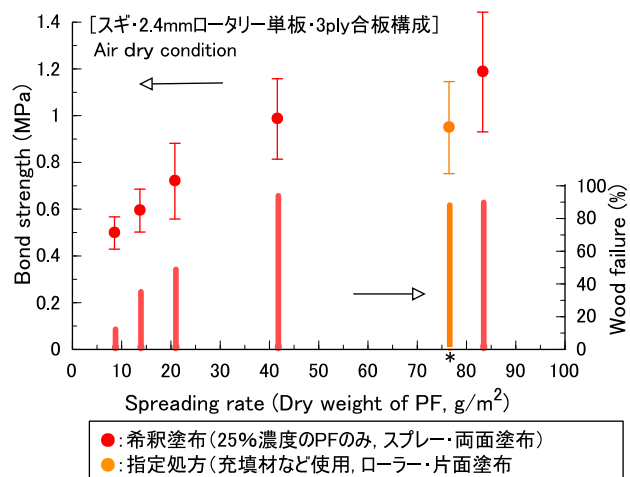


図3-15. エアスプレー塗布量と常態接着性能

と矛盾するものとなった。さらに、図3-16に示したスギ単板合板の72時間連続煮沸後の接着強度では、塗布量が $8\text{g}/\text{m}^2$ のものは煮沸中に剥離し、 $20\text{g}/\text{m}^2$ のものでもJAS規格で制限無く使える強度に達しなかった。興味深いのは、接着剤メーカーの指定処方にてロール塗布した試験体も $8\text{g}/\text{m}^2$ の試験片と同様、煮沸中に剥離し、接着耐久性が全く得られなかったことである。この原因として、今回の接着試験では単板を極端に乾燥させて使用したことが考えられる。文献等に残る学術的な検討例はないものの、特に木質ボード類の製造現場では、PF接着剤を使用する際に被着材となる木材小片を全乾に近い乾燥条件にしてしまうと接着性能が発現しなくなる場合があることが指摘されている。この実験で使用した単板の含水率は、次項の検討における再測定で2%程度と推定されること、標準処方でも剥離してしまっていることから、単板含水率が極端に低くなる条件下でPFを使用することは、接着性能に影響することが示唆された。

図3-17にてエアスプレーにて微量塗布する際の、塗布前の単板含水率と接着性能の関係を示した。図から、PF接着剤を用いた接着においては、被着材となる単板含水率に最適値が存在することが明らかになった。PF接着剤も含めたホルムアルデヒド系接着剤は、被着材が高含水率となる条件下で接着性能が著しく低下することはよく知られている¹¹⁾が、この実験で、PF接着剤を用いる場合、被着材含水率が極端に低くなる条件下でも接着性能が低下する事が明らかになり、単板含水率を予め5%に調整した4. 1. 1の結果と単板を全乾条件で塗布直前まで封緘して用いた本項の中塗布量実験での結果に差異が出た一因が単板含水率であることが推察された。

また、図3-17から、微量塗布条件ならば単板含水率が5~10%程度までの範囲で接着性能が大きく変化しないことが明らかになった。一般的にPF接着剤は溶媒となる水が多く、硬化に必要な温度も高いことから、現状の合板生産条件で単板の含水率が5%以下でないと接着できないとされており、微量塗布接着によって単板含水率の許容範囲を拡げることができるなら、微量塗布接着技術が単板乾燥条件を緩和する、すなわち乾燥時の CO_2 排出量を抑制する効果も持ちうるということが示された。

図3-18はアカマツ単板で作成した合板による接着耐久性試験結果である。アカマツでは $20\text{g}/\text{m}^2$ の塗布量でも煮沸中に剥離が生じた。また、スギと同様に標準処方のロール塗布でも剥離したことから、この結果にも、スギでの検討時と同様に、単板含水率が低いことの影響が現れている可能性がある。接着性

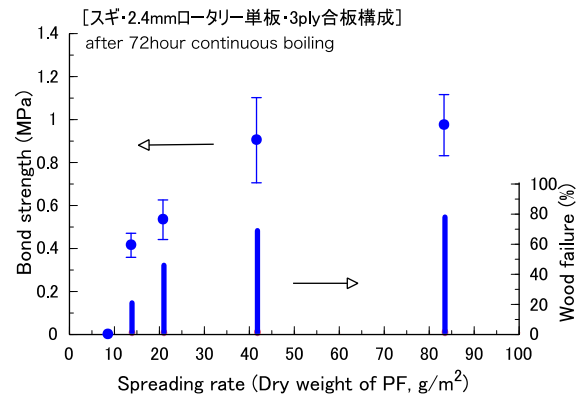


図3-16. エアスプレー塗布量と接着耐久性

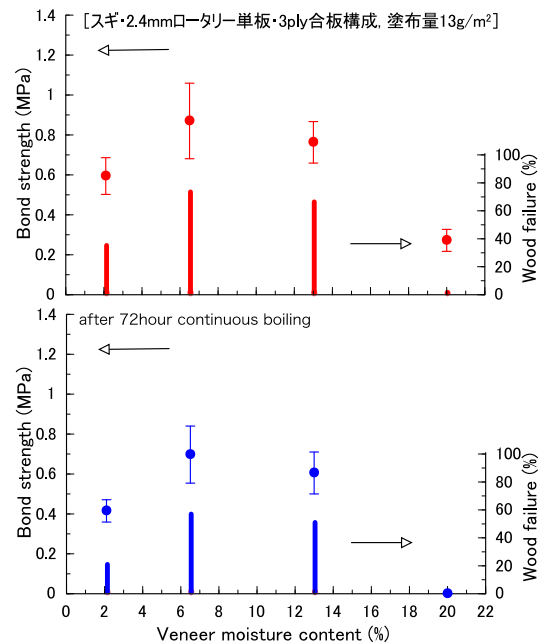


図3-17. 単板含水率と接着性能

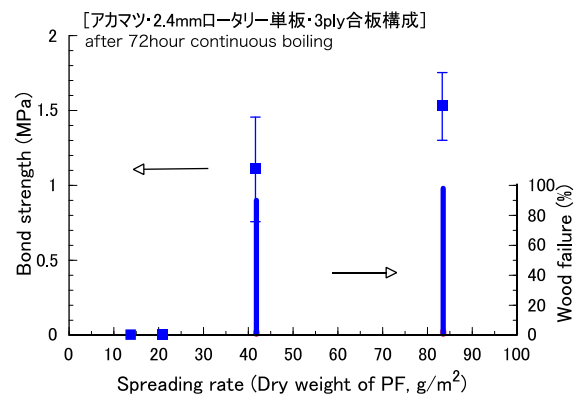


図3-18. アカマツ単板を用いた際の塗布量と接着耐久性

能値を比較すると、アカマツを用いた塗布量85g/m²時の接着強度値はスギのその1.5倍を示しており、単板の力学性能が変わると塗布量の最適値が変化することが示された。また、スギ、アカマツいずれの結果でも、エアスプレー塗布法で塗布量が40g/m²の試験結果は85g/m²とほぼ同程度で、JAS規格で制限なく使える0.7MPaを大きく超えており、現状で使われている標準的な塗布量を1/2程度まで減じることは、単板含水率などの諸条件が多少変化しても、数値的には十分安全に実現可能であると考えられた。

4. 2 超音波霧化技術を用いた新しい微量塗布技術の開発

4. 2. 1 超音波霧化による塗布の接着性能評価

図3-19に霧化ノズルと試験板距離が25mmの時の接着剤塗布量と常態接着性能の関係を示す。図から、塗布量が8g/m²になると木破率がやや低下する傾向が見られる。過去にほぼ同じ条件でインクジェット法やエアスプレー法で検討した際には、常態においては4g/m²程度までは木破率も低下しないことが示されている^{1,6)}が、本実験で得られた接着強度値は他法による過去の測定値(約5-6 MPa)に比べて2倍近い値を示しており、供試材の引張性能が高かったことによる傾向差と考えられた。

図3-20に72時間連続煮沸後の接着性能を示す。20g/m²ではほぼ完全な接着耐久性が得られている一方、塗布量が少なくなるにつれて接着強度は維持されるものの、塗布量に応じて木破率が低下する傾向となった。常態の結果から、本実験で用いた基材の力学性能値がかなり高いことが示唆されており、促進劣化時試験時の木部変形によって接着面に高い負荷がかかり、接着層内での微小破壊が生じた可能性があることが推定された。一方で、その強度値は塗布量8g/m²でも4MPaを超えており、針葉樹などのより力学性能値の低い材料を用いるには十分な接着性能が得られていることから、他の面でエアスプレー法などに比べ優位性が高い超音波霧化法は微量塗布接着の塗布技術として十分に選択肢になると考えられた。

4. 2. 2 超音波霧化による塗布の塗布効率

塗布量を4g/m²に設定したときの超音波霧化技術によるロスの低減効果について、エアスプレー法との比較にて検討した結果を図3-21に示す。「Application efficiency」は塗布効率を示し、ポンプの液送速度と塗布面積から算出した固形分重量に対する紙上に実際に塗着した固形分重量の比率を表す。ポンプのエアスプレー法では、噴射圧力を下げるにつれて効率が高まる傾向が見られるが、供試樹脂を霧化しうる最低限の0.05 MPaまで下げても依然として10%を超える工程ロスが発生した。一方、超音波霧化塗布装置を用いた塗布では、ほぼ100%の塗着効率が得られることが明らかになった。

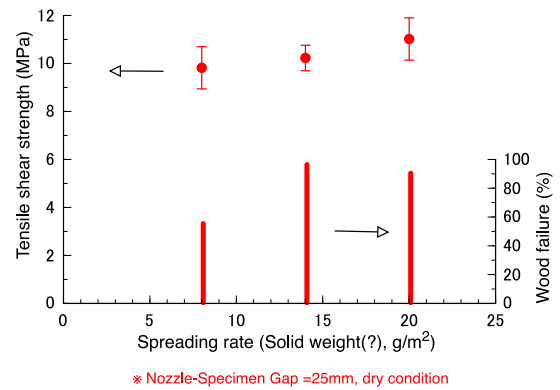


図3-19. 超音波霧化法での塗布量と接着強度

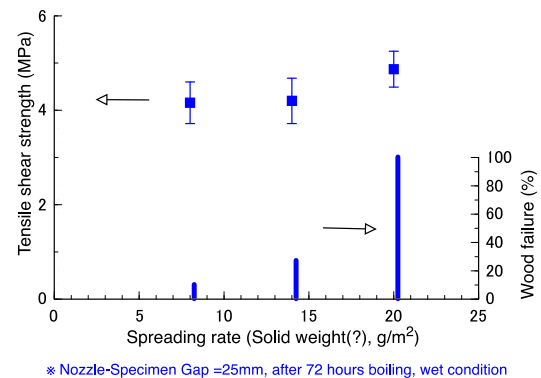


図3-20. 超音波霧化法での接着耐久性

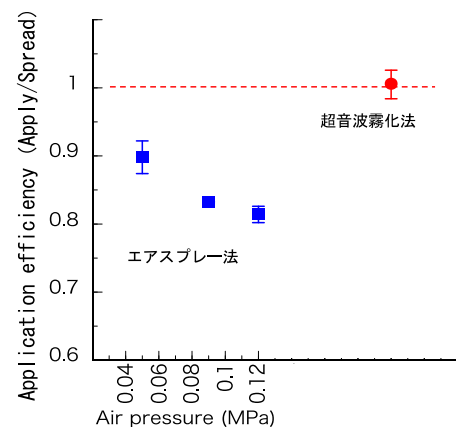


図3-21. 超音波霧化法の塗布効率

4. 3 サブテーマ間での協業研究

4. 3. 1 木質材料廃棄物中の接着剤の化学分析用モデル材料の作成

サブテーマ1で行われた化学分析による廃材等木質材料内の接着剤量推定技術検討用に作成したモデル材料の概要を表3-2に示す。

表3-2. 作成したモデル材料の概要

樹種	接着剤種	設定塗布量 (g/m ²)	単板全乾重量 (g)	合板の全乾重量 (g)	接着剤重量 (g)	化石由来樹脂量 (g)	実塗布量 (g/m ²)	樹脂含有率 (%)
スギ	UF	85	198.6	218.4	19.8	14.7	81.8	6.74
スギ	UF	85	217.9	239.0	21.1	15.7	87.2	6.57
スギ	UF	70	219.3	236.7	17.4	12.9	71.9	5.47
スギ	UF	70	228.3	244.8	16.5	12.3	68.2	5.01
スギ	UF	55	228.4	241.9	13.5	10.0	55.8	4.15
スギ	UF	55	235.6	247.5	11.9	8.9	49.2	3.58
スギ	MUF	85	210.0	229.1	19.1	14.4	80.0	6.29
スギ	MUF	85	220.6	241.5	20.9	15.8	87.6	6.53
スギ	MUF	70	211.5	228.1	16.6	12.5	69.5	5.49
スギ	MUF	70	222.8	239.2	16.4	12.4	68.7	5.17
スギ	MUF	55	229.5	241.9	12.4	9.4	51.9	3.87
スギ	MUF	55	231.1	243.1	12.0	9.0	50.3	3.72
スギ	PF	85	206.2	225.9	19.7	15.2	84.7	6.75
スギ	PF	85	215.0	235.2	20.2	15.6	86.8	6.64
スギ	PF	70	219.4	237.0	17.6	13.6	75.6	5.74
スギ	PF	70	225.7	242.6	16.9	13.1	72.6	5.39
スギ	PF	55	229.1	242.0	12.9	10.0	55.4	4.12
スギ	PF	55	231.2	245.0	13.8	10.7	59.3	4.36
アカマツ	MUF	70	332.7	350.3	17.6	13.1	72.7	3.74
アカマツ	MUF	70	326.8	343.7	16.9	12.6	69.8	3.66
ラワン	MUF	70	183.5	191.1	7.6	5.7	70.7	2.96
ラワン	MUF	70	187.1	194.9	7.8	5.8	72.5	2.98

4. 3. 2 糖ベース接着剤の合板への展開と要素技術の検討

4.3.2.1 塗布面パターンと予備乾燥の影響

表3-3にSuc:PTSA=90:10の接着剤を140℃で熱圧した場合の接着成否を示す。接着剤の両面塗布と片面塗布を比較すると、パンク（接着工程の水分蒸発や縮合反応で発生した蒸気圧が接着凝集力より大きい場合、プレス解圧後に接着層の剥離や膨れとなる接着不良）の発生率は両面塗布で顕著となり、接着剤塗布量とパンクの発生頻度は比例した。一方、予備乾燥なしと有りでは後者でパンクの発生頻度が低下し、塗布量は片面塗布60g/m²以上+60℃24時間の予備乾燥でパンクの発生が認められなくなった。両面塗布は接着剤のぬれが促進されるため、使用量削減に有効だが、糖ベースの接着剤には現状であまり適さないことが明らかとなり、従来の合板と同様に片面塗布での運用が望ましく、かつ、予備乾燥工程の導入が有効と判断された。

また、Suc:PTSA=90:10の接着剤を用いた場合の、熱圧前の中板（接着剤塗布単板）の含水率と合板の厚さ減少率には、正の相関が確認された。単板の含水率が低いほど、熱圧による木材軟化が抑制されて合板の厚さ減少が抑えられることが一般的に知られており、接着剤塗布単板の予備乾燥で得られる副次的な利点を確認された。

表3-3. 140℃熱圧における接着不良と接着条件. Suc:PTSA = 90:10

	予備乾燥	塗布量 (g/m ²)	試験回数 (1-3回目)
両面塗布	なし	15	△××
		30	○××
		60,120	×××
	20℃ 1週間	15,30	○××
		60,120	○××
		60℃24時間	15
30	○△×		
60,120	×××		
片面塗布	なし	15	△△△
		30	○○×
		60	○○×
		120	○××
	20℃ 1週間	15	△△×
		30	○△△
		60,120	○○○
		40℃ 24時間	15
	30		△△△
	60,120		○○○
	60℃ 24時間		15
		30	○△△
60,120		○○○	

○：接着試験可能, △：未接着, ×：パンク発生

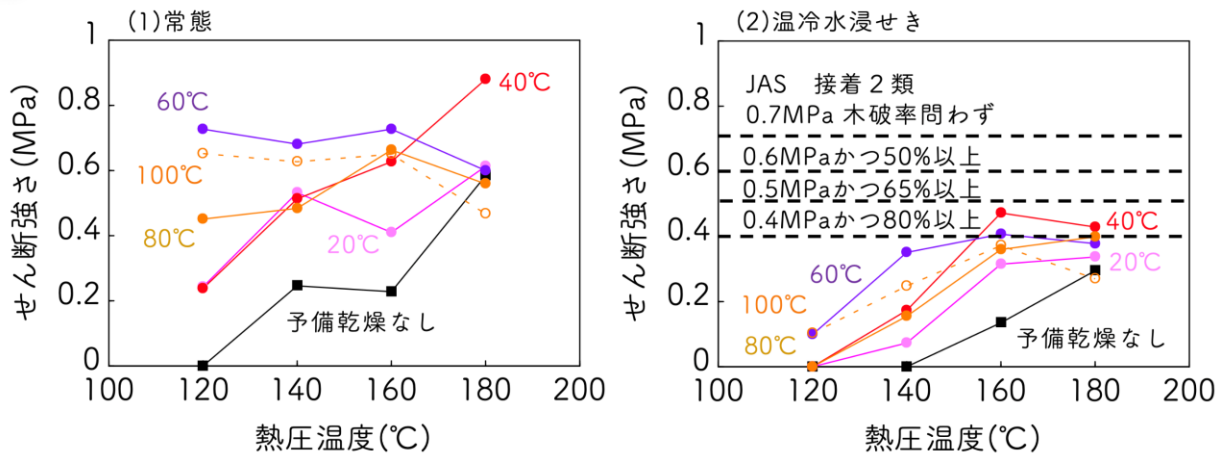


図3-22. 予備乾燥を行った合板の接着強さと接着条件の関係 (片面塗布, 塗布量60g/m²)

図3-22にSuc:PTSA=90:10の接着剤を用いた場合の接着強さに予備乾燥および熱圧温度が及ぼす影響を示す。予備乾燥なしはいずれの予備乾燥ありの条件よりも接着強さが低かった。また、予備乾燥60°C、熱圧温度140°Cの条件は予備乾燥なしの熱圧温度180°Cの接着強さとほぼ等しく、予備乾燥によって、より低い熱圧温度で成板可能なことが確認された。予備乾燥60°C以上では熱圧温度180°Cの常態せん断強さが低下傾向にあった。これは、単板の過乾燥や接着剤の前硬化の影響が考えられ、適度な乾燥条件範囲のあることが示唆された。また、本条件では日本農林規格(JAS)で定められている接着2類の耐水性能を満たすことが出来なかったため、次にCAを含めた糖ベース接着剤の配合条件の検討を進めた。

4.3.2.2 合板向け糖ベース接着剤の配合比

クエン酸(CA, C)、スクロース(Suc, S)、パラトルエンスルホン酸(PTSA, P)の配合比を様々なにした合板に関して、接着剤塗布量13および25g/m²ではいずれの配合比および熱圧温度でも熱圧プレス後にパンクおよび接着剥離が生じて成板が不安定であった。一方、50g/m²以上で成板の安定性は向上した。図3-23に接着剤の各種配合比と熱圧温度における常態および耐温水接着強さを示す。PTSA(P)を添加しないCA(C)とSuc(S)の配合条件では、C75S25(C:S=75:25)の条件が140°Cの熱圧温度で高い接着強さを発現し、かつ、耐温水接着強さも高かった。これは、梅村らの先行研究による配合比と合致した。また、Pを添加することで、より低温の熱圧温度でも常態接着強さが発現し、かつ、耐温水接着強さも改善された。特に、S90P10(S:P=90:10)あるいはC24S74P2(C:S:P=24:74:2)の条件で熱圧温度120°Cでの常態接着強さの発現が確認され、P添加の有効性が示された。パラトルエン酸は強酸のため、スクロースやヘミセルロースの分解+重合反応を促進させること、さらにクエン酸のカルボキシル

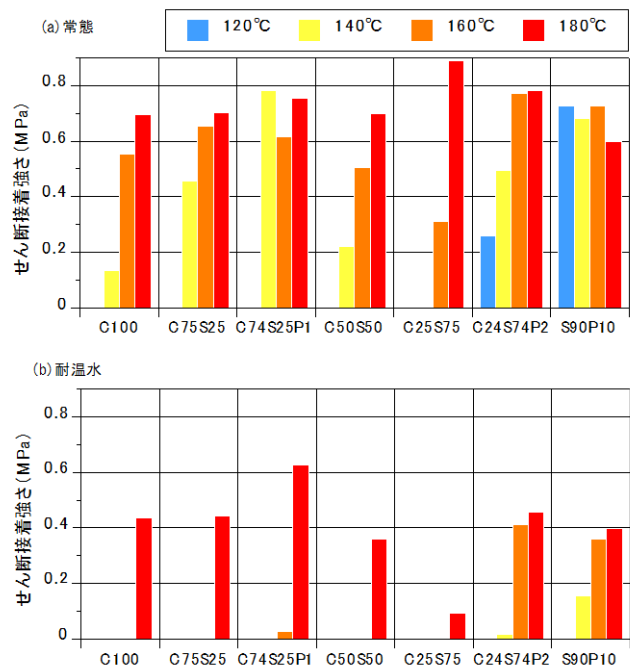


図3-23. スギ合板の常態および耐温水試験後の接着強さ (接着剤塗布量50g/m²)

C:クエン酸, S:スクロース, P:パラトルエンスルホン酸

基と糖由来の水酸基のエステル化反応が生じることが要因として挙げられる。天然系接着剤の合板産業への適用目安の一つとして、プレス温度の適合が挙げられる。今回、現行のJAS 2類の接着強さは0.7MPa以上が要求され、本基準のクリアが適わなかったが140℃の熱圧温度で常態および耐温水接着強さの発現が確認されたことで実用展開の可能性が示された。

5. 研究目標の達成状況

サブテーマ3の研究目標に対する達成状況は以下の通りである。

目標3-1	合板等の既存木質材料に微量塗布接着技術を適用した際の材料性能への影響
達成状況	<p>代表的な木質材料であり生産量や接着剤使用量が最も多い合板を用いて、接着剤塗布量を従来塗布量からその約1/10まで数段階に設定して、JAS規格に定める性能試験（常態接着性能試験と接着耐久性試験）を実施し、以下の結果を得た。</p> <p>従来塗布量を5割程度まで減じることはJAS規格で用途無制限で使える性能を十分に有しており、塗布量を1/10に減らした場合も、これにほぼ相当する性能が得られる可能性が高いことを明らかにした。また、樹種変動や単板含水率制御に対する知見など、実生産への実装に向けた多くの知見が得られた。</p>
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	<p>1) 常態接着性能：（針葉樹でのJAS規格基準 0.7 MPa以上） 従来塗布量の約1/10 基準を満たす（図3-8で 1 MPa超、スギ）</p> <p>2) 接着耐久性：（針葉樹でのJAS規格基準 72時間連続煮沸後に 0.7 MPa以上） 従来塗布量の3割減 基準を満たす（0.73 MPa 図3-9、スギ） 従来塗布量の5割減 基準を満たす（0.9 MPa 図3-16、スギ） 従来塗布量の約1/10 ほぼ基準に相当する（0.68 MPa 図3-9、スギ）</p> <p>3) 樹種の影響：基材となる単板の樹種の力学的強度が強いほど接着性能は高い。 アカマツ 約1.5 MPa 従来塗布量の接着耐久性（図3-18） スギ 約1.0 MPa 従来塗布量の接着耐久性（図3-16）</p> <p>4) 単板含水率の影響：単板の含水率が低すぎても高すぎても接着性能は低下する。接着性能に関し、単板含水率には、最適な範囲がある（図3-17）。</p>
目標3-2	実生産に適用できる可能性のある塗布技術の検討
達成状況	<p>新たな塗布技術として超音波霧化技術を応用した塗布技術を検討し、糊液選択の広範さや塗布効率、メンテナンス性（目詰まりを起こさない）において、実験的に使ったインクジェット法や工業的に使われているエアスプレー法に対して優位性を持つことを確認できた。比較的新しい技術であり、コスト面などの課題は残るものの、将来的に十分に実用化しうる技術的可能性を見いだすことができた。</p>
自己評価	目標どおりの成果をあげた
エビデンス	<p>図3-21：接着剤の塗布効率を比較し、超音波霧化技術で効率ほぼ100%に対し、エアスプレー法では80%から90%にとどまった。</p>
目標3-3	接着剤塗布以外の生産時排出量に対する影響を評価する。
達成状況	<p>合板に微量塗布技術を適用した際に、接着剤使用量そのものが減る効果に加え、以下の副次的効果が見出された。</p> <p>1) 熱圧時間を1/2まで短縮できる可能性 2) 熱圧時の部減りをほとんどなくせる可能性 3) 単板の乾燥負荷の軽減の可能性</p> <p>以上のように、工程由来のCO₂排出量削減や工業的な課題解決に資する多くの知見を見いだすことができ、目標を大幅に超えた成果が得られたと考えている。</p>

自己評価	目標を大きく上回る成果をあげた
エビデンス	<p>1) 熱圧時間を1/2まで短縮できる可能性：図3-11 従来法のロール塗布で675秒かけて到達する温度に、微量塗布では320秒で到達。接着剤塗布量が少ないため、接着剤が持ち込む水分が少なく、温度上昇が早い。</p> <p>2) 熱圧時の部減りをほとんどなくせる可能性：図3-12および本文 従来法では圧縮前の合板の厚さ15 mm から、プレス時に13 mm程度まで下がり、最終的に得られる合板の厚さは13.8 mm 微量塗布法では、プレス時に14.5 mm程度まで下がり、最終的に得られる合板の厚さは14.9 mm であった。</p> <p>3) 単板の乾燥負荷の軽減の可能性：図3-17 単板含水率は高すぎても低すぎても接着性能の低下を引き起こす。従来塗布法では接着剤が持ち込む水分が多いため、接着剤塗布前の単板の含水率を5%以下にまで乾燥させ、接着剤塗布後の単板含水率が高すぎることがないようにしていた。一方、微量塗布法においては、接着剤が持ち込む水分が少ないため、接着剤塗布前の単板の含水率が5%よりも高くても接着性能を維持できる。図3-17より、塗布前の単板含水率を6.5%から13%としても接着性能を維持した。 したがって、塗布前の単板含水率の条件を緩和（5%まで減らさなくてもよい）できると見込まれる。</p>

以上の結果から、サブテーマ3の研究成果は、装置等の整備を進めればかなり早期に社会実装できる技術であると自己評価している。一方で本研究が、日本の木質パネルの2/3を占める合板を対象とした技術に関するものであり、その業界的・社会的インパクトが相当に大きいことから、慎重な情報発信が必要であること、また長期信頼性など、研究期間内に検討しきれなかった課題について、さらなる知見蓄積の必要性も感じている。

6. 引用文献

- 1) 山内秀文, 梅村研二：インクジェット法を用いたフェノール樹脂接着剤の微量塗布技術（第1報）塗布装置の概要および接着剤塗布量と接着性能の関係, 木材学会誌, 61(6), pp. 379-385 (2015)
- 2) 経済産業省「2019生産動態統計年報 資源・窯業・建材統計編」
- 3) 農林水産省「令和2年度森林・林業白書」
- 4) 日本接着剤工業会「2019年度 接着剤の種類別生産量および用途分野別出荷量推移」
- 5) (株)オーシカ「ディアノール117技術資料」
- 6) 山内秀文, 梅村研二：インクジェット法を用いたフェノール樹脂接着剤の微量塗布技術(3)-インクジェット法に代わる塗布手法開発の可能性-, 第61回日本木材学会大会要旨集, Vol. 61th Page. ROMBUNNO. I18-05-1445 (2011)
- 7) 農林水産省「合板の日本農林規格」, 平成26年2月（農林水産省告示第303号）改訂版
- 8) 日本工業規格 JIS K 6851「接着剤の木材引張利せん断接着強さ試験方法」, 1994年
- 9) (株)オーシカ「2012年接着講習会資料」
- 10) Hidefumi Yamauchi, Shuichi Kawai and Hikaru Sasaki : Rheological Properties of Laminated Veneers Durin Hot-Press, Wood Research, 82, pp.40-42(1995)
- 11) 日本木材加工技術協会編「木材の接着・接着剤」, 1997年
- 12) 荒川亮, 伊藤亮, ほか：ボルト締め式ランジュバン型振動子を用いた超音波霧化における安定化に関する基礎研究, 2019年度精密工学会秋季大会学術講演論文集, p. 322-323(2019)

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) 足立幸司, 山内秀文, 梅村研二, 平井康宏, 矢野順也, 酒井伸一：第39回日本木材加工技術協会年次大会講演要旨集, 旭川, (2021) (ポスター発表)
「糖ベースの接着剤を用いた合板の製造条件と接着性能」

(2) 口頭発表（学会等）

【サブテーマ1】

- 1) 平井康宏, 竹内直輝, 矢野順也, 酒井伸一：第15回日本LCA学会研究発表会（2020）
「木材用接着剤のマテリアルフロー推定」
- 2) 竹内直輝, 土谷悠真, 平井康宏, 矢野順也, 酒井伸一：第31回廃棄物資源循環学会研究発表会（2020）
「木材用接着剤の物質フローモデル推定」
- 3) 土谷悠真, 竹内直輝, 平井康宏, 矢野順也, 酒井伸一：第16回日本LCA学会研究発表会（2021）
「住宅残存率関数の検討および住宅における木材接着剤のストック・フロー推定」
- 4) Hirai Y, Tsuchiya Y, Takeuchi N, Yano J, Sakai S: The 7th 3R International Scientific Conference, online (2021)
“Reanalysis of Production Statistics on Wood-based Materials and Wood Adhesives in Japan by Data Reconciliation Method”
- 5) Takeuchi N, Tsuchiya Y, Hirai Y, Yamauchi H, Adachi K, Umemura K, Yano J, Sakai S: The 7th 3R International Scientific Conference, online (2021)
“Fossil Carbon Content in Wood-based Materials Estimated by Elemental Analysis”
- 6) 竹内直輝, 平井康宏, 第32回廃棄物資源循環学会研究発表会（2021）
「木質ボード中の合成系接着剤濃度推定」
- 7) 平井康宏, 第41回木材接着研究会（2021）
「木質材料からの温室効果ガス排出量の算定」
- 8) 竹内直輝, 平井康宏, 第17回日本LCA学会研究発表会（2022）
「工場へのアンケート調査に基づく合板及びLVLの製造段階におけるCO₂排出量推定」
- 9) Hirai Y, Takeuchi N, Yano J: The 8th 3R International Scientific Conference, online (2022)
“Estimation of Fossil Carbon in Wood Adhesives and Evaluation of the Effects of Reduction Measures”

【サブテーマ2】

- 10) 酒井俊佑, 田中聡一, 金山公三, 梅村研二: 第70回日本木材学会大会 (2020) (開催中止)
「p-トルエンスルホン酸を添加したスクロースの熱硬化特性」
- 11) 酒井俊佑, 梅村研二: 第58回一般社団法人日本接着学会年次大会 (2020) (開催中止)
「p-トルエンスルホン酸を添加したスクロースの熱硬化特性および木材用接着剤への応用」
- 12) 酒井俊佑, 安藤大将, 梅村研二: 日本木材加工技術協会第38回年次大会 (2020) (開催中止)
「スクロース/p-トルエンスルホン酸の混合比を変えて接着したパーティクルボードの物性評価」
- 13) 酒井俊佑, 安藤大将, 梅村研二: 第71回日本木材学会大会 (2021)
「p-トルエンスルホン酸を添加したスクロースの硬化特性とパーティクルボードの物性評価」
- 14) 酒井俊佑, 松尾美幸, 梅村研二: 第72回日本木材学会大会 (2022)
「スクロースとp-トルエンスルホン酸を接着剤に用いたパーティクルボードの物性に及ぼすリン酸二水素アンモニウムの添加効果」

【サブテーマ3】

- 15) 山内秀文, 足立幸司, 丹健二, 江藤真人, 伊藤晃喜: 第70回日本木材学会大会 (2020) (開催中止)
「超音波霧化技術を用いた接着剤の微量塗布技術」
- 16) 足立幸司, 安藤大将, 山内秀文, 梅村研二: 第31回日本MRS年次大会 (2021)
「合板利用に向けた糖ベース接着剤と接着技術の開発」

(3) 「国民との科学・技術対話」の実施**【サブテーマ1, 2, 3】**

- 1) 京都大学アカデミックデイ2019 (2019年9月15日、京都大学百周年時計台記念館、来場者518名) にて、企画「研究者と立ち話」で、「合板の接着剤を1/20に減らす」と題してポスター展示

(4) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(5) 本研究費の研究成果による受賞**【サブテーマ1】**

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

第71回日本木材学会大会学生優秀口頭発表賞 (接着・化学加工部門)

○酒井俊佑, 安藤大将, 梅村研二: p-トルエンスルホン酸を添加したスクロースの硬化特性とパーティクルボードの物性評価, 一般社団法人日本木材学会、2021 (令和3) 年3月21日

【サブテーマ3】

特に記載すべき事項はない。

IV. 英文Abstract

Estimation and Reduction of Greenhouse Gas Emission from Adhesives for Wood Based Materials

Principal Investigator: Yasuhiro Hirai

Institution: Kyoto University, Kyoto City, Kyoto, JAPAN

Tel: +81-75-753-7706

E-mail: hirai@eprc.kyoto-u.ac.jp

Cooperated by: Akita Prefectural University

[Abstract]

Key Words: Wood adhesives, Wood-based materials, Greenhouse gas inventory, Fossil carbon, Natural adhesives, Sucrose, Low-volume spreading, Ultrasonic atomization, carbon footprint

Wood-based materials contain fossil-derived synthetic adhesives, and fossil-derived CO₂ is emitted during incineration, but until now, no country has quantified this source in the national emission inventory. Therefore, this study aimed to develop a method for estimating CO₂ emissions from wood adhesives and develop natural adhesives and small-volume-spreading techniques to reduce these emissions.

First, we conducted a survey of materials and fuel consumption to plywood and LVL plants to determine the volume of adhesives used by wood material. We also developed an estimation method to determine the fossil-derived carbon content from elemental analysis of N, Na, and Cl in wood materials. Based on this information, a dynamic flow estimation model for wood and wood adhesives was developed. The model estimated that this source emitted 420,000 t-CO₂ in 2020, which will increase to 460,000 t-CO₂ in 2050.

In the development of natural adhesives, we developed an adhesive with a 90% natural product ratio, an easy adjustment method (mixed aqueous solution), and adhesive performance equivalent to type 18 of the JIS standard for particleboard.

In developing small-volume-spreading technology, we confirmed that even if the spreading volume is 1/10 of the conventional level, the ordinal adhesive performance is not affected, and the adhesive durability is almost equivalent to the JAS standard. As a new technology for small-volume-spreading, we found that the ultrasonic atomization technology has the potential to compensate for the disadvantages of conventional small-volume-spreading methods (spray and inkjet methods), such as almost zero application loss and no clogging at the nozzle. Furthermore, as a side effect of small-volume-spreading technology, we found the possibility of reducing the thermal pressure time during plywood production and relaxing the drying conditions for veneers before applying the adhesives due to the reduction of adhesive-derived water content.

Based on the development of natural adhesives and small-volume-spreading technologies, along with the recycling of demolition materials into boards and the lengthening of building life, we estimated the CO₂ reduction by these measures by 2050. The results showed that a total reduction of about 45% is possible. Furthermore, by type of measure, we found that the additional contribution of material recycling is small, while the contribution of the other three measures is significant.