

難接着性木材の接着に関する研究

田村 靖夫

①

難接着性木材の接着に関する研究

Studies on bonding low-gluable Woods

Yasuo Tamura

田 村 靖 夫

# 目 次

第1章 緒言	1
1. 日本の合板工業の現状	1
2. 難接着性木材の現状	3
3. 研究の目的	5
4. コーリヤン茎を利用したボード	6
第2章 合板の耐候性試験	8
1. はじめに	8
2. 試験方法および結果	8
2.1. タイプ1、タイプ2合板のウェザーメーター試験	8
2.2. タイプ2、タイプ3合板の屋外暴露試験	8
2.3. 市販のタイプ1合板の屋外暴露試験	11
3. 考察	11
4. まとめ	14
第3章 フェノール・メラミン樹脂接着剤の検討	15
1. はじめに	15
2. 試験方法	16
2.1. 試料および試験材料	16
2.2. 接着剤の調製	16
2.3. 接着試験	16
2.4. 接着耐久性試験	16
3. 試験結果および考察	16
3.1. 接着剤の調製	16
3.2. フェノール・メラミン樹脂接着剤の硬化性	20
3.3. ユリア樹脂との混合使用	23
3.4. フェノール・メラミン樹脂接着剤の接着耐久性	28
4. まとめ	39

第4章 高含水率単板の接着方法	4 1
1. はじめに	4 1
2. 試験方法	4 1
2.1. 試験材料	4 1
2.2. 熱圧時の接着層温度の測定	4 3
2.3. 合板の接着強さ試験方法	4 4
3. 試験結果および考察	4 4
3.1. 高含水率単板接着時の接着層の挙動	4 4
3.1.1. 接着層粘度および濃度の変化	4 4
3.1.2. 増量剤の効果	4 6
3.1.3. 接着層の温度変化	4 6
3.1.4. 高含水率単板の接着に関する考え方	4 9
3.2. 高含水率単板のバラツキ減少	4 9
3.3. 含水率の異なる単板の組み合わせによる接着法	5 0
3.4. ホット単板の利用効果	5 2
3.5. 接着剤の改良	5 8
4. まとめ	5 9
第5章 防虫合板の接着における単板含水率の影響	6 3
1. はじめに	6 3
2. 試料および試験方法	6 3
2.1. 使用した防虫薬剤	6 3
2.2. 防虫合板の接着	6 4
2.3. クロロデン含有量の定量	6 4
3. 試験結果と考察	6 7
4. おわりに	7 1
第6章 多樹脂含有クルイン材の接着	7 3
1. はじめに	7 3

2. 実験	73
2.1. 接着層の水分挙動と転写率	73
2.1.1. 試料	74
2.1.2. 接着層の水分変化と転写率の測定方法	74
2.2. 多樹脂クルイン単板の接着条件についての検討	75
3. 結果と考察	77
3.1. 接着層の水分変化と接着剤転写率	77
3.2. 接着条件の検討	80
3.2.1. 単板含水率の影響	80
3.2.2. 堆積時間の影響	80
3.2.3. 単板温度の影響	82
4. おわりに	86
第7章 難接着性木材に対する接着面からの改良	89
1. はじめに	89
2. 試料および試験方法	90
2.1. シナ材に関する接着性の改良試験	90
2.1.1. 試料	90
2.1.2. 試験方法	90
2.2. カブル材の接着性改善に関する試験	91
2.2.1. 試料	91
2.2.2. 試験方法	92
2.3. クルイン材の接着性改良に関する試験	93
2.3.1. 試料	93
2.3.2. 試験方法	94
2.4. 針葉樹材の接着性改善に関する試験	94
2.4.1. 試料	94
2.4.2. 試験方法	95
3. 試験結果および考察	96
3.1. シナ材に関する接着性の改良試験	96

3.2. カブール材の接着性改善に関する検討	9 8
3.2.1. カブール合板の接着における特徴	9 8
3.2.2. 抽出成分による接着阻害と接着剤の pH	1 0 0
3.2.3. 接着剤の種類の影響	1 0 5
3.2.4. フェノール樹脂接着剤の耐水性	1 1 1
3.2.5. 接着剤のぬれと転写	1 1 6
3.3. クルイン材の接着性改善に関する検討	1 2 0
3.4. 針葉樹材の接着性改善に関する検討	1 3 0
4. おわりに	1 4 3
第8章 コーリャン茎を使用したボードの製造における接着	1 4 5
1. はじめに	1 4 5
2. 試験方法	1 4 6
2.1. 試験に供した材料	1 4 6
2.1.1. コーリャン茎	1 4 6
2.1.2. 表面材	1 4 7
2.1.3. 接着剤	1 4 7
2.1.4. 含浸剤	1 4 7
2.2. コーリャンボードの製造方法	1 4 8
2.3. 含浸用樹脂の分子量分布の測定	1 4 9
2.4. ボード物性の測定	1 4 9
3. 試験結果および考察	1 4 9
3.1. コーリャンボードの製造方法における問題点	1 4 9
3.2. コーリャン茎の樹脂含浸条件	1 5 2
3.2.1. 茎の前処理、含浸液濃度および含浸時間の含浸率への影響	1 5 2
3.2.2. コーリャン茎の樹脂含浸とボード物性の関係	1 5 3
3.3. 含浸用フェノール樹脂の性状とボード物性	1 6 0
3.4. コーリャンボードの諸物性	1 7 2
3.4.1. コーリャンボードと他の木質ボードとの比較	1 7 2
3.4.2. ボード比重と曲げ強さ	1 7 4

3.4.3. コーリャンボードの比重と曲げヤング率との関係	-----	174
3.4.4. コーリャンボードの比重とはくり強さとの関係	-----	177
3.4.5. コーリャンボードの比重と木ねじ保持力の関係	-----	179
3.4.6. コーリャンボードの寸法安定性	-----	179
3.4.7. コーリャンボード端部の性質	-----	181
4. おわりに	-----	186

第9章 結言	-----	185
--------	-------	-----

## 第1章 緒 言

### 1. 日本の合板工業の現状

わが国にはじめて合板工業が誕生したのは明治40年とされている<sup>1)</sup>。当初は、主に北海道の広葉樹を用いて合板を製造していたが、生産量の増加と共に原木を南洋材に求めるようになった。

大正時代の後半にはすでにラワン合板が作られるようになり、以来、日本の合板工業は南洋材を使用することで発展していくことになった。

第二次世界大戦後には、国内各地に大型の合板工場が建設され、ラワン合板の大量生産が行われるようになった。当初はアメリカなどへの輸出を中心に発展していったが、日本経済の復興と共に、合板の需要も輸出中心から国内需要を賄うことに重点が置かれるようになり、その生産量も図1.1<sup>2)</sup>に記すように急速な増大を示すに至ったのである。

合板の生産量が急増した一因は、これまで2.7～3.0mmの厚みのいわゆる薄物合板が中心であった需要が12mmの厚い合板に転換されるようになったことにある。薄物から厚物への需要転換が行われたことにより、従来よりも低品位の原木をかつ大量に使うようになったことが原木の事情を一変させた。

合板用原木として、ラワンなどの南洋材の輸入が急増していった。当初はフィリッピンを中心に原木が輸入されていたが、フィリッピンにおいて適材が減少するにしたがって、原木の入手先はインドネシアやマレーシアなどの国に移り、セラヤやメランティーなどが輸入されることになった。

これらの産地では、太くて限られた樹種の合板用適材のみを択伐していた。しかし原木の需要が急増し、合板用適材が不足するにしたがってその価格は上昇していった。その結果、安価な直径の細い木材や未利用樹種などを輸入して合板用原木として使用するようになってきた。

また、合板の生産が増加し、企業間の競争が激しくなるにしたがって合板製品の価格が下落するようになり、合板工場はコスト削減のために、ますます安い原木を求めると同時に、単板歩留まりを高めて単板コストの上昇を抑える方策を考えるに至った。

その対応策のひとつとして、いままでは利用されていなかった樹種あるいは使いにくいと敬遠されていた樹種を積極的に合板用の原木として使用する動きがでてきた。それに加

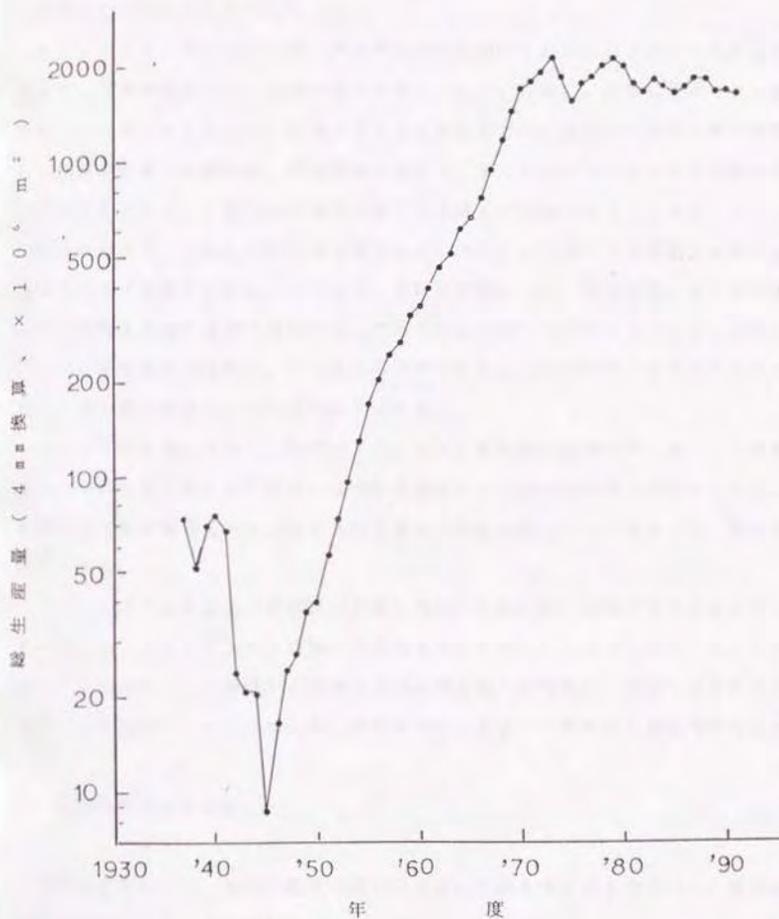


図1.1. わが国の普通合板生産量の推移<sup>2)</sup>

えて単板を乾燥する際に含水率を高めに仕上げ、歩留まりを高め、製品のコストダウンを図る動きもみられるようになった。しかしこれらの対応策は接着に問題を生ずることが多く、製品として出荷したのちに接着不良であることが発見される例が多発した。特にアルカリレゾール型のフェノール樹脂接着剤によって接着したカプール合板の接着不良は大きな問題として知られるようになった。

また、アビトンやクルインは、木材中に油性の樹脂を含むことで知られているにもかかわらず、材質が均質で太い直径の原木が得られやすいために、合板に使用されて接着不良を起こしたケースもあった。単板歩留まりを高める目的で意識的に高含水率の単板を使用して合板を接着した場合は、接着性能の低下や、ふくれやパンクなどの不良品の多発などの問題を起こして、工場の品質管理の面での問題まで指摘されることもあった。

近年に至って、これまで南洋材を輸出していた国が、自国の工業振興のために、原木の輸出を禁止する動きを取るようになり、木材の事情は大きく変化した。また地球環境の保全および野生生物の保護の観点から、森林の保護が強く叫ばれるようになったこともあって、特に熱帯雨林の伐採は、その森林の破壊がさらには自然破壊にまで結びつくとして世界的に強い関心を寄せられる状況になってきた。

そのような影響を受けて、比較的入手しやすい針葉樹を合板原木に使うことが考えられて、日本の合板工業でも針葉樹から合板を製造する技術開発の努力が始められた。針葉樹は植林が可能な樹種であり、半永久的な森林の利用を考えていく場合でも、理にかなった選択である。

従来、日本の合板工業は南洋材の利用を前提に工場設備の設置を進めてきたが、針葉樹を使用することにより、その設備や接着剤までも変わってくるようになった。しかし、東南アジアを始めとした地域から安価な合板の製品輸入が増加し、最近ではそれらと競合しながら生き延びていかねばならない深刻な状況にあるのが日本の合板工業の現状である。

## 2. 難接着性木材の現状

難接着性木材とは、通常の接着作業では接着に問題を生ずるものをいい、接着に際して特別な配慮を必要とする木材のことをいう。

接着が難しい木材には大別して次のような種類がある。

- (1) 本来は接着性に問題はないが、乾燥処理が不適当なために接着しにくい木材、すなわち高含水率木材および過乾燥木材。
- (2) 軽軟な材質を有して木材自身の力学的要因により接着強度が低い樹種や、高比重な材質で膨脹収縮率が大きい樹種。
- (3) シナやカブールのごとき材質的に接着剤の浸透性が強く、欠膠を生じやすい樹種。
- (4) 特殊な化学成分を含み、接着剤との親和性に劣る樹種、ならびに接着剤の硬化反応を阻害する成分を含む樹種。また乾燥時に熱変性を受けやすい成分を含み、乾燥により接着阻害成分を生じせしめる樹種もこの範ちゅうに属する。

接着を困難にする要因には、接着剤とのぬれ（親和性）や、樹脂の硬化反応への影響、接着層に与えられる過度のひずみ、木質強度の脆弱さなどがあり、樹種によってそれらの要因が異なってくる。また、複数の要因を重ね持つ樹種もあり、南洋材のなかには乾燥条件によって接着不良の要因が強く現れてくるものもある。

さらに、用いる接着剤によって難接着性を示す樹種が違ってくる。例えば、唐沢は南洋材の難接着性を接着剤ごとに次のように分けている<sup>2)</sup>。

- (1) アミノ系樹脂接着剤にて問題がある樹種：リツエア、アビトン、クルイン、アンペロイなど。
- (2) フェノール樹脂接着剤で問題がある樹種：カブール、マラス、カロフィルム、ニュージールランドビーチなど。
- (3) 両接着剤にて問題がある樹種：グメリナ、チーク、ターミナリア、ジェルトン、エリマなど。

ダグラス・ファー、カラマツ、エゾマツ、スギなどの針葉樹材はフェノール樹脂接着剤によって比較的よく接着するが、アミノ系樹脂接着剤を用いて接着するときには注意を必要とする樹種である。

使用する樹種によって接着剤を使い分けることができれば、難接着性の問題は軽減されることになる。しかし、実際の工業的規模になると、これらの樹種が混合使用される場合が多く、接着剤を使い分けることが不可能である。

難接着性といわれる樹種でも、その産地や生育条件、また辺・心材の部分によって接着性の程度の差があることはたびたび経験することである。それゆえ、難接着性木材の接着性改善のためには、接着剤の選択および改良のみならず、使用する木材の乾燥条件などを

含めた幅広い作業条件の改善も考えて行く必要がある。特に乾燥条件は単板表面の接着性を著しく変えるだけに、十分な配慮が必要になる。

### 3、研究の目的

本研究の目的を一言でいうと、事業環境の変化に対応する日本の合板工業の接着面におけるニーズに答えることである。

日本の合板工業の成長期であった1960年代においては、世界的にも類を見ないほど薄物合板の製造が盛んな時期であり、薄物合板の高品質化、および耐久性の向上などが強く要求された時期であった。

その当時は、ダグラス・ファー合板の接着耐久性などに関する報告<sup>1)</sup>は散見されたが、南洋材について、特に薄い表面単板を用いた合板の接着耐久性がどのようになるのか、明確なデータは少なかった。そのために、各種のホルムアルデヒド系接着剤を使用して接着した薄物合板の接着耐久性能を、種々の表面処理方法の効果を含めて確認することが必要であった。その結果に基づいて日本の使用状況に適する接着剤の開発を進めていくことが必要であった。

またその当時は、アメリカの合板工業の例を引用して、日本においてもやがてフェノール接着剤が使用される時代が来るとして、南洋材の接着にフェノール樹脂接着剤を使用して高耐久性合板（下見板）を生産しようとする動きもあった。しかしその結果は、大量の接着不良合板が発生する失敗を経て、南洋材に接着に対するフェノール樹脂接着剤のむずかしさを痛切に感ずることになった。

その原因を追求するなかで、カプール材が難接着性木材であること、またフェノール樹脂接着剤によって接着したときに特に問題が大きくなることなどが判明した。その反省から、原木に南洋材を使用することで発展してきたために、日本の合板工業の工場設備はアミノ系樹脂を使用することを前提として設計されてきたことに改めて気が付き、カプール材の接着に適合して、かつアミノ樹脂接着剤なみの製造条件で合板が生産できる接着耐久性のよい接着剤の開発が強く望まれるに至った。

この時期は、合板が構造用建築材料として認められた時期と重なり、日本の合板の品質が大きく変化した時期でもあった。そのような背景にあって、速硬化性のフェノール樹脂の研究を進めるなかでフェノール・メラミン樹脂接着剤の開発に成功した。この接着剤は

生産性の向上と構造用合板の品質安定化を可能にさせることで、合板業界に大反響を巻き起こした。以後、合板用接着剤メーカーの大部分がフェノール・メラミン樹脂あるいはメラミン・フェノール接着剤を生産するに及んだ。

日本経済の高度成長と共に発展した合板工業の成長末期には、第1次および第2次石油ショックを経て、合板用原木の高騰、需要減退による合板製品価格が下落した。生産コストの引き下げのために、高含水率単板の使用による単板歩留まりの向上を考える動きとなり、高含水率単板の接着が可能なる接着剤の開発および接着方法の改善に対する要望が強まった。それと同時に合板の腐朽、虫害の問題が大きく取り上げられるようになり、接着剤に防菌防虫薬剤を添加する方法による合板の防菌防虫処理法が行われた。

高含水率単板の接着を研究するなかで、そのような単板を使用したときのプラス面として、木材内部への防虫薬剤の浸透が促進されることを見出した。この結果は防虫薬剤の接着剤添加法による防菌防虫処理方法を普及させる一助になったものと考えている。

増大する日本の合板原木需要を賄うために、これまで利用されなかった樹種や油性成分を含む原木を使いこなす必要に迫られ、樹脂（やに）を含む難接着性木材の接着方法に対する要求が高まった。そのうえ、南洋材の入手難と地球環境の保護の動きに影響されて、わが国の合板工業では未経験に近かった針葉樹材の利用も考えることが必要になり、現状の設備にあまり手を加えずにその目的のため、フェノール・メラミン樹脂接着剤を利用した接着方法の研究を行った。

これまでの一連の研究から、フェノール・メラミン樹脂の開発が難接着性木材用接着剤として極めて有効であることを認識した。さらに針葉樹の接着にも有力な接着剤として利用できることがわかったことは研究の大きな成果であった。

そこで、通常の接着条件では接着が困難な難接着性木材の範ちゅうに入る高含水率単板の接着も含めて、これまでの研究の成果をまとめて報告すると共に、さらに深刻化が進む木材事情への対応策として農産廃棄物であるコーリャン茎を利用して合板を製造する技術開発を行ったので、その結果を併せて報告することにした。

#### 4. コーリャン茎を利用したボード

木材の不足を補う代替物として農産廃棄物や1年植物の有効利用が考えられている。すでにサトウキビの搾りかすであるバガスを利用したバガスボードは実用化され、世界の各

地で生産されている。

農産廃棄物や1年植物の茎などをチップやファイバーにしてボード原料に利用する研究には、アシ、ムギわら、もみ殻、ワタの茎、ビートかすや竹を使用した報告<sup>5)6)</sup>があり、最近ではヒマワリの種皮を使用する試み<sup>7)</sup>もなされている。しかし、これらの報告はいずれもパーティクルボードやファイバーボードへの利用を目的としたものであり、チップやファイバーに加工する際に繊維間の結合を損ねたり、切断してしまうため、合板のように自然の繊維強度を生かした材料にはなり得ない。

コーリヤン茎の繊維をできるだけ自然のままの状態を利用してする方法<sup>8)</sup>は軽量で優れた強度を有するボードになる。茎の繊維方向を合板のように組み合わせることにより、強度の方向性が少ないボードが得られる。

しかし、コーリヤン茎の表皮にはワックス層があるために接着が困難という問題がある。また茎の髄は発泡体のように大きなセルから成り極めて軽軟であるために、その部分で破壊されやすいという問題もある。それゆえ、コーリヤン茎を使用してボード化するに際しては、まず、それらの諸問題を解決することが前提条件になる。

コーリヤンの茎はまさに難接着性材料のひとつに位置付けられるものであり、その接着性の改善と髄部の補強方法を検討することによって、いくつかの特徴を有し合板に近い性質を持ったボードが得られたので、その結果を報告する次第である。

#### 引用文献

- 1) 日本合板工業組合連合会：「合板七十五年史」、p.39、(1983)
- 2) 日本合板工業組合連合会統計資料
- 3) 唐沢仁志：木材工業、32、509(1977)
- 4) 例えば、F.L.Northcott: Adhesives age, 7(10), 34(1964)
- 5) W.Heller: Holz Roh Werkst., 38, 393(1980)
- 6) C.Richter: Holz Roh Werkst., 51, 235(1993)
- 7) C.Boehme: Holz Roh Werkst., 51, 319(1993)
- 8) 特開昭63-107505、特開平1-280538

## 第2章 合板の耐候性試験

### 1. はじめに

合板の耐候性試験に関する報告は従来から散見される<sup>1)</sup>が、厚さ1mm前後の薄い表裏単板を使用した薄物ラワン・タイプ1合板について屋外暴露試験を行った例は少ない。また耐候性の促進試験としてウェザーメーターによる促進劣化試験がある。この方法は屋外暴露試験と比べてかなり条件が異なると考えられる。その理由は、屋外暴露試験の際には、屋外に暴露されている合板の表面が風雨によって劣化したり、またはカビなどにより腐朽して木質部の脆弱化がおこる可能性がためである。

そこで3年間の屋外暴露試験を行い、ウェザーメーターによる試験との比較をした結果について報告する。ただし、これらの試験に用いた試料は同一でないので厳密な比較を行う上では問題があるが、二つの試験方法の概略な違いを知ることはできると考えた。

### 2. 試験方法および結果

#### 2.1. タイプ1、タイプ2合板のウェザーメーター試験

試験合板には一流合板工場の市販品を用い、ウェザーメーターは東洋理化製のものを使用した。暴露条件は温度65～70℃、関係湿度40%、降雨条件は18分で1サイクル120分とした。この条件による処理時間が216時間で屋外暴露1年間に相当するとして、その結果を表2.1に示した。

ウェザーメーターによる促進劣化試験では、タイプ1およびタイプ2合板とも、1年相当の暴露期間において接着強度の低下は少ない結果であった。タイプ2合板でも12ヶ月後には10Kg/cm<sup>2</sup>以上の強度値を示していた。

#### 2.2 タイプ2、タイプ3合板の屋外暴露試験

小麦粉や脱脂大豆粉で増量したユリア・メラミン樹脂接着剤によって接着した合板を屋外南面向き45°に傾斜させて1年間暴露し、JAS規格の常態および温冷水試験により接着強さの経日変化を調べた。その結果を表2.2に記した。

短期間の屋外暴露試験によると、増量剤による増量の少ない糊液の場合、1年後の接着

表2.1. タイプ1、タイプ2合板のウェザ-メーター試験結果

試料合板	屋外暴露相当期間			
	スタート時	3ヶ月	6ヶ月	12ヶ月
タイプ1合板	21.4(83)	20.0(85)	19.4(83)	20.0(69)
タイプ2合板	17.3(79)	14.6(48)	14.1(61)	11.8(15)

- (注) 1) 合板接着強さ単位:  $\text{Kgf/cm}^2$ 、カッコ内は木破率(%)  
 2) 接着強さは試験片20片の平均値  
 3) タイプ1合板はフェノール樹脂接着剤(豊年 P-200)使用、3時間煮沸処理後の接着強さ  
 4) タイプ2合板は尿素・メラミン共縮合樹脂接着剤(豊年 UW-3)使用、JAS規格に規定するタイプ2試験

表2.2. タイプ2およびタイプ3合板<sup>1)</sup>の屋外暴露試験結果

試験 No.		(1)	(2)	(3)
配 合 (部)	ユリア・メラミン 共縮合樹脂接着剤 <sup>2)</sup>	100	100	30
	小麦粉	50	—	100
	低温脱脂大豆粉	—	13	—
	水	65	—	160
	硬化剤 <sup>3)</sup>	5	5	5
塗付量 (g/m <sup>2</sup> )		330	154	407
常態接着強さ <sup>4)</sup>				
	屋外暴露0ヶ月	21.4(100)	20.5(100)	15.0(48)
	4ヶ月	15.8(54)	16.4(88)	3.7(5)
	12ヶ月	2.9(0)	14.9(30)	0(0)
温冷水浸せき接着強さ <sup>4)</sup>				
	屋外暴露0ヶ月	11.5(1)	16.9(66)	2.0(0)
	4ヶ月	9.6(5)	16.4(86)	0(0)
	12ヶ月	2.2(0)	11.8(20)	0(0)

(注) 1) 3mm厚さのラワン合板

2) 豊年製油製 UM-3

3) 塩化アンモニウム 20部、濃塩酸 10部、水 100部の溶液

4) 試験片20片の平均値、接着強さ単位 Kgf/cm<sup>2</sup>

カッコ内は木破率(%)

強度は初期の数値のおよそ70%を維持していた。しかし増量度が高い糊液を使用するようになると、短期間のうちの劣化を生ずる。

### 2.3 市販のタイプ1合板の屋外暴露試験

市販されていた各社のタイプ1合板を購入して屋外暴露試験を行った。暴露条件は南面向き45°に傾斜させて屋外に放置した。そしてJAS規格に規定する煮沸水1回浸せき試験により接着強さの経日変化を測定し、その結果を表2.3 および表2.4 に記した。

入手した試料のうち、A、B社の製品はフェノール樹脂接着剤で接着したものであり、他はメラミン系樹脂接着剤により接着したものである。試験に当たり一部の合板には表面保護の目的でオイルテンパーあるいは防腐処理を行い、またクラフト紙をオーバーレイしたのちオイルテンパーや防腐処理を施した。

フェノール合板の場合は、表単板厚さが薄い薄物合板になると、屋外暴露によって接着強度の低下が大きくなる。その場合表面をオイルテンパーやクレオソート油で処理してもほぼ類似した接着強度の低下を示した。いっぽう表面にクラフト紙をオーバーレイすると接着強度の低下は抑えられる結果になった。

メラミン系合板の場合は、表面処理を施しても屋外暴露1年後に接着強度は大きく低下し、3年後には合板がはくりしていた。

なお、このときの接着強度の試験法では、旧JAS1類の評価方法であり、煮沸水に3時間浸せき処理したのちの接着強度を調べている。

## 3、考察

ウェザーメーター試験によると1年相当の暴露試験後も接着強さの低下は緩やかで、タイプ2合板でも1年相当の促進処理後もかなり高い接着強度を示していた。

また、屋外暴露試験によると増量度の低い接着剤糊液の場合は、1年暴露後もウェザーメーターによる促進試験と同様の接着強さを保持していた。しかし小麦粉などにより高増量した接着剤糊液を使用したものは接着強度が急激に低下して、1年後にはほとんど剥離するような状態であった。

表2.3 および表2.4の結果から明らかなごとく、フェノール樹脂接着剤を使用したタイプ1合板が外装合板としてメラミン系樹脂接着剤によるタイプ1合板より優れている。

表2.3.フェノール樹脂で接着したタイプ1合板の屋外暴露試験結果

製造メーカー	A社		B社			
			オイル テンパー <sup>2)</sup>	防霉剤処理 <sup>3)</sup>	クラフト紙をオーバーレイ オイル <sup>1)</sup>	
合板厚さ (mm)	5.0		3.0			
単板構成 (mm)	1.2 + 3.6 + 1.2		0.5 + 1.6 + 0.6			
前処理	無処理	無処理	無処理	無処理	同左	同左
煮沸1回処理接着強さ <sup>1)</sup>						
屋外暴露0ヶ月		19.3(92)	15.6(92)	同左	同左	同左
6ヶ月		17.8(90)	13.0(84)	14.7(99)	13.9(95)	15.6(88)
1年後		14.9(91)	7.3(100)	8.7(100)	11.0(100)	15.6(98)
3年後		12.6(99)	5.5(100)	6.3(100)	4.8(100)	11.9(98)

(注) 1) 試験片2.0片の平均値、接着強さ単位 Kgf/cm<sup>2</sup>、カッコ内は木破率(%)

2) 変性アマニ油に1~2分浸せし、140~150℃で4時間乾燥。

3) クレオソート油を刷毛で塗付量6~8重量%に塗付。

表2.4. 市販メラミン系樹脂で接着したタイプ1合板の屋外暴露試験結果

製造メーカー	C社		D社	E社		F社		
	無処理	オイル <sup>1)</sup> テンパー		無処理	無処理	防霉剤 処理 <sup>2)</sup>	無処理	オイル テンパー
合板厚さ (m.m)	3.0		3.0	3.0		6.0		
単板構成 (m.m)	0.7 + 1.8 + 0.7		0.7 + 1.8 + 0.7	0.8 + 1.6 + 0.8		1.2 + 3.6 + 1.2		
前処理	無処理	オイル <sup>1)</sup> テンパー	無処理	無処理	防霉剤 処理 <sup>2)</sup>	無処理	オイル テンパー	
煮沸1回処理接着強さ <sup>3)</sup>								
屋外暴露0ヶ月	14.6(34)	同左	13.8(31)	19.2(87)	同左	10.8(41)	同左	
6ヶ月	11.3(43)	11.3(3)	11.7(46)	-	-	-	-	
1年後	4.9(2)	7.8(8)	4.9(9)	5.4(52)	8.6(70)	3.2(6)	5.1(90)	
3年後	0	0	0	0	0	0	0	

(注) 1) 試験片2.0片の平均値、接着強さ単位  $\text{Kgf/cm}^2$ 、カッコ内は木破率 (%)

2) 変性アマニ油に1~2分浸せきし、140~150℃で4時間乾燥。

3) クレオソート油を刷毛で塗付量6~8重量%に塗付。

フェノール樹脂によるタイプ1合板の場合は3年経過したのも木破率は100%近くであった。しかし接着強度は低下しており、屋外暴露によって木質部自体が脆弱化していることが観察された。このような劣化の状態は、ウェザーメーターによる促進試験においては見る事ができない結果であった。

いっぽうメラミン系樹脂接着剤によるタイプ1合板の場合は、初期の接着強度はフェノール樹脂による合板とあまり変わらないが、3年経過すると1回煮沸水処理の試験によって完全に剥離した。また、全般的に3mm合板は屋外に3年暴露することによって、表単板が腐朽ないしは磨耗して薄くなっているのが観察された。

表面保護の目的をもって、オイルテンパーあるいは防腐処理をすることによって、多少の効果はみられたが、改善は不十分であった。クラフト紙をオーバーレイし、そのうえにオイルテンパーあるいは防腐処理をすることによって、耐候性にかんがりの改善効果が認められた。

表面保護を施さない場合は、これらの結果から、表単板を厚くすることが必要であることがわかった。また屋外暴露試験の場合は、接着層の劣化現象に加えて木質部の劣化も目立ち、これがウェザーメーター試験の結果と差異を生ずる原因になっていると考える。

#### 4、まとめ

市販のフェノール樹脂接着剤を用いたタイプ1合板とメラミン系樹脂接着剤によるタイプ1合板について、ウェザーメーターならびに屋外暴露による耐候性試験を行った。

その結果、メラミン系樹脂による合板よりもフェノール樹脂の合板の方が優れた耐候性を有することが確認された。メラミン系樹脂接着剤による合板は、屋外3年暴露後に、ほとんど接着強度を失うことがわかった。またフェノール樹脂による合板は、接着層の劣化というよりも表単板の腐朽あるいは磨耗によって合板自体が著しく脆弱になる。

これらの結果より、合板を外装用途に使用する場合は、腐朽や磨耗に耐えるよう表単板を厚くするか、または表面に何らかのオーバーレイ処理をすることが必要である。

#### 引用文献

- 1) F. L. Northcott: Adhesives age, 7 (10), 34 (1964)

### 第3章 フェノール・メラミン樹脂接着剤の検討

#### 1. はじめに

フェノール樹脂接着剤により接着された合板は、屋外暴露試験によって、優れた耐候性を有することが確認された。一般に合板の接着に使用されるフェノール樹脂接着剤はアルカリレゾールタイプであり、アミノ樹脂接着剤に比べて、熱圧時に高温度、長時間の接着条件を必要とする。

そのために接着時における単板含水率を厳しく規制せねばならず、それが単板の歩留まりを減少させ、合板の製造コストを上昇させる一因になっている。また、アミノ樹脂接着剤の使用を前提にして設計されている日本の合板工場の製造条件に適合し難いために、とかく不良率が増加する原因にもなっていた。

フェノール樹脂接着剤をアミノ樹脂接着剤と同様な条件で接着することは、過去に種々の方策が検討されてきた。

その一つはフェノール樹脂の反応を進め、高縮合度樹脂として使用する方法である<sup>1)</sup>。この方法は速硬化性の接着剤が得られる反面、貯蔵性が著しく低下する、接着剤塗付膜のドライアウト現象が起こりやすくなるなどの欠点が現れる。

酸硬化型のフェノール樹脂を利用する方法も考えられたが、強酸性の硬化剤を配合して使用するため、木材の劣化を引き起こす心配があり、また接着剤の水混和性が悪く、取り扱にくいこと、さらに含水率の高い単板が混入すると、接着剤が浸透して接着性能を低下させるなどの問題もあった。

酸硬化型フェノール樹脂をエマルジョン化することによって木材内部への接着剤の浸透が抑えられる。しかしホルムアルデヒド系樹脂のエマルジョンは、熱可塑性樹脂のエマルジョンに比べて白化しやすく、接着剤の均一な皮膜を形成しにくい。

以上のように、フェノール樹脂接着剤の速硬化性改善の試みは、いずれも成功したとは言えない状況にある。

そこで、フェノール樹脂とアミノ樹脂とを共縮合させることにより、それぞれの長所を同時に引き出し、優れた耐水性能を有する接着剤になるのではないかと考え、共縮合樹脂による接着剤の開発を行った。

## 2. 試験方法

### 2.1. 試料および試験材料

試験に使用したフェノール、メラミン、尿素は工業用グレードのものとし、ホルマリンは41%のものを用いた。また一部の試験には市販のフェノール樹脂、メラミン・ユリア共縮合樹脂およびユリア樹脂接着剤を用いた。

接着試験に際しては、接着剤に小麦米粉および低温脱脂大豆粉を加えて増量した。また単板には主として厚さ1.5mmの南洋材単板を使用した。

### 2.2. 接着剤の調製

接着剤の調製方法の詳細は付表にまとめて記した。反応装置は攪拌機および還流冷却器を備えた三つ口フラスコを用い、ウォーターバスで80℃に加熱して反応させた。

### 2.3. 接着試験

主に卓上型ホットプレスを用いて等厚3プライの合板を調製し、JAS普通合板規格に規定する接着強さ試験方法に準じて試験を行った。

### 2.4. 接着耐久性試験

接着耐久性の評価方法として、30cm×30cmの合板を屋外に南面45°で2年間暴露する屋外暴露試験、ウェザーメーターによる3年相当の促進劣化試験、および煮沸水中に4時間または60℃温水中に3時間浸せきしたのち60℃に保持した乾燥器中にて乾燥する24時間1サイクルの促進劣化試験を行った。

## 3. 試験結果および考察

### 3.1. 接着剤の調製

フェノール樹脂接着剤に低温脱脂大豆粉と小麦粉などを配合して増量して、増量度と耐水接着強度との関係を予備的に検討した結果、図3.1に示すような関係が得られた。

フェノール樹脂接着剤は、メラミン樹脂接着剤と異なり、増量度を高めていったときに

付表. 実験に供した接着剤の詳細

(1) フェノール・メラミン樹脂混合用のフェノール樹脂

フェノール94重量部、ホルマリン225重量部、25%カセイソーダ水溶液10容量部を反応容器に加えて約30分間で温度を80℃まで上昇させる。以後同温度に保持して反応を進め、60分経過後に急速に常温まで冷却した。

(2) フェノール・メラミン樹脂混合用のメラミン樹脂

メラミン252重量部、ホルマリン450重量部、メタノール108重量部、ポリビニルアルコール8.5重量部および25%カセイソーダ水溶液20容量部を反応容器に加えて約30分間で温度を80℃まで上昇させる。以後同温度に保持して反応を進め、60分経過したところで18%濃度のギ酸水溶液を約8容量部加えて反応液のpHを9.0に調整して常温まで冷却した。

(3) フェノール樹脂接着剤

市販の合板用接着剤で豊年製油製 PL-109を使用した。

(4) メラミン・ユリア樹脂接着剤

市販の合板用接着剤で豊年製油製 ML-044を使用した。

(5) ユリア樹脂接着剤

市販の合板用接着剤で豊年製油製 UL-002を使用した。

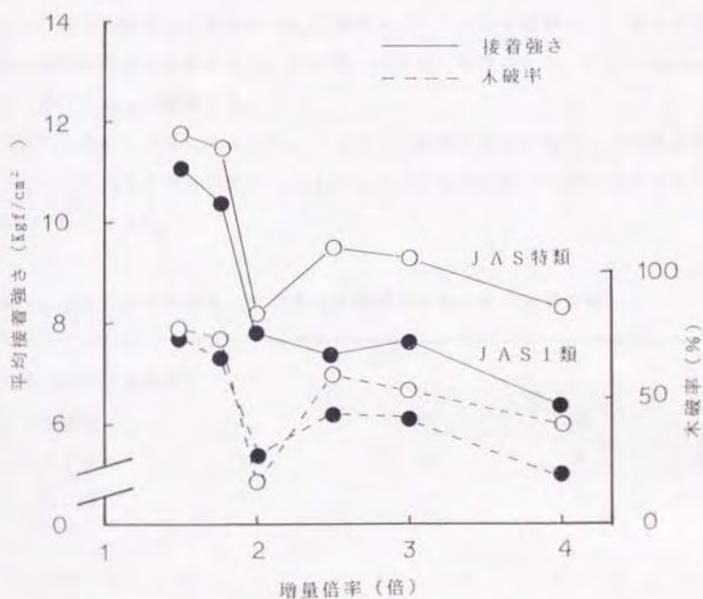


図3.1 フェノール樹脂接着剤の増量倍率と接着強さの関係

注) 増量倍率は樹脂液100部に増量剤と水とを添加したときの糊液総量を樹脂液の倍数で表した数値。

耐水接着強度は緩やかに低下する傾向を示す。増量剤と水とを加えて接着剤の3倍量くらいまで増量しても、JAS特類試験法による耐水接着強さは8 kgf/cm<sup>2</sup>以上の値を示している。

この結果より、例えばフェノール樹脂にメラミン樹脂やユリア樹脂を加えて増量した場合にも、これらのアミノ樹脂をかなりの添加量まで加えてもフェノール樹脂の耐水接着強度は保持される可能性がある、と考えられた。

そこで市販のユリア樹脂接着剤（以下、UF）とフェノール樹脂接着剤（以下、PF）とを種々の割合で配合し、厚さ4.5mmの等厚3プライ合板を調製して、煮沸水に4時間浸せき後の耐水接着強さを測定した。その際、合板は、温度135℃、圧力10kg/cm<sup>2</sup>で4～6分間の熱圧によって接着した。

その結果は表3.1に記したように、フェノール樹脂の硬化が進むように熱圧時間を十分にとると、PF/UFの混合比が1/1のときでも煮沸に耐える耐水接着性能が得られることが明らかになった。

表3.1 PF/UF混合比と煮沸水4時間浸せき後の耐水接着性能

接着剤の配合（重量部）								
PF接着剤	100		50		20		0	
UF接着剤	0		50		80		100	
充填剤	10		10		10		10	
熱圧時間（分）								
	4	6	4	6	4	6	4	6
平均接着強さ <sup>1)</sup>								
	16.6(64)	16.6(98)	5.6(0)	10.2(0)	0	0	0	0

(注) 1) 接着強さ単位：kgf/cm<sup>2</sup>、カッコ内は木破率平均値(%)

表3.1の結果から、さらに耐水接着性能を向上させるために、ユリア樹脂の代わりにメラミン樹脂（以下、MF）を用いると共に、フェノール樹脂およびメラミン樹脂の反応についても検討を行った。

その結果、混合使用する場合、メラミン樹脂の反応時におけるメラミン [M] とホルムアルデヒド [F] との反応モル比  $[F] / [M]$  が 2.0 ~ 3.0 の樹脂では耐水接着性能に大きな差が認められなかった。またフェノール樹脂については、フェノール [P] とホルムアルデヒド [F] との反応モル比  $[F] / [P]$  が高くなるにしたがって耐水接着性能が上昇する傾向がみられた。しかし反応モル比が高くなりすぎると、樹脂の貯蔵性が著しく低下するので、3.0 前後の反応モル比が適当であることが別の試験でわかった。

そこでフェノール樹脂およびメラミン樹脂を 3.0 のモル比で反応させた樹脂を調製し、両樹脂を種々の割合で混合して、それぞれの耐水接着性能を調べた。その結果を図 3.2 に記した。

図 3.2 の結果は厚さ 2.45mm の単板を使用し 120 °C の熱圧温度で等厚 3 プライ合板を接着したものである。メラミン樹脂とフェノール樹脂とを混合するだけで、120 °C の温度下でしかも短時間の熱圧条件により JAS 特類合板の規格に合格する合板が得られることが判明した。

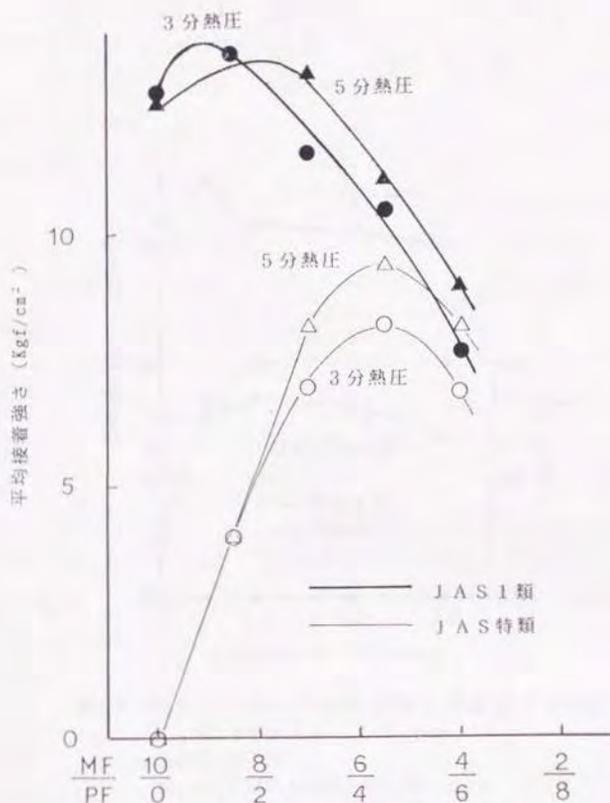
そして MF / PF が 7 / 3 ~ 5 / 5 の割合で混合されたとき、もっとも高い耐水接着強さを示した。また JAS I 類合板の試験においてもメラミン樹脂のみよりもフェノール樹脂が 2 割くらい混合された方が高い耐水接着強さを示すことがわかった。

その際メラミン樹脂とフェノール樹脂とを混合したのち、さらに加熱して共縮合反応を試みたが、接着剤の水混和性が著しく低下して実用性のある接着剤が得られなかった。また水混和性を維持するために縮合度が異なるフェノール樹脂を混合したが、初期縮合物を使用することが必要であった。このような諸点に配慮をすれば、両者を均一に混合するだけで優れた耐水接着性能を有する接着剤になることがわかった。そこで以下に、この接着剤をフェノール・メラミン樹脂接着剤と称することにした。

### 3.2. フェノール・メラミン樹脂接着剤の硬化性

通常のアミノ樹脂接着剤は酸硬化剤を加えて使用する。そこでフェノール・メラミン樹脂（以下、PMF）を使用する際に、硬化剤として塩化アンモニウムを添加して、接着性能に与える影響を調べた。

定法により、塩化アンモニウム粉末の添加量を変えた糊液を調合し、厚さ 2.4mm の単板を接着して等厚 3 プライの合板を調製し、その接着強度を測定した。その結果を図 3.3 に示した。



メラミン樹脂とフェノール樹脂との混合比率  
 図3.2 メラミン樹脂とフェノール樹脂を種々の比率で混合したときの接着強さ

注) 接着条件

合板構成：ラソソ2.45mmの等厚3プライ

单板含水率：6%以下

接着剤糊液：樹脂液100部、小麦粉25部、水6-10部、  
 $\text{NH}_4\text{Cl}$  0.5部、

塗付量：330 $\text{g/m}^2$

熱圧条件：120 $^\circ\text{C}$ 、10 $\text{Kg/cm}^2$ 、3分および5分

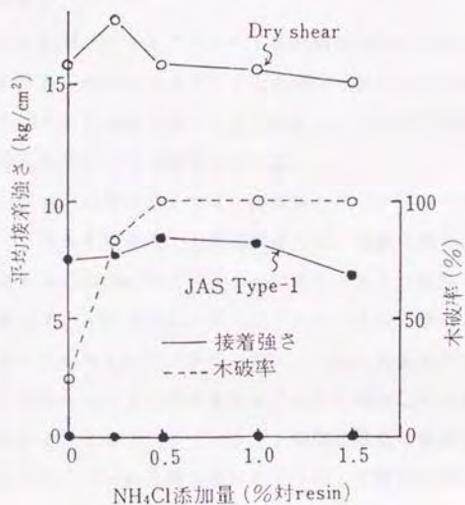


図3.3 塩化アンモニウム添加量と接着強さの関係

材: ラワン 2.4+2.4+2.4mm

含水率: 8~12%

配合: PMF resin 100 wt. part.

小麦粉 20 //

水 15 //

塗布量: 32g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧: 10kg/cm<sup>2</sup>, 15min

熱 圧: 120°C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 3min

図3.3の結果によると、塩化アンモニウムを樹脂液に対して0.5%以上添加することにより常態接着強さにおける木破率および耐水接着性能が塩化アンモニウムを加えないときに比べて若干向上する傾向を示した。フェノール・メラミン樹脂接着剤自体は弱アルカリ性であるが、これに小麦粉を加えると糊液は中性になり、そのpHではメラミン樹脂の硬化反応は進むので、それなりの接着強度が得られる。

塩化アンモニウムを加えることにより糊液のpHが低下してメラミン樹脂の硬化反応がさらに促進されると同時に、アンモニウムイオンがフェノール樹脂の硬化反応を速める効果を示した<sup>2)</sup>と考えられる。

石田らはフェノール・尿素・ホルムアルデヒド系共縮合樹脂の生成反応について検討しており、フェノールと尿素とホルムアルデヒドとを同時に混合して反応する方法よりも、フェノールと尿素とを別々にホルムアルデヒドと反応し、そののち両樹脂を混合して反応の方が共縮合物を得られやすい<sup>3)</sup>と報告している。

また、富田は<sup>13</sup>C-NMRを用いてメラミンや尿素とフェノールとの共縮合について調べ、メラミンとフェノールとを塩基性下で反応させても、共縮合物の生成が認められないが、中性域にて反応させると45ppmのスペクトル付近にメラミン樹脂やフェノール樹脂のメチレン結合と異なるシグナルが出現し、それがフェノールのパラ位と一置換アミノ基とが結合したものであることを示した<sup>4)</sup>。さらにフェノールと尿素との共縮合物の生成は大過剰の尿素と酸性域で反応したときに認められる<sup>5)</sup>ことを報告している。

これらの結果を考えると、フェノール・メラミン樹脂接着剤に酸硬化剤を加えて使用したとき、フェノールとメラミンとの共縮合物が若干生成して接着性能を向上させている可能性も考えられた。

### 3.3. ユリア樹脂との混合使用

合板の接着に使用するフェノール樹脂接着剤は強いアルカリ性であり、酸性下で硬化させるユリア樹脂やメラミン樹脂などのアミノ樹脂接着剤と混合して使用することは行われていなかった。確かに表3.1に記したごとく、ユリア樹脂にフェノール樹脂を加えただけでは優れた耐水接着性能が得られない。

しかし、フェノール・メラミン樹脂接着剤にユリア樹脂を添加すると、JAS特類規格の72時間連続煮沸試験に合格するような優れた耐水接着性能が得られるようになる。

例えば、含水率が異なる厚さ2.0mmのマングシノロ単板を用い、フェノール・メラミン

接着剤にユリア樹脂を種々の割合に混合して等厚3プライの合板を、120℃の温度でわずか2.5分の熱圧時間で接着し、その72時間連続煮沸処理による接着強度を測定した結果を図3.4に示した。

その結果、単板含水率が低いとき、ユリア樹脂を4割くらい混合してもJAS特類規格に合格するような耐水接着強さを示していた。単板含水率が高いときは、当然、耐水接着強さの値は低下する傾向にあるが、それでもかなり高い耐水接着性能を保持していた。

ユリア樹脂を任意の割合で混合することができる性質は、実用的には極めて有用な特長になる。すなわち接着作業を中断することなく、特類合板から2類合板の生産をすることができるようになり、接着機器の洗浄を省いて接着剤や作業時間のロスを防ぎ、洗浄水の排出を減らし、さらには生産性を向上させる効果を持つ。

また、フェノール・メラミン樹脂にユリア樹脂を混合すると、メラミン・ユリア共縮合樹脂をユリア樹脂で希釈するのに比べて、より優れた耐水接着性能が得られるということもできる。

図3.5には、両樹脂に種々の割合でユリア樹脂を混合して、単板含水率が異なるラワン系単板およびカプール単板を用いて合板を接着し、その耐水接着性能をJAS一類規格に規定する煮沸くり返し処理を行って測定した結果を記した。

その結果によると、メラミン・ユリア樹脂に比べてフェノール・メラミン樹脂の方がユリア樹脂を混合したときの接着強度の低下が少なく、特にカプールのごとき接着し難い樹種に対して、その差が大きくなっている。このことはフェノール・メラミン樹脂接着剤が難接着性木材の接着に適していることを示している。

さらにフェノール・メラミン樹脂に含まれるフェノールとメラミンの重量比率の和がメラミン・ユリア樹脂に含まれるメラミン重量比率に相当するようにユリア樹脂を加えて合板を接着し、煮沸4時間および60℃乾燥20時間のくり返しサイクルによる促進劣化試験を行い、湿潤状態における接着強度の変化を測定した。その結果を図3.6にまとめて示したが、ユリア樹脂を混合したフェノール・メラミン樹脂はメラミン・ユリア樹脂よりも良好な結果を示していた。

この結果は、フェノール成分が接着劣化の防止に有効に働いていることを示しており、このような接着剤が1類合板の性能向上に役立つことがわかった。

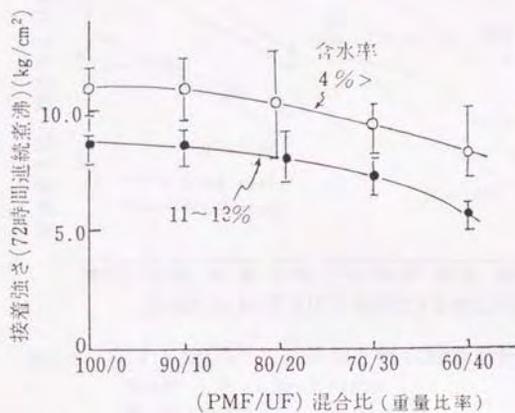


図3.4 ユリア樹脂混合比と JAS 特類接着強さ  
(2.0mm マンガシノロ単板の3プライ合板)

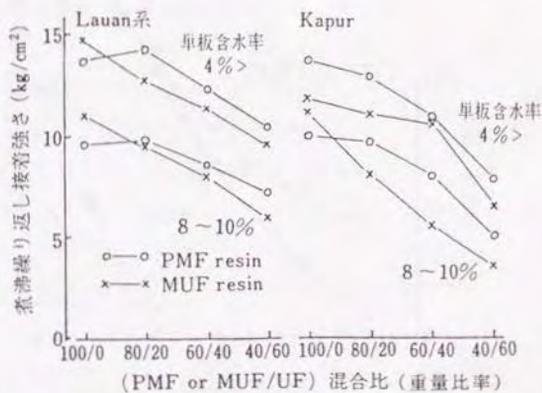


図3.5 ユリア樹脂による希釈と耐水接着性能の関係

単板厚: 1.95+1.95+1.95mm

配合: resin 100 wt. p.

wheat flour 20 "

water 10 "

NH<sub>4</sub>Cl 0.5 "

塗布量: 35g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧: 10kg/cm<sup>2</sup>, 15min

熱 圧: 120°C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 2.5min

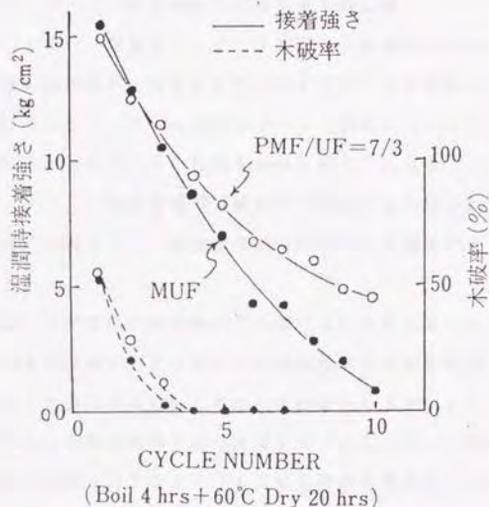


図3.6 フェノール・メラミン樹脂とユリア樹脂との混合時における接着耐久性（煮沸・乾燥による促進劣化）

材：ラワン系 2.5+2.5+2.5 mm, 10~12%

配合：Resin 100 wt. p.  
 Wheat flour 20 "  
 Water 10 "  
 NH<sub>4</sub>Cl 0.5 "

塗布量：30 g/900 cm<sup>2</sup>

冷 圧：10 kg/cm<sup>2</sup>, 20 min

熱 圧：120°C, 10 kg/cm<sup>2</sup>, 3 min

このようなフェノール・メラミン樹脂の特長は、雑多な樹種が混用されるコンクリート型枠合板の接着作業において生かされ、安定した接着性能が得られるようになってきている。また、JAS1類合板が使用されていた構造用合板の接着性能の向上にも効果を発揮している。

#### 3.4. フェノール・メラミン樹脂接着剤の接着耐久性試験

ユリア樹脂、メラミン樹脂やフェノール樹脂などの単純なホルムアルデヒド系樹脂接着剤は永年の使用実績があり、接着耐久性に関するデータも数多く集積されている。特に構造用用途に用いられるフェノール樹脂やメラミン樹脂についてはいろいろな角度から接着耐久性の試験<sup>(1) (2)</sup>が行われ、その性能もかなり明らかになっている。

フェノール・メラミン樹脂接着剤は構造用の用途にも利用される可能性があり、このような変性を行うことによって、接着耐久性にいかなる影響を与えるようになるのか知ることも必要である。

このような新しい接着剤の接着耐久性を調べるにあたってもっとも問題になることは、どのような促進劣化試験を行えば速やかに長期の耐久性能を推定することができるかという点であり、また実用状況に則したデータが得られるか、ということである。しかし、現時点ではこれらの問題は解明されたとはいえず、したがって実績のある接着剤と比較して種々の促進劣化試験を行うことによって耐久性能を推定する以外に道はない。

そこで、72時間の連続煮沸試験はもとより、60℃温水に3時間浸せきしたのち21時間乾燥する乾湿くり返しサイクル試験、煮沸水に4時間浸せきしたのち20時間乾燥するくり返しサイクル試験、ウェザーメーターによる促進劣化試験、および30cm平方の小さなサイズにカットした合板を南面45度の角度に傾斜させて屋外に放置する屋外暴露試験などによって、市販のフェノール樹脂やメラミン樹脂と比較してフェノール・メラミン樹脂接着剤の接着耐久性を把握しようと試みた。

いずれの試験においても南洋材の標準的な樹種であるラワン材、および特殊な樹種としてカブール材を用いて試料合板を作製した。まず60℃温水・乾燥くり返し試験による接着強さ保持率の変化を図3.7に記した。

この結果によると、ラワン合板のときはフェノール樹脂の接着強さ保持率は40サイクル後も初期の接着強さの60%程度であり、フェノール・メラミン樹脂では約50%、メラミン樹脂では30%以下という接着強さ保持率になった。フェノール・メラミン樹脂はフェノール

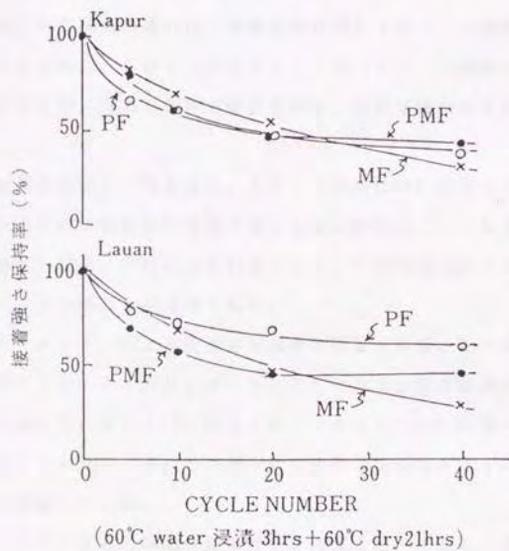


図3.7 温水浸漬・乾燥繰り返しによる接着劣化  
(単板含水率 7~9% のとき)

ル樹脂とメラミン樹脂とのほぼ中間的な接着耐久性を示す結果であった。しかしカプセル合板の場合は、メラミン樹脂の接着性低下は他の樹脂に比べて早く、その他の樹脂はほぼ同等の耐久性能を示した。

図3.8には煮沸・乾燥くり返しサイクルによる接着強さ保持率の変化を示した。この図によると各樹脂の接着耐久性能の差が明瞭になった。ラワン合板の場合は図3.7と同様な結果になったが、いっぽうカプセル合板のときは、フェノール・メラミン樹脂はフェノール樹脂よりやや早く劣化する傾向を示した。しかしその劣化の状況はメラミン樹脂よりもフェノール樹脂に近い耐久性能を有する結果であった。

図3.7および図3.8の結果の違いは、煮沸処理の間にフェノール樹脂の硬化が進むことに起因していることであり、このことからフェノール・メラミン樹脂に含まれるフェノール樹脂成分の硬化を十分に進める条件で接着すれば、良好な接着耐久性が得られるものと考えられた。

またこれらの結果を総合して考えると、メラミン樹脂は100℃近くの高温度において熱劣化が起こり、そのために接着耐久性能が著しく損なわれることになる。いっぽうフェノール・メラミン樹脂の場合、それに含まれるフェノール樹脂成分がメラミン樹脂の熱劣化を補う役割を果たしていることが推測された。

図3.9はウェザーメーターによる促進劣化試験の結果である。この試験では、降雨条件として水を18分間スプレーしており、カーボンアークによる紫外線照射時には試料表面は70℃近くの温度に達する。そして120分を1サイクルとして216時間の処理が1年間の屋外暴露に相当するといわれている。したがってこの条件は温水浸せきによる乾湿くり返しのサイクル試験に類似している。

しかし、水がスプレーされる時間は温水浸せき時間と比べて短く、接着層まで浸透する水分が少ないために水の影響は軽微になる。そのため、図3.9の結果を図3.7の結果と比較すると、ラワン合板のときは初期の接着強度の低下が緩やかになり、3種類の樹脂の接着劣化挙動は類似する傾向になった。しかしカプセル合板の場合は、まったく異なる劣化挙動を示しており、フェノール樹脂で接着した合板は剥離を生じなかったものの接着強度の低下がもっとも大きくなり、逆にメラミン樹脂の接着劣化がもっとも緩やかになった。

カプセル材をフェノール樹脂で接着したとき、その木材に含まれるフェノール酸などがフェノール樹脂の硬化を阻害するといわれている<sup>31</sup>。それゆえフェノール樹脂の硬化が不十分である可能性が考えられた。

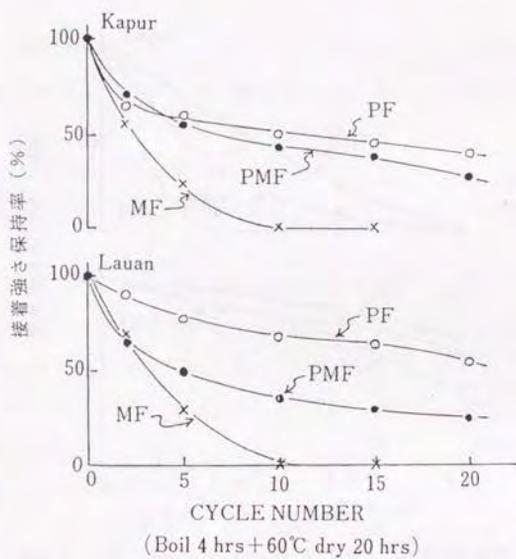


図3.8 煮沸・乾燥繰り返しによる接着劣化  
(単板含水率 7~9% のとき)

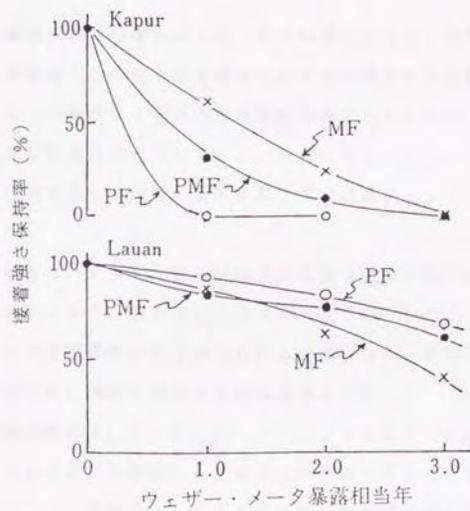


図3.9 ウェザー・メータ暴露による接着劣化  
(単板含水率 7~9% のとき)

またカプル材は水などの低分子物質が浸透しやすい材であることも経験的に知られている。そして試験中に紫外線によって表面単板の割れや劣化が促進されるといっそう浸透性が高められ、これらの諸原因が重なって水の影響を強く受けたものと思われる。

元来、アルカリレゾールタイプのフェノール樹脂は水溶性であり、硬化反応が進むことによってはじめて耐水性が得られるようになる。したがって硬化が不十分な状態では水を吸収して接着強度が大きく低下する性質がある。同様なことはフェノール・メラミン樹脂接着剤に含まれるフェノール樹脂成分にも該当することであり、フェノール樹脂成分の硬化が十分に進行していない場合は、図3.9のような結果がえられることが十分に考えられる。

図3.10には屋外暴露試験の結果を記した。その結果によると、ラワン合板のとき、フェノール樹脂は2年間暴露したのちも接着強度がわずかに低下する程度の良好な接着耐久性を示していた。メラミン樹脂は1年目の接着強度の低下はわずかであったが、2年間の屋外暴露によって急速な接着劣化を示していた。それに対してフェノール・メラミン樹脂は両樹脂の中間的な傾向を示しており、屋外暴露2年目にはフェノール樹脂に次ぐ接着耐久性を示していた。

カプル合板の場合は、メラミン樹脂が緩やかな接着強度の低下を示すのに対してフェノール樹脂は暴露初期における接着強度の低下が大きくい。しかし、暴露1年後から2年目にかけてはわずかな接着強度の低下がみられるに過ぎない。またフェノール・メラミン樹脂はメラミン樹脂に近い傾向の接着劣化の挙動を示した。

この屋外暴露試験の結果は、ウェザーメーターによる促進劣化試験と比べると接着強度の数値に差異があるものの、各樹脂とも接着劣化の挙動に類似した傾向が認められた。それゆえ、ウェザーメーター試験によってある程度の屋外暴露試験の傾向を推測することができると考えられた。

以上の一連の促進劣化試験の結果から、フェノール・メラミン樹脂接着剤はフェノール樹脂の接着耐久性に及ばないものの、メラミン樹脂よりは優れた接着耐久性を有すると判断した。しかしこの判断には、その接着剤に含まれるフェノール樹脂成分の硬化が進むことが前提となる。

接着剤の硬化を阻害する因子として接着時の単板含水率があり、ウェザーメーターを用いた促進劣化試験によって接着耐久性に対する単板含水率の影響を調べた。その結果を図

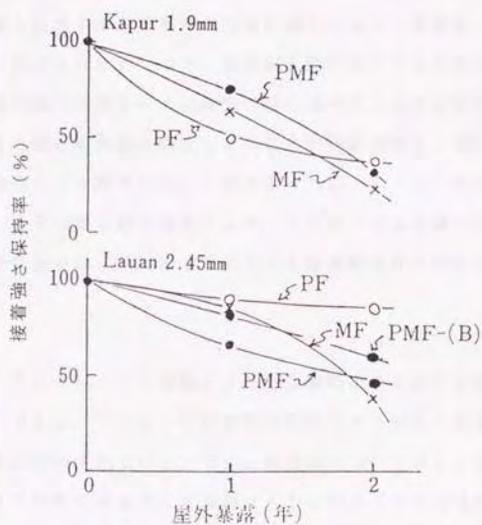


図3.10 屋外暴露による接着劣化  
 (Panel size : 30×30cm<sup>2</sup>)  
 (PMF-(B) は5 プライ)

3.11に記した。この結果は厚さ2.0mmのラワン単板を使用した等厚3プライ合板によって測定したものであり、フェノール・メラミン樹脂接着剤を用い、120℃の温度で2.5分の熱圧条件で接着したときのデータである。

その結果によると、単板含水率がKett含水率計の指標で4%以下の場合、3年相当の暴露で緩やかに接着強度が低下する良好な接着耐久性を有することが示された。しかし含水率7~8%の単板を使用したときは、接着強度は直線的な低下を示し、それ以上の単板含水率のときは急激な接着強度の低下を示した。特に単板含水率が18~20%になると接着耐久性が著しく低下した。

高含水率の単板を接着すると接着剤の浸透が激しくなり、接着層の厚みが薄くなると共に均一な接着層が形成されない<sup>9)</sup>ので、接着耐久性が低下すると考えられている。

そこで、接着層の厚みを増すためには塗付量を増やすことが必要であり、そのような対策を施すことにより接着耐久性を向上させることが可能になる。図3.12は、フェノール・メラミン樹脂接着剤により厚さ2.0mm、含水率4%以下のラワン単板を用いて等厚3プライの合板を接着し、その接着耐久性をウェザーメーターにより調べたものである。その結果、接着剤の塗付量を約15%増加するだけでも接着耐久性が向上することが明らかに示されている。

これまでのデータはフェノール樹脂とメラミン樹脂とを3対7の割合で混合した接着剤を用いて得たものである。このような接着剤は原料コストが高くなるため、実用上は採算の問題がある。現在市販されているメラミン接着剤について考えると、一般にはメラミン樹脂の一部をユリア樹脂に置き換えて原料コストを引き下げる方法がとられている。

そこでメラミン樹脂のうち約30%弱をユリア樹脂に置き換え、フェノール樹脂(PF)とメラミン樹脂(MF)およびユリア樹脂(UF)との比率を3/5/2として混合した3元樹脂接着剤を試作し、それらの接着剤を使用して同一条件で合板を接着して、ウェザーメーターによる接着耐久性試験を行った。単板には厚さ2.0mm、含水率7~8%のラワン単板を使用した。

その結果を図3.13に記したが、この程度のユリア樹脂が混合されるだけで接着強度の低下が大きくなり、接着耐久性に明らかな影響がでることがわかった。このような組成の接着剤になるとユリア樹脂の部分が早期に劣化して接着層の脆弱点になり、接着層全体の耐久性を引き下げてしまう結果になる、と考えられた。

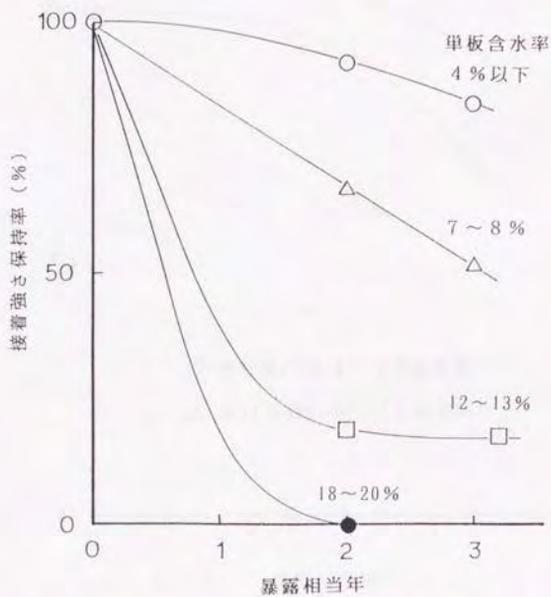


図3.11 ウェザーメーター促進劣化試験による単板含水率と接着耐久性

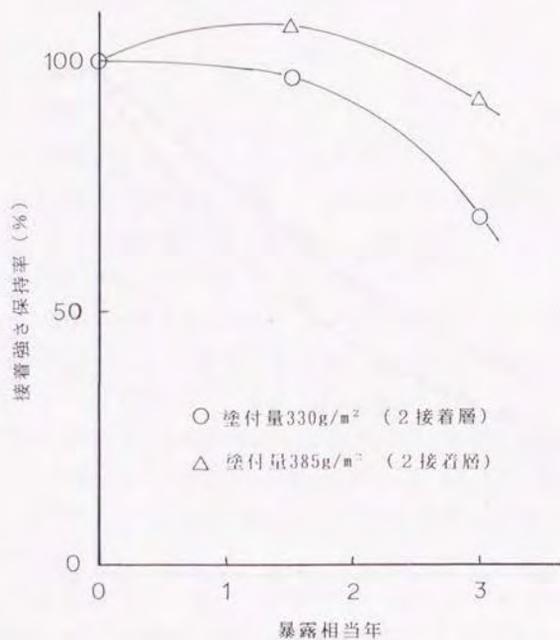


図3.12 ウェザーメーター促進劣化試験による塗付量と接着耐久性

注) 材: 2.0mm 厚さラシン単板、含水率4%以下

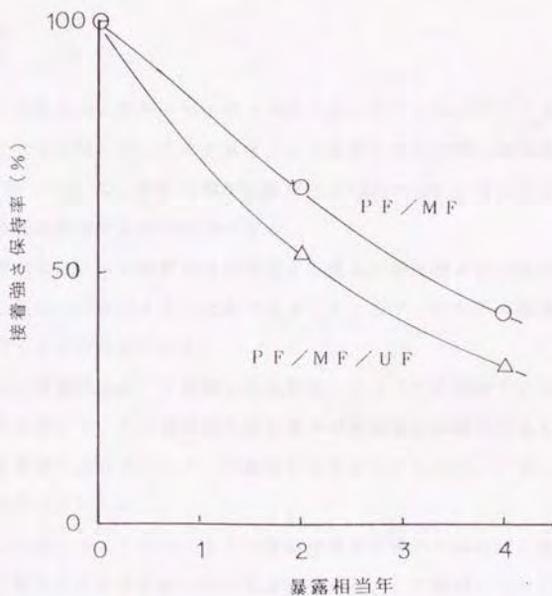


図3.13 ウェザーメーター促進劣化試験による接着耐久性に  
及ぼすユリア樹脂の影響

注) 材: 2.0mm 厚さラワン単板、含水率7~8%

したがってフェノール・メラミン樹脂接着剤にはアミノ樹脂系接着剤なみの熱圧条件で使用できる特徴がある反面、それを使用して接着耐久性に優れた合板を接着するためには接着剤の組成から接着耐久性にマイナスとなる成分を少しでも排除することが必要であると共に、接着条件にも厳しい管理が必要であること、特に単板含水率はフェノール樹脂接着剤なみの管理を必要とすることが、以上の試験結果から判明した。そしてこれらの条件が満たされることによって、かなり優れた接着耐久性が得られることが明らかになった。

#### 4. まとめ

フェノールとホルムアルデヒドのモル比 (F/P)、およびメラミンとホルムアルデヒドのモル比 (F/M) を、それぞれ3/1で反応させたのち、両樹脂を混合するだけで、熱圧温度110 ~ 120 °C、熱圧時間が合板厚さ1mmあたり0.5分というアミノ樹脂なみの熱圧条件で合板を接着できる接着剤になる。

この接着剤にはJAS特類規格に合格する優れた耐水接着性能を有する他に、ユリア樹脂と容易に混合して使用することができること、カプールなどの難接着性木材にも良好な接着性を示すなどの特長がある。

また、この接着剤を用いて接着した合板を、フェノール樹脂やメラミン樹脂により接着した合板と比較して、その接着耐久性を種々の促進劣化試験法により評価した結果、この接着剤の接着耐久性能はフェノール樹脂には及ばないものの、メラミン樹脂よりは優れていることを明らかにした。

しかし、このフェノール・メラミン樹脂接着剤の優れた接着耐久性を発揮させるためには、ユリア樹脂などの接着耐久性に劣る成分を混合して使用しないこと、接着条件を厳しく管理すること、特に単板含水率はフェノール樹脂を使用するときと同様に管理し、十分な塗付量によって接着することが必要であることを示した。

#### 引用文献

- 1) R. A. Jarvi: Forest Prod. J., 17 (1), 37 (1967)
- 2) G. E. Babcock, A. K. Smith: Ind. Eng. Chem., 39 (1), 85 (1947)
- 3) 石田真一郎、倉 康夫、金子曾政: 工化誌、73、1206 (1970)

- 4) 富田文一郎：第30回熱硬化性樹脂討論会講演要旨集、p81 (1980)
- 5) 富田文一郎、松崎 正：第31回日本木材学会大会研究発表要旨集、p194 (1981)
- 6) 日本接着協会接着耐久性研究委員会、昭和49年度報告、p75 (1974)
- 7) R.E.Kreibich, J. Appl. Polym. Sci.:Appl. Polym. Symposium: 40, 1 (1984)
- 8) 今村博之、他：林試研報、No.232、 65 (1970)
- 9) C.C.Booth, J.W.Maxwell: Forest Prod. J., 7( 6 ), 187 (1957)

## 第4章 高含水率単板の接着方法

### 1. はじめに

合板の原価に占める原木コストの割合は、60～70%の範囲にある。原価に大きな割合を占める原木コストを削減することは、合板のコストダウンのためにもっとも効果のある方法である。

ロータリーレースで剥いた生単板を乾燥すると、繊維と直交する方向に収縮して単板の取得率（歩留まり）が減少する。この乾燥収縮による単板の歩留まりロスは、35～40%といわれるロス率の一部を占めるに過ぎない。しかし単板の乾燥度を抑えて乾燥収縮率を減少させることによって、わずかな数値であるが単板の取得率は向上し、そのうえドライヤーの生産効率を向上させるという大きな効果が得られる。

合板工場のドライヤーで乾燥する単板の平均含水率と単板の収縮率との関係は図4.1に示すような関係にある。この図から、例えば平均単板含水率を6%として管理していたものを12%目標に変更すると、単板の収縮率は約1.5%減少し、1m<sup>3</sup>の原木から12mmのコンクリート型枠合板が0.94枚、すなわち約1枚余分に生産することができる計算になる。

通常、乾燥時の単板の平均含水率を高めると、20%を越える高含水率単板の発生率が増加して、接着した際にパンクやふくれという接着不良が急増する問題点が生ずる結果となり、この問題点を解決するための接着方法および接着剤の改良が強く望まれた。

そこで、まず高含水率単板を接着する際に生ずる問題点の調査を行うと共に、接着方法および接着剤の改良を行ってその対策について工業的な検討を行った。

### 2. 試験方法

#### 2.1. 試験材料

試験に使用した南洋材の単板は東京近郊の合板工場で生産されたものを入手した。そして試験に際して実験室における単板含水率の調整は、所定量の水を単板にスプレーしたのち、ポリエチレン袋内に密封して養生し、試験の前に、再度、電気抵抗式の水分析（Kett製）によって含水率の確認を行った。

接着剤には、市販のメラミン・ユリア樹脂およびユリア樹脂を用い、増量剤には主に合

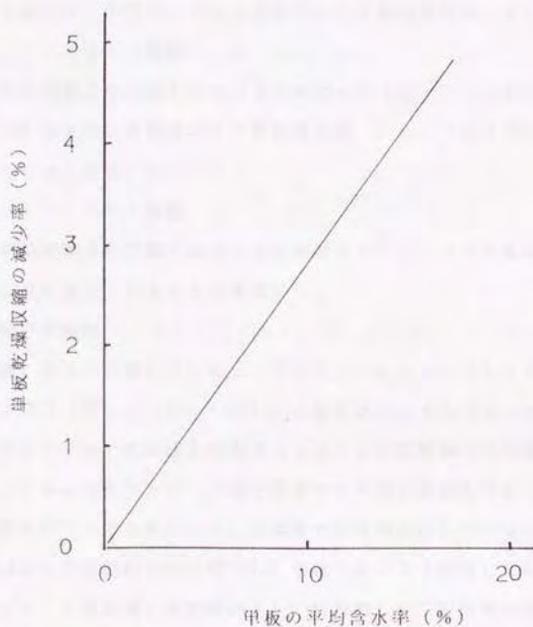


図4. 1. 甲板の平均含水率と乾燥収縮の減少率との関係

板工場で使用している小麦米粉や米粉を用いた。

さらに接着剤の改良には工業用の尿素、メラミンやホルマリンなどを使用し、既報<sup>1)</sup>に記載された反応方法に準拠して樹脂を合成した。

なお、本章の試験に使用した接着剤の詳細を以下に記した。

#### (1) ユリア樹脂

豊年製油より市販されている合板用ユリア樹脂接着剤 UL-002を使用した。

#### (2) ユリア・メラミン樹脂

豊年製油より市販されている合板用メラミン・ユリア樹脂接着剤 ML-031の100重量部と合板用ユリア樹脂接着剤 UL-002の50重量部とを均一に混合したものを使用した。

#### (3) メラミン・ユリア樹脂

豊年製油より市販されている合板用メラミン・ユリア樹脂接着剤 ML-031ならびにML-044とを使用した。

#### (4) 高縮合度樹脂

攪拌機、還流冷却器を付した三口フラスコにホルムアルデヒド [F] と尿素 [U] とのモル比 ( $[F]/[U]$ ) が2.0 となるようにホルマリンと粒状尿素を加え、続いて10%カセイソーダ水溶液を反応液のpHがpH試験紙の指示値で約7.0 となるように加える。さらに25%アンモニア水を尿素の1%相当量加えてから水浴槽上によって反応液の温度を80℃まで上昇させる。同温度で30分間加熱したのち10%酢酸水溶液によって反応液pHがpH試験紙の指示値で4.3 前後になるよう調整して約30分反応し、さらに10%カセイソーダ水溶液で反応液pHを4.5 に調整して二次尿素を加えてモル比を1.75として反応を続ける。反応液粘度が80℃到達時の粘度の10倍になったときに再度10%カセイソーダ水溶液を加えて反応液pHが7.5 となるように調整し、ただちに常温まで冷却を行う。このような方法によって得た樹脂液を高縮合樹脂接着剤として使用した。

### 2.2. 熱圧時の接着層温度の測定

含水率が11~14%および25~30%となるように調湿した厚さ2.5mm、30cm平方のサイズにカットした南洋材単板を使用した。その5枚の単板に接着剤を約330g/m<sup>2</sup>の割合で塗付しながら互いにその繊維方向が直交するように重ね、センターコアの中央部に熱電対を挿

入して30分間仮圧縮をした。つぎに仮圧縮した単板の積層体を温度がそれぞれ120℃および145℃に保持された実験室用のホットプレスに挿入して10kg/cm<sup>2</sup>の圧力で熱圧を行った。その際、熱圧中に時間と共に変化する温度を測定した。

### 2.3. 合板の接着強さ試験方法

合板の接着条件については試験結果と共に記した。また合板の接着強さ試験方法はJAS普通合板試験法に記載する1類および2類合板の試験法に準じた。しかし、試験を促進するために、JAS1類合板の試験に示す煮沸くり返し試験に替って、簡便的な方法として煮沸水に4時間浸せきしたのちに接着強さの測定を行う方法も採用した。

## 3. 試験結果および考察

### 3.1. 高含水率単板接着時の接着層の挙動

#### 3.1.1. 接着層粘度および濃度の変化

B. G. Freeman らは、常温硬化型接着剤を用いて種々の木材を接着し、その接着層の粘度挙動を測定している<sup>2)</sup>。その結果から、単板に接着剤を塗付したとき、接着剤に含まれる水やメタノールなどの溶剤が木材内部へ吸収拡散されて接着層の濃度上昇が起こることを示している。また、鶴田は、合板接着剤を含水率の異なる単板へ塗付し、接着層の脱水速度を測定して、その速度が単板含水率によって著しく違ってくることを示している<sup>3)</sup>。特に20%以上の含水率の単板に接着剤を塗付したとき、接着層の濃度がほとんど上昇しないことから、高含水率単板を接着したときに接着剤の浸透が激しく起こり、均一な接着層が形成されないことが予想された。

そこで、はじめに合板を接着する際と同様な割合でユリア樹脂、およびメラミン・ユリア樹脂にそれぞれ小麦粉、水や硬化剤を加えて糊液を調合し、湯浴上で温度を1℃/min.の割合で上昇させ、そのときの糊液粘度の変化をB型粘度計で追跡した。

その結果、温度の上昇と共に糊液粘度は低下して行く。そして40℃を越えた時点で、逆に糊液粘度は上昇に転ずることが判明した。温度上昇時の糊液粘度の低下は、ユリア樹脂に比べてメラミン・ユリア樹脂の方が著しくなることが明らかになった。

糊液温度が上昇するにしたがって樹脂の硬化反応が少しずつ進み、糊液粘度が高くなるはずであるが、温度による低粘度化を補うことができず、全体的に粘度低下を示す。しか

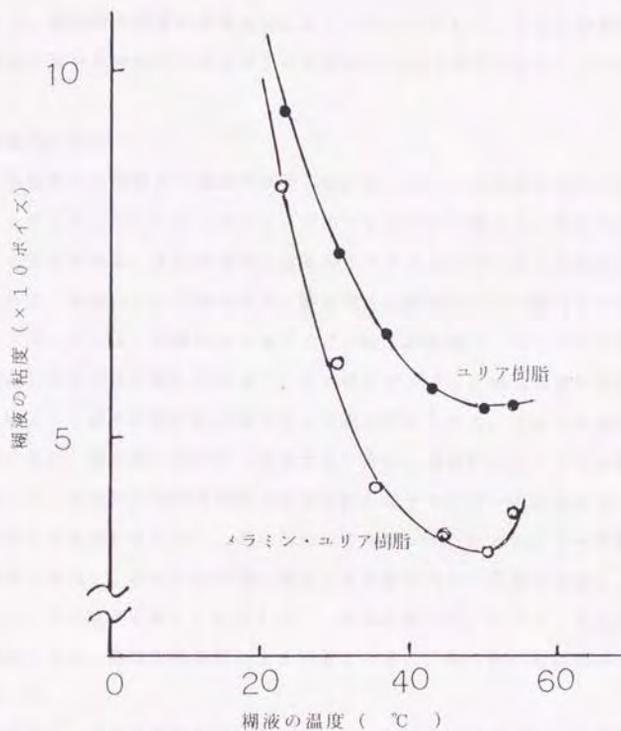


図4.2. 糊液温度と粘度の関係  
(注)糊液配合

配 合	ユリア	メラミン ・ユリア
ユリア樹脂 (豊年UL-002)	100部	—
メラミン・ユリア樹脂 (豊年ML-031)	—	100部
小 麦 粉	22 "	22 "
水	18 "	18 "
塩化アンモニウム粉末	0.4 "	0.6 "

40℃以上の温度になると、増量剤として加えた小麦粉の膨潤および糊化がはじまり、著しい増粘効果を示すため、糊液全体としても粘度の急昇を示す。この増粘効果と接着層の高濃度化が接着剤の過浸透を防止して、安定した接着性を付与するものと考えられる。

したがって、接着層の濃度上昇が期待されにくい含水率20%以上の高含水率単板の接着においては、接着剤の過度の浸透を抑えることがむずかしく、さらに接着剤がメラミン・ユリア樹脂の場合は接着剤の浸透防止の対策がいっそう重要になることが考えられた。

### 3.1.2. 増量剤の効果

図4.2の結果から増量剤の重要性が明らかになった。この試験において使用した小麦粉はタンパク質とデンプンを含んでいる。そのうちタンパク質には、熱を受けると変性してゲル化する性質がある。また接着剤に含まれるホルムアルデヒドとも反応してゲル化を促進するために、加熱によって増粘作用と耐水性を付与することが期待される<sup>1)</sup>。

いっぽうデンプンは、加熱によってデンプン粒子が膨潤し、60~70℃の温度で粒子が崩壊して糊化して水溶性の糊に変わる<sup>2)</sup>。それゆえデンプンは増粘効果を示すものの、糊化することによって耐水接着性能が低下する欠点が考えられる。そのため高含水率単板の接着を考えた場合、接着層に水が多く存在するために、増量剤のデンプンは糊化まで進む可能性があり<sup>3)</sup>、それが高含水率単板の接着性能を低下させる一因にもなる。

その可能性を確認するために、あらかじめアルファ化したデンプンを増量剤に使用した接着剤糊液を調合し、種々の含水率に調湿した単板を用いて合板を接着し、その接着強さを測定した。その結果を表4.1.に記した。その結果では、アルファ化したデンプンを増量剤に使用すると、高含水率単板による合板とときは、明らかに接着性能を低下させることが判明した。

この結果から、高含水率単板の接着に際しては増量剤の選択にも十分配慮する必要があることがわかった。

### 3.1.3. 接着層の温度変化

合板を熱圧接着するとき、熱板からもっとも遠い最深接着層の温度変化を知ることによって熱圧時間を設定することができる。

そこで、種々の含水率の単板を使用して等厚5プライ合板を熱圧するとき、合板の最深接着層の中心部に熱電対を挿入してその部分の温度変化を測定した。その結果を図4.3.に

表4.1. アルファ化澱粉添加量と接着強さの関係例

配 合 部	メラミン・ユリア樹脂	100	100	100	
	小麦粉	20	13	8	
	アルファ化澱粉	0	4	8	
	水	15	18	19	
	塩化アンモニウム粉末	0.7	0.7	0.7	
引張り 接着強さ (kg/cm <sup>2</sup> ・カッ コ内は木破率 (%))	单板含水率 15~16%	常態	13.5(33) 11.7~14.6 (10)~(60)	12.7(20) 11.2~14.6 (10)~(70)	12.6(5) 10.9~14.1 (0)~(20)
		煮沸 4時間	8.4(0) 7.9~9.0 (0)	7.0(1) 5.7~7.6 (0)~(10)	7.0(0) 5.4~8.7 (0)
	单板含水率 20~25%	常態	10.4(15) 9.0~10.9 (0)~(30)	10.0(4) 8.6~11.4 (0)~(20)	9.4(2) 8.3~10.4 (0)~(10)
		煮沸 4時間	5.9(0) 5.2~6.8 (0)	5.5(0) 4.2~6.8 (0)	4.5(0) 4.2~4.7 (0)

- (注) 1. メラミン・ユリア樹脂：豊年製油製ML-039  
 2. 接着強さ：上段は平均値  
 中段は接着強さの最小値~最大値，下段は木破率の最小値~最大値

接着条件

材：ラワン，2.5mm+2.5mm+2.5mm

塗付量：30g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧：10kg/cm<sup>2</sup>，20分，以後1~2時間放置

熱 圧：10kg/cm<sup>2</sup>，120℃，4.5分

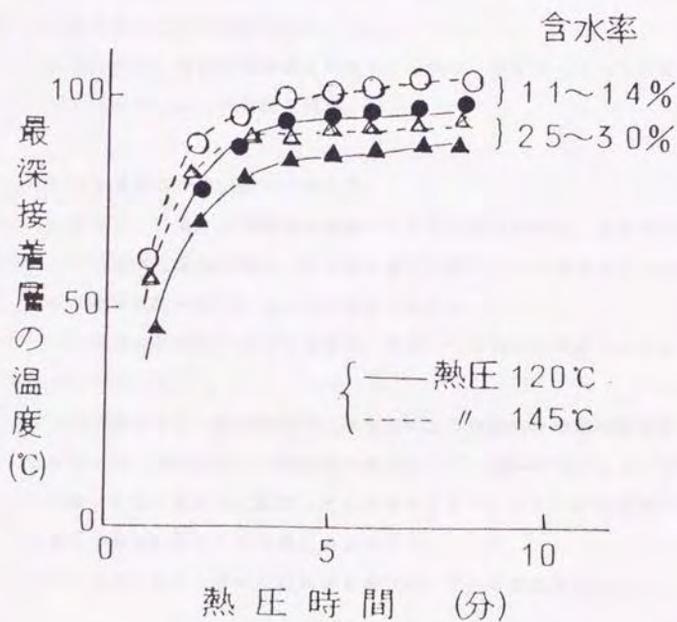


図 4.3. 単板含水率と接着層温度の変化  
 (2.5mm等厚5プライ)

まとめて記した。

この図は、含水率11~14%、および25~30%の単板を使用した12.5mm厚さの等厚5プライ合板について調べた結果であるが、含水率の高い単板を熱圧すると、接着層の温度は水分の気化熱により熱を奪われて緩慢な温度上昇を示すことが明らかになった。

通常の合板の接着に使用されているところの120℃の温度で熱圧したとき、および熱圧温度の影響を明確に把握するために行った145℃での熱圧の場合について調べた結果、単板含水率が25~30%になると、熱圧温度を145℃に高めも最深接着層の温度は80~90℃に到達するに過ぎないことが確認された。

これらの事実から、高含水率単板を接着するときは、熱不足によって接着剤の硬化反応が十分に進んでいないことが予想された。

#### 3.1.4. 高含水率単板の接着に関する考え方

前述の結果をもとに高含水率単板を接着したときの接着層には、接着剤の過度の浸透、接着層における親水性成分の増加、接着剤の硬化不足などの現象がおこり、それらの原因によってその接着性能が低下することが考えられた。

そのために高含水率単板を使用する場合、次のような諸点を考慮した対応策をとるのが適当との考えに至った。

- (1) 接着剤の硬化促進、糊液粘度の上昇などにより接着剤の過度の浸透を防止する。
- (2) 増量剤には、加熱によって耐水性が増すタンパク質系のものを主に使用する。
- (3) 接着層の水分を速やかに拡散させる方法をとるか、あるいは接着層の残存水分が適正量まで減少したとことで熱圧接着を行う。

このような仮定のもとに種々の対応策を検討し、その有効性を調べた。

#### 3.2. 単板含水率のバラツキ減少

高含水率単板の接着を検討する究極の目的は、ドライヤー乾燥能力と単板歩留まりの向上であり、その結果合板工場の生産性を高めてコストを低減するところにある。そのために、まず乾燥時における単板含水率のバラツキの実態について、実際に工場に設置されている連続ドライヤー設備を使用して試験を行った。

その調査方法は、平均含水率約8%を目標に厚さ2.5mmの単板の乾燥作業を行っている通常の条件から500点の試料を抜き取り、全乾法によって含水率を測定することによるも

ので、その分布状態を調べた。続いて平均含水率を2%高める目標で乾燥速度を変え、そのときの単板含水率の分布を調べて、両者の結果を比較した。

含水率調査の結果は図4.4.に示したが、乾燥速度が8.8 m/min.のとき、単板含水率の平均値は8.3%であった。そして含水率が8%以下の単板の比率は全体の45%となり、また含水率が23%以上の高含水率の単板は約3%の比率になった。

次に乾燥速度を10.4m/min.に速めて乾燥すると、単板含水率の平均値は12.4%となり、含水率が8%以下の単板の比率は25%に減少した。しかし含水率が23%以上の高含水率単板の比率は8%に増加して、かつ30%以上の含水率のものも若干みられるようになった。

乾燥後の単板含水率のバラツキは、生単板時の初期含水率、木材の比重や組成の差、ドライヤーの構造的要因などによって生じ、一般に平均含水率を高くするとそのバラツキは大きくなる傾向があり<sup>6)</sup>、今回の試験においても同様な結果になった。また乾燥後に単板を堆積放置することによって含水率のバラツキは小さくなり均一化してくるので、乾燥した単板は半日ないしは1日程度放置してから使用することが勧められている<sup>6)</sup>。

佐久間らは合板工場における現場データを分析し、バンクやふくれが発生する含水率限界を24%とし、それ以上の高含水率部分の比率から計算して、バンクやふくれの発生率が実際作業で生じたバンクやふくれの発生率とはほぼ一致すると報告している<sup>7)</sup>。

図4.4.の結果から計算すると、平均含水率が約4%高くなることによってバンクやふくれの発生する危険率は一挙に2~3倍に増加することになる。そのような危険性を防止するために、バンクやふくれを生ずる限界含水率に近い単板は再乾燥などの処置をとることが必要である。

さらに乾燥速度を速めることによって生ずる高含水率部分は、多くの場合、単板全面にわたっているというよりもウェットスポットになっていることが経験的に知られている。このウェットスポットは放置すると周辺に吸収されて消滅しやすいので、単板は、乾燥後に堆積し、含水率のバラツキを均一化してから使用する配慮が必要である。

### 3.3. 含水率の異なる単板の組み合わせによる接着法

一般に合板を熱圧するとき、水分は表面から合板内部へ移動する。それゆえ表面単板の含水率は相当高くても、内部の単板になるほど低い含水率にすることによってバンクやふくれを生じにくい傾向がある。特に薄い単板の5プライ以上の多層構成からなる合板の場合では、通常の条件でも接着層の水分などが熱圧時に中心層へ移動するので、バンクを生

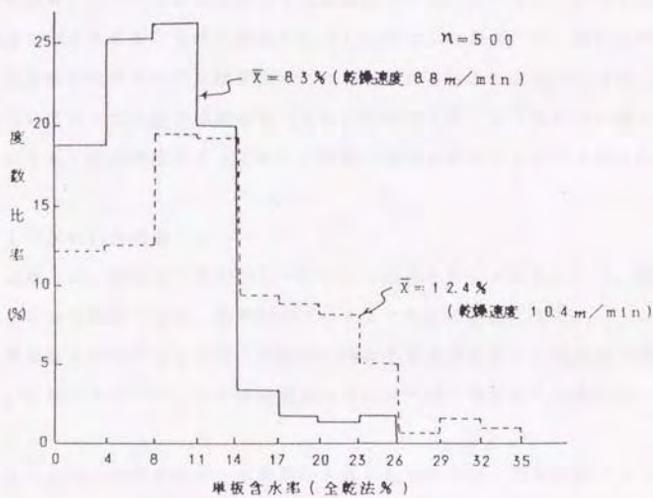


図 4.4. 乾燥速度別の単板含水率分布

じやすく、そのためセンターコアには乾燥した単板を使用せねばならない。

これらの事実は経験的に知られているものであり、その確認をすべく、心板単板と表裏の表面単板の含水率を種々組み合わせて等厚3プライ合板を接着し、それらの接着強さを測定した。その結果を表4.2.に示したが、接着強さは全般的に低調な数値であった。

この試験においては、表面単板あるいは心板単板のいずれか一方の含水率を高めたときに接着強さが低下する傾向はほぼ類似した結果になった。しかし、表面単板は2層存在するために、表面単板の含水率を高めることにより、接着時の合板に含まれる水分は心板単板の含水率を高めたときより多くなるはずである。このことを考慮すると、表面単板の含水率は心板単板に比べて接着強さに与える影響は少ない、といえることができる。

接着強度に対する単板含水率の影響を検討した筒本らの報告<sup>6)</sup>や、野崎らの報告<sup>7)</sup>によると、心板単板の含水率の方が接着強度へ大きな影響を与えると述べており、等厚3プライ合板について行った今回の試験結果もそれらの報告と同じような結果が得られたと判断される。おそらく単板構成によってさらに明確な傾向が得られるものと思われる。

#### 3.4. ホット単板の利用効果

ホット単板とは、乾燥時に冷却が不十分でまだ余熱を有する単板という。気温が高い夏期によくみられる現象であり、接着剤のプレキユアなどの原因になる。

高含水率単板を接着するときは、接着層に残存する水分も多く、接着剤の硬化反応が進行しにくい状況にある<sup>10)</sup>。また接着層水分の木材内部への拡散も温度によって促進される<sup>11)</sup>。

このような事実を考慮すると、単板温度を高くしておけば、含水率のバラツキを速やかに減少させることができるのみならず、接着層の脱水を促進しかつ水分による接着剤の硬化の遅れを防止できるはずである、と考えられた。さらには、単板加熱に要する熱エネルギーを節約するためにホットプレスの熱エネルギーを接着剤の硬化反応に有効に利用できる可能性もある。

そこで、種々の含水率に調湿した単板をポリエチレン袋に密封して恒温器に入れて所定の温度に保温した。このような方法によって調製した温度の異なる単板を用いてユリア樹脂やメラミン・ユリア樹脂接着剤を使用して合板を接着し、その接着強さを測定した。

その際に、接着剤を塗付しコールドプレスで所定時間仮圧縮したのちに、ポリエチレン袋に密封したままふたたび恒温器に1~5時間放置して、放置時間による接着強さの変化

表4.2. 単板含水率の組み合わせによる耐煮沸接着強さ(煮沸4時間処理)

心板の含水率	表裏板の含水率	7~9%	14~16%	19~21%	約25%
7~9%		9.9(20) 9.1~11.4 (0)~(50)	8.8(4) 7.8~9.6 (0)~(20)	7.0(0) 5.8~7.8 (0)	5.4(0) 4.5~6.1 (0)
14~16%		8.8(0) 8.3~9.4 (0)	7.9(0) 6.4~8.6 (0)	—	—
19~21%		8.6(0) 8.2~9.3 (0)	—	4.4(0) 3.9~4.7 (0)	—
約25%		5.8(0) 5.3~6.4 (0)	—	—	3.2(0) 3.1~3.6 (0)

(注) 接着強さ単位 kg/cm<sup>2</sup>, カッコ内木破率(%)  
最上段は平均, 中段および下段は接着強さおよび木破率の最小値~最大値

接着条件: 材: ラワン 2.5mm+2.5mm+2.5mm

配合: ニリア・メラミン樹脂 100部

小麦粉 20部

水 8部

塩化アンモニウム粉末 0.5部

塗付量: 35g/900cm<sup>2</sup>

冷圧: 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱圧: 120°C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 2.5分

を調べた。その結果を図4.5. および図4.6. に記した。図4.5. はユリア樹脂接着剤による結果であり、図4.6. はメラミン・ユリア樹脂接着剤による結果である。

ユリア樹脂接着剤を使用したときの結果では、単板含水率が10~12%で常温の単板では長時間の放置を行っても接着強さの低下は少なく、単板面に塗付された接着剤があまり変化していないことが推測された。しかるに単板温度が50℃になると長時間放置するにしたがって接着強さは低下し、放置中における接着剤の硬化が進行していることが示された。

しかし含水率が18~20%の単板を使用したときは、常温単板および50℃のホット単板のいずれの場合も接着強さに対する放置時間の影響はみられなくなり、特にホット単板を使用した合板を長時間放置したときの接着強さは、含水率が低い単板を使用したときよりも高い値を示し、ホット単板による期待した効果が認められた。

またメラミン・ユリア樹脂接着剤を使用したときの結果では、常温単板についてはその含水率の多少にかかわらず接着強さに対する放置時間の影響は認められなかった。しかしホット単板を用いた場合は放置時間が3時間以上になると接着強さの値が急激に低下する傾向を示した。また含水率が高い単板になるほど放置時間の影響は大きくなり、この場合は期待した結果が得られなかった。

ホット単板の効果に対するユリア樹脂およびメラミン・ユリア樹脂接着剤の相反する結果は、接着剤の性質の差によるものと考えられる。すなわちユリア樹脂は比較的低温度下において樹脂の硬化反応が緩やかに進行するのに対して、メラミン・ユリア樹脂は低温度におけるゲル化時間が極めて長く、その硬化反応の進行は期待できないためである。

そのため、ユリア樹脂の場合は、ホット単板の利用によって接着剤の硬化促進の効果が得られ、長い放置時間により接着強さの値が向上する傾向を示した。

それに対してメラミン・ユリア樹脂接着剤の場合は、ホット単板の利用によって接着層の粘度が低下し、そのために長い時間放置している間に接着剤が木材内部へ浸透していったものと考えられた。メラミン・ユリア樹脂接着剤の場合は、ホット単板の利用が逆効果になったことが判明した。

以上の結果からユリア樹脂接着剤を使用した場合に放置時間の効果が認められた。

そこで結果を再確認するために、含水率が異なる単板を用いて接着剤を塗付、仮圧縮したのちに堆積放置して、所定時間を経過したあとに熱圧し、得られた合板の接着強さを測定して堆積放置の影響を調べた。その結果は図4.7. および図4.8. にまとめて記した。

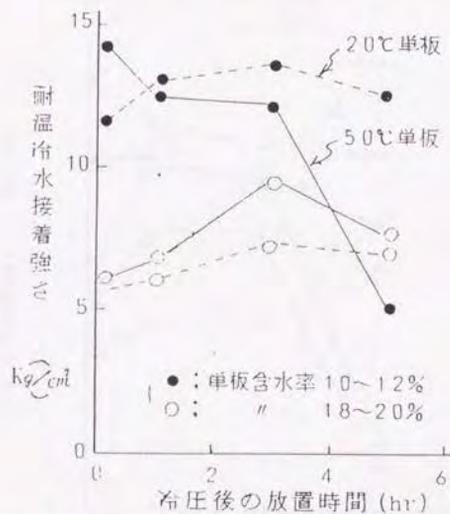


図4.5. ホット単板を使用したときの効果

接着条件

材 : ラワン 2.0mm+2.0mm+2.0mm

配 合 : ユリア樹脂UL-002 100部

小麦粉 18 "

米 粉 7 "

水 10 "

塩化アンモン粉末 0.4 "

塗付量 : 30 g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧 : 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱 圧 : 120°C 10kg/cm<sup>2</sup> 2分

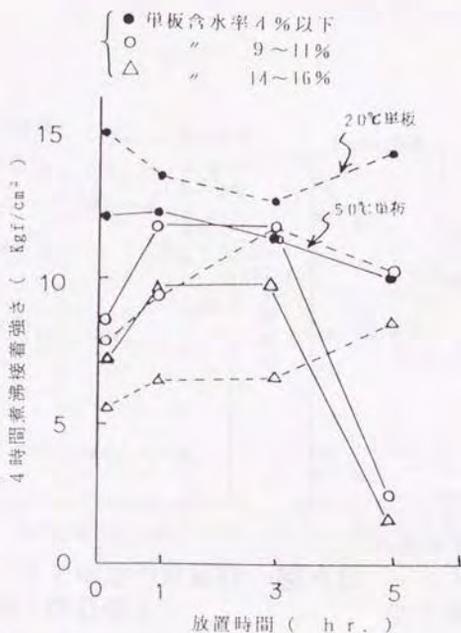


図 4.6. メラミン・ユリア樹脂の放置時間と接着強さ

接着条件

材 : 白ラワン  
2.5mm+2.5mm+2.5mm

配合 : メラミン・ユリア樹脂(ML-044)

40部

ユリア樹脂 (UL-002)

60部

小麦粉

20部

水

8部

塩化アンモン粉末

0.5部

塗付量 : 35g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧 : 10kg/cm<sup>2</sup> 15分

熱 圧 : 120°C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 2.5分

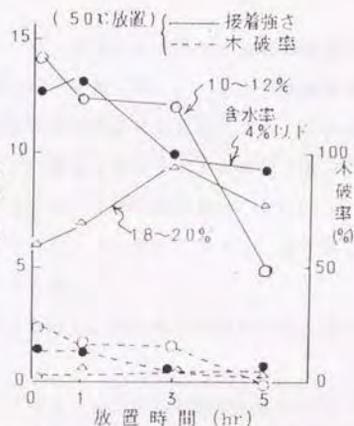
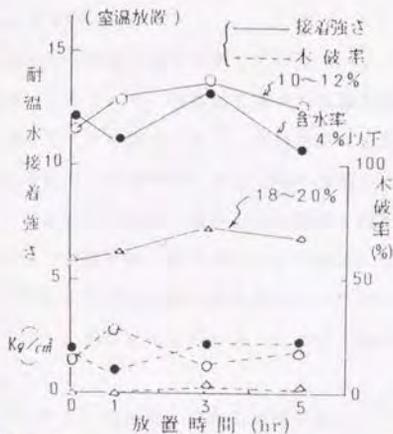


図4.7. ユリア樹脂の放置時間と接着強さ

図4.8. ユリア樹脂の放置時間と接着強さ

(接着条件)

材 : ラワン 2.1mm+2.1mm+2.1mm

含水率 : 3 プライ共同一含水率

配合 : ユリア樹脂 (豊年, UL-002) 100部

小麦粉 17 "

米粉 8 "

水 10 "

塩化アンモン粉末 0.5 "

塗付量 : 30 g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧 : 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱 圧 : 120°C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 2分

これらの結果より、室温下にて堆積放置したときでも含水率の高い単板を使用したときは堆積放置を行うことによって接着強さの値はわずかながらも向上する傾向がみられた。また、50℃下に堆積放置することによってその効果はより明瞭になることから、ユリア樹脂接着剤を用いて高含水率単板を接着する際には、必ず堆積放置時間をとるようにして接着することが必要であるとの結論を得た。

### 3.5. 接着剤の改良

高含水率単板の接着に際して考慮すべきことは、前述したように、接着剤糊液の粘度を高めることであり、接着剤に含まれる親水性の成分を減らすこと、および接着剤の硬化を促進するなどの諸点である。高含水率単板用接着剤を設計するに際しても、これらの諸点を組み込んで接着層から木材内部へ浸透しにくい樹脂を考えることが必要である。

このような接着剤に求められる要件を満たすには、高縮合度の樹脂にすればよい。一般にユリア樹脂の縮合度を高めると、糊液に配合したときに増粘しやすく、また水混和性が低下するので水との親和性を押さえることができる。

そこで、次に記す方法によってユリア樹脂を合成し、高含水率単板に対する接着性を検討した。

すなわち、攪拌機、還流冷却器を備えた三つ口フラスコに41%濃度のホルマリンと尿素を、ホルムアルデヒド〔F〕と尿素〔U〕とのモル比（〔F〕／〔U〕）が2.0となるような割合で配合し、温水浴で加熱して、まずアルカリ性下で約30～60分間付加反応を行わせた。なお、アルカリ反応する直前にあらかじめ反応液の粘度（初期粘度）を測定して、粘度の測定によって樹脂液の反応管理を行った。

続いて反応液を酸性にして縮合反応を行わせ、反応液の粘度が初期粘度の5倍前後に到達したとき、若干のアルカリ触媒と尿素を加えてホルムアルデヒドとのモル比（〔F〕／〔U〕）を1.85程度に調整して反応を続けた。そして反応液粘度が初期粘度の約10倍になったとき、反応液を中和し、ただちに室温近くまで冷却して高縮合度樹脂とした。

このユリア樹脂液は、外観上は白色の乳濁液になっていて、J I S K 6802 に規定する樹脂の水混和性は約0.5倍程度である。この樹脂液は洗浄性が悪くて、そのままでは接着剤として利用できないが、これに市販のユリア樹脂接着剤を10～20%添加することにより洗浄性が改善され、高含水率単板の接着に適した接着剤が得られることがわかった。

なお、樹脂の反応については、あらかじめ種々の予備試験を行い、その結果、前述のよ

うな反応処方設定された。

図4.9.は、ここで試作した接着剤と一般に市販のユリア樹脂接着剤とを比較して、高含水率単板による合板を接着し、その接着性能を測定した結果である。

現在一般に市販されているユリア樹脂接着剤は、含水率8～10%の単板を接着したときにもっとも高い接着強さの値を示す。そして単板含水率が高くなると接着性能は低下し、20%以上の含水率の単板では低調な接着強度しか示さない。

しかし、前述の方法によって得たユリア樹脂接着剤では、表面単板の含水率を10～12%にしたとき、心板単板の含水率がおよそ25～30%でも高い接着強さの値を示し、高含水率単板の接着に適していることが明らかになった。

さらに引き続いてこの処方による接着剤を大量に試作して、合板工場において実際に試験を行った。その結果は表4.3.に記したごとく、高い含水率の単板に対しても優れた接着性能を示すことが証明された。

#### 4. まとめ

以上、高含水率単板に対する接着方法についての検討を行った。まずはじめに高含水率単板を使用して接着するときの接着層の挙動について推測し、有効な対応策を検討した。

乾燥時に単板の平均含水率を高い目標に設定すると、含水率のバラツキが大きくなることを示し、限界を超える含水率の単板は再乾燥などの処置が必要であることを述べた。

続いて接着条件により改善する方法について検討し、接着層の残存水分が接着剤の硬化速度や浸透に影響を与えることから、接着層水分をコントロールする接着条件の改善方法を提案した。

さらに接着層水分の影響を受けにくいユリア樹脂接着剤の改良について検討し、実際の工場試験によってその効果を実証した。

これらの一連の対応策により単板の乾燥を少しでも高い含水率目標に設定して作業を行い、合板工場の乾燥能力の向上、生産性の向上、および単板歩留まりの向上により、より高い経済性の合板を生産することを期待したい。

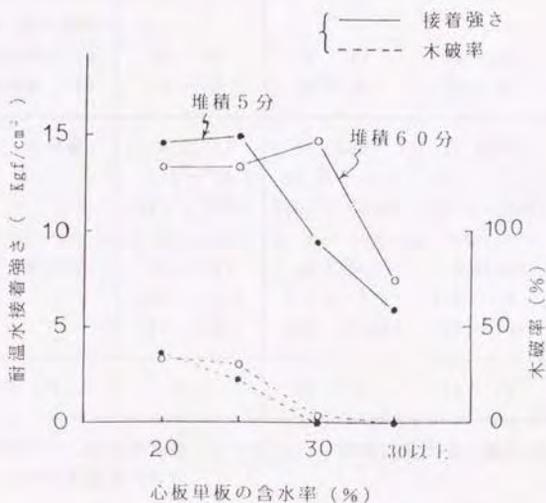


図4.9. 高含水単板用接着剤の含水率と接着  
強さ

接着条件 材 : ラワン 0.6mm+1.4mm+0.6mm

表裏単板の含水率 10~12%

配 合 : 高含水単板用-エリカ樹脂 100部

小 麦 粉 12々

米 粉 7々

尿 素 2々

水 15々

塩化アンモニウム粉末 0.5々

塗付量 : 225 g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧 : 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱 圧 : 120℃, 10kg/cm<sup>2</sup>, 60秒

表4. 3. 高含水率単板の接着に関する実証試験結果

接着剤の種類	市販UF接着剤	改良されたUF接着剤		
単板含水率 (Kett粉計)				
表裏単板 (%)	10 - 12	10 - 12	10 - 12	10 - 12
心板単板 (%)	10 - 15	25 - 30	20 - 30	25 - 30
常態 平均値	12.2(77)	14.4(96)	14.0(97)	13.1(93)
接着強さ ( $\text{Kg/cm}^2$ )	9.6 - 16.0 (20) - (100)	10.6 - 18.6 (60) - (100)	10.0 - 21.6 (80) - (100)	9.6 - 16.6 (70) - (100)
温冷水 平均値	9.7( 8)	12.8(24)	13.6(42)	13.1(42)
接着強さ ( $\text{Kg/cm}^2$ )	5.9 - 16.2 (0) - (30)	8.1 - 17.4 (0) - (90)	8.9 - 18.5 (0) - (90)	8.5 - 16.2 (0) - (80)
製品含水率 (%)	約13	13 - 15	14 - 15	12 - 14

(注) 接着強さ；上段は平均値 (n = 24)、範囲は最小値～最大値、  
カッコ内は木破率 (%)

接着条件：

合板構成：0.6mm + 1.42mm + 0.6mm、3×6尺サイズ

接着剤配合：ユリア樹脂接着剤 340 Kg

小麦粉 50 \*

米粉 25 \*

水 60 \*

粒状尿素 7 \*

塩化アンモニウム 1.7 \*

塗付量；253 ~ 275 g/m<sup>2</sup> (両面塗付)

仮圧縮；9 Kg/cm<sup>2</sup>

熱圧条件；110 °C、8 Kg/cm<sup>2</sup>、55秒、

引用文献

- 1) 田村靖夫、宮崎泰顕： 木材工業、25、155 (1970)
- 2) H.G.Freeman, F.F.Wangaad. : Forest Prod. J., 10, 311 (1960)
- 3) 鶴田 清： 木材工業、30、206 (1975)
- 4) W.Arnoldt, : Holz Roh Werkst., 22, 8 (1964)
- 5) M.W.Leach, : Adhesives age, 5( 6 ), 20 (1962)
- 6) 筒本卓造、佐藤庄一： 林試研報、No.130、160 (1961)
- 7) 佐久間正至、山川広之介： 木材工業、24、568 (1969)
- 8) 筒本卓造、佐藤庄一、柳下 正： 林試研報、No.176 151 (1965)
- 9) 野崎兼司、吉田弥明、田口 崇： 北林産試月報、No.197 11 (1970)
- 10) S.Z.Chow, H.N.Mukai, : Wood Sci., 5, 65 (1972)
- 11) 木材工業ハンドブック： p.245, 丸善 (1958)

## 第5章 防虫合板の接着における単板含水率の影響

### 1. はじめに

南洋材が広く利用されるようになってからヒラクキクイムシなどによる虫害が問題となり、合板や製材品の防虫処理が必要になってきた。昭和48年に林野庁より「南方産広葉樹材等の防虫処理実施要項」が出され、パネルメーカーや、プレハブメーカーなどを中心に防虫処理に対する関心が強くなっている。

合板の防虫処理に関しては、防虫剤を単板や合板に含浸する方法や、接着剤に防虫剤を混入して処理する方法などがある。特別な設備を必要とせず、また現行の合板製造工程で容易に生産できることから、後者の方法が一般化しつつあるように見受けられる。

しかし、防虫剤を接着剤に混入した場合に、合板の中に含有される薬剤量を正確に測定することがむずかしく、誤差が極めて大きいという問題がある。その理由は一般に接着剤によって防虫薬剤が包み込まれてしまうためと考えられている。

そこで、防虫薬剤としてクロルデンを使用して防虫合板を製造する方法について種々検討をしてきたが、その過程で、接着時の単板含水率と殺虫効果との間に興味ある関係を見出したので、以下にその結果を報告し、防虫処理に関する参考に供した次第である。

この結果は、単板含水率の高い単板を用いて接着する検討を行っている際に見出されたものであり、高含水率単板の接着を行う際の一つの特長であると考えられる。

### 2. 試料および試験方法

#### 2.1. 使用した防虫薬剤

合板の防虫処理には種々の薬剤が使用されている。しかし、接着剤に混入して防虫処理する方法では、接着剤への影響が少ないこと、臭気や人体に対する毒性が少ないことなどの条件があって、使用される薬剤の種類が限定されてくる。

そこで、これらの条件にかなって、かつ殺虫効果がよいことの原因から、クロルデンを使用することにした。

クロルデンは米国のベルシコール社で製造された原体を輸入して、薬剤メーカー各社が

癌性の疑いがあることから市販は中止されているが、合板の防虫処理が行われた初期において各社から市販されていたクロルデン系防虫剤は、クロルデン原体の濃度が60~80%になっているものが多かった。

この試験においては、防虫薬剤として日本農業(株)で調合した原体濃度70%のもの2種類を試料とした。

## 2.2. 防虫合板の接着

あらかじめ含水率を電気抵抗式水分計の指示値が4%以下、および11~12%となるように調湿した厚さ3mmのラワン単板(気乾比重 約0.46)を用い、次の条件によって厚さが9mm、30cm×30cmサイズの等厚3プライ防虫合板を接着した。

接着剤配合: 表5.1.のとおり

塗付量: 38g/900cm<sup>2</sup> (2接着層)

板圧締: 圧力10kg/cm<sup>2</sup>、時間15分

熱 圧: 圧力10kg/cm<sup>2</sup>、温度120℃、時間4分30秒

表5.1.の接着剤配合のうち、No.1およびNo.3の配合は糊液中のクロルデン含有量が0.78%となり、No.2とNo.4の配合では糊液中のクロルデン含有量が1.54%となる。したがってクロルデンの添加量は合板単位容積あたり363g/m<sup>3</sup>、および720g/m<sup>3</sup>の計算量に相当している。

このような条件で接着した合板を約1か月間室内に放置したのち、試料合板の対角線上に、図5.1.に示すごとく、3ヶ所より1cm×2cmの大きさのテストピースを切り出し、クロルデン含有量の定量を行った。

## 2.3. クロルデン含有量の定量

測定に供した試料合板は、単板含水率、クロルデン薬剤の種類、ならびに添加量をそれぞれ2水準ずつにとって接着したものである。

各試料合板より切り取った1cm×2cmの大きさのテストピースを、カッターナイフを用いて図5.2.のごとく単板層の中心部にそって切断し、さらに各区分ごとに細かい削片状に削った。各区分ごとにまとめられた削片は、全量を別々の200ml 容共栓付き三角フラスコに入れ、ついでメタノール10ml、およびノルマルヘキササン50mlを加えて15分間振とうして

表 5.1. 接着剤糊液の配合

配 合 No.	1	2	3	4
メラミン・ユリア樹脂 (豊年 ML-037)	100部	100部	100部	100部
小麦粉	20 "	20 "	20 "	20 "
水	13 "	13 "	13 "	13 "
塩化アンモニウム粉末	0.5 "	0.5 "	0.5 "	0.5 "
クロルデン薬剤A	1.5 "	3.0 "	—	—
" B	—	—	1.5 "	3.0 "

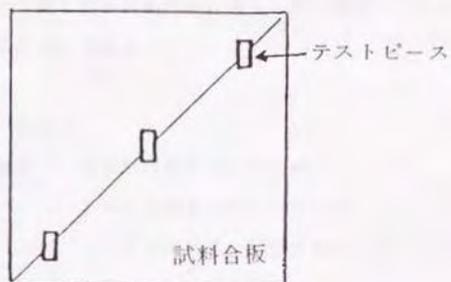


図 5.1. テストピースの切り出し箇所

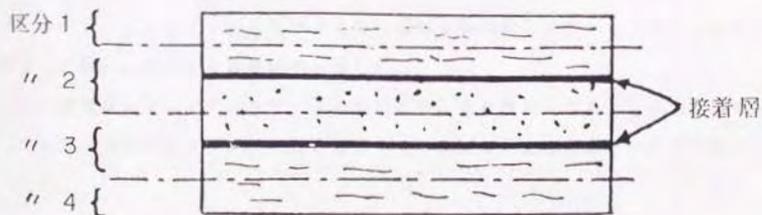


図 5.2. 削片の切り出し区分

クロルデンの抽出を行った。

そして、4時間以上そのまま放置したのち、蒸留水50mlを加えて10分間振とうし、その後ノルマルヘキサラン層を取り出して、その中に含まれるクロルデン量を次の条件によるガスクロマトグラフィーによって測定した。

なお、クロルデンの抽出に供した試料削片は、第1、第4層については約0.15g、第2および第3層については約0.30gである。

#### ガスクロマトグラフィーの条件

ガスクロマトグラフ装置	: 島津製作所GC-6AM
カラム	: 1m×3mmφのガラスカラム
充填剤	: シリコーンSE-30を3%コーティングしたガスクロマト ムQ
キャリアガス	: 窒素ガス、圧力 2kg/cm <sup>2</sup>
カラム温度	: 220℃
注入部、検出部温度	: 240℃
試料の注入量	: 2μl
検出器	: E. C. D.、 <sup>63</sup> Ni、10mC

検量線の作成は次の方法によった。すなわち、クロルデン原体をノルマルヘキサランに溶解し、濃度の異なる標準溶液を調製した。その2μlを採ってガスクロマトグラフに注入して、リテンションタイム約6分のところに現れる最高ピークのベースラインよりの高さを測定して図5.3のごとき検量線を作成した。

この検量線を用いてテストピースの各層区分に含まれるクロルデンの定量を行った。さらに各層区分のクロルデン検出量を加算して、合板の単位容積あたりのクロルデン含有量とした。

### 3. 試験結果と考察

4種類の糊液配合で接着した合板に含まれるクロルデンの計算量、実測値、および計算量と実測値の百分率比（以下これを回収率という）を表5.2.に示した。

合板の単位容積に含まれるクロルデンは363g/m<sup>3</sup>、および720g/m<sup>3</sup>となるが、表5.2.の

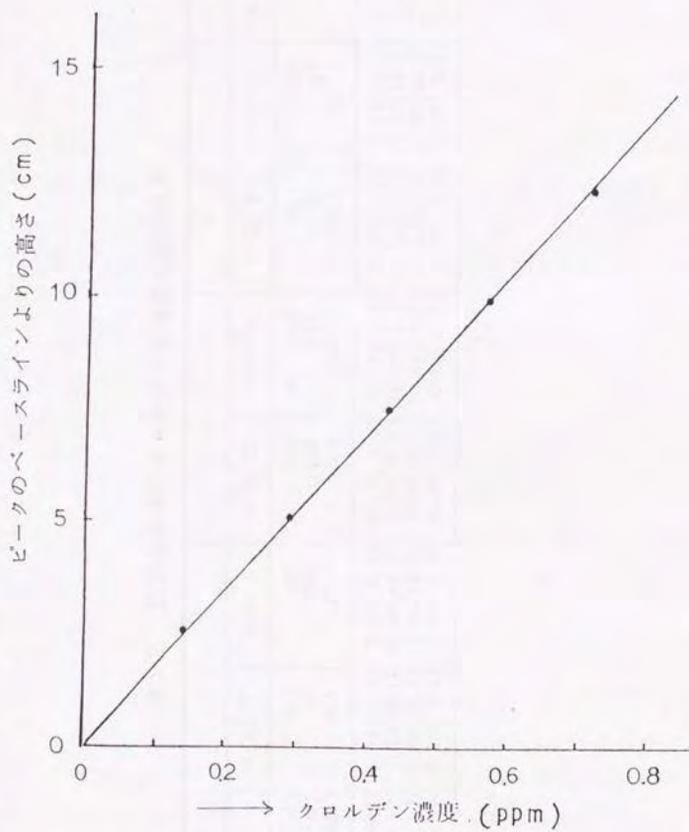


図 5.3. クロルデン検量線

表5.2. 防虫合板中のクロルデン含有量の測定結果

配合 No.	1		2		3		4	
	4 以下	11~12						
単板含水率 (水分計目盛%)								
合板中の計算値(Ag/㎡)	363	363	720	720	363	363	720	720
クロルデン含有量(Bg/㎡)	59	301	130	729	98	367	119	682
と回収率(B/A%)	16.1	107.7	18.0	101.2	10.5	101.1	16.5	94.7
テストピース内の クロルデン含有率	0.04(0.6)	0.23(0.5)	0.13(0.9)	0.27(0.3)	0.07(1.5)	0.15(0.3)	0.11(0.7)	0.32(0.4)
と分布(×10 <sup>-3</sup> 重量%)	1.82(46.1)	10.79(46.0)	3.55(45.6)	24.19(55.3)	1.16(51.5)	10.78(49.0)	4.06(56.9)	22.31(54.5)
カッコ	1.85(52.3)	12.45(53.0)	4.08(52.4)	19.19(43.9)	1.01(44.5)	11.07(50.3)	2.95(41.4)	18.16(44.4)
内は分布%	0.08(1.0)	0.25(0.5)	0.18(1.1)	0.45(0.5)	0.13(2.5)	0.17(0.4)	0.14(1.0)	0.59(0.7)

結果によると、測定によって求められたクロルデン量は、接着するときに使用した単板の含水率によって異なり、よく乾燥した単板のときは $38\sim 59\text{g}/\text{m}^2$ 、または $119\sim 130\text{g}/\text{m}^2$ となった。また高い含水率の単板のときは、実測値が計算値に近い数値となった。

回収率で見ると、十分乾燥した単板を用いたときは $10\sim 18\%$ の回収率に過ぎないが、高い含水率の単板になると $100\%$ 前後の回収率となった。回収率のバラツキはやや大きいものの、単板含水率によって回収率に著しい差が見られたことから、接着時の単板含水率が回収率に支配的な影響を与えているものと考えられた。

また、表5.2.にはテストピースの各層に含まれるクロルデンの木材重量あたりの含有率と分布を併記した。その結果によると、各層に含まれるクロルデンの分散比率は単板含水率の高低に関係なく、全体の $95\%$ 以上が接着層を含む第2、第3層に存在し、表板層や裏板層にはわずかな比率のクロルデンしか存在しなかった。

クロルデンの含有率で見ると、表・裏板層における含有率が単板含水率の増加につれて増えている。

このような結果からも、接着剤混入法による防虫処理では、クロルデンを合板の各層により均一に分散させるためには高い含水率の単板を使用するのが望ましいと考えられた。

合板を接着するときに使用する単板の含水率によってクロルデンの回収率が異なる理由については次のように考えられた。

十分に乾燥された単板を用いて合板を接着するとき、単板上に塗付された接着剤の水分は短時間のうちに木材の中へ吸収される<sup>1)</sup>。そのために接着層の固形分と粘度が時間の経過と共に急昇して、熱圧時に接着剤が木材内部へ浸透するのを抑止する。したがって厚い接着層が形成されて、接着層に懸濁した状態で存在するクロルデンを包み込み、溶剤抽出の際に抽出されにくくなる。

いっぽう、高い含水率の単板を用いて接着したときは、接着層水分の減少速度が遅くなるために<sup>1)</sup>、固形分と粘度の低い接着層となり、熱圧時に接着剤の浸透が著しく起こる。その結果、接着層の厚さは薄くなり、接着剤に含まれるクロルデンも木材内部へ拡散しやすくなる。また単板含水率が高いと、気泡を多く含んだ接着層になりやすいため<sup>2)</sup>、クロルデンが溶剤抽出の際に溶出されやすくなる。その結果回収率が向上するようになると考えられた。

なお、本報告の結果によれば、十分に乾燥した単板を用いて接着した防虫合板は、殺虫効果が低下する可能性も考えられた。そこで、実際に異なる含水率の単板を組み合わせ

接着した防虫合板によって、その殺虫効果を調べた例を示す。

表5.3.<sup>21)</sup>は、30匹のイエシロアリの職蟻を、接着剤の中にクロルデンを混入して防虫処理した合板の表面、表板層の中心面、接着層面、コア単板層の中心面、および木口切断面にそれぞれ接触させ、一定時間後の生存状態を観察した結果である。

その結果、特に接着層面に接触させた場合に、単板の含水率が低下するにしたがって死虫率も低下する傾向が見られた。この結果は、クロルデンが接着層中に閉じ込められて活性が低下した状態になっていることを示すものと思われた。

合板を接着する際に、高い含水率の単板を用いるほどクロルデンの回収率が向上する表5.2.の結果は、接着剤の浸透現象と関連づけて考えると、納得し得る結果であった。

#### 4. おわりに

防虫合板を製造するにあたって、接着剤に防虫薬剤を混入する方法が特別な設備を必要とせず、現在の合板工場においてもっとも容易に取り組める方法である。しかし、この方法は添加した薬剤量をあとでチェックするのがむづかしい。

本報告ではクロルデンを接着剤に混入する方法に関し、薬剤の回収率と単板含水率との関係を検討した。そして合板を接着する際に用いる単板の含水率がクロルデンの回収率や殺虫効果に影響を与えていることを示した。接着剤混入法により防虫合板を生産する際に均一な殺虫効果を有する防虫合板を得るためには、含水率の高い単板を使用するのが適当である、と考えられるような結果になった。

#### 引用文献

- 1) 鶴田 清：木材工業、30、206 (1975)
- 2) D. A. Hare, N. P. Kutsha: Wood Sci., 6, 294 (1974)
- 3) 豊年製油テクニカルインフォメーション

表 5.3. 単板含水率と殺虫効果との関係<sup>3)</sup>

試料合板 No.		D-1	D-2	D-3	D-4
単板含水率	表板	4%以下	8~10%	15~17%	8~10%
	中板	4%以下	8~10%	15~17%	20~22%
接触時間 接触面	虫の観察状態	生虫→ノックダウ ン→致死	生虫→ノックダウ ン→致死	生虫→ノックダウ ン→致死	生虫→ノックダウ ン→致死
	合表板面	24hr 48 "	28-1-1 13-12-5	30-0-0 15-12-3	21-8-1 0-20-10
フェース 板中心面	24 "	30-0-0	29-1-0	8-20-2	30-0-0
	48 "	12-13-5	11-13-6	0-15-15	14-15-1
接着面	24 "	28-1-1	2-27-1	0-22-8	0-29-1
	48 "	4-11-15	0-17-13	0-0-30	0-16-14
コア 板中心面	24 "	26-1-3	27-3-0	0-28-2	0-30-0
	48 "	5-18-7	0-25-5	0-3-27	0-22-8
切断面	24 "	25-2-3	20-10-0	11-18-1	4-26-0
	48 "	1-17-12	12-16-2	0-21-9	0-18-12

(接着条件) 材: マンガンノロ 2.0mm+2.0mm+2.0mm

糊液配合: 変性フェノール樹脂(豊年LP-160) 100部

小麦粉20部, 血粉2部, 水13部, 塩化アン

モニウム粉末0.5部, クロルデン系薬剤(75

%) 2部

塗付量: 40g/900cm<sup>2</sup>

冷 圧: 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱 圧: 10kg/cm<sup>2</sup>, 120℃, 3分

## 第6章 多樹脂含有クルイン材の接着

### 1. はじめに

クルイン (*Dipterocarpus spp.*) はフィリピンではアビトンとも呼ばれ、東南アジアに広く分布する比重が高く、材質が堅い樹種である<sup>1)</sup>。

種類によっては樹脂を多く含み、乾燥中に表面全面もしくは一部に樹脂がにじみ出るので、接着に問題がある樹種である。そのために合板用原木としてあまり利用されていないが、近年、合板工場における雑木の使用が増えるにつれて、購入原木の中に混入していることが多く、トラブルの原因にもなっている。

最近における原木価格の高騰には低品位材の利用によって対応せざるを得ず、したがって多樹脂含有材を合板用原木として利用するための接着性改善に関する研究の必要性が高まっている。

多樹脂含有材の接着についての研究は、すでに幾つかの報告がある。これらの報告では接着性困難の原因を接着剤に対するぬれや、抽出成分の影響の面から検討しているものが多い。そして、単板を有機溶剤やアルカリ溶液で処理したり<sup>2)</sup>、接触角を小さくする硬化剤として硝酸アンモニウムをユリア樹脂接着剤に添加することによって多樹脂含有材の接着性を改善する方法<sup>3)</sup>などが提案されている。

一般に木材の樹脂成分は遊離脂肪酸、樹脂酸、トリグリセライド化合物、ステロイドおよびトリテルペノイド、炭水化物および高級アルコールなどの混合物といわれている<sup>4)</sup>。これらの成分はいずれも水との親和性が少なく、そのため、これらの成分によって接着面の大部分が被覆された多樹脂含有材は吸水性に乏しい。

したがって、そのような材面に接着剤を塗付したとき、接着層における水分の挙動が通常の木材に比べてかなり異なっていることが予想された。

そこで、多樹脂クルイン単板を用いて接着層の水分挙動の観点からクルイン材の接着性を改善する検討を試みた。その結果、興味ある知見を得たので以下に報告する。

### 2. 実験

#### 2.1. 接着層の水分挙動と転写率

### 2.1.1. 試料

表面の三分の二以上を樹脂で被覆された厚さ3.3mmのクルイン単板と、同じ厚さのレッド・メランティー単板を、さらに50℃の温度下で3時間減圧下で再乾燥して試料単板とした。これらの単板の比重はクルイン単板で約0.87、レッド・メランティー単板では約0.46であった。

これらの単板を15cm平方のサイズにカットし、次の3種類での単板の組み合わせを用意した。

構成A： 表単板 レッド・メランティー  
心単板 クルイン

構成B： 表単板・心単板ともにクルイン

構成C： 表単板・心単板ともにレッド・メランティー

接着剤には多樹脂材用に改良したフェノール・メラミン樹脂接着剤を使用し、樹脂液が100重量部、小麦粉20重量部、水10重量部、塩化アンモニウム粉末0.5重量部の割合で配合して接着剤糊液を調製した。

### 2.1.2. 接着層の水分変化と転写率の測定方法

前記3種類の構成で組み合わせた単板について、心板単板の木おもて面にゴムロールで接着剤糊液を1平方メートル（1接着層）あたり190g、および220gの割合で塗付する。その上へあらかじめ重量を測定した表単板を、木うら面が接着剤塗付面に接するように、かつ繊維方向が互いに直交するようにして重ね合わせる。そのようにして仕組んだ2枚の単板の上下に厚さ9mmの合板を重ねて、実験室用コールドプレスで室温下にて10kg/cm<sup>2</sup>の圧力を加えて所定時間圧縮する。

仮圧縮終了後、ただちに重なり合った2枚の単板をはく離し、心板単板上に残った接着剤を硬質ゴム製ヘラでかき採り、重量既知のアルミニウム箔製カップに移す。このとき表単板の重量増加を測定してそれを接着剤転写量とする。

かき採った糊液を入れたアルミニウム箔カップの重量を測定してから50±1℃に保った減圧乾燥器中で3時間減圧乾燥し、シリカゲル乾燥剤を使用したデシケータ中で30分間放冷したのち、再度、重量を測定する。

そして、次式（1）、（2）により接着層の水分率と接着剤転写率を計算した。

$$\text{接着層の水分率 (\%)} = \frac{W_1 - W_2}{W_1} \times 100 \quad (1)$$

ここで、 $W_1$  : かき採った糊液の重量 (g)

$W_2$  : 減圧乾燥後の糊液重量 (g)

$$\text{接着剤転写率 (\%)} = \frac{M_2}{M_1} \times 100 \quad (2)$$

ここで、 $M_1$  : 心板単板への接着剤塗付重量 (g)

$M_2$  : 表単板への接着剤転写量 (g)

## 2.2. 多樹脂クルイン単板の接着条件についての検討

予備的な試験を行った結果、多樹脂クルイン単板を接着するとき、表6.1.に記すようにクルイン単板同志を接着するよりも他樹種の単板と組み合わせて接着した方が良好な接着性を示すことから、接着条件の検討にあたってクルイン単板とラワン系単板とを仕組み、3プライ合板として検討を行った。

心板単板には合板工場より入手した厚さ4mmで表面の2/3以上を樹脂で覆われたクルイン単板(気乾比重、約0.87)を用い、表・裏単板には厚さ2mmのラワン系単板(気乾比重、約0.48)を使用した。

接着剤には前記のように多樹脂材の接着に適するフェノール・メラミン樹脂接着剤(PMF)を主に用い、一部の試験には、多樹脂材の接着用に改良したメラミン・ユリア樹脂接着剤(MUF)を使用した。そして糊液配合は前記の配合割合とした。

その他の接着条件は、特に断りのないかぎり次の条件を標準とした。

単板含水率: 7~9% (電気抵抗式水分計による)

接着剤塗付量: 445g/m<sup>2</sup> (2接着層)

糊付け時間: 15分以内

仮圧縮: 圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分

熱圧条件: 温度 120℃、圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 3.5分

接着した試料合板は約3日間室内に放置したのち、JAS普通合板規格の試験法に準じて常態、温冷水浸せき、ならびに煮沸くり返し接着強さをアムスラー型引張試験機によ

表6.1. フェノール・メラミン樹脂により接着した合板の  
接着強さに与える単板樹種の影響

Moisture content (%)	Veneer species	Tensile strength(kg/cm <sup>2</sup> )	
		dry shear	boiling
4 >	*L+K+L	20.5(16)**	8.0(0)
	K+K+K	13.2(34)	6.3(0)
7 ~ 9	L+K+L	19.7( 6)	6.1(0)
	K+K+K	12.7(84)	5.5(0)

(\*) L : ラワン単板、K : クルイン単板

(\*\*) カッコ内は木破率の平均値 (%)

て測定した。

### 3. 結果および考察

#### 3.1. 接着層の水分変化と接着剤転写率

クルインおよびレッド・メランティ―単板上に接着剤糊液を塗付量を変えて塗付し、所定時間仮圧縮したときの接着層水分変化率と仮圧縮時間との関係を図6.1.に示した。

その結果によると、レッド・メランティ―単板上に接着剤を塗付したときは5~10分の圧縮の間に接着層水分が急速に低下していく。それに対してクルイン単板上の接着層は水分の低下が緩やかであり、特に塗付量が少ないときにその差が明瞭になった。

クルイン単板は接着面が水と親和しにくい樹脂によって被覆されているだけに接着層の水分を吸収しにくくなっていることが認められた。

一般に、単板表面にはレースチェックや導管孔、目ばれなどが存在し、平滑な状態を呈していない。そのような表面にぬれのよい液体を塗付すると、液体は毛細管力によって空隙内に浸透していく現象を示す<sup>5)</sup>。

しかしクルイン単板の場合は、親水性に乏しい樹脂が単板表面に皮膜を形成しているために接着剤とのぬれを著しく損ねている。実際に、本実験に使用したクルイン単板と蒸溜水との接触角をエルマ型ゴニオメータで測定したところ、接触角は $92^\circ$ であった。

Veillonらによる弱アルカリ水溶液での測定結果<sup>2)</sup>や、児玉らによるユリア樹脂液での測定結果<sup>3)</sup>などでも、クルイン単板の接触角は $90^\circ$ を越えている。

接触角が $90^\circ$ を越えている場合は毛細管力が発生せず、加圧しないかぎり接着剤は単板内部へ浸透しない。結局、図6.1.の結果はぬれの悪い単板に接着剤を塗付したときの接着層水分の挙動を直接的に示したことになるわけで、接着層水分率が高いことは仮接着性の低下や、熱圧時における接着剤の過度の浸透を引き起こし、接着力低下などの現象に結びつく結果になる。

したがって、熱圧時における接着層水分率を適度にコントロールすることによって接着性能は改善されるはずである<sup>6)</sup>。クルイン単板の接着にあたってはその点に留意して接着すれば、良好な接着が得られるようになると予測された。

次に、接着剤転写率の測定結果を図6.2.に示した。接着剤転写率は、同じ樹種同志を仕組んだときには50~60%の値になり、相手の単板へはほぼ同量の接着剤が転写していくこと

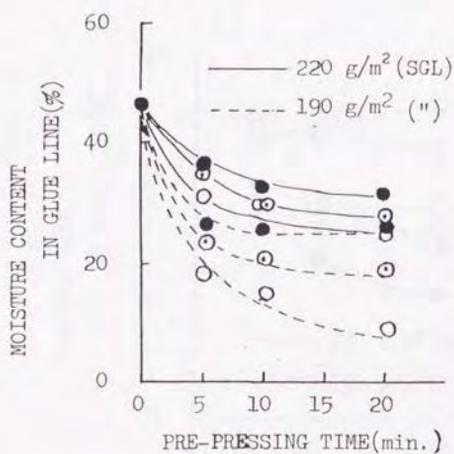


図6. 1. 板圧縮時の接着層水分の経時変化

- : Keruing + Keruing.
- (with dot) : Keruing + Meranti.
- : Meranti + Meranti.

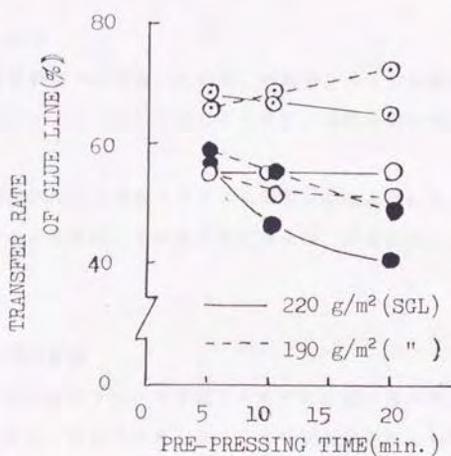


図6. 2. 仮圧縮時の接着剤転写率の変化

- : Keruing + Keruing.
- ⊙ : Keruing + Meranti.
- : Meranti + Meranti.

になる。そしてレースチェックがある木うら側に若干多くの接着剤が移行していく。

クルイン単板同志を組み合わせたとき、圧縮時間と共に転写率が減少したが、その原因は明らかではない。クルイン単板同志を仕組んだ場合は接着層に水分が多く残存し、いつまでも流動性を保持しているために木端側から接着剤が流出したことも考えられた。

異種の単板を組み合わせたときは、クルイン単板の方に接着剤を塗付したにもかかわらず、レッド・メランティー単板側へ多くの接着剤が転写した。これは両単板のぬれの差によるものであって、親和性のよいレッド・メランティー単板の方へ接着剤が吸収されたためと考えられた。

### 3.2. 接着条件の検討

接着層の水分挙動について調べた結果、多樹脂クルイン単板を接着する際でも、接着層水分率を適正にコントロールしてやりさえすれば良好な接着が得られるのではないかと考えられた。

そこで、多樹脂クルイン単板とラワン系単板とを組み合わせた合板で、熱圧時の接着層水分率に影響を与える要因、すなわち単板含水率、単板温度、堆積時間などの影響を検討した。

#### 3.2.1. 単板含水率の影響

クルイン単板ならびにラワン系単板をそれぞれ所定の含水率に調湿し、同一含水率の単板同志を組み合わせて合板を接着した。そして引張接着強さを測定した結果を図6.3.に記した。

図6.3.の結果では、常態および煮沸くり返し接着強さのいずれについても、全乾に近い状態のときに最高の値を示し、単板含水率の上昇と共に接着強さの値が低下する傾向を示した。

一般に、接着時の単板含水率は8~10%が最適といわれているが、多樹脂クルイン単板を使用するときには十分に乾燥した単板を使用する必要があった。このような一般の単板を用いたときと異なる接着条件は、接着層水分を吸収しにくいクルイン単板の性質に起因するためである。

#### 3.2.2. 堆積時間の影響

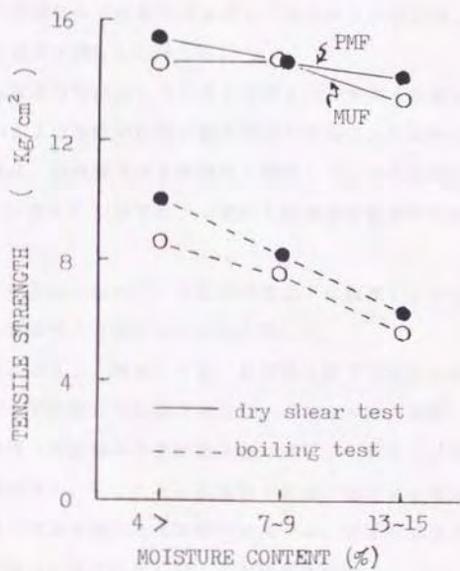


図6.3. 単板含水率が接着強さに与える影響

クルイン単板の両面に接着剤を塗付したあと、表単板と接する面を大気中に所定時間暴露し、しかるのち仮圧縮、熱圧を行って得た合板の常態および煮沸くり返し接着強さの測定結果を図6.4.に記した。この結果はオープン・アッセンブリー・タイムの影響を示すものである。

接着層を5時間、大気に暴露しても常態接着強さには影響がない。また、煮沸くり返し接着強さは暴露時間を長くするほど高い値になった。

次に、20℃ならびに50℃の温度に保持した単板に接着剤を塗付してから表・裏単板を軽く重ね、さらに同温度にて所定時間放置し、そのあとに仮接着、熱圧を行って得た合板の接着強さの測定結果を図6.5.に示した。

この結果でも放置時間が長くなるほど常態および煮沸くり返し接着強さは向上し、特に単板温度が高いときは全般的に高い耐水強度になることが認められた。

これらの実験は、接着層水分を意識的に乾かして、その状態における影響を調べたものである。図6.4.～図6.5.の結果は、いずれも接着層を乾燥させた方が好結果になることを示していた。

図6.6.には、仮圧縮したのち、所定時間室温下に放置してから熱圧した合板の常態および煮沸くり返し接着強さを測定した結果を示した。

図6.6.の結果によると、煮沸くり返し接着強さは2時間以上放置することにより大きく向上し、5時間まで放置しても低下することはなかった。通常、仮接着後の放置時間の影響は、2～3時間で接着強さの値が最高値に達し、それ以上の放置時間をとることによって接着層の乾燥が進み、そのために接着強さの値が低下する傾向になる<sup>7)</sup>。

多樹脂クルイン単板を用いた本実験の結果では、従来の結果と異なる傾向が認められ、接着層の乾燥が進んだ方が好ましいことが確認された。

### 3.2.3. 単板温度の影響

木材中における水分の拡散速度は温度が高くなるほど大きくなる<sup>8)</sup>ことから、温度の高い単板（以下、ホット単板という）を使用することによる多樹脂クルイン単板の接着性改善について検討した。

供試クルイン単板は、厚さが2mmで気乾比重が約0.62のものであり、樹脂が単板表面に幅広く筋状になって偏在している単板（以下、クルインAという）と、表面全面に樹脂が細かく点在している単板（以下、クルインBという）との2種類を用いた。

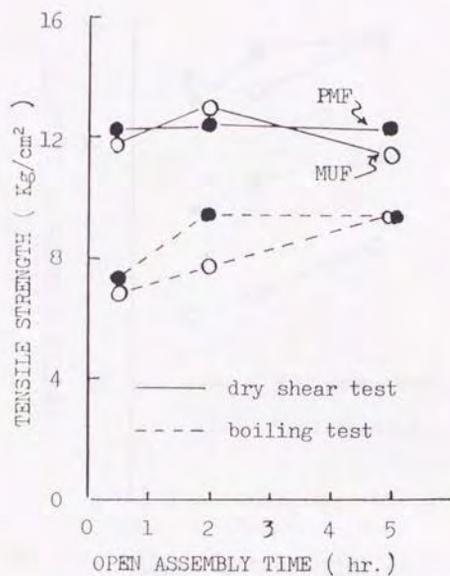


図6.4. オープン・アッセンブリー・タイムが接着強さに与える影響

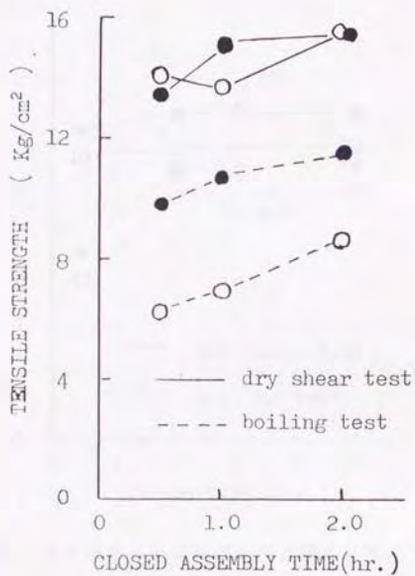


図6.5. 閉鎖堆積時間、単板温度が接着強さに与える影響

● : veneer temp. at 50°C  
 ○ : " " at 20°C

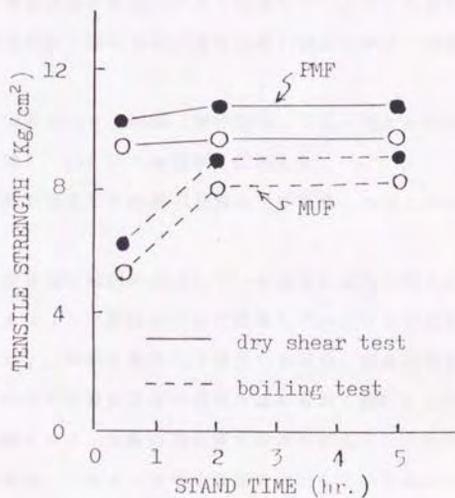


図6.6. 仮圧縮後の放置時間が接着強さに与える影響

これらの単板を心板に用い、表・裏単板には厚さ1.45mmのイエロー・メラントニー単板を使用した。接着面の樹脂汚染の程度は前述の実験に使用したクルイン単板に比べて軽微であり、クルインBは接着にやや支障をきたすと思われる程度であった。いずれの単板も含水率を電気抵抗式水分計の測定により8~10%になるように調湿した。

ホット単板として、クルイン単板をポリエチレン製袋内に密封して90℃に保った恒温器中に2時間程度放置し、使用直前に恒温器より取り出してすばやく接着剤を塗付、仮圧縮後すぐに熱圧接着した。

90℃の温度で単板表面の樹脂はかなり溶融してベタついた状態になる。このような方法によって、実際の合板工場における条件に近い状況でホット単板を使用したときの効果を推測した。

接着剤には、市販のユリア樹脂（豊年製油、UL-002）ならびにメラミン・ユリア樹脂（豊年製油、ML-037）の接着剤を使用した。

このような条件で接着した合板の常態および煮沸くり返し接着強さの測定結果を表6.2.に記した。

その結果は、接着面に樹脂が滲出している程度によって明らかな差があり、表面汚染の少ないクルインBはユリア樹脂接着剤で接着してかなり良好な接着値を得た。

加熱処理したホット単板を使用して接着した場合、接着剤の種類や、接着面への樹脂滲出の程度にかかわらず接着性改善の効果が認められ、図6.5.の結果と共にホット単板の使用によって多樹脂クルイン単板の接着性が改善されることがわかった。

このような結果は、クルイン単板の表面に滲出している脆弱な樹脂層が溶融されやすくなることによって接着剤と入り交じり、脆弱層が強化されていることを示している、と考えられた。

#### 4. おわりに

以上、多樹脂クルイン単板を用いて接着性改善について検討を行った。

多樹脂クルイン単板の表面に存在する疎水性の樹脂層が、接着層の水分を木材内部へ吸収させる作用を阻害しているために、熱圧時点において接着層水分が過剰に残存する結果をまねき、それが接着剤を過度に浸透せしめ、接着性を低下させるひとつの原因になっていることがわかった。

表6.2. 接着時の単板温度が接着強さに与える影響

Veneer temperature	Veneer species	TENSILE STRENGTH(kg/cm <sup>2</sup> )			
		dry shear U.F. resin	JAS Type-2	dry shear M.U.F. resin	JAS Type-1
R. T.	Keruing A	12.1(54)	6.4(2)	11.9(64)	21(0)
		7.2~15.5 (0)~(100)	2.5~11.4 (0)~(10)	8.6~13.8 (0)~(100)	0~5.8 (0)
	Keruing B	14.3(100)	12.5(32)	15.6(100)	5.8(10)
		13.6~15.2 (100)	11.7~13.5 (0)~(80)	14.1~16.9 (100)	4.6~7.7 (0)~(20)
Heated at 90 °C	Keruing A	13.2(70)	11.0(46)	11.8(46)	4.9(2)
		11.6~17.2 (20)~(100)	7.1~13.5 (0)~(80)	8.3~16.3 (10)~(80)	0~8.6 (0)~(10)
	Keruing B	13.7(100)	14.8(68)	14.6(100)	7.2(12)
		12.5~15.2 (100)	12.9~16.0 (60)~(80)	13.6~16.1 (100)	5.8~8.0 (0)~(20)

カッコ内は木破率 (%)

接着条件: 樹種: 表裏単板 厚さ2mmイェロ-メラランティ-心単板 ックルイン

接着剤配合: エリア樹脂または

メラミン・ユリア樹脂 100 重量部

小麦粉 20 \*

水 10 \*

塩化アンモニウム粉末 0.5 \*

仮圧締: 10kg/cm<sup>2</sup>, 15分

熱圧条件: 120 °C, 10kg/cm<sup>2</sup>, 2.0 分

その知見をもとに適正な接着条件について検討した結果、次の諸条件を組み合わせることによりクルイン材の接着性を改善し得る可能性を見出した。

- (1) クルイン単板は異樹種単板と組み合わせて使用する。
- (2) 接着時に、単板は十分に乾燥したものを使用する。
- (3) 接着時の単板の温度は支障のない程度に高いものがよい。
- (4) 接着剤を塗付したのち、もしくは仮圧縮後に放置時間をとり、接着層水分が減少した時点で熱圧する。

最後に、実験用に単板を供給していただいた多数の合板工場のご協力に対して厚く感謝する次第です。

#### 引用文献

- 1) 須藤彰司：「南洋材」、地球出版、p78 (1970)
- 2) J. D. Wellons, R. L. Krahmer, R. Raymond, G. Sleet: Forest Prod. J., 27(2), 38 (1977)
- 3) 児玉孝彦、岡田弥高、松田慶一、小川健作、神戸門嗣：愛知県工業指導所報告、第15号、6 (1979)
- 4) 近藤民雄：化学の領域、24, 1012 (1975)
- 5) J. F. Siau: "Flow in Wood" Syracuse Univ. Press, p57 (1971)
- 6) P. L. Northcott, W. V. Hancock, H. G. M. Colbeck: Forest Prod. J., 12 (10), 478 (1962)
- 7) 田村靖夫、山田哲夫、山田忠和：木材工業、23, 12 (1978)
- 8) 木材工業ハンドブック、丸善、p245 (1958)

## 第7章 難接着木材に対する接着面からの改良

### 1. はじめに

わが国の木材工業における原木事情の将来は厳しく、針葉樹を含めてこれまでに使用した経験のない樹種を使いこなしていかなばならない状況にある。そのなかには接着トラブルを多発しやすい、いわゆる難接着木材が混入する危険性が常にある。

難接着木材とは、何らかの原因によって接着できない木材のことであって、それは現時点において接着の方法がわからない樹種と考えるべきであり、種々の研究を積み重ねることによって、いずれは問題なく接着できるようになる木材ということもできる。それゆえ、接着技術の進歩と共に難接着性木材は変わってくるものである。この種の木材の接着を研究するに際しては、接着しない原因を追求することから検討を始める必要がある。

一般に接着トラブルの原因を現象面から大別すると、次の三つの項目に分けることができる。

- (1) 接着層と木材との界面破壊
- (2) 接着層の形成不良
- (3) 接着層での凝集破壊

これらの現象の発生原因には種々の因子が考えられ、多くの場合は幾つかの要因が複合して接着トラブルを起している。したがって、難接着性木材を接着するにあたっては、トラブルがどのように発生しているかをまず調査し、その現象に関連する複数の因子を解明して、それらの要因を一つずつ除去していくことが必要になる。この過程は物理的あるいは化学的に、またさらに他面的な角度からの検討を行って、その原因を明確に把握することが重要になる。

しかし、原因の正確な把握は極めて困難であり、そのために実際面においては、原因を想定しながら接着剤をはじめとして、増量剤や充填剤の選択や改良を行い、さらには適切な接着条件の選択などを行って、対象療法的な手段を講じている。

本報告においては、のような実際の手法によって難接着性木材の接着改良を行った結果について報告するものである。

なお、難接着性木材には種々の樹種があるが、本報告においては、その中でも特に工業

的に多く使用されているシナ材や、疎水性の樹脂を多く含むクルイン材あるいはアビトン材、ならびにカプル材の3種類の樹種についての接着性改良の検討を行った。さらに針葉樹材であるダグラス・ファーについても若干の接着性改良を試みたので、その結果についても言及することにした。

## 2. 試料および試験方法

### 2.1. シナ材に関する接着性の改良試験

#### 2.1.1. 試料

シナ材 (*Tilia japonica* SIMK) には、北海道の合板工場において製造した厚さ1mmで、含水率10~13%に乾燥したロータリー単板を使用した。またラワン単板は、静岡県のある合板工場より入手した厚さが0.7mm および1.25mmで、含水率が8~10%のものを使用した。

接着剤には市販のユリア樹脂接着剤(豊年製油、EU-4)を用いた。また増量剤には市販の小麦粉(国内産3等粉)を使用した。

充填剤には、粒度が104  $\mu\text{m}$ 以下の工業用木粉、およびクレーを用いた。また樹皮粉末には、ベイツガの樹皮を104  $\mu\text{m}$ 以下に粉碎したのち、150  $^{\circ}\text{C}$ に保った電気恒温器中にて3時間加熱して調製したものをを使用した。

小麦粉および充填剤は、それぞれ同量比になるまで種々の割合で混合し、ユリア樹脂接着剤の100重量部に対して各々13重量部(増量度1.13倍のとき)、および22重量部(増量度1.32倍のとき)を配合して接着剤糊液とした。

なお、増量度が1.32倍のときは水を10重量部加えて糊液粘度を増量度1.13倍のときと同様になるよう調整した。

#### 2.1.2. 試験方法

シナ材は、接着剤が浸透しやすい木材として知られており、その接着に際して、工業的には他の樹種と比べて、通常、塗付量を10~20%増やして接着する方法が行われている。しかし、この方法では接着剤に要するコストが上昇することから、塗付量を増やさずに接着する方法が望まれていた。

そこで、ラワン材と同様な塗付量で接着可能とするために、充填剤を配合して接着剤の浸透を防止することを試みた。

その試験方法として次の接着条件によってシナおよびラワン単板をそれぞれ接着して合板を調製し、JAS普通合板規格に規定する2類合板の試験方法によってその接着強度を測定した。

接着条件： 合板構成： シナ、1.0mm 等厚3プライ

ラワン、0.7mm + 1.25mm + 0.7mm

塗付量： 240 g/m<sup>2</sup> (2接着層)

仮圧縮： 圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分、

熱圧条件： 圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、温度 110 ~ 115 °C、時間 1.5 分、

## 2.2.カプールの接着性改善に関する試験

### 2.2.1. 試料

試験に供したカプール (*Dryobalanops aromatica*) 単板は、各地の合板工場より入手したロータリー単板であり、その厚さは主に1.4 ~ 2.6mm で、含水率が8 ~ 12%のものを使用した。また試験によっては厚さ1.25mmの単板も使用した。比較のために使用するラワン単板もカプールの材と同じ厚さで、単板含水率が8 ~ 12%のものを、これも各地の合板工場で製造したロータリー単板を入手して使用した。

接着剤は市販のメラミン・ユリア樹脂、フェノール・メラミン樹脂、フェノール樹脂、大豆グルー、およびアルカリ型の $\alpha$ オレフィン・無水マレイン酸共重合樹脂など、いずれも豊年製油製のものを使用した。その中でフェノール樹脂接着剤については、低分子量成分を含ませる目的でフェノールを樹脂反応中に分割添加してアルカリ下にて反応させたアルカリ・レゾール型のもの(分割添加法樹脂とする)と、針葉樹などの接着に適するレッドファーン・タイプ<sup>1)</sup>と称されているフェノール樹脂の製造方法で、フェノールを反応当初に全量加え高アルカリ下で高粘度まで反応させた樹脂(フェノール一括添加法樹脂とする)の2種類のフェノール樹脂接着剤を用いた。

なお、試験に供した接着剤の詳細を以下にまとめて記した。またこれらの接着剤の使用法および接着条件は製造者の指定する方法に従った。

#### (1) メラミン・ユリア樹脂

豊年製油より市販されている合板用接着剤で、ML-037を使用した。

#### (2) フェノール・メラミン樹脂

豊年製油より市販されている合板用接着剤で、PL-160を使用した。

(3) 大豆グルー

豊年製油より市販されている接着剤で、LY-703を使用した。

(4)  $\alpha$ オレフィン・無水マレイン酸共重合樹脂

豊年製油より市販されている接着剤で、TX-2010を使用した。

(5) フェノール樹脂

フェノール樹脂は次の製法によって調製した。

a) フェノールの一括添加法樹脂

フェノール100部、37.2%ホルマリン150部、水13部、33%カセイソーダ水溶液15.2部を反応容器に加え、90℃で反応液粘度が1500CS (30℃) になるまで反応する。

その時点でさらに水46部、33%カセイソーダ水溶液54.5部を添加し、80℃にて20分間反応を続け、反応液粘度が80csとなったときに急冷して反応を停止させる。

b) フェノールの分割添加法樹脂

フェノール100部、37.2%ホルマリン215部、水13部、33%カセイソーダ水溶液15.2部を反応容器に加え、90℃にて反応する。

反応液粘度が900cs に到達したときに二次フェノール21.5部を添加、ふたたび反応液粘度が900cs になったときに三次フェノールを加え、水71部と33%カセイソーダ水溶液85部を添加して80℃にて反応を続ける。

反応液粘度が100cs になったときに急冷して反応を停止する。

これらの樹脂は不揮発分が約40%で、実用性のある保存性を有する接着剤であった。

### 2.2.2. 試験方法

カプセル単板の接着性に関する問題は、アルカリ・レゾール型のフェノール樹脂接着剤により接着したときに発生しやすいことが経験的に知られていた。そのため、カプセル単板に対する接着性改善の研究はフェノール樹脂接着剤を使用して接着する場合を中心に、して種々の検討を行った。

試験に供する試料合板は、主にフェノール樹脂接着剤を用いて、下記の接着条件を標準として接着し、この条件と異なる場合は試験結果に記載するようにした。また、試料合板の接着強度の測定はJAS普通合板規格の1類合板試験方法に準じた。しかし、フェノール樹脂接着剤を使用した合板の耐水接着性能を厳しく評価するために、一部の試験では煮沸水に24~72時間連続浸せきする試験を行った。

接着条件：接着剤塗付量：ラワン単板の場合  $385\text{g}/\text{cm}^2$  (2接着層)

カプル単板の場合  $385 \sim 440\text{g}/\text{cm}^2$  (〃)

仮圧縮：圧力  $5\text{Kg}/\text{cm}^2$ 、時間 10分、

熱圧条件：温度  $135^\circ\text{C}$ 、圧力  $10\text{Kg}/\text{cm}^2$ 、

時間 ラワン単板のとき 合板厚さ1mm あたり0.7分、

カプル単板のとき 〃 1mm あたり1.0分、

## 2.3. クルイン材の接着性改良に関する試験

### 2.3.1. 試料

クルイン (*Dipterocarpus spp.*) 単板は中部地方の合板工場より入手した厚さ2.0~3.2 mm のロータリー単板であり、含水率は6~12%、気乾比重が0.8~0.9のものを使用した。また単板を入手した時期により単板表面への疎水性樹脂の滲出度が異なるため、試験ごとに使い分けて使用した。

また、接着剤には、前述と同様の市販のユリア樹脂、メラミン・ユリア樹脂、フェノール・メラミン樹脂、2種類のフェノール樹脂、大豆グルーなどを用いた。しかし第2章における検討結果より、この種の木材に対してフェノール・メラミン樹脂接着剤が比較的良好的な接着性を期待できるので、接着剤については主にこの接着剤を利用することにした。

増量剤には合板用として市販されている小麦末粉およびフェノール樹脂専用増量剤を用いた。そして接着剤や増量剤の使い方は主に接着剤メーカーの指定する方法によった。

なお、クルイン単板とのぬれを改善するために種々の有機溶剤を用いたが、この溶剤はいずれも試薬1級品を使用した。

さらに一部の試験には、トウモロコシの不溶性タンパク質であるコーン・グルテンの粉末を50~60%の割合で添加した市販の補強剤(豊年製油、NS-101)を接着剤100重量部に対して5~10重量部配合した糊液を調合し、それによって接着試験を行った。このコーン・グルテンを接着剤に添加することにより、耐水接着性能が向上することが別の試

験で確認されている。

### 2.3.2. 試験方法

クルイン単板の表面には、乾燥時に樹脂が滲出して脆い樹脂層を形成している。このような単板の接着性改善については、接着条件を選定して接着層水分をコントロールすることにより改善する方法をすでに前章において述べている。そこで本章においては、接着適性を有する接着剤の選択や、増強剤を使用したときの効果、ならびに有機溶剤を接着剤に添加したときのぬれの改善効果など、主に接着剤ならびに糊液配合面からの改善効果について検討した。

したがって市販の接着剤にこれらの添加剤を種々配合した接着剤糊液を調製し、それによってクルイン単板を接着し、JAS普通合板規格に規定する1類あるいは特類合板の試験方法により接着性能の評価を行った。そして最終的には合板工場において実用化試験を行って、接着性改善の効果を確認した。

なお、クルイン単板の接着性改善のために検討した試験においては、多くの場合下記の接着条件によって合板の接着を行った。

主な接着条件：合板構成　；表裏板　1.8mm ラウン単板、含水率　7～8%

心板　　3.2mm クルイン単板、含水率　7～9%

接着剤配合；	通常配合	増強配合
フェノール・メラミン樹脂	100重量部	100重量部
小麦粉	20	10
増強剤	0	10
水	10	10
塩化アンモニウム粉末	0.5	0.5

塗付量；400～440g/m<sup>2</sup>（2接着層）

仮圧締；圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分、

熱圧条件；温度 120℃、圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、時間 3分10秒、

その他特別な接着条件を採用したときは試験結果に併記した。

## 2.4. 針葉樹材の接着性改善に関する試験

### 2.4.1. 試料

針葉樹材としてスギ、ヒノキ、アカマツ、カラマツ、エゾマツ、ベイマツ、およびベイマツなどの単板を各地の合板工場より入手して使用したが、主に接着性に問題があるベイマツ単板を中心に接着性改良試験を行った。これらの単板は厚さが1.6～3.6mmであり、いずれも気乾含水率のものを使用した。

接着剤については前述と同様なものを使用した。

#### 2.4.2. 試験方法

針葉樹単板の接着性改善の検討に際しては、まず種々の樹種の針葉樹材単板をメラミン・ユリア樹脂接着剤を用いて接着し、その接着強度を測定してアミノ系樹脂接着剤により接着困難な樹種を選択した。その結果として接着が困難なベイマツを選択し、主にフェノール樹脂およびフェノール・メラミン樹脂接着剤を用いて、この樹種の単板についての接着性改善の方法を検討した。

また、ベイマツ単板に対するぬれの評価方法は、純水を単板表面に滴下して、ゴニオメーターにより接触角を測定する方法によった。

なお、針葉樹単板を接着する際に多く採用した接着条件は下記の条件である。また特別な接着条件については試験結果に併記することにした。

主な接着条件：合板構成；ベイマツ単板 3mm等厚3プライ、含水率 5～6%、

接着剤 ；フェノール・メラミン樹脂およびアルカリ・レゾール型フェノール樹脂

糊液配合；小麦粉増量剤または専用増強剤を樹脂100重量部に対して10～25重量部を配合、

塗付量 ；400～460g/m<sup>2</sup>（2接着層）

仮圧縮 ；圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分、

熱圧条件；フェノール・メラミン樹脂の場合

温度 120℃、圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 4.5分、

フェノール樹脂の場合

温度 135℃、圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 6.5分、

なお、この接着条件は各試験に共通した標準条件を記したものであり、特別な条件を検討する場合には、その試験結果に接着条件を併記した。また、合板の接着強度の評価方法はJAS I類または特類規格の試験法に従った。

### 3. 試験結果および考察

#### 3.1. シナ材に関する接着性の改良試験

国産材の中でシナ材は接着が難しい樹種といわれている。そのためシナ材の接着に関する研究も多い。経験的には、シナの接着にあたって、接着剤の塗付量を通常の材を接着するときに比べて10~20%増やすことによって接着不良の発生を防いでいる。

松下<sup>21</sup>はシナの接着について試験を行い、その接着に際して塗付量を増す必要があること、1%カセイソーダ水溶液であらかじめ単板を処理しておくことで接着強度が向上し、シナの接着にはアルカリ性の弱い接着剤を使用するのが好ましいことなどを報告している。

原田<sup>21</sup>はシナ材の接着性低下の原因を湿潤性の面から検討し、シナの湿潤速度はカバヤブナに比べて低く、それはシナに含まれる有機溶剤や熱アルカリ水溶液に可溶性物質が湿潤阻害の原因になっていると述べている。

ユリア樹脂接着剤を用いてシナ材を接着するとき、シナ単板をあらかじめ熱水で短い時間処理しておくことで接着性能が向上することを吉田ら<sup>21</sup>は示している。また、阪口ら<sup>21</sup>はシナ材を水処理するだけで接着性改善に効果があることを示し、シナ材の水抽出物をユリア樹脂接着剤に添加して合板を接着すると、接着強度に有意差が出ることを報告している。

シナ材の接着に際して、接着剤の塗付面をよく観察していると、木材内部への接着剤の浸透が激しい様子が見られ、そのために一般的には塗付量を増すことによって大きな問題もなく接着している。

しかし、塗付量の増加は合板の製造コストを上昇させ、また種々の樹種を取り扱う合板工場においては、他の樹種からシナ材の接着作業に切り換えたときに塗付量の調整などを行わねばならず、それだけ作業管理に手間を要する。そのために接着条件を変更せずに単一作業でシナ材の接着が可能となる方法が要望されていた。

そこで、接着剤の過度の浸透を抑えるために充填剤を使用することを考え、接着剤糊液を調合する際に小麦粉増量剤と共に種々の充填剤を配合することを試みた。

図7.1.は、ベイツガ樹皮の粉末を加熱処理したものを小麦粉増量剤の30~50%置き換えて配合した接着剤糊液によって接着したシナ合板の接着強度を測定し、充填剤置換度と接着強度との関係を表した結果である。その結果、充填剤の使用比率が高くなるにしたがって、明らかに耐水接着強度が向上する傾向が認められ、充填剤の効果が得られた。

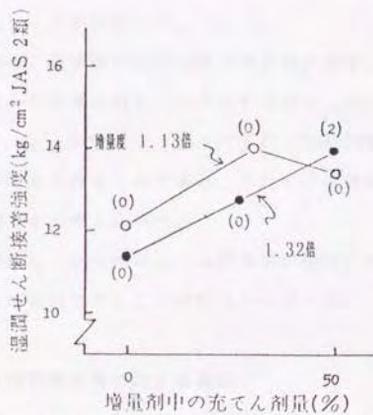


図 7.1. シナ単板の接着における充てん剤の影響

ベイツガ樹皮粉は特殊な成分を含んでいるために、一般的に使用されている充填剤に比べて異なる影響がある可能性も考えられる。そこで一般的に充填剤として用いられている代表的な種類の充填剤を小麦粉と共に1対1の割合で混合し、それを用いて調合した接着剤糊液によるシナ合板の接着を行った。そして図7.2.に示すような結果が得られた。

この図はラワンとシナをまったく同一の条件によって接着したものであるが、この図において小麦粉増量剤のみを使用したシナ合板では、ラワンに比べてシナ合板の接着強度は明らかに低い値を示していた。しかし、充填剤を使用することにより、その種類を問わずにシナ材の接着性能が大きく改善された。特にベイツガ樹皮粉を使用した場合に接着性能の改善効果は著しいことがわかった。

このような効果は、充填剤の粒子表面に接着剤が吸着され、それによって接着剤の木材内への浸透が明らかに抑制されることが認められた。特にベイツガ樹皮粉が有効なのは、樹皮に含まれるフェノール性のフラボノイド化合物が接着剤に含まれるホルムアルデヒドと反応することが考えられるためであり、それだけ接着剤を接着層に保持する効果が高いことによるに起因すると考えられた。

以上の検討結果から、シナ材のような接着剤が浸透しやすい木材に対しては充填剤を配合した接着剤糊液が有効であることが明らかになった。

### 3.2. カプル材の接着性改善に関する検討

#### 3.2.1. カプル合板の接着における特徴

カプル材の原木は直径が比較的太く、材質が均一であるために、合板用原木として多く利用されている。しかし、カプル単板を接着したときに、しばしば接着不良が発生する問題があり、その接着性改善については多くの努力がなされている。

浅野<sup>61</sup>や小西<sup>71</sup>らは、カプル材の接着性をぬれの面から検討し、液滴法による接触角の測定を行い、カプル材の接触角はラワン材よりも小さな値になることを示している。しかし、後藤<sup>81</sup>は、CWAH法によりカプルのぬれを検討し、カプルの粉末を充填したカラムの吸水速度について測定した結果からカプル材の湿潤性は他の材より劣ることを示している。

水などとの接触角を測定すると、液の浸透により見かけの接触角が小さな値を示すことがある。実際にカプル材の接着に際しては、接着剤の浸透を考慮して塗付量を増すこと

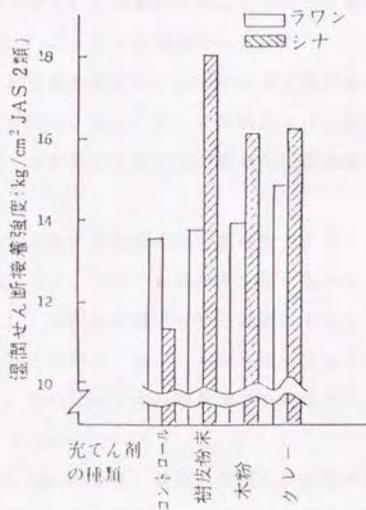


図 7.2. 接着性に及ぼす充填剤種類の影響  
(小麦粉/充填剤=1/1, 13 phr)

が必要であり<sup>7)</sup>、深沢ら<sup>2)</sup>もカプールの接着には高増量度のユリア樹脂接着剤糊液を多量に塗付することを勧めている。

そこで、含水率の異なる厚さ1.4mmのカプールの単板をメラミン・ユリア樹脂接着剤糊液を用い、塗付量を変えて接着し、得られた合板の耐水接着強度を測定した。試験片を煮沸水に4時間浸せき処理したのちに測定した結果を図7.3.に記した。

なお、接着剤糊液には、メラミン・ユリア樹脂100重量部に、小麦粉20重量部、水10重量部、塩化アンモニウム粉末0.5重量部を配合したものを使用した。また熱圧条件は、温度120℃、圧力10kg/cm<sup>2</sup>として2分間熱圧した。

この結果によると、単板含水率の多少にかかわらず塗付量を増やして接着した方が明らかに高い接着強度の値を得た。また、表・裏単板および心板単板の含水率がいずれも低いときよりも、いずれか一方が高いときの方が優れた接着強度を与えるという興味ある知見も得られた。

カプールの単板を接着する際に接着剤の塗付量を増やすことは合板の接着コストを大きく上昇させることになる。また、カプールの材が混入したときに、その都度塗付量を増やすことは接着作業を複雑にし、生産性を低下させる原因にもなる。

そこで、シナ材の接着と同様に、カプールの材を接着するときにも接着剤に充填剤を配合することが考えられた。そのため小麦粉増量剤の一部をベイツカ樹皮粉の充填剤に置き換えてその効果を調べてみた。

表・裏単板に、厚さ0.7mmのラワン単板を使用し、心板単板に厚さ1.3mmのカプールの単板を組み合わせ、増量度を変えた2種類のユリア樹脂接着剤糊液を242g/m<sup>2</sup>（2接着層）の一定量を塗付して接着したときの合板の耐水接着強度は図7.4.に示すとき結果になった。その結果によると、増量度に関係なく充填剤の配合比率が高くなるにしたがって耐水接着強度が向上する傾向を示し、シナ材のときと同様に、充填剤を配合することによって塗付量を増やさずに接着することが可能であることがわかった。

### 3.2.2. 抽出成分による接着阻害と接着剤のpH

カプールの材は比重が高く力学的性質に優れているために、構造用合板や足場板などに利用されている。このような用途の合板は接着耐久性が必要であるために、接着剤としてアルカリ・レゾール型のフェノール樹脂が多く用いられていた。

アルカリ型のフェノール樹脂接着剤が用いられた当初は、接着に問題が多く発生し、そ

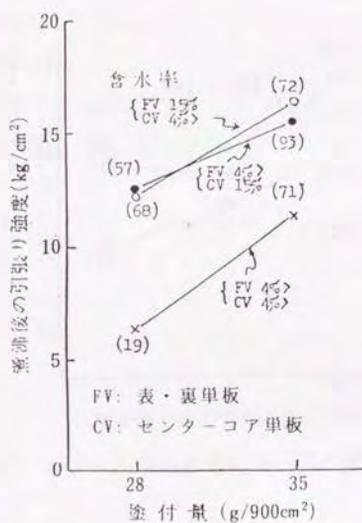


図 7.3.メラミン・ユリア樹脂で接着されたカプセルパネルのせん断強度に及ぼす塗付量の影響

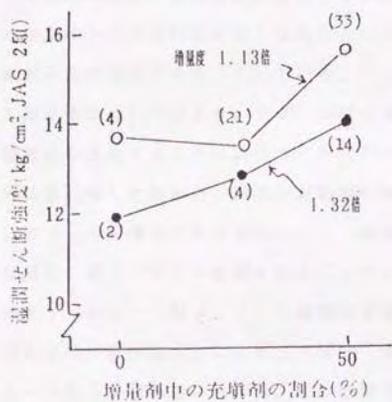


図 7.4. カプセル単板接着における充填剤の効果

の原因究明のために種々の検討がなされた。その結果、カプセル材から抽出される成分には不飽和ポリエステル樹脂の重合を阻止する成分やフェノール樹脂の硬化阻害を起こす成分が含まれていることが確かめられた<sup>10)</sup>。またエーテルにより抽出される成分の中に存在するフェルラ酸エチルエステルがフェノール樹脂の硬化阻害物質のひとつであることが判明した<sup>10)</sup>。

さらに阿部ら<sup>11)</sup>は、エーテル抽出物に中の強酸成分がフェノール樹脂の硬化阻害を起こすことを示し、その存在下でフェノール樹脂を硬化させるとジメチレンエーテル結合が多量に生成することを報告している。また、Wellons ら<sup>12)</sup>は各種の溶剤による抽出物をアルカリ型フェノール樹脂に加え、試験管法によるゲル化時間を測定した。その結果、抽出物の添加によって樹脂液のゲル化時間が短くなることから、接着剤の木材中への浸透阻害がカプセル材の接着不良の原因である、としている。

このような検討を積み重ねることにより、カプセル材の接着性不良の原因が把握されたとしても、実際に接着性を改善することに結びつく方法を見出すことが重要である。そのためにカプセル材の接着に適した接着剤の探索や対応策の検討を行うことが必要となる。Wellons ら<sup>13)</sup>は、カプセルの接着におけるフェノール樹脂の反応度の影響について調べたが、接着強度が全般的に低下してその影響を知るができなかった。

そこで、まずアルカリ・レゾール型フェノール樹脂接着剤の pH がカプセル材の接着にどのような影響を与えるのか調べることにした。フェノール樹脂接着剤の pH は、樹脂の硬化速度を左右する一つの因子であることから、その影響を知ることは重要であるとの考えのもとに、触媒にカセイソーダを使用し、フェノール、ホルムアルデヒドおよびカセイソーダの配合割合を種々変えて合成したフェノール樹脂を用いて、一定の接着条件にてカプセル合板を接着し、煮沸くり返し接着強度と接着剤の pH との関係調べた。

その結果は、図7.5.に示すように、単板含水率によってやや異なる傾向が認められた。すなわち、単板含水率が低い単板を接着したときは、pH が11前後のところにピークを有する上方に凸型の曲線になり、接着剤 pH が11より低くても、また高くなっても接着強度が低下する傾向となった。また、単板含水率が7~9%のときは、接着剤の pH が高くなるにしたがって接着強度はわずかながら低下し、pH が11.5を越えると接着強度の低下が大きくなる右下がりの曲線を描く傾向が見られた。

アルカリ領域においてフェノール樹脂の硬化速度は、pH が高くなると共に低下していく傾向があり、pH が11を越えたところで接着性能が次第に低下する傾向は樹脂の硬化速

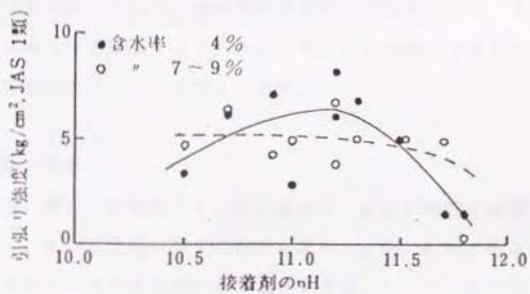


図 7.5. 接着剤の pH とケーブルパネルのせん断強度の関係

度の影響に起因したものと考えられた。

また、樹脂のpHは触媒に使用したカセイソーダ量に支配され、このカセイソーダ使用量は樹脂の表面張力に影響を与える。したがってカセイソーダ使用量が増加すると樹脂の表面張力は大きくなる<sup>14)</sup>。Ise はサザンパインの接着におけるフェノール樹脂接着剤のpHの影響を検討し<sup>15)</sup>、含水率が4%以下の単板について、pHが10.5~11.0のときに合板の接着強度が最高になる結果を得ている。そして、その理由として、高pHのフェノール樹脂ほど表面張力が高くなり、それと共に単板と樹脂との接触角が大きくなるので、接着剤の木材への浸透が抑えられ、厚い接着層を形成するために接着強度が向上すると述べている。

図7.5.のカプセル材についての結果もIseの結果と同様であり、結局、被着材の樹種に関係なく接着剤のpHが11近辺のところ以最適値があるような結果であった。また、接着剤のpHがその値よりも低くなると、接着剤の表面張力が小さくなる。そのような接着剤を使用してカプセル材などを接着すると、木材内部への接着剤の浸透が大きくなるために接着強度は低下する傾向を示すことが考えられた。

### 3.2.3. 接着剤の種類の影響

カプセル材の接着に際して接着剤のpHの影響をさらに広い範囲で確認するために、接着剤の種類を変えて、その接着性に関する検討を試みた。図7.6.は、市販のアルカリ系イソプチレン・無水マレイン酸共重合樹脂系接着剤を使用してカプセル合板およびラワン合板を接着し、その接着強度を比較した結果である。硬化剤には専用のエポキシ化合物を使用した。硬化剤を混合しても、この接着剤のpHは12.5前後になり、強いアルカリ性を示していた。

図7.6.の結果によると、硬化剤の添加量を増加するにしたがってラワン合板の耐水接着性能は向上するが、いっぽうカプセル合板の場合は接着強度の向上はわずかであり、その値は極めて低調であった。

アルカリ系の接着剤として代表的なものには低温脱脂大豆粉を原料とした大豆グルーがある。この接着剤は一般に耐水接着性能に乏しい接着剤と考えられている。しかし、この接着剤にエビコート#828のようなエポキシ樹脂を5~15%添加すると、耐水接着性能を著しく改善することができる。また、このエポキシ樹脂と共にポリアミド樹脂硬化剤を同量添加することにより、耐水接着性能はさらに向上し、フェノール樹脂に匹敵する優れた耐

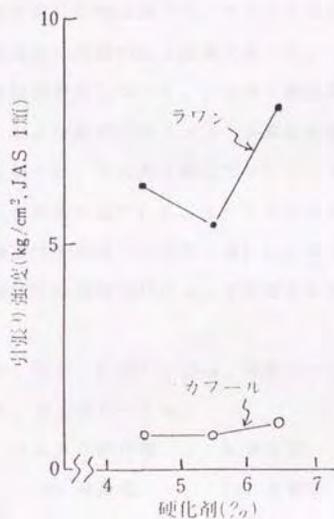


図 7.6. イソブチレン・無水マレイン酸共重合樹脂系接着剤で  
接着したラソンおよびカプール合板の接着強さの違い

水接着性能を得ることもできる。

このような改良された大豆グルーを使用して、ラワン合板およびカプル合板を接着して、その接着性能を比較した。その結果を図7.7.に記したが、ラワン合板の場合はエポキシ樹脂を添加しただけでも4時間の煮沸に耐える耐水接着強度が得られた。いっぽう、カプル合板のときは、エポキシ樹脂を添加しただけでは煮沸に耐える耐水性を得ることができず、エポキシ樹脂と共にポリアミド樹脂を同量添加することにより、はじめてラワン合板に近い耐水接着性能を得ることができるようになった。

以上のように、種類が異なる接着剤でも、アルカリ系の接着剤を使用してカプル材を接着すると、耐水接着性能に問題がある結果であった。

また、フェノール樹脂接着剤について、アルカリ硬化型の接着剤と変性タイプのフェノール・メラミン樹脂、および酸硬化型フェノール樹脂を使用してカプル合板を接着し、その接着性能の比較を試みた。アルカリ硬化型フェノール樹脂とフェノール・メラミン樹脂との接着性を比較した結果を表7.1.に、またアルカリ硬化型フェノール樹脂と酸硬化型フェノール樹脂との接着性を比較した結果を表7.2.に示した。

なお、これらの結果は次の接着条件によって接着された合板によるデータである。

単板；カプル、厚さ 1.35~1.45mm、等厚3プライ、

含水率；4%以下、および6~8%、

接着剤配合；	アルカリ硬化型	酸硬化型	フェノール・メラミン樹脂
樹脂液	100 重量部	100 重量部	100 重量部
小麦粉	5 "	5 "	20 "
充填剤	8 "	10 "	0 "
水	6 "	0 "	10 "
硬化剤	0	8 "	0.5 "

塗付量；300g/m<sup>2</sup>（2接着層）、

仮圧縮；圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分、

熱圧条件；圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、

アルカリ硬化型フェノール樹脂のとき、温度 135℃、時間 合板厚1mm×0.9分

その他の接着剤 温度 120℃、時間 合板厚1mm×0.3分

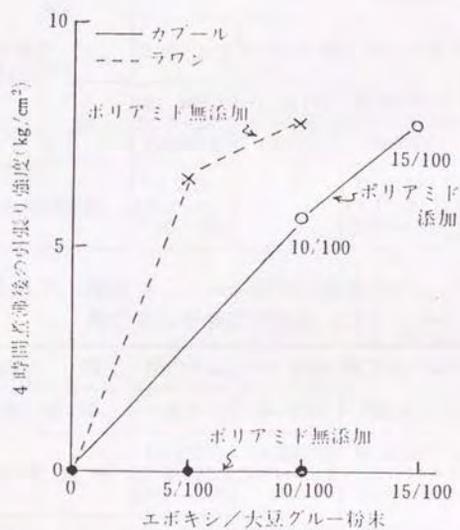


図 7.7. 大豆グルーにより接着したパネルのせん断強度

表 7.1. カブールパネルのせん断強度

樹脂 単板 せん断強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	フェノール樹脂		フェノール・メラ ミン樹脂	
	カブールA	カブールB	カブールA	カブールB
常 態	21.4(65) 19.7~23.5 (20~100)	13.3(13) 9.9~16.0 (0~40)	21.8(96) 19.0~24.3 (90~100)	16.3(99) 13.1~18.9 (40~100)
24 時間煮沸	16.2(36) 13.3~20.3 (10~90)	0	17.0(84) 13.1~20.5 (70~100)	12.2(71) 8.0~14.1 (20~100)

表 7.2. 酸性フェノール樹脂と塩基性フェノール樹脂のせん断強度の比較 (カブールパネル)

樹 脂	酸性フェノール樹脂		塩基性フェノール樹脂	
含 水 率	4% >	6~8%	4% >	6~8%
常 態 試 験	21.9(94) 17.6~25.6 (70)~(100)	22.5(100) 20.9~23.9 (100)	17.4(34) 15.6~18.9 (0)~(70)	21.3(38) 19.6~22.3 (10)~(80)
煮 沸 試 験	22.2(100) 18.5~23.4 (100)	19.3(48) 17.4~21.0 (20)~(70)	12.8(6) 11.1~14.0 (0)~(20)	9.6(2) 8.1~11.1 (0)~(10)

注) 引張り強度 (kg/cm<sup>2</sup>), ( ) 内は本破率 (%)

酸硬化型フェノール樹脂接着剤に用いられる硬化剤は53%濃度のパラ・トルエン・スルホン酸の水溶液であって、この硬化剤を添加したあとの接着剤のpHは2を下回る強い酸性を示す。またフェノール・メラミン樹脂接着剤に使われる硬化剤は塩化アンモニウムの粉末であって、これを添加した接着剤のpHは約6程度の弱酸性である。

表7.1.に記した結果は2種類のカプールの単板について試験したものである。この結果によると、アルカリ硬化型のフェノール樹脂の場合は、単板によって極めて接着しにくいものがあり、24時間の煮沸水浸せきにより接着試験片が剥離してしまうこともある。

それに対してフェノール・メラミン樹脂接着剤を使用したときは、アルカリ硬化型フェノール樹脂で剥離を生ずるようなカプールの材に対しても10Kgf/cm<sup>2</sup>以上の耐水接着性能を示し、安定した接着性能を有していた。

また、表7.2.に示されるように、酸硬化型フェノール樹脂は、アルカリ硬化型フェノール樹脂に比べて格段に高い煮沸くり返し接着強度を有しており、低含水率の単板に対しても高い接着強度の値を示している。

カプールの材をアミノ系樹脂接着剤によって接着するときは、塗付量を増やして接着するかぎり、特に大きな問題もなく接着することができる。これらのアミノ系樹脂接着剤は接着剤糊液のpHが5~6の弱酸性であり、その事実と表7.1.および表7.2.に示されたような結果を考慮すると、カプールの材の接着には酸性系の接着剤を使用することによって安定した接着性を得ることができると考えられる。

さらに、図7.6.および図7.7.の結果によって明らかのように、カプールの材の接着にアルカリ硬化型のフェノール樹脂を含めて強アルカリタイプの接着剤を使用すると、満足すべき耐水接着性能を得ることができない。

以上の結果を総合して考察すると、カプールの材の接着に際しては酸性系の接着剤を使用するのが適当であり、その意味において、カプールの材の接着に優れた耐水接着性を有するフェノール・メラミン樹脂接着剤は有用な接着剤と判断される。

それでは強アルカリ性接着剤が、なぜ、カプールの材の接着に悪いのか、その理由は、現時点において明白ではないが、およそ次のようなことが考えられた。

- (1) カプールの材のpHは一般的な南洋材に比べて低く、アルカリ性下で溶出する抽出物が多くあって、それが接着剤の硬化を阻害している。
- (2) 強アルカリ性接着剤の硬化物は強い親水性を示し、そのために水浸せき処理などの際に硬化物が膨潤し、接着層の凝集力の低下をきたす。

(3) カプール材は水分により膨脹収縮が大きく、そのために接着層に大きな応力を与える。この応力に対して凝集力が低下した接着層が耐えられず、その結果接着強度を低下させる。

中村<sup>16)</sup> は、アルカリ・レゾール型フェノール樹脂を110℃で加熱硬化させ、そのうちの硬化物から冷水によつて抽出させる可溶分の測定を行った。その結果、同温度で30分以上加熱しても10%程度の水可溶分が存在することを報告している。

この事実を考慮すると、一般には短時間の熱圧時において合板の中心部接着層の温度が明らかにホットプレスの熱板温度より低くなるので、カプール材を熱圧接着したときに樹脂の硬化は十分に進まない。それに加えて、カプール材の抽出物により樹脂が硬化阻害を受けることを考えると、接着層のフェノール樹脂の硬化度は予想したよりも低く、かなりの水可溶性成分が残存している状態にあると推定される。そのために接着試験時の水浸せき処理において接着層は容易に軟化して、木材の膨脹収縮に耐えられない可能性は十分に考えられた。

#### 3.2.4. フェノール樹脂接着層の耐水性

Chowらの報告<sup>17)</sup> によると、合板の実用強度を得るためには、紫外線吸収スペクトル法によつて測定したフェノール樹脂接着層の硬化度は70%に到達していればよい。この事実を考慮すると、合板内部のフェノール樹脂接着層は、まだ強い親水性を保持している状態にある、と見なすのが妥当である。

そこで、接着条件を種々に変えてカプール合板を接着し、その接着強度の面からフェノール樹脂接着層の親水性の影響を推測した。

図7.8. は、カプール材をアルカリ硬化型フェノール樹脂接着剤で接着したときの熱圧時間と接着強度との関係を示したものである。図中の横軸に記した熱圧時間の係数は、熱圧温度135℃における合板厚さ(t)1mmあたりの熱圧時間(分)である。この図の結果によると、ラワン合板の場合は合板厚さ1mmあたりに0.5分を乗じた熱圧時間で接着強度は一定の水準に到達した。しかし、カプール合板のときは、熱圧時間を合板厚さの1.5倍まで延ばしてもなお接着強度は上昇する傾向にある。すなわち、カプール材の接着に際しては、ラワン合板に比べてはるかに長い熱圧時間を必要とする、ということであった。

また、別の実験で確認したが、カプール材には水を浸透しやすい性質がある。そのためラワン材に比べて、カプール材の接着層は、接着試験片を水浸せきしたときに、水の影

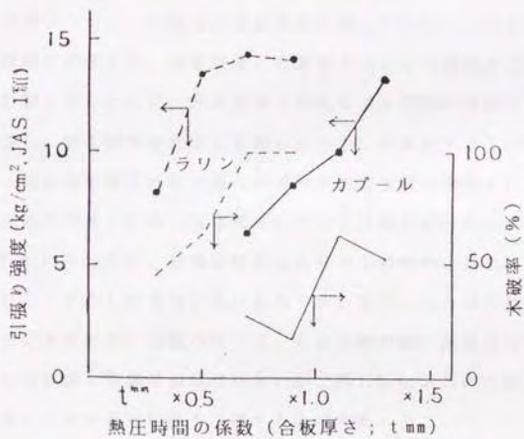


図 7.8. 熱圧時間とせん断強度の関係

響を受けやすいことが考えられた。それゆえカプールの合板の接着には、樹脂の硬化を進めてそれだけ疎水化しておかないと、一定水準の接着強度を得ることが難しい。

さらに、水を浸透しやすいカプールの材に接着剤を塗付すると、接着層の濃度上昇と粘度の上昇を速める結果、熱圧時における接着剤が接着層に接する相手の単板面へ転写し、浸透して行く作用が妨げられることになる。したがって相手の単板面に接着剤が転写し浸透するのを促進するために、より高温と長時間の加熱を必要とすることになる。このような現象があるゆえに、カプールの材の接着に際しては十分な熱圧時間が必要になってくる。

また、親水性の強いフェノール樹脂が接着層を形成していると、その接着層まで水が浸透したときに接着層が軟化して、接着強度にも影響を与える可能性が心配される。そこで接着層への水の影響を知るために、表単板厚さが異なる2種類の合板をフェノール樹脂接着剤を用いて接着し、接着強度を測定する前にあらかじめ減圧下で1時間吸水させる処理を施した場合と、何も前処理を行わず通常の条件で接着強度の測定を行う場合との、二つの方法によって求めた煮沸くり返し接着強度について比較を試みた。

その結果を図7.9.に示したが、接着試験前にあらかじめ吸水させたとき、また表面単板が薄い合板のとき、いずれも接着層が水に触れやすい条件になるほど接着強度は低い値になった。ただし表面単板が薄い合板の場合は、引張試験の際に試験片に回転モーメントが加わるために、その影響も考慮せねばならないが、図7.9.に示された結果は水によって接着層の膨潤が促進されている可能性を示唆するものであった。

図7.10.は、アルカリ型フェノール樹脂(PF)と耐冷水性を有するメラミン・ユリア樹脂(MUF)接着剤で接着した合板の接着試験片を室温水に長時間浸せきしたのちに、ぬれたままの状態では接着強度を測定したときの結果である。この図の結果によると、メラミン・ユリア樹脂で接着した合板の接着試験片は、20日間の連続水浸せき中に接着強度がまったく変化していない。それに対してフェノール樹脂で接着した合板の接着試験片は、連続水浸せき3日後に接着強度の低下をきたし、それ以後は低い接着強度をそのまま維持していた。

メラミン・ユリア樹脂接着剤は、縮合反応の進行によって疎水性の硬化物になりやすく性質がある。そのために、この接着剤によって接着した合板は優れた耐冷水性を有する結果、ラワン合板のときもカプールの合板のときでも長期間の冷水浸せきによる接着強度の経日変化はみられない。また、カプールの合板はラワン合板に比べて材の比重が高いので、接

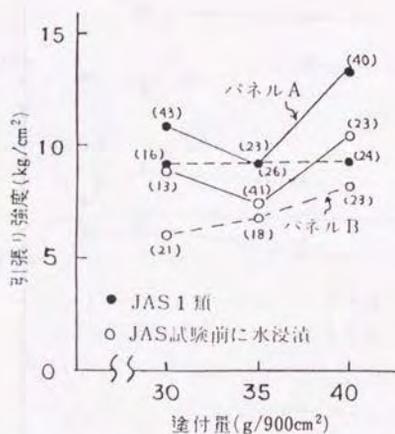


図 7.9. アルカリ性フェノール樹脂で接着したカ  
 プールパネルのせん断強度  
 (パネルA 2.1mm+2.1mm+2.1mm)  
 (パネルB 0.65'+2.1mm+0.65')

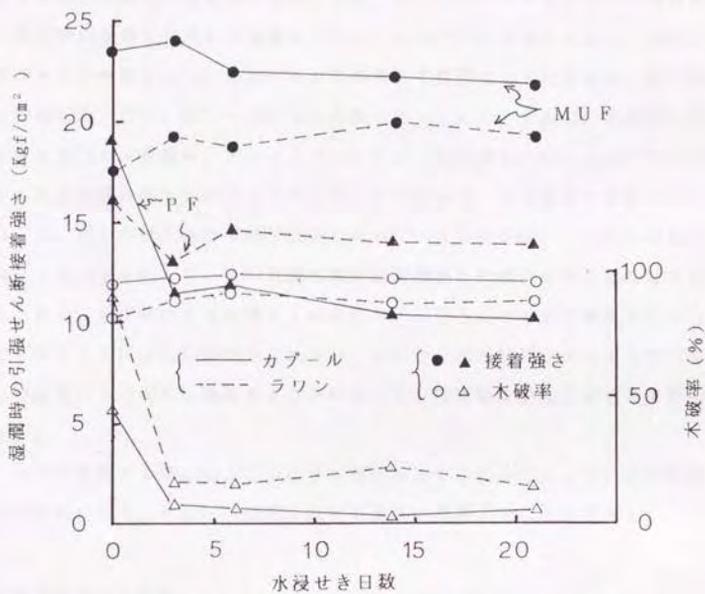


図 7.10. 接着試験片の水浸せき時間と引張せん断接着強さの関係

着強度は高い値になり、長期間の水浸せきにおいてもそのままの値を維持していた。

いっぽう、フェノール樹脂接着剤の場合は、長時間の冷水浸せきによって接着層が軟化したためか、接着強度の低下をきたした。特にカプセル合板のときは、ラワン合板に比べて接着層まで水が浸透しやすいために、水の影響を強く受けることになり、その接着強度は大きく低下する結果となった。

フェノール樹脂の硬化不足を補う方法として、ホットスタッキングという操作がある。これは、熱圧時の余熱を利用して樹脂のアフターキュアを行うものであり、熱圧した合板をホットプレスから取り出したあと、すぐに堆積して放置する方法である。熱圧後の合板の温度を測定したところ、 $80^{\circ}\sim 100^{\circ}\text{C}$ の余熱を持っていたことから、実験室のホットプレスによって熱圧した合板を、アルミニウム箔によって密封し、 $60^{\circ}\sim 100^{\circ}\text{C}$ に保持した恒温器中に所定時間放置してホットスタッキングを行って、その効果を推定した。

図7.11. は、種々の熱圧時間で熱圧接着したカプセル合板を $60^{\circ}\sim 100^{\circ}\text{C}$ の温度下にてホットスタッキングを行って、その堆積時間と接着強度との関係を表したものである。この結果によると、熱圧時間を合板厚さ1mmあたり1.1分として十分に熱を加えた合板ではホットスタッキングによる効果が見られない。しかし、熱圧時間がそれより短い場合は、 $80^{\circ}\text{C}$ 以上の温度に2時間以上堆積することによって、接着強度が向上する効果が明らかに認められた。

カプセル材を接着する際には、このような操作を加えることによって、熱圧時間を短縮することが可能になり、それだけ接着性改善の効果を期待することができる。

### 3.2.5. 接着剤のめれと転写

一般に、単板へ接着剤を塗付すると、接着剤中の水分は時間と共に選択的に木材内部へ吸収されて、接着層の濃度と粘度の上昇が起こる。また、含水率が高い単板では接着層水分の脱水速度は低下して接着層の粘度上昇は抑えられる。この接着層の粘度は接着剤の浸透性を左右する。特に単板に塗付された接着剤が、塗付面から接着層に接する相手の単板面に転写してその単板内部へ浸透する際に、粘度の影響は大きく現れる。

そこで、接着剤の転写と浸透の効果を確認するために、次のような実験を試みた。

すなわち、含水率が異なる厚さ2.5mmのカプセル単板を使用して等厚3プライ合板を接着する際に、接着剤を、従来どおりに心板単板面にのみ所定量を塗付する方法と、心板と

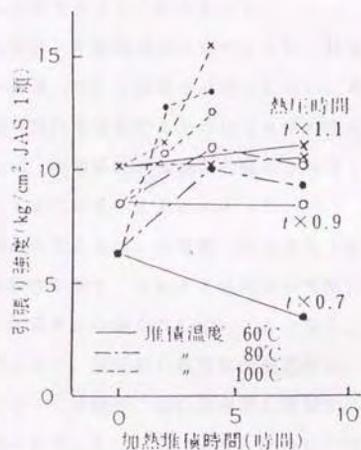


図 7.11. フェノール樹脂で接着したカプールのせん断強度に及ぼす加熱堆積時間の影響

t : 合板厚さ (mm)

表単板の接着面にそれぞれ所定量の半分ずつを塗付する方法との、二つの方法によって塗付して合板の接着を行った。その際、合板を熱圧するときに熱圧時間を変え、それぞれの方法による熱圧時間と接着強度との関係を調べてみた。

図7.12. は、その結果を表したものである。接着する単板の片側のみに接着剤を塗付したときは、実用に耐える接着強度を得るために長い熱圧時間が必要であった。特に、全乾に近い単板を使用したときはさらに長時間の熱圧をせねばならなかった。それに対して接着剤を接着する単板の両面に分離させて塗付すると、片面塗付のときよりもかなり短い熱圧時間で接着することができることがわかった。

両面塗付を行った場合、片面塗付のときのように、接着剤が相手単板の非塗付面に転写してその木材内部へ浸透していく過程を必要としないために、それだけ容易に接着できることになり、接着剤の塗付方法を変えるだけでカプール材の接着性に著しい改善の効果が得られた。また図7.12. の結果は、接着剤の転写と浸透を起こさせるためにかなり大きなエネルギーを必要とすることを示すものであった。

単板に多少の水分があるときは、接着層の脱水速度が低下してその濃度と粘度が低くなるために、樹脂の流動性が増す。それゆえ短時間の加熱によっても接着剤の転写と浸透が容易に起こり、高い接着強度が得られやすいことになる。

これらの結果を考えると、接着剤の転写性や浸透性は、樹脂の流動性によって左右されることであり、したがって流動性に富む接着剤を調製すれば、カプール材との接着性を改善できる接着剤が得られることになる。また、接着剤の流動性は樹脂の分子量分布を調整することによってコントロールすることができるので、結局、カプール材の接着に適するフェノール樹脂接着剤には、流動性に富む低縮合度成分を含む接着剤がよい、と想定することができた。

そこで、この仮定を検証するために、フェノール [P] とホルムアルデヒド [F] とのモル比  $[F] / [P] = 1.75$  とし、カセイソーダ [NaOH] とフェノールとのモル比を  $[NaOH] / [P] = 0.5$  に固定してフェノール樹脂を合成した。

一括添加法樹脂は、最初からフェノールとホルムアルデヒドとを反応容器に投入し、触媒としてカセイソーダを20% 添加して90℃にて反応を行い、反応液粘度が所定の4/5に到達したときに残りのカセイソーダを加えて所定粘度まで反応を続ける方法によって高縮合化した樹脂を調製した。

低縮合成分を含む樹脂は、使用原料のモル比を上記と同様にして、フェノールとカセイ

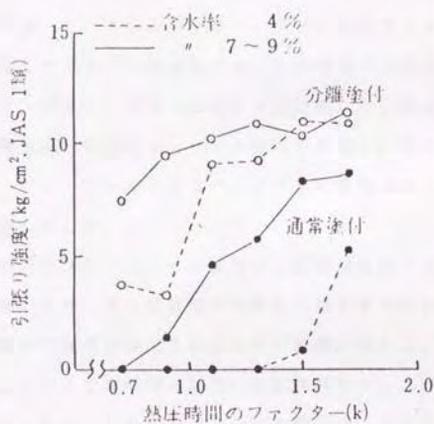


図 7.12.カプセルパネルのせん断強度に及ぼす接着剤塗付法の影響  
 ファクター(K)×パネルの厚さ(mm)=熱圧時間

ソーダを分割して投入し、90℃にて反応を行った。前記の樹脂と異なるところは、反応途中においてフェノールを3回に分けて添加して、分子量分布を広げるようにした。

このようにして合成した2種類のフェノール樹脂を使用して、接着剤塗付量ならびにオープン・アッセンブリー・タイムを変えて含水率が異なる厚さ2.5mmのカプセル単板の接着を行った。

表7.3.はその結果をまとめて示したものである。フェノールを一括添加して高縮合したフェノール樹脂接着剤は、オープン・アッセンブリー・タイムの影響を受けやすく、アッセンブリー・タイムが長くなると、接着剤の転写性が低下して接着強度の低下をきたす。塗付量の増加処置によって、アッセンブリー・タイムの影響をある程度抑えることが可能となるが、高縮合化したフェノール樹脂では、その効果には限界がある。

オープン・アッセンブリー・タイムに対する安定性には、単板含水率が大きな影響を与えている。特に低縮合成分を含むフェノール樹脂を使用した場合に、被着材の単板含水率が高くなると、オープン・アッセンブリー・タイムの影響はほとんど見られなくなり、安定した接着性能を示していた。

しかし、低縮合成分を含むフェノール樹脂は、高縮合度分子よりなるフェノール樹脂に比べて硬化速度が遅くなり、また接着剤の流動性も増加するために、低含水率の単板を接着したときに、接着剤の浸透が促進されるなどの影響が現れて、極めて低調な接着性能を示す結果になった。このような問題は樹脂の反応条件をさらに詳細に詰めることによって解決することが可能である。したがってその点を除けば、一般的に低縮合成分を含むフェノール樹脂接着剤は、高縮合樹脂を主体とするものよりも、カプセル材に対してより安定した接着性を示すものと考えられる。

### 3.3. クルイン材の接着性改善に関する検討

前章において、主に接着条件を特定することによってクルイン材の接着改善を検討してきたが、一般に樹脂を多量に含むクルイン材については、種々の表面処理によって接着性を改善する方法が試みられていた。

本節においては、接着剤や増量剤の改良と選定によって樹脂を多量に含むクルイン材の接着性改善を検討した。すでに寺沢ら<sup>10)</sup>によって接着剤の面からクルイン材の接着性について検討した報告がなされている。

表7. 3. カブール材の接着におけるフェノール樹脂接着剤製造時のフェノール影響

フェノール添加法の影響 (接着強さ  $\text{kgf/cm}^2$ 、かつこ内は不破率 (%))

差付量	試験回数	(1)				(2)				
		接着剤の種類		分割添加法		一括添加法		分割添加法		
		単板含水率	一括添加法	分割添加法	一括添加法	分割添加法	一括添加法	分割添加法		
40g/900 $\text{cm}^2$	O. A. T.*	10~20 min	4% >	7~9%	4% >	7~9%	4% >	7~9%	4% >	7~9%
		30~40 "	7.0(10)	7.6(22)	0	10.4(28)	3.8(8)	7.6(42)	0	9.1(17)
50 "	O. A. T.*	10~20 "	0	6.9(57)	0	6.2(32)	2.4(2)	6.7(38)	0	10.6(38)
		30~40 "	11.9(43)	11.7(17)	12.1(71)	11.1(48)	12.4(67)	11.4(27)	9.1(25)	10.9(7)
		30~40 "	4.6(5)	10.0(72)	4.7(27)	11.2(38)	6.1(27)	9.7(50)	8.5(30)	11.1(45)

注) \* O. A. T.; 開放推積時間

\*\* 単板厚さ; 2.6mm

その報告によると、クルイン材に対してはユリア樹脂接着剤よりもアルカリ系のフェノール樹脂接着剤を用いた方が安定した接着性を得ることができると述べている。

また児玉ら<sup>17)</sup>は、ユリア樹脂接着剤を用いて高周波加熱によるアビトン材の接着を行い、硬化剤に硝酸アンモニウムを使用すると、接着性が改善されることを報告している。そして硝酸アンモニウムは抽出成分によるユリア樹脂の硬化の遅れを抑える効果があるためと理由づけしている。

ユリア樹脂接着剤の硬化速度を高めて接着すると、高い接着強度値が得られることは一般的に経験していることであり、その結果から、要は接着強度を全般的にレベルアップしておけば、疎水性の樹脂を含む木材の接着に際しても有効なのであろうと推測された。

そこで、表面に樹脂の浸出度が異なるクルイン単板を市販のユリア樹脂、メラミン・ユリア樹脂、アルカリレゾール型のフェノール樹脂および大豆グルー接着剤を用いて接着して、それぞれの接着剤の耐水性能に応じて温水浸せき処理、煮沸くり返し処理、72時間連続煮沸処理、および常態のままに接着強度を測定して各接着剤のクルイン単板に対する接着性の比較を試みた。その際、接着条件は接着剤メーカーの指定する方法によった。

その結果を図7.13. に示したが、樹脂浸出度が多い単板と少ない単板との接着したときの接着強度差が小さい接着剤は樹脂の影響を受けにくいことを示している。この図の結果によると、明らかにアルカリ系の接着剤の方が接着性に優れていることが確認された。その理由は明らかでないが、樹脂が表面に浸出した単板に対してフェノール樹脂接着剤の接着がよいことから、熱圧温度が高いために単板表面の樹脂層が軟化して接着剤層に溶出したのではないかと考えた。

この結果に基づいて、アミノ系樹脂接着剤へ木材に含まれる樹脂と親和性を有するような溶剤を添加したならば、同様な効果が得られるのではないかと推測を行い、フェノール・メラミン樹脂接着剤に種々の溶剤を混合し、それによって表面に樹脂が浸出して層を成すクルイン単板の接着を試みた。

なお、フェノール・メラミン樹脂を選定した理由は、ひとつに110～120℃の低温度で熱圧接着ができることであり、他の大きな理由は、溶剤との相溶性がメラミン・ユリア樹脂よりもよく、溶剤を混合したのちに長時間静置しておいても溶剤の相分離が起こりにくいからである。

種々の溶剤を接着剤に対して5～10%添加して、それらの効果を調べた結果を図7.14. に記した。

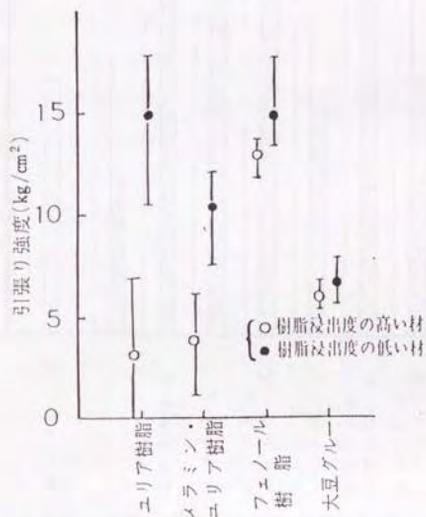


図 7.13, 樹脂の多いクルイン単板の接着に及ぼす  
接着剤種類の影響

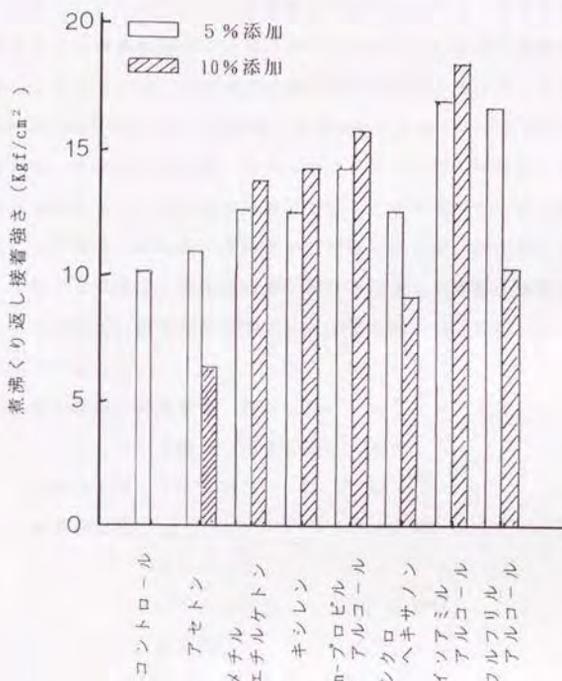


図7.14. クルイン単板の接着に及ぼす溶剤の影響

(フェノール・メラミン樹脂接着剤使用のとき)

接着剤糊液の配合

フェノール・

メラミン樹脂 (豊年PL-160)	100	重量部
小麦粉	10	〃
コーングルテン粉末	10	〃
水または溶剤	5-10	〃
塩化アンモニウム粉末	0.5	〃

図7.14.の結果によると、いずれの溶剤を加えることにより、クルイン単板に対する接着性が改善できることが認められた。そのなかでも脂肪族アルコール系の溶剤の効果が特に顕著であった。また水に溶解するアセトンの添加効果はほとんど見ることはできなかった。もともとフェノール・メラミン樹脂には少量のメタノールが含まれているが、この接着剤そのままでは接着性改善の効果はない。メタノールは水に溶解するので、そのことを考えると、アセトンに対して接着性改善の効果を期待することは無理であった。

さらにこれらの知見をもとに、接着剤との相分離が少なくかつ効果的な溶剤を選定すべく、別の実験によって検討した結果、エチルセロソルブを約6%添加したフェノール・メラミン樹脂接着剤がクルイン材の接着に適当であることを知った。その接着剤に小麦粉増量剤と共にコーンゲルテン粉末を主成分とする市販の増強剤(KR-950)を配合して糊液を調製し、それを使用して表面に樹脂浸出度が異なるクルイン単板を接着して合板とした。そして、それらの合板の接着強度を測定した結果を図7.15.に記した。このときの合板の接着条件は以下によった。

接着条件：単板構成：表裏単板 厚さ1.8mm レッドメランティーン  
心単板 厚さ3.3mm クルイン

単板含水率：7～9%

接着剤配合：	コントロール	改良品
フェノール・		
メラミン樹脂	100 重量部	100 重量部
小麦粉	20	10
増強剤	0	10
水	10	10
塩化アンモニウム粉末	0.5	0.5

塗付量：440g/m<sup>2</sup>（2接着層）

仮圧締：圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分

熱圧条件：温度 120℃、圧力 10Kg/cm<sup>2</sup>、時間 3分10秒

なお、コントロールの接着剤には溶剤を添加していない同じタイプの樹脂を用いた。

図7.15.の結果によると、溶剤を加えた改良タイプの接着剤の場合は、全般的に高い接着強度を示し、特に単板表面への樹脂の浸出度が高くなるにしたがって、接着強度の差は大きくなることが確認された。

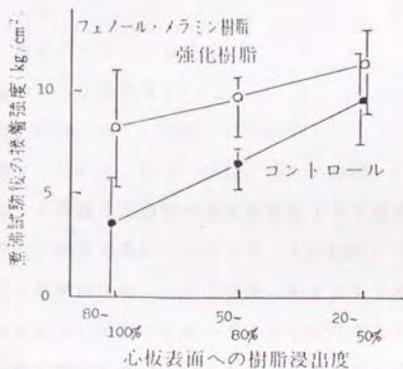


図 7.15. 単板表面への樹脂浸出度とせん断接着強度の関係 (1.8 mm ラワン+3.3 mm クルイン+1.8 mm ラワン)

以上のように、クルイン材に対する溶剤添加の効果が確認されたので、続いて合板工場において実用規模の試験を行い、その効果を再確認した。その際、接着条件は以下に記す条件によった。

実用接着試験条件：

単板構成；表裏単板およびセンターコア 厚さ1.0mm、カプル材

コア単板 厚さ3.0mm、クルイン材

単板含水率；7%以下

接着剤配合；改良型フェノール・メラミン樹脂 100 重量部

増強剤 (KR-950) 10

小麦粉 7.5-8.0

水 0 ~ 6.0

塩化アンモニウム粉末 0.5

塗付量；440g/m<sup>2</sup> (2接着層)

仮圧縮；圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、時間 20~40分

熱圧条件；温度 120℃、圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、時間 4.5分

この接着条件によって接着した合板の接着強度をJAS普通合板および構造用合板の試験方法に準じて測定し、結果を表7.4.に記した。その結果、ほぼ期待したとおりの接着性能が得られていることが確認され、十分に実用に耐えるものであることがわかった。

次に、クルイン材の接着に問題のあるユリア樹脂に溶剤とコーングルテン粉末とを配合することにより、表面に樹脂が浸出したクルイン単板の接着改善に対する効果が得られるのではないかと考え、その効果を知るために厚さ3.4mmのクルイン単板の等厚3プライ合板を実験室で接着し、その接着性能を冷水浸せきおよび乾燥のくり返し試験により調べてみた。結果は図7.16.に示したようになった。

この試験に使用したユリア樹脂は通常の合板用接着剤である。15サイクルのくり返し試験の結果をみると、接着強度はくり返しサイクル数が増加するにしたがって徐々に低下した。その低下の割合は溶剤と増強剤を配合したときの方がゆるやかであり、ユリア樹脂接着剤の場合でも、このような処置をとることによって多樹脂クルイン材の接着に有効であることがわかった。

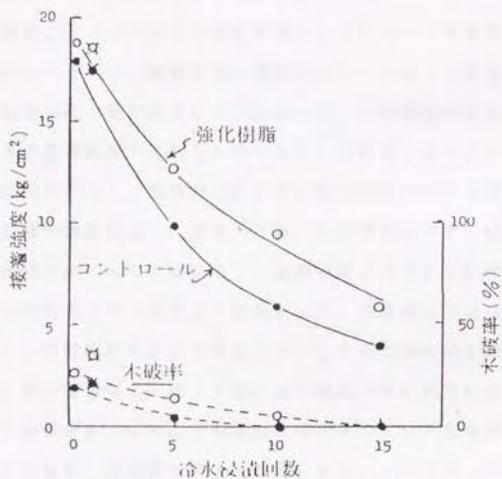
表面に疎水性の樹脂層を形成しているクルイン単板は水を吸い込みにくいために、一般

表 7.4. 合板工場においてフェノール・メラミン樹脂接着剤によって製造されたクルイン合板の接着強度

試験法*	試料番号	1	2	3
常 態 試 験		14.9(39)	16.0(18)	18.7(61)
		9~20	10~20	16~22
		(0)~(100)	(0)~(50)	(30)~(80)
温冷水浸漬試験		16.0(5)	19.3(13)	19.7(65)
		13~21	12~26	11~28
		(0)~(20)	(0)~(80)	(20)~(100)
煮沸試験(3時間)		11.4(0)	12.7(8)	14.2(36)
		7~14	6~20	9~19
		(0)	(0)~(40)	(0)~(80)
煮沸繰返し試験		11.8(3)	10.1(0)	12.8(7)
		8~16	3~14	8~18
		(0)~(10)	(0)	(0)~(20)
72時間連続煮沸試験		9.0(3)	10.0(2)	12.4(8)
		6~11	4~16	8~16
		(0)~(10)	(0)~(10)	(0)~(50)

\* せん断強度 (kg/cm<sup>2</sup>), ( ) 内は木破率 (%)

\*\* 配合: フェノール・メラミン樹脂 100 部, 強化剤 (KR-950) 10 部, 小麦粉 7.5 部, 塩化アンモン 0.5 部



(6時間冷水浸漬-40°C, 18時間乾燥)

図 7.16. 強化ユリア樹脂によって製造したクルイ  
ンパネルの冷水浸漬繰返し試験

の南洋材単板と組み合わせた合板へ使用するとき、単板の組み合わせ方によって耐水接着性能が変わってくるのが考えられる。

そこで最後に、単板の組み合わせ方により、合板の耐水性が実際に異なるか否か調べることにした。使用した単板は厚さ3.4mmで表面に多量に樹脂が浸出しているクルイン単板と通常のラワン単板であり、改良型のフェノール・メラミン樹脂接着剤を用いてそれらの単板を表裏板および心板に使い分けて3プライ合板を接着した。心板に接着剤を塗付して同一の接着条件で接着した試料合板の接着強度を、JAS1類合板規格の試験方法によって測定した。結果は表7.5.にまとめて記した。

表7.5.の結果は、3プライ合板の表裏単板としてクルイン単板を使用する場合と、心板にそれを使用するときでは、接着性能に差異があり、クルイン単板を表裏単板として使用する方が高い接着強度の値を示すことがわかった。その理由は次のように考えられた。

すなわち、水の浸透状況が変わるためであり、接着剤を疎水性の樹脂層が表面にあるクルイン単板上に塗付すると、塗付膜に存在する水の単板内部へ浸透する速度が遅くなり、そのために接着層の濃度が低く、接着剤は熱圧時に流動しやすい状態になる。それゆえ接着剤の過度の浸透が起こって欠膠を生じ、接着強度が低下する結果になる。

いっぽう、接着剤をラワン単板上に塗付すると、接着層の水分は木材内部へ短時間のうちに浸透を始め、接着層の濃度も上昇しやすい。そのために熱圧時における接着剤の浸透も抑制されて、厚い接着層を形成して高い接着強度を示すようになる。それに加えて、表裏板にクルイン単板があるために、煮沸水に浸せきしていても水が合板の接着層までに浸透しにくく、その結果、接着層の劣化が抑えられることになる。したがって接着強度は高い値になり、またその低下も少ない結果になる。

樹脂を多く含む単板は、クルイン材に限らず、他の樹種を使用したときでも耐水試験後の耐水接着強度の低下率が小さくなる傾向が見られるが、その理由は以上に述べたように説明することができる。

### 3.4. 針葉樹材の接着性改善に関する検討

かつて潤沢に入手できた南洋材も資源の枯渇が進み、輸出国政府の伐採規制と輸出禁止政策により、原木として入手することが次第に困難になってきている。いっぽう、消費者側も地球環境の保護の動きが強まるにたがって、南洋材の使用自粛を行うようになって

表 7.5. フェノール・メラミン樹脂で製造した  
クルインパネルの接着強度

接着強度(kg/cm <sup>2</sup> )	単板の種類	クルイン + ラワン + クルイン	ラワン + クルイン + ラワン
	常態試験	13.8(29) 12.8~15.7 (0)~(100)	10.1(14) 8.2~11.2 (0)~(50)
煮沸試験 (JAS T-1)	6.9(0) 5.6~8.3 (0)	はく離	

きた。

このような事態に対応するために、合板の製造メーカーは原木を南洋材から針葉樹材に切り替える施策をとりはじめている。しかし、針葉樹材を使用してみると、アミノ樹脂系接着剤を使用したときに接着に問題があることに気が付いた。

米国などではフェノール樹脂を使用してベイマツなどの接着を行っており、針葉樹材の接着性に関する問題は、接着剤の種類によって違ってくるのが考えられた。

そこで、わが国において一般的に使用されているメラミン・ユリア樹脂接着剤を用いて種々の針葉樹材を接着し、まずはじめに問題点の把握を行った。そのために各地の合板工場や関係者からスギ、ヒノキ、アカマツ、カラマツ、エゾマツ、ベイマツ、およびベイツガなどの単板を入手し、市販のメラミン・ユリア樹脂接着剤を用い、一定基準の接着条件によって、それぞれ3プライ合板を接着した。そしてJAS1類合板規格に規定する接着試験方法にしたがって耐水接着強度を測定した。

なお、入手した単板の種々厚さが異なっていたために、塗付量と熱圧時間はそれぞれの適正な条件を採用したが、他の条件は一定にして互いに比較できるようにした。

結果を図7.17. にまとめて記したが、その結果によると、特にベイマツの接着性に問題があることが判明した。スギ、ヒノキ、アカマツ、カラマツ、エゾマツおよびベイツガについては、樹種によって接着強度の値に多少の大小があるものの、良好な接着性を示していた。

ベイマツ (*Pseudotsuga menziesii* FRANCO) は心材と辺材によって接着性が異なり、特に心材の接着性が低調であることが判明した。

なお、図中にあるカッコ内の数字は木破率の平均値であり、上下に出た線は接着強度の最小および最大値の範囲を表している。

図7.17. において接着性が劣るベイマツ単板について、さらにフェノール・メラミン樹脂接着剤を用いて接着し、その接着強度を測定したところ、表7.6. に示すような結果が得られた。この結果においても辺材部と心材部によって接着強度に若干の差が認められ、心材部の接着強度が低い数値になった。しかし、表7.6. における心材と辺材との接着強度の値は、メラミン・ユリア樹脂接着剤によって接着したときよりもフェノール・メラミン樹脂接着剤により接着した場合の方が安定したものになった。

ベイマツ単板のこのような接着性の差の原因を知るために、熱水、1%カセイソーダ水溶液、およびエーテルによる抽出成分量の測定と、蒸溜水による接着角の測定を行った。

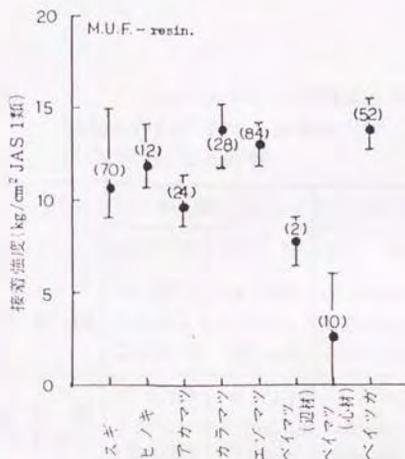


図 7.17.メラミン・ユリア樹脂接着剤によって製造された針葉樹合板の接着強度

接着条件

単板構成 ; 厚さ3.2mm、等厚3プライ

接着剤配合 ; 豊年製油製 ML-037/UL-002 70/30部

小麦粉 18部、水 10部、

補強剤 (NS-101) 7部

塩化アンモニウム 0.4部

塗付量 ; 440g/m<sup>2</sup>

熱圧条件 ; 温度120℃、圧力10Kg/cm<sup>2</sup>、時間5分

表7.6. フェノール・メラミン樹脂接着剤によって製造されたベイマツ合板における辺材と心材の違いによる影響

	試験 1		試験 2	
	心材	辺材	心材	辺材
常態試験	10.4(67)	13.1(95)	11.5(43)	12.7(97)
	8.6~13.4 (30~100)	11.1~15.7 (90~100)	9.0~15.0 (10~100)	8.3~20.2 (90~100)
煮沸試験 (JAS T-1)	10.2(48)	8.9(100)	7.9(29)	12.1(94)
	9.4~11.1 (30~90)	6.1~11.5 (100)	5.0~10.9 (10~60)	10.9~14.8 (80~100)
72時間連続 煮沸試験	6.8(38)	8.4(95)	6.3(14)	10.2(93)
	5.6~10.0 (20~70)	6.1~9.8 (90~100)	4.2~8.1 (10~20)	7.7~12.7 (80~100)

せん断強度 (kg/cm<sup>2</sup>), ( ) 内は木破率 (%)

配合: Hohnen P.L-160 100部

〃 NS-101 10〃

小麦粉 10〃

水 7〃

塩化アンモン 0.5〃

その結果を表7.7.に示したが、接触角は全般的に心材部の方が大きくなった。また、熱水およびエーテルによる抽出成分量には特に差がみられなかった。しかし、1%カセイソーダ水溶液による抽出成分量には、心材部と辺材部による差が認められ、辺材部の抽出成分量が約5%であるのに対して、心材部のそれは10~15%の量であった。

ベイマツ単板の接触角にはかなりのバラツキが認められ、その接触角とフェノール・メラミン樹脂による接着強度との間には図7.18.に示すような相関性があった。

メラミン系樹脂接着剤における接着性低下の原因は明らかでないが、その接着性を改善するための接着条件を見出すために、さらに若干の検討を加えてみた。そのために、まずベイマツに対してとくに接着性の問題が少ないアルカリレゾール型フェノール樹脂接着剤を使用して、接着条件の検討を行った。

一般に針葉樹材は軽軟な春材部と堅くて緻密な夏材部とから成る。そのために針葉樹の単板に接着剤を塗付すると、春材部と夏材部では接着剤の浸透性がまったく異なる。したがって、どの部分に重点を置いて接着条件を決めるのか、という問題がある。

ここで、市販のアルカリレゾール型のフェノール樹脂接着剤を用いて3プライのベイマツ合板を接着する際に、熱圧圧力を変えて接着し、その接着強度を測定した。そのときの結果を表7.8.に示したが、熱圧時の圧力を高めることによって、より高い接着強度を得ることができた。この結果から、ベイマツを接着するときには夏材部の影響を考慮に入れて接着条件を設定する必要性があり、南洋材の接着条件をそのまま適用できないことが判明した。しかし辺材部と心材部との接着強度に多少の差はあるものの、いずれにしてもフェノール樹脂接着剤がベイマツに対して安定した接着性を有することを示している。

それでは、なぜアルカリレゾール型のフェノール樹脂接着剤がベイマツの接着に優れているのか、この疑問を解くために、フェノール樹脂の製造方法を含めて考察を行った。

Chowら<sup>17)</sup>は、熱水抽出処理したベイマツ単板と未処理の単板とをそれぞれフェノール樹脂接着剤によって接着し、紫外線吸収スペクトル分析による接着層の硬化度を測定している。その結果接着層の樹脂の硬化挙動は抽出処理によって影響されていないことから、ベイマツの抽出成分はフェノール樹脂の硬化に何ら影響を与えないことを報告している。

Chowらの報告を考慮すると、少なくともベイマツにはカプル材のように、フェノール樹脂の硬化挙動に影響するような成分が含まれていないことがわかる。

そこで、次にフェノール樹脂の製造方法の違いによる接着性への影響を調べてみた。

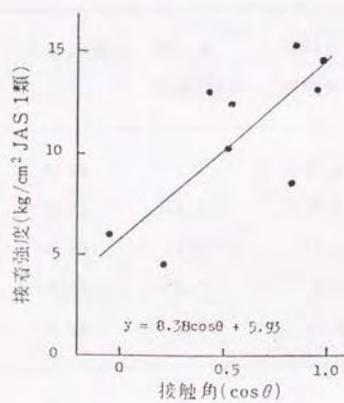


図7.18.ベイマツ単板への水の接触角と接着強度の関係

表7.7. ベイマツ単板の抽出成分と水に対する接触角

試料No.	厚み (mm)	全乾比重	熱水 可溶分(%)	1%カセイソーダ 可溶分(%)	エーテル 可溶分(%)	接触角 (度)
1	3.2	0.39	1.2	10.5	0.3	19
2	3.2	0.43	4.8	14.6	0.6	78
3	3.2	0.39	2.6	13.7	0.5	35
4	1.6	0.46	2.7	4.9	0.5	32
5	1.6	0.48	3.3	12.4	0.6	80

表 7.8 . ベイマツ合板の接着強度

熱圧時の圧縮圧		10kg/cm <sup>2</sup>	12.5kg/cm <sup>2</sup>
辺	材	10.0(81)	12.7(58)
心	材	9.8(73)	11.7(86)

\* せん断強度：平均値 kg/cm<sup>2</sup>，72時間連続煮沸試験

\*\* ( ) 内は平均木破率 (%)

\*\*\* 接着剤：レゾール (フェノール樹脂)

わが国におけるフェノール樹脂の製造方法は、南洋材の接着を目的に設計されているために、樹脂の縮合度を抑えて低分子量成分をある程度残し、熱圧時に樹脂の流動性を確保するように考えられている。低分子量成分が存在すると、樹脂の硬化速度が低下するために、樹脂のpHを下げて硬化性を補っている。

いっぽう、Jarvi の報告<sup>11)</sup>によると、針葉樹の接着には高縮合、高アルカリタイプの樹脂が適しており、Bステージに近いフェノール樹脂を高アルカリ水溶液に溶解させたような接着剤が使われている。

フェノール樹脂接着剤でも、このように製造方法が違ってくると、接着剤の性質や使い方に大きな違いが生じてくると考えられた。そこで、Jarvi の報告に基づいて高縮合かつ高アルカリ性のフェノール樹脂接着剤(PF-A)を試作して、南洋材接着用に市販されているフェノール樹脂接着剤(PF-B)と共にベイマツ単板を接着して両者の違いを以下に示す接着条件によって比較した。

接着条件：単板構成； ベイマツ、1.6mm + 3.2mm + 1.6mm、含水率 5%以下

接着剤配合：	PF-A	PF-B
フェノール樹脂液	100 重量部	100 重量部
小麦粉	0	3
専用充填剤	25	16

塗付量： 407g/m<sup>2</sup> (2接着層)

仮圧縮： 圧力 12.5kg/cm<sup>2</sup>、時間 15分

熱圧条件： 温度135℃、圧力 10~15kg/cm<sup>2</sup>、6.5分

なお、接着に際して熱圧圧力を10~15kg/cm<sup>2</sup>の範囲で変え、その効果を併せて調べてみたところ、図7.19. に記したような結果を得た。

接着剤の性状は図中に示したが、高縮合かつ高アルカリ性の接着剤の方が全般的に高い接着強度を示していた。PF-A樹脂は、熱圧圧力を10kg/cm<sup>2</sup>から12.5kg/cm<sup>2</sup>に高めることにより接着強度が大幅に上昇し、それ以上の高い圧力では接着強度に大きな変化がみられなかった。いっぽう南洋材接着用のPF-Bでは、熱圧圧力を12.5kg/cm<sup>2</sup>から15kg/cm<sup>2</sup>に高めたところで接着強度の向上が認められた。

このような傾向は、明らかに接着剤の浸透性の違いを示唆しているものと考えられ、流動性に富むPF-B樹脂は主に春材部において急速に木材内部へ浸み込み、薄い接着層を

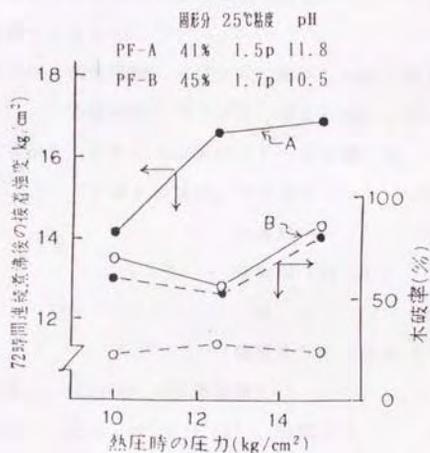


図7.19. ベイマツ合板の接着強度に及ぼす熱圧時の圧縮圧の影響

形成しているために、より高い熱圧圧力で接着する必要があるものと推測された。

次に、これらのアルカリレゾール型フェノール樹脂接着剤を用いてベイツガとカプールの単板を組み合わせて合板を接着したときの接着強度を調べてみた。その際に、開放堆積時間を種々変化させて、接着強度と開放堆積時間との関係を求めた。また参考までに、カプール材の接着に適したフェノール・メラミン樹脂接着剤(PMF)を使用して同じ単板を接着し、そのときのデータを併記した。

なお、この試験における接着条件は以下に記したとおりである。また接着に際して、心板単板に接着剤を塗付したのち40℃に保持した恒温器中に立てかけて放置し、所定時間経過したのちに取り出して表裏単板を重ねて仮圧縮を行い、このときの放置時間を堆積時間としてその影響を調べてみた。

接着条件：単板構成；表裏単板 カプール 厚さ1.4mm、含水率 6～7%

心板単板 ベイツガ 厚さ3.4mm、含水率 8～9%

接着剤配合；PF-AおよびPF-Bは図7.19. のときに同じ

PMFの場合、PMFレジン 100 重量部

小麦粉 10

増強剤(NS-101) 10

水 7

塩化アンモニウム 0.5

塗付量； 440g/m<sup>2</sup> (2接着層)

仮圧縮； 圧力 12.5kg/cm<sup>2</sup>、時間20分

熱圧条件；圧力 10kg/cm<sup>2</sup>、PFのとき；温度 135℃、時間 6分

PMF ; " 120℃、" 2945#

試験結果は図7.20. に示したとおりである。針葉樹にカプール材が混入すると、高縮合かつ高アルカリタイプのPF-Aは南洋材用のPF-Bに比べて接着性能が逆に低下する結果となった。また堆積時間の影響は両樹脂とも同じように受けている。そのような結果に対してPMFは、PF-Bと同様に高い接着強度を有し、しかも堆積時間の影響も極めて軽微であり、安定した接着性能を示していた。

わが国の合板工場では、将来的に針葉樹と南洋材とを混合使用するケースが多くなり、表裏単板には南洋材を使用し、また心板単板には針葉樹を使用する複合合板が多くなると考えられる。このようなときにいずれの接着剤を選択するのか、という問題がある。その

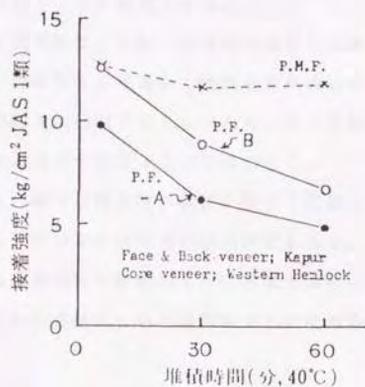


図 7.20.表板をカブール、心板をベイツガとして  
レゾールで接着した合板の接着強度と堆  
積時間の影響

選択を誤ると、Wellons の報告<sup>1,2)</sup> にもあるように、接着トラブルの原因にもなり得るので、そのときは南洋材の接着に重点を置いた接着剤の選択が必要になると考える。

#### 4. おわりに

以上は難接着性木材としてシナ、カブール、クルイシ、および針葉樹材を例にとり、接着剤や増量剤、および接着条件などの面からその接着性改善の方法について検討し、併せて問題点を指摘した。

それらの検討結果より、難接着性木材の接着に際しては、主に接着剤の浸透と流動挙動に留意して、できるかぎり均一な接着層を形成するような接着剤や増量剤の選択、および接着条件の設定を行うことが重要である。

接着剤の浸透と流動性は、木材へ接着剤を塗付した瞬間から時間と共に変化することから、常にそれらの経時変化を考慮した動的な取り扱いが必要になる。この問題は主に接着層に存在する水の動きに起因するものであり、その意味において、今後、接着層の水の挙動を正確に把握する方法を検討する必要がある。

いずれにしても、難接着性木材の接着に関する問題には、まだまだ解決すべき点が多岐あり、その解決には各分野の研究者の協力が望まれる。

最後に、はなはだ独断的な解釈のもとに考察を進めてきたが、合板業界が直面した接着問題に対して幾分かの貢献をしたと自負するものである。

#### 引用文献

- 1) R. A. Jarvi: Forest Prod. J., 17 (No. 1), 37 (1967)
- 2) 松下 力: 木材工業, 4, 169 (1949)
- 3) 原田一郎: 木材工業, 4, 575 (1949)
- 4) 吉田弥明, 野崎兼司, 田口 崇: 木材の研究と普及, No. 166, 6 (1967)
- 5) 阪口宏司, 中塚友一郎: 木材工業, 24, 515 (1969)
- 6) 浅野信二: 木材工業, 22, 318 (1967)
- 7) 小西 信, 藤本 勝, 奥田 稔: 木材工業, 23, 382 (1968)
- 8) 後藤輝男, 作野友康, 往西弘次: 島根農大研究報告, 15号-A, 54 (1967)

- 9) 深沢 厚, 宮崎泰顕: 木材工業, 24, 467 (1969)
- 10) 今村博之, 他: 林試研報, 第232号, 65 (1970)
- 11) 阿部 勲, 秋元直司: 木材学会誌, 22, 191 (1976)
- 12) J. D. Wellons, et. al., Forest Prod. J., 27 (No. 2), 38 (1977)
- 13) G. R. Wilkie, J. D. Wellons: Forest Prod. J., 28 (No. 7), 34 (1978)
- 14) Chung-Yun Hse: Holzforshung, 26 (No. 2), 82 (1972)
- 15) Chung-Yun Hse: Forest Prod. J., 21 (No. 1), 44 (1971)
- 16) 中村史門: 木材の研究と普及, No. 200, 11 (1970)
- 17) S. Z. Chow, W. V. Hancock: Forest Prod. J., 19 (No. 4), 21 (1969)
- 18) 寺沢 真, 蕨木自輔: 木材工業, 23, 63 (1968)
- 19) 児玉孝彦, 他: 愛知県工業指導所報告, 第15号, 6 (1979)

## 第8章 コーリャン茎を使用したボードの製造における接着

### 1. はじめに

1992年6月に開催された国連環境開発会議において森林の保全、持続可能な開発が決められて、従来のような森林の伐採が困難になり、木材を安価に輸入することが不可能になってきた。将来的には、世界的に木材工業へ使われる原木の不足と価格の高騰が心配される情勢になってきている。

木材は工業的に利用されるまで、成長の早い樹種でも20年以上の年月を必要とする。それに対して1年植物を木材の代替として利用しようとする動きが見られるようになり、特に農産廃棄物の有効利用が、このような情勢を背景に注目されるようになってきた。

すでに中南米、東南アジアや中国において、サトウキビの搾りかすであるバガスを使用してバガスボードが実際に製造されている。また中国においては竹を用いて合板を製造して車両の床材などへ利用している。Hellerは、竹、アシ、もみ殻、麦わら、ビートの搾りかすなどを利用したパーティクルボードの研究を行っている<sup>21)</sup>。さらに、Richterは籐の茎やイネ科の草類を原料として水ガラスのバインダーを用いた軽量な断熱材の試作を試みている<sup>22)</sup>。また、Boehmeはヒマワリの種皮を原料にしてパーティクルボードを試作しているが、その際に接着剤の影響を検討し、種皮の表面に油性成分があるにもかかわらず、ユリア樹脂あるいはポリメリックMDI接着剤によって優れた性能を有するボードが得られることを報告している<sup>23)</sup>。

このような農産廃棄物や1年植物をボード原料として利用する際に問題となることは、それらの原料が大量にかつ容易に入手できるか否か、ということである。原料の量的確保の可能性を考えると、使用できるものは極めて限られたものになると考えられる。

サトウキビと同様な植物としてコーリャン (*Sorghum narvosus*) がある。それは米国、インドや中国で大量に栽培されており、その茎はあまり利用する価値もなく、焼却されたり、そのまま畑の隅に放置されている。この作物はサトウキビやトウモロコシと同様に広大な面積にまとめて植え付けられ、茎を多量に入手することはそれほど困難ではない。

そこで、コーリャンの茎を利用してボードを製造する方法について研究を行い、茎を長

いまま並べて層を作り、その層を交互に茎が直交するように重ねて熱圧することによって合板と類似したボードが得られることを見出した<sup>4)</sup>。この方法によると、高い強度を有するボードを得ることができる。その反面、茎を丸ごと使用してボードにすると、大気中の湿度によって厚さが大きく膨潤したり、カビが生えやすいなどの欠点が認められた。

また、茎の表皮だけを使用してボードを製造すると、製造にあたって茎の髄を除去する特殊な設備を必要とし、さらに薄い表皮を多数枚積層せねばならず、工程が複雑になりかつ多量の接着剤が必要になるのでコストが高いなどの欠点が認められた。

サトウキビは厚い表皮を有する通直な茎を持っていて、成分的にも木材と類似した組成から成っている<sup>5)</sup>ために、木材の代替物としては適当である。しかし、茎から砂糖汁液を搾るときに取扱いが容易になるように茎を短くカットしていることが多いので、長い茎のまま入手することが難しい。

それに対してコーリャンは高さが2~4メートルの通直で厚い表皮の茎を持ち、茎そのものはあまり利用されないために、長いままの茎を容易に入手することができる。また、中国においては、地方によってコーリャンとトウモロコシの畦を交互に作って栽培しているところがある。トウモロコシも背丈が高い茎を持っており、コーリャンの茎を使用することが可能であれば、当然、トウモロコシの茎を利用することも考えられる。しかし、トウモロコシは茎の途中で結実し、茎のその部分が湾曲化しているために、茎を並べてボードにすることが困難である。また茎の表皮が薄いために、予備的試験の結果によって優れた強度のボードになりにくいことが確認された。

したがって、これらの検討結果に基づいて、コーリャンの茎は成分的に木材と類似しており<sup>6)</sup>、量的にもまた形状的にも木材の代替材料として適したものであると判断し、この茎を利用して平易な方法によって木材に替わるボードを製造する研究を行った。併せて農産廃棄物の有効利用を図ることによって、森林資源の節約と地球環境の保全に貢献することを考えた。

## 2. 試験方法

### 2.1. 試験に供した材料

#### 2.1.1. コーリャン茎

試験に供したコーリヤンの茎は中国の遼寧省にある瀋陽市の近郊および營口市の近郊より入手したもので、種類は八葉齊、熊岳253号、晋雜4号、および橋雜2号などを混合して使用した。

なお、入荷したコーリヤン茎から100本をランダム・サンプリングして、その長さ、および直径を測定したところ、次のような形状であった。

茎の長さ	平均値	231cm	最大長さ	247cm	最小長さ	190cm
節の頻度	長さ1mあたりの平均値		4.3個			
茎の太さ	根元部の平均値	18.0mm、	最大値	24.0mm、	最小値	11.5mm
	先端部の平均値	10.9mm、	"	15.0mm、	"	7.0mm

### 2.1.2. 表面材

ボードの表面がコーリヤン茎のままでは美観上問題もあるので、単板を接着することにした。その表面材には、中国より入手したカバ材をロータリーレースにより剥板して厚さ1.0mmの単板にしたものを一部に使用した。大部分の試験には、合板工場より入手した厚さ1.8mmのラジアタパイン単板を使用した。

また比較のために、合板工場より入手した厚さ1.8mmの南洋材単板も使用した。さらに市販の厚さ2.7~3.0mmのLタイプのMDFを表面材として使用することもあり、また、条件によっては表面材を使用しない場合もあった。

### 2.1.3. 接着剤

コーリヤン茎の表面にはワックスが層状に付着しているので、文献<sup>1)2)</sup>を参考に、接着剤には光洋産業より市販されている水分散型のイソシアネート系接着剤を選定した。

また、一部の試験には、接着性能を向上させるために、同社より市販されているスチレン・ブタジエン・ラバー系(SBR系)の水性ラテックスをイソシアネート系接着剤と固形分重量比で1/1の割合で混合して使用することにした。

### 2.1.4. 含浸剤

コーリヤン茎の髄部に含浸して補強と耐腐朽性を改善するために、フェノール樹脂の初期縮合物を含浸することにした。さらに一部にはフェノール・ユリア共縮合樹脂の検討も行った。それらの樹脂は約50%の水溶液の形態で、接着剤メーカーより提供を受けた。

試験に供した含浸用樹脂の物性は次のとおり。

	P F - A	P F - B
25℃粘度	28cp	40cp
不揮発分	50%	53%
pH	8.9	9.3
水混和性	10倍以上	10倍以上

## 2.2. コーリャンボードの製造方法

コーリャンボードの標準的な製造方法は次の手順に従った。

まず、葉と袴を取り除いたコーリャンの茎をボードサイズに合わせて一定の長さにカットする。次にその茎を2～5mmのロール間隔に調整したプレスロールを通して、茎の表皮および髄のセル膜に細かい割れを入れ、続いて所定の濃度に保ったフェノール樹脂の水溶液に3～5分間浸けて樹脂を含浸する。再度プレスロールを通して過剰な樹脂液を搾り出したのち、80～100℃の温度で乾燥する。

含水率が5%以下になるまで乾燥した茎は、互いに平行に並べながら茎の端を糸または粘着テープで結び付け、すだれ状のシートを作る。得られた複数枚のシートにロールまたはスプレーにより接着剤を塗付しながら、茎が互いに直交するように積み重ねて、所定の枚数のシートを重ね合わせたところで温度を150℃に保ったホットプレスへ挿入して、5～9kg/cm<sup>2</sup>の圧力を加えて所定時間熱圧して接着する。

本試験においては、熱圧時にスベサーを使用して主に厚さ12～18mmのボードを調製したが、その場合はシート状の茎を3プライに重ねた。さらに必要に応じて表面に単板またはMDFを重ね、合計5プライのボードにした。また熱圧時間は15～20分とした。

なお、茎へ含浸された樹脂の含浸量は(1)式に従って計算し、含浸率として表示することにした。

$$\text{含浸率 (\%)} = \frac{\text{含浸・乾燥処理した茎重量} - \text{未処理茎の全乾重量}}{\text{未処理茎の全乾重量}} \times 100 \quad \cdot \cdot \quad (1)$$

### 2.3. 含浸用樹脂の分子量分布の測定

含浸剤として使用するフェノール樹脂の初期縮合物の分子量分布はGPCを用い、次の条件により測定した。

測定装置： 日立製作所製、形式 655A-11、

検出器： 可変波長UV、測定波長 270nm、

カラム： 日立製作所製、ゲルパックGL-W530とGL-W550とを連結、

溶媒： DMF、流量 1.0ml、圧力 30kg/cm<sup>2</sup>、

積算装置： 島津製作所製、クロマトバックC-R4A、

なお、ポリスチレンによって検量線を作成した。

### 2.4. ボード物性の測定

試験に供するボードは主に実験室用ホットプレスを使用してサイズが30cm×30cmのものを作製した。ボードを作製したのち、室温に約1週間放置し、JIS A 5908（パーティクルボード）に規定する試験方法によって、曲げ強さ、曲げヤング率、はくり強さ、吸水率、厚さ膨潤率について測定した。

なお、厚さ膨潤率は煮沸水に2時間浸せきする方法によって測定した。その他に、関係湿度を変化させたときのボード平面方向の寸法安定性、および釘の側面抵抗の測定は、ASTM D 1037に規定する試験方法に準じて行った。また、熱伝導率の測定はJIS A 1412に規定する平板比較法に準拠し、栄弘精機製の熱伝導率測定装置HC-071Hにより測定した。

## 3. 試験結果および考察

### 3.1. コーリャンボードの製造方法における問題点

高粱茎を節間部の断面を電子顕微鏡によって50倍に拡大して観察すると、写真8.1.に示すような構造になっている。茎の表皮の部分はワックスやデンプンなどで充填された維管束が配列していて、その内側には中空の維管束が並んでいる。さらに、内部は茎の髄部に

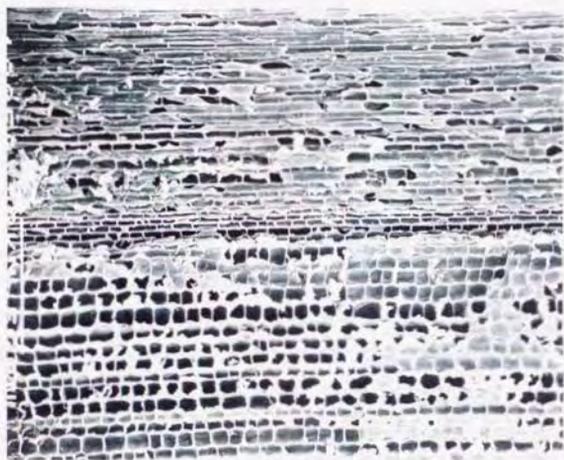


写真8.1. SEMによるコーリヤン茎の縦割り断面（倍率：50倍）



写真8.2. SEMによるコーリヤン茎髓部の断面（倍率：500倍）

なり、その部分は500倍に拡大した写真8.2.にみられるように、気泡状の細胞があって互いに細胞膜で仕切られており、ところどころに導管孔が存在している構造になっている。

当初、コーリャン茎をそのまま使用してボードを製造することを考えたが、茎の表層にワックス層があるために接着が極めて困難であること、また内部の髄部は柔らかく、圧縮しても水分の影響を受けて容易に復元するために、ボードにしたときに厚さ膨潤が大きくなること、およびカビが生えやすいなどの問題があって、実用的なボードを得ることが非常に難しいものであった。

そこで、茎を縦に割り、茎の表層にあるワックス層と髄を取り除き、茎の皮のみを使用してボード化する方法を試みた。しかし、この方法では、ワックス層と髄を除去するための機械化が難しくなり、またボードにするためには薄い表皮を何層にも積み重ねる手間が必要になり、そのために多量の接着剤を使用するなどの問題もあって、結局、この方法も実用的でないことが判明した。

このような試みを繰り返した結果、コーリャンボードの実用化のためには、ワックス層が存在した状態でも接着できる接着剤を開発していくこと、および軽軟な髄に対しては樹脂含浸を行ってその部分を固めてしまうことが必要であるとの判断し、この二つの面からの改良を進めることにした。

ワックスが存在するところへも接着できる接着剤の開発については、1年植物の接着にはイソシアネート系接着剤が適していること<sup>1)</sup>から、前述したように水分散型のイソシアネート系接着剤を使用し、接着性と可使用時間について種々の予備試験を行った結果からその50%水分散液とSBRラテックスとを等量混合したものを接着剤として使用することにした。

また、軽軟な髄を補強するためには、価格が安価であり、カビや腐朽に対して強い抑制効果を有するフェノール樹脂<sup>2)</sup>またはフェノール・ユリア樹脂を選択し、市販品のなかより有効な銘柄を選択した。

樹脂含浸する際に、コーリャン茎をそのまま樹脂液に浸せきする方法では容易に樹脂が含浸されないことがわかった。しかし、樹脂含浸する前に、コーリャン茎をロールによって圧縮し、表皮と髄の細胞膜に割れを入れることにより、短時間の浸せきで樹脂が含浸されていくことを見出し、そのような前処理を行った茎を使用して、樹脂含浸液の濃度、含浸時間、および含浸率などの条件を検討した。

### 3.2. コーリヤン茎の樹脂含浸条件

#### 3.2.1. 茎の前処理、含浸液濃度および含浸時間の含浸率への影響

コーリヤン茎の髄部を補強するためにフェノール樹脂初期縮合物を含浸するに際して、含浸条件の検討を行った。含浸剤にはPF-B樹脂（樹脂濃度 54.4%）を使用し、それを水で希釈して種々の濃度の含浸液を調製した。

また含浸に使用するコーリヤン茎は、表皮を軽くサンディングしたのち、間隔を10mmに調整した上下2本の溝付きロールおよび間隔6mmに調整した平ロールによって圧縮して、あらかじめ茎の表皮などに細かい亀裂や割れを入れたものを含浸試験の試料として使用した。

このような処理をしたコーリヤン茎を5%から原液濃度までの種々の濃度に調整した含浸液に室温下で30分間浸せきしたのち、直ちに乾燥して茎の含浸率を測定した。そして、含浸液の樹脂濃度と茎の含浸率との関係を調べた結果、図8.1.に示すような一次的な直線関係が認められた。

含浸液濃度が高くなるにしたがって、それに比例して茎の含浸率が増加することが判明した。含浸液の濃度が30%以上になると茎の含浸率は100%近くに達する結果になった。それゆえ含浸率を低く抑えるためには、含浸液濃度を5~10%の低濃度に調整しておく必要があり、再度、5~10%の低濃度の含浸液を調製して茎の含浸を行った。このとき、茎の表皮を軽くサンディングしたものと未処理のままのものを使用して含浸を行った。

再試験によって図8.2.に示すような結果が得られた。この場合は浸せき時間を30分に固定したが、含浸後に茎をロール間隔を2mmに保持した平ロール（搾りロール）に通して過剰の含浸液を搾り出す処理を行ったために、茎の含浸率はほぼ10~20%の範囲に入る結果となった。

また茎の表面をサンディングした場合、未処理の茎に比べて全般的に含浸率が高い値となることから、フェノール樹脂が茎の内部へ浸透しやすい傾向がみられた。このことは茎の表皮に存在するワックスの層が樹脂の浸透に多少の障害となっていることを示唆しているものである。

含浸液の濃度が茎の含浸率と一次式で表されるような直線に近い相関性を示していることから、含浸液の濃度をコントロールすることによって茎の含浸率が容易に調整できることがわかった。しかし、茎の浸せき時間が30分では実用上あまりにも長すぎるので、さら

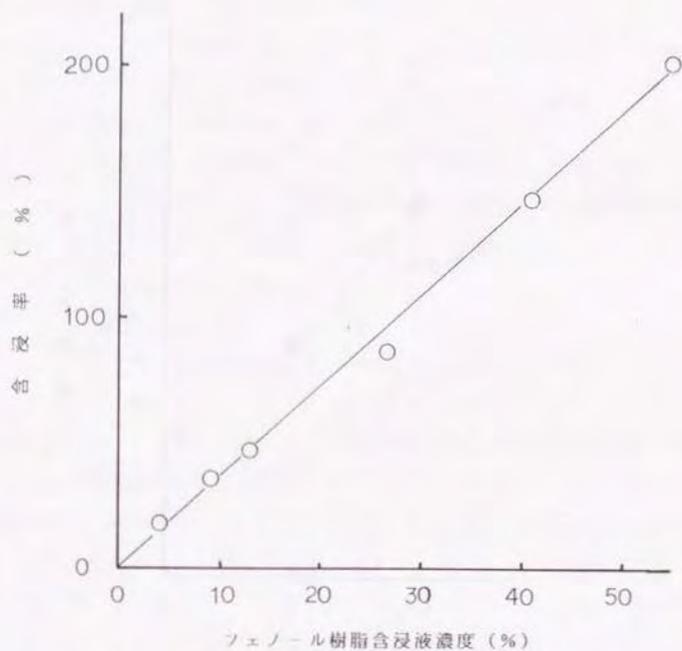


図8.1. 表皮をサンディングしたコーリヤン茎のフェノール樹脂含浸液濃度と含浸率との関係 (室温下、浸せき時間 30分)

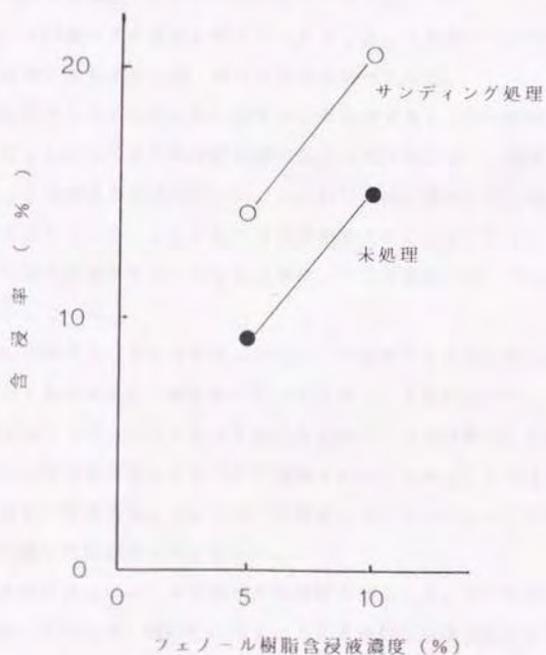


図8.2. コーリヤン茎表皮の前処理による含浸率への影響

条件：室温下、浸せき時間 30分、

浸せき後、過剰の含浸液をロールで再圧縮して搾り出す。

に浸せき時間を短縮することが必要であり、引き続き含浸液への浸せき時間の短縮を試みた。

あらかじめコーリヤン茎を前述の方法で圧縮して茎の表皮に割れを入れ、それを5%から原液の濃度までの種々の濃度に調製した含浸液に浸せきした。所定時間ごとに試料を取り出し、直ちに2mmの間隔に保持した平ロールによって過剰な含浸液を搾り出したのち乾燥し、含浸率を測定してその時間的变化を調べた。

なお、その際に茎の表皮を軽くサンディングして表面のワックス層を除去したものと、全く未処理の茎を使用して、両者の差異を調べてみた。

図8.3.はそれらの結果をまとめて示したものである。この結果から、含浸液の濃度が薄くなるにしたがってより短時間の中で含浸率は平衡に達し、濃度が10%前後の含浸液の場合、浸せき時間は5分以内でよいことがわかった。また、1分間の浸せき時間でも含浸液の濃度を高めることによって茎の含浸率を増やすことができるので、所定の含浸率まで樹脂を短時間で浸透させようとするときは、その分濃度が高い含浸液を使用すればよいことが明らかになった。

図8.3.の結果は、茎を含浸後に平ロールで過剰な含浸液を除去しているのに、15分以上浸せきしても含浸率は一定の値に近づくだけで、それ以上に増えることはない。また、茎の表面からサンディングによってあらかじめワックスを除去した場合は、未処理茎に比べて明らかに含浸率が增加することが確認された。しかし、このような処理によって含浸率がどの程度の割合で増えるかという問題は、データにバラツキがあるために今回の試験だけでは明確な数値が得られなかった。

樹脂を含浸後に平ロールで過剰の含浸液を除去したときの含浸液濃度と茎の含浸率との関係を調べてみると、図8.4.に示すような直線的な相関関係があった。このような相関関係は浸せき時間が1分という短い時間でも認めることができた。

以上のような一連の検討結果から、コーリヤン茎の含浸は含浸液の濃度を調整することによって、容易に含浸率をコントロールすることができ、しかも過剰な含浸液を除去する搾り工程を経ることにより数分という短時間での含浸処理が可能になることが確認され、この含浸工程がコーリヤンボードの生産を行う場合における生産性を阻害しないことが判明した。

コーリヤン茎にあらかじめ細かい亀裂を入れておくだけで、木材のように樹脂を加圧注

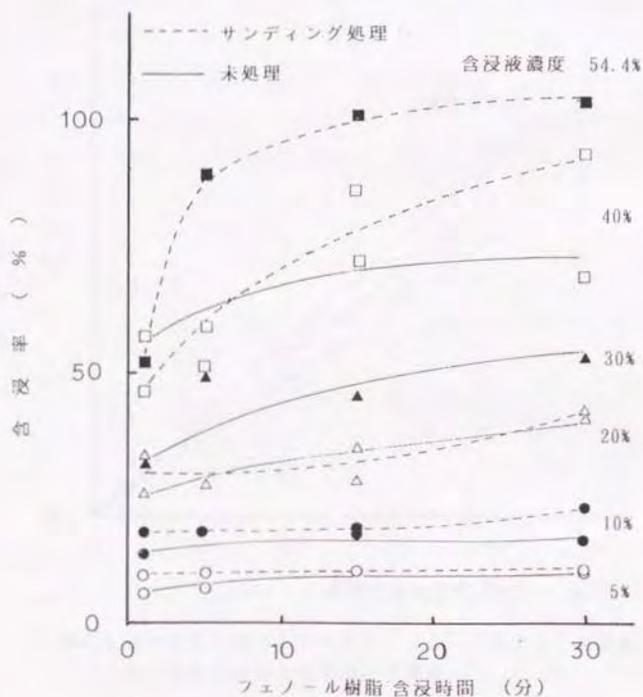


図8.3. コーリヤン茎の前処理の有無、含浸液の濃度  
 および含浸時間と含浸率との関係  
 (浸せき後、搾りロールで過剰の含浸液を除去)

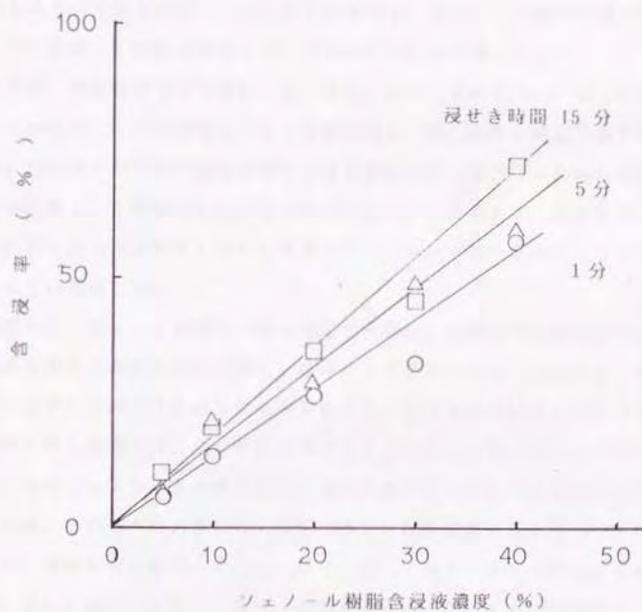


図8.4. 未処理茎を使用したときのフェノール樹脂含浸液濃度および含浸時間と含浸率との関係

入する必要もなく、常温常圧下において簡単に樹脂を含浸できることは、コーリヤン茎の構造的な特徴によるものである。さらに茎に細かい亀裂や割れを入れておくことは、茎にしなやかさを与え、茎が節の部分で折れやすい欠点をも補っている。

### 3.2.2. コーリヤン茎の樹脂含浸とボード物性の関係

あらかじめ茎の表皮を軽くサンディングして表面のワックス層を除去したコーリヤン茎と何も処理を行わないコーリヤン茎とを用いて、フェノール樹脂を種々の比率に含浸してボードを作製し、樹脂含浸率とボード物性との関係を調べてみた。

その際、樹脂含浸を行う前に、コーリヤン茎はいずれも10mmのロール間隔の溝付きロールと6mmのロール間隔の平ロールで圧縮処理し、茎に細かい亀裂や割れを施した。

表8.1. は種々の比率で樹脂含浸した茎を使用して、厚さ12~14mmの茎だけの3プライボードを作製し、その物性を測定した結果を示したものである。表皮をサンディングした茎と未処理の茎との比較をしやすくするために、ボード厚みを調整してボード比重が同一になるように配慮した。

表皮をサンディング処理した茎を使用した場合、表層の茎の繊維方向と平行になるように荷重を加えて測定した曲げ強さ、曲げヤング率およびはり強さは、樹脂含浸量の増加と共にわずかに向上するようにもみられるが、明白な傾向は認められなかった。しかし、吸水率と厚さ膨潤率は、茎に樹脂含浸することによって明らかに改善される傾向を示しており、水分による寸法安定性が著しく改善されていることがわかった。特に含浸率が17.9%のとき、それ以上の含浸率のものと大差ない改善効果を示していた。

また、表皮を何も処理せずにロールで圧縮して細かい亀裂や割れを入れただけの茎を用いて、それに樹脂を含浸した場合、表層の茎繊維と平行方向の曲げ強さ、曲げヤング率およびはり強さは、いずれも茎の樹脂含浸率の増加と共に強度が向上する傾向が認められた。また、吸水率や厚さ膨潤率も含浸率が増えるにしたがって改善される傾向を示しており、フェノール樹脂による茎の含浸処理は明らかにボードの物性および耐水性の向上に有効であることが確認された。

写真8.3. はサンディング処理したコーリヤン茎によるボードから切り出した試験片を写したもので、24時間冷水に浸せきしたのちの厚さ膨潤の状況を示したものである。樹脂含浸をしていない茎を使用したボードは、吸水によって茎が復元し、かまぼこ状の形状になっている。それに対して、樹脂を含浸した茎を使用したときは、冷水浸せき後も熱圧時の形

表8.1. コーリャンボードの含浸率とボード物性の関係

茎の前処理	未処理			サンディング		
含浸率 (%)	0	7.3	12.9	0	17.9	35.9
ボード比重	0.31	0.34	0.37	0.31	0.33	0.38
ボード厚さ (mm)	12.1	12.0	12.0	12.1	13.9	14.0
曲げ強さ (//Kgf/cm <sup>2</sup> )	152	188	206	133	128	145
曲げヤング率 (×10 <sup>4</sup> Kgf/cm <sup>2</sup> )	2.82	3.85	4.62	2.64	2.05	2.33
はくり強さ (Kgf/cm <sup>2</sup> )	1.6	1.9	3.3	1.2	2.0	1.7
吸水率 (%)	184	117	95	208	96	87
厚さ膨潤率 (%) (冷水24時間浸せき)	36	11	7	34	5	5



写真8.3. フェノール樹脂含浸ボードの冷水浸せき厚さ膨潤

状を保持しており、ボード表面の平滑性に大きな変化はない。

### 3.3. 含浸用フェノール樹脂の性状とボード物性

コーリヤン茎の補強効果には含浸に使用するフェノール樹脂の性状が大きく影響する。本研究に用いた市販の含浸用フェノール樹脂は前述したとおりの一般性状である。しかし一般性状だけでは茎の補強効果との関連を把握し難いので、ここではGPCを用いてフェノール樹脂の分子量分布曲線を調べてみた。

フェノール樹脂をDMF溶媒に溶解して分子量分布を測定する前に、ポリスチレン標準試料をDMFに溶解して分子量と保持時間との関係を調べ、図8.5.に示すような検量線を得た。

次に2種類の含浸用フェノール樹脂、PF-AおよびPF-Bについての分子量分布を測定し、図8.6.に示すようなGPC曲線を得た。両樹脂のGPC曲線は極めて似た形状になっており、およそ34.5分の保持時間のところに最大のピークがあった。このピークは分子量が約650の成分の存在を示すものであり、両樹脂はほとんどのものがそれ以下の低分子量成分からなっていることを示していた。

さらに、両試料とも保持時間約17.5分のところに小さなピークがみられた。このピークは分子量が約100万の成分の存在を示しているものである。しかし、フェノール樹脂初期縮合物の場合、およそ100万に相当する高分子成分が存在することは考えられにくい。

フェノール樹脂の分子量分布をGPCによって測定する場合、分子内および分子間の水素結合の影響を考慮する必要がある、と柘植ら<sup>21)</sup>は述べている。また、富田<sup>22)</sup>は、フェノール系樹脂の場合はTHFを溶媒に使用するのが好ましい、と言っている。

これらの報告を考慮すると、フェノール樹脂の初期縮合物をDMF溶媒に溶解してGPC曲線を調べたとき、高分子領域に出現するピークの部分は樹脂分子が互いに会合して見掛け上高分子になっていることを示している、と考えるのが妥当である。

このような傾向が他のフェノール系樹脂についても一般的にみられるか否かを知るために、フェノール・ユリア樹脂を含めて他の樹脂試料を入手して、GPC曲線の測定を行った。

その結果は図8.7.に示したように、他の樹脂試料について測定したGPC曲線においても同様な傾向が認められている。図8.7.は、縮合反応度が異なるフェノール樹脂およびフェ

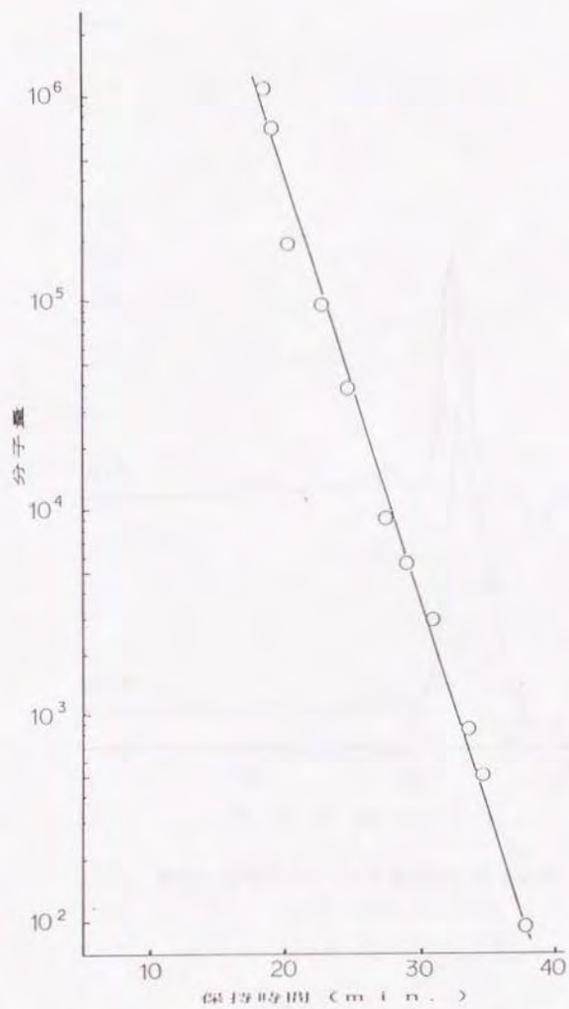


図8.5. ポリスチレンによるGPC検出線

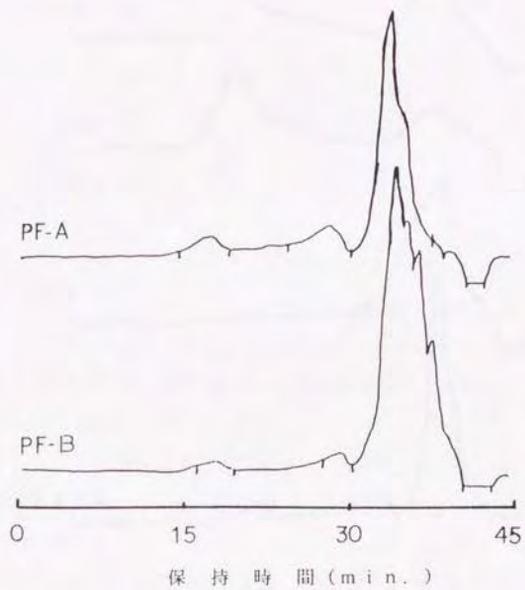


図8.6. 含浸用フェノール樹脂のGPC曲線

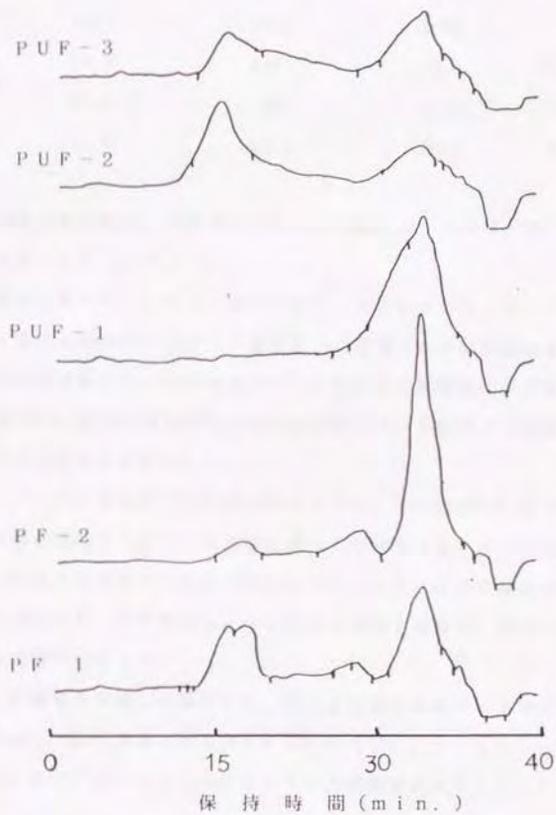


図8.7. 含浸用樹脂サンプルのGPC曲線

ノール・ユリア樹脂について測定したGPC曲線を記したものであるが、保持時間が約34分の低分子成分のところと17.5分前後の高分子領域の個所に特徴的なピークがみられた。

これらの樹脂の一般性状は次にまとめて示しておく。

試料	不揮発分	粘度 (25°C)	pH	水混和性
PF-1	54.6 %	189 cp.	9.32	5.5 倍
PF-2	50.0	47.5	8.96	7.5
PUF-1	59.1	141	10.3	2.0
PUF-2	42.8	28	10.2	10 以上
PUF-3	45.6	48.5	10.4	4.0

樹脂の縮合反濃度は樹脂粘度と不揮発分によって判断され、反応度が低くても不揮発分が高ければ粘度も高くなることが多い。

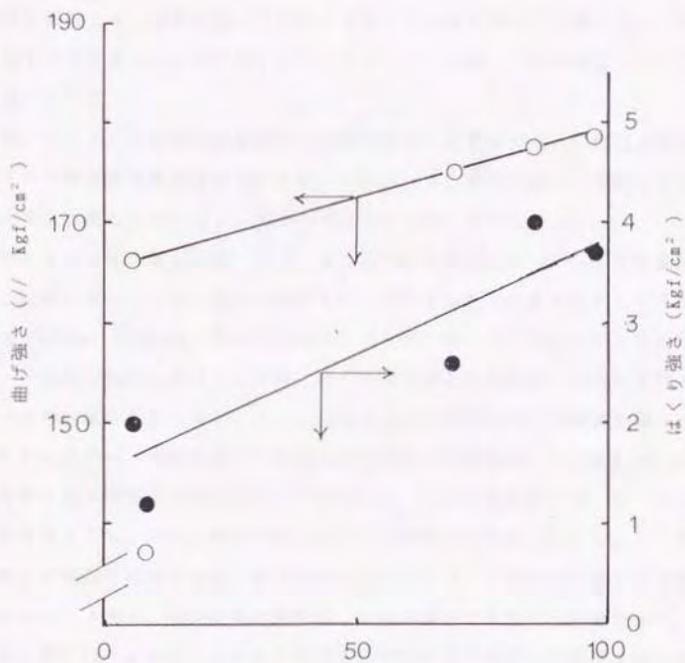
GPC曲線の測定に続いて、これらの樹脂を脱ワックスしていないコーリヤン茎に含浸して、コーリヤン茎のみの3プライボードを作製し、荷重方向が表面茎の繊維方向に平行になるようにして曲げ試験とはくり試験を行い、それぞれの強度値の比較を行った。

そして、分子量が650以下の低分子成分の含有比率とボード物性との関係を探めたところ、図8.8.に示すような結果が得られた。

その結果では、データに多少のバラツキがあるものの、分子量が650以下の低分子成分を多く含有する樹脂を含浸するほど、得られたボードの物性は高くなる傾向があることがわかった。ボードの厚さ膨潤率には影響が見られなかったが、GPC曲線において保持時間が17.5分前後に大きなピークが現れるような樹脂を使用するほど、得られたボードの物性は低下するような傾向になった。

木材にフェノール樹脂を含浸した場合でも、低分子量樹脂を使用するほど、水分に対する寸法安定性は増加し、曲げ強度なども向上するという<sup>10)</sup>。コーリヤン茎の含浸についても、木材と同様に低分子のフェノール樹脂の方が含浸効果が大きくなった。

以上の結果は、コーリヤン茎に含浸するフェノール樹脂の分子量が大きくなると共にボードの補強や寸法安定性に対する効果が減少することを示したが、フェノール樹脂初期縮合物の水溶液は長い時間保存することによってそれだけ縮合が進むものであり、分子量が



分子量が650以下の低分子成分の含有量 (%)

図8.8. 含浸用樹脂に含まれる低分子成分の含有比率と  
ポード物性との関係

徐々に大きくなる性質がある。それゆえ、ボード物性に影響を与えることなしに、どの程度の期間含浸用樹脂を保存することができるかという問題が実用上重要であり、引き続き検討を行った。フェノール樹脂初期縮合物の使用限界を把握しておくことは、ボードの品質を一定に保つためにも必要なことである。

そこで、PFA樹脂をコーリヤン基の含浸に適する濃度、すなわち12.5%に希釈した水溶液を調製して、気温が高い7月から9月までの間常温下に放置した。その間に、適当な時期を選んで基への含浸テストを行ってコーリヤンボードを作製し、ボード物性への影響を調べてみた。

本来、フェノール樹脂は低濃度の水溶液に希釈して保存すると、樹脂の縮合反応が抑制されてその保存性が延びる傾向がある。したがって、夏場の約3ヶ月間という厳しい時期にそのまま放置しておいても、実用上問題ないものと予想していた。

そのときどきに作製したボードは、厚さ1.8mmのラジアタバイン単板を表面材として使用し、心材にはコーリヤン基を各層が互いに直交するように重ね合わせて3プライとし、サイズが900mm × 1800mm、厚さが15mmの5プライのボードである。そして各時期に試作したボードの曲げ強さ、曲げヤング率、はくり強さおよび煮沸水への浸せきによる厚さ膨潤率などの物性値を測定してフェノール樹脂含浸液の保存期間との関係を調べた。

図8.9.にはボードの曲げ強さと樹脂の保存期間との関係を、また図8.10.に曲げヤング率と樹脂の保存期間との関係をそれぞれ示した。これらの結果では、約一か月間保存した樹脂を使用しても、ボード物性の低下はあまり認められなかった。しかし、それ以上の期間放置した樹脂を使用すると、曲げ強さおよび曲げヤング率ともに低下する傾向を示し、これらのデータから、樹脂の保存期間は一か月が限度であることがわかった。

また、図8.11.にはボードのはくり強さと樹脂の保存期間との関係を示した。さらに、図8.12.には厚さ膨潤率の変化を記した。その結果、これらの物性値には樹脂の性能が厳しく影響を与え、およそ2週間の保存期間で、はくり強さや厚さ膨潤率は低下する傾向を示していた。これらの諸結果を総合すると、含浸用のフェノール樹脂液は、夏場において約2週間以内に使い切る必要があることが確認された。

このような結果は、フェノール樹脂の性質によって若干の違いが出ると考えられ、ボード物性値の変化は主に樹脂の分子量分布によって左右されると考えられた。そこで、この保存期間における樹脂の分子量分布の変化をGPCによって調べてみたところ、図8.13.のような結果になった。

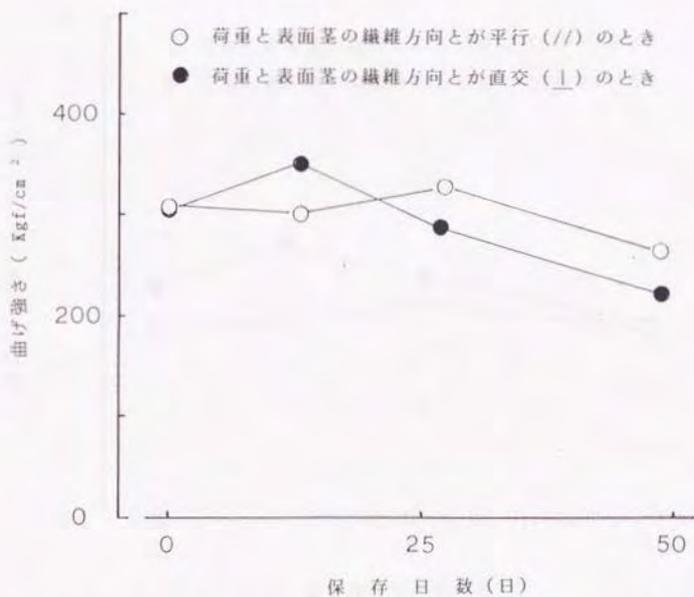


図8.9. フェノール樹脂含浸液の保存日数とボードの曲げ強さとの関係  
(ただし、樹脂含浸液は希釈して7~9月に室内放置した。)

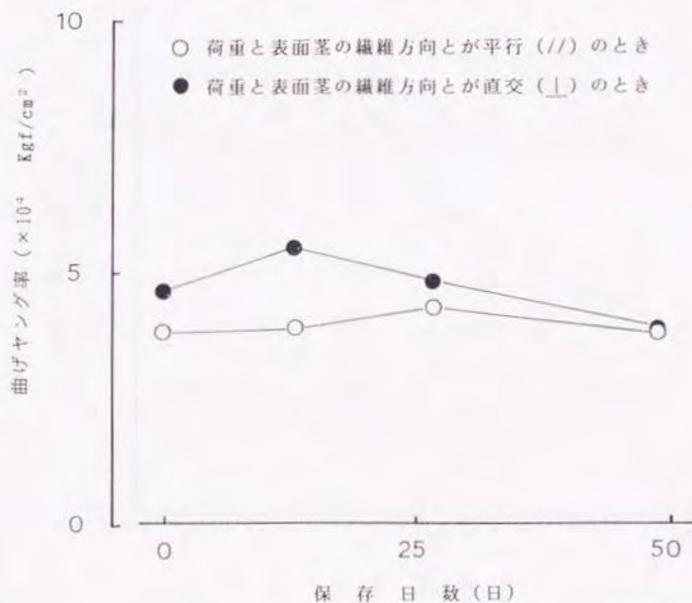


図8.10. フェノール樹脂含浸液の保存日数とボードの曲げヤング率との関係  
(ただし、樹脂含浸液は希釈して7~9月に室内放置した。)

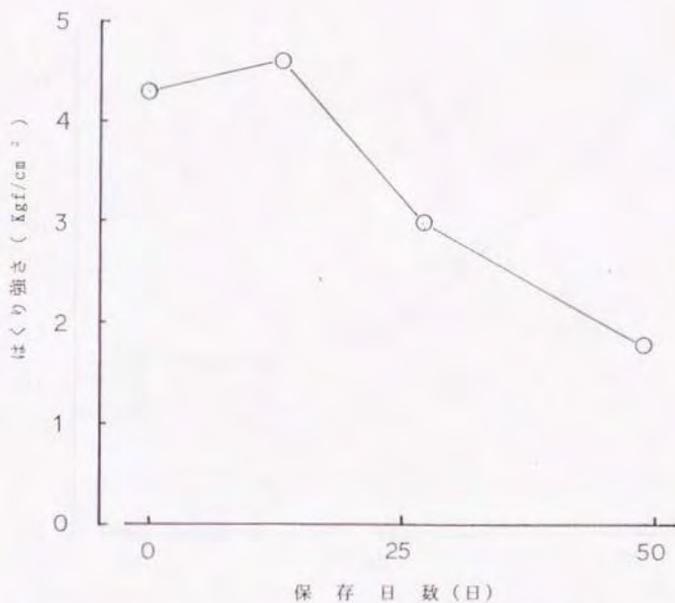


図8.11. フェノール樹脂含浸液の保存日数とボードのはくり強さとの関係  
 (ただし、樹脂含浸液は希釈して7~9月に室内放置した。)

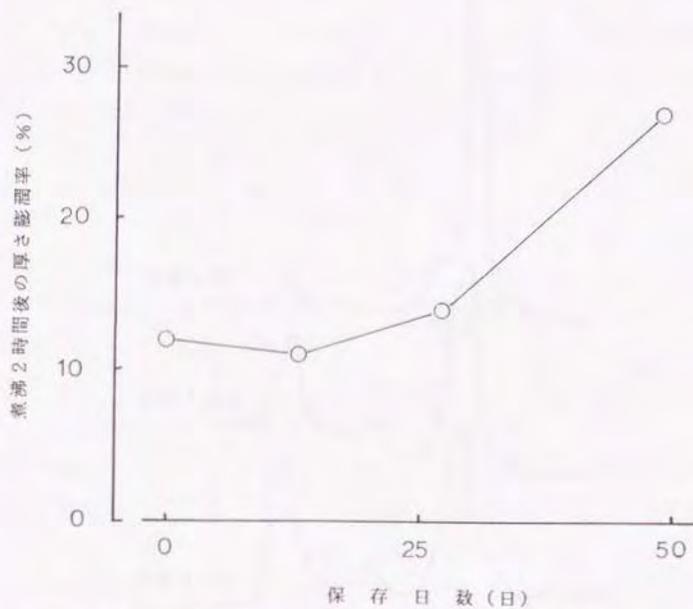


図8.12. フェノール樹脂含浸液の保存日数とボードの厚さ膨潤率との関係  
 (ただし、樹脂含浸液は希釈して7~9月に室内放置した。)

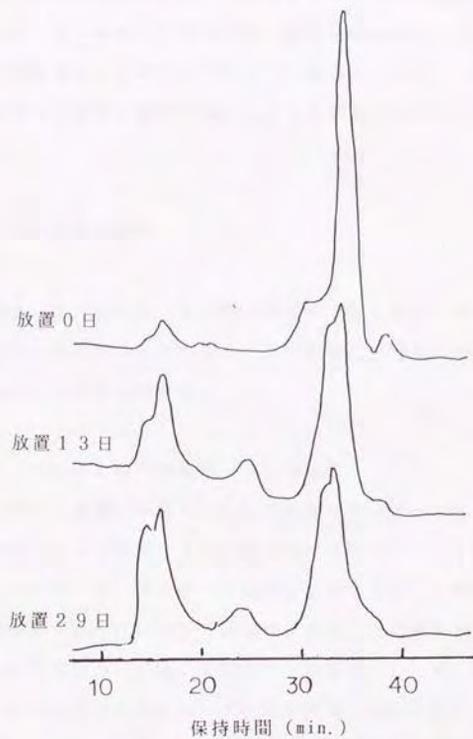


図8.13. 夏期常温放置したフェノール樹脂の  
GPC曲線

図8.13.の結果によると、フェノール樹脂を希釈した水溶液の状態が高温度下に放置していても樹脂の反応が進み、低分子量成分が減少して高分子量成分が増加していることが明らかになった。約2週間放置したときに、高分子量成分はかなりの比率で増加しているために、コーリヤン茎への樹脂の浸透性が低下してボードの補強効果が不十分になったと考えられた。

また、溶媒にDMFを使用したGPC曲線によるフェノール樹脂の分析は、樹脂の分子量分布を正確に示しているわけではないが、高分子成分のピークと低分子成分のピークの比率がボードの物性値とよく対比していることから、フェノール樹脂の性能がGPC曲線の形状によって極めて簡便に判定することができるものであり、実用上有効な判別法といえることができる。

### 3.4. コーリヤンボードの諸物性

以上に述べたような方法に基づき、種々の条件でコーリヤンボードの試作を繰り返したが、それらの結果を総合的にまとめてボードの諸物性や特徴について検討した。次にそれらの検討結果について順次報告する。

#### 3.4.1. コーリヤンボードと他の木質ボードとの比較

まず始めに、ボード表面に単板などを貼り合わせず、コーリヤン茎のみを3層に組み合わせて作製したコーリヤン茎ボードと、接着剤にイソシアネート系樹脂を使用した市販の低比重パーティクルボード、フェノール樹脂接着剤を使用した市販のOSB、および市販のJAS1類合板のそれぞれについて諸物性を測定した結果を表8.2.に記した。

コーリヤン茎ボードについては、3層ボードに限定したため、比重を高めるためには圧縮度を高めてそれだけ厚みの薄いボードにせねばならなかった。

表8.2.の結果から、コーリヤン茎ボードの特徴となるところは、第一にパーティクルボードやOSBに比べて低比重でありながらも曲げ強さや曲げヤング率が著しく高いことである。それらの値は合板には及ばないが、表皮の繊維を損傷させずに利用している特徴が明らかに認められている。またこのコーリヤン茎ボードは3プライ構成になっているために、方向性が顕著になる結果が得られたのも当然である。

コーリヤン茎ボードの第二の特徴は熱伝導率が低いことである。これはコーリヤン茎の

表8.2. コーリャン茎ボードと他の木質ボードとの物性比較

	コーリャン茎ボード			低比重PB	OSB	合板
厚み (mm)	12.1	10.1	7.9	26	11	12
比重	0.42	0.45	0.57	0.47	0.67	0.55
常態 (//kg/cm <sup>2</sup> )	273	357	376	77	360	450
曲げ強さ (⊥ " )	103	131	158	-	200	420
煮沸 (// " )	157	236	314	37	160	-
曲げ強さ (⊥ " )	-	-	-	-	97	-
曲げヤング率 (//×10 <sup>4</sup> kg/cm <sup>2</sup> )	5.3	7.1	9.7	1.0	4.8	5.3
(⊥ " )	0.8	0.6	1.0	-	2.0	4.9
はくり強さ (kg/cm <sup>2</sup> )	2.3	2.6	2.7	4.6	3.4	9.5
木ねじ保持力 (kg)	23.2	30.5	35.2	30.7	50.2	60
吸水率 (20℃ %)	83	65	51	88	-	29
厚さ膨潤率 (煮沸 %)	6	8	9	8	12	3
熱伝導率 (Kcal/m·h·°C)	0.056	0.071	0.076	-	0.090	0.08-0.1

(注) コーリャン茎ボード ; コーリャン茎のみの3プライボード

低比重ボード ; イソシアネート系接着剤使用ボード

OSB ; フェノール樹脂接着剤使用ボード

合板 ; JAS1類合板

髓の存在によるものであり、セル構造になっているために優れた断熱性を示している。しかし、髓のそのような構造がはくり強さや木ねじ保持力において逆にマイナスの結果となり、そのためにはくり強さや木ねじ保持力の値は木材に比べて低くなる。

煮沸水に2時間浸せきしたときの厚さ膨潤率はパーティクルボードやOSBよりも小さくなるが、合板と比べると若干大きい数値になっている。ただ、厚さ膨潤率はボードの比重に依存し、比重が低いと厚さ膨潤率が小さくなる点はパーティクルボードや他のボードと同様である。

#### 3.4.2. ボード比重と曲げ強さ

表面に厚さ1.6～1.8mmのラジアタパイン単板を貼り合わせたコーリャンボードとコーリャン茎のみの3層ボードについて、表面材の繊維方向と平行および直角方向における比重と曲げ強さとの関係をまとめると、図8.14. に示すような相関関係がみられた。

この図において、黒い塗り潰しの点は表面に単板を使用したボードのものであり、白抜きはコーリャン茎だけのボードの曲げ強さである。

荷重の方向が表面材の繊維方向と平行に加わる時は、比較的数値のバラツキは小さくなり、表面に単板を使用してもまたコーリャン茎のみのボードの場合でも、ほぼ同一の回帰直線によってその相関性が表された。

また荷重方向が表面材の繊維方向と直交する場合は、データのバラツキがやや大きくなるが、やはり回帰直線によって表されるような正の相関性を示した。しかしこの場合は、表面に単板を使用したボードと茎だけのボードのときでは、同一の回帰直線で表すことが難しい。またコーリャン茎の3層ボードで表面に単板を使用したボードに比べて曲げ強さが全般的に低い数値になる傾向がみられた。

パーティクルボードやMDFなどについても比重と曲げ強度との間に相関性があり、回帰直線で表されている。しかし、コーリャンボードの回帰直線はそれらと比べると、緩やかな勾配を持つ直線になっているのが大きな特徴である。

#### 3.4.3. コーリャンボードの比重と曲げヤング率との関係

図8.15. にコーリャンボードの比重と曲げヤング率との関係をまとめて記した。

コーリャンボードの表面材の繊維方向と荷重方向が平行になるときは、表面が単板でもまたコーリャン茎の場合でも、比重が高くなるにしたがって曲げヤング率も高くなる傾向

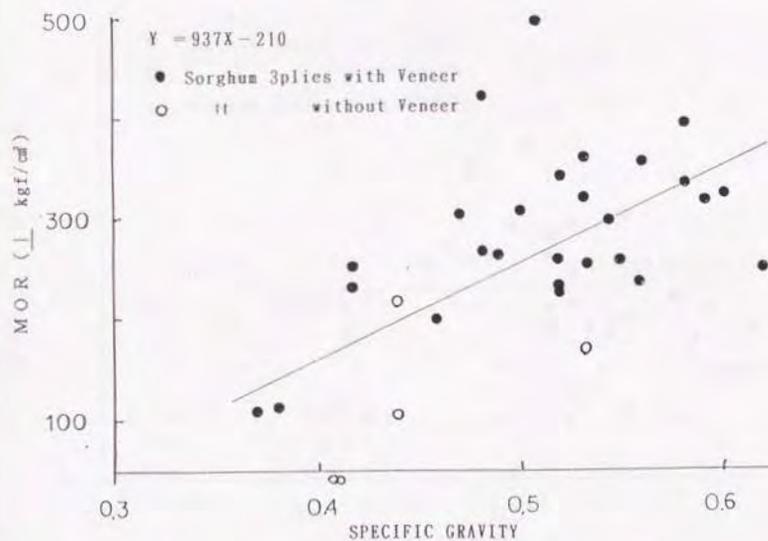
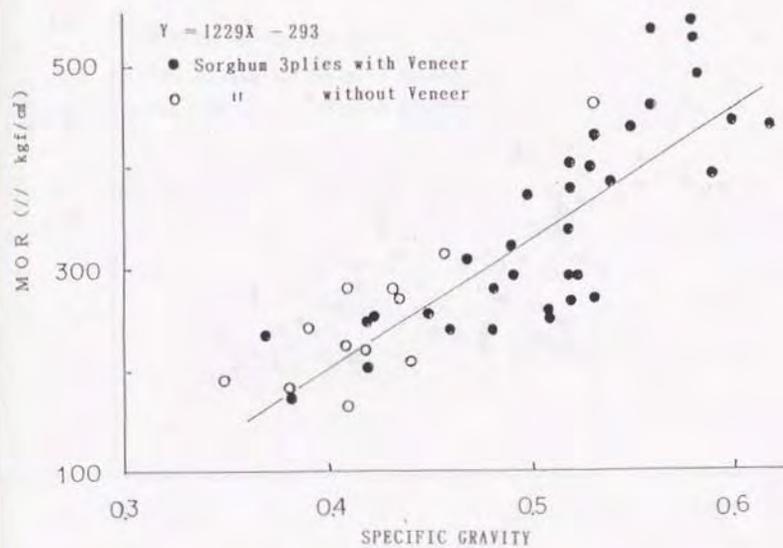


図8.14. コーリャンボードの比重と曲げ破壊強度との関係

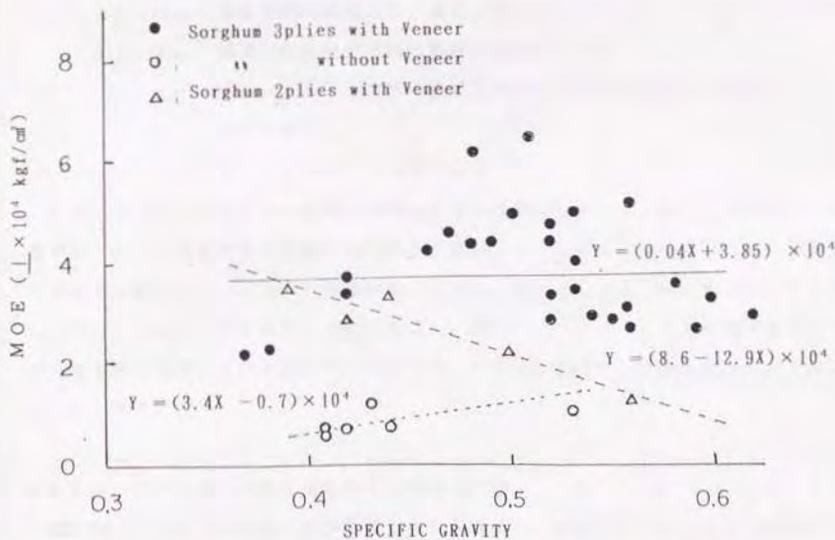
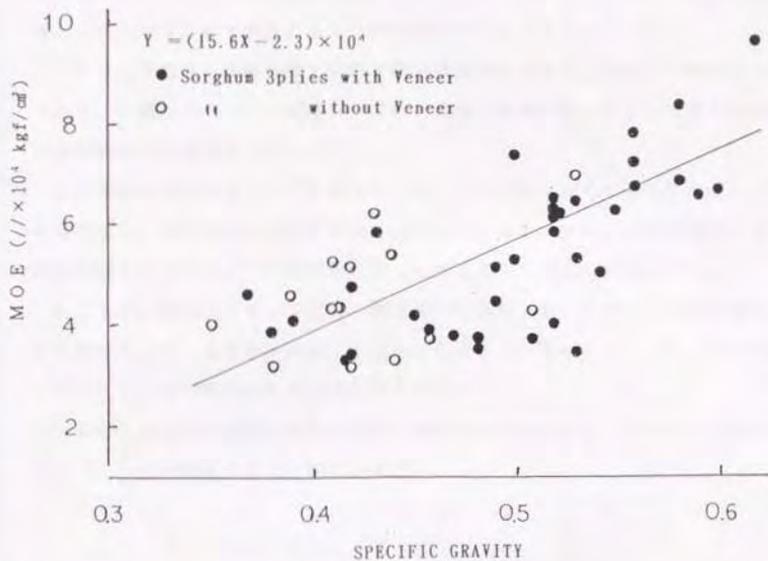


図8.15. コーリャンボードの比重と曲げヤング率との関係

を示し、比重と曲げヤング率との間には相関関係が成り立つ。また、表面材の材質に関係無く一本の回歸直線で表されるような相関性があると見受けられた。

しかし、表面材の繊維方向と荷重方向が直交するときは、複雑な挙動を示している。すなわち、3層のコーリャン茎ボードでは、表面に単板が存在すると比重と曲げヤング率との間に相関性は見られない。

また表面が茎になるボードの場合は、ボードの比重が高くなるにしたがって曲げヤング率も向上し、わずかに正相関の関係を示すようになる。それは比重が増加すると共に表層の茎が固くなるために、圧縮応力に耐えられるようになるためであろう。

ところが心材にコーリャン茎の2層を互いに平行に重ね合わせて表面に単板を貼り合わせた場合に、ボードの比重が高くなるほど曲げヤング率は小さくなり、負の相関性を示すようになる。その理由は次のように考えられる。

一般に、表面材と心材の材質が異なる複合ボードにおいて、そのボードの曲げヤング率は、(1)式で計算することができる<sup>11)</sup>。

$$E_{b2} = E_{v2} + (E_p - E_{v2}) \left[ \frac{t_1}{t_2} \right]^3 \dots \dots \dots (1)$$

ここで； $E_{b2}$ ：表面単板の繊維方向と直交方向のコーリャンボードの曲げヤング率

$E_{v2}$ ：繊維方向に直交方向の単板の曲げヤング率

$E_p$ ：心材コーリャン茎層の繊維方向と平行方向の曲げヤング率

$t_1$ ：心材の厚さ

$t_2$ ：コーリャンボード全体の厚さ

いま、コーリャンボードの比重を高めるために圧縮を強めると、表面の単板層よりも心材のコーリャン茎層が強く圧縮されて厚さが減少する。それゆえ表面の単板層の相対比率が増えるために $(t_1 / t_2)$ の値が小さくなる。また $E_p$ は $E_{v2}$ よりも大きくなるために $(E_p - E_{v2}) > 0$ となり、それゆえ(1)式の第2項はボード比重が増加するにしたがって小さくなり、それと共にコーリャンボード全体の曲げヤング率の値が小さくなっていくのである。

#### 3.4.4. コーリャンボードの比重とはくり強さの関係

図8.16. にコーリャンボードの比重とはくり強さとの関係を示した。ボード表面に単板

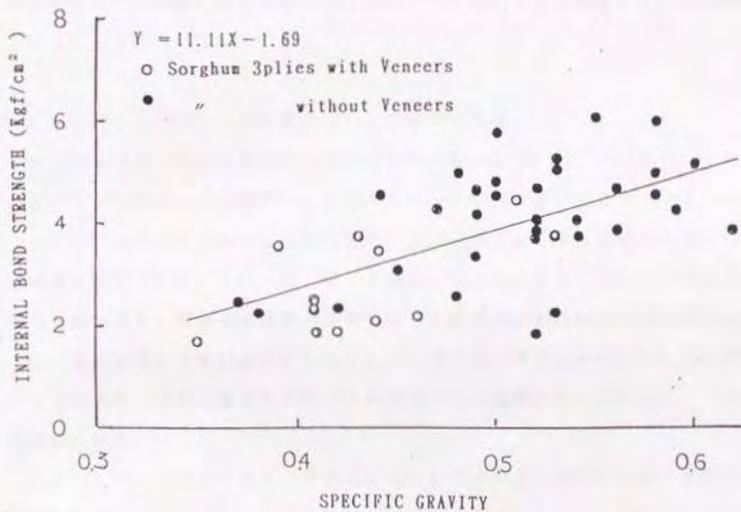


図8.16. コーリャンボードの比重とはくり強度との関係

を使用した場合を黒に塗りつぶした点で、またコーリヤン茎のみの3層ボードの場合を白抜きでプロットしたが、当然ながらボードのはくり強度は、表面の状態に関係無く、比重の上昇にしたがって緩やかに向上する正の相関を示していた。

はくり強度はコーリヤン茎への樹脂含浸量が関係していることは表8.1の結果でも示されているが、この図8.16. においては樹脂含浸量の差を無視してデータのプロットをしているため、特に高比重域においてデータのバラツキが大きくなっている。

コーリヤンボードのはくり強さは、パーティクルボードやOSBなどの木質ボードに比べて全般的にやや低い強度水準にあるが、これは軽軟な髄の影響がそのまま強度に影響していることが原因になっている。

#### 3.4.5. コーリヤンボードの比重と木ねじ保持力の関係

コーリヤンボードの比重と木ねじ保持力との関係を図8.17. に記した。この図においてもコーリヤン茎のみの3層ボードに関するデータを白抜きの点でプロットした。

コーリヤンボードの木ねじ保持力はボード比重の上昇と共に直線的に向上し、明らかな正相関を示している。そのうえ、ボード表面が単板のときとコーリヤン茎だけの場合では明白な差があり、単板の木質層が介在する方が保持力が約10Kg程度高くなった。

コーリヤン茎にも堅い表皮が存在するが、その層の厚さがわずかに0.5mm前後の薄い層であるために、木ねじ保持力の向上にあまり大きな影響を与えていないことがこの結果から判断された。

したがって、このようなボードを用いるにして木ねじで固定する操作を行うときには、通常の形状の木ねじの替わりに例えばタッピンねじのようなものを使用して、保持力の向上に配慮することが重要であると認められた。

木ねじ保持力が木材に比べて低いことは、コーリヤン茎の軽軟な髄が存在するためであり、はくり強度の問題と共に今後改善を図るべき課題である。

#### 3.4.6. コーリヤンボードの寸法安定性

表8.3. は20℃の温度において関係湿度を50%および90%と変化させて、コーリヤンボードの平面方向ならびに厚き方向に寸法がどのように変化するか調べた結果である。試料には、表面に厚さ1.8mmのラジアタバイン単板を貼ったものとコーリヤン茎そのままのものを使用した。また、平面方向の寸法変化は表面材の繊維方向に平行方向(//)と直角

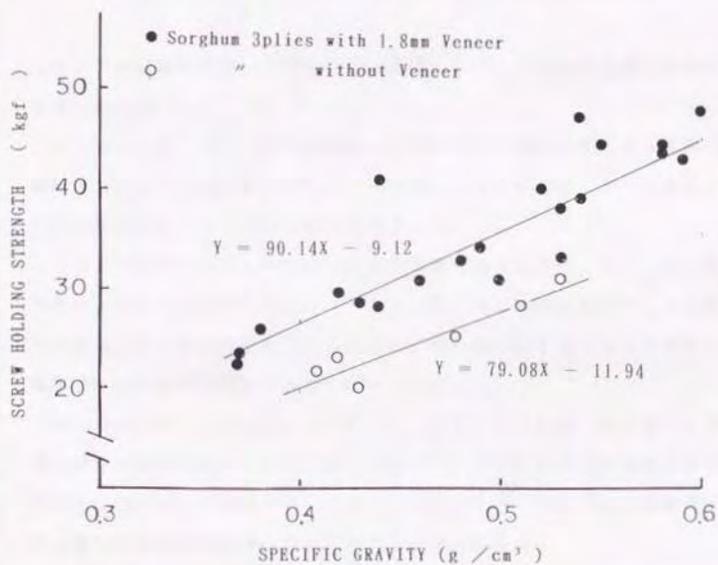


図8.17. コーリャンボードの比重と木ねじ保持力との関係

方向(⊥)について測定し、ボードの含水率が1%増減したときの寸法変化の割合を算出して表8.3.に表示した。

その結果、南洋材合板と比較して厚さ方向の寸法変化率は、厚さ12mmで比重が約0.5のコーリャンボードの場合は合板よりもやや大きい割合になった。しかし比重が0.4に近い低い厚さ18mmのコーリャンボードでは、合板とはほぼ同様な寸法変化率であった。

また、平面方向の線膨脹率は一般的に合板よりも小さな数値になり、含水率による寸法変化は合板よりも安定している結果になった。

この結果はコーリャンボードのひとつの特徴になるものと考ええる。

次にその試験の序でに、同条件下に放置したボードの含水率変化を測定して、その結果を表8.4.に示した。

コーリャンボードの平衡含水率は、合板に比べて関係湿度によって変化が大きく、関係湿度が50%のときは合板よりも3~4%低い含水率になり、また関係湿度が90%と高いときには合板よりも4~5%も高い含水率になった。

このように木材よりも大きな含水率の変動を示す理由は、コーリャン茎と木材との組成の差によるものと考えられる。コーリャン茎には、木材に比べて、より多くの糖およびヘミセルロース成分が含まれているために、強い吸湿性を有することが考えられる。この性質が表8.4.の結果に現れたものと考えている。

コーリャンボードのこのような性質は、壁材として使用したときに部屋の調湿を均一に保つプラス効果が考えられる反面、高湿度下においてはカビの発生を容易にし、腐朽しやすいというマイナス面も考えられる。したがってコーリャンボードを建築材料として使用する際には防霉防虫処理に十分な配慮をする必要がある。

#### 3.4.7. コーリャンボード端部の性質

コーリャンボードを広い用途に使用して種々の加工をする際に、ボード端面の木ねじ保持力や側面抵抗が合板などに比べてどのような違いがあるのか、おおよその傾向を把握しておくことが必要である。

そこで、コーリャンボードの端面に、JIS A 5908の木ねじ保持力の試験法に規定する木ねじをボードの端面に打ち込んで、その引き抜き抵抗を測定した。その際に木ねじをコーリャン茎の繊維方向に沿って打ち込む場合と、茎の繊維方向と直交するように打ち込

表 8. 3. 高粱ボードの寸法安定性  
 [含水率が1%変化したときの寸法変化率(%)]

	高粱ボード				南洋材 12mm合板
	厚さ12mm		厚さ18mm		
	高粱3774	1.8mm単板付	1.8mm単板付		
含水率1%あたりの 縮率(%)	//	0.008	0.006	0.005	0.018
縮率(%)	i	0.010	0.016	0.004	0.013
含水率1%あたりの 寸法膨張率(%)		0.32	0.33	0.22	0.22

0) 単板: 1.8mmラジアタ・バイン

表 8. 4. 高粱ボードの平衡含水率

養生条件	高粱ボード			南洋材 12mm合板
	厚さ12mm		厚さ18mm	
	高粱3774	1.8mm単板付	1.8mm単板付	
20℃ 50%RH	7.3%	5.9%	7.0%	10.6%
20℃ 90%RH	20.2%	21.3%	21.6%	16.4%

む場合について試験を行った。

南洋材合板と比較して測定した結果を表8.5.にまとめて示した。

合板の場合は、単板の繊維方向に沿って木ねじを打ち込むときと繊維方向に直交するように木ねじを打ち込んだときでは、保持力に差があり、前者のケースの方が高い保持力を示した。

いっぽう、コーリャンボードの場合は、茎の繊維方向に沿って木ねじを打ち込むと、合板の1/2程度の保持力になる。また、茎の繊維方向に直交して木ねじを打ち込むと、堅い表皮を木ねじが打ち抜くために引き抜き抵抗が増し、合板のときに近い保持力を示していた。南洋材合板の場合は単板に種々の樹種を使用しているために、樹種によって木ねじ保持力に差があるものと思われるが、コーリャンボードの端面における木ねじ保持力は木材に比べてやや劣る結果であった。

今後、このようなケースに配慮して、コーリャンボード端面の補強を考えていく必要があることがわかった。

また、構造用合板として使用するケースを想定して、ASTM D 1037に規定する釘の側面抵抗値を測定した。端面よりの距離を変えて釘を打ち込み、合板と比較して測定した側面抵抗値は図8.18.に示すような結果になった。

いずれのボードも釘の打ち込む位置が端面より離れていくにしたがって側面抵抗値は大きくなる傾向がある。そして合板の場合は、表面単板の繊維方向と平行方向に釘を引き抜いたときよりも表面単板の繊維方向と直角方向に引き抜いたときの方が高い抵抗値を示していた。

しかし、コーリャンボードについては、表面に厚さ1.8mmのラジアタバインを貼っているにもかかわらず、表面材の繊維方向による方向性があまり見られなかった。そしてその抵抗値は、端面より12mm以上内側に釘を打ち込んだときに、表面単板の繊維方向と平行方向に釘を引き抜いたときの合板の抵抗値とほぼ同様な値になった。

これらの結果から、コーリャンボードの場合は合板に比べて端面より内側に釘を打つのが適当であると言えるが、この試験では概略の傾向を知ることが目的としたために、今後さらに種々の試験を繰り返して、データを集積していくことが必要である。

表8.5. コーリャンボード端面の  
木ねじ保持力 (単位: kgf)

	A 面	B 面
コーリャン ボード	20.4 5.8 ~41.0	29.3 13.6 ~46.9
南洋材合板	40.8 33.5 ~49.3	29.9 21.7 ~35.4

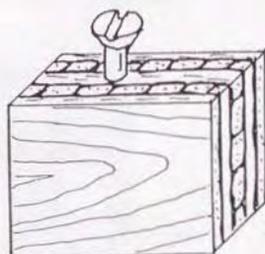
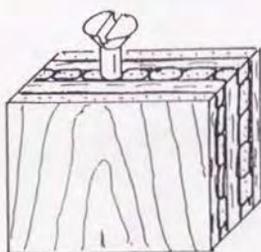
例 試料の構成

コーリャンボード: 表面1.8mm ラジアタ・パイン } 厚さ 12mm  
 芯材 コーリャン茎3プライ }  
 南洋材合板: 厚さ 12mm、

試験面

A 面

B 面



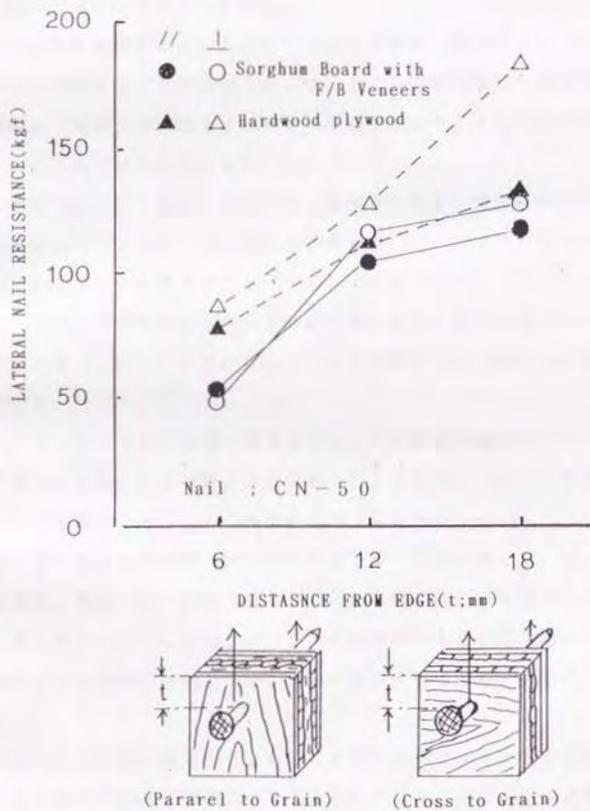


図8.18. 12mm厚さのコーリャンボードおよび合板の釘の側面抵抗値

#### 4. おわりに

以上は農産廃棄物であり、1年植物でもあるコーリヤンの茎を木材の替わりに使用して合板に替わるボードを得ることを目的に研究した結果である。

この検討の主目的は、地球環境の保全のために森林を保護する動きに対応することであり、併せて炭素を長期間固定しておくことにより炭酸ガスの発生を抑え、最終的には地球の温暖化を防止するというねらいがある。

コーリヤンの茎を使用するにあたっての大きな問題は、茎の表面にワックス層があり、予想した以上に接着することが困難であった。また、茎の内部には軽軟な髄があり、その部分の技術的かつ経済的な処理方法に関する問題もあった。さらにカビの発生や腐朽を防ぐ方法についても検討せねばならなかった。

接着が困難であるという問題に対しては、難接着性木材の接着に関する研究課題であり、その成果をコーリヤンボードの研究に活用することによって、イソシアネート系接着剤を改良して解決することができた。

また、コーリヤン茎の髄部を補強する問題に関しては、低分子量のフェノール樹脂初期縮合物を含浸することによって茎の補強と、カビの発生および腐朽の防止と併せて解決する目的を付けた。

その際に、コーリヤン茎の含浸に適するフェノール樹脂の検討を行い、分子量が650以下の低分子成分を主体とする樹脂が適当であることを見出し、されにその性能の簡易判別法としてGPC曲線によるパターン分析による方法を提案した。

それらの一連の検討結果に基づいてコーリヤンボードを作製して、ボードの性状についても検討を加え、軽量で高い強度を有すること、木材より高い断熱性を有すること、および寸法安定性に優れていることなどのいくつかの特徴があることを明らかにした。しかしはくり強度や木ねじ保持力の向上など、さらに検討すべき課題があることについての指摘も行った。

コーリヤンボードは茎の繊維をあまり損なわずに自然のまま状態で利用している点は合板における木材の利用法と類似しているところであり、そのために合板に近い種々の特徴を有するボードを得ることができた。このように、本来その材料が持てる特徴を生かす方法を見出すことによって農産廃棄物を立派なリグノセルロース資源として有効に活用することが可能になると考える。

パガスボードのように廃棄物を細かく粉砕して利用するのではなく、コーリャンボードのように、廃棄物を可能なかぎり在るがままの形状で利用することによって、新しい機能を有する新素材としてのボードに生かすことができると考える。

このような考え方に立って農産廃棄物を有効に利用すると同時に、今後、アグロベースドボードとしての発展を期待する次第である。

#### 引用文献

- 1) W. Heller: Holz Roh Werkst., 38, 393 (1980)
- 2) C. Richter: Holz Roh Werkst., 51, 235 (1993)
- 3) C. Bochner: Holz Roh Werkst., 51, 319 (1993)
- 4) 特開昭63-107505、特開平1-280538、
- 5) F. Blackburn: "Sugar-cane", Longman Group Ltd., p340 (1984)
- 6) 広瀬 保: 「高梁放」 富山房、p170 (1943)
- 7) J. Y. Ryu, et. al.: Mokuzaï Gakkaishi, 37, 852 (1971)
- 8) 柘植盛男、宮林達也、田中誠也: 工化誌、74, 1896 (1971)
- 9) 富田文一郎: 「高分子分析ハンドブック」、朝倉書店、p574 (1985)
- 10) 梶田 熙: 「フェノール樹脂吸着によるパーティクルボードの材質の改善」  
文部省科学研究費一般C報告書、(1992)
- 11) 海老原徹: 「1993年度合板技術講習会テキスト」、日本木材加工技術協会合板部会、  
p52 (1993)

## 第9章 結 言

日本の合板工業の発展に伴って変化した接着剤への改善要求に答える努力の中から、難接着性木材に対する接着性改善への研究を行ってきた。

南洋材を原木として使用し、薄物合板から発展していった合板工業において、当初は、耐久性に優れた合板を製造するためにフェノール樹脂接着剤を導入すべく、種々の検討を行ってきた。その動きの中で、フェノール樹脂接着剤により接着した薄物合板の耐久性評価を実施してその接着耐久性を確認したが、同時に耐久性を高めるためには合板の表面処理が重要であることを認めることになった。

フェノール樹脂接着剤の優れた接着耐久性を認めたものの、アミノ系樹脂接着剤を使い慣れていた合板工業においては、工場設備上の問題もあってフェノール樹脂を使いこなすことができなかった。また、原木にカプール材が混入されるようになって、フェノール樹脂による接着不良が多数発生して、合板に対する信用問題にまで発展する気運になった。

そこで、フェノール樹脂接着剤なみの接着耐久性を有し、アミノ系樹脂なみの使いやすさを兼ね備え持つ接着剤への要求からフェノール・メラミン樹脂接着剤の研究を行い、フェノール樹脂に近い接着耐久性を有する接着剤の開発に成功した。

しかし、その接着剤の接着耐久性を種々の試験方法によって評価を行い、接着時の単板含水率を10%以下に抑えること、やや多い塗付量とすること、および熱圧時間を十分にとることなどの限定された接着条件下において接着する必要性があることを認めた。

この接着条件の検討過程において、接着剤の木材内部への浸透が接着の安定性に重要であることに気が付くと共に、この接着剤がカプール材などの接着がむづかしい木材への接着性に優れていることにも気が付いた。

接着剤の浸透性をコントロールすることによって接着性を改善するために、高含水率単板の接着に取り組み、ユリア樹脂接着剤においても、あらかじめ樹脂の縮合度を高めることによって高含水率単板に対する接着性が向上することを認めた。さらに、接着条件についても検討を加えて、接着剤の浸透を抑えるための条件を設定した。

また、その過程で防虫薬剤を接着剤に混入して合板の防虫処理を行うときに、高含水率単板を使用すると防虫剤が接着剤中に包埋されにくいことを見出した。

接着剤の木材内部への浸透性をコントロールすることの重要性は樹脂（ヤニ）を多量に含むクルイン材などの接着においても認められた。樹脂を多く含み、接着剤とのぬれが悪い木材の表面に接着剤を塗付したときに、接着層の水分が長い時間接着層に残留し、そのために熱圧時においても接着剤が高い流動性を維持していることが問題で、接着性の低下は接着剤の過浸透が大きな原因であることを指摘した。クルイン材などの木材に対しては、接着剤の木材内部への浸透を抑えるような接着条件を採ることにより、その接着性を改善できることを示した。

以前より接着が難しい材とされていたシナ材やカプル材についても、接着剤の浸透性を制御する方法によって接着性を改善するために、接着剤の配合について検討し、糊液配合時に充填剤を添加する方法が有効であることを示すと共に、合板工業界において接着が難しいといわれたクルイン材や針葉樹材に対する接着性改善の研究を進め、それらの難接着性木材の接着に適した接着剤の改良研究をも行った。

クルイン材のように樹脂（ヤニ）を含む木材に対しては、接着剤へ溶剤を少量添加することによって木材に対するぬれを改善できることを見出した。また、接着剤糊液に水に不溶性のタンパク質であるコーングルテンを配合することによって接着強度を増強することが可能になり、これらの方法によってクルイン材の接着性を改善できることを示した。

続いて、カプル材の接着に適するフェノール樹脂接着剤の研究を進めて、一部に低分子成分を含む樹脂がカプル材の接着によいことを確認し、またこのようなフェノール樹脂接着剤は、逆にダグラスファーなどの針葉樹材に対する接着性を低下させることを確認した。

さらに、カプル材への接着性がよいフェノール・メラミン樹脂接着剤についての検討を進め、この接着剤は針葉樹材に対しても接着性がよく、接着耐久性はフェノール樹脂接着剤に及ばないものの幅広い樹種に対して良好な接着性を有することを確認した。

最後に、環境保護の動きが活発になるにしたがって木材代替として農産産物の有効利用を考え、コーリヤン茎の利用について検討した。コーリヤン茎は表層にリックス層があり、接着が非常に困難である。また、心の部分には多孔性の髄があり、強い吸水性を有するので実用性のあるボードを得るためにも問題があった。

このような材料を利用するに際して、これまでの研究成果に基づいた接着性の改良研究

を進めると同時に材質の補強に関する研究を行った。

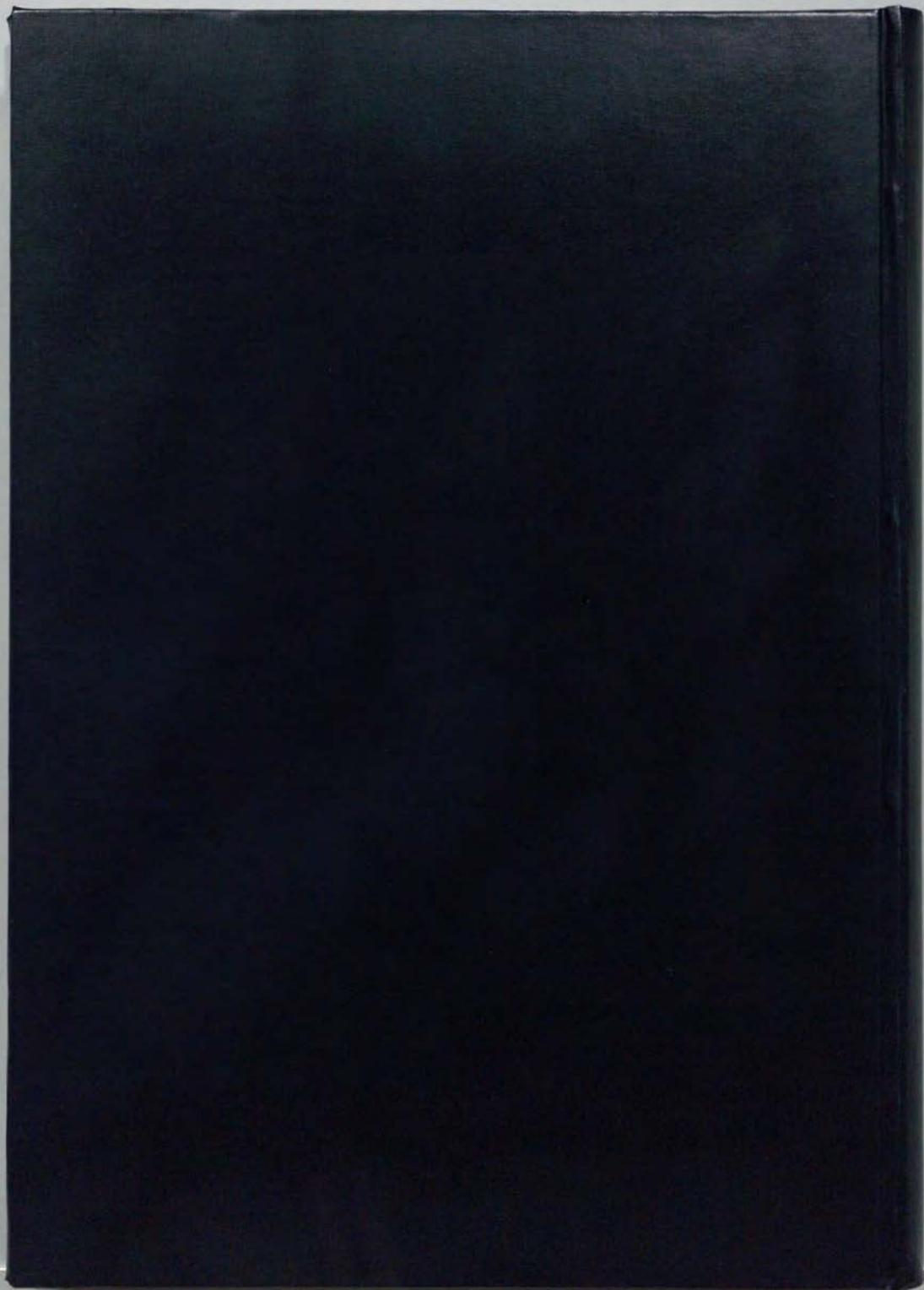
接着性の改良については、ワックスの存在によっても接着にあまり支障にならない接着剤の選択を行い、それにはイソシアネート系接着剤が適当である結果を得た。

また、コーリヤン茎の材質改良のためにフェノール樹脂初期縮合物を茎に含浸して利用することにした。この含浸用樹脂の補強効果について検討し、低分子成分を主体とする樹脂が適していることを示し、併せてGPCによる実用的な簡便判別法を提案した。

さらに、コーリヤン茎を使用して試作したボードの物性について調べ、軽量で高い強度を有すること、木材より優れた断熱性を有すること、および優れた寸法安定性を有するなどの特徴あるボードが得られることを示した。

難接着性木材の接着について考えるとき、接着剤あるいは接着層水分の浸透性が重要な要因になっていることである。その制御方法を接着剤の面から、あるいは接着条件の面から考えて行くことが基本であることを改めて確認する結果となった。

また この知見は、木材の替わりに農産廃棄物を利用する際にも同じように言えることであり、この知見に基づいて検討したコーリヤンボードは、将来のアグロベイスドボードの研究にとって有用な示唆を与えるものと期待するところである。





**Kodak Color Control Patches**

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black

**Kodak Gray Scale**

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19



© Kodak, 2007 TM Kodak