

# ユリア樹脂の接着耐久性に およぼす樹皮充填材の影響 (1)

井村 純夫\* 佐藤 光秋\*  
中村 史門\* 阿部 勲\*\*

ニホンカラマツ樹皮を熱処理後粉碎し、これをユリア樹脂接着剤の充填材として使用するためおこなった接着耐久性に関する試験の結果、小麦粉に比し優れた性能を示すことを確認した。

## まえがき

ユリア樹脂接着剤は、他の合成樹脂接着剤と比較して、価格の割に接着力が高く、また、使い易いなどの長所がある。しかし、接着剤としての欠点も多く、とくに考慮しなければならないものの一つとして、老化性の問題がある。すなわち、ユリア樹脂接着剤は硬化が完了した後においても、未反応のホルムアルデヒド、メチロール基、メチレン・エーテル結合などが残存し、分子間縮合、分子内縮合あるいは加水分解反応などが起り易い。そのため接着層の収縮度合が大きく、その程度に応じて大小の亀裂を生じ、接着力が低下するので、接着耐久性において、他の合成樹脂接着剤に比しとくに劣っている。このように接着耐久性を低下させる接着層の老化性は、接着層が厚くなるにしたがって、その欠点が助長されやすい。そのため接着操作で塗布むらが大きくなり易く、かつ十分な圧縮圧力を均一にかけられないため、部分的に厚い接着層を型成し易い家具、木工、集成材工場などでユリア樹脂接着剤を使用する場合は、とくに留意しなければならない性質である。

従来からユリア樹脂接着剤の耐老化性を向上する効果のあるものとして、酢酸ビニル樹脂エマルジョンのほかセルロシンなど繊維質物、血粉、フェノール、レゾルシン、フルフリル・アルコール等の配合が知られているが、繊維質に富み、フェノール性成分を含有する樹皮粉を充填材として配合することは、ユリア樹脂

接着剤の耐老化性を向上させる効果が期待できる。そこでニホンカラマツ樹皮粉を、塩安0~10%、175~200℃-30分の条件内で処理し、常温接着用ユリア樹脂接着剤に配合して、挽板接着に利用し、熱処理樹皮粉(以下樹皮粉と記す)の配合比、接着層の厚さと常態および耐久圧縮せん断接着力、木部破断率の効果を検討した。

## 1. 配合接着剤の固形分を一定にした場合

### 1.1 試験方法

#### 1.1.1 供試被着材

被着材には、圧縮せん断強度の比較的高いダケカンパ原木(末口径44cm、長さ2.6m)より採取した柱目板をもちいた。柱目挽きした材料は、含水率が12%前後になるまで乾燥したのち、機械糸で厚さを10mmに規制して100mm×200mmの寸法に鋸断し、温度25℃、湿度65%の恒温恒湿器中で調湿後、接着する前日に手鉋で被着材表面を仕上げて供試した。なお供試材の全乾比重0.67、気乾比重は0.71(含水率11.2%)

第1表 供試充填材の種類

充填材の種類	処理条件			備考
	塩安添加率(%)	温度(°C)	時間(分)	
樹皮粉A「塩安5%、175°C-30分」	5	175	30	林産試験場試作品
樹皮粉B「塩安5%、200°C-30分」	5	200	30	
樹皮粉C「塩安10%、175°C-30分」	10	175	30	
樹皮粉D「塩安0%、175°C-30分」	0	175	30	
小麦粉「ほたる印」				中央製粉KK製品

であった。

1.1.2 供試接着剤および充填材

供試接着剤は、常温接着用ユリア樹脂接着剤(商品名:ユーロイド50)であり、これの不揮発分は71.9%、pH8.7、粘度33.5ポイズ/25であった。

供試充填材は第1表のとおりで、小麦粉は樹皮粉と比較するためにもちいた。樹皮粉に塩安を添加してから熱処理したものは、当然ユリア樹脂接着剤の硬化剤となる塩安が残存している。したがって、本試験では残存塩安量を補正して製糊した。接着剤に配合する硬化剤の量によって硬化速度が異なり、また硬化樹脂の欠陥発生率は、硬化速度の影響もうけると推測される。とくに接着層が厚くなると接着強度にも関係してくると予想されるので、製造条件の異なる樹皮粉の性能を比較するためには、接着剤中の硬化剤量を一定にする

ことが良いと考えたからである。なお樹皮粉中の残存塩安相当量(第2表)は、塩安以外の無横態塩素も含めた値である。樹皮粉中の残存塩素量がユリア樹脂接着剤の硬化剤として、すべて同程度に作用することが確認されている<sup>1)</sup>。

1.1.3 配合割合

接着剤の配合割合は第3表のとおりである。接着層の厚さは0.3mm、0.5mmおよび1.0mmのアルミニウム棒を挿入して変化させた。なお充填材の性能は当然接着剤にふくまれる水分量と無関係とはいえないため、本実験では、固形分をほぼ一定(68~69%)になるよう配合した。硬化剤の量は樹皮粉中の残存塩安相当量を含めて1.00部になるようにしたが、残存塩安相当量が多いものは1.00部以上になった。

1.1.4 接着条件および圧縮せん断接着力測定法

接着層の厚さを規制しない場合は、第3表に示す配合接着剤を100g/m<sup>2</sup>づつ塗布した。また接着層の厚さを規制する場合は、第1図に示す形状のアルミニウム棒(0.3mm、0.5mmおよび1.0mm厚)を挽板間にはさみ、配合接着剤はアルミニウム棒のくりぬかれた部分に塗布し、繊維方向を平行にして圧縮した(写真1)。圧縮圧力はトルクレンチで10kg/cm<sup>2</sup>に規制したが、アルミニウム棒を入れた場合は、棒の部分に対し10kg/cm<sup>2</sup>に相当する全圧を加えた。これを温度25℃、関係湿度65%に調節した恒温恒湿器中に24時間静置し接着を行った。解圧後、同一温湿度条件で2日間調湿したのち、JIS K6801(ユリア樹脂木材接着剤)に準じて圧縮せん断接着力試験片を作り、写真2の治具を用い荷重速度1000kg/minで常態および耐久圧縮せん断接着力、ならびに木部破断率を測定した。

耐久圧縮せん断接着力は、試験片を温度70℃、関係湿度20%(平衡含水率約3%)の条件に8時間放置後、温度25℃、関係湿度65%(平衡含水率約12%)の条件に16時間放置する過程を、5回繰返したのち測定し

第2表 熱処理樹皮粉中の残存塩安相当量

樹皮粉の種類	残存塩素量 (%)	残存塩安相当量 (%)
A	2.29	3.45
B	1.37	2.07
C	4.60	6.94

第3表 配合割合

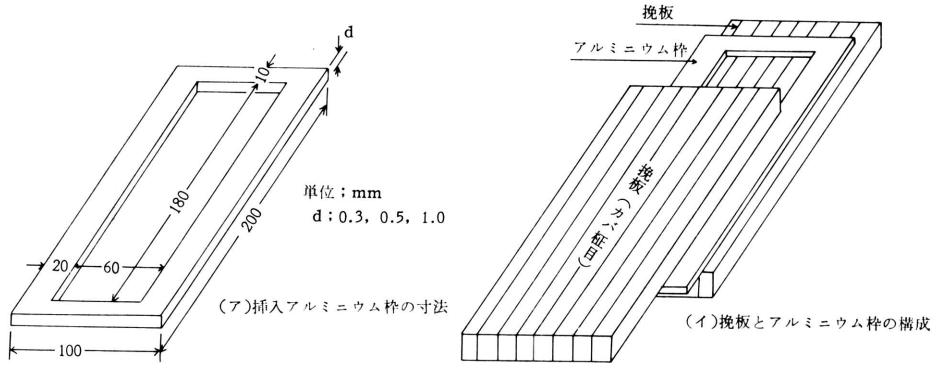
項目 充填材の種類	充填材配合量 (部)	硬化剤 (部)			配合水量 (部)	固形分* (%)
		残存塩安相当量	追加塩安量	計		
(なし)	0	0	1.00	1.00	4.0	69.4
A	10	0.35	0.65	1.00	9.4	68.8
	20	0.70	0.30	1.00	14.7	68.3
	30	1.05	0	1.05	20.0	68.0
B	10	0.21	0.79	1.00	9.2	68.9
	20	0.42	0.58	1.00	14.4	68.5
	30	0.63	0.37	1.00	19.6	68.2
C	20	1.38	0	1.38	15.0	68.1
D	20	0	1.00	1.00	14.0	68.8
小麦粉	10	0	1.00	1.00	9.0	69.1
	20	0	1.00	1.00	14.0	68.8
	30	0	1.00	1.00	19.0	68.6

\*固形分は計算値。

追加塩安は20%水溶液にして加えた(水溶液の水量は水として算出する)。

ユリア樹脂接着剤は100部として、それぞれ加えている。

ユリア樹脂の接着耐久性におよぼす樹皮充填材の影響(1)



第1図 アルミニウム棒と挽板

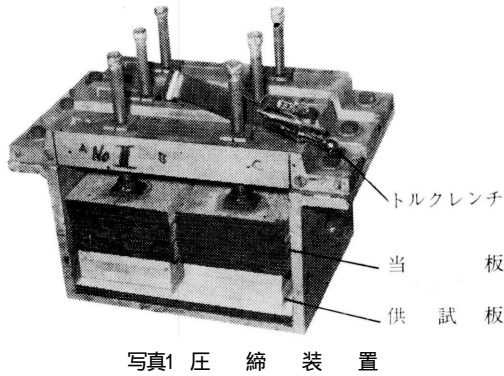


写真1 圧縮装置

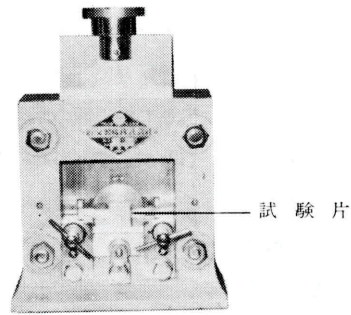


写真2 圧縮せん断試験器具

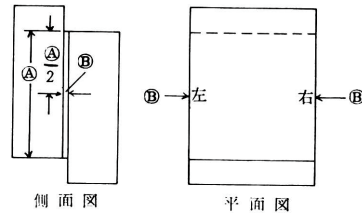
た。なお接着層の厚さは圧縮せん断接着力の測定をおこなう前に試験片(第2図)の側面中央部を左右2箇所30倍の実体顕微鏡(最小目盛1/1000mm)で測定した。各条件での実測接着層の厚さは8試験片の総平均値である。

1.2 試験結果

1.2.1 供試カバ材の圧縮せん断強度

供試材の常態と耐久圧縮せん断強度の違いを測定しておけば、以降の推測をしやすい。第4表に供試材の圧縮せん断強度値を示した。なお試験片の形状に

ついてはJIS K6801と同じである。含水率7.4%および13.4%のとき常態と耐久圧縮せん断強度にほとんど差が見られない。このことは本試験の耐久条件範囲内では材質



- Ⓐ 接着層の長さ
- Ⓑ 接着層および測定位置

第4表 供試カバ材の圧縮せん断強度

処 理	含水率 (%)		単位 (kg/cm <sup>2</sup> )		
	7.4	13.4	最低	平均	最高
常 態	130.3-157.6-175.6	* 110.4-133.5-148.8			
耐 久	* 135.8-159.7-182.7	113.4-130.9-147.8			

\* 枠内の数値は実測値を示している。  
その他の数値は含水率1%の増減により、圧縮せん断強度が3%減増する<sup>2)</sup>として算出した。

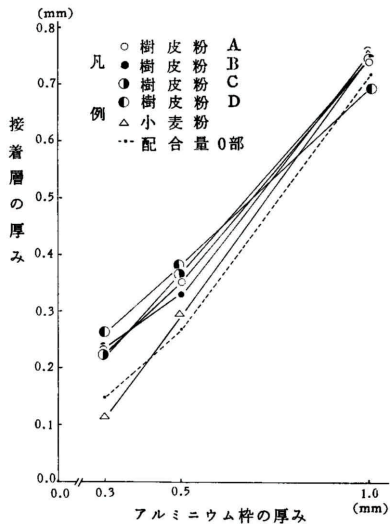
第5表 常態と耐久圧縮せん断強度の平均値の差の検定

含水率 (%)	7.4	13.4
結果値		
$t_0$	0.673	1.018
注) $t_0 < t, t(40, 0.01) = 2.074$		

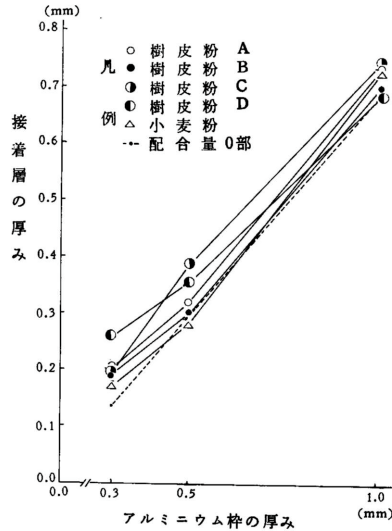
劣化がほとんど起ってないことが推測される。なお統計的にJIS Z9049によって検定した結果は第5表に示すとおり、危険率1%においても、 $t_0 < t$ が成立し「2つの平均値に差があるとはいえない。」という結果がでたので、耐久圧縮せん断接着力に供試材の劣化が影響をおよぼしているとはいえない。

1.2.2 アルミニウム枠と実測接着層の厚さ

アルミニウム枠をはさんだ場合は、枠の部分がカバ材にめり込むため、実際の接着層の厚さはアルミニウム枠より薄くなる。したがって充填材の性能は、当然実測した接着層の厚さとの関連性において判定する必要がある。第3図、第4図にアルミニウム枠の厚さと実測接着層の厚さとの関係の一部を示した。両者の間にほぼ直線関係が成立することが推測される。JIS K 9041にもつき相関係数を算出したところ、常態および耐久の平均値はそれぞれ .98および .96と非常に高い信頼度をもつことがわかった。なお、接着層の厚さの測定にはバラツキがあるので、厚さについての傾向



第3図 アルミニウム枠と接着層の平均厚との関係 (配合量20部の常態試験の場合)



第4図 アルミニウム枠と接着層の平均厚みとの関係 (配合量20部の耐久試験の場合)

はアルミニウム枠の厚さを表示して、接着力におよぼす影響を検討することにした。

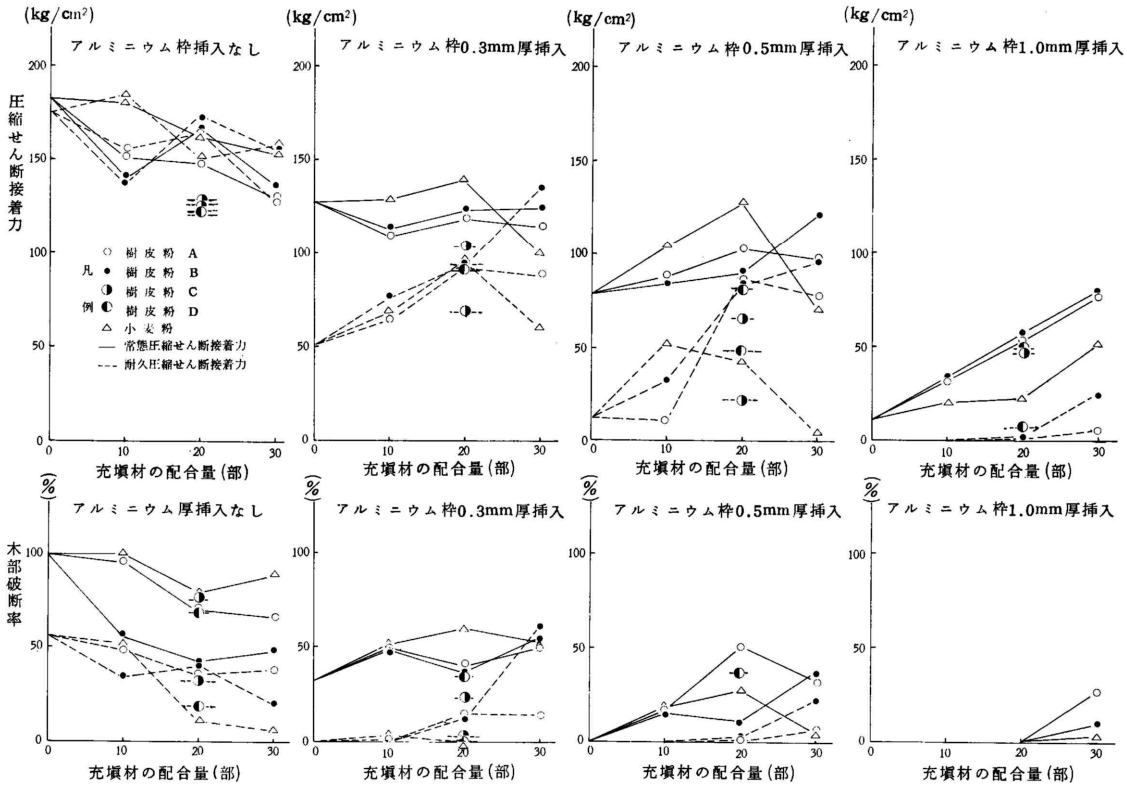
1.2.3 圧縮せん断接着力

圧縮せん断接着力および木部破断率の測定結果を第5図、第6図に示した。第6図はそれぞれの条件で実施した常態圧縮せん断接着力を100として、耐久圧縮せん断接着力がどの程度まで保っているかを図示したものである(木部破断率も同じ要領)。図中1.0mm厚のアルミニウム枠を入れた木部破断率の比率グラフが抜けているのは、耐久試験において測定値がゼロであったためである。

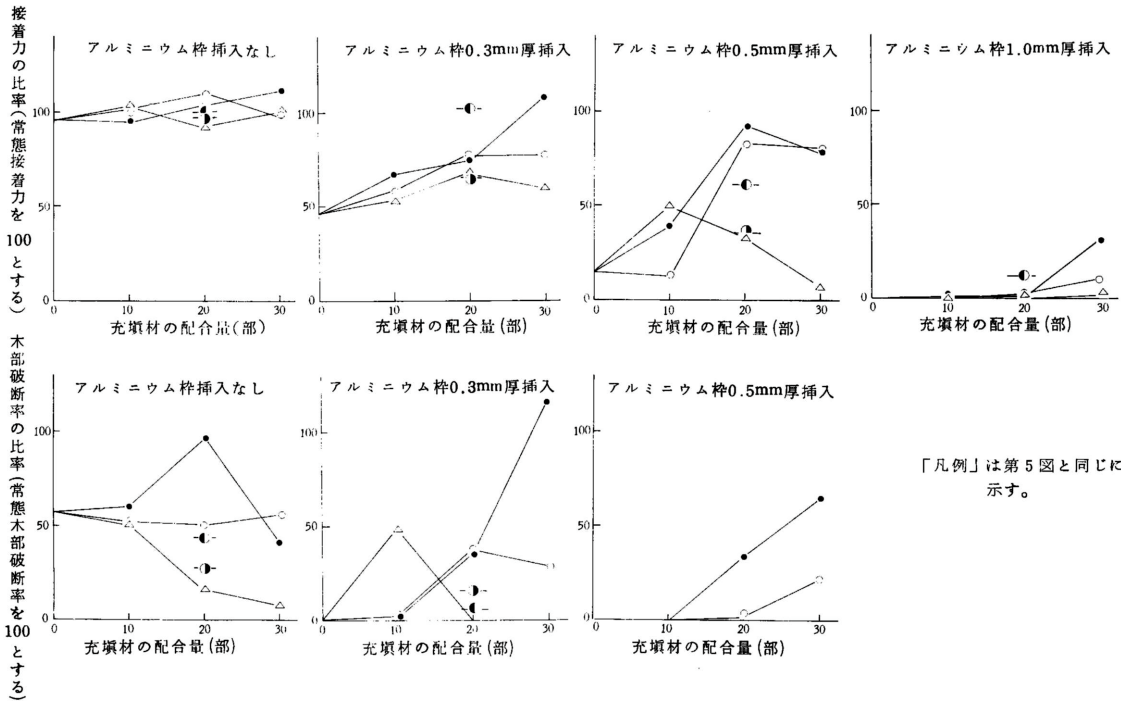
なお試験時の試験片含水率は、常態圧縮せん断接着力の場合 $12.4 \pm 1.0\%$ 、耐久圧縮せん断接着力の場合 $7.1 \pm 0.9\%$ であった。

アルミニウム枠を入れないで接着した場合、充填材配合量の増大にともない圧縮せん断接着力は、常態および耐久試験ともに多少のバラツキはあるが、樹皮粉、小麦粉いずれの場合も低下の傾向を示している。また木部破断率についても低下の傾向が認められる。接着力の比率グラフで、配合量が增大しても耐久接着力は、ほぼ保たれているが、木部破断率は、配合量が增大していくと低下割合のもっとも大きいのが小麦粉

ユリア樹脂の接着耐久性におよぼす樹皮充填材の影響(1)



第5図 接着層の厚み別充填材配合量と常態および耐久圧縮せん断接着力および木部破断率との関係



「凡例」は第5図と同じに示す。

第6図 接着層厚み別充填材配合量と接着力および木部破断率の比率との関係

である。これらのことから、充填材の配合量が増すにしたがい接着力は低下するが、とくに樹皮粉が小麦粉に比しておとるとはいわれない。なお常態強さが被着材であるカバ材目板の圧縮せん断強度より高い数値を示しているのは、

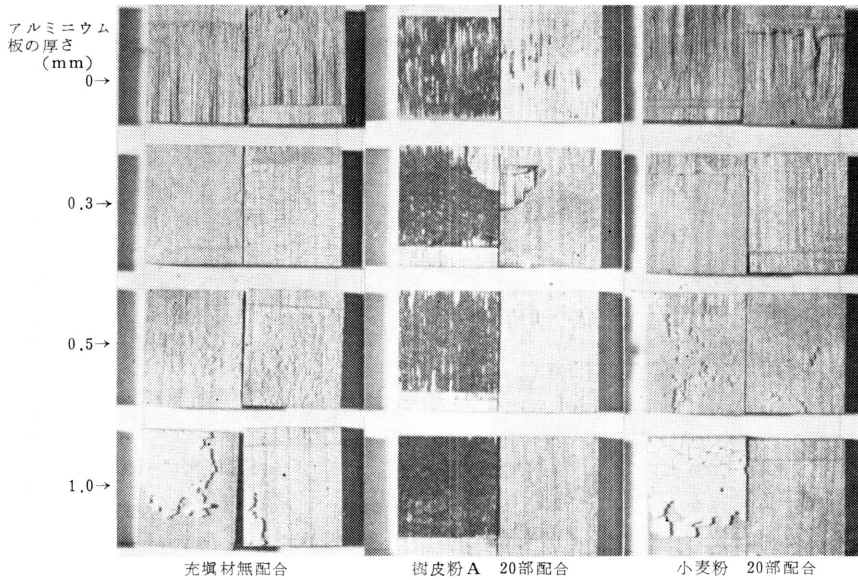


写真3 耐久試験後のはくり状態

第6表 熱処理樹皮成分の吸水率および膨潤率<sup>1)</sup>

処 理 条 件			吸 水 率 (%)	膨 潤 率 (%)
塩安添加率 (%)	温 度 (°C)	時 間 (分)		
0	175	30	140.5	22.4
5	175	30	107.8	7.2
5	200	30	56.6	4.5

破壊部のせん断弾性率の差異によるものでないかと推測される。

接着層の厚さを厚くしておこなった場合には、充填材の配合量を増すにしたがい、接着性能が向上していることがあきらかであり、その効果は耐久試験において、とくに樹皮粉は著しい。たとえば0.3mmのアルミニウム枠を入れた場合、充填材の種類および配合量によって、常態圧縮せん断接着力の低下はほとんど認められないが、乾湿くり返しによって判定した耐久試験結果によると、充填材無配合での接着力の比率が最も悪く、充填材の配合量が増すにつれて向上している。とくに樹皮粉「塩安5%、175 - 30分」の配合量30部などは、常態よりも高い値を示した。アルミニウム枠をさらに厚くしていくにしたがって、接着力の絶対値は低下するが、樹皮粉の配合量が増すにともない、常態接着力のみならず、耐久接着力の向上する効果はますます明らかとなっている。

樹皮粉「塩安10%、175 - 30分」と「塩安0%、175 - 30分」は、配合量20部のみについて試験したが、前者は、残存塩安相当量が他の樹皮粉より多く（第2表）、ゲル化時間が速い<sup>1)</sup>。また後者を第3表の配合割合で製糊したとき、他の樹皮粉より粘度が高かった。この粘度が他より高くなったのは、第6表に挙げたように他の樹皮粉よりも吸水率、および膨潤率が高いことが原因ではないかと推測される。

写真3は、試験片の破断状態を示したものであるが、接着層の亀裂、カバ材面からの剥離状態、乾湿くり返しによる接着層劣化の状態がよくわかる。

### 1.3 考 察

熱処理樹皮粉をユリア樹脂接着剤に対し、固形分が一定になるように配合した場合の常態および耐久圧縮せん断接着力について接着層の厚みおよび配合量との関連において検討した。その結果、配合量が増すにしたがって小麦粉よりも熱処理した樹皮粉が、接着耐久性の低減が少なく、空隙充填効果が大きかった。なお、「塩安5%、175 - 200 - 30分」の熱処理樹皮粉が、ユリア樹脂接着剤の充填材として適当であることがわかった。（以下次号）

- \*木材部 接着科 -  
\*\*三重大学助教授

(原稿受理 49.2.6)