

同一樹種積層材と異樹種積層材の接着性能の比較

本谷 由紀 中野 隆人
長谷川 祐*¹ 平林 靖

Comparison of Adhesive Properties of Laminated Woods Composed of Softwood and Hardwood

Yuki MOTOTANI Takato NAKANO
Yuu HASEGAWA*¹ Yasushi HIRABAYASHI

Adhesive properties of various laminated woods were compared on the basis of the adhesive test on Japanese Agricultural Standard (JAS) and the shear strength test after wet/dry cyclic treatment, whose combination were composed of softwood/softwood, hardwood/hardwood, and softwood/hardwood. They were bonded with resorcinol-formaldehyde resin (RF) and aqueous polymer solution-isocyanate resin (API).

The dry strength and water resistance tests on JAS were related to those of the constituent species except for larch. Moreover, wet/dry cyclic treatment had a much greater effect on specimens with RF than on those with API. The reason was mainly that the durability depended upon the mechanical properties of the adhesives: API resin is softer at room temperature than RF.

Keywords: laminated wood, adhesive properties, wet/dry cyclic treatment,

Resorcinol-formaldehyde resin, aqueous polymer solution-isocyanate.

積層材, 接着性能, 乾湿繰り返し処理, レゾルシノール接着剤, 水性高分子イソシアネート接着剤.

同一樹種積層材と異樹種積層材の接着性能を日本農林規格 (JAS) に基づいた接着試験と乾湿繰り返し処理後のせん断強度試験から比較検討した。これらの積層材はレゾルシノール (RF) および水性高分子イソシアネート (API) 接着剤で接着した。

常態接着性能と耐水接着性能は、一部を除き構成樹種の接着性能に依存した。乾湿繰り返し処理は、RFで接着した積層材がAPIで接着した積層材よりも影響が大であった。これらは主に接着剤の性質による：APIは、RFよりも室温状態では柔軟性がある。

1. 緒言

木材資源の有効利用に対する社会的要請は、優良大径材の減少と環境に関する議論の高まりの中で近年ますます厳しい状況である。この対策のひとつとして、積層材としての木材利用がある。積層材は構成要素に関する自由度が高いという点で木材の効率

的利用に適した材料である。しかし、積層材の多くは同一樹種の構成であり異樹種の積層材の利用はほとんど行われていない。とりわけ、広葉樹と針葉樹との組み合わせによる積層材の製造事例や接着性能に関する報告は少ない^{1,2)}。広葉樹と針葉樹とをラミナとして混用することは比重差が著しいため実用上

困難であるが、中層に針葉樹を用い、外層に広葉樹を用いた積層材など、異樹種積層材には多様な可能性が期待できる。

積層材の接着性能はその用途を規定する重要な因子である。特に木材の表面性状と比重は接着性能に影響を及ぼす因子となる。異樹種積層材は構成樹種の物性が互いに著しく異なるため接着面への材の影響が同一樹種の場合と比較して大きいと考えられる。

上記観点から、本報告では代表的な接着剤であるレゾルシノール接着剤と水性高分子イソシアネート接着剤を用いてJAS規格に準じた試験を行い、同一樹種積層材と異樹種積層材との接着性能を比較する。更に、接着剤の力学特性に対する乾湿繰り返し履歴の影響を調べ両積層材への影響を考察する。なお、本報告の詳細は木材学会誌において報告した³⁾。

2. 実験方法

2.1 供試材と接着条件

供試材は、広葉樹としてミズナラ (*Quercus mirgolica* Fischer var. *grosserrata* Rehder et Wilson.), マカンバ (*Betula maximowicziana* Regel.), カツラ (*Cercidipylum japonicum* Sieb. et Zucc.), 針葉樹としてトドマツ (*Abies sachalinensis* Mast.), カラマツ (*Larix leptolepis* Gord.) を用いた。供試材の気乾比重はミズナラ: 0.79, マカンバ: 0.70, カツラ: 0.51, カラマツ: 0.55, トドマツ: 0.41であった。

接着剤は市販のレゾルシノール系接着剤 (RF) と、水性高分子イソシアネート系接着剤 (API) をそのまま用いた。同一樹種同士、あるいは針葉樹と広葉樹との異樹種を接着面が榎目面となるように2プライ積層し、所定の試験に供した。

2.2 接着性能の評価

積層材の常態接着性能は、JAS規格に準じたブロックせん断試験により評価した。なお、異樹種積層材の試験では針葉樹側に荷重を与えて測定した。耐水接着性能はJAS規格に準じた浸せきはく離、煮沸はく離試験により評価した。

木材の膨潤収縮による接着層への影響を調べるために、乾湿繰り返し処理を行った。処理の手順は以下のとおりである。RH93%, 20°Cに5~7日間放置し加湿処理とした。次に、室温で1日風乾した後30

°Cで1日減圧乾燥を行い乾燥処理とした。これを1サイクルとし計5サイクルの処理を施した。乾湿繰り返し処理の接着性能への影響は、ブロックせん断試験によって評価した。

2.3 接着剤の粘弾性測定

乾湿繰り返し処理における乾燥処理の影響を調べるためにTBA (Torsional Braid Analysis) 測定を行った。測定は、レスカ社製の自由減衰粘弾性測定装置 (1100-AD) を用いた。測定条件は真空下、昇温速度2°C/min, 温度範囲約-120から150°Cである。測定試料は、常態ブロックせん断試験と同じ調湿条件の試料と、調湿後真空乾燥処理を施した試料の2種類である。

3. 結果と考察

3.1 常態接着性能の比較

第1表に常態せん断試験の結果を示す。同一樹種積層材の結果を概観すると、RFとAPIの両者には類似した傾向が認められる。すなわち、ミズナラを除いて接着強度は木材の比重に依存した⁴⁾。

ミズナラ積層材の強度低下に関しては幾つかの要因が考えられる。1つは大径の道管の存在による過度の接着剤浸透に基づく接着強度低下である。とりわけ、本実験で用いたRF接着剤は針葉樹との接着を考慮して接着剤の粘度を幾分低くして使用しており、その影響が考えられる。次に挙げられるのは接着強さと木材の比重との関係である。接着強さは木材の比重が0.8程度まではその比重に比例して高くなるが0.8を超えると接着強さはほぼ一定になるか逆に低下するという報告⁵⁻⁷⁾がある。今回用いたミズナラは比重が0.79と高く、この高比重の影響で木破率が低下し接着強さも低下したことも考えられる。

同一樹種積層材と比較して、異樹種積層材の結果は次のとおりであった。接着性能は構成樹種のせん断強度のほぼ中間の値を示した。山岸ら²⁾は、異なる南洋材をRFで接着した場合の一部に同様の傾向を見いだしている。しかし、第1表の最下段に示したように、針葉樹側にカラマツを用いRFで接着した異樹種積層材接着強度は、構成樹種の接着強度より明らかに低い値を示している。これはカラマツ同士をRFで接着した積層材の強度が高いためである。こ

第1表 種々の積層材の常態ブロックせん断強度と木破率

Table 1. Shear strength and wood failure under dry condition for laminated woods with various species.

積層条件 Laminated system	レゾルシノール接着剤 Resorcinol-formaldehyde resins		水性高分子イソシアネート接着剤 Aqueous polymer solution- isocyanate resins	
	せん断強度 Shear strength (kgf/cm ²)	木破率 Wood failure (%)	せん断強度 Shear strength (kgf/cm ²)	木破率 Wood failure (%)
同一樹種 Hardwood/hardwood, softwood/softwood				
ミズナラ / ミズナラ Japanese oak/Japanese oak	106	0	141	40
マカンバ / マカンバ Japanese red birch/Japanese red birch	161	40	160	50
カツラ / カツラ Katsura/Katsura	144	100	128	100
トドマツ / トドマツ Saghalin fir/ Saghalin fir	86	100	89	100
カラマツ / カラマツ Japanese larch/Japanese larch	115	70	100	80
異樹種 Softwood/hardwood				
トドマツ / ミズナラ Saghalin fir/Japanese oak	90	80	101	100
// / マカンバ Saghalin fir/Japanese red birch	95	100	99	100
// / カツラ Saghalin fir/Katsura	96	100	98	100
カラマツ / ミズナラ Japanese larch/Japanese oak	99	10	130	80
// / マカンバ Japanese larch/Japanese red birch	107	90	133	80
// / カツラ Japanese larch/Katsura	110	70	105	90

れに関連して、井村ら⁸⁾は、カラマツの成分とRFとの親和性の関与を指摘した。RF接着のカラマツ/広葉樹積層材の接着強度に関する特異性は、井村らの指摘した要因が関与していることが考えられる。

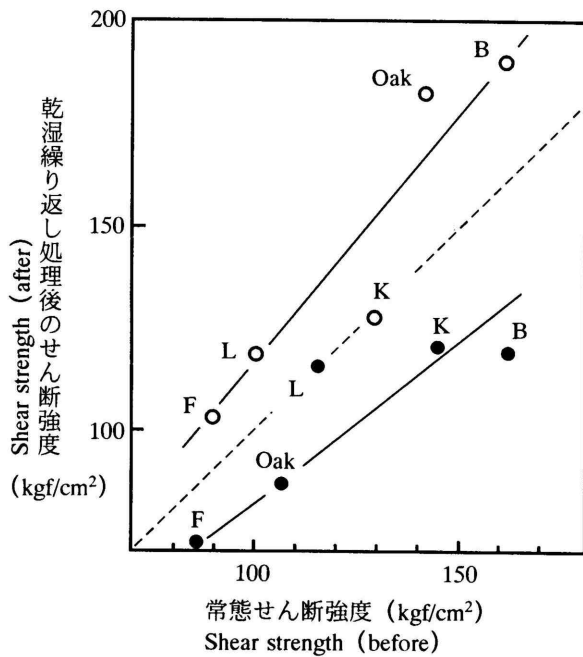
3.2 耐水接着性能の比較

RFで接着した試片はミズナラを用いた積層材を除き浸せきはく離、煮沸はく離共に高い耐水性能を示した。他方、APIは本試験に用いた仕様が造作用であったため、煮沸はく離試験で高い耐水性能を有しなかったが、浸せきはく離試験では十分な耐水性能を有した。

異樹種積層材の耐水性能はJAS規格に基づいて比較する限り同一樹種と比較して大きな違いは認められなかった。

3.3 乾湿繰り返し履歴の影響

第1図に同一樹種積層材に関する乾湿繰り返しの影響を示す。図中の破線は乾湿繰り返しで強度に変化が生じなかった場合の位置を示す。RFとAPIはいずれも右上がりの傾向を示し、常態せん断強度が低いほど劣化せん断強度が低くなる傾向を示した。しかし、RFは処理によって強度が低下するのに対してAPIは増大した。異樹種積層材の結果を第2図に示す。異樹種積層材は、針葉樹側にトドマツを用いた条件を除き、同一樹種積層材同様に右上がりの傾向が認められた。API積層材のプロットは、同一樹種積層材の結果と比較して、より破線に近い。このことは異樹種積層材では乾湿繰り返し履歴の影響が同一樹種積層材と比較して大きいことを示す。とりわけ、針葉樹側にトドマツを用いた異樹種積層材ではプロットが破線の下方に位置する。

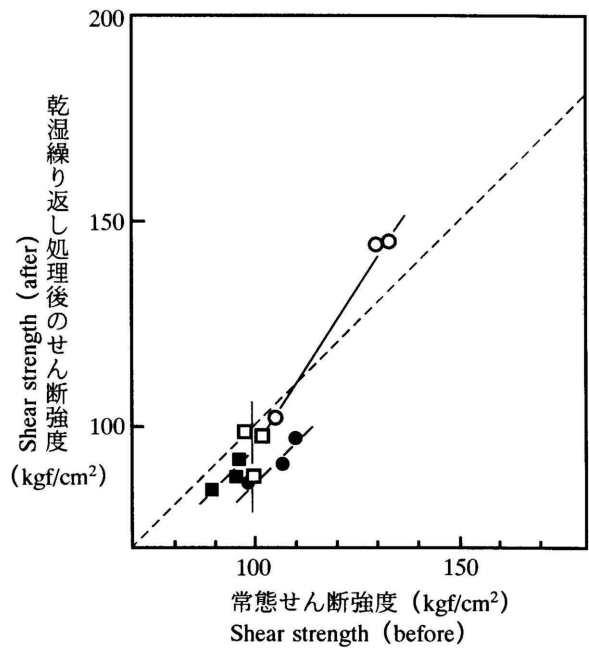


第1図 常態せん断強度と乾湿繰り返し処理後のせん断強度との関係(同一樹種積層材)

Fig.1. Relationships between shear strength before and after wet-dry cyclic treatment for laminated woods made of hardwood and softwood.

凡例：○：水性高分子イソシアネート接着剤，●：レゾルシノール接着剤，Oak：ミズナラ，B：マカンバ，K：カツラ，L：カラマツ，F：トドマツ

Legend：○：Laminated woods bonded with aqueous polymer solution-isocyanate resin，●：Laminated woods bonded with resorcinol-formaldehyde resin，Oak：Japanese oak，B：Japanese red birch，K：Katsura，L：Japanese larch，F：Saghalin fir.



第2図 常態せん断強度と乾湿繰り返し処理後のせん断強度との関係(異樹種積層材)

Fig.2. Relationships between shear strength before and after wet-dry cyclic treatment for laminated woods made of hardwood/softwood samples.

凡例：○：水性高分子イソシアネート カラマツ/広葉樹^{a)}

□：水性高分子イソシアネート トドマツ/広葉樹

●：レゾルシノール カラマツ/広葉樹

○：レゾルシノール トドマツ/広葉樹

注：a)：ミズナラ，マカンバ，カツラ

Legend：○：Japanese larch/hardwood^{a)} bonded with aqueous solution-isocyanate resin，□：Saghalin fir/hard wood bonded with aqueous polymer solution-isocyanate resin，●：Japanese larch/hardwood bonded with resorcinol-formaldehyde resin，○：Saghalin fir/hardwood bonded with resorcinol-formaldehyde resin.

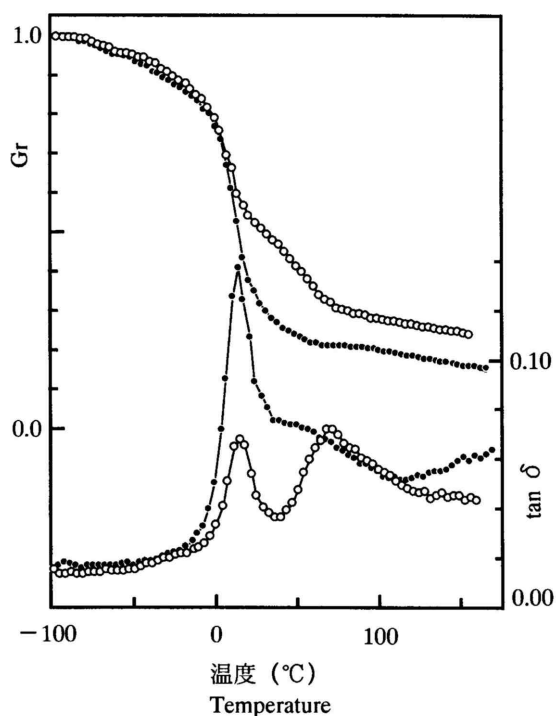
Note：a)：Japanese oak, Japanese red birch, Katsura

第1図，第2図に示した乾湿繰り返し処理の影響に関して，接着剤の性質と構成樹種に基づき考察する。

APIの十分な硬化には水分除去が必要であることが知られている⁹⁾。本実験においては，乾湿繰り返し処理工程での真空乾燥処理によって水分が十分に除去されたために十分な硬化が行われ，強度が増大したと推察される。これを確認するために，常圧調湿試料と真空乾燥試料の粘弾性測定を行った。結果を第3図に示す。常圧調湿試料は20の相対的に大きい分散と70付近のシオルダー分散の2つの分散を示した。真空乾燥後は明瞭な2つの分散(20, 70)が現れている。これは可塑剤として作用していた水分の除去によって低温側の分散の強度が低下し，狭化したためであると考えられる。したがってAPI

で接着した試料における乾湿繰り返し処理による強度の増大は，処理中の接着剤の水分の除去によるものと判断される。比較のために，RFについても同様に行ったがAPIと比較すると乾湿繰り返しによる強度の影響は少なかった。

乾湿繰り返し処理の接着強度への影響は接着剤の柔軟性に依存することと考えられる。これに関連しては，Ebewele, Riverらの詳細な報告がある^{10-12,13)}。彼らは，種々の化学修飾を施した尿素樹脂接着剤の構造決定を行うとともに¹⁰⁾，接着強度を検討し，接着剤の構造と真空乾燥/水浸せき処理の影響との関係を明らかにしている^{9,11,12)}。報告によれば，真空乾



第3図 水性高分子イソシアネート接着剤の相対剛性率(Gr)とtan δの温度依存性

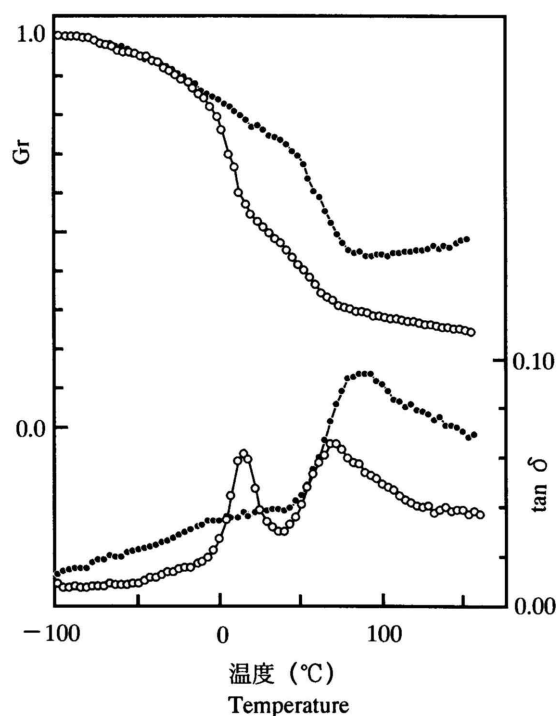
Fig.3. Temperature dependence of relative rigidity (Gr) and tan δ for aqueous polymer solution-isocyanate resin after various treatments.

凡例： ○ : 湿度65%, 7日間調湿,
● : 30℃一昼夜真空乾燥

Legend : ○ : Conditioning at 65% RH for 7days,
● : Vacuumdrying at 30℃ overnight.

乾燥/水浸せき処理の10サイクル処理は70℃, 80% RH40日間の処理よりも接着層にダメージを与える。真空乾燥/水浸せきサイクルの増大に伴い接着強度は低下し, 低下の程度は接着剤の構造に依存する。真空乾燥/水浸せき処理に対する安定した接着性能とは, 接着剤の化学修飾に用いた試薬自体が高いフレキシビリティを有すること, さらには化学修飾の反応速度が遅いため分子鎖がランダム網目構造を形成し内部応力を発生しない構造形態をとるために分子鎖のフレキシビリティが高くなることであると指摘している。

そこで, 本実験で用いた接着剤の力学的性質を調べた。第4図にAPIとRFの真空乾燥試料についての粘弾性挙動を示す。APIは, 先に述べたように20℃と70℃付近に2つの分散を示す。他方, RFの主分散は100℃付近に幅広い分散を示す。2つの分散を比較するとAPIはRFよりもはるかに低い温度領域に1つ



第4図 30℃, 一昼夜真空乾燥処理後の接着剤の相対剛性率(Gr)とtan δの温度依存性

Fig.4. Temperature dependence of relative rigidity (Gr) and tan δ for various resins after vacuumdrying at 30℃, overnight.

凡例： ○ : 水性高分子イソシアネート接着剤,
● : レゾルシノール接着剤

Legend : ○ : aqueous polymer solution-isocyanate resin,
● : resorcinol-formaldehyde resin.

の主分散を持っている。しかもその分散位置は室温付近である。このことは, RFが, APIに比べて, 相対的に剛直な接着層を形成することを示す。またAPIは20℃で運動を始める組成を含むため常温でのフレキシビリティは高いことを示す。以上のRFとAPIの粘弾性挙動の比較から, 乾湿繰り返しの影響がAPIに比べてRFの方が顕著であったことは, 以下のように説明できる。RFの分子鎖は室温ではフレキシビリティが低いいため木材の膨潤収縮に追従できず亀裂を生じる。これが乾湿サイクルの進行とともに発達し接着強度が低下する。他方, APIでは, 低温側の分散に対応する成分の存在により室温においても膨潤収縮に追従でき, 接着層への影響が少ない。

以上述べたように第1図, 第2図それぞれにおいては, APIで接着した積層材はRFで積層した場合と比較して乾湿繰り返しの影響が少ないと判断される。しかし, APIで接着した異樹種積層材は同一樹種積

層材に比べプロットが下降し破線寄りとなり、RFで接着した異樹種積層材は同一樹種積層材に比べプロットが上昇し、破線寄りとなる。つまり、異樹種積層材の乾湿繰り返しによる影響は同一樹種と比較した場合、RFとAPIで異なることを示す。このことは、乾湿繰り返しの影響が、単に膨潤収縮という基材の動きに対する接着剤の追従の問題だけではないことを示唆している。異樹種積層材においては、積層した2種の木材の膨潤速度が異なるために接着層と木材界面に発生する応力の方向が同一樹種とは異なり、より複雑な応力が発生すると考えられる。さらには、水分自体の影響も加味する必要があるかもしれない。異樹種積層材のそれぞれの樹種と接着剤との界面においては、構成樹種の水分拡散係数が異なるため含水率が同じではないと考えられるからである。以上の推察は本実験だけでは確定できないが、異樹種積層材では乾湿繰り返しに伴う膨潤収縮への接着剤の追従の問題と構成木材の水に対する性質との複合的な性質が接着層へのダメージに関与していると考えられる。

文 献

- 1) 唐沢仁志：木材工業，42巻479号，p. 70-72(1986)。
- 2) 山岸祥恭，本間芳博：同上，27巻308号，p. 542-546(1972)。
- 3) 本谷由紀，中野隆人，長谷川柘，平林 靖：木材

- 学会誌，42巻2号，p. 140-148(1996)。
- 4) 小西 信：“木材の接着”，日本木材加工技術協会，1982，P. 45-82。
- 5) Freeman H. A. : *Forest Products J.*, Vol. 9, No. 1, 451-458(1959)。
- 6) 作野友康，後藤輝男：島根大学農学部研究報告，4巻，p. 103-109(1970)。
- 7) S. Chow ; K. S. Chunsi : 木材学会誌，25巻2号，p. 125-131(1979)。
- 8) 井村純夫，森屋和美，峯村伸哉：林産試験場月報，No. 373，p. 11-17(1983)。
- 9) 滝 欽二，水町 浩，山岸祥恭：木材学会誌，24巻4号，p. 237-242(1978)。
- 10) Ebewele, R. O. ; River, B. H. ; Myers, G. E. ; Koutsky, J. A. : *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 43, p. 1483-1490(1991)。
- 11) Ebewele, R. O. ; Myers, G. E. ; River, B. H. ; Koutsky, J. A. : *ibid.*, Vol. 47, p. 2997-3012(1991)。
- 12) Ebewele, R. O. ; River, B. H. ; Myers, G. E. : *ibid.*, Vol. 49, p. 229-245(1993)。
- 13) River, B. H. ; Ebewele, R. O. ; Myers, G. E. : *Holz als Roh-und Werkstoff*, Vol. 52, p. 179-184(1994)。

—性能部 接着塗装科—
—*1 利用部 化学加工科—
(原稿受理：1996. 4. 19)