

木材接着に関する研究 (第1報)

熱帯産木材の接着性について(1)

後藤 輝男[※]・作野 友康[※]・往西 弘次[※]

Teruo GOTO[※], Tomoyasu SAKUNO[※] and Hirotsugu ONISHI[※]

Studies on the Wood Gluing I

On the Gluability of Tropical Woods (Part 1)

は し が き

現今木材工業において熱帯産木材は各方面に多量に使用されている。ところがこれらの材はその諸性質が十分検討されていないために、利用にあたって種々の問題が発生している。特に合板工業やパーティクルボード工業において、これらの利用に際して接着性を明らかにすることは最も重要な問題の一つである。

そこで本研究においては18種の熱帯産材について比重、濡れ、pH および抽出率と接着性との関係を検討した。

なお今後これらの物理化学的因子の影響とともに解剖学的な諸性質との関係についても検討する予定である。さらに本報に引続いて他の多くの熱帯産木材についても上記諸因子と接着性の関係を明らかにする予定である。

本研究のために試材を提供していただいた朝日特殊合板株式会社および内外木材工業株式会社に感謝の意を表します。(本報告の要旨は第16回日本木材学会大会で発表した)

I. 実験材料および方法

供試材として Table 1 に示すような18種の熱帯産木材を用いた。

I-1 接着力試験

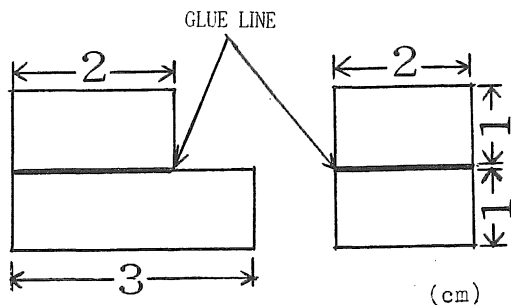


Fig. 1 Form and dimension of the shear test specimen.

各材の木理通直、無欠点部分から10×10×1.5cmの大きさの板を採取し、片面(接着面)は手鉋仕上げをした。これらの板を含水率約10%になるように調湿したのち同一樹種の板を2枚づつ集成接着した。

接着剤はいずれも市販の一般木工用尿素樹脂、フェノール樹脂接着剤(常温硬化型)およびポリ酢酸ビニル

Table 1 The 18 tropical wood species used in this experiment.

No.	Common name	Botanical name	Specific gravity
1	ROSE WOOD	Dalbergia latifolia	0.80
2	ZEBRA WOOD	Microberinia blazzavilenis A. CHEV.	0.79
3	APITONG	Dipterocarpus grandiflorus B.	0.72
4	MATOA	Pometia pinata FOREST	0.71
5	KWAO	Olea cuspidata WALL.	0.70
6	MAKA	Shorea assamica DYER.	0.70
7	MANSONIA	Mansonia altissima A. CHEV.	0.69
8	TEAK	Tectona grandis LINN.	0.69
9	KAPOR (KAPUR)	Dryobalanops aromatica G. N. F.	0.69
10	SEPETIRE	Pseudosindora paiustris SYM.	0.66
11	LEOUE	Hexalobas crispiflorus A. RICH.	0.64
12	WALNUT	Juglance nigra LINN.	0.64
13	MONKEY-POD	Lecythis ollaria LINN.	0.60
14	SPINARL	Anisoptera thurifera	0.60
15	MAKORE	Mimusops heckelii HUCH.	0.58
16	HAWAIIAN-CORE	—	0.45
17	MANGGASINORO	Shorea philippinensis	0.44
18	RED LAUAN	Shorea negrosensis F.	0.41

ジョンの3種類を用いた。接着条件は塗布量 180 g/m^2 で片面塗布、圧縮力 10 kg/cm^2 、圧縮時間24時間、硬化温度 25°C とした。

接着した各ブロックから Fig. 1 に示す試験片を採取した。

これらの試験片の半数は再び含水率約10%になるように調湿したのち常態接着力試験を行った。他の半数は乾湿繰返し暴露 (70°C 、関係湿度20%で8時間、続いて 27°C 、関係湿度65%で16時間暴露の条件を4回繰返し)後に接着力試験を行った。接着力は Fig. 1 に示す試片によりブロックせん断接着力試験法で試験を行った。

I-2 濡れの測定

濡れの測定は木粉による毛管上昇法で Bodig⁽¹⁾ の報告において用いられている方法で行った。各材の無欠点部分から削片を採取し、これを粉砕し20~40メッシュの木

粉にした。この木粉を減圧乾燥で恒量に達するまで乾燥したのち内径約 0.45 cm 、高さ約 60 cm の目盛付ガラス管(ガラス管の下部は100メッシュの金網底の付いた高さ約 1.5 cm の金属円筒でガラス管中の木粉を保持)中に約 50 cm 高さにつめる。この場合木粉を 10 cm 高さにつめる毎に 2.5 cm 高さから3回ガラス管を実験台上で軽くたたく。

木粉をつめたガラス管を蒸溜水(水温 20°C)中に 1.5 cm 深さ浸漬して木粉の水分吸収高を測定した。水分吸収高を最初の3時間は10分毎に、次の3~6時間は30分毎に、そして6~32時間は1時間毎に測定した。さらに48時間後、56時間後そして72時間後にそれぞれ測定した。

測定した水分吸収高より種々の因子の影響を修正して各材の濡れを判定した。すなわち次式により修正水分吸収高: C.W.A.H. (Corrected Water Absorption Height) を計算した。

Table 2 Glue-joint strength of the 18 tropical wood species examined by dry¹⁾ and cycle²⁾ test.

Species	Bond quantity											
	Dry test ¹⁾						Cycle test ²⁾					
	Urea		Phenol		Polyvinyl acetate emulsion		Urea		Phenol		Polyvinyl acetate emulsion	
	B. S. kg/ cm ²	W. F. %	B. S. kg/ cm ²	W. F. %	B. S. kg/ cm ²	W. F. %	B. S. kg/ cm ²	W. F. %	B. S. kg/ cm ²	W. F. %	B. S. kg/ cm ²	W. F. %
ROSE WOOD	181	72	167	21	158	3	182	92	170	63	188	27
ZEBRA WOOD	192	73	140	2	156	6	156	77	140	6	214	4
APITONG	144	97	145	84	150	100	138	78	140	53	—	—
MATOA	156	95	130	72	147	39	144	53	114	67	146	74
KWAO	176	91	133	72	120	0	143	32	139	77	134	10
MAKA	166	77	—	—	173	6	165	46	119	35	179	9
MANSONIA	171	98	178	84	143	6	164	82	149	87	199	23
TEAK	109	78	126	10	77	0	73	0	128	28	129	55
KAPOR	146	80	122	11	158	83	140	56	115	5	145	8
SEPETIRE	151	98	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
LEOUE	130	96	131	61	124	25	121	66	125	64	138	66
WALNUT	160	92	155	39	124	4	158	61	141	8	155	84
MONKEYPOD	123	84	114	7	108	6	135	28	92	3	136	37
SPINARL	111	89	117	6	87	4	114	22	116	21	136	54
MACORE	138	94	142	50	112	9	127	100	85	19	115	69
HAWAIIANCORE	110	58	—	—	91	9	—	—	—	—	114	87
MANGGASINORO	89	99	85	86	94	79	86	97	94	89	110	100
RED LAUAN	91	68	98	81	88	92	95	89	78	25	100	90

1) The test was carried out at 10—12% moisture content.

2) After cycling 4 times through a drying and wetting process, which consist of 8 hours drying at 70°C and 20 percent relative humidity and then 16 hours exposure at 27°C and 65 percent relative humidity.

3) B. S. : Glue-joint strength

4) W. F. : Wood failure

5) Each value is the average of 12 specimens.

$$C.W.A.H. = h_1 b = h_1 \frac{d^2 \pi h_2}{4WS} \quad (mm)$$

b = bulk factor

h_1 = 実測水分吸収高 (mm)

h_2 = ガラス管中の木粉高さ (cm)

d = ガラス管の内径 (cm)

W = 木粉の絶乾重量 (g)

S = 水の比容積 (cm^3/g)

$\pi = 3.1415$

I-3 pHの測定

濡れの測定に用いたと同様の木粉を用いた。木粉3gをビーカーに取り、これに蒸留水50gを添加してよく攪拌し溶脱を容易にするために1時間アスピレーターで吸引排気を行った。このままで24時間放置後懸濁液を濾過しガラス電極pHメーターで濾過液のpHを測定した。

I-4 抽出率の測定

前述と同様の方法で40~60メッシュの木粉を採取し、この木粉を用いて冷水、温水およびエーテル抽出を常法にしたがって行い各々の抽出率を次式によって求めた。

$$\text{抽出率}(\%) = \frac{\text{抽出物}(g)}{\text{乾燥試料}(g)} \times 100$$

$$\text{抽出物}(g) = \text{乾燥試料}(g) - \text{抽出残渣}(g)$$

(乾燥試料は60°Cで6時間真空乾燥した木粉)

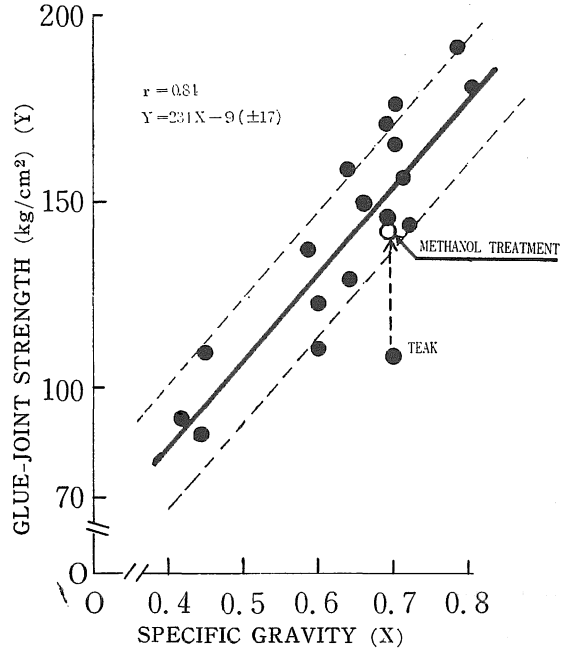


Fig. 2 Correlation between specific gravity and glue-joint strength. The specimen glued with urea formaldehyde resin adhesive.

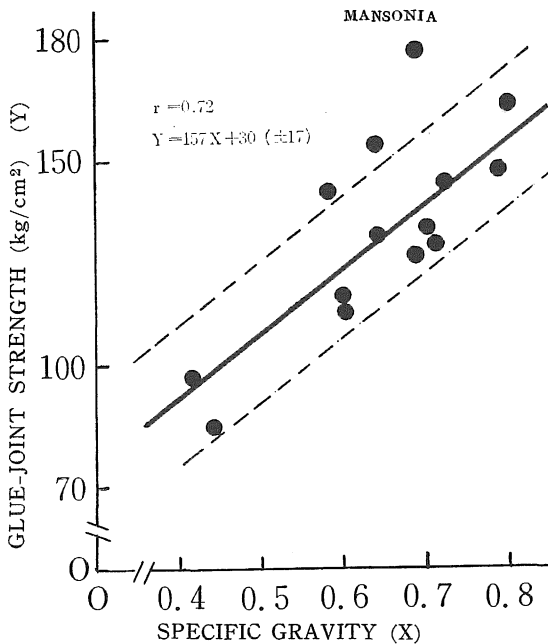


Fig. 3 Correlation between specific gravity and glue-joint strength. The specimens glued with phenol formaldehyde resin adhesive.

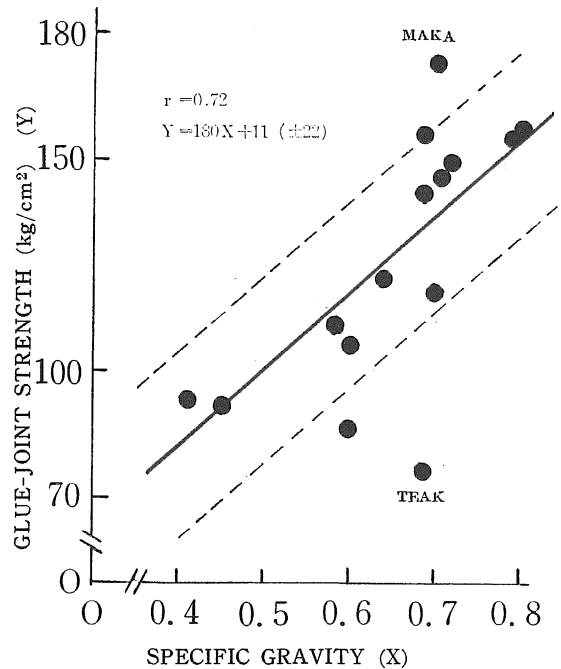


Fig. 4 Correlation between specific gravity and glue-joint strength. The specimens glued with polyvinyl acetate emulsion.

II. 実験結果および考察

II-1 接着力

18種の熱帯産材の常態接着力試験および乾湿繰返し試験の結果を Table 2に示す。

1) 常態接着力

一般に木材樹種と常態接着力との関係は比重によりは

Table 3 Wettability, pH and percentage of extract of the 18 tropical woods.

Species	Wettability (C. W. A. H.) mm.	pH	Percentage of extract (%)		
			Cold water	Hot water	Ether
ROSE WOOD	390	5.41	4.03	12.93	5.01
ZEBRA WOOD	591	6.15	2.54	3.00	0.25
APITONG	305	5.50	5.60	4.60	1.00
MATOA	614	6.30	3.30	4.00	0.28
KWAO	776	4.85	4.80	8.30	0.22
MAKA	620	6.20	7.20	15.40	0.60
MANSONIA	772	5.60	1.88	4.01	0.66
TEAK	366	5.02	2.51	3.60	5.08
KAPOR	74	4.10	2.50	8.20	0.98
SEPETIRE	942	5.20	—	—	—
LEOUE	46	4.99	2.84	4.96	1.25
WALNUT	699	4.82	7.62	7.94	0.51
MONKEKPOD	839	5.92	6.55	9.59	0.80
SPINARL	75	5.23	2.45	5.42	1.14
MAKORE	1006	5.93	3.50	4.57	0.44
HAWAIIANCORE	1251	5.60	3.66	7.83	0.50
MANGGASINORO	1043	4.97	1.94	3.22	0.51
RED LAUAN	1205	5.30	1.30	10.20	0.61

C. W. A. H. : Corrected Water-Absorption Height

ぼ定まり、比重が増加するとともに常態接着力はほぼ直線的に増加する。本実験においても常態接着力は比重の高い材ほど高い値を示した。

そこで比重と接着力との関係について相関分析を行い回帰直線式を求めた。その結果を Fig. 2~4に示す。

これによって比重と接着力との間に非常に高い相関々係があり前述のことが明らかに立証される。

2) 乾湿繰返し後の接着力

尿素樹脂およびフェノール樹脂接着剤で接着した試片では接着力が常態時より低下した場合が多い。特に尿素樹脂接着剤の場合に顕著であるが、これは本実験の暴露条件によって接着層が劣化したためであると考ええる。またフェノール樹脂接着剤においては若干接着力の低下を見たが、これは強酸硬化剤使用による木材—接着界面の劣化によるものと考ええる。

これに対してポリ酢酸ビニルエマルジョンにおいては接着力の低下はなかった。これは本接着剤が熱可塑性のため高温 (70°C) に暴露した場合、接着層は軟化するが試験時には常温にもどしているために接着層は再びもとの状態になったものと考ええる。

II-2 濡れ, pH, 抽出率

各材の濡れ, pH および抽出率の測定結果は総括的に Table 3に示す。

1) 濡れ

本実験において測定した濡れ (C.W.A.H.) の時間経過に伴う変化状態を Fig. 5に示す。

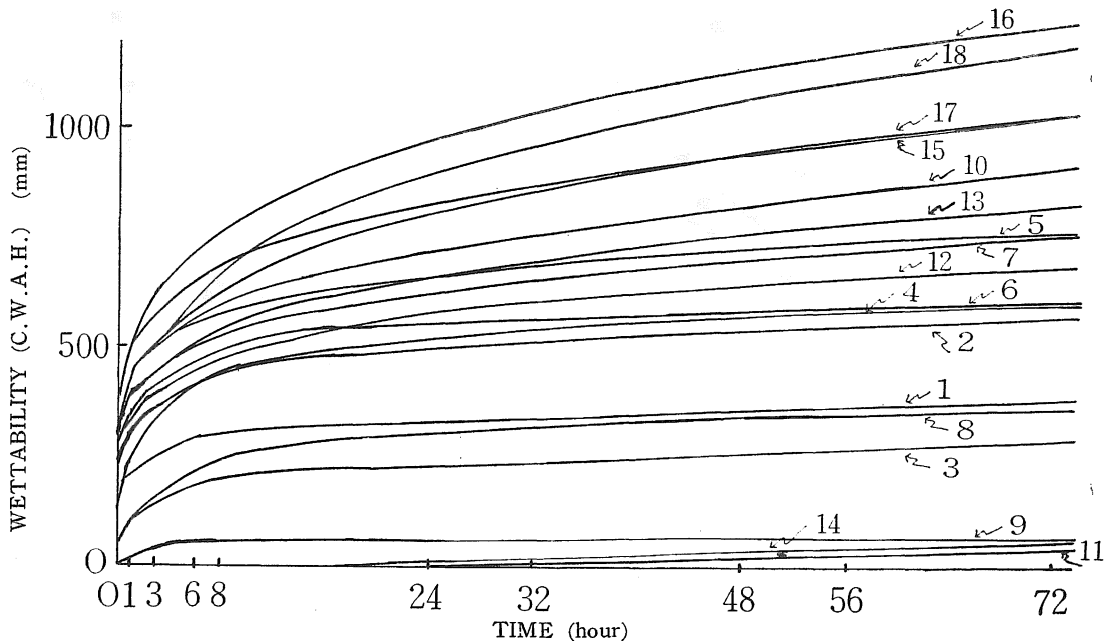


Fig. 5 Wettability (C.W.A.H.) of 18 tropical wood species.

1: Rose Wood, 2: Zebra wood, 3: Apitong, 4: Matoa, 5: Kwao, 6: Maka, 7: Mansonia, 8: Teak, 9: Kapor, 10: Sepetire, 11: Leoue, 12: Walnut, 13: Monkeypod, 14: Spinarl, 15: Makore, 16: Hawaiiancore, 17: Manggasinoro, 18: Red lauan.

この図から明らかなように水分吸収速度は樹種によって非常に差異がある。そのため最も濡れやすい Hawaiian-core では72時間後の C.W.A.H. が1251mmに達しているのに対して、最も濡れにくい Leoue ではわずか46mmでありその差異は1000mm以上である。

木材接着においては濡れが重要な因子である。ところがその濡れとは液体が木材に接した瞬間の濡れを特に問題とする。しかし実際にこの瞬間の濡れを測定することは困難である。そこで本実験においては水分吸収の状態が一応安定する72時間後の水分吸収高（C.W.A.H.）によって濡れを判定した。

ところで木材の濡れは木材の物理、化学的因子に影響される。本実験では比重との関係および抽出物の影響について検討した。抽出物の影響については後述する。

比重と濡れとの関係については相関分析を行った結果一部の樹種を除くと比重と C.W.A.H. との相関係数は $r = -0.92$ と非常に高い逆相関々係を示す。すなわち比重の高い材ほど C.W.A.H. は低い。なお Teak, Apitong, Kapor, Leoue, Spinarl の5樹種は前述の傾向とは異なる濡れの挙動を示す。これらの5樹種は抽出率も他の樹種より比較的多いことが本実験で明らかになったのでこの影響があると考え、各樹種の比重と濡れの関係は Fig. 6 に示す。

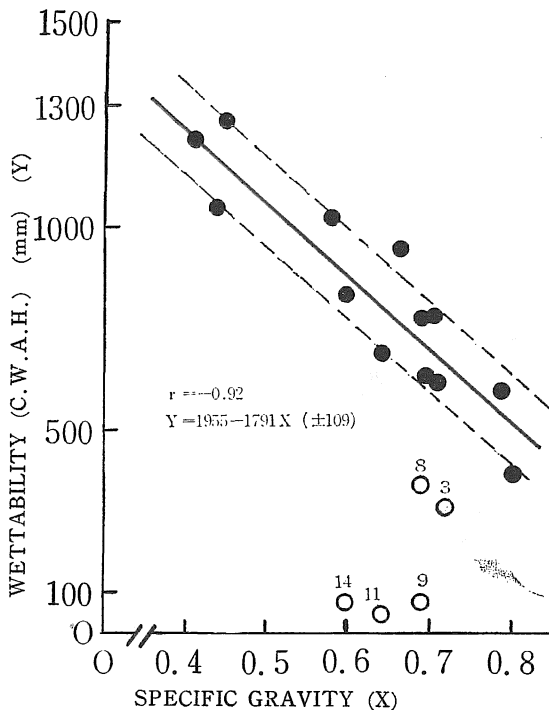


Fig. 6 Correlation between specific gravity and wettability (C.W.A.H.).
3: Apitong, 8: Teak, 9: Kapor,
11: Leoue, 14: Spinarl

一方濡れと接着力との関係について検討したところ両者の間には明確な関係は認められない。しかし前述のように比重の影響が大きいため、これを除くために比重のほぼ同じ材について両者の関係をみると尿素樹脂接着剤で接着した場合には Fig. 7 に示すように濡れやすい材の方が接着力が大であることがわかった。他の接着剤の場合もほぼこの傾向は認められるがあまり顕著ではない。

FREEMAN⁽²⁾の報告ではアメリカ産木材を尿素樹脂で接着した場合、比重0.8以下の木材において接着力におよぼす樹種に関する因子の影響は比重>濡れ>pHの順であるとのべている。

2) pH

各材の pH 値は Table 3 に示す。

pH 値と接着力との関係については一定の傾向はみられなかった。しかし木材の pH は接着剤の硬化速度に影響をおよぼすことは考えられる。すなわち本実験において測定した各材の pH は4.41~6.30の範囲にわたっており、このような pH の差異が接着剤の硬化作用（硬化速度や硬化温度など）に影響するものと思えるが、最終的な接着力にはあまり顕著な影響がないものと思われる。

各種木材の pH については後藤らの報告があり、さらに研究を進めている。そこでこれらの研究結果とともに接着性の問題を検討すれば一層接着性への影響が解明されるであろう。

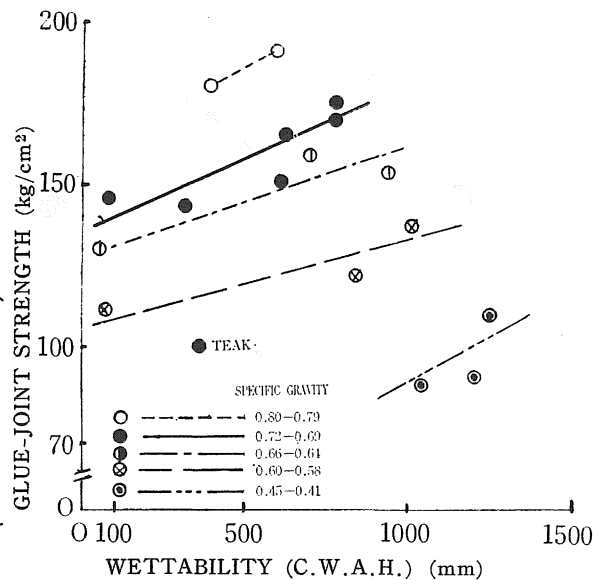


Fig. 7 Relationship between glue-joint strength and wettability (C.W.A.H.).
Adhesive: Urea formaldehyde resin
The effect of specific gravity were excluded.

3) 抽出率

各材の冷水、温水およびエーテル抽出による抽出率は Table 3 に示す。

各々の異った抽出方法によって木材中の種々の成分が抽出される。この抽出物が接着性（特に接着層の剛性率）に影響をおよぼすことが考えられる。そこで抽出率と接着力との関係について検討した。

冷水抽出率と温水抽出率はいずれも接着力との間に一定の関係は認められなかった。しかしエーテル抽出率においては比重の因子を除いて比重のほぼ等しい材では抽出率の多い方が接着力は低くなる傾向を示す。特に尿素樹脂接着剤で接着した場合には Fig. 8 に示すようにこの傾向が明らかである。他の接着剤の場合はこの傾向はあまり顕著でない。

すなわち同一比重材ではエーテル抽出率の大きい材は濡れが悪く接着力を低下させることになる。このことから抽出率が多くて濡れの悪い材は表面（接着面）の濡れをよくすれば接着力を向上させることが出来るものと考えられる。

本実験においてエーテル抽出率が最も高く、同一比重の他の材に比べて接着力および木破率が低く、材の表面

にロウ状成分がみられる Teak 材について接着剤塗布前に材の表面をメタノール (99.8%) で表面処理を行い、尿素樹脂接着剤で接着した。そしてこの接着力を測定したところ無処理材 (96kg/cm^2) より約 50% の接着力 (144kg/cm^2) の上昇が認められて表面処理が有効な方法であることがわかった。(Fig. 2 参照) 表面処理の効果についてはリグナムバイタ材について力性ソーダ液によって表面を処理し接着力を向上させたという TROUP⁽³⁾ の報告がある。

なおこれらの抽出物がどのような成分であるかは抽出物の分析を行わねば明らかでない。そこでその物質を解明し接着性におよぼす影響を検討すれば両者の関係は一層明確にされ接着性を向上させる方法が考えられるであろう。

III. 結 論

熱帯産木材18樹種について比重、濡れ、pH および抽出率と接着性との関係を検討したところ次の結論が得られた。

- 1) 常態接着力 (Y) と比重 (X) とは高度の相関関係があり比重の増加とともに接着力は増大する。

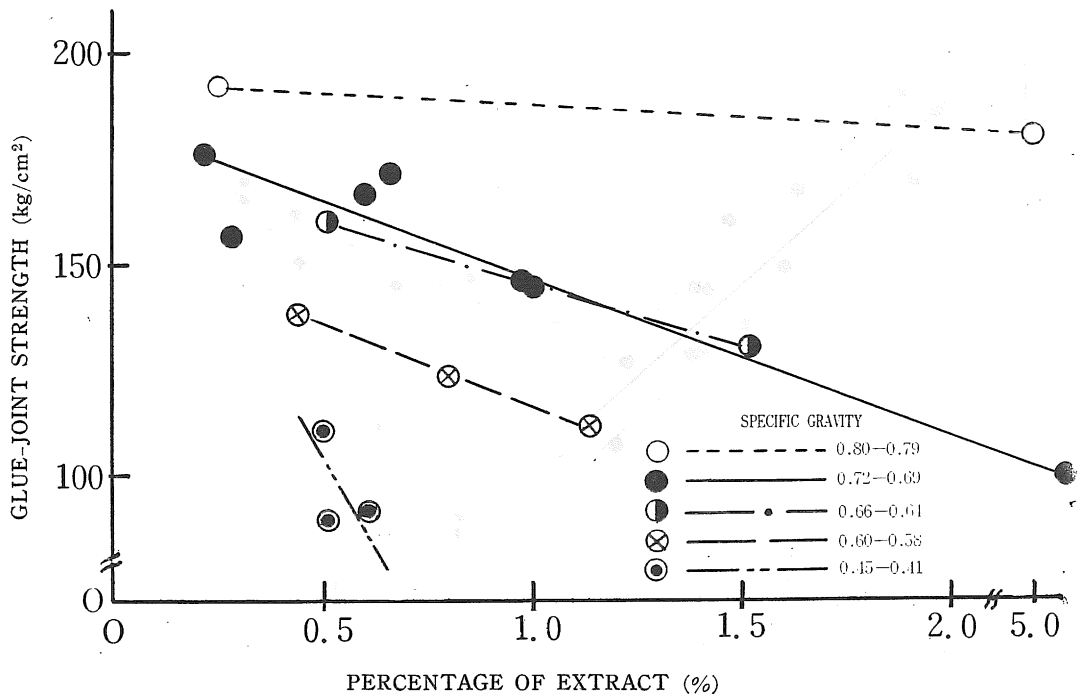


Fig. 8 Relationship between glue-joint strength and percentage of extract in the ether extraction. Adhesive: Urea formaldehyde resin. The effect of specific gravity were excluded.

接着剤名	相関係数	回帰直線式
尿素	$r=0.84$	$Y=234X-9$
フェノール	$r=0.72$	$Y=157X+30$
酢酸ビニル	$r=0.72$	$Y=180X+11$

- 2) 乾湿繰返し後の接着力は尿素樹脂接着剤ではその低下が大きかった。またフェノール樹脂接着剤でも多少の低下が認められた。一方ポリ酢酸ビニルエマルジョンではほとんど変化がなかった。
- 3) 材の濡れと比重との間には高度の逆相関々係 ($r = -0.92$) があり比重の増加とともに濡れ (C.W.A.H.) は減少する。なお Teak, Apitong, Spinarl, Kapor, および Leoue の5樹種は他の因子の影響で挙動を異にする。
- 4) 比重のほぼ同じ材では濡れのよい材ほど高い接着力を示した。
- 5) pH と接着力との間には有意な関係はない。
- 6) 冷水抽出率および温水抽出率は接着力に影響しなかった。しかしエーテル抽出率については比重のほぼ同

じ材の間ではエーテル抽出率の大きい材ほど接着力は低下する。

結局、接着力に最も影響するのは比重である。そして濡れやエーテル抽出率がこれに次ぐ。一方 pH, 冷水および温水抽出率と接着力との関係ははっきりした傾向が認められなかった。

参 考 文 献

1. BODIG, J. : F. P. J. 12 : 265—270, 1962
2. FREEMAN, H. A. : F. P. J. 9 : 451—458, 1959
3. TROOP, B. S. and WANGAARD, F. F. : Yale Univ. School of For. Tech. Report No. 4 : 1950
4. 後藤輝男・往西弘次：島根農大研報 15(A) : 76—84, 1967
5. NARAYANAMURTI, D., GUPTA, R. C. and VERMA, G. M. : Holzforschung und Holzverwertung 14 : 82—85, 1962

Summary

In these experiments, the effect of specific gravity, wettability, pH and percentage of the extract on the gluability of the 18 tropical woods was discussed.

For the test of gluability, the 18 tropical woods were glued with urea formaldehyde (UF), pheno lformaldehyde (PF) resin adhesive and polyvinyl acetate emulsion (PVAc). Dry test and drying-wetting cycle test were carried out for glued woods.

The wettability for each wood was determined by the method of capillary rise. The values of the corrected water absorption height (C.W.A.H.) were calculated by the equation showing in Table 3 for the actual reading water absorption height each hour.

The pH of wood was determined with a glass electrode pH meter on the mixture of three grams wood flour and 50 grams of distilled water.

The percentage of extract was determined by the extracting method with cold water, hot water and ether.

The results obtained are shown in Table 2 and 3.

The following conclusions may be drawn from these experimental results.

- 1) It was recognized the high degree of correlation between glue-joint strength (Y) and specific gravity (X). The glue-joint strength increased along with the increase of specific gravity. (Fig. 2-4)

Adhesive	Coefficient of correlation	Equation of regression line
UF	$r=0.84$	$Y=234X-9$
PF	$r=0.72$	$Y=157X+30$
PVAc	$r=0.72$	$Y=180X+11$

- 2) The glue-joint strength was deteriorated for the specimens glued with UF, but it was unchanged for the specimens glued with PVAc in consequence of the drying-wetting cycle test.

- 3) It was recognized the high degree of reverse correlation between wettability (C.W.A.H.) and specific gravity. (coefficient of correlation $r = -0.92$) The values of C.W.A.H. increased

with the decrease of specific gravity. (Fig. 6)

4) The glue-joint strength increased with the increase of C.W.A.H., when the effects of specific gravity were excluded. (Fig. 7)

5) The relationship between the glue-joint strength and pH was not significant.

6) The relationship between the glue-joint strength and the percentage of extract either by cold water or by hot water was not significant. But the glue-joint strength increase with the decrease of percentage of extract in the ether extraction, when the effect of the specific gravity were excluded. (Fig. 8)

The specific gravity had more important effect on the glue-joint strength, followed by the wettability (C.W.A.H.).

The value of pH and percentage of extract had less important effect on the glue-joint strength.