

# 第17回木質ボード・木質複合材料シンポジウム [ I ]

(社)日本木材加工技術協会関西支部

第17回木質ボード・木質複合材料シンポジウムが平成13年3月15日～16日にかけて、京都大学木質科学研究所において開催された。内容は、接着剤の最近の動向、新しい木質系材料の開発、機械装置・プラントの紹介である。講演会場の隣には、関西支部関連企業の展示コーナーが設けられ、最近の商品等について、パネル説明が行われた。昨年からはじめたこの企画は、今年も大変好評で、昼食時や休憩時に多くの人で賑わった。

主な講演内容は、以下の通り。

## 第1日目 3月15日

### Session I : 接着剤の最近の動向

1. The development, standardization and use of cold setting melamine based adhesives for load bearing timber structures (glulam) in Europe.

(ヨーロッパにおける構造用集成材用メラミン系冷圧接着剤の開発と規格化並びにその利用)

Casco Products 社 Niclas Wallin 氏

ヨーロッパでは、10年以上に渡り常温硬化型のメラミン・ユリアホルムアルデヒド接着剤 (MUF) やメラミン・ホルムアルデヒド接着剤 (MF) を使用して構造用集成材を製造している。この接着システムは、1987年にドイツのオット・グラフ研究所 (FMPA) で構造用集成材の接着剤として認められた。また、ドイツ規格 DIN68141 :

1969によって認証された。現在のヨーロッパでは、構造用集成材に使用される接着剤の60%近くがMFであり、1999年にMFを用いて製造された構造用集成材は1,000,000㎡に達し、11,000トンの樹脂が使用されている。1992年以前におけるヨーロッパでの集成材用接着剤の規格は、イギリス国家規格 (BS), アメリカ材料試験協会 (ASTM), ドイツ規格協会 (DIN) を用いてきた。1992年以降になると、EUにより欧州統一規格 (EN) 301:1992やEN302:1992が施行され、現在ではEU加盟国を初め、ヨーロッパ各国でこの規格に基づき集成材を製造している。このEN301には、耐力を負担する木質構造用フェノール系、アミノ系接着剤の分類と性能要求に関する事項が記載されており、EN302ではその試験方法に関する事項が記載されている。また、ヨーロッパでは、メーカーが製造する接着剤ごとに許可が必要であり、当社では5種類のMUFを申請して承認を得ている。一方、集成材の製造は、EN386:1995「集成材性能要求事項および最低製造要求事項」とその関連規格に規定されている。使用される接着剤は、EN301/302の要求事項を満たすと同時に、ノルウェー木材工学研究所 (NTI) やFMPAなどの認証機関が行う試験で認証されなければならない。EN386では、集成材の使用環境条件によって、屋内用、保護された屋外用、完全屋外暴露用の3種類に区分されている。ユリア樹脂 (UF) は屋内用でしか使用出来ないが、MF, MUF, レゾルシノール樹脂 (RF), ポリウレタン樹脂 (PU) などは、試験に合格して認証されると全ての区分で使用が可能となる。また、EN386では、EN391「集成材・接着層のはく離試験」やEN392「集成材・接着層のせん断試験」での接着層の品質試験に関する規格についても言及している。



写真1 シンポジウム風景

木質構造用接着剤としての認証を受ける機関には、NTIとFMFAの2つがある。NTIは北欧諸国とフランスを対象としており、EN386の要求事項によりEN301/302に準拠して試験を行っている。接着剤が試験に合格すると、工場で実際に集成材を製造し、EN391Bに準拠してはく離試験が行われる。この試験に合格すると、その接着剤は評価リスト（observation list）に掲載されて集成材メーカーの使用が可能になる。その後、さらに試験を行って結果が十分なものであれば、その接着剤は正規リスト（ordinary list）に掲載される。FMFAはドイツの研究機関であり、その認証はドイツ建設当局の国家規格書（NAD）を基準とし、EN301/302で必要とされる以上の試験が要求されている。集成材の製造に関する規格はDIN1052であり、そこで使用される接着剤はEN301/302に加え、DIN68141:1995に合格しなければならない。このDIN68141では、ポットライフ、塗布量、開放堆積時間、pH、プレス時間の測定などを要求している。また、MUFでは、集成材を製造後、一定期間に渡って経時的にはく離試験を行うなど、厳しい試験が課せられている。

ヨーロッパでは、MFによる含浸木材ラミナの接着が認められている。EN386では接着前のラミナの含水率範囲を11~18%としている。CCA処理木材では、含水率が規定の範囲であれば接着に問題はない。アルカリによる含浸保存処理では、接着剤の硬化が遅延し、接着強さも低下すると考えられる。個々の保存剤に対して使用される接着剤については、認証機関において、その含浸ラミナで製造した集成材をEN302.2に準拠して試験を行い、認証を得なければならない。一方、接着後の集成材への含浸も認められているが、ヨーロッパでは極めて希である。

現在使用されているMFのほとんどが液状/液状システムである。通常、MFはギ酸を含んだ硬化剤を加えることにより硬化する。硬化剤のpHは1~2であるが、接着剤と硬化剤の混合物のpHは4~4.5となる。接着剤と硬化剤は、自動ミキサーで混合され、スプレッダーからラミナに塗布される。接着剤は、硬化剤を混合した時点から硬化が始まるので、ポットライフに注意しなければ

ならない。通常、ポットライフは40~90分であるが、製造現場の温度が高いときはさらに制限される。最近、我々は接着剤と硬化剤をラミナに別々に塗布する分離型MUFシステムの開発に成功し、1999年に許可された。また、2000年には接着剤と硬化剤を当量分離塗布する純MFシステムを開発した。これらの開発によって、ポットライフの問題は解決し、また樹脂の廃棄量も最小限に抑えることができるようになった。接着剤と硬化剤とを混合するシステムと比べると、総消費量で約10%の削減となる。

MFを集成材に使用し始めた理由は、褐色のRFで接着した集成材の見栄えが悪いためであった。また、RFと比べて使用するホルマリン量が少ないことも上げられる。このMFの使用により、集成材工場での労働環境が改善された。しかしながら、10年以上前にはMFはなかなか使用されなかった。この理由として、当時は粉末状の接着剤であったため、ハンドリングが悪かったことが上げられる。もう一つの理由は、MFでの製造管理に比べて、それまで使用されてきたRFの製造管理の方が容易であったことが上げられる。MFでは、生産現場の湿度や温度管理が重要になる。また、養生期間も重要で、製造後数日間は温度が低くなりすぎないようにすることが大切である。この養生期間は、プレス現場の加温や高周波加熱の使用により短縮できる。

## 2. 我が国の木質ボード用フェノール/レゾルシノール樹脂接着剤の現状

(株)サンベーク技術サービスセンター  
伊藤 敦 氏

近年のホルムアルデヒド系接着剤の生産量は、フェノール系樹脂（PF）やメラミン系樹脂（MF）が増加し、ユリア樹脂（UF）が減少する傾向にある。これは、建材の低ホルムアルデヒド化に伴うUFの耐水性の低下をカバーするためにMFの添加が増加していること、PFを使用した針葉樹合板の製造が増加していることなどが考えられる。さらに今後、「住宅品質確保促進法」（品確法）の制定によって、耐久性の劣るUFから耐久性のあるPFやMFへの移行が進むと考えられる。

また、品確法によって木質ボードに要求される接着剤が明確になってきた。品確法は、大きく9つの要求事項に分類され、その中でも接着剤に関係する事項は「構造の安定に関連する事項」「劣化の軽減に関連する事項」「空気環境に関連する事項」の3つが中心となる。「構造の安定に関連する事項」では、家屋の耐震等級・耐風等級が細かくランク分けされている。設計面から見ると、合板やOSB等の面材を用いたほうが設計しやすことから、今後、構造用合板等に使用されるPFの需要が増加すると考えられる。「劣化の軽減に関連する事項」では、構造躯体等に関する劣化対策等級において、「通常想定される自然条件及び維持管理の条件での大規模な改修を必要とするまでの期間」で等級分けされている。これを踏まえると、構造用合板などでは耐久性に関して信頼性の高いPFへの移行が進むと考えられる。また、住宅の保証期間が伸びたことから、各部材についても耐久性が要求される可能性がある。さらに、放出ホルムアルデヒドの点からも、PFの需要増加が見込まれる。ただし、PFはpHが高いので、防蟻剤や防腐剤の添加の際には注意しなければならない。「空気環境に関連する事項」では、化学物質過敏症・シックハウス症候群に対する対策としてホルムアルデヒド放散等級で家屋が格付けされるようになり、それに対応した接着剤や接着技術が要求される。合板検査会の統計では、2000年の普通合板に占める低ホル合板の比率は76%で、構造用合板では93%に達すると報告されている。ここでは、VOCやSVOCの低減も検討されているが、ホルムアルデヒド系接着剤においてはホルムアルデヒド以外の揮発性物質を含有する可能性は低い。その他の事項に関しては、「火災時の安全に関連する事項」において難燃剤との相性が問題になる可能性がある。次に、品確法以外の事由としては、合板原料が南洋材から針葉樹材へ移行するにともない、実績の高いPFの使用が高まると考えられる。さらに、リサイクル法により、比較的ホルムアルデヒド放散量の高い部材の再利用が始まり、パーティクルボード等の場合には原料にホルムアルデヒドが混入するために、低ホルムアルデヒド化できる接着技術の開発が必要にな

って行くであろう。以上、接着剤への様々な要求事項と各種接着剤の特徴を考慮して、今後の将来性を総合的に判断した。その結果、今後はPF、MF、ウレタン系接着剤(PU)が主流になると思われる。ただし、これらについても種々の性能要求を満たすためには様々な添加剤を加えたフォーミュレーションが重要になる。また耐久性に関しては、PFやMFで製造した各パーティクルボードにおいて、両者ともJIS A5887のPタイプに合格したとしても、暴露試験では大きな差がでる場合があるので注意を要する。

次にMFの改良・現状について説明する。MFは、速硬化で接着条件の制約も少なく、耐久性についても良好である。一番の改良点は、ホルムアルデヒド放散の低減であろう。ボードからのホルムアルデヒド放散は、接着剤中に含まれる未反応ホルムアルデヒドよりも、ボード製造時の高温による熱分解や製造後の接着剤の加水分解によるところが大きい。ホルムアルデヒド放散を低減化するための方策として、まずF/M比の低下が上げられる。しかし、保存性や硬化性の低下を招きやすい。硬化性の低下は、プレス時間内で硬化が完了せず、結果としてはホルムアルデヒドの放散を増加させる場合があるので、この方法には限界がある。そこで、弊社では低いF/M比でありながら、保存性や硬化性を満足する樹脂を開発した。また、この接着剤は、消防法の指定可燃物に該当しないという特徴がある。例えば、パーティクルボード用接着剤(U-820)では100℃でのゲル化時間が100秒以下であり、キュラストメーターの結果でもE<sub>2</sub>タイプのものよりも速硬化性であることが証明された。これを用いたボードでは、E<sub>1</sub>ボードに相当する性能を示した。さらに、E<sub>0</sub>化についてはホルムアルデヒドキャッチャー剤、硬化促進剤、硬化剤の併用を中心に研究し、PタイプE<sub>0</sub>ボードが得られている。芯層部にイソシアネート系接着剤を使用する方法でもE<sub>0</sub>ボードを製造できる。

次にPFの改良・現状について説明する。PFは、耐久性に優れているものの、硬化が遅くアルカリ汚染を生じやすいという欠点がある。また、単板含水率の管理も厳しい。このようなことから、合

板分野では、アルカリ汚染防止、速硬化、含水率許容性についての改良が中心となる。アルカリ汚染については、カラ松単板小片を水酸化ナトリウムでpHを調製した各種水溶液に浸したところ、pHが高くなると赤く着色するという結果が得られた。塩化ナトリウムや硫酸ナトリウムでは、このような現象が起こらないことから、木材中の成分がアルカリの作用で赤く着色することが原因の一つと考えられる。また、合板を製造する際に、プレス時間を変化させて作成し、水に浸漬したときの外観を観察したところ、圧縮時間が短いほど着色が目立った。このことから、低アルカリタイプの接着剤で十分に熱圧して硬化させれば、アルカリ汚染を低減できると思われる。速硬化に関しては多くの研究が行われている。硬化促進剤としては、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、プロピレンカーボネート等の炭酸塩や炭酸エステルが知られている。その他、レゾルシノール、イソシアネート等の反応性の高い物質の併用も考えられる。ただし、これらの添加量は、耐久性を考えると出来るだけ最小限にとどめることが望ましい。以上の知見に基づき検討した結果、アルカリ汚染が少なく熱圧時間も満足できる樹脂が出来つつある。弊社では、比較的低コストでありながら125℃で25秒/ミリ程度のプレス時間で成板可能なタイプ（PL-251）や、若干コスト高ではあるが速硬化性でアルカリ汚染が少なく含水率許容性の高いタイプ（NP-302）など、様々な樹脂を開発している。

### 3. 木質ボードにおけるMDIバインダーの最新情報

住化バイエルウレタン株式会社 応用研究本部  
村上伸一 氏

ポリウレタンに使用される各種イソシアネートの中で、ポリメリックMDI（PMDI）はその強力な接着力と安全性、および経済性の点で、木質ボード用の接着剤として使用されてきた。各国のマーケット状況を見ると、欧州での1999年におけるボード生産量は45,500,000m<sup>3</sup>で、この内、約3/4がパーティクルボードで占められ、続いてMDF、OSB、合板の順となっている。PMD

Iの用途もパーティクルボードが大部分を占めている。北米では、統計の取り方が異なるが、2000年で消費されたボード用接着剤は330万トンであった。ボードの種類ではパーティクルボード用接着剤は330万トンであった。ボードの種類ではパーティクルボードが約4割を占め、その他、合板、MDF、OSBが2割程度を占める。接着剤の種類では、50%以上がユリア樹脂（UF）で占められ、40%がフェノール樹脂（PF）、PMDIは3%、その他メラミン樹脂（MF）などは1%となっている。日本と比べてフェノール樹脂の使用量が非常に多いのは、フェノール樹脂を用いたOSBの生産量が多いためである。また、PMDIの3%は、そのほとんどが、OSBのコアに使用されている。日本では、我々が調べたところによると、ボードに使用されたPMDIは7000~8000トンで、E<sub>2</sub>ボードを目的として使用されたと考えられる。また、この使用量は、PMDI国内総生産量の4%に相当する。欧州、北米、日本において木質ボード用に使用されたPMDIは、1年間に約15万トンに達する。東南アジアでは、国内で消費されているボードがE<sub>2</sub>やE<sub>1</sub>ボードであるために、E<sub>2</sub>を目的としたPMDIの使用量は極めて少なく、その使用量は統計上明らかにされていない。

PMDIが接着剤として優れている理由として、水との反応以外に木材成分に含まれている水酸基との反応が示唆されてきた。これまでも、種々の研究が行われてきたが、それらは実験室レベルであり現実の木質ボードの製造条件を再現したものではなかった。そこで、1988年独バイエル社は赤外のプローブをマットの中に挿入し、熱プレス中で起こっている反応を直接観察した。その結果、ウレア結合は、プレス前半に生成し、後半になると減少した。これは、ウレア結合がイソシアネートとさらに反応してビウレット結合になるためと考えられた。また、木材の水酸基とPMDIとの反応がボード物性にどの程度寄与しているかを検討したが、明白な結果を得ることが出来なかった。実際のボード物性では、メラミン・ユリア樹脂（MUF）を11%添加したMDFと、PMDIを6%添加したMDFの物性について比較した。そ

の結果、曲げ強度は同程度を示し、はく離強度や吸水率についてはPMD Iの方が優れているという結果となった。

PMD Iの長所としては、①ホルマリン等の揮発成分が含まれていない、②従来の接着剤に比べて1/2～1/3程度の添加量で良好な物性が得られる、③貯蔵期間が長く水分さえ遮断すれば室温で1年間の保管が可能である。④耐水性・耐候性に優れている、⑤湿度の変化に対して優れた重量・寸法安定性を示す、などが上げられる。

PMD Iの使用においては、グルーイング、フォーミング、プレスでの接着の各工程において注意すべき技術的問題がある。グルーイングでは、接着力が大きいので、添加量が少なく済むものの、粘度がやや高いので均一に散布することが難しい。その対策として、スピニングヘッドの使用、エマルジョン化などが上げられる。エマルジョン化の方法については、大きく分けて①化学的に変成させて自己乳化型PMD Iとする方法、②水に特殊な乳化剤を添加する方法③機械的に強制乳化する方法がある。エマルジョンとしては、この順番で不安定になるが、可使用時間は逆に順に長くなる。コスト的に見ると、使用量が極めて少ない場合は、自己乳化型PMD Iが有利であるが、使用量が多くなると機械的乳化のものが有利となる。フォーミングでは、添加量が少ないことと分子量が低いために、コールドタックが小さく、マット崩れが起りやすい。これについては、それほど重大な問題ではないので、特に対策は行われていない。プレスでの接着では、離型問題が非常に重要である。このため、離型方法として、①外部離型剤の塗布、②内部離型剤の添加、③離型層を設ける、などの方法が検討されてきた。中でも、外部離型剤や離型層については既に多くの実績がある。最近では、ヨーロッパで研磨層を設ける方法を採用しているところがある。これは、PMD Iを含まない0.1～0.2ミリ程度の表層を造り、後にサンディングする方法である。

最近のPMD Iの技術として、他のバインダーへの添加がある。これは、ホルムアルデヒド系の樹脂に対して数%添加することにより、①添加量の削減、②接着剤のコスト低下、③プレス時間の

短縮などの効果がある。例えば、UFにPMD Iを1～2%添加することによって、UFを2.5%削減することができ、その上IBとTSが向上する。ただし、コスト面から考えるとMFやMUFへの添加が望まれる。PMD Iのプレス時間は、10～15秒/ミリであり、PFよりは短い、UFやMUFに比べると長くなる。しかしながら、UFやMUFなどに少量添加すると、1割程度のプレス時間の短縮が見られる。PMD Iのプレス時間の短縮には、特殊なポリオール併用や触媒の添加により、5%程度の短縮が可能となっている。PMD Iの安全性については、変異原性物質である。4,4'-MDIを含んでおり、注意が必要である。しかしMDIの蒸気圧がかなり低いので、環境濃度に関してはスプレー時のミスト対策のみで対応できると考えられる。燃焼ガスについては、酸素が十分に供給されていればガス中に含まれるCOやHCNは、木材そのものほとんど同じである。MDFを中心としたラッピング加工技術では、独バイエル社では分子量や結晶性を变化させた各種熱活性ポリウレタンディスパーション原料を提供している。これは、種々のフィルムとの接着性が良いのが特徴である。今後、ホルムアルデヒド放出量のさらなる低減化やUF/MUFを使用したボードのリサイクルに対する要求が強くなれば、PMD Iを使用したボードが益々増加するであろう。

(文責：森林総合研究所 梅村研二)

## Session II：新しい木質系材料の開発

### 1. ケナフ複合ボードの特性と応用

松下電工(株) 奥平有三 氏、大西兼司 氏、  
菅原 亮 氏

この研究は、京都大学木質科学研究所周井秀一教授、南京林業大学、張敏教授の指導によって行っているもので、実用化を目指している段階である。

ケナフは、アオイ科の一年生植物で、キューバケナフとタイケナフの二種類を総称してケナフと呼んでいる。ケナフは、約5ヶ月で高さ3～4m、直径3～4cmとなり、二酸化炭素の吸収能が高く、成長が早い。米国農務省の調査では、収穫量は、

半年で、10～20トン/haである。これは、日本の代表的早生樹であるスギの5～10倍に達する。栽培が非常に容易で、かつ、計画的にできる点も資源として重要である。

ケナフ茎部は、芯部とその周縁の靱皮部から構成され、芯部と靱皮部の重量比率、体積比率は、それぞれ60:40、85:15程度である。中国では、茎部を水中に浸漬して、ペクチンを微生物分解し、芯部と茎部の分離を行っている。分離した靱皮部は、昔から麻袋、ロープ、漁網などの原料として利用されてきたが、最近では、合成繊維への代替が進みつつあるため、製紙用途などへの新しい活用の方向が検討されている。また、芯部は、靱皮部に比べてあまり利用されていない。

ケナフ芯部は、密度が0.1～0.2と低く、リングフレーザー等の粉砕器によって、非常に軽量のパーティクルが得られる。芯部の化学組成は、木材のそれに比較的近く、セルロースが31～33%、リグニンが23～27%で、針葉樹に比べると、ヘミセルロースが多い。

一方、靱皮部は、セルロースが60%と多く、リグニンが非常に少ない。オープンナー等の解繊機によって、数本から数十本の繊維からなる維管束が得られる。靱皮繊維は、長さが数十mmと長く、また、高い強度を有している。この高強度の繊維から構成される靱皮部が、低密度の芯部を取り囲む構造により、4 mもの高さのケナフを支えているといえる。

このような特徴を有する芯部および靱皮部を原料として、3種類のボードを作製した。すなわち、芯部を利用したパーティクルボード、靱皮部繊維の方向を揃えて作製した繊維配向ボード、芯部と靱皮部の特質を活かして作製した複合ボードである。各種ボードの性能を以下に示す。

ケナフパーティクルボードでは、リングフレーザーにより得たパーティクルにイソシアネート系接着剤を8%噴霧した後、マットを形成し、これを150℃、4.5MPa、10分で圧縮した。密度0.48g/cm<sup>3</sup>で、曲げ強度180MPa、曲げヤング率1.9GPaというJISA5908の18タイプ相当の曲げ性能が得られた。

ケナフ繊維配向ボードでは、高強度でかつ長繊

維のケナフ靱皮繊維を配向させることにより、ボードの物性向上を目指した。靱皮部繊維にイソシアネート系接着剤を8%噴霧後、新たに開発した繊維配向装置により、繊維を配向した。続いて、繊維の配向が揃うようにマットを形成した後、150℃、4.5MPa、5分の条件で熱圧成型して、厚さ4 mmのボードを得た。密度0.8g/cm<sup>3</sup>では、繊維配向方向の曲げ強度は、100MPa以上となった。また、繊維配向方向とこれに垂直の方向でのヤング率比は10～12倍であった。これは、従来の配向性MDFにおける報告例、1.6～3に対して、非常に大きい値である。また、24時間吸水後の繊維配向方向における長さ変化率は、合板の長さ変化率より小さい。

ケナフ複合ボードでは、ケナフ茎部の構造をヒントに、内部層にケナフパーティクル、表面層に配向靱皮繊維を積層した複合ボードを作製した。接着剤は、イソシアネート系を用い、靱皮繊維には15%、パーティクルには8%とした表面繊維層と内部パーティクル層の重量比は10%:80%:10%である。熱圧成型後の表面層の厚さ比率は、約8%であった。密度が0.5の複合ボードでも、繊維配向方向の曲げ強さは、約50MPa、曲げヤング率は7 GPaと非常に高い値が得られた。また、水中浸漬による長さ変化率も、繊維配向方向では約0.15%と低い値を示した。これは、表面層がボード全体の寸法変化を抑制するためと考えられる。

ケナフ靱皮部繊維と芯部のパーティクルからなる複合ボードは、構造および構成比率を変えることによって、様々な要求に応じたボード設計が可能である。

(文責：京都大学木質科学研究所 矢野浩之)

(2001. 5. 7受理)