

エマルジョンタイプMDI結合パーティクルボードの 接着耐久性^{*1}

齊藤藤市^{*2}, 渡辺稔彦^{*2}, 鈴木滋彦^{*2}

Particle-Bond Durability of Emulsifiable Polymeric MDI Bonded Particleboards^{*1}

Fujiichi SAITO^{*2}, Toshihiko WATANABE^{*2} and Shigehiko SUZUKI^{*2}

To determine the particle-bond durability of emulsifiable polymeric isocyanate (EMDI) bonded particleboards, the effect of resin coating procedures and mat moisture content (MC) on bond quality were examined during a cyclic wetting and drying treatment. Polymeric isocyanate (PMDI) and phenol formaldehyde (PF) resin bonded boards were used as controls.

EMDI bonded boards decreased in internal bond (IB) strength with increasing mat MC. EMDI boards used on a 100 % solid basis with water applied separately, showed exceedingly higher dry IB, but they lost almost any advantage over other boards under the cyclic exposure. EMDI and PMDI boards had the same properties, and an improvement in bonding efficiency using EMDI was not obtained. Both isocyanate boards were superior in IB strength to PF boards. Bond quality of boards with 24 h storage time was reduced significantly especially at higher mat MC.

エマルジョンタイプMDIボードの接着耐久性におよぼすレジン塗付方法、マット含水率の影響を考察し、そのボード性能をPMDI、PFボードと比較した。

EMDIボードの接着性能はマット含水率の増加で減少した。EMDI原液塗付、水分分離塗付ボードは付加的に高い常態はく離強度を示したが、水分繰返し処理でその優位性は大部分失われた。EMDIボードはPMDIボードと同等の接着性能を示し、希釈の効果は認められなかった。EMDI塗付後、室温で一日貯蔵した場合、ボード性能は、特に高含水率小片で顕著に減少した。

1. 結 言

パーティクルボードの構造用途への需要拡大をはかるため、新しい接着剤の導入が種々検討されている¹⁾。

ポリメリックMDI(PMDI)の接着性能については、これまでに小片含水率(MC)^{2)~8)}、含脂率^{2)~6)9)10)}、小片樹種⁸⁾、小片形状¹¹⁾、ポットライフ⁴⁾⁸⁾、他レジンとの混用²⁾³⁾¹⁰⁾¹²⁾、熱処理⁷⁾¹³⁾、等の影響が検討された。これに対して、エマルジョンタイプMDI(EMDI)に関しては未だ報告例が少な

い^{5)14)~17)}、EMDIは水溶性であるため、樹脂の取扱い、装置の洗滌等の作業性が良好であり、また、希釈によるレジン塗付効率の向上が期待される¹⁶⁾。反面、レジン塗付後の貯蔵時間がPMDIより短い問題がある¹⁵⁾¹⁶⁾。

この試験では、EMDI結合パーティクルボードの接着耐久性におよぼすレジン塗付方法、マット含水率の影響を考察し、合わせて、EMDIボードの接着性能をPMDIボード、および、PFボードの性能と比較した。

2. 試験方法

2.1 供試材料

下記製造条件の実験室製パーティクルボードを用いた。ボードサイズ：10 mm × 320 mm × 340 mm (表面未研削)、ボード比重：0.7、木材小片：ナラを主とした混合フレック、10メッシュ以下除去(厚さ

*1 Received April 11, 1985. この報告の一部は第35回日本木材学会大会(1985年4月東京)にて発表した。

*2 静岡大学農学部 Faculty of Agriculture, Shizuoka University, Shizuoka 422

0.27 mm × 幅 3.1 mm × 長さ 17 mm), レジンの種類と添加率: 1) EMDI (日本ポリウレタン工業製コロネート 3054), 所定量を水に加え (Table 1), 高速

Table 1. Adhesive coating conditions.

| Board | RC % | Mat MC % | Formulation EMDI : Water |
|-------|------|----------|---------------------------|
| M 5 | 8 | 7 | 100 : 0 |
| M 10 | 8 | 10 | 50 : 50 |
| M 15 | 8 | 14 | 36 : 62 |
| M 20 | 8 | 17 | 31 : 69 |
| M 25 | 8 | 23 | 26 : 74 |
| R 6 | 6 | 9 | 43 : 56 |
| R 10 | 10 | 9 | 56 : 44 |
| PMDI | 8 | 10 | PMDI : Acetone 75 : 25 |
| PF | 10 | 16 | — |

攪はんで乳化した。なお、ボード M5 はポットライフの関係で、EMDI 原液と水を分離塗付、添加率は 6, 8, 10%, 2) PMDI (同ミリオネート 200), アセトンで希釈し、8% 添加, 3) PF レジン, 10% 添加, マット含水率: 初期小片 MC 2%, EMDI, PMDI の場合、水分添加, およびエマルジョン中の水分で所定含水率に調整 (Table 1), 熱圧条件: 温度 180 °C, 圧力 25kgf/cm², 時間 6 min. EMDI 塗付後の放置時間は 1~2 h, 一部、室温 (23 °C) で 24 h 放置後熱圧した。

2.2 樹脂液の粘度測定

EMDI と水の混合比率を変え、樹脂濃度 60, 50, 40% のエマルジョンを調製し、粘度 (20 °C) の経時変化を B 型粘度計で測定した。

2.3 材質試験

1) ボード厚さ方向の比重分布

マット MC シリーズ (M5~M25) のボードについて、試片 (50 mm × 300 mm) の表面、裏面からボード中央層附近まで、プレーナ切削を順次行ない、ボード厚さ方向の比重分布を測定した。試片個数は同一条件で 2 個。

2) 曲げ性能

製板ボードより 50 mm × 300 mm の曲げ試片を採取し、25 °C, 65% RH で調湿後、JIS A5908 に準じて、曲げ強度、曲げヤング係数を算出した。試片個数は同一条件で 5 個である。

3) 接着性能

25 °C, 65% RH で調湿した試片 (50 mm × 50 mm) に減圧 (760 mm Hg, 30min), 加圧注水 (3kgf/cm², 1 h) ⇔ 乾燥 (60 °C, 24 h) の水分繰返し処理を 0 (コントロール), 1, 3, 5, 10 サイクル与え、その間の

長さ, 幅, 厚さ変化を精度 1/100 mm のダイヤルゲージで測定した。所定回数処理した試片を再調湿 (25 °C, 65% RH) 後、JIS A5908 に準じて、はく離強度 (小片結合力) を測定した。調片個数は同一条件で 10 個である。試片比重が目標ボード比重の回りに分散したので、比重とはく離強度の回帰直線より比重 0.7 に補正した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に EMDI 樹脂エマルジョンの粘度変化 (20 °C) を示す。50% 濃度エマルジョンの粘度は調製時 10 セ

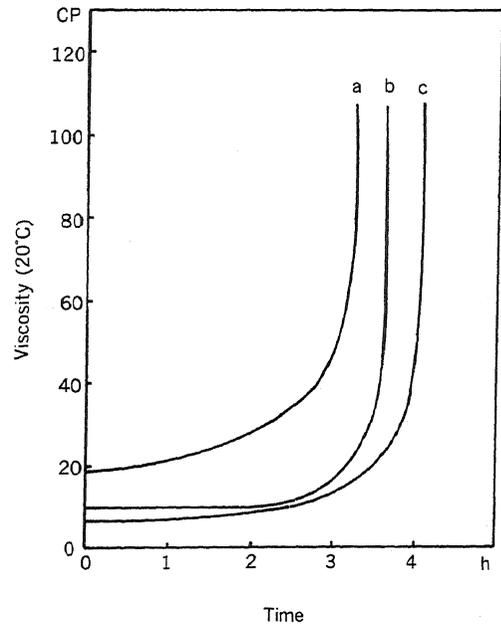


Fig. 1. Increase in viscosity with time. Emulsion concentration: a 60%, b 50%, and c 40%.

ンチボイズ前後であり、3 h 程変化が無いが、3.5 h 後急激な粘度上昇が生じ、測定が不可能となった。粘度が急上昇する時間 (ポットライフ) はエマルジョン濃度に関係し、60% 濃度で約 3 h, 40% 濃度で約 4 h であった。このため、本実験では、樹脂液は乳化後直ちに塗付した。

Table 2 に供試ボードの曲げ性能を示す。MC シリーズの M5~M25 では後述のはく離強度と異なり顕著な差はみられなかった。これは Fig. 2 に示したボード厚さ方向の比重分布から明らかなように、高含水率ボードの表層附近が高接着性能の低含水率ボードに比べ高密度に圧縮されたためと考えられる。含

Table 2. Bending properties of tested particleboards.

| Board | MOR kgf/cm ² | MOE 10 ³ kgf/cm ² |
|-------|----------------------------|--|
| M 5 | 265 | 33.3 |
| M 10 | 256 | 33.0 |
| M 15 | 269 | 32.5 |
| M 20 | 261 | 33.3 |
| M 25 | 254 | 31.3 |
| R 6 | 257 | 31.5 |
| R 10 | 291 | 35.4 |
| PMDI | 268 | 31.6 |
| PF | 270 | 31.5 |
| * P 1 | 273 | 32.9 |
| * P 2 | 192 | 28.4 |

* Storage time : 24h.

P1 Mixed furnish (M 5 ; M15 = 50 : 50)

P2 Mixed furnish (M20 ; M25 = 50 : 50)

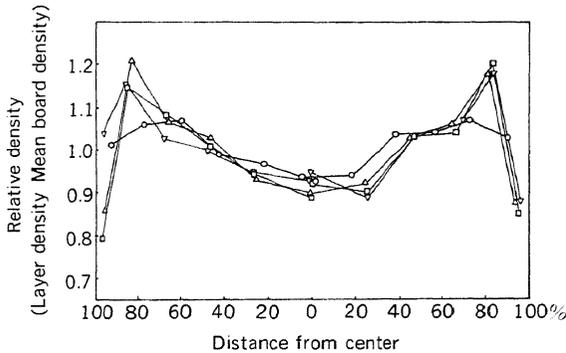


Fig. 2. Density profile of tested boards made with various mat MC.

Legend : Boards, ○ M5, △ M15, □ M20, and ▽ M25.

脂率の差は明らかで, RC10% (R10) ボードは6% (R6) ボードに比べ大きい曲げ性能を示した。レジンを塗付後, 室温で24h 放置した場合, P1 (M5 と M15 等量の混合小片) ボードでは直ちに熱圧したボードとの差はみられないが, 高含水率小片の P2 (M20 と M25 の等量混合小片) ボードでは曲げ強さ, 曲げヤング係数が明らかに減少した。

Fig. 3 は水分繰返し処理における MC シリーズ試片の厚さ変化を初期厚さを基準に示したものである。各ボードともサイクル数とともに非可逆的変形が増大するが, ボード間では M5 ボードが最も安定しており, M25 ボードは M15, M20 ボードより大き

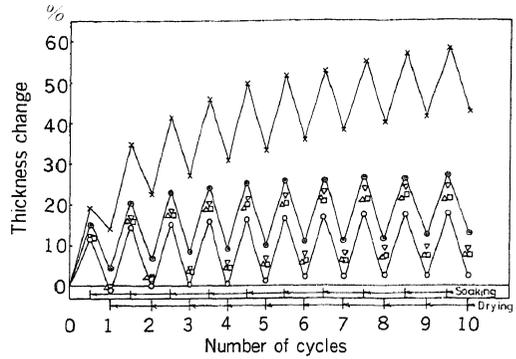


Fig. 3. Effect of the numbers of cycles on thickness change.

Legend : Boards, ◎ P1 and × P2 ; see Fig. 2 for others.

いスプリングバックを与えた。また, P2 ボードは P1 ボードに比べ極めて大きな厚さ変化を示し, 接着性能の低いことが推定された。なお, M10 ボードは曲げ性能では識別出来なかったが, この試験で大きな変動を示し, 製造上のミスが確認されたことから, 以後の考察より除外した。

Fig. 4 は所定回数の水分繰返し処理試片の再調湿後の残留厚さ膨張率 (スプリングバック) を示す。MC シリーズでは, マット含水率の増加でスプリングバックが増大した。含脂率6% と10%の差は明らかで, 前者が最大, 後者は M5 ボードに次ぐ小さい値を示した。また両者の間に PMDI (RC8%), PF

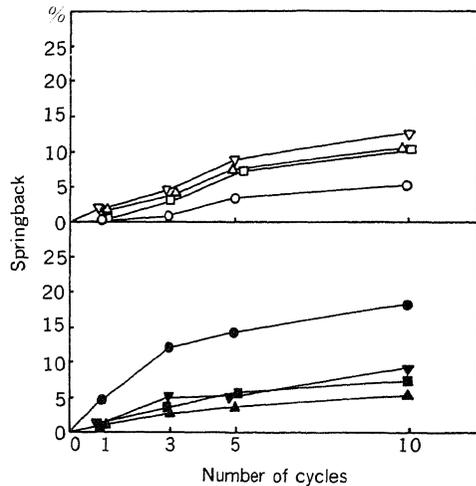


Fig. 4. Effect of the numbers of cycles on springback.

Legend : Boards, ● R6 ▲ R10, ■ PMDI, and ▼ PF ; see Fig. 2.

(RC10%)ボードが入り、M15、M20ボードと同程度のスプリングバックを与えた。

Fig. 5は水分繰返し条件下でのMCシリーズ試片

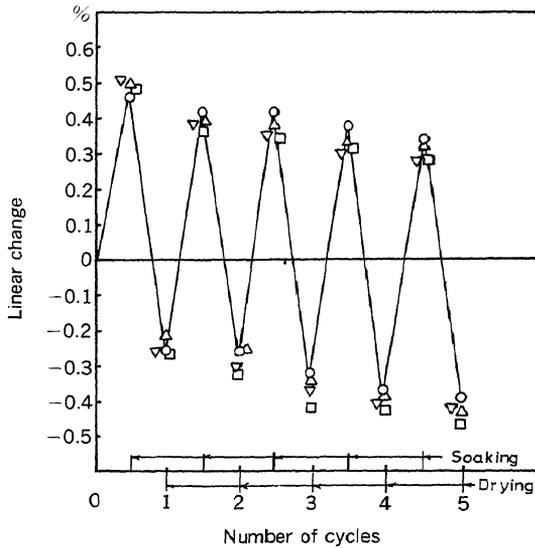


Fig. 5. Effect of the numbers of cycles on linear change.

Legend : Boards, see Fig. 2.

の長さ変化を示す。変化幅には差はみられず、また、いずれもサイクル数とともに長さが非可逆的に減少した。ボード間では高含水率ボードでこの傾向が大きかった。これはマット熱圧時、クロスバンディング効果で収縮が拘束された小片間に大きい引張り応力がセットされた結果と考えられる。同様なことがFig. 6に示したPFボードの結果にもみられた。即ち、PFボードが他のボードに較べて大きい非可逆的長さ変形を示すのは、高含水率小片の熱圧時にセットされた大きな内部応力が水分処理で解放されるためである。なお、長さ膨張率におよぼす含脂率、およびPMDIとEMDIの差は認められなかった。

Fig. 7はコントロール、および、水分繰返し処理におけるサイクル数とはく離強度の関係を示す。無処理のはく離強度についてみると、MCシリーズではマット含水率の増加ではく離強度が減少する。M10が欠けたため、MC10%附近のはく離強度は不明であるが、R6とR10ボードから10 kgf/cm²前後の値が予想され、M5~M25ボード間ではM5ボードが他に較べて付加的に高いはく離強度を示したとみることが出来る。この原因の一つにボードのコア比重の高いこと (Fig. 2) が挙げられるが、比重とはく離強度の関係から得られる強度差は、1.0 kgf/cm²

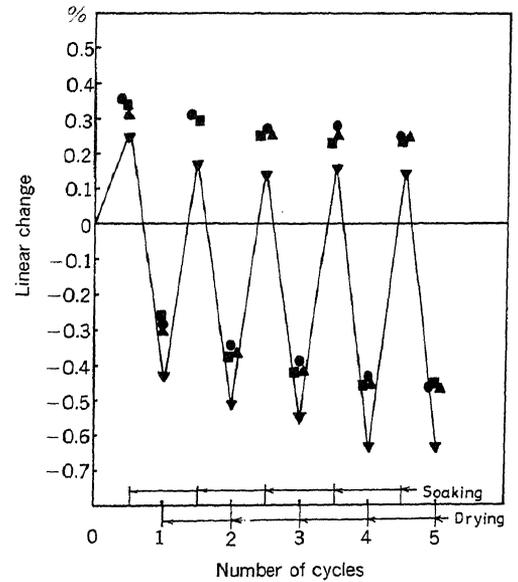


Fig. 6. Effect of the numbers of cycles on linear change.

Legend : Boards, see Fig. 4.

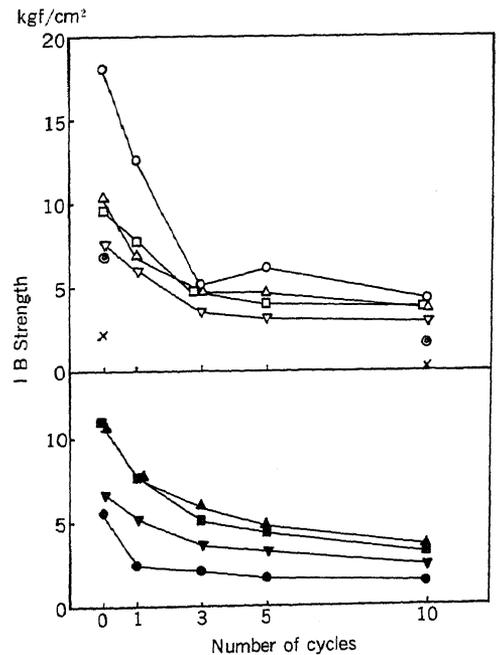


Fig. 7. Effect of the numbers of cycles on internal bond strength.

Legend : Boards, see Figs. 2, 3, and 4.

前後であり、これだけではく離強度の差は説明できない。レジン塗付後24h放置したPI (M5 +

M15), P2 (M20 + M25) ボードのはく離強度をそれぞれの構成小片ボードの強度と比較すると, P1, P2 ボードの強度残留率はそれぞれ 49%, 26% となり, 高含水率ボードで放置時間の影響が大きいことが知れる。また, これらの強度低下は PMDI で観測されたデータ¹⁾より数段大きかった。ボード材質におよぼす小片含水率の影響については, PMDI では余り重要でなく, 10% 程度の水分が適当とみられている³⁾⁷⁾⁸⁾¹¹⁾¹⁸⁾。しかし, EMDI の場合, 前述のポットライフの問題も含めて, 熱圧まで, 水分とイソシアネートの反応を出来るだけ抑制することが肝要であり, 小片形状にもよるが, 接着性能には低含水率小片が有効と考えられた。含脂率の差はスプリングバック (Fig. 4) の場合と同様に顕著にみられた。PMDI ボードは PF ボードより本質的に高い接着性能を示した。水分繰返し処理により, 各ボードのはく離強度は減少するが, 特に M5 ボードで急激な減少が 3 サイクルまでに生じ, 高い初期強度の優位性はほとんど失われた。

Fig. 8 は水分繰返し処理下のはく離強度残留率と

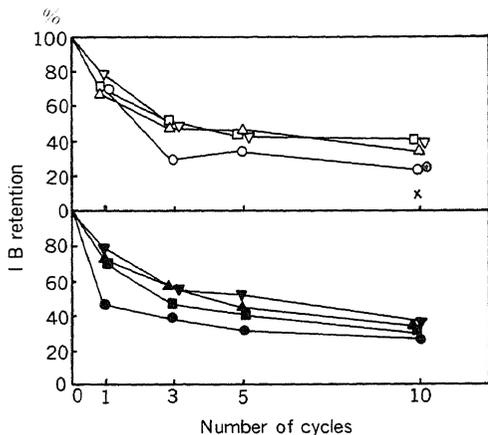


Fig. 8. Effect of the numbers of cycles on internal bond retention.

Legend: Boards, see Figs 2, 3, and 4.

サイクル数の関係を示したものである。MC シリーズでは, M5 ボード以外はほとんど同一のパターンを示し, 同一の接着メカニズムの存在がみとめられた。M5 ボードは強度残留率が低く, 常態接着力には耐水性能の低い成分が関与することが分かった。放置時間の影響は顕著であり, P1, P2 ボードの 10 サイクル後の強度残留率は 25% と 9% となり, 低い初期強度のみならず, 水分繰返し条件下の耐久性でも劣った。含脂率の差は歴然であり, RC10% ボードは

RC6% ボードに較べ高い接着耐久性を示した。PMDI ボードは両含脂率ボードの中間に位置し, 同一マット含水率の EMDI ボードと同等の耐久性性能を示したと考えられる。また, PF ボードは EMDI, PMDI ボードに較べ初期強度では劣るが, 安定した接着性能が確認された。

Fig. 9 は水分繰返し処理後のボード厚さ方向のス

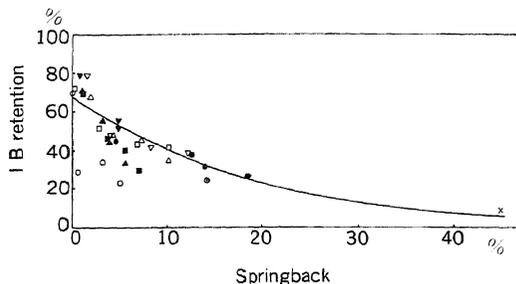


Fig. 9. Effect of springback on internal bond retention.

Legend: Boards, see Figs. 2, 3, and 4.

プリングバックとはく離強度残留率の関係を示す。最小自乗法で求めた回帰曲線は次のとおりである。

$$\log R = 1.836 - 0.023T$$

R : はく離強度残留率 (%), T : スプリングバック (%)

前報¹¹⁾のカラマツ小片等のイソシアネートボードの関係式に較べて, 強度残留率が全体的に低下したが, これは高比重樹種小片ボードの小片圧縮比が低比重樹種小片ボードに較べて低いことから厚さ膨張が小さい¹⁹⁾ことと, 高比樹種ボードは水分処理で大きいストレスを受け強度残留率が低い²⁰⁾ためと考えられる。ボード間では M5 ボードがこの回帰曲線から大きく離脱した。これは, 前述したように, 付加的に高い小片結合力を示す M5 ボードの劣化メカニズムが他と大きく異なることを示唆するものであり, この問題について引き続き検討する予定である。

4. 結 論

エマルジョンタイプ MDI ボードの接着耐久性におよぼすレジン塗付方法, マット含水率の影響を考察し, さらに PMDI, PF ボードの接着性能と比較した。試験結果の要約は次のとおりである。

1) EMDI ボードの接着性能はマット含水率の増加で減少した。

2) EMDI 原液塗付, 水分分離塗付ボードは付加的に高い常態はく離強度を示したが, 水分繰返し処

理でその優位性は大部分失われた。

3) EMDI ボードは PMDI ボードと同等の接着性能を示し、希釈の効果は認められなかった。

4) EMDI, PMDI ボードは PF ボードに較べ高いはく離強度を示したが、安定性では PF ボードが勝った。

5) EMDI を小片に塗付後、室温で一日貯蔵した場合、ボード性能は特に高含水率小片で顕著に減少した。

謝 辞

本研究を行なうにあたり、接着剤を提供していただいた、日本ポリウレタン工業株式会社に深く感謝致します。

文 献

- 1) Wittmann, O.: *Holz Roh-Werkst*, **41**, 431-435 (1983).
- 2) Deppe, H. J.; Ernst, K.: *ibid*, **29**, 45-50 (1971).
- 3) Deppe, H. J.: *Proceedings, Eleventh Particleboard Symposium, WSU*, p. 13-32 (1977).
- 4) Loew, G.; Sachs, H. I.: *ibid*, p. 473-492 (1977).
- 5) Udvardy, O. G.: *Proceedings, Thirteenth Particleboard Symposium, WSU*, p. 159-177 (1979).
- 6) 元木英生, 鷺岡雅: 木材と技術, No. 38, 9-14 (1979).
- 7) Johns, W. E.; Maloney, T. M.; Huffaker, E. M.; Saunders, J. B.; Lentz, M. T.: *Proceedings, Fifteenth Particleboard Symposium, WSU*, p. 213-239. (1981).
- 8) Johns, W. E.; Maloney, T. M.; Saunders, J. B.; Huffaker, E. M.; Lentz, M. T.: *Proceedings, Sixteenth Particleboard Symposium*, p. 71-98 (1982).
- 9) 元木英生, 鷺岡雅: 木材と技術, No. 36, 6-9 (1979).
- 10) 元木英生, 鷺岡雅, 田近克司, 坂井正孝: 木材学会誌, **30**, 995-1002 (1984).
- 11) 齊藤藤市, 谷口時徳: 同上, **30**, 921-926 (1984).
- 12) 富永洋司, 蒲生真郷, 大鳥明: 東京農工大演習林報, No. 16, 79-85 (1980).
- 13) Roffael, E.; Rauch, W.: *Holz Roh-Werkst*, **31**, 402-405 (1973).
- 14) Wilson, J. B.: *Proceedings, Fourteenth Particleboard Symposium, WSU*, p. 185-193 (1980).
- 15) Adams, A. D.: *ibid*, p. 195-205 (1980).
- 16) Ball, G. W.: *Proceedings, Fifteenth Particleboard Symposium, WSU*, p. 265-285 (1981).
- 17) Adams, A. D.: *ibid*, p. 241-254 (1981).
- 18) Wittmann, O.; Lehnert, H.: *Holz-Zbl.* **1974**, 101 (122): 1586. [Wittmann, O.: *Holz Roh-Werkst*, **34**, 427-431 (1976).]
- 19) J. C. Beech: *Holzforschung*, **29**, 11-18 (1975).
- 20) E. W. Price; W. F. Lehmann: *Forest Prod J*, **29** (3), 29-33 (1979).