

# レッドセラヤ単板の湿潤性と接着性能 に及ぼす乾燥条件の影響

梶田 熙・椋代 純輔

HIROMU KAJITA and JUNSUKE MUKUDAI

Effect of drying conditions on wettability and gluability of red seraya veneer

**要旨**：レッドセラヤ単板を熱板乾燥した場合の、熱板温度および乾燥時間と乾燥単板での水滴の湿潤挙動および接着性能との関係について検討した。その結果はつぎのようであった。

1) 120°C で乾燥した単板での接触角およびその経時変化は、コントロールのそれと変わらず、また液滴の直径は経時的に変化しないが、高さは時間とともに減少する。

2) 150°C, 20分以上あるいは200°C の条件で乾燥した単板は、過乾燥を受けた結果、接触角が大きくなり、その経時変化は小さくなる。特に200°C の場合、乾燥時間が長くなるとともに、その傾向は顕著である。また、液滴の直径および高さは経時的に減少し、パラフィン表面での水滴形状の経時変化と類似している。

3) 120°C および150°C の条件で乾燥した単板の接着力は、コントロールのそれとあまり差はないが、200°C の場合には、いずれの接着剤でも、乾燥時間が長くなるとともに接着力は低下した。

4) 接着力試験後の破断面を SEM で観察した結果、200°C, 60分という過酷な条件で乾燥した単板では、木材と接着剤が十分接触しているが、それらの界面で破断していることが明らかとなった。

## 緒 言

単板を高温乾燥した場合、接着不良がしばしば起り、この原因として、熱によって単板表面品質が低下する<sup>1)~4)</sup>あるいは単板表面上に木材の抽出成分が凝縮して化学的な不活性化が起る<sup>5)~7)</sup>などが考えられている。このような乾燥による単板品質の低下は、乾燥方法、乾燥温度と時間、木材の種類や大きさ、水分含有量など多くの因子が影響する。Northcott<sup>1)</sup>, Hancock<sup>5)</sup> および Sisterhenm<sup>8)</sup>は、乾燥過程における乾燥機内温度が、熱による単板品質の低下に重要な影響を与えると指摘し、また Suchsland ら<sup>7)</sup>や Keylwerth<sup>9)</sup>は、乾燥時における単板表面温度が重要な因子であることを明らかにしている。なお、Chow<sup>10)</sup>は、乾燥前に硼素で

処理することにより、高温乾燥による単板表面の不活性化が少なくなり、接着性能も改善されるとしている。

本報では、わが国で合板原木として多く用いられているレッドセラヤ材を供試材料として、生材単板を熱板乾燥した場合の乾燥条件と乾燥単板表面上での極性液体（蒸留水）の湿潤挙動および接着性能との関係、および合板工場で実際に用いられている直火式乾燥機で乾燥した単板についても、湿潤挙動および接着性能について検討した。

## 実 験 方 法

### 1. 供試材料

供試材料は2 mm 厚レッドセラヤ (*Shorea spp.*) の 95×99 cm の大きさのロータリー単板（気乾比重0.55）

京都府立大学農学部木質材料学研究室

Laboratory of Wood Based Materials, Faculty of Agriculture, Kyoto Prefectural University, Kyoto, Japan.

本報告は、第29回日本木材学会大会（1979年7月、札幌）において発表した。

昭和54年7月28日受理

である。それぞれの単板から著しい目切れや腐れなどの欠点個所を除外して、 $30 \times 30 \text{ cm}^2$ の大きさに切り、通し番号を付けた。なお、3プライ合板を製造する際には、単板の材質を考慮してなるべく隣接する単板を組合せるようにした。供試接着剤は、ユリア樹脂 (U-210)、メラミン・ユリヤ共縮合樹脂 (PWP-8)、水溶性フェノール樹脂 (D-17) および中性の $\alpha$ -オレフィン系樹脂 (N-116) の4種であり、全て市販品 (大鹿振興KK製) である。

## 2. 単板の乾燥方法

供試単板は、すでに気乾状態 (平均含水率10.3%) になっていたため、生材状態とするため  $30 \times 30 \text{ cm}^2$  の単板両面に蒸留水を噴霧し、直ちにビニール袋に入れて2昼夜放置した。そのようにして生材状態 (平均含水率63.2%) にした単板をホットプレスで乾燥した。その際、熱板と単板とが接触する程度とし、圧力は加えなかった。乾燥条件は、温度要因として120, 150, 200°Cの3水準、時間要因として10, 20, 30, 60分の4水準とした。

各種条件で乾燥した単板は、直ちに恒温恒湿機 (タバイ PL-2 型) に入れ、含水率を9.0~9.5%に調湿した。これは、単板の仕上り含水率が乾燥条件によって異なるためであり、接触角および接着力に及ぼす含水率の影響をさけるためである。またフェノール樹脂接着剤の場合のみ、単板含水率は3.3%とした。

## 3. 接触角の測定

乾燥単板の木表面に水滴 (蒸留水,  $6 \times 10^{-4} \text{ ml}$ ) をマイクロペットで静かに滴下し、接触角測定器 (エルマ光学製, G-1 型) で、経時的に写真撮影した。そして、液滴の径と高さを測定し、両者から接触角 $\theta$ を求めた。なお、接触角はいずれも木表面で、繊維に直角の方向から測定し、その時の温度は24°Cであった。

## 4. 3プライ合板の製造と接着力試験

Table 1 に示す配合割合で製糊した接着剤を、 $30 \times 30 \text{ cm}^2$ の単板表面に30g 塗付し、所定の条件で圧縮し、3プライ合板を製造した。なお、冷圧の圧縮圧力は、

いずれも  $10 \text{ kg/cm}^2$  であり、ユリア樹脂接着剤の場合、冷圧20分、熱圧条件は  $115^\circ\text{C}$ ,  $10 \text{ kg/cm}^2$ , 1.5分、メラミン・ユリア樹脂接着剤は、冷圧3時間、熱圧は  $115^\circ\text{C}$ ,  $10 \text{ kg/cm}^2$ , 5分、水溶性フェノール樹脂接着剤は、冷圧20分、熱圧は  $135^\circ\text{C}$ ,  $10 \text{ kg/cm}^2$ , 5分である。また、中性 $\alpha$ -オレフィン系樹脂接着剤は、冷圧20時間とし、熱圧は行わなかった。接着力試験は、接着2週間後、普通合板の農林規格に準じて行ない、常態接着力試験およびフェノール樹脂接着剤は煮沸繰返し試験を、その他は温冷水浸せき試験を行なった。

## 結果および考察

### 1. 乾燥単板の仕上り含水率について

各種条件で熱板乾燥した単板の仕上り含水率の結果を Fig. 1 に示した。熱板乾燥は、熱板温度上昇により著しく乾燥時間が短縮され、特に200°Cの場合、急激な含水率低下が顕著にあらわれている。単板の仕上

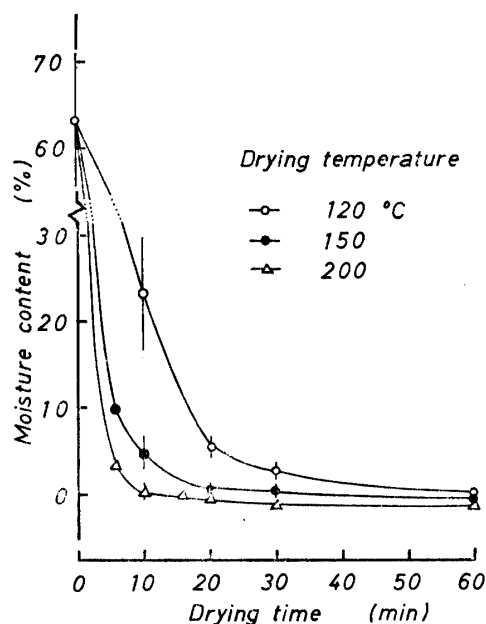


Fig. 1. The relationship between drying conditions and moisture content of the veneer dried with a plate dryer.

Table 1. Adhesives used in this test (part).

Adhesives	Resin	Extender (Wheat flour)	Filler (Coconut flour)	Hardener ( $\text{NH}_4\text{Cl}$ )
Urea (U-210)	100	25	...	0.5
Melamine-Urea (PWP-8)	100	23	...	0.5
Phenol (D-17)	100	...	4	...
$\alpha$ -olefin (N-116)	100	...	...	5*

\* Cross linking agent (KB-01).

り含水率のばらつき(標準偏差で示す)は、120°C、10分の条件を除いて、非常に小さくなっている。一枚の単板でも部位によって含水率に差があると考えられるが、一般に仕上り含水率のばらつきは、単板全体の仕上り平均含水率が低くなるとともに小さくなる傾向があり、また平均含水率と標準偏差との関係はほぼ直線的であるといわれ<sup>11)</sup>、本実験結果は、これらを支持するものである。なお、乾燥温度150°Cでは20分以上で、200°Cでは10分以上で、単板仕上り含水率は全乾となっており、この温度と時間より過酷な条件では、単板は過乾燥状態となっていることがわかる。

2. 乾燥単板上における水滴の接触角について

各種条件で乾燥した単板表面上での水滴の接触角の経時変化を Fig. 2 に示した。120°Cで乾燥した単板での接触角の経時変化は、コントロール(熱板乾燥を行わなかったもの)のそれとほとんど変わらず、また150°Cで10分の場合も、コントロールより接触角がやや大きいが、経時変化は変わらない。しかし、150°C、20分以上、あるいは200°Cでは、乾燥時間が長くなるとともに、接触角も大きくなり、200°C、60分の単板の場合の2分後の接触角は、コントロールのそれの約2倍にも達している。また、乾燥条件が過酷になるほど接触角の経時変化も少なくなる傾向が認められる。

Fig. 3 は、液滴の直径と高さの経時変化を示しているが、コントロールおよび120°Cや150°C、10分の単板での液滴の直径は、時間が経過してもあまり変化せ

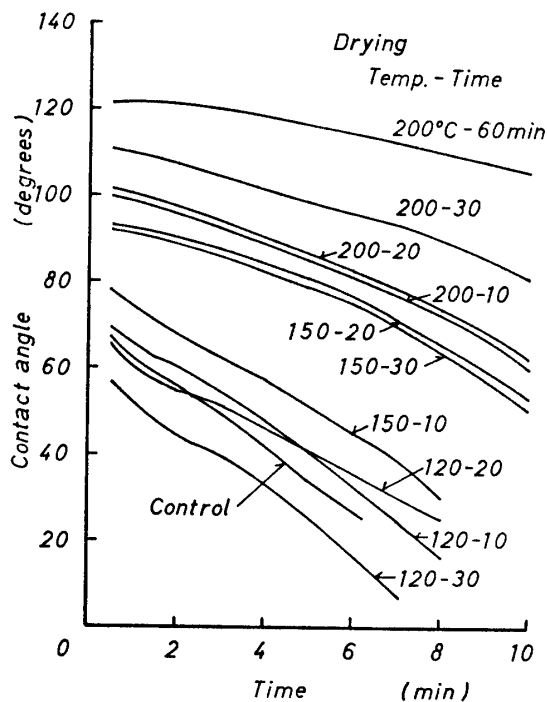


Fig. 2. Contact angle of water on the dried veneer.

ず、高さだけが減少する。これに対して、150°C、20分以上および200°C、10分以上の単板での接触角は、直径、高さともに経時的に減少する傾向を示している。

Fig. 4 は、パラフィン (m. p. 65°C) を溶融し、ガラス板に塗付して硬化させた表面での水滴の経時変化を示している。パラフィン表面での水滴の直径と高さは、時間の経過とともに減少している。したがって、過酷な条件で乾燥した単板表面での水滴の形状の経時変化は、パラフィンのような疎水性材料のそれと類似していることがわかる。Fig. 1 に明らかなように、150°C、20分以上および200°C、10分以上の条件で乾燥した単板は過乾燥をうけたものと結論したが、この接触角の

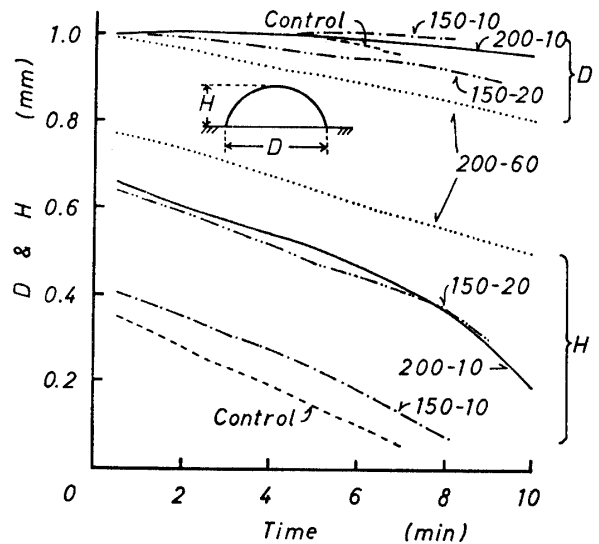


Fig. 3. Change of the shape of the droplet on the dried veneer with elapsed time.

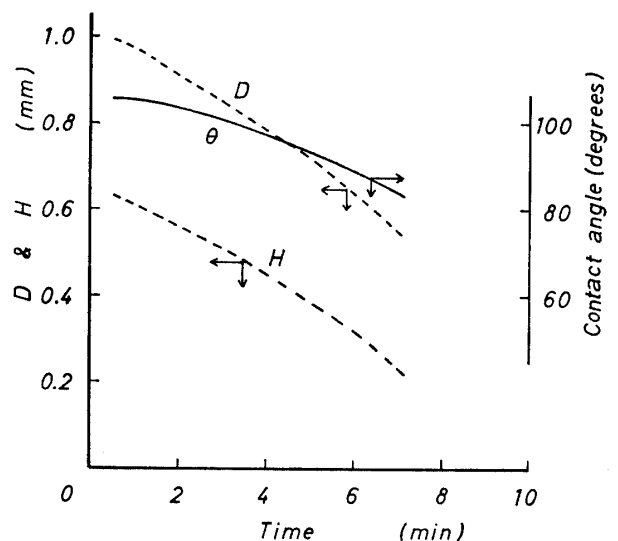


Fig. 4. Change of the shape of the droplet on paraffin with elapsed time.

結果はそれによく対応しており、過乾燥状態となった単板表面は不活性となり、その程度は乾燥条件が過酷になるほど大きくなることが明らかになった。

木材は加熱することによって、その含有水分が失われて乾燥し、絶乾状態になるとともに熱分解が始まるが、木材を構成している各種成分は熱に対する抵抗性が異なるので、その後はそれぞれ異なった熱分解過程をとって進行する。その熱分解温度範囲は、ヘミセルロースが180~300°C、セルロースは240~400°C、リグニンが280~550°Cといわれている<sup>12)</sup>。本実験で用いた乾燥温度200°Cは、親水性であるヘミセルロースの熱分解温度に入っているため、これが乾燥単板の湿潤性の低下の原因とも考えられる。また、水分と熱により、木材中の非極性の抽出成分が表面に移動したとも考えられるので、木材成分の影響については、さらに詳細な検討を要する。

### 3. 接着性能について

Fig. 5は、乾燥温度120°Cの場合の乾燥時間と常態の接着性能の関係を示している。いずれの接着剤ともに、せん断接着力は、乾燥時間が長くなってあまり影響を受けず、また接着剤間にも有意の差は認められない。耐水接着性能も常態とほぼ同じ傾向を示した。

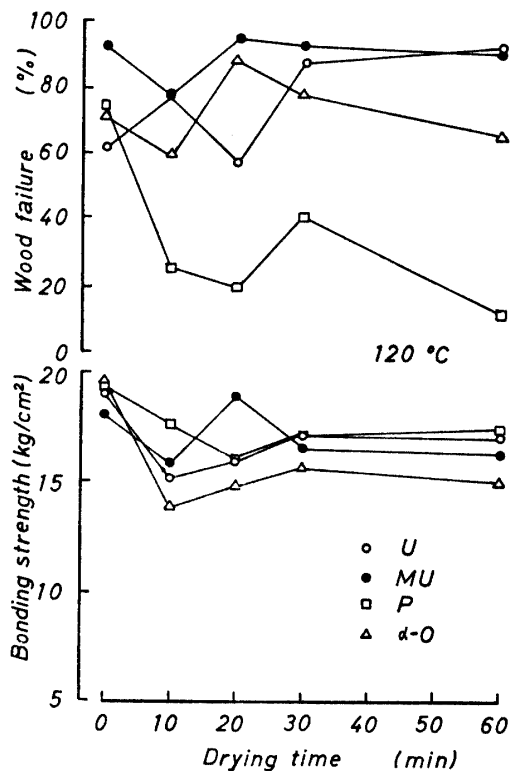


Fig. 5. Dry bond quality of plywood made from veneers dried at 120°C during various times.

Fig. 6は、150°Cの場合であるが、乾燥時間30分までは、ユリア、メラミン・ユリア、フェノール樹脂接着剤ではあまり変化していないが、ユリアおよびα-オレフィン系樹脂接着剤では、60分でせん断接着力が低下している。

乾燥時間が長くなるとともに、せん断接着力が低下する傾向は、200°Cの場合に顕著である (Fig. 7)。この傾向は、全ての接着剤で認められ、200°C、60分の接着力は、コントロールの約1/2になっている。また木部破断率は、ユリア、メラミン・ユリア樹脂接着剤では、30分以上で極端に低下し、ユリアの場合、60分で木部破断率は0%になっている。Fig. 8は、湿潤接着性能の結果であるが、湿潤せん断接着力は、常態の場合とほぼ同じ傾向を示し、さらにフェノール樹脂接着剤に比べて、ユリアおよびメラミン・ユリア樹脂接着剤の耐水性が劣ることが明確に出ている。また、α-オレフィン系樹脂接着剤の耐水性が高く、フェノール樹脂に近いといわれているが<sup>13)</sup>、本実験でもその傾向が認められる。

200°C、60分の条件で乾燥した単板をユリア樹脂接着剤で接着して製造した合板の接着力試験では、木部破断率が0%であったが、その破断面を走査電子顕微

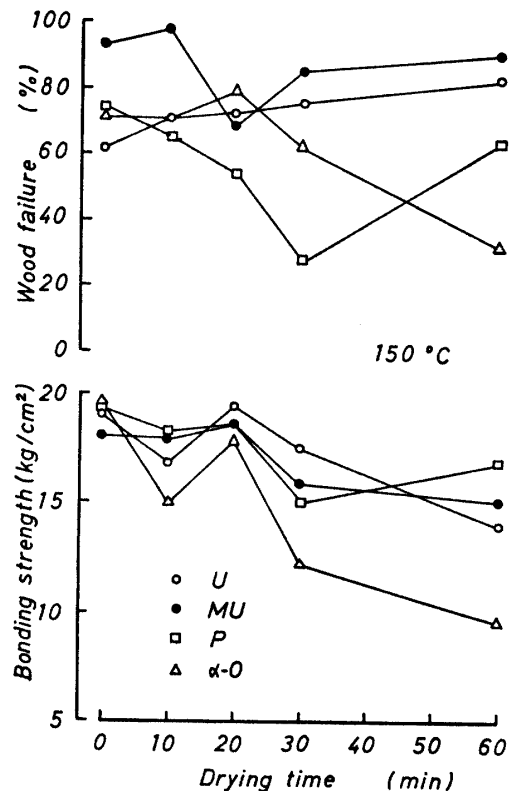


Fig. 6. Dry bond quality of plywood made from veneers dried at 150°C during various times.

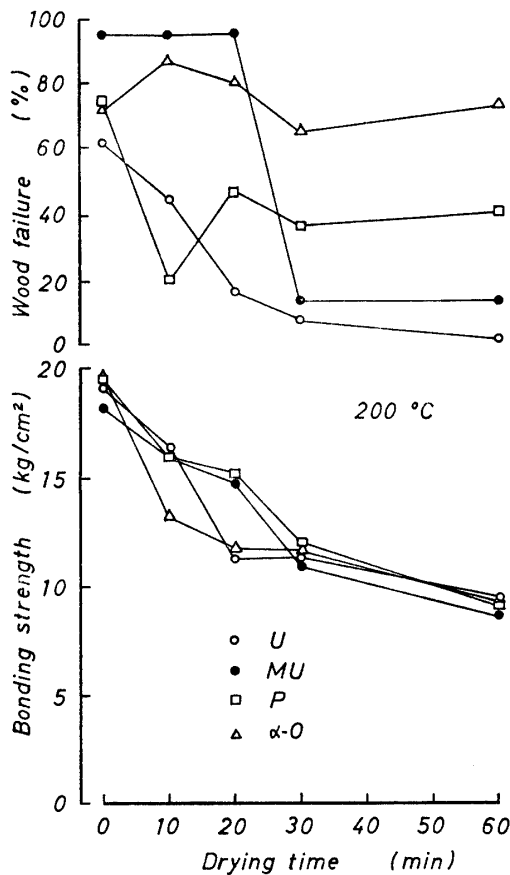


Fig. 7. Dry bond quality of plywood made from veneers dried at 200°C during various times.

鏡で観察したものが Photo. 1 である。欠膠は認められず、木材表面に十分に拡がり得る接着剤量であること、単板表面に開口していた道管や木繊維の内腔に圧入された接着剤が、そのまま抜け出て、細胞内腔面をレプリカした状態で破断面に盛りあがって存在するのが認められる。とくにレッドセイヤ材の道管は大きいので、Photo. 1-A や B にみられるように、道管の内腔に圧入されていた接着剤が、破断面上に大きな細長く盛り上がった部分を形成している。また、Photo. 1-C にみられるように、放射組織に入った樹脂がそのまま抜け出て、柱状になっている。また Photo. 1-D は道管内腔に入っていた接着剤 (Photo. 1-B) を拡大したものであるが、道管と道管の接続部分が明確にレプリカされており、また、内腔面に存在したベスチヤード壁孔がレプリカされて、その表面につぶ状にみえている。

24°C で水滴の接触角の測定結果 (Figs. 2 と 3) は、200°C、60 分の条件で乾燥された単板表面の水に対する親和性が低いことを示している。しかし、熱圧とい

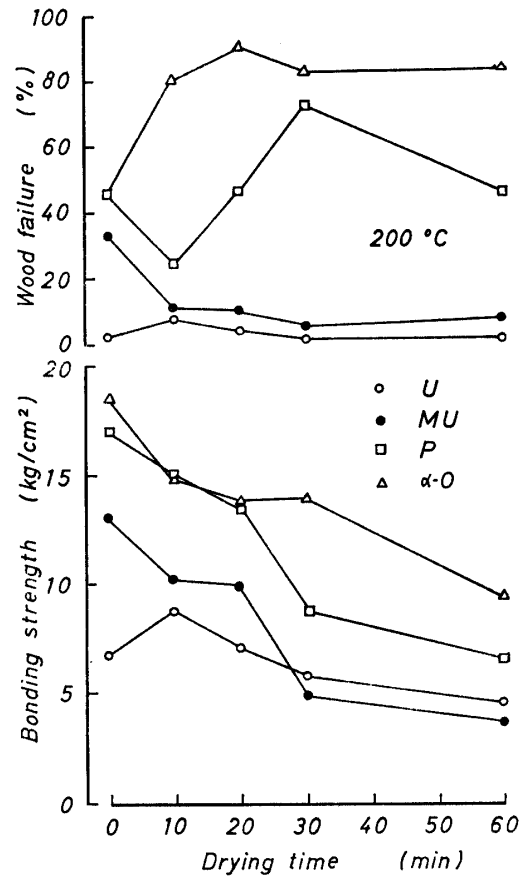


Fig. 8. Wet bond quality of plywood made from veneers dried at 200°C during various times.

う過程で接着剤の粘度あるいは表面張力は低下し、接触角が小さくなり、さらに圧力を加えた結果、SEM 観察で明らかにしたように、木材と接着剤が十分接触したと考えられる。一方、接着力試験に際して、木部で破断せず、木材と接着剤の界面で破断したということは、過酷な乾燥の結果、単板表面が不活性化され、木材表面と接着剤との結合が十分でなかったことを示唆している。

#### 4. 直火式乾燥機で乾燥した単板の湿潤挙動と接着性能

この乾燥機は、実際にある合板工場で用いられているものであり、木粉を燃焼させてその熱風で単板を乾燥する方式である。乾燥機の全長は42mで、21セクションから成っており、初めの21セクションは270°C、11~15セクションは240°C、16~21セクションは180°Cである。試料 A は、通常運転時の単板送り速度21m/min で含水率10%まで乾燥した単板であり、試料 B は、送り速度を14m/min (全乾) としたものの、また試料 C は、試料 A の条件を2回繰り返して乾燥した単

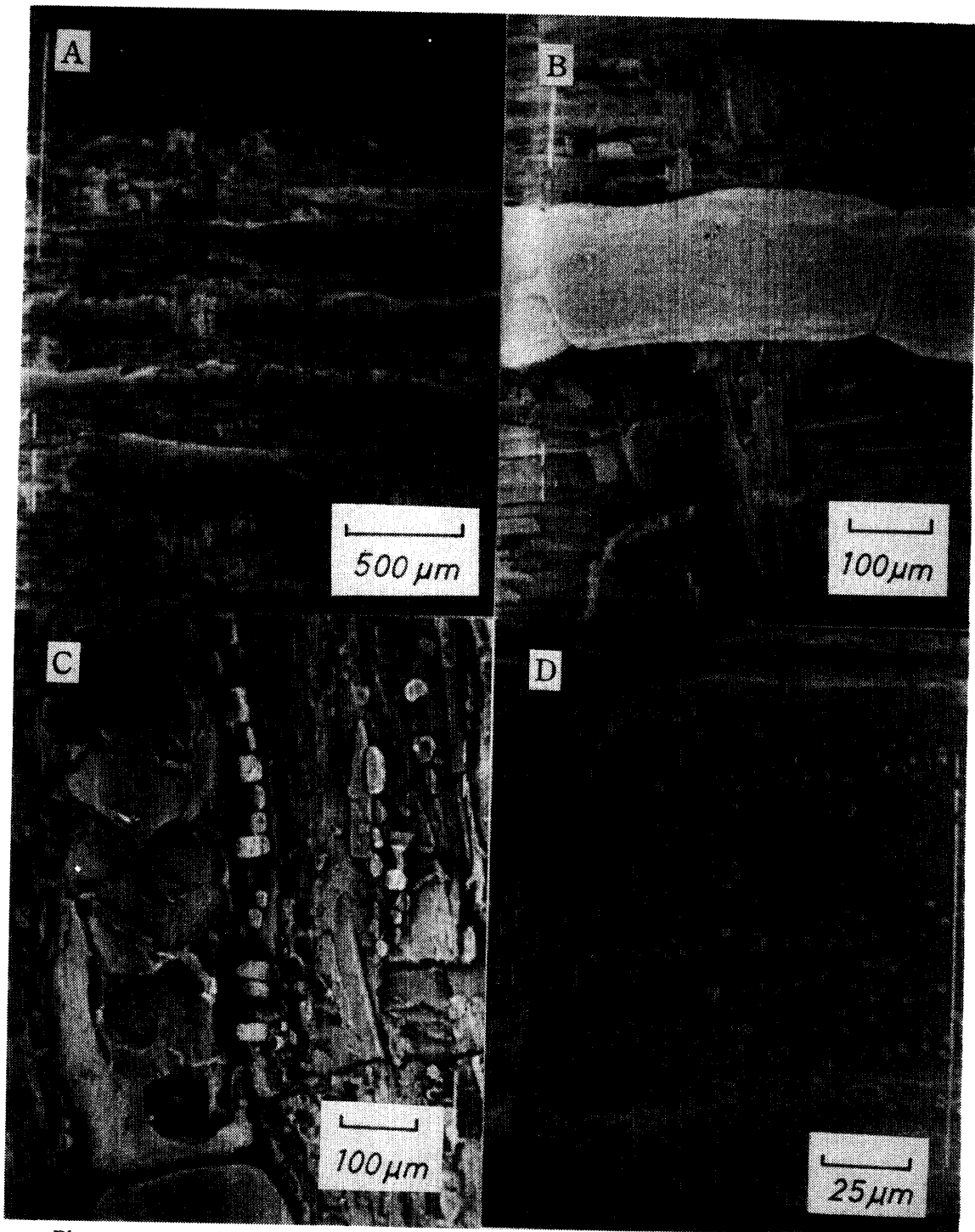


Photo. 1-A.: The fractured surface produced in the shear test specimen of plywood was observed with a scanning electron microscope. Plywood made from the veneers, which was dried at a 200°C drying temperature and 60 minutes drying time. The large ridge in Photo. 1-B indicates the adhesive which flowed into the cut vessel of the veneer surface. Columns in Photo. 1-C indicate the adhesive which filled ray cells. In Photo. 1-D, the replica of vestured pit is seen on the surface of the large ridge. These results indicate that, though the adhesive was in close contact with the cell wall, the adhesive did not adhere to the cell wall.

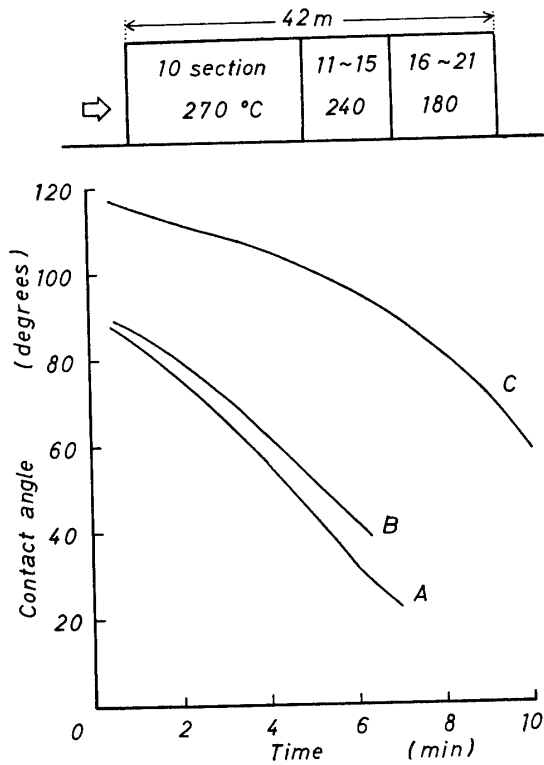


Fig. 9. Contact angle of water on the commercially dried veneer. The veneer was dried with a direct gas-firing type dryer in a plywood plant. The total length of dryer was 42m, and the air temperature in the first to 10 sections was 270°C, 11 to 15 sections 240°C and 16 to 21 sections 180°C. The total drying times of samples A and B were 2 and 3 minutes respectively. Sample C was the veneer which was made by dring twice sample A.

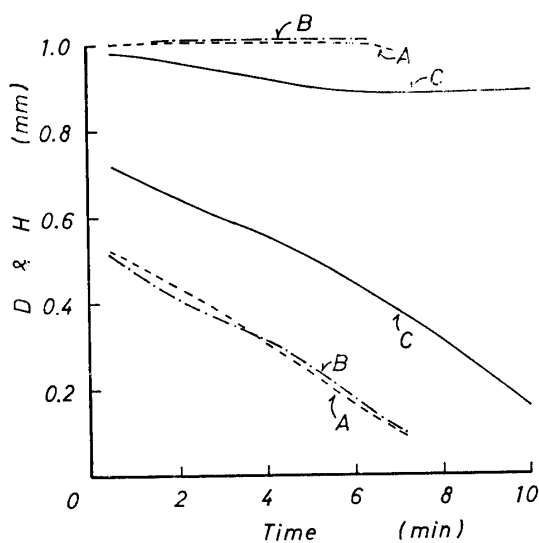


Fig. 10. Change of the shape of the droplet on the commercially dried veneer.

板である。

Fig. 9 は、このような乾燥を行なった単板表面（木表面）での水滴の接触角の経時変化を示しているが、試料 A と B の接触角には大きな差異はなく、Fig. 2 に示したコントロールの接触角よりやや大きい程度であり、また接触角の経時変化は両者とも類似している。一方、試料 C での接触角は、試料 A や B に比べてかなり大きく、Fig. 2 に示した 200°C のそれに類似した値となっており、また接触角の経時変化も 200°C のそれと同様小さい傾向が認められる。

また、水滴の直径の高さの経時変化 (Fig. 10) は、試料 A と B は、Fig. 3 に示したコントロールの場合と同様に、液滴の直径が経時的に変化しないのに対して、高さが経時的に変化している。一方、試料 C は、Fig. 3 に示した 200°C の単板でみられたと同様に、液滴の直径と高さがともに経時的に変化している。

Fig. 11 は、このような単板で製造した 3 プライ合板の接着試験結果であるが、ユリア、メラミン・ユリアおよびフェノール樹脂接着剤の場合、乾燥条件が過酷になるほど接着力が低下し、試料 C の単板の接着性能の低下が他に比べて顕著である。また、試料 C の接着力試験で木部破断率が 0% であったものは、熱板乾燥の 200°C、60 分のユリア樹脂接着剤の合板でみられたと同様に、接していた単板表面の道管や木繊維、あるいは放射組織に圧入された接着剤が、そのまま抜け出

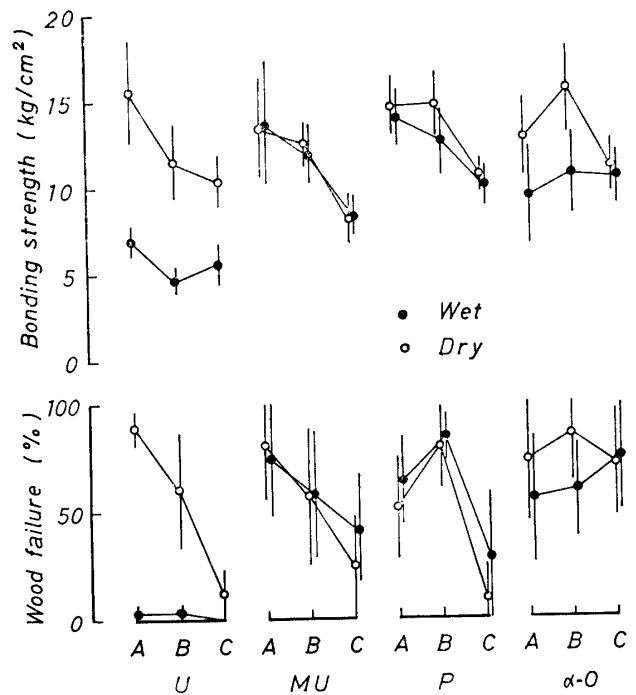


Fig. 11. Bond quality of plywood made from the commercially dried veneers.

て、いわゆるレプリカされた状態が破断面上に観察された。乾燥時における単板表面の最高温度を測定していないので、詳細は不明であるが、接触角および接着力試験の結果からすると、試料 C の単板表面は、前記 200°C で熱板乾燥した単板と同程度まで不活性化されたものとみられる。

謝辞：本研究の一部は、昭和53年度文部省科学研究費（総合研究 A, 336015）によって行なった。また、実験に際しては榎本直行君にご協力いただいた。ここに謝意を表するものである。

### 引用文献

- 1) Northcott R. L. (1957) : The effect of dryer temperatures upon the gluing properties of Douglas-fir veneer, *For. Prod. J.*, **7**, (1) 10-16.
- 2) ——— and H. G. M. Colbeck (1959) : Effect of dryer temperatures on bending strength of Douglas-fir veneers, *For. Prod. J.*, **9**, (9) 292-297.
- 3) ——— and ——— (1959) : Undercure case-hardening in plywood, *For. Prod. J.*, **9** (12) 442-451.
- 4) 筒本卓造・佐藤庄一 (1965) : 単板の乾燥特性に関する研究 (第 2 報) 乾燥温度の単板品質に及ぼす影響, 林試研報 No. **173**, p. 155.
- 5) Hancock W. V. (1963) : Effect of heat treatment on the surface of Douglas-fir veneer, *For. Prod. J.*, **13**, 81-88.
- 6) 上原 徹・伊藤 隆・後藤輝男 (1978) : アピトン材の接着性におよぼす加熱処理の影響, 第28回日本木材学会大会要旨, p. 283.
- 7) Suchsland O. and R. R. Stevens (1968) : Glueability of southern pine veneer dried at high temperatures, *For. Prod. J.*, **18**, 38-42.
- 8) Sisterhenm G. H. (1961) : Evaluation of an oil-fired veneer dryer—its effect on glue bond quality, *For. Prod. J.*, **11**, 207-211.
- 9) Keylwerth R. (1952) : Der Verlauf der Holztemperatur während der Furnier- und Schnittholztrocknung, *Holz als Roh- u. Werkstoff*, **10**, 87-91.
- 10) Chow S. (1975) : Minimizing wood surface inactivation at high temperatures by Boron compounds, *For. Prod. J.*, **25**, 41-48.
- 11) 林業試験場編 (1973) : “木材工業ハンドブック”, 丸善, p. 567-576.
- 12) 栗山 旭 (1967) : 木材の200°Cまでの加熱処理による化学的变化について, 材料, **16**, 772-776.
- 13) 田口 昇 (1973) :  $\alpha$ -オレフィン樹脂接着剤, 接着, **17**, 298-307.

### Summary

The effects of drying temperature and time on wettability and gluability of red seraya veneer were examined. The veneers were dried with a hot press at each of temperatures of 120, 150 and 200°C, under no pressure. The wettability of the tight surface of these veneers by water was determined by the sessile drop method, in which photographs were taken through a horizontal microscope of a small water droplet (0.0006 ml and about 1 mm diameter) at successive time intervals after its introduction onto the veneer surface from a microsyringe. On the other hand, these veneers were glued into 3-ply panels of 6 mm total thickness with the commercial adhesives of urea resin (U), melamine-urea resin (MU), phenol resin (P) and  $\alpha$ -olefin resin ( $\alpha$ -O).

Results obtained are as follows :

- 1) The wettability of veneers decreased as the drying temperature and time increased. Especially increasing drying temperature from 150 to 200°C resulted in an increase in the contact angle (Fig. 2).
- 2) The diameter of droplet on the veneer surface dried at the temperature of 120°C, was almost constant with the lapse of time, but the height of droplet decreased with time in all cases. On the other hand, the diameter of droplet on the overdried veneer decreased with time, that is, this tendency was analogous to that found on paraffin (Figs. 3 and 4).
- 3) According to the results of contact angle and bond quality, the veneer surface dried at the temperature of 120°C was appreciably less inactivated.
- 4) Bonding strength of plywood which made



from veneers dried at the temperature of 200°C decreased with increasing drying time in all cases (Fig. 7).

5) The fractured surfaces produced in shear bonding test specimens of plywood made from

veneers which were dried at 200°C drying temperature and 60 minute drying time, were observed with a scanning electron microscope. These results attested to the lack of bonding between the adhesives and the cell wall.