

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：21401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23580232

研究課題名(和文) 接着剤の微量塗布技術を用いた木質マイクロプライの開発

研究課題名(英文) Manufacturing technology of thin veneer multiple laminated materials with small amount spreading system of adhesive

研究代表者

山内 秀文(Yamauchi, Hidefumi)

秋田県立大学・木材高度加工研究所・准教授

研究者番号：90279513

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：接着剤塗布に微量塗布技術を適用し、薄単板を積層した薄物・多層の単板積層材料(木質マイクロプライ)を形成する技術を検討した。

スギの0.3mm単板を利用し、接着剤塗布量約6g/m<sup>2</sup>で作製することで、10plyで厚さ約2mm、密度がわずか0.4g/cm<sup>3</sup>の積層材料を得ることができた。その性能は、通常のスギ合板と同等であり、単板の積層構成を変えることでその曲げ強さを最大100MPa程度まで向上できること、スプレーによる微量塗布技術の確立やプリプレグ法の開発により実用的な生産技術となりうることを明らかにできた。

研究成果の概要(英文)：Manufacturing technology of thin veneer multiple laminated materials with small amount spreading system of adhesive were investigated.

The micro multiple laminated materials made with Sugi veneers of 0.3mm thickness and phenol formaldehyde resin of 6g/m<sup>2</sup> spreading rate had 2mm thickness and 0.4g/cm<sup>3</sup> specific gravity. The mechanical properties of the materials with orthogonal laminate were as same as commercial Sugi plywood. The modulus of rupture of the materials was improved up to 100MPa by oriented laminating. As more practical technology, such as the new type small amount spreading system of adhesive and the manufacture technique like pre-impregnation technique to call "Prepreg" has been developed.

研究分野：木質材料学および木質材料加工学

キーワード：微量塗布技術 薄単板木質積層材料 薄物・多層 接着剤 合板 LVL

## 1. 研究開始当初の背景

木材の生物的特徴を最もうまく利用した木質材料の一つに、合板やLVLがある。この種の材料の歴史は古く、薄い単板を接着・積層することで、性能の均質化や異方性の制御を達成している。これを構成する単板は加工歩留まりが高く、成型時のエネルギー消費量も小さいことから、金属やプラスチックなどの他材料と比較しても、材料性能・環境性能ともに突出して優れた材料の一つである。

合板やLVLは、構成単板を薄くし、積層数を増すほど、性能の安定性が向上し、積層構成の選択幅も大きくなる。しかし実際には、積層数が増すに従って接着層が増えること、構成単板が一定より薄くなると材料内での接着剤の比率が大きくなることなどから、従来の接着剤塗布技術による多層化、薄物化には限界があった。このため、合板やLVLが他材料に比べ非常に優れた性能を持つにも関わらず、その用途は、従来からある建用や家具用が依然として主体であり、新たな用途の開発・展開はあまり進んでいない。

研究代表者らは研究開始時まで、接着剤の微量塗布技術の研究を行ってきており、接着剤の固形分ベースで接着層あたり  $5\text{g}/\text{m}^2$  程度の極めて少ない塗布量でも、木材接着剤耐久試験で最も厳しい JIS の 72 時間連続煮沸に耐える接着が得られる可能性を明らかにしていた。

この微量塗布技術を用いれば、従来技術では 3ply で造られていた比較的薄い合板を 10 層にまで多層化しても、必要な接着剤量は  $1/3$  程度にできる。逆に言えば、化粧用に用いるような薄単板をエレメントに用いることで、接着剤量や密度の極端な増加を招くことなく、合板やLVL並みの耐久・耐水性や力学性能を持つ、厚さ数ミリ程度の極めて薄い木質材料が得られる可能性を示している。

## 2. 研究の目的

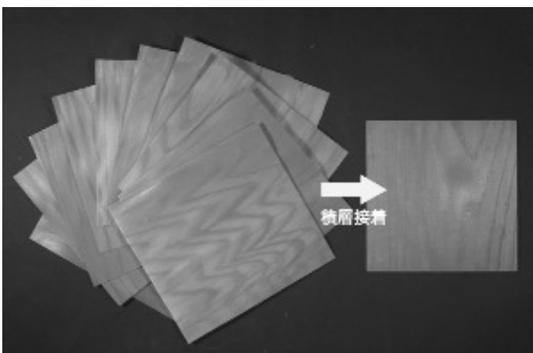


図1 薄単板・多積層材料(木質マイクロプライ)

木質材料として最も優れた性能を持つと考えられる合板などの単板積層材料の技術を応用し、 $0.5\text{mm}$  以下の極薄単板をエレメントとして、独自開発した接着剤微量塗布技術を組み合わせることで、薄物・多層の木質積層材料(木質マイクロプライ、図1)を開発す

る。また、材料の開発過程で、積層効果、接着剤使用技術などの基礎的検討を行うとともに、積層構成による均質化や他材料との複合化などの応用的検討も行い、最終的にプラスチック材料の一部代替など、木質材料の新たな用途開発に繋げることを目的とする。

## 3. 研究の方法

### (1) 接着剤使用方法の検討

$15\text{g}/\text{m}^2$  以下の塗布量で木材単板に接着剤を塗布すると、極めて短時間で水分の消失が生じることを利用し、木質マイクロプライ(Micro Multiple ply, 以下 MMP) の成形には、常温・短時間で硬化しない PF 等の樹脂を用い、成形前の薄単板表面に接着剤を塗布した形態(=プリプレグ)にあらかじめ調整し、その後あらためて仕組み・成型を行う技術について検討した。プリプレグ法に必要な接着剤の選定、塗布量と接着性能、成型までの時間経過と接着性能の変化などを検討し、最適なプリプレグ調整条件を明らかにした。

### (2) 成形条件・熱圧変形挙動の検討

MMP 用の単板は非常に薄く、熱圧成型時の水分条件が複雑になると考えられたため、接着剤塗布量(水分添加量)やプリプレグ調整条件と成型時の熱圧変形挙動の関係を広く検討することで、成型条件の設計手法を模索した。

### (3) MMP の基礎物性評価

上述した 1 および 2 の検討結果を基に、3~10ply・厚さ  $1.0\sim 2.0\text{mm}$  程度の合板(直行交錯)およびLVL(平行積層)様の平板材料を調整し、曲げ性能や寸法変化率などの物理的性質を測定した。この結果を、従来法で製造した合板、MDF、他材料(P P などの合成樹脂、アルミ板など)などと諸物性の比較を行った。また、同じ技術で紙の多層積層材料を調製するなどして、MMP の材料としての位置づけ、アプリケーションの可能性を明らかにした。

### (4) 積層数による材料物性の安定化

合板などの積層材料は、積層数が増せば増すほど材料の安定性が高まると考えられる。その極限的効果を明らかにする目的で、本研究の MMP を用い、同厚材料の多層化による材料性能の安定効果を評価し、MMP および木質積層材料製造の合理的な使用形態を検討した。

### (5) 実用的な成形技術の探求

MMP はプリプレグ化した薄単板をエレメントに成型を行うので、事前にエレメントの含水率調整が可能である。これを利用し、従来の積層材料ではパンクが生じて成型が難しいような高温条件での成型の可能性を検討する実験を行い、高速成型の可否について評価などを行った。加えて、より実用的な接着

剤塗布技術の開発を試みた。

#### (6) 曲面成形と樹脂複合

MMP の単板厚さが薄くすれば、より小さな曲率に曲げることができることを利用し、曲面成形、特に3次元変位を持つ曲面成形の技術的可能性について検討を行った。また、熱可塑性樹脂との一体成形(図2)の可能性を検討する目的で、熱可塑性樹脂との融合技術や成型方法などの検討も行った。



図2 木質 MMP と樹脂成型品の複合利用

#### 4. 研究成果

研究機関を通して、木質マイクロプライに関して種々の検討を行い、以下のような結果を得た。

(1)インクジェット法(以下、IJ法)に適用できる接着剤はその種類や液性が極めて限定的であることから、より汎用的な微量塗布技術を確立するべく、スプレーによる新しい微量塗布技術を検討した。その結果、 $4\text{g}/\text{m}^2$ の塗布量でIJ法と同様の性能を得ることに成功した。また、p-MDI や低粘度APIも塗布できること、それらの微量塗布で十分な接着性能が得られることが確認された(図3)。

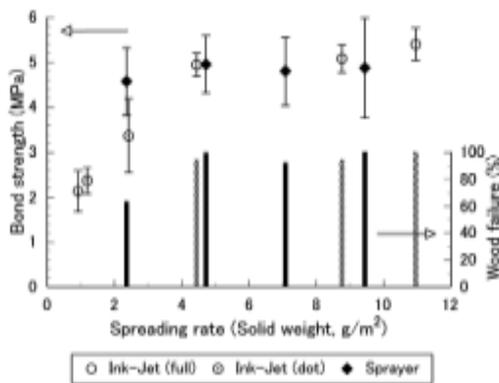


図3 スプレー法による微量塗布接着<sup>①</sup>

(2)フェノール樹脂を適用し、接着剤塗布後の時間経過と接着性能の変化について検討した。この結果、塗布後3時間の放置で含水率が気乾状態で平衡するまで放置した後に熱圧成形しても、十分な接着性能が得られることが明らかになり、接着剤をあらかじめ塗

布した単板によるプリプレグ的使用も可能であることが示唆された。

(3)1.0mm厚スギロータリー単板を用い、フェノール樹脂接着剤を1接着層あたり $10\text{g}/\text{m}^2$ 塗布して3ply・合板条件の成形を行う際に、塗布直後、塗布後3時間風乾(気乾条件)、塗布後に $60^\circ\text{C}$ にて乾燥、の後に熱圧成形し、水分の影響を検討したところ、塗布直後と風乾のものでは成形後の厚さなどに差は見られなかった。より薄い単板では相対的な影響が大きくなるものの、付与水分の影響は小さいと考えられた。

(4)厚さ0.3mmのスギロータリー単板を用い、フェノール樹脂接着剤を1接着層あたり $5\text{g}/\text{m}^2$ 塗布して10ply・合板構成のモデルMMPを作製し、物性評価を行った。その結果、密度 $0.4\text{g}/\text{cm}^3$ の材料を得ることができ、 $\text{MOR}=42.5\text{MPa}$ 、 $\text{MOE}=4.93\text{GPa}$ と、通常の厚さの単板 $\cdot 100\text{g}/\text{m}^2$ 以上の接着剤塗布量で製造されるスギ合板と同等以上の性能を有することが明らかになった(図4)。

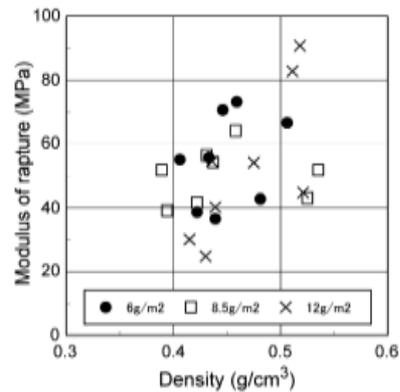


図4 MMPの曲げ強さ<sup>②</sup>

(5)接着層にかかるせん断応力が大きくなる1.0mm条件で3ply合板構成材料を作製し、4時間煮沸による接着耐久性試験を行い、1接着層あたり $6\text{g}/\text{m}^2$ の塗布量でも煮沸に十分耐える性能が得られることを明らかにした。

(6)スギの0.3mm厚ロータリー単板を用い、積層構成による材料性能の変化を検討した。LVL構成(完全配向)とすることで、5ply・密度 $0.5\text{g}/\text{cm}^3$ で繊維方向平行 $100\text{MPa}$ の性能が得られることが明らかになった。また、合板構成においても、積層数を増やすことで繊維方向・繊維直交方向の性能差を小さくできることが示唆された。

(7)接着剤に天然系のクエン酸やスクロース・タンニンを用いることで、非石油系の材料のみでもPF使用時と同様の薄層材料が得られることを明らかにした。

(8)より大きな材料の製造実験を行えるよう、

電子制御の XY アクチュエーターを用いた、大判の自動塗布装置の設計を開始した。25 年度の冒頭にも製作予定

(9) 樹脂との複合化について検討を始め、ウレタン樹脂を用いた射出成形によって複合材料モデルを作製し、製品における 25-30% の軽量化、1/3-2/3 の樹脂量低減とともに、ねじれ剛性が大幅に向上した製品が得られることが明らかになった。

(10) 実用的な材料性能評価を行うために、より大判での試作を行うための接着剤塗布装置昨年度末より設計に入り、今年度初頭に最終仕様を決定した。装置は、全て汎用パーツを用いることとし、研究者自らが装置を組み上げるものとした。具体的には、稼働範囲が 700mm および 1000mm の電動アクチュエーターを、PC 制御が可能な汎用の 2 軸モーターコントロールユニットにて駆動することで、最終的に 600×900mm の塗布範囲を持つ塗布装置を作製することができた (図 5)。この際、塗布ヘッドを駆動するアクチュエーターは、最高速度 2000mm/sec の仕様を与え、上述した塗布範囲を 135sec で塗布することを可能とした。この装置に、これまでの小試験体作製実験で用いてきた噴霧ヘッドを装着して、同じ塗布条件にて塗布量の定量を行ったところ、塗布量に再現性があることが確認された。また、600mm 角の単板を用いた試作実験の結果、これまで小試験片で確認された曲げ性能や耐煮沸性等の物性も同様の性能を持つ材料が得られたことから、これまでの知見が研究室レベルの小試験片に限ったものではなく、実用的な寸法における材料づくりにおいても適用できるものであることが確認された。



図5 大判塗布装置

(11) 実用的な材料生産・製造技術を想定し、接着剤塗布後の薄単板を接着剤塗布後に再乾燥・保存し、漸次乾燥状態で材料製造に用いる、いわゆるプリプレグ法の改良技術を検討した。汎用の合板用 PF 樹脂を用い、50℃ 下で 72 時間養生した後に積層・接着した MMP に関しても、これまで同様の接着性能が得られることを確認した。

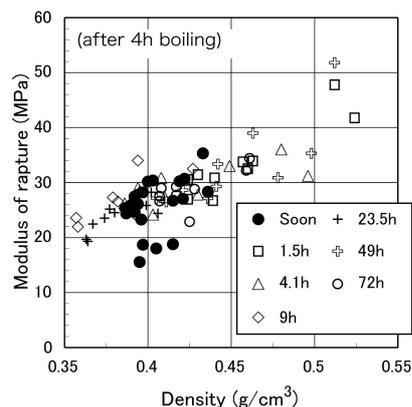


図6 曲げ強さへの解放堆積時間の影響<sup>③</sup>

(12) 汎用樹脂との接着性能改善を目的として、単板が薄いことを利用した簡易な化学修飾方法を検討した。モデル処理にアセチル化を用い、厚さ 0.3mm の薄単板を用いた処理実験を行った。その結果、80℃ の低温処理で 6-12 時間程度処理することで、無水酢酸のみでも 15% の重量増加が得られた。また、合板での試験より、接着に必要な表面のみの処理であれば、気相処理などのより緩い条件でも十分処理可能であることが示唆された。

#### <引用文献>

- ①山内秀文・梅村研二，インクジェット法を用いたフェノール樹脂接着剤の微量塗布技術(3)-インクジェット法に代わる塗布手法開発の可能性-，第 62 回日本木材学会大会，2012.3 (札幌)
- ②山内秀文，梅村研二，接着剤の微量塗布技術を適用した薄単板積層材料の開発，第 62 回日本木材学会大会，2013.3 (盛岡市)
- ③山内秀文，足立幸司，梅村研二，第 64 回日本木材学会大会研究発表要旨集，Vol. 64th p. r. n. I14-10-1300，2014.3 (松山市)

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ①山内秀文、梅村研二、インクジェット法を用いたフェノール樹脂接着剤の微量塗布技術 (第 1 報) -塗布装置の概要および接着剤塗布量と接着性能の関係-、木材学会誌、査読有、2015 (審査中)
- ②山内秀文、接着剤塗布量と接着性能、木材工業、査読有、2015 (印刷中)
- ③山内秀文、薄単板積層材料の開発とその可能性、秋田の森林づくり、査読無、No. 710、p. 6-7、2015

〔学会発表〕（計 4件）

①山内秀文、梅村研二、インクジェット法を用いたフェノール樹脂接着剤の微量塗布技術(3)-インクジェット法に代わる塗布手法開発の可能性-、第 62 回日本木材学会大会、2012. 3. 16、北海道大学（札幌市）

②山内秀文、梅村研二、接着剤の微量塗布技術を適用した薄単板積層材料の開発、第 63 回日本木材学会大会、2013. 3. 28、岩手大学（盛岡市）

③山内秀文、足立幸司、梅村研二、接着剤の微量塗布技術を適用した薄単板積層材料の開発(II)-薄単板積層材料の合理的製造技術-、第 64 回日本木材学会大会、2014. 3. 3、愛媛大学（松山市）

④山内秀文、接着剤の微量塗布技術を用いた薄単板積層材料の開発、第 32 回日本木材加工技術協会年次大会、2014. 10. 29、秋田ビューホテル（秋田市）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 1件）

名称：木質系積層成形物

発明者：山内秀文

権利者：秋田県立大学

種類：特許

番号：特開 2013-226680

出願年月日：平成 24 年 4 月 25 日

国内外の別：国内

〔その他〕

本研究の内容により、（公社）日本木材加工技術協会・第 13 回市川賞を受賞

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山内 秀文 (YAMAUCHI, Hidefumi)

秋田県立大学木材高度加工研究所・准教授

研究者番号：9 0 2 7 9 5 1 3