

## イソシアネートを結合剤とした パーティクルボードの振動特性

本多 琢 己

Damping Properties of Isocyanate Resin-bonded  
Particleboard.

Takumi HONDA

Summary : In order to investigate the bonding property of diisocyanate (polymeric MDI) bonded particleboards, the effects of experimental variables in laboratory-made particleboard on dynamic modulus of elasticity and damping properties of loss tangent were investigated. Wood chips of sugi and mixed ones of ezomatu and sugi and three different kinds of adhesives were used for making mono-layer particleboard. The results obtained were as follows ; (1). Whereas the dynamic modulus of elasticity of MDI-bonded board increased with increasing resin content, loss tangent had a tendency to decrease. (2). MDI-bonded board showed a higher dynamic modulus of elasticity and a lower loss tangent than phenol-formaldehyde resin (PF) and urea-formaldehyde resin (UF) boards. (3). Loss tangent of MDI-bonded board with ezomatu-mixed chips and a resin content 5 percent were observed to be smaller with a resin content 7 percent. (4). Vibrational resonance curves of MDI-bonded board showed the sharpe curves. (5). MDI-bonded board obtained the superior properties of modulus of elasticity (MOE) and modulus of raptuer(MOR). This was realized by the anchoring effect of the derivatives which were produced from the reaction of isocyanate and water, once absorbed into woody tissues. (6). MOE and MOR of board made from ezomatu-mixed chips with a low level of resin content (5%) were observed to be considerably greater than those of PF-and UF-boards with a resin content of 13 percent. It is necessary with MDI-bonded board to determine an optimum resin content which accords with the wood species and particleshape so as to have the same damping and bending properties as PF-and UF-boards.

要旨：イソシアネートを結合剤とした実験室作製パーティクルボードの動的弾性率 ( $E'$ )、損失正接 ( $\tan \delta$ ) に及ぼす含脂率、チップの形状などの影響及び接着状態などを調べた。スギチップとこれにエゾマツを混合したチップを用いてイソシアネート (MDI)、フェノール樹脂 (PF)、ユリア樹脂 (UF) ボードを作製した。以下に得られた結果を要約する。

(1) MDI ボードの  $E'$  は含脂率の増加と共に大きくなり、 $\tan \delta$  は小さくなった。(2) MDI ボードは PF 及び UF ボードに比べて  $E'$  が大きく、 $\tan \delta$  が小さい。(3) MDI ボードの  $\tan \delta$  は、エゾマツ混合チップを用い含脂率を 5% とするとさらに小さくなった。(4) MDI ボードの MOE、MOR などの曲げ性能は他のボードより優れていた。これは、イソシアネートと水が反応してできるイソシアネート化合物の接着効果により優れた結合力が発揮されたためと考えられる。(5) エゾマツチップを用いた含脂率 5% の MDI ボードでは、その MOE、MOR が含脂率 13% の PF あるいは UF ボードの値を大きく上回った。イソシアネートを結合剤とするボードに PF 及び UF ボードに匹敵する振動、曲げ性能を付与するには、チップの樹種、形状に見合った最適な含脂率を選択する必要がある。

## I 緒 言

現在、世界各地で資源問題が活発に議論されている。これは、海外の資源への依存度が高い我が国においては、極めて深刻な問題である。木材分野においても、資源の制約に加えて政治的・社会的情勢の変化から、木材の需給にアンバランスが生じてきている。

このため、将来の木質原料の使用範囲を拡大し、針葉樹間伐材、未利用広葉樹及び工場残廃材などの有効利用が可能なパーティクルボード、ファイバーボード等再生木質ボードの需要増が見込まれ、今後、これらの木材工業の発展が予想される。

従来から、我が国のパーティクルボードは、ユリア樹脂やフェノール樹脂を結合剤に用いた内装・家具用ボードを主体に生産されてきているが、今後は、構造用合板の代替としての構造用ボードの製造が指向されることが考えられ、その場合はより優れた性能が要求されることから、パーティクルボード用の優れた結合剤の選択が重要な課題となってくる。

イソシアネート化合物は以前から優れた接着剤として工業的に認められている<sup>1)</sup>。イソシアネート系接着剤であるジフェニルメタンジイソシアネート(MDI)は、近年急速に成長した結合剤であり、ボード用結合剤としての適性を備えている<sup>2)</sup>。しかし、MDIを結合剤としたパーティクルボードに関する研究は、アメリカ、ドイツで数例の報告があるのみで研究蓄積が少なく、含脂率なども確定していない状況である。

本研究では、イソシアネートを結合剤とするパーティクルボードを作製し、動的弾性率、対数減衰率、曲げ性能などへの含脂率の影響及び接着状態を調べ、フェノール樹脂、ユリア樹脂を結合剤としたパーティクルボードも同時に作製し比較検討した。

## II 実 験

### 1 供試材料

チップは、スギのシェービング(JIS No.2メッシュをパスしNo.5メッシュ以下を除去したもの)と、低含脂率(5%)ボード製造のためスギのシェービングとエゾマツの針状のシェービングを5.5:4.5の割合で混合したものを用いた。気乾チップをボード製造に供試した。

#### (1) 接 着 剤

接着剤は大別して次の3種類を用いた。

- (a) イソシアネート系接着剤(ポリメリックMDI、NCO含有量31%)：日本ポリウレタン工業(株)製(MR200、MR500)を、有機溶媒で希釈(前者はトルエンを3:1の割合で添加、後者はアセトンを少量添加)し、塗布時の粘度を調整した。ポリメリックMDIは、図1に示すようにジ、トリおよびそれ以上の多核イソシアネートの異性体の混合物からなっている。MR500は、MR200よりも数の多い官能基の異性体を含む割合が多い。この接着剤をMR200、MR500と略す。

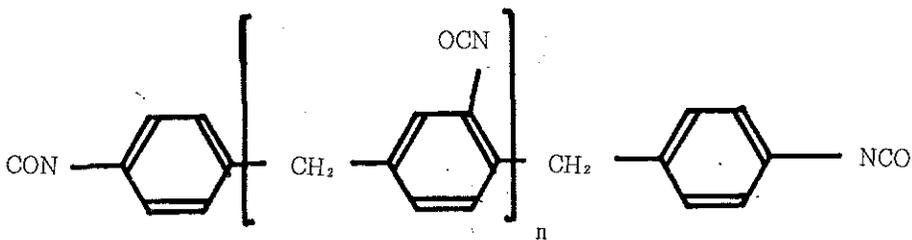


図-1 MDIの構造式  
Structure of polymeric MDI.

- (b) フェノール樹脂接着剤：大鹿振興(株)製 (ディアノール)、樹脂率45%、この接着剤をPFと略す。
- (c) ユリア樹脂接着剤：常法により実験室作製、樹脂率：47%、pH：7.0、硬化剤：塩化アンモニウム2%、この接着剤をUFと略す。
- (2) ボードの製造  
 回転ドラム法により接着剤を吹き付け、次の条件で熱圧した。  
 圧力：20(3分)→15(3分)→10(3分)  
 各 $\times 10^5$ Pa  
 圧縮温度：MDIボード、PFボード：155℃、UFボード：140℃  
 含脂率：5%、7%、10%、13%  
 ボード構成：ランダム単層ボード  
 目標比重：0.6  
 製造枚数：1製造条件について2枚

## 2 試験法

### (1) 動的弾性率と $\tan \delta$ の測定

大きさ $30 \times 21 \text{cm}^2$ 、厚さ約6mmのボードから、幅：2cm、長さ：25cmの試片を、1製造条件について16片を作製した。試片を20℃、65%RHで調湿後、寸法と重量を測定した。

振動の測定は図2に示す片持梁強制振動法によった。試片の端と、そこから6cm離れた裏面の位置に、正方形(1 $\text{cm}^2$ )のスチール板を図示のように接着(シアノアクリレート)し、試片をクランプに水平になるよう固定する。コイル相互の磁場の影響を考慮し、スチール板の間隔を6cmとした。スチール板に極小の磁石を取り付け、上下コイルの中心に位置するようにセットした。受信コイルの感度を向上させるためには試片振動面とコイルとの間隔が極力小さいことが望ましいとされている。

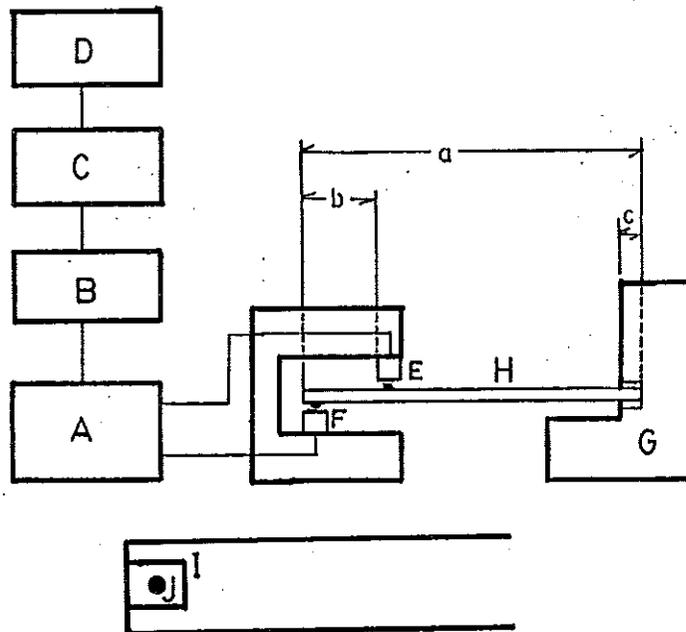


図-2 振動装置の概略図

Apparatus for vibration of particleboard specimens.

記号の説明：A：アンプ、B：電圧計、C：オシログラフ、D：周波数カウンター、E：送信コイル、F：受信コイル、G：クランプ、H：試片、I：鉄片、J：磁石

Legend：A：Anplifier, B：Voltmeter, C：Oscillator, D：Frequency conuter, E：Upper coil, F：Under coil, G：Kuranpu, H：Test specimen, I：Steel, J：Small magneto.

Note：a=25cm、b=6cm、c=2.2cm

る<sup>3)</sup>が、試片がコイルに吸着することがあるため吸着しない程度にこの間隔を調整した。また、クランプの支持圧力の影響を考慮し、試片がコイルに吸着しない程度に締め付けた。

送信側(下)コイルから、試片に振動を促すエネルギーが与えられる。受信側(上)コイルとある間隔にある金属片との閉鎖回路で、磁極と金属片の間隙変化に伴い、コイル中を通る磁束に変化が生じ、この変化による超電力で運動が検出される。まず、周波数を変えながら試片を振動させ、共振周波数(fr)を検出する。この場合の共振点は、電圧が最大値となる周波数を指す。このfrの前後における周波数と電圧の値から共振曲線が求まる。共振曲線を求める際には長時間の同一周波数における振動を避けるため、すばやくツマミを切り替えた。共振時における振幅をAとすると、振幅が $A/\sqrt{2}$ まで低下する両側の周波数 $f_1, f_2(>f_1)$ から、対数減衰率 $\tan \delta = (f_2 - f_1)/fr$ が得られる。動的弾性率 $E'$ はEq.(1)で示せる。

$$E' = 4 \pi^2 L^4 \rho [fr^2 + (f_2 - f_1)^2 / 8] / (1.875)^4 t^2 \quad (1)$$

ここに、L：試片の長さ(cm)、 $\rho$ ：密度( $g/cm^3$ )、t：試片の厚さ(cm)である。

この実験は恒温恒湿室(20°C、65%RH)で行った。

#### (2) 曲げ強度試験

振動試験の測定をした試片からスチール板を取り除き、曲げ強度試験に供試した。テンシロン(東洋ボールドウインK.K)を用いて、両端支持、中央集中荷重方式により曲げ強度試験を行い、荷重-たわみ曲線から曲げヤング率(MOE)、曲げ強度(MOR)、破壊時までの曲げ仕事量( $U_b$ )をそれぞれ算出した。

測定は、テンシロンをビニールシートで覆い、シート内の温度を20°C前後に保った状態で行った。

### III 結果と考察

#### 1 振動試験

密度で除した比動的弾性率を $E'$ 、損失正接を $\tan \delta$ で表す。

##### (1) 接着剤の種類と含脂率の影響

共振法では共振曲線の対称性の良否が結果に影響を与える<sup>3)</sup>。共振曲線においてピークの右側でずれが生じて左右対称とならない例が若干観察された。このような例では、 $F2 - F1 = 2(Fr - F2)$ として処理した。

それぞれの接着剤によるボードの $E'$ 、 $\tan \delta$ を含脂率に対してプロットしたのが図3である。ボードの目標比重が一定のため、接着剤の量の増加分だけチップの量が減少する。 $E'$ は含脂率の増加と共に次第に増大する傾向がうかがえる。含脂率の増加によりチップ相互の結合が良くなったためである。MR200ボードの $E'$ は各ボードに比べてかなり大きな値を示し、含脂率13%で4.5Pa以上になる。MR500ボードの $E'$ は、MR200ボードより劣った。これは接着剤自身の差というよりもむしろ粘度調整の違いなどによりチップ相互の最適な結合力が得られなかったためと思われる。UFボードは含脂率の影響が顕著であるが、一方PFボードでは含脂率10%で $E'$ の増加が頭打ちになる。

$\tan \delta$ についてみると含脂率の増加によって減少の傾向がうかがえる。これは、含脂率の増加で、チップ相互の摩擦による振動エネルギーの減少割合が小さくなるためと考えられる。ただし、UFボードだけは逆に増加の傾向を示した。UF樹脂が粘性に乏しいことと関係がありそうである。MR両ボードの $\tan \delta$ はUFボード、PFボードに比べてかなり小さな値を示し、含脂率7%でPFボードの13%と同程度である。MR500ボードの $\tan \delta$ はMR200ボードと差異はなく、含脂率によって $2.0 \sim 2.2 \times 10^{-2}$ の範囲にある。MRボードの $\tan \delta$ がかなり小さな値を示すのは、イソシアネートが樹脂化する際に分子どうしがポリ・ユリア結合して緻密な構造に発達するためと考えられる。

以上から、4種類の中でMR200ボードのE'は最も大きく、逆にtan δは最も小さいといえる。つまり、MR200ボードは共振曲線のピークが大きくて減衰作用が小さい。また、MR500ボードのピークはこれより下がるものの、減衰作用は同程度である。PFボードはE'、tan δ共に中庸である。UFボードのE'、tan δはそれぞれMR500、PFボード程度の値を示すが、含脂率の増加に比例して減衰作用が大きくなった。

(2) 共振曲線の形と tan δ

共振曲線は、その形状から鋭い、鈍いのお

およそ2タイプに分かれる。共振曲線の形に及ぼす影響として金属片の重量、金属片接着に用いた接着剤の種類、クランプにおける振動エネルギーの放散等が考えられる。ピークの大小と共振曲線タイプとの関連はあまり顕著でない。ボード別にみると、MRボードは鋭いタイプ、UFボード、PFボードは鈍いタイプが比較的多い。frに対してtan δをプロットした図4から、両者間に相関関係は認められないが、MRボードの共振曲線の特徴としてfrが大きい割にはバンド幅が小さいといえる。

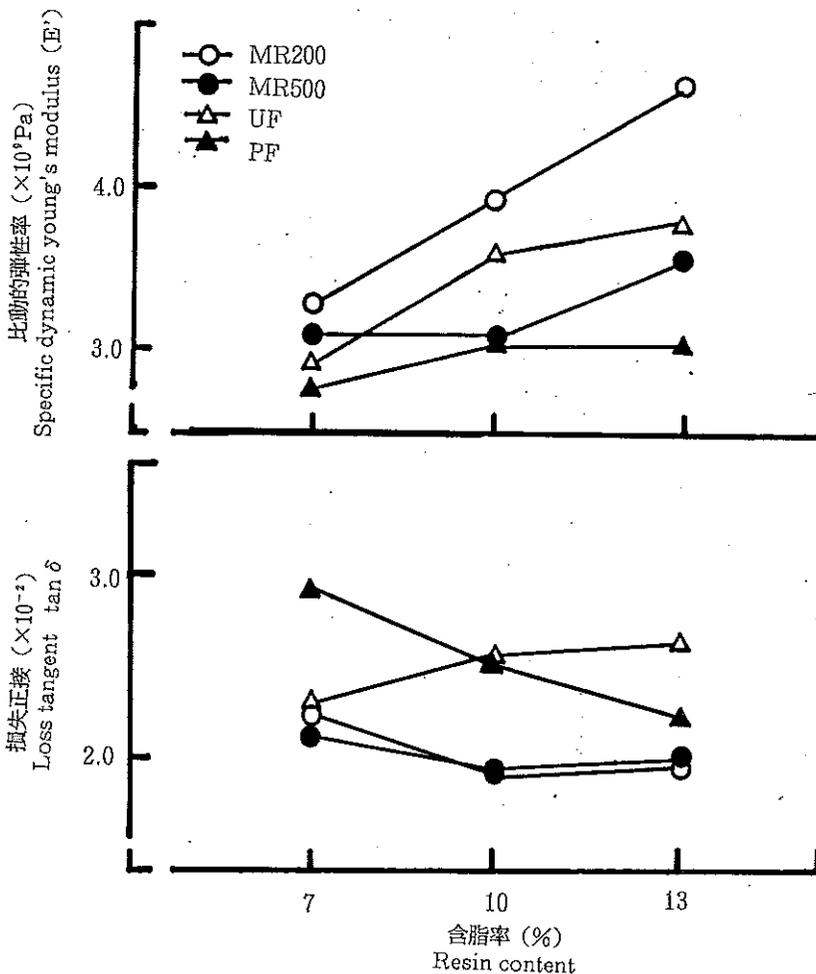


図-3 含脂率が比動的弾性率と tan δ に及ぼす影響

Effect of resin content on specific dynamic dynamic young's modulus(E') and loss tangent(tan δ).

記号の説明：MDI200, MDI500：MDI系イソシアネート。PF：フェノール樹脂。UF：ユリア樹脂。  
 Note：MR200 and MR500：4,4, diphenyl metan diisocyanete. PF：Phenol formaldehyde.  
 UF：Urea formaldehyde.

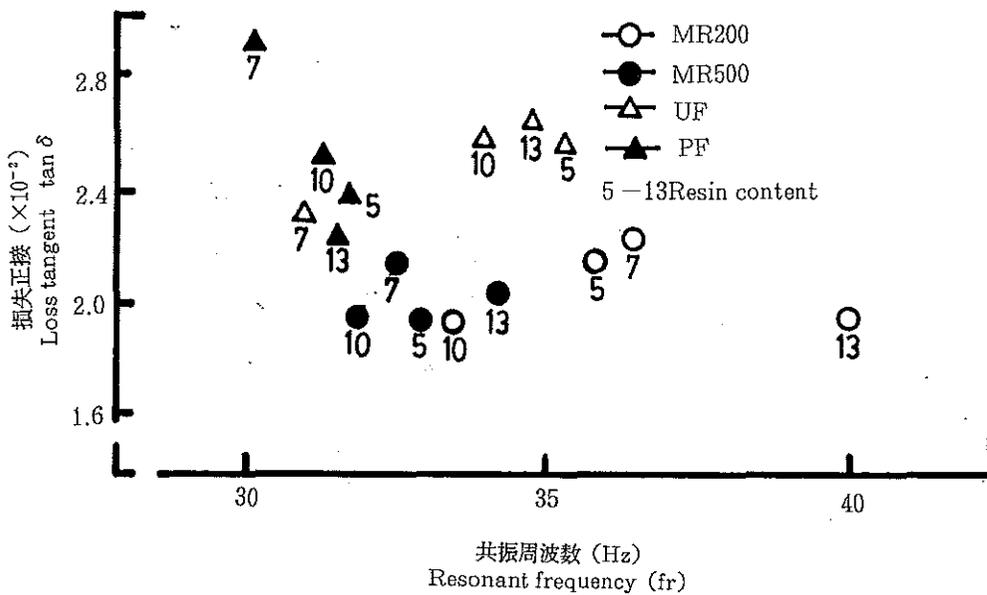


図-4 共振周波数とtan δの関係

Relationships between resonant frequency(fr) and tan δ.

記号のMR500、MR200等は図3参照

Note : MR200, MR500, PF, and, UF : See notes in Fig.3.

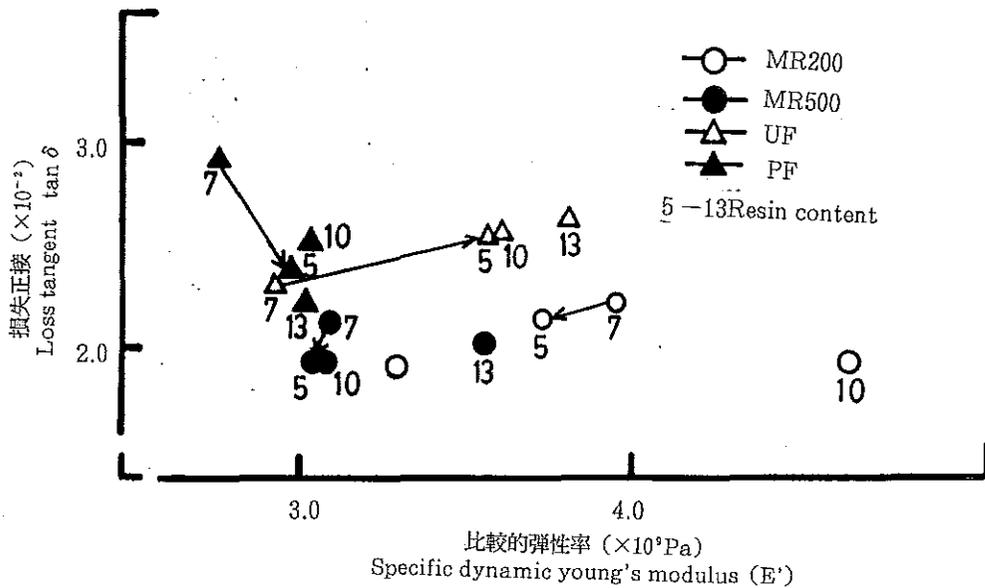


図-5 比動的弾性率とtan δの関係

Relationships between specific dynamic young's modulus(E') and tan δ.

記号のMR500、MR200等は図3を参照

Note : MR200, MR500, PF, and, UF : See notes in Fig.3.

(3) 密度が $\tan \delta$ に及ぼす影響

各ボードにおける試片の密度と $\tan \delta$ の関係を求めてみると、ほぼ負の関係を示す。しかし、一部に密度との関係で不明瞭なものもある。この理由として、試片の密度が0.58~0.62と狭い範囲に集中していること及び左右対称にない共振曲線の $\tan \delta$ を含めたことなどが考えられる。対称性のない $\tan \delta$ を除くと、負の相関関係を示すことが多くなるが、客観的に除くことは難しいので、ここではあえて図示しない。測定方法は異なるが、 $\tan \delta$ と密度が正の相関になるという報告<sup>4)</sup>もある。

(4) 低含脂率ボードの $E'$ と $\tan \delta$ 

ボードの $\tan \delta$ に及ぼす主因子には、チップの形状と接着剤などが関係しているとされている<sup>5)</sup>。このため、スギより強いエゾマツの針状チップを混合して含脂率5%ボードを作製した。図5に含脂率5%ボードも含めて $E'$ と $\tan \delta$ の関係を示す。エゾマツチップの混合が $E'$ 、 $\tan \delta$ に及ぼす影響は接着剤の種類により異なっている。すなわち、それぞれの接着剤について含脂率5%と含脂率7%ボードを比べると、MRボードでは $E'$ が多少低下したものの $\tan \delta$ はさらに小さい値を示した。PFボードでは、 $E'$ が大きくなり $\tan \delta$ が小さくなった。また、UFボードでは、 $E'$ と $\tan \delta$ 共に大きくなった。これから、チップの形状、樹種は、含脂率とも関連して、ボードの $E'$ 、 $\tan \delta$ に影響を与える主な因子といえる。

以上から、エゾマツチップの混合によりチップ相互の密着性が良くなり、このことがMRボードでは減衰を小さくする方向に作用すると考えられる。さらに、含脂率に関わらずMRボードの $\tan \delta$ が安定して小さい値を示すことから、ボードに要求される $E'$ の性能に見合った含脂率を選択することが必要である。

## 2 曲げ性能

密度で除した比曲げヤング率をMOE、曲げ破壊強さをMOE、破壊までの曲げ仕事量を $U_b$ で表す。

## (1) 接着剤の種類と含脂率の影響

それぞれの接着剤によるボードのMOE、

MOR、 $U_b$ を含脂率に対してプロットしたのが図6である。まず、MOEについてみると、MR200ボードのMOEは含脂率10%でピークに達し $4.5 \times 10^9 \text{ Pa}$ 以上になる。一方、MR500ボードのMOEは含脂率により $3.5 \sim 4.2 \times 10^9 \text{ Pa}$ の範囲にある。また、PFボードのMOEは含脂率10%でピークに達し、 $4.0 \times 10^9 \text{ Pa}$ 以上になるが含脂率7%では小さい。UFボードでは含脂率10、13%で比較的良好な値が得られ、含脂率13%でMR200ボードに匹敵する。また、 $E'$ に対して $E$ をプロットしたものを図7に示す。両者の間に正の相関関係( $R_y = 0.57$ )が認められる。MR200ボードは他のボードに比べて $E'$ と $E$ がともに大きく、特に含脂率が低いほど他のボードより優れた値を示すことが分かる。

次に、MORについてみると、MR200ボードのMORは含脂率7%でも $1.7 \times 10^7 \text{ Pa}$ 以上、13%では $2.0 \times 10^7 \text{ Pa}$ にも達し、MOEと同様に含脂率が低いほど他のボードより優れた値を示す。一方、MR500ボードでは、それぞれの含脂率でMR200ボードに比べ約2割程度低い。また、PFボードのMORは含脂率10%でピークに達し約 $1.7 \times 10^7 \text{ Pa}$ になる。UFボードでは含脂率13%で $1.8 \times 10^7 \text{ Pa}$ になる。

また、 $U_b$ ではMOE、MORとやや異なる傾向を示している。MRボードの $U_b$ はPF、UFボードの中間の値を示し、含脂率により $1.5 \sim 2.0 \text{ kg} \cdot \text{cm}$ の範囲にある。PFボードの $U_b$ は含脂率10%でピークに達し $2.0 \text{ kg} \cdot \text{cm}$ 以上になる。MRボードの破壊時までのたわみ量が少なく、荷重-たわみ曲線で囲まれる面積がPFボードなどに比べて小さくなるため、MRボードの $U_b$ がPF、UFボードより劣る。このことは、MRボードでは木材とイソシアネート基との結合力が強いこと主として破壊がチップの脆弱な部分から生じるためと考えられ、破壊面の観察からも確認された。

## (2) 低含脂率ボードの曲げ性能

含脂率5%ボードも含めてMOEとMORの関係を示したのが図8である。前述したように含脂率5%ボードのチップにはスギとカラマツの混合チップを用いてある。含脂率5%

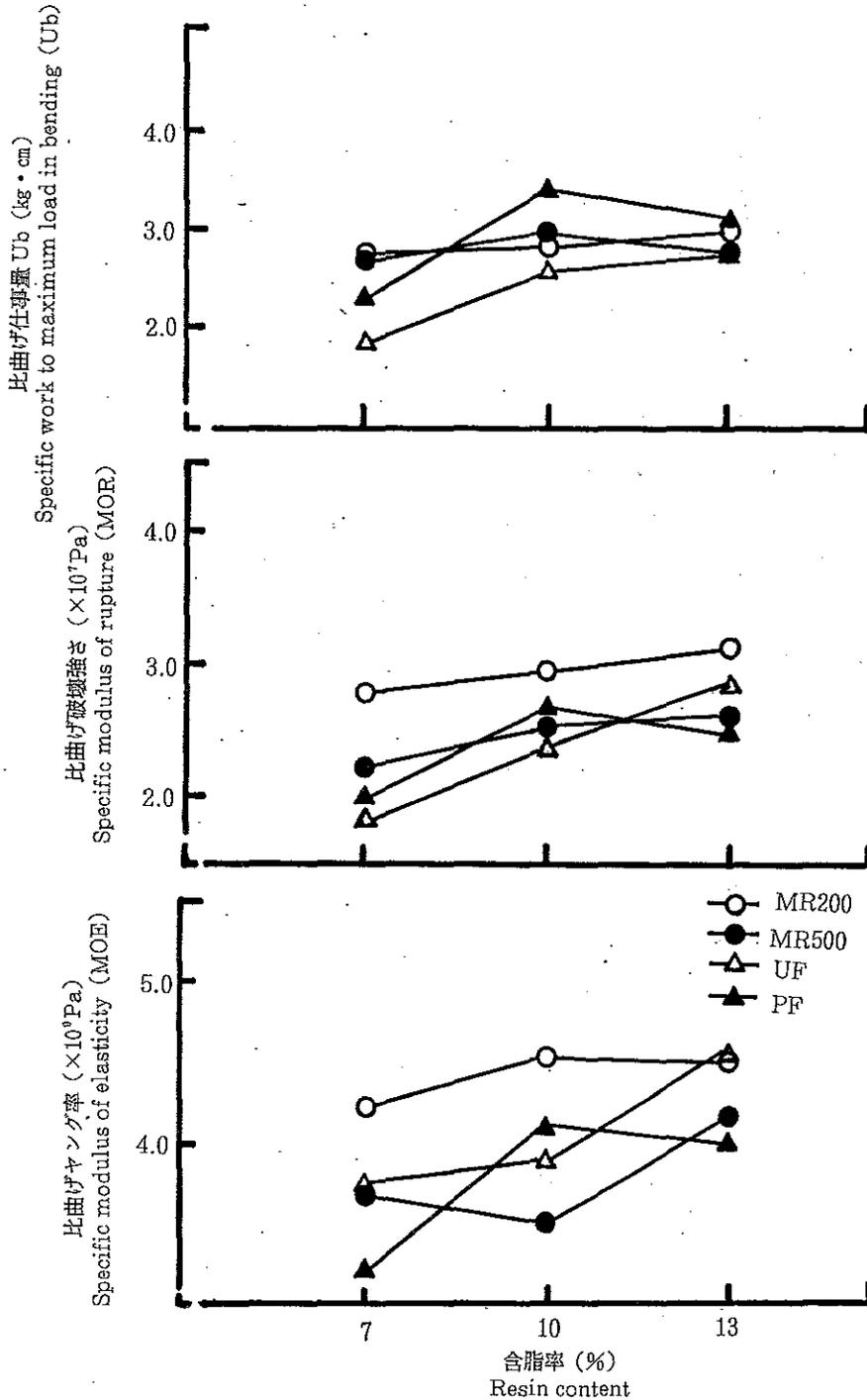


図-6 含脂率が比曲げヤング率、比曲げ破壊強さ、比曲げ仕事量に及ぼす影響  
 Effect of resin content on soecific modulus of elasticity(MOE), specific modulus of rupture(MOR), and specific work to maximum load in bending(Ub).

記号のMR500、MR200等は図3を参照

Note : MR200, MR500, PF, and UF : See notes in Fig.3.

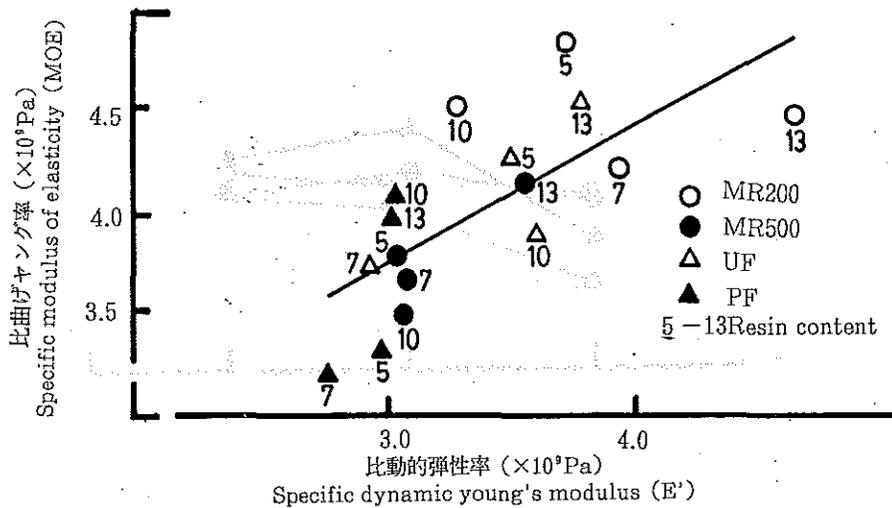


図-7 比重的弾性率と比曲げヤング率の関係

Relationships between specific dynamic young's modulus( $E'$ ) and specific modulus of elasticity(MOE) in bending.

記号のMR500、MR200等は図3を参照

Note : MR200, MR500, PF, and UF : See notes in Fig.3.

と7%ボードを比べてみると接着剤の種類に関係なくMOEとMORが著しく大きくなるのが分かる。これは、スギより強いエゾマツの針状チップを混合したことでチップ相互の接触状態が良くなり小片間結合力が向上したためと考えられる。MR200ボードでは、UF、PFボードの含脂率13%における値を上回っている。一方、MR500ボードでも含脂率10%のPFボードに匹敵する値を示している。Ubについてみると、MR200ボードでは他のボードより大きい値を保っているが、MR500ボードでは多少減少したもののPFボードよりも減少割合が小さい。

このように、MRボードの曲げ性能が著しく向上したのは、針状エゾマツチップを混合したことにより、十分な表面積当たりのレジソ塗布量が得られ、イソシアネートの高い接着性能が発揮されたためと思われる。これから、含脂率を低減してもチップ樹種、形状を適正に変えることによって、従来のPF、UFボードの含脂率10%に匹敵する曲げ性能を付与できると言える。事実、アメリカなどのイ

ソシアネートボードは従来のPF、UFボードより低含脂率で製造されている。

また、含脂率に関係なくMR500ボードがMR200ボードに劣ったのは、粘度の調整方法をも含めて熱圧条件等が必ずしも最適でなかったことが考えられる。従って、このボードについてはさらにボード製造条件の検討が必要と思われる。

#### IV 結 論

イソシアネートを結合剤とする実験室作製パーティクルボードの強制振動試験を行い、含脂率、チップの形状が $\tan \delta$ 、 $E'$ に及ぼす影響、接着状態などを、UF、PFボードと比較検討した。以下に得られた結果を要約する。

MR200ボードの共振曲線は比較的鋭い形を示し、含脂率の増加と共に次第に $E'$ は大きくなり振動に対する抵抗が増大するが、逆に $\tan \delta$ は小さくなる。針状エゾマツの混合チップを用いて含脂率を5%に低減するとさらに減衰性は小さくなる。MR500ボードはMR200ボードに比べて $E'$ が小さいものの同程度の減衰性を示した。

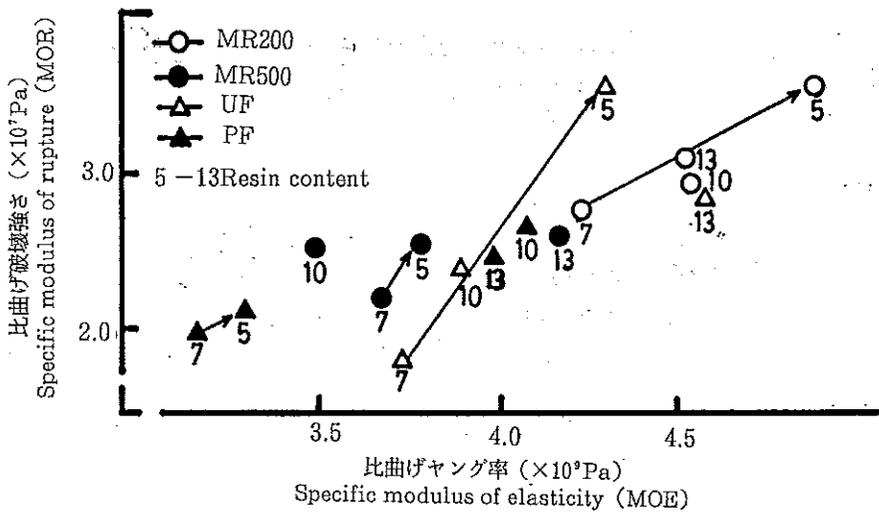


図-8 比曲げヤング率と比曲げ破壊強さの関係

Relationships between specific modulus of elasticity(MOE) and specific modulus of rupture(MOR).

記号のMR500、MR200等は図3を参照

Note : MR200, MR500, PF, and UF : See notes in Fig.3.

また、MR200ボードのMOE、MORは、一般的に他のボードよりも大きく、特に含脂率が低いほどその傾向が著しい。カラマツ混合チップを用いた含脂率5%ボードでは、PF、UFボードの含脂率13%における性能を上回っている。MR500ボードのMOEはMR200ボードと同程度であるが、MORは約2割程度小さい。

ボードの振動、曲げ性能に及ぼす因子は、チップの樹種、チップの形状、含む脂率など、それぞれが関係している。MR200ボードはPFボードなどより含脂率を低減しても、その優れた接着性能のため良好な振動、曲げ性能が付与される。

## V 謝 辞

本研究の遂行にあたり、ご指導を頂いた故蒲生眞郷東京農工大学名誉教授、東京農工大学農学部応用生物科学科鈴木正治教授に深謝致します。

また、接着剤を提供して頂いた日本ポリウレタン工業㈱、大鹿振興㈱に厚くお礼申し上げます。

## 引用文献

- 1) 元木英夫：木材工業、35(4)、145-149 (1979)
- 2) Deep.H. J. ; Ernst, K. : Holz Roh Werkstoff, 29, 45-50 (1971)
- 3) 上岡宏彰、故片岡明雄：木材学会誌、28(6)、336-345 (1982)
- 4) 斉藤藤市ら4名：木材学会誌、25(1)、50-54 (1982)
- 5) 鈴木正治ら3名：木材学会誌、33(2)、127-135 (1987)
- 6) 杉原彦一他：“基礎木材工学”、文教出版、1978
- 7) 小野木重治：“レオロジー要論”、槇書店、1977
- 8) 北原 覚一：“パーティクルボード”、槇書店、1963