

# 木材の空隙充填性接着剤について

後藤 輝男\*・川村 緑\*・作野 友康\*

Teruo GOTŌ\*, Midori KAWAMURA\* and Tomoyasu SAKUNO\* : Studies on the Gap-filling Property of Wood Adhesives.

## I は し が き

木材の1次接着ならびに2次接着において接合部分の接着性と耐久性との問題はきわめて重要であり、これらを向上させる研究が大いに望まれている。

木材接着において接着性ならびに耐久性を支配する物理的あるいは化学的因子はきわめて多く、接着剤および被着材の諸性質、その他接着条件や接着方法があげられる。木材接着において満足すべき接着状態をうるには接着剤と木材界面に作用する分子間引力および接着剤の凝集力が木材自体の凝集力にほぼ等しいかあるいはより大きくあることが好ましい。

接着層の強さが接着の重要な因子である以上まず考慮すべきこととして、亀裂を生じない強靱な接着層を形成させることが最も重要である。

接着層の厚さと接着性能との間には密接な関係があり、接着剤の種類と各種充填剤との配合および接着条件等によつても異なるが、現用木材接着剤の場合は欠膠を生じない限り出来るだけ薄い接着層を均一に形成させることが肝要である。これまでの研究によるとその厚み20~50 $\mu$ にすることが望ましいとされている。この接着層厚さの範囲での接着に関する問題については、すでに研究報告がある<sup>1)</sup>。

しかし現在のように木材接着分野が広がり、各種の接着、例えば家具接着および大きな集成材アーチ、航空機および自動車ボディー等の組立接着、さらに、木構造において行なわれる各種2次接着のような場合、水圧プレス等が使用できず手締めクランプによることが多い。

このため均一ならびに適度の圧縮操作を行なうことが困難な場合がおこり、しばしば接着層が局所的に厚くなることがあり、この部分に亀裂を生じ往々にして接着部破断をもたらす剝離現象を惹起する危険性が大きい。そこで接着層厚みが0.5mm~1.3mm程度の厚さになつても強力な接着力を維持しうる、いわゆる空隙充填性 (gap-filling property) を有する接着剤が必要である。空隙充填性接着剤とは ASTM 規定の用語によると“接着層厚みが0.05 in (約1.3 mm) 程度でも十分な接着機能を有する接着剤”をいう。

現在一般に使用されている close contact property の木材接着剤に空隙充填性を持たせ、低圧縮力でも強力な接着がなされるような変性接着剤の研究進展が望まれる。しかしこの種の研究は最近において、E. W. HINKEN (1953)<sup>2)</sup>, A. A. MARRA (1957)<sup>3)</sup>, W. CLAD (1958)<sup>4)</sup> および J. F. S. CARRUTHERS 等 (1958)<sup>5)</sup> の報告がみられるだけできわめて少ない。

空隙充填性接着剤の研究において、主として考慮しなければならない因子は、(a)塗布接着

\* 木材物理研究部門, Div. of Wood Physics. Wood Res. Inst., Kyōto Univ.

剤に加わる真の圧縮力，(b)接着層厚み，および(c)被着材の剛性に大別しうる。さらに，これらを分析すると，(1)硬化時の接着剤の収縮率，(2)接着剤中の溶剤減少，(3)接着剤中の固形分（樹脂，充填剤，増量剤等），(4)硬化速度と硬化度，(5)接着層の compactness，(6)硬化した接着剤の凝集力，(7)木材含水率，(8)木材の空隙率あるいは比重，(9)木材面の状態と被着材面間の距離，(10)木材の凝集力，(11)木材および接着剤の弾性係数，(12)硬化にさいしての接着剤の収縮と材面状態との関係等をあげることができ，接着剤の空隙充填性の良否を容易に判定し難い。

本実験では被着材含水率，木材接着面の状態を一定にし，さらに接着層の諸性質に一次的に影響がある圧縮時間，圧縮力，硬化温度ならびに時間などを同条件にして，未増量，未充填の現用木材接着剤の空隙充填性について，とくにこの性質のない尿素樹脂接着剤に空隙充填性を附与する方法，また空隙充填性を附与した尿素樹脂接着剤の耐久性(本実験は現在なお継続中)，等について，まず接着層厚みとの関連において研究した結果を報告する。

## II 実験材料および方法

### (a) 供試接着剤

本実験において用いた接着剤は次のようである。

- (1) 尿素樹脂接着剤（硬化剤として10%の  $\text{NH}_4\text{Cl}$  液を用い重量比で5%を接着剤に添加）
  - モル比の異なるもの 3種
  - 縮合度の異なるもの 2種
  - モル比が異なるも粘度一定にしたもの 2種
  - 変性したもの 3種
- (2) フェノール樹脂接着剤（常温硬化） 1種
- (3) レゾルシンノール樹脂接着剤 2種
- (4) ポリ醋酸ビニール樹脂エマルジョン 1種
- (5) カゼイングルー 1種

上記接着剤の使用条件およびその配合はメーカーの指定通りに行なつた。そして，供試接着剤中とくに，合成した尿素樹脂接着剤の諸性質は Table 1 に示す如くである。

Table 1. Various properties of urea-formaldehyde resin adhesives used in the experiment.

Properties	Type 1	Type 2	Type 3	Type 4	Type 5	Type 6	Type 7	Type 8	Type 9	Type 10
pH	7.2	7.2	6.8	7.4	6.8	6.8	7.2	7.2	6.8	6.8
Specific gravity (20°C)	1.30	1.32	1.31	1.29	1.32	1.23	1.29	1.28	1.30	1.31
Viscosity (pois/20°C)	18.5	146.5	50.5	47.7	42.8	45.6	44.4	51.2	44.8	45.4
Pot life (min/20°C)	50~80	70	63	34	99	33	32	23	37	92
Solid content(%)	59~60	59~60	69.3	62~68	67.5	73.2	65.1	64.1	69.4	72.2
Water solubility	good	good	good	good	good	good	bad	bad	good	good

(b) 試材, 接着条件および試験方法

試材は木理通直な無欠点のブナ (*Fagus crenata* BLUME) 辺材(柾目板, 年輪密度 5 ~ 6 コ/cm, 手鉋仕上げ, 含水率10%, 厚み 1.2 cm, 大きさ 10×10 cm) で, 接着層厚み規制のため7種の厚みの異なる metal shim (0.13, 0.26, 0.51, 0.76, 1.02, 1.27 および 1.54 mm, 形状は Fig. 1 に示す) を用い, shim を被着材間に入れ繊維方向を平行にして2枚集成した。

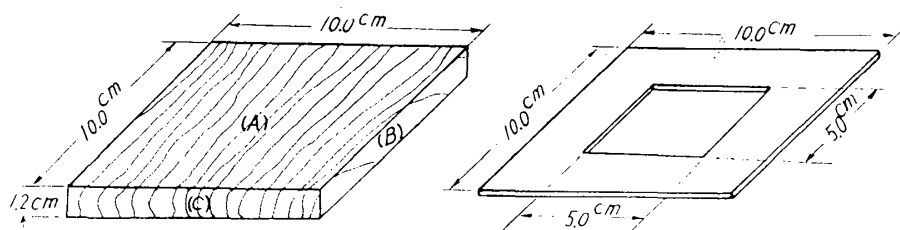


Fig. 1. Specimen and metal shim used in this experiment.

Specimen : Sapwood of beech (*Fagus crenata* BLUME)

(A) : Radial surface (B) : Tangential surface (C) : Transverse surface

接着剤は shim のくりぬかれた部分に塗布し, アセンブリー完了後 (open assembly time 3分, closed assembly time 10分) Fig. 2 に示す圧縮装置に入れ, 0.05 kg/cm<sup>2</sup> と 10kg/cm<sup>2</sup> の圧縮力 (トルクレンチを用いて測定), 圧縮時間24時間, 硬化温度 25 °C の条件で接着を行なった。

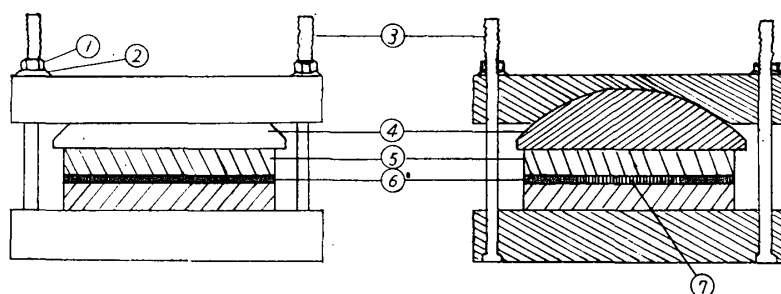


Fig. 2. Assembly jig used in this experiment.

① nut, ② washer, ③ support, ④ bearing block, ⑤ specimen, ⑥ metal shim, ⑦ glue line.

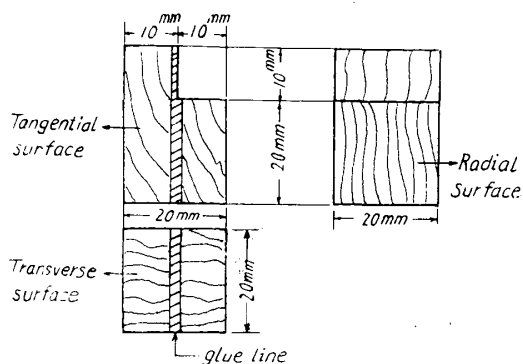


Fig. 3. Block shear test specimen used in this experiment.

接着後再び含水率10%に conditioning して, ブロックせん断接着力試片 (Fig. 3) を採取し, JIS Z-2114 の木材のブロックせん断試験方法に準拠して接着力ならびに木破率を求めた。

耐久性の試験は, 尿素樹脂接着剤 (未変性の Type 10 および変性した Type 6 の2種) について行ない, 接着層厚みの規制にさいして用いた shim も2種類 (0.13 と 0.51 mm) に限定し, 4種類の組合せ条件について行つた。

暴露条件は 25 °C, 33% の関係湿度で 2 週間, つづいて 25 °C, 87% の関係湿度で 2 週間暴露を 1 cycle とする条件で乾湿繰返しの暴露を行ない, ブロックせん断接着力試片について接着力および木破率を求めた。なお接着層厚みは採取試片に隣接する部分において顕微鏡 (×70) 下で測定した。

### Ⅲ 実験結果および考察

各種接着剤で接着した試片の接着力と接着層厚みとの関係をみると, 接着層を非常に薄くした場合に部分的に欠膠状態となり接着力が低下するが, 欠膠を生じない限り接着層が薄くなる程, すなわち, 接着剤の単分子膜に近い程欠陥存在の割合が減少し, 接着層の凝集力が高く接着力は木部のせん断強さに支配されるようになる。 $(F_c > F_w > F_v)$ , あるいは  $F_w > F_c > F_v$ )\*。

また, 接着層が薄いと接着層に生じた内部応力を被着材に移動させ, すなわち, 接着層に残留する内部応力は小さくなる。さらに, 接着剤中の分子の配位度は接着剤と被着材面間の距離とに逆比例し, 強度は配位度の減少に比例して低下するから厚い層は薄い層より弱くなっている。

一方, 接着層が厚いと接着剤の凝集力が低下し接着力の減少をもたらす, 一般的に crazed joint failure (Photo 3) をもたらす。

しかし, 各種接着剤において接着層の凝集力 (一般的に石炭酸系樹脂接着剤は凝集力が大きく, 尿素樹脂接着剤およびカゼイングルーは凝集力が小さい) が異なるから接着層厚みの許容範囲は異なる。すなわち, 凝集力が弱い接着剤ほど空隙充填性はなく, 接着層が薄いほど接着力および木破率は高い。これらの結果は Fig. 4~13 に示すとおりである。

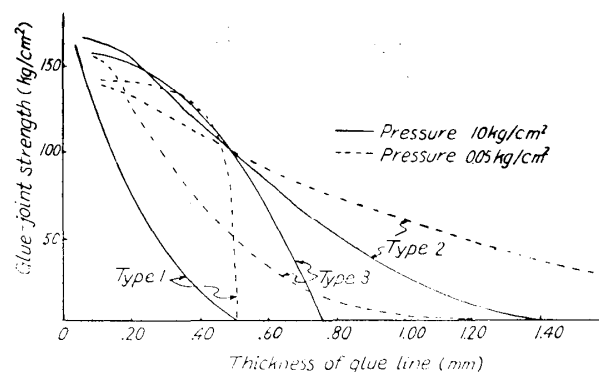


Fig. 4. Influence of mol-ratio on gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives.

について検討したところ, Fig. 4 および 5 に示すように空隙充填性に及ぼす圧縮力差異の影響は明らかでない。すなわち, 各接着剤とも接触圧でも 10 kg/cm<sup>2</sup> の圧縮力でも空隙充填性挙動はほぼ同じである。これらの結果は E. W. HINKEN & A. A. MARRA<sup>3)</sup> の報告とほぼ一致する, しかしながら, 適度な圧縮力で加圧した方が接着状態もよく接着力のバラツキも少ない。

#### 2) 尿素樹脂接着剤の空隙充填性におよぼすモル比の影響

\*  $F_c$  : 接着層の凝集力,  $F_w$  : 木材の凝集力,  $F_v$  : 接着剤と木材との界面に作用している分子間引力。

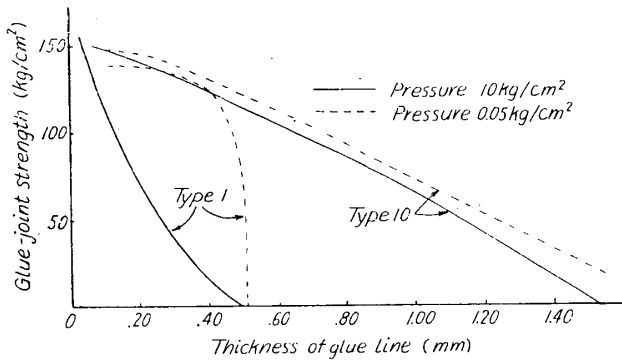


Fig. 5. Influence of viscosity on gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives.

Type 1 : 18.5 poises/20°C  
Type 10 : 44.8 poises/20°C

一般的な尿素樹脂接着剤ではホルムアルデヒドと尿素とのモル比 ( $F/U$ ) は1.8~2.2 が用いられ, また, 未濃縮尿素樹脂接着剤の場合では比較的低モル比のもの, 1.3~1.6 が採用されている。

モル比と空隙充填性との関係は Fig. 4 および Fig. 7 に示すようにモル比が高くても低くても空隙充填性は良好でなく適正なモル比が存在すると思われる。すなわち, Type 1 (高モル比) は両圧締力とも 0.51 mm 以上の shim を用いた場合 24 時間で接着層に亀裂を生じ自然はくりした。一方 Type 1 よりモル比の低い Type 2 では 1.54 mm の最も厚い shim を用い

た場合でも接着状態を維持していた。

しかるに, さらにモル比を低くした Type 3 では厚い shim の場合でも接着状態は維持するが接着力は Type 2 に比し大きく低下し, 全て接着部破断を起し木部破断は全く認められない。このような結果から未濃縮尿素樹脂接着剤において空隙充填性を有するとは考えられない。しかしながら, モル比は粘度および縮合度 (分子構造に関係) と相関関係にありモル比のみで空隙充填性を判定することは出来ない。

### 3) 尿素樹脂接着剤の空隙充填性におよぼす粘度の影響

樹脂製造にさいして反応条件を一定にし脱水程度の異なるものをつくとレジン率に変化し, 一方, レジン率一定の樹脂をつくらうとすれば反応条件を異にせざるを得ない。また, 反応条件を異にすると樹脂の分子構造等が異なり, 粘度と接着性および空隙充填性を直接関係づけることは出来ないが, 一応粘度変化が空隙充填性におよぼす影響を試験したところ, 次のようである。

すなわち, モル比および反応条件が同じで粘度のみ異なる Type 1 (18.5 ポイズ/20°C) と Type 10 (44.8 ポイズ/20°C) の空隙充填性を比較すると Fig. 5 に示すように両圧締力とも高粘度尿素樹脂接着剤の方が空隙充填性が良好である。一方非常に高粘度の Type 2 (146.5 ポイズ/20°C) と同じ反応条件で製造し粘度のみ低下させた Type 9 (44.8 ポイズ/20°C) についてそれを比較すると Fig. 6 に示すように両圧締力ともほぼ同じ空隙充填性を有する。

さらに, モル比の異なる3種の尿素樹脂接着剤について粘度をほぼ一定にした場合についてそれを比較すると, Fig. 7 に示すように Type 10 と Type 9 はほぼ同じ挙動を示すが低モル比の Type 3 は不良である。要するに接着剤の粘度は空隙充填性に影響する一因子で適正粘度が存在するものとする。

本実験から明らかなことは粘度の低い尿素樹脂接着剤を高粘度 (40~50ポイズ /20°C) にすることにより空隙充填性がいくらか改良される。

### 4) 尿素樹脂接着剤の空隙充填性におよぼす縮合度の影響

モル比, 触媒等の反応条件が同一で, ただ縮合度のみ異なる Type 2, Type 7, Type 8 について空隙充填性を比較すると, Fig. 8 に示すように縮合度の最も大きな Type 7 が最も悪

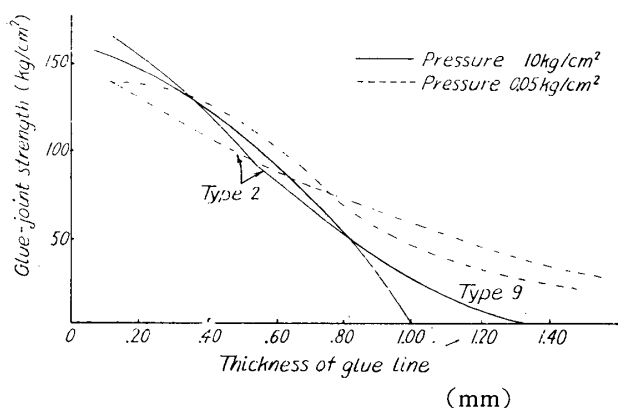


Fig. 6. Influence of viscosity on gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives.

Type 2 : 146.5 Poise/20°C  
Type 9 : 44.8 Poise/20°C

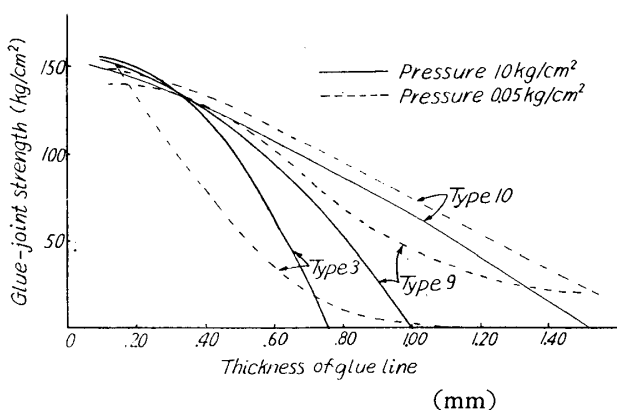


Fig. 7. Influence of mol-ratio on gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives.

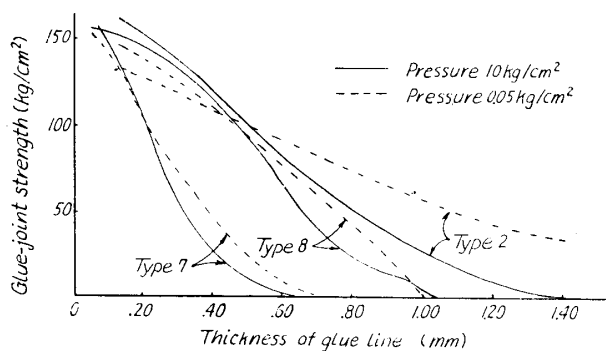


Fig. 8. Influence of condensation degree on gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives.

く、次いで Type 8 で一般的な縮合度の Type 2 が良好である。

すなわち空隙充填性に縮合度も関与する。

### 5) 変性尿素樹脂接着剤

尿素樹脂接着剤においてその空隙充填性を改良する方法としては、これまでの研究<sup>3)</sup>によるとフルフリルアルコール変性および充填剤添加の方法が効果のあることを認めているが、本実験ではある物質で変性した3種の尿素樹脂接着剤 (Type 4, Type 5, Type 6) について実験した結果は Fig. 9 に示すように圧縮力 10 kg/cm<sup>2</sup> では変性度の最も少ない Type 6 は空隙充填性が良好である。一方、変性度を大きくすると (Type 5) 空隙充填性は良好でないが、これは接着層の凝集力が低下するのが一因であると考えられる。一方、接触圧では Type 6 および Type 4 は全ての厚みの shim 使用の場合においても接着状態を維持し良好な空隙充填性を有するが、変性度の大きな Type 5 では 1.02mm 以上の shim を用いた場合自然はくりし空隙充填性は不良である。さらに、未変性の尿素樹脂接着剤において良好な空隙充填性を示した Type 9 および Type 10 と変性尿素樹脂接着剤の Type 6 についてこれを比較すると、Fig. 10 に示すように両圧縮力とも変性尿素樹脂接着剤の方が全接着層厚みについて全般的に良好な空隙充填性を示し、特に、厚い接着層において明らかな差異がある。

### 6) 現用各種木材接着剤の空隙充填性

Fig. 11, 12 に示すように現用木材接着剤中、常温硬化のフェノール樹脂接着剤が最も良好な空隙充填性を示し全接着層厚で亀裂現象は見られなかつた。レゾルシノール樹脂接着剤 (Photo 4~6) も良好な空隙充填性を有するが、厚い接

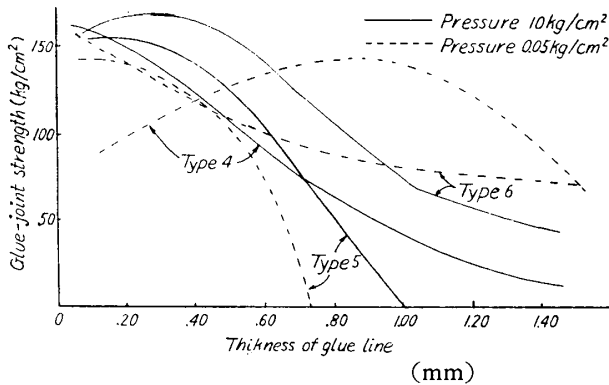


Fig. 9. Gap-filling property of modified urea-formaldehyde resin adhesives.

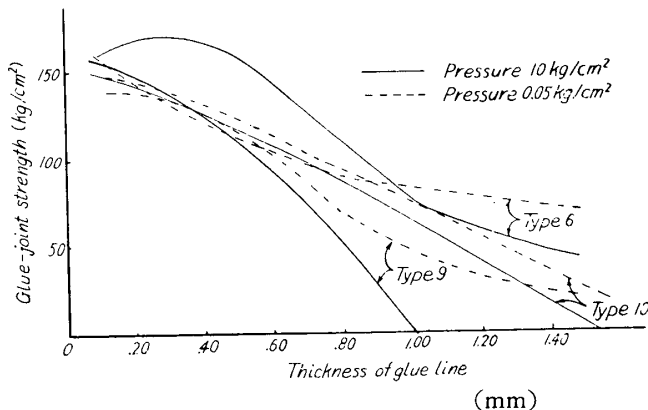


Fig. 10. Gap-filling property of unmodified (Type 9, Type 10) and modified (Type 6) urea-formaldehyde resin adhesives.

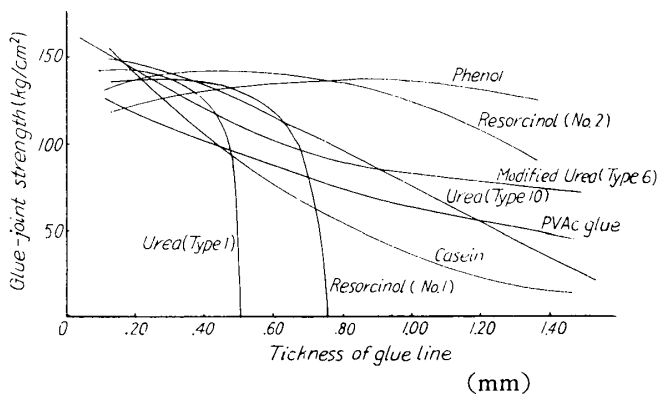


Fig. 11. Gap-filling property of various wood adhesives. (Pressure 0.05 kg/cm<sup>2</sup>)

着層の場合にはいくらか亀裂が認められた (Photo 6)。またポリ醋酸ビニールエマルジョン (Photo 7~8) も全ての接着層において自然はくりすることなく接着状態を維持し、最も厚い shim を用いた場合でも木部破断を示し空隙充填性は良好である。カゼイングルー (Photo 9~11) は接着層が薄い場合、常態接着力は六であるが接着層が厚くなると接着力の低下が大きい、かつ空隙充填性はフェノール樹脂接着剤、レゾルシノール樹脂接着剤およびポリ醋酸ビニールエマルジョンに劣るが未変性の尿素樹脂接着剤に比して六である。一方、変性尿素樹脂接着剤はポリ醋酸ビニールエマルジョンとほぼ同程度の空隙充填性を有し、屋内二次接着用接着剤としてポリ醋酸ビニールエマルジョンと同様十分使用しうると考える。しかし未変性の尿素樹脂接着剤 (Photo 1~3) は前述したように使用接着剤中空隙充填性は最も悪い。

さらに、木破現象から考察するとフェノール樹脂接着剤、レゾルシノール樹脂接着剤、ポリ醋酸ビニールエマルジョンおよび変性尿素樹脂接着剤は、かなり厚い接着層でも木部破断が認められ、カゼイングルーではほとんど認められなかった。

要するに現用木材接着剤中空隙充填性を有する接着剤は屋外用としてはフェノール樹脂接着剤およびレゾルシノール樹脂接着剤、屋内用としてはポリ醋酸ビニールエマルジョンおよび変性尿素樹脂接着剤であると考えられる。

なおメラミン樹脂接着剤についても同様な実験を試みたが本実験での接着条件では良好な接着状態がえられなかった。

E. W. HINKEN等<sup>3)</sup> および W. CLAD<sup>4)</sup> の報告によるとエポキシ樹脂接着剤、ネオプレン系

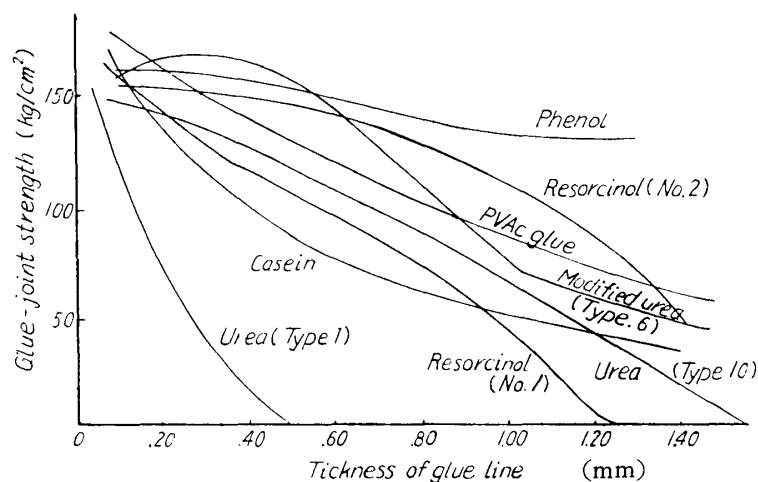


Fig. 12. Gap-filling property of various wood adhesives. (Pressure 10kg/cm<sup>2</sup>)

接着剤は良好な空隙充填性を有する。

7) 変性尿素樹脂接着剤の接着層厚みと耐久性の関係

前述した空隙充填性のある変性尿素樹脂接着剤 (Type 6) と未変性尿素樹脂接着剤 (Type 10) について、接着層厚みを2種類に規制し (測定した接着層厚さは薄い shim を用いた場合平均 72~77 $\mu$ , 厚い shim を用いた場合平均 327~330 $\mu$ ), 先に述べた条件で接着し111 サイクル終了迄に必要な

な試片を準備し (各条件につき試片 8 コ宛, 試片総数640コ) 無作為抽出により試片を取り出し乾湿繰返しの耐久性試験に供した。これらの結果を接着力と木破率の各々について、各サイクル間および2種の接着剤について分散分析を行なった。

結果は Table 2 に示すごとく、これまで行なつた7サイクル迄の暴露試験ではそれぞれの接着剤に関して接着力、木破率共に各サイクル間には有意差は認められなかつたので暴露期間の経過にともなう接着性の変化は、これ迄の間では、ほとんど認められない。一方、2種の接着剤の各接着層厚さにおける場合には1%の危険率で有意差が認められたので、95%の信頼限界でこの母平均を推定し、その結果を図示すると、Fig. 13, 14 に示すごとくである。変性尿素樹脂接着剤では接着層が厚い場合でも薄い場合とほとんど接着力に差異がないが、未変性尿素樹脂接着剤では接着層が薄い場合には前者と同程度の高い接着力を示しているのに対し、接着層が厚い場合には、はるかに低い。

Table 2. Analysis of variance for glue-joint strength and wood failure.

(1) Glue-joint strength

Factor	S	$\phi$	V	F <sub>0</sub>
Cycle	2200	7	314	2.47
Condition(1)	5075	3	1692	13.32**
Error	2657	21	127	
Total	9932	31		

(2) Wood failure

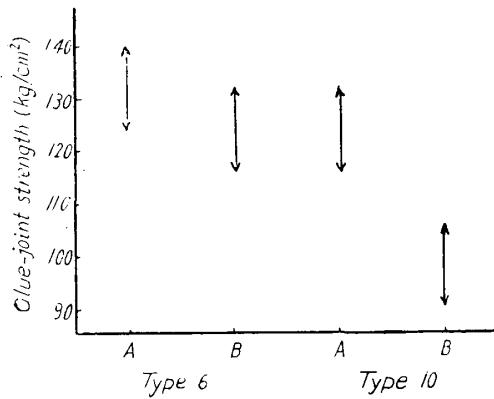
Factor	S	$\phi$	V	F <sub>0</sub>
Cycle	2158	7	308	0.86
Condition(1)	43964	3	14655	40.83**
Error	7540	21	359	
Total	53662	31		

\*\* Indicates significance at the 1% level of probability.

(1) : The different thickness of glue line at urea-formaldehyde resin adhesives.

- a) Type 6 : modified, glue-line thickness : 60~100 $\mu$
- b) Type 6 : modified, glue-line thickness : 320~370 $\mu$
- c) Type 10 : unmodified, glue-line thickness : 60~100 $\mu$
- d) Type 10 : unmodified, glue-line thickness : 320~370 $\mu$



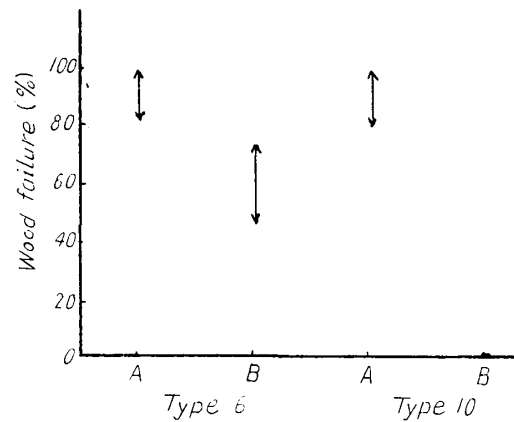


glue line thickness { A : 60~100μ  
B : 320~370μ

Fig. 13. Durability of urea-formaldehyde resin adhesives at different glue line thickness.

Type 6 : modified urea-formaldehyde resin adhesive.

Type 10 : unmodified urea-formaldehyde resin adhesive.



glue line thickness { A : 60~100μ  
B : 320~370μ

Fig. 14. Durability of urea-formaldehyde resin adhesives at different glue line thickness.

Type 6 : modified urea-formaldehyde resin adhesive.

Type 10 : unmodified urea-formaldehyde resin adhesive.

また、木破率においても変性尿素樹脂接着剤では接着層が厚くても、かなりの木破率を示しているが、未変性尿素樹脂接着剤では木部破断は全く示さなかつた。

接着層の肉眼的観察 (Photo 12~15) によると、接着層の薄い場合 (Photo 12, 14) には両接着剤ともに亀裂は生ぜず、接着層を破断した場合、薄い膜状をていし、いずれか一方の被着材面に密着している。一方、接着層の厚い場合には両接着剤ともに亀裂は生ずるが、その発生度合は変性尿素樹脂接着剤 (Photo 13) の場合、7 サイクル経過後も亀裂は比較的少なく安定した接着層でどちらか一方の被着材面に密着していた。それに対して未変性尿素樹脂接着剤 (Photo 15) では暴露時からすでに多くの亀裂を生じて7 サイクル経過後には老化の度合は著しくぼろぼろになり、接着層はわずかなショックで被着材面からはがれおちてしまうような状態になった。これらのことから耐久性は 変性尿素樹脂接着剤(接着層の薄い場合) > 変性尿素樹脂接着剤(接着層の厚い場合) ≒ 未変性尿素樹脂接着剤(接着層の薄い場合) > 未変性尿素樹脂接着剤(接着層の厚い場合) の順である。

要するに、接着層が薄い場合、常態試験での空隙充填性における変性尿素樹脂接着剤と未変性尿素樹脂接着剤との間に明らかな差異は認められなかつたが接着層が非常に厚い場合は変性尿素樹脂接着剤の方が空隙充填性は六である。乾湿繰返しの耐久性試験によると変性尿素樹脂接着剤の方が明らかに大きな空隙充填性を有する。しかし、未変性尿素樹脂接着剤でも適正な圧縮力により接着し、接着層が薄い場合では、これ迄の耐久性試験期間では接着層の劣化はほとんど認められない。

#### IV 結 論

木材接着剤、特に尿素樹脂接着剤の空隙充填性についてこれ迄の研究をのべたが要約すると次のようである。

- 1) 尿素樹脂接着剤の空隙充填性にはモル比、粘度および縮合度等の諸因子も関与し、適正

なモル比, 粘度および縮合度を考慮する必要がある。

2) 変性尿素樹脂接着剤は空隙充填性を有し, 接着層がある程度厚くても未変性尿素樹脂接着剤に比し耐久性は明らかに大である。

3) フェノール樹脂接着剤, レゾルシノール樹脂接着剤等の石炭酸系樹脂接着剤およびポリ醋酸ビニールエマルジョンは空隙充填性を有する。

最後に, 本実験に関し種々御配慮, 御指導をいただいた, 住友ベークライト株式会社に厚く謝意を表す。

なお, 写真について御援助を煩わした貴島教授, 林助手に厚く感謝する。

### Summary

In the secondary gluing of wood and in the gluing process of laminated wood, local thickenings are often observed in the glue line because of difficulty of adequate pressure operation. And this local thickening results in a glue joint failure.

One of the desirable method to preventing this failure is to use the adhesives which possess gap-filling property.

In this paper, the method of giving gap-filling property to urea-formaldehyde resin adhesives, which do not have that property, the gap-filling property and the durability of various wood adhesives were studied in relation to glue-line thickness.

In this experiment, the following adhesives were used :

- (1) Urea-formaldehyde resin adhesives (ten types).
- (2) Phenol-formaldehyde resin adhesive.
- (3) Resorcinol resin adhesives (two types).
- (4) Polyvinyl acetate emulsion.
- (5) Casein glue.

These adhesives were formulated according to the directions of manufacturers respectively. And as the test specimen, straight-grained and faultless beech sapwood finished with hand-planer (2.0~1.7 mm annual ring width, 10 percent wood moisture content and 10×10 cm. in size) was used. These specimens were bonded with above mentioned adhesives, regulating glue-line thickness by using seven different metal shims in their thickness, under the same condition i. e. constant condition of pressing time, pressure and curing temperature which affect primarily various qualities of the glue-line.

The gluing was conducted under the following conditions.

Open assembly time ..... 3 minutes  
 Closed assembly time ..... 10 minutes  
 Pressure ..... 0.05kg/cm<sup>2</sup> and 10kg/cm<sup>2</sup>

Curing time ..... 24 hours  
Curing temperature..... 25°C

After gluing, block shear bonding strength test (JIS. Z-2114) was conducted with the specimens conditioned at 10 percent moisture content. And also, durability test of a repeating cycle consisting of 2 weeks at 33 percent relative humidity and 2 weeks at 87 percent relative humidity at 25°C, was conducted.

The results obtained are shown in Tables 1 and 2, and Figs. 1~14. And the following conclusions were obtained from these experimental results :

(1) The gap-filling property of urea-formaldehyde resin adhesives is closely related to their molar ratio (F/U), condensation degree, viscosity and other factors. But favourable gap-filling property can not be expected from unmodified ureaformaldehyde resin adhesives.

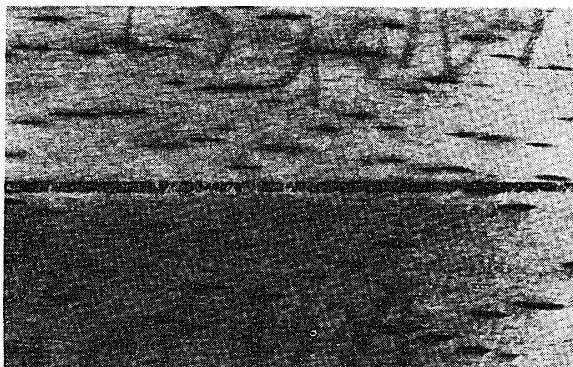
(2) P.V.A. modified urea-formaldehyde resin adhesives have gap-filling property and are more durable than the unmodified urea-formaldehyde resin adhesives.

(3) Phenol-formaldehyde resin adhesive, resorcinol resin adhesive and polyvinyl acetate emulsion have a favourable gap-filling property.

#### 文 献

- 1) PLATH, E : Die Holzverleimung, Stuttgart :137 (1951), DIETZ, A. G. H. : Engineering Laminates, New York : 153-155 (1949), MAXWELL, J. W. : Bulletin of the New York State Collage of Forestry at Syracuse University. Technical Publication No. 64 (1944, OLSON, W. Z., D. W. BENSEND and H. D. BRUCE : F. P. L. Report No. 1593 (1946), BRUCE, H. D. and R. A. COCKRELL : F. P. L. Report No. R 1616 (1946).
- 2) HINKEN, E. W. : For. Prod. Res. Soc. 3 : 15~20 (1953)
- 3) HINKEN, E. W. and A. A. MARRA : F. P. J. 7 : 286~292 (1957)
- 4) CLAD, W. : Holz als Roh- u. Werks. 16 : 383~395 (1958)
- 5) CARRUTHERS, J. F. S. and B. H. PAXTON : Wood 23 : 503~508 (1958)

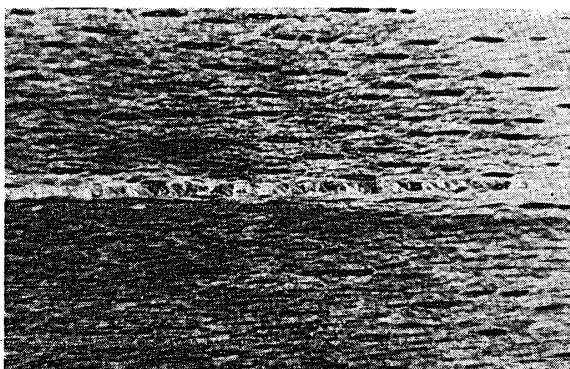
Photos 1~11 show the macroscopic and microscopic views of glue-line for various wood adhesives. Adherend : sapwood of beech (*Fagus crenata* BLUME).



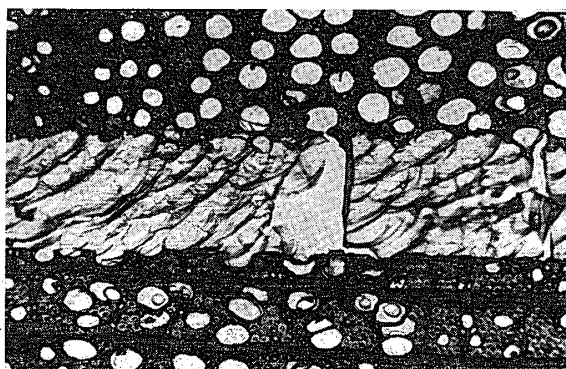
A : Glue-line thickness : ca.  $380\mu$ , *t*



A. Glue-line thickness : ca.  $250\mu$ , *t*

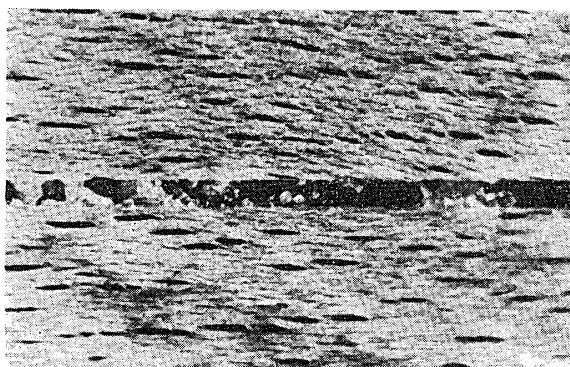


B : Glue-line thickness : ca.  $650\mu$ , *t*



B. Glue-line thickness : ca.  $250\mu$ , *x*

Photo 2. Glue-line of a laminated wood bonded with urea-formaldehyde resin adhesive (Type 1). Magnification  $\times 55$



C. Glue-line thickness : ca.  $1120\mu$

Photo 1. Glue-line of a laminated wood bonded with urea-formaldehyde resin adhesive (Type 1). Magnification  $\times 2$ , *t*  
Cracks are observed in the thick glue-line.

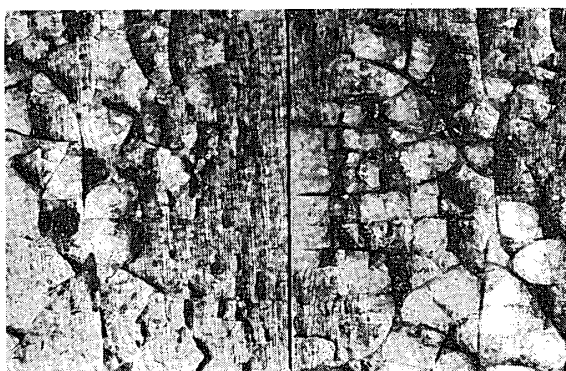
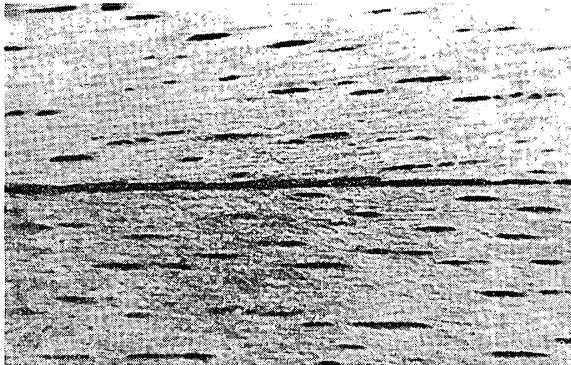
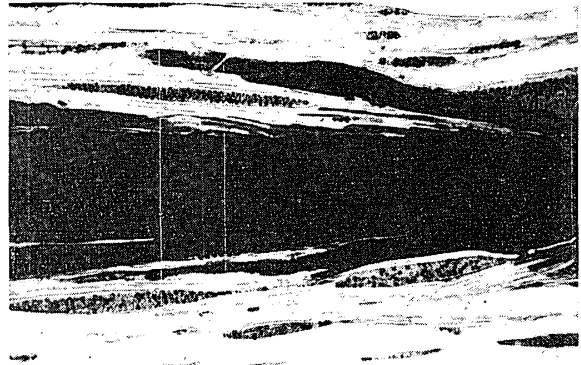


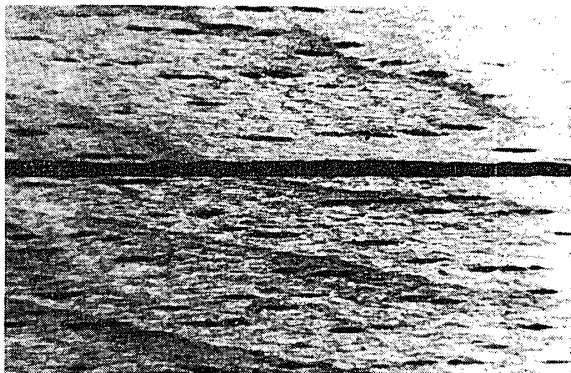
Photo 3. Mutually opposite surfaces of a broken glue-line (typical crazed joint failure) from a laminated wood bonded with urea-formaldehyde resin adhesive (Type 1). Magnification  $\times 2$



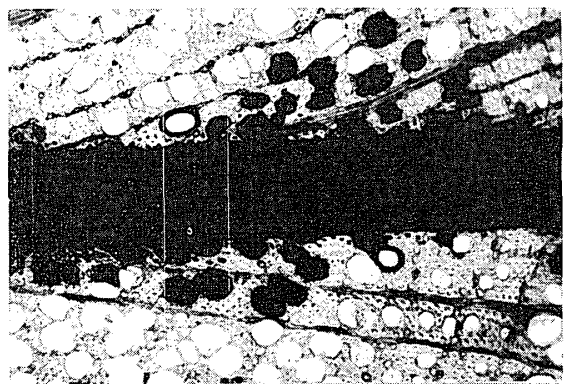
A. Glue-line thickness : ca.  $110\mu, t$



A. Glue-line thickness : ca.  $220\mu, t$



B. Glue-line thickness : ca.  $600\mu, t$

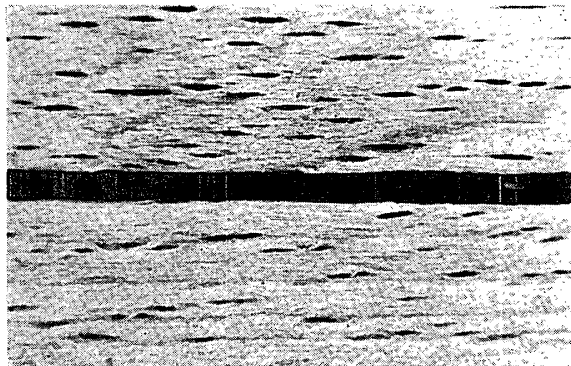


B. Glue-line thickness : ca.  $220\mu, x$

Photo 5. Glue-lines of a laminated wood bonded with resorcinol resin adhesive.

Magnification  $\times 55$

No crack is observed in the glue-line.



C. Glue-line thickness : ca.  $1250\mu, t$

Photo 4. Glue-line of a laminated wood bonded with resorcinol resin adhesive.

Magnification  $\times 2$

Cracks in the glue-line is not observed even in thick glue-line.

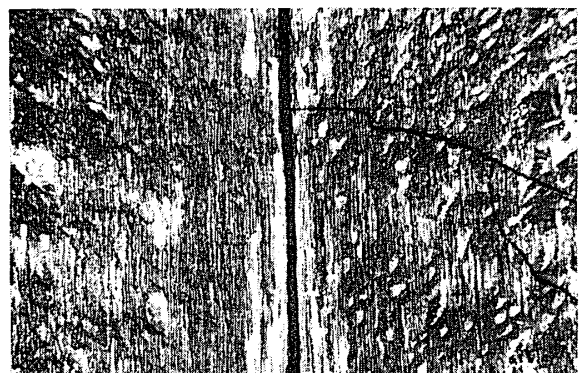
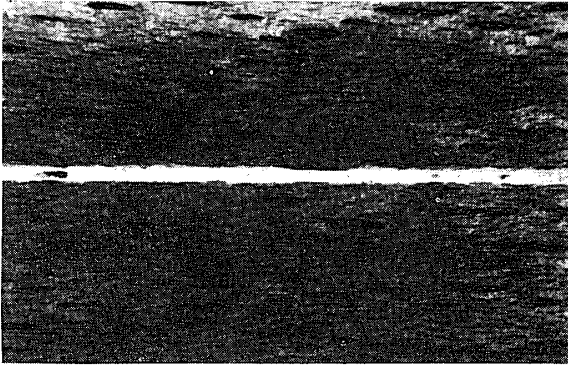


Photo 6. Mutually opposite surfaces of a broken glue-line from a laminated wood bonded with resorcinol resin adhesive.

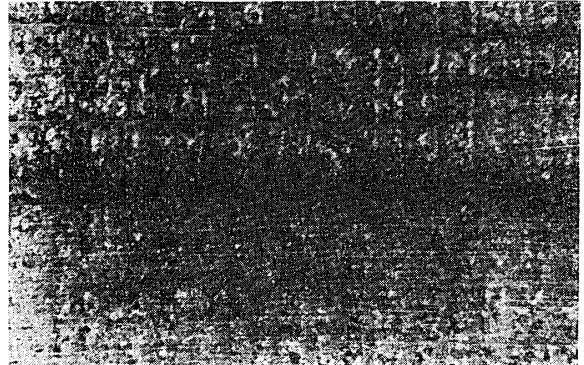
Left : Surface of wood failures.

Right : Surface of glue-line.

Magnification  $\times 2$



Glue-line thickness : ca.  $650\mu, t$   
Photo 7. Glue-line of a laminated wood bonded  
with PVAc emulsion. Magnification  $\times 2$   
No crack is observed in the glue-line.



A. Glue-line thickness : ca.  $80\mu, x$

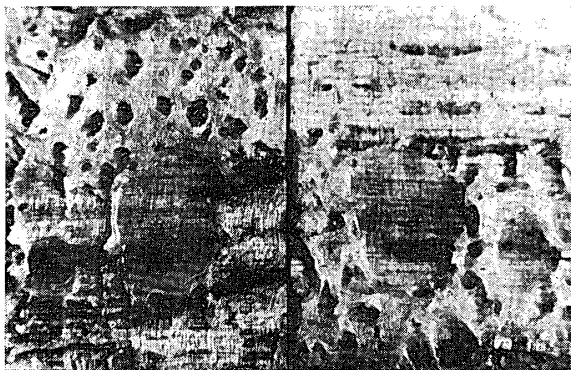
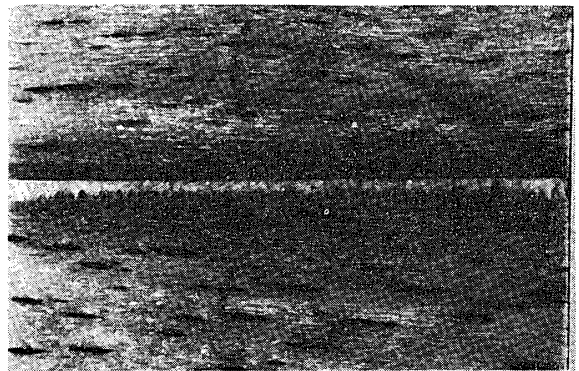
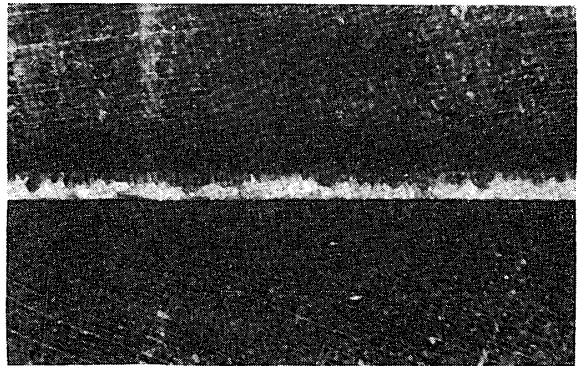


Photo 8. Mutually opposite surfaces of a broken  
glue-line from a laminated wood bonded with  
PVAc emulsion.  
Air bubbles are observed in the glue-line.  
Magnification  $\times 2$

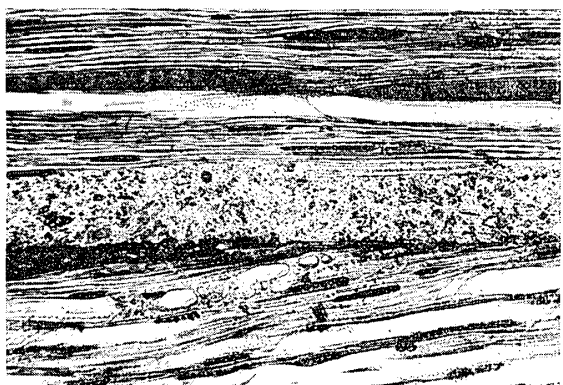


B. Glue-line thickness : ca.  $800\mu, t$

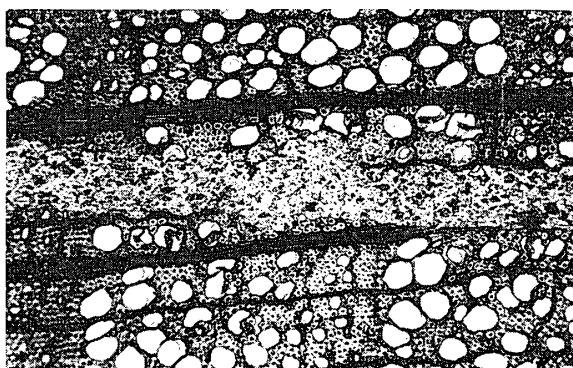


C. Glue line thickness : ca.  $1270\mu, x$

Photo 9. Glue-line of a laminated wood bonded  
with casein glue. Magnification  $\times 2$   
Small cracks in the glue-line are observed  
in case of thick glue-line.



A. Glue-line thickness : ca.  $140\mu$ , *t*



B. Glue-line thickness : ca.  $140\mu$ , *x*

Photo 10. Glue-line of a laminated wood bonded with casein glue.  
Magnification  $\times 55$

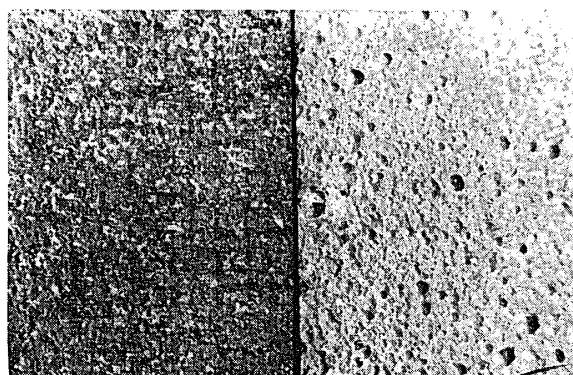


Photo 11. Mutually opposite surfaces of a broken glue-line from a laminated wood with casein glue.  
Small air bubbles are observed in the glue-line.  
Magnification  $\times 2$

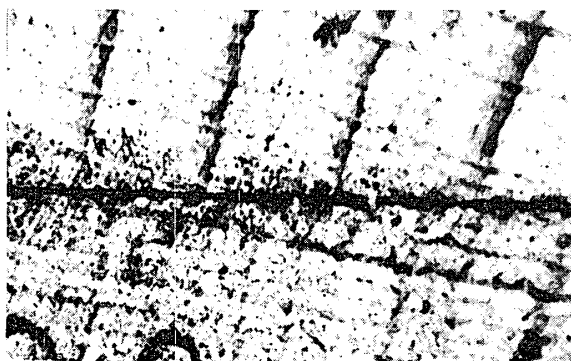
Photographs 12-15 show the macroscopic observation of glue-lines after controlled exposures on laminated wood bonded with urea-formaldehyde resin adhesives.

Exposure condition : In this test, period of 2 weeks at  $25^{\circ}\text{C}$  and 87 percent relative humidity alternates with 2 weeks period at  $25^{\circ}\text{C}$  and 33% relative humidity in a repeating cycle.

- A. Before controlled exposure
- B. After 7 cycles controlled exposure

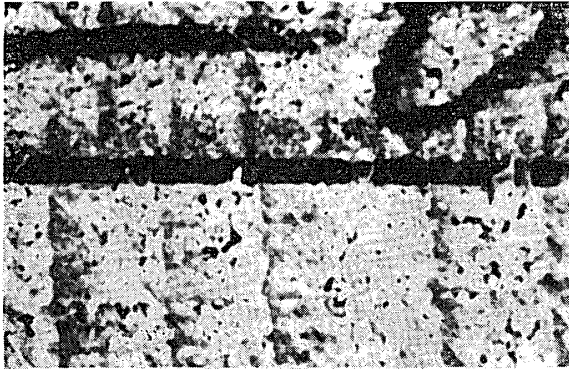


A. Glue-line thickness : ca.  $60\mu$   
Glue-joint strength :  $140\text{kg}/\text{cm}^2$   
Wood failure : 80%

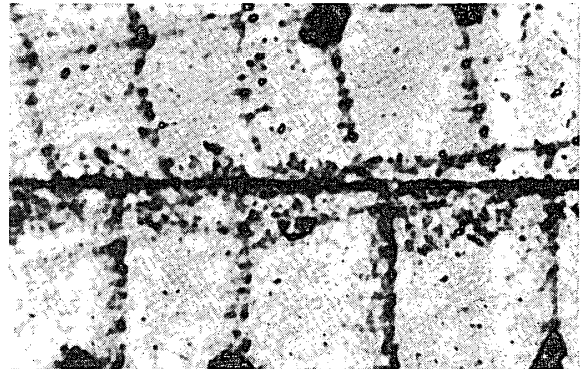


B. Glue-line thickness : ca.  $70\mu$   
Glue-joint strength :  $140\text{kg}/\text{cm}^2$   
Wood failure : 95%

Photo 12. Glue-line of a laminated wood bonded with modified urea-formaldehyde resin adhesive (Type 6), *x*  
Magnification  $\times 5$   
No crack is observed in the glue-line.

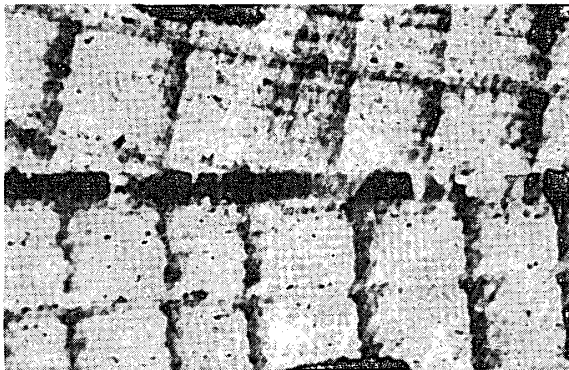


A. Glue-line thickness : ca.  $370\mu$   
 Glue-joint strength :  $116\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 40%



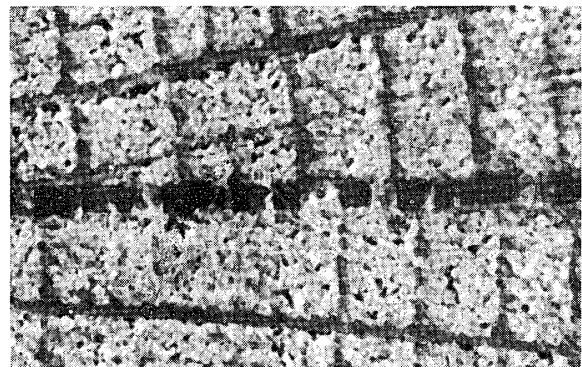
B. Glue-line thickness : ca.  $80\mu$   
 Glue-joint strength :  $132\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 70%

Photo 14. Glue line of a laminated wood bonded with unmodified urea-formaldehyde resin adhesive (Type 10),  $\times$  Magnification  $\times 5$   
 No crack is not observed in the glue line.

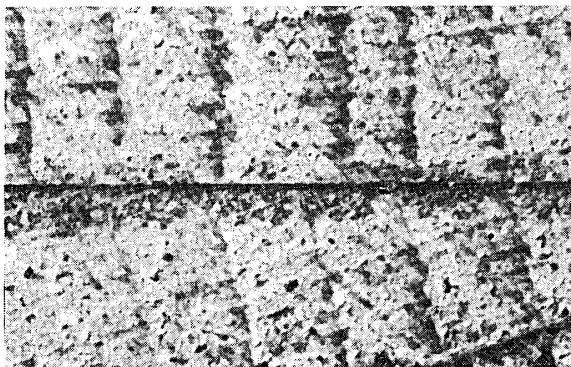


B. Glue-line thickness : ca.  $370\mu$   
 Glue-joint strength :  $127\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 60%

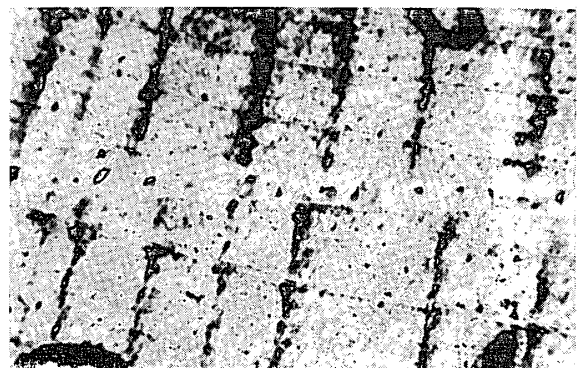
Photo. 13. Glue-line of a laminated wood bonded with modified urea-formaldehyde resin adhesive (Type 6),  $\times$  Magnification  $\times 5$   
 Few cracks are observed in the glue line.



A. Glue-line thickness : ca.  $330\mu$   
 Glue-joint strength :  $65\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 0%



A. Glue-line thickness : ca.  $100\mu$   
 Glue-joint strength :  $164\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 50%



B. Glue-line thickness : ca.  $350\mu$   
 Glue-joint strength :  $71\text{kg}/\text{cm}^2$   
 Wood failure : 0%

Photo 15. Glue-line of a laminated wood bonded with urea-formaldehyde resin adhesive (Type 10),  $\times$  Magnification  $\times 5$   
 After 7 cycles exposure, the cracks in the glue-line increased remarkably.