

# 焼石膏充填尿素樹脂接着剤に関する研究

後 藤 輝 男 ・ 梶 田 茂

(木材物理第1研究室)

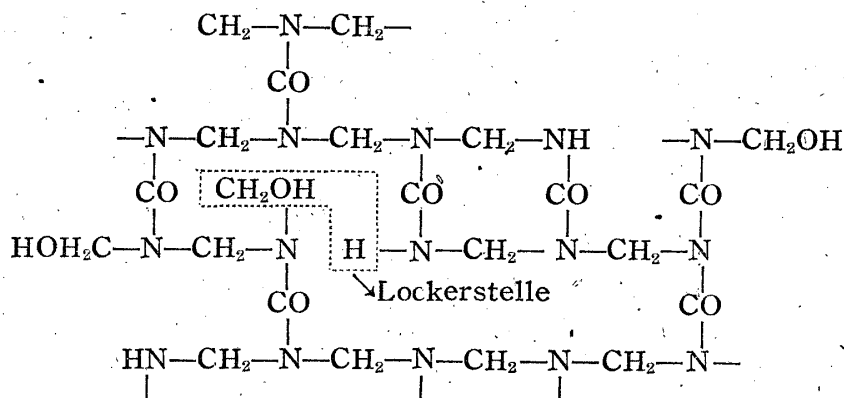
Teruo GOTO, and Sigeru KADITA ; Filling Urea Resin Adhesives with Calcined Plaster.

## I 緒 論

尿素樹脂接着剤 (Urea Resin Adhesive, Harnstoffharzleime) は水溶性で アルコール, アセトン等の溶剤を必要としないのみならず, 取扱容易無色且つ常態接着力は Phenol Resin Adhesive, Melamine Resin Adhesive 等と略々同等である. 尙 Urea Resin Adhesive は Phenol Resin Adhesive に比して, より活性であるため, 簡単なる硬化剤によつて常温に於いても容易に硬化し十分に接着性能を発揮する. 又価格が他の合成樹脂系接着剤に比して安価であるため, 現今合成樹脂系接着剤中, その使用量は首位を占めている.

然し Urea Resin は最終縮合体に於いても尙遊離のメチロール基が残存して, 所謂 Smekal の “Lockerstelle” を有するため, 老化性耐水性等に於いて Phenol Resin, Melamine Resin 等に比して相当劣る<sup>註</sup>. 故に本性質改良のため (1)硬化速度を適当に調節し得る様な硬化剤を探出し, 且つ硬化剤の成分が樹脂のアルデヒド基と結合して新に樹脂を生成し, その充填物となる方法<sup>(1-3)</sup>, (2)フェノール, メラミン及び他の化学薬品との共縮合による方法<sup>(4-10)</sup>, (3)可塑剤の添加による方法<sup>(11)</sup>, (4)充填剤を添加する方法<sup>(12-20)</sup> 等の色々な方法があるが, 筆者等は液状尿素樹脂接着剤に焼石膏を充填剤として添加した場合について老化性合板接着力等について検討した次第である.

<sup>(3)</sup>  
(註) 尿素樹脂の最終縮合体は類型的には下記の如き不規則同族列的な分子構造を有する3次元の巨大分子である.



(註1)  
〔2〕 充填剤 (Filler, Leimzusatzmittel) として具備すべき条件並に添加による効果 (22~26)

A. 具備すべき条件

1. 化学的に不活性なものであつて pH は中性或いは微酸性のものである事.
2. 微粉末, 又は容易に微粉末となし得る物質である事.
3. 水と混和したる時, "Sol" の状態になり水分が蒸発すれば硬化し得る物質である事.
4. "Glue Joint" の耐久性を犠牲にする事なしに, 接着剤の流動性を調節し, 粘度を高め, 接着面の性質を改良する物質である事.

故に Filler 添加の量は一般に重量割合にて 10~20 % である.

B. 添加による効果

1. 老化<sup>(註2)</sup>による亀裂発生を防止乃至低減出来る.
2. 接着面の厳密な仕上げを必要としない.
3. 加圧が比較的不均等でも又弱圧でも接着力はあまり低減しない.
4. 粘度の低い接着剤を軟質木材の接着に用いた場合, 接着剤は木部組織に滲透して汚染 (Stain) 及び缺膠 (Starved Joint) の現象を生ぜしめるが, Filler を添加し, 粘度を高める事によつて此の現象を防止出来る.
5. 接着剤を或る程度増量するから接着剤の価格をいくらか低廉にする事が出来る.

(註1) 充填剤と増量剤 (Extender, Leimstreckmittel) の差異は明確になし得ないが Extender は先ず第一に接着剤価格を低廉にする事が目的である. それ故通常 Filler よりも多量に (多い場合は 200% にも及ぶ) 加えられるのが普通である. 例えば Urea Resin Adhesive に穀類粉末が多量に添加せられるが, 此は Extender の使用の例である. 又 Phenol Resin Adhesive 或いは Resorcinol Resin Adhesive の流動性質を適當にするため Walnut-Shell Flour が 10~15 % 添加せられるが, これは Filler の使用の例である. 因みに U. S. A 規格によれば Filler 添加量は乾燥樹脂に対して 20 % 迄許容している.

(註2) 老化 (Aging) ; 熱, 光線, 水分, 寒気, 大気中の不純物等外界の影響により, 又は自身の内部に於いて自然に化学変化が起り, 変質し, 褪色, 亀裂, 崩壊, 剝落等を誘起し品質を低下する現象をいう.

〔3〕 実験材料

A. 尿素樹脂接着剤及び硬化剤 (Hardner)

某社試験製品の液状尿素樹脂接着剤 (Liquid Urea Resin Adhesive) であつて比重, 比粘度, 含脂率は次の如し.

比重 ; 1.33, 比粘度 ; 33.10, 含脂率 ; 約 70 %

硬化剤は 15 % 塩化アンモニアを用いた.

B. 焼石膏 (Calcined Plaster)

市販の化学用焼石膏を 80 メッシュの篩に通して用いた. 焼石膏は硫酸カルシウム ( $\text{CaSO}_4$ ・

2H<sub>2</sub>O) を灼熱して1分子の結晶水を放出した CaSO<sub>4</sub>・H<sub>2</sub>O を主成分とするもので、水と混じて泥状となせば熱を発生して再び CaSO<sub>4</sub>・2H<sub>2</sub>O に変じ、硬化する性質を有する。尙微酸性で極めて微粉末になし得る。

#### C. 単枚 (Veneer)

試験用合板パネルの製造に用いた単板は平均厚み 1.0mm.、及び 1.5mm. マカンバ (Birch ; *Betula maximowicziana* Regel) ロータリ単板で、含水率は 12~13 % であつた。

### [4] 焼石膏充填尿素樹脂接着剤の調製

尿素樹脂接着剤、焼石膏、水を下記重量割合にて混和して調製した。

Table 1 ; 焼石膏充填尿素樹脂接着剤の調製  
(Preparation of Filling Urea Resin Adhesives with Calcined Plaster.)

| Formula                    | A    | B    | C    | D    | E    | F    | G    | H    | I    |
|----------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| Liquid Urea Resin Adhesive | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| Calcined Plaster           | 0    | 10   | 20   | 10   | 20   | 30   | 30   | 40   | 50   |
| Water                      | 0    | 10   | 10   | 20   | 20   | 20   | 30   | 40   | 50   |
| Solid Content (%)          | 70.0 | 66.7 | 69.2 | 61.5 | 64.3 | 66.7 | 62.5 | 61.1 | 60.0 |

硬化剤は 15 % 塩化アンモニア溶液 (Hardner : 15 % Ammonium chlorid Sol.) を用い Liquid Urea Resin Adhesive に対して 4 % 添加した。

### [5] 試験用合板パネル並に試験片の調製

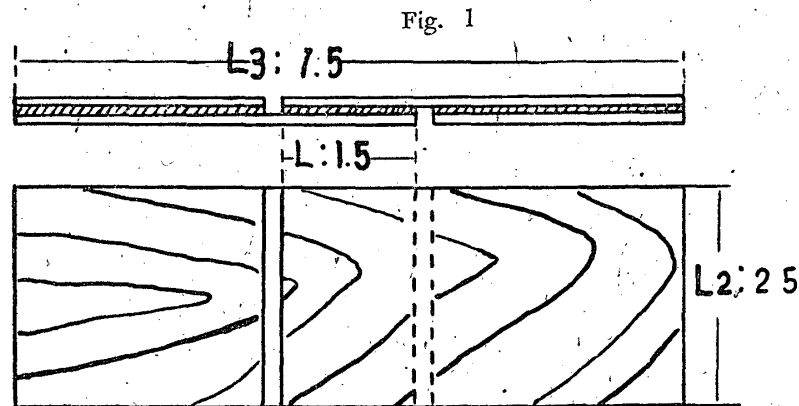
#### A. 試験用合板パネルの調製

上記マカンバ単板を用い 3 枚合せ直交合板を製作した。其の際中板の両面に [4] に於いて示した各種接着剤を刷毛によつて塗布した。合板パネルの製造条件は次の如し。

1. 塗布量 (Spread) ; 250gr/m<sup>2</sup>.
2. 圧縮温度 (Press Temperature) ; 100°C.
3. 圧縮時間 (Press Period) ; 8 min.
4. 圧縮力 (Pressure) ; 15kg/cm<sup>2</sup>.
5. 塗布後直ちにパネル 1 枚宛を圧縮接着した。

#### B. 試験片の調製

A 項に於いてのべた様にして製造した合板パネルから周囲 3 cm. 以内に於いて Fig 1. に示す様な試験片を採取した。尙、日本合板輸出規格<sup>(28)</sup>に規定してある合板試験片を用いた場合もある。



## [6] 実 験 方 法

### A. 接着剤の比重測定<sup>(29)</sup>

径 2.0 cm., 高さ 3.0 cm. の円筒形の秤量硝子管を用い, 先ず上縁迄丁度一杯蒸溜水を入れ, 器の壁についた水分を布片でよく拭き取つた後, 感量 0.2gr. の上皿天秤で秤量し, 此を 5 回繰返して平均値を求め, 標準水量の重さとした. 次に器を完全に拭つた後, 使用接着剤を同様に丁度一杯入れ, 秤量した. そして 5 回同様操作を行い平均重量を求めた. 而して使用接着剤の平均重量を標準水量の重さで除して使用接着剤の比重を決定した. 尚比重測定は 20°C. にて行つた.

### B. 接着剤の粘度測定

Stormer 式粘度計を用い, 蒸溜水に対する使用接着剤の比粘度を決定した. 尚粘度測定は 20°C. にて行つた.

### C. 接着剤の可用時間の測定

[4] 項に於いてのべた如くして調製した各接着剤の 10gr. を試験管に取り, 30°C. に於いて凝固する迄の時間を測定して可用時間を決定した.

### D. 接着剤縮合後の収縮量測定—接着剤老化試験—

径 5.0 cm., 高さ 1.0 cm. のシャーレを用い, 此に [4] 項に於いてのべた如くして調製した各接着剤を 20gr. 入れ, その液面と略々平らになる様に非常に細い真直ぐな真鍮線を平行に入れて 70°C. の恒温器中にて 15 分間硬化せしめた. そして硬化直後, 1 日, 3 日, 10 日, 20 日, 30 日, 目毎に此の真鍮線間の距離を 1/100mm. 精度の読取顕微鏡にて測定した. 斯くして次式より収縮率を算出した.

$$\text{収縮率} = \frac{\text{硬化直後の真鍮線間の距離} - \text{各測定日の真鍮線間の距離}}{\text{硬化直後の真鍮線間の距離}} \times 100 (\%)$$

尚此の期間, 硬化した接着剤の入つたシャーレは実験室内に放置してをいた.

### E. 合板接着強度及び木部破断率の試験

[5] 項に於いてのべた様にして製作した合板試験片を用い, 下記條件に処理した後, ショッパ—引張試験機によつて合板接着強度及び木部破断率を試験した.

1. 常態接着力試験；試験用合板パネル製造後，3日間実験室内に放置してから試験片を採取し試験した。
2. 常温水浸漬後の接着力試験； $11^{\circ}\pm 2^{\circ}\text{C}$ . の常温水にて24時間浸漬後，濡れたまま直ちに試験した。
3. 温水浸漬後の接着力試験； $50^{\circ}\text{C}$ . の温水中に6時間浸漬後，濡れたまま直ちに試験した。尙日本合板輸出規格，2類合板規格の試験法に従つて試験した場合もある。

F. 合板接着強度に及ぼす硬化剤添加量の影響

B, C, E, I Formula について硬化剤を0%, 2%, 4%, 6%, 8%, 10%なる割合にて添加した接着剤で以つて，〔5〕(A) (B) 項に於いてのべた要領に従つて合板試験片を調製し常態接着力を試験した。

G. 合板接着強度に及ぼす熱盤温度の影響

B. Formula について下記熱盤温度，圧縮時間によつて合板パネルを製造し，（その他の条件は〔5〕(A) (B) 項に於いてのべた場合と同じ）此れより試験片を採取して常態接着力を試験した。

1. 熱盤温度  $100^{\circ}\text{C}$ . にて 8分間圧縮
2. 熱盤温度  $80^{\circ}\text{C}$ . にて 20分間圧縮
3. 熱盤温度  $60^{\circ}\text{C}$ . にて 40分間圧縮
4. 常温 ( $20^{\circ}\pm 2^{\circ}\text{C}$ .) にて 24時間圧縮

H. 合板接着強度に及ぼす硬化時間の影響

A. B. Formula について  $100^{\circ}\text{C}$ . の圧縮温度にて硬化時間を10分，15分，20分，25分，と変えて合板パネルを製造し，（他の製造条件は〔5〕(A) 項に於いてのべた場合と同じ）此のパネルより日本合板輸出規格に規定してある試験片を採取し， $63^{\circ}\text{C}$ . の温水中に3時間浸漬後15分間冷水中に浸漬せしめた。そして試験片が未だ濡れている状態に於いて接着力を試験した。尙本実験に用いた合板パネル製造には1.5mm. 厚さのマカンバ・ロータリ単板を使用した。

1. 合板接着面の老化試験

A. B. D. E. F. Formula を用いて〔5〕(A) (B) 項に於いてのべた要領に従つて合板試験片を調製し，合板パネル製造後1日，3日，10日，20日，30日，目毎に温水浸漬後の接着力を試験した。

尙此の間，試験片は実験室内に放置しておいた。

〔7〕 実験結果並に考察

A. A~I Formula によつて調製した接着剤の比重，粘度，可用時間は Table 2. に示す通りである。

Table 2.

| Formula | 比 重 (1)<br>Specific Gravity | 比 粘 度 (2)<br>Specific Viscosity | 可 用 時 間 (3)<br>Working Life(min.) |
|---------|-----------------------------|---------------------------------|-----------------------------------|
| A       | 1.33                        | 33.10                           | 40                                |
| B       | 1.33                        | 9.46                            | 50                                |
| C       | 1.35                        | 17.30                           | 55                                |
| D       | 1.32                        | 4.20                            | 60                                |
| E       | 1.33                        | 5.57                            | 50                                |
| F       | 1.35                        | 8.13                            | 60                                |
| G       | 1.36                        | 5.07                            | 50                                |
| H       | 1.37                        | 2.50                            | 40                                |
| I       | 1.37                        | 2.14                            | 35                                |

(1) 20°C.にて測定

(2) 20°C.にて測定

(3) 30°C.にて測定

1. 比重；焼石膏添加割合の増加と共に僅か乍ら比例的に増大する。然し乍ら粘度を適当にするために単に水を以つて増量した場合、即ち樹脂含脂率の減少に伴い（測定温度が一定ならば）<sup>(30,31)</sup> 比重は除々に減少するものである。

2. 粘度；用いた接着剤の含脂率は約70%であつて、その粘度は相当高く、木材接着面塗布に少々困難である。故に實際使用に当つては何等かの方法によつて粘度を下げ、塗布し易い粘度にする必要がある。然し水の水みの添加によつて粘度を下げた時は、接着剤が木材組織中に滲入して缺膠（Starved Joint）現象を齎す惧れがある。それ故 Filler の添加によつて適当な粘度に調節する事が好ましい。而して焼石膏及び水添加割合と粘度との関係は表に示す如く、その割合の増加に伴い減少するが、焼石膏の充填割合を多くする時は粘度は相當に保持する事が出来る。

本実験に於いて行つた刷毛サバキの点から觀察するに、B. F. Formula の場合が最も適當である様に思われる。

尙尿素樹脂接着剤は貯藏期間中縮合反応が進み、粘度が高くなる。然し接着剤の pH を中性にするか、或いは Methanol を5%程添加するかによつて粘度の変化を防止する事が出来る。<sup>(32-34)</sup>

3. 可用時間；含脂率の減少に伴い可用時間は漸次長くなるが、然し Filler として焼石膏添加の量が多くなる時は、逆に短くなる。此の理由は焼石膏は微酸性であるため、硬化剤と共に Urea Resin の縮合を促進せしめるからであると思われる。而して可用時間が非常に長い時は、圧縮後でも未硬化の樹脂部分を残す事になり、接着不良を招く惧れがある。

之に反して可用時間を短くした場合、Assembly Time が長い時は Assembly 中縮合が過度に促進されて、又接着不良或は接着性能を発揮しない様な事があるから注意を要する。可用時間は又、樹脂接着剤の種類及び酸度、使用温度、硬化剤、充填剤、増量剤の種類並に添加量等によつて異なるから、使用に際しては必ず使用条件に応じてこれを調査し明らかにする必要がある。<sup>(35-38)</sup>

然し乍ら Ured Resin Adhesive に於いては硬化剤の種類及び添加量並に使用温度によつて最も大きく可用時間が異なるものである。而して Urea Resin Adhesive は常温に於いても硬化すると謂われているが、気温 20°C. 以下の場合には可用時間は非常に長くなり、圧縮後でも硬化は十分に行われ<sup>(39)</sup>ないのである。それがため、硬化剤として屢々塩酸硫酸ナトリウムの様な非常に酸度の高いものが用いられるが、これは接着面酸度を非常に低くし、木部組織に悪影響を及ぼすが<sup>(40)</sup>ら、斯様な強酸類の使用は行わない方がよい。それ故この様な場合は是非共熱圧によつて接着面を硬化せしめる必要がある。

B. A~I Formula によつて調製した接着剤を用いて製造した合板試験片の接着強度並に木部破断率を示すと Table 3. の通りである。

Table 3.

| Formula | カバ合板接着強度及び木部破断率<br>Birch Plywood Strip Shear Strength (kg/cm <sup>2</sup> )(1) and Wood Failure (%) |    |                      |                    |     |                    |     |
|---------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|----|----------------------|--------------------|-----|--------------------|-----|
|         | Dry                                                                                                 |    |                      | Wet (2)            |     | Wet (3)            |     |
|         | kg/cm <sup>2</sup>                                                                                  | %  | Moisture Content (%) | kg/cm <sup>2</sup> | %   | kg/cm <sup>2</sup> | %   |
| A       | 42.2                                                                                                | 63 | 11.3                 | 30.8               | 100 | 36.7               | 100 |
| B       | 38.7                                                                                                | 21 | 10.9                 | 27.6               | 48  | 31.3               | 55  |
| C       | 30.1                                                                                                | 11 | 8.0                  | 21.9               | 19  | 27.8               | 23  |
| D       | 21.3                                                                                                | 9  | 10.2                 | 17.3               | 4   | 17.5               | 6   |
| E       | 18.3                                                                                                | 0  | 8.3                  | 13.6               | 0   | 15.3               | 0   |
| F       | 20.7                                                                                                | 0  | —                    | 16.2               | 0   | 17.0               | 0   |
| G       | 14.6                                                                                                | 0  | —                    | 10.3               | 0   | 12.2               | 0   |
| H       | 12.7                                                                                                | 0  | —                    | 9.0                | 0   | 11.3               | 0   |
| I       | 11.6                                                                                                | 0  | —                    | —                  | —   | —                  | —   |

(1) Shear area ; 1.5×2.5cm<sup>2</sup>.

(2) After 6 hours in hot water at 50°C.

(3) After 24 hours in cold water at 11°±2°C.

(4) Veneer ; Thickness, 1.0mm., Moisture Content 12~13%

即ち上表に見る様に見る様に焼石膏並に水の添加割合の増加と共に接着力及び木部破断率は減少する。而して C. D Formula による Adhesives を比較するに添加割合は同じであるが、前者は焼石膏の割合が多いため接着力並に木部破断率は後者に劣っている。此の事は充填効果の良き一例であつて Table 2. に示す様に後者の粘度は前者に比して低い。これがため Filler として焼石膏を添加してもその効果が殆んど発揮されない。或いは又斯様に粘度が低い時は木部組織中に接着剤が一部分滲透して Starved Joint の現象を起すためであろうと考えられる。尙 E. F Formula の場合に於いても同様な結果が見られる。

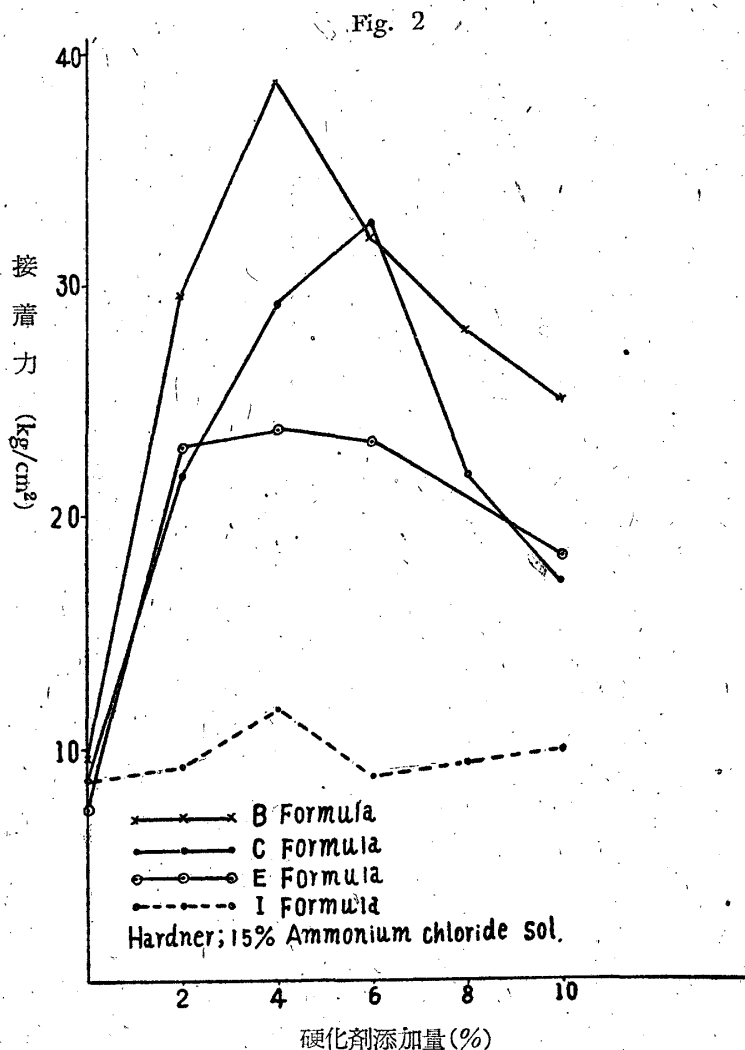
尙厚み 1.5mm. のマカンバロータリ単板を用い、同条件にて製造した合板パネルから日本合板輸出規格に規定してある試験片を採取して、63°C. の温水中に 3 時間浸漬後 15 分間冷水中に浸漬した場合について試験した結果は Table 4. に示す通りである。

Table 4.

| Formula | カバ合板接着強度及び木部破断率<br>Birch Plywood Strip Shear Strength <sup>(1)</sup> (kg/in <sup>2</sup><br>or lb/in <sup>2</sup> ) and Wood Failure(%), Wet (After<br>3 hours in hot water at 63°C.) |                    |    |
|---------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|----|
|         | kg/in <sup>2</sup>                                                                                                                                                                    | lb/in <sup>2</sup> | %  |
| A       | 156.3                                                                                                                                                                                 | 344.0              | 22 |
| B       | 118.8                                                                                                                                                                                 | 261.2              | 68 |
| C       | 97.7                                                                                                                                                                                  | 215.0              | 6  |
| D       | 87.5                                                                                                                                                                                  | 192.5              | 0  |
| E       | 71.7                                                                                                                                                                                  | 157.7              | 0  |
| F       | 85.0                                                                                                                                                                                  | 187.0              | 0  |
| G       | 41.8                                                                                                                                                                                  | 92.1               | 0  |

(1) Shear area ;  $1 \times 1 \text{ in}^2$ .

(2) Veneer ; Thickness, 1.5mm., Moisture Content 12~13 %



即ち A. B. Formula によつて調製した接着剤による合板のみ、日本合板輸出規格、2類合板規格<sup>(41)</sup>値に合格する。

#### C. 合板接着強度に及ぼす硬化剤添加量の影響

〔6〕(F)項に於いてのべた様にして試験した結果は Fig 2. に示す通りである。

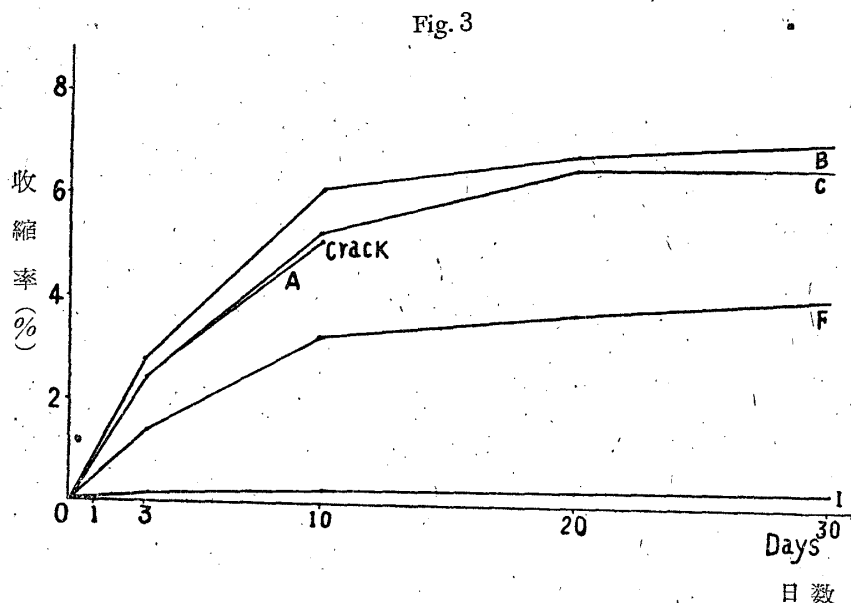
即ち Fig 2. に示す様に B. Formula の場合は硬化剤添加量が 4 % の場合、C. Formula の場合は 6 % の場合それぞれ最高接着力を示し、添加量の差異が接着力に及ぼす影響は明確であるが、焼石膏添加割合の増加と共にその影響は小さくなる。E. I. Formula に見る様にこの事実は、焼石膏は前述せし如く微酸性のため、その添加割合が多くなる時は、硬化剤として塩化アンモニアの添加量が少なくなつても、焼石膏が硬化促進剤として作用するためであろうと考えられる。尚硬化剤添加量を多くする時は、前述せし如く接着面酸度を低下せしめて木部組織に悪影響を及ぼす恐れがある。

註；山田彦右衛門以下3氏の報告によると、純粋な尿素樹脂接着剤に対して、冷圧の場合、硬化剤添加量 3 %<sup>(42)</sup>が最適であるとのべている。

#### D. 接着剤縮合後の収縮量—接着剤老化試験—及び合板接着面の老化試験

##### 1. 接着剤縮合後の収縮量—接着

剤老化試験一；各 Formula によつて調製した接着剤につき，〔6〕(D) 項に於いてのべた様にして試験を行い，各測定日の収縮率を一括して示すと Fig 3. の通りである。



即ち Fig 3. に見る様に Urea Resin Adhesive のみの場合。—A. Formula— は10日目で裂目が入り，収縮量の測定が不能であつた。この事からして老化性が大なる事が判る。然るに焼石膏で少量充填した場合。—B. C Formula— は水の蒸散に伴い初期収縮は A. Formula の場合よりも僅か乍ら高いも，30日目に於いても非常に小さい亀裂が生じたのみである。故に焼石膏を充填する時は亀裂発生を防止—老化性の改良—する事が出来ると思われる。尙焼石膏を多量に充填した場合—F. I Formula— 収縮量は非常に少なく亀裂は全然生じなかつた。<sup>(43, 44)</sup>

2. 合板接着面の老化試験；〔6〕(1) 項に於いてのべた様にして試験した結果は Table 5, Fig 4. の通りである。

Table 5.

| Formula | カバ合板接着強度及び木部破断率<br>Birch Plywood Strip Shear Strength (kg/cm <sup>2</sup> ) <sup>(1)(2)</sup> and Wood Failure (%) |    |                    |    |                    |    |                    |    |                    |    |
|---------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|--------------------|----|--------------------|----|--------------------|----|--------------------|----|
|         | 1 day                                                                                                              |    | 3 days             |    | 10 days            |    | 20 days            |    | 30 days            |    |
|         | kg/cm <sup>2</sup>                                                                                                 | %  | kg/cm <sup>2</sup> | %  | kg/cm <sup>2</sup> | %  | kg/cm <sup>2</sup> | %  | kg/cm <sup>2</sup> | %  |
| A       | 33.0                                                                                                               | 59 | 31.9               | 58 | 28.4               | 62 | 27.3               | 68 | 27.1               | 47 |
| B       | 27.2                                                                                                               | 47 | 25.3               | 11 | 24.4               | 14 | 24.8               | 13 | 24.2               | 26 |
| D       | 18.5                                                                                                               | 13 | 18.6               | 10 | 18.1               | 17 | 18.6               | 13 | 18.2               | 8  |
| E       | 14.7                                                                                                               | 8  | 15.5               | 0  | 17.7               | 3  | 18.5               | 3  | 17.3               | 0  |
| F       | 18.3                                                                                                               | 0  | 16.6               | 0  | 18.2               | 9  | 17.9               | 10 | 19.9               | 15 |

(1) Shear area ; 1.5×2.5cm<sup>2</sup>.

(2) Wet ; After 6 hours in hot water at 50°C.

(3) Veneer ; Thickness 1.0mm., Moisture Content 12~13%,

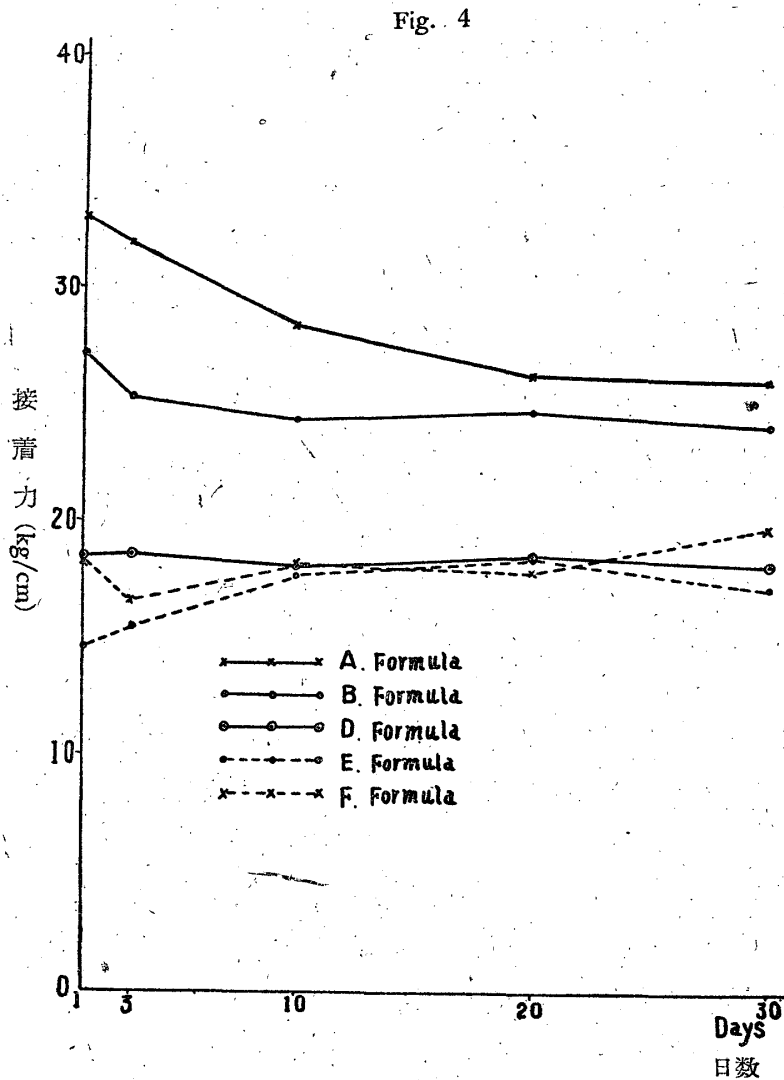


Table 6.

| 圧縮温度及び硬化時間<br>Pressure Plate Temp.<br>and Curing Time. | カバ合板接着強度及び木部破断率<br>Birch Plywood Strip Shear Strength<br>(kg/cm <sup>2</sup> ) <sup>(2)</sup> and Wood Failure (%) |    |
|--------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
|                                                        | kg/cm <sup>2</sup>                                                                                                 | %  |
| For 8min. at 100°C.                                    | 36.5                                                                                                               | 15 |
| For 20min. at 80°C.                                    | 36.1                                                                                                               | 41 |
| For 40min. at 60°C.                                    | 36.3                                                                                                               | 18 |
| For 24hr. at 20°±2°C.                                  | 38.7                                                                                                               | 47 |

(1) Adhesive ; B. Formula.

(2) Shear area ; 1.5×2.5cm<sup>2</sup>.

(3) Veneer ; Thickness 1.0mm., Moisture Content 12~13%

即ち充填していない Urea Resin Adhesive—A. Formula—で以つて接着した合板の接着力は日時の経過と共に漸次減少するが、焼石膏で以つて充填した場合、減少は僅かであるか、或いは殆ど一定の様である。これは前述せし如く接着面に亀裂が生じないためであると思われる。

以上の実験結果からして、Urea Resin Adhesive に耐老化性を附与せしめるために焼石膏を少量 (10%~20%) 充填せしめる事は甚だ効果的であると思われる。

E. 合板接着強度に及ぼす熱盤温度の影響

B. Formula によつて調製した接着剤で以つて製作した合板試験片について、[6](G) 項に於いてのべた様にして試験した結果は Table 6. に示す通りである。

即ち Table 6. に見る様に熱盤温度による差異は殆どないが低温にて十分に硬化せしめた方が僅に良好であると思われる。然し作業時間の経済から見て問題がある。

(註) 20°C. 以下の場合には接着性能は不良となる。

F. 合板接着強度に及ぼす硬化時間の影響

〔6〕(H) 項に於いてのべた様にして試験した、温水処理後の合板接着力は Table 7. に示す通りである。

Table 7.

| 硬化時間<br>Curing Time<br>(min.) | カバ合板接着強度及び木部破断率<br>Birch Plywood Strip Shear Strength (kg/in <sup>2</sup> or lb/in <sup>2</sup> ) <sup>(2)(3)</sup> and Wood Failure(%) |                    |    |                    |                    |    |
|-------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|----|--------------------|--------------------|----|
|                               | A. Formula                                                                                                                              |                    |    | B. Formula         |                    |    |
|                               | kg/in <sup>2</sup>                                                                                                                      | lb/in <sup>2</sup> | %  | kg/in <sup>2</sup> | lb/in <sup>2</sup> | %  |
| 10                            | 156.3                                                                                                                                   | 344.0              | 22 | 118.8              | 261.2              | 68 |
| 15                            | 178.5                                                                                                                                   | 393.0              | 70 | 108.0              | 237.7              | 0  |
| 20                            | 157.0                                                                                                                                   | 345.0              | 80 | 100.3              | 220.8              | 0  |
| 25                            | 181.0                                                                                                                                   | 398.5              | 29 | 90.0               | 198.0              | 0  |

(1) Pressure Plate temp. ; 100°C.

(2) Shear area ; 1×1 in<sup>2</sup>.

(3) Wet ; After 3 hours in hot water at 63°C.

(4) Veneer ; Thickness 1.5mm., Moisture Content 12~13%

即ち Table 7. に見る様に硬化時間 10~15 分間にて硬化を完了し最高接着力を得る。若し硬化時間を短くする時は硬化不十分にして未縮合の樹脂部分が残る、良好な接着力を得る事は出来ないのみならず、老化性を促進せしめる。又硬化時間を徒に長くする時は、作業時間、並に熱経済の観点から見て不経済である許りでなく、樹脂の被膜に亀裂発生の危険、木部組織の損傷等を招く恐れがある。

## 〔8〕 要 約

本研究に於いては焼石膏充填尿素樹脂接着剤の老化性及びその接着剤で接着したカバ合板パネルの接着力を試験した。

1. 試験結果は Table 2~7 及び Fig. 2~4 に示す如くである。
2. 尿素樹脂接着剤に 10%~20% (重量比にて) 焼石膏を添加した接着剤による合板接着力並に木部破断率は純粋な尿素樹脂接着剤の場合に比して僅か乍ら劣るが、老化性及び塗布性質は改良せられた。
3. A 及び B Formula (Table 1 参照) によつて調製した接着剤で接着したカバ合板パネルの接着力並に木部破断率は日本合板輸出規格 60 に合格する事を認めた。

## Résumé

In this research we investigated the aging character of the filling urea resin adhesive with calcined plaster and the strip shear strength of birch plywood panel bonded with it.

1. The results obtained are given in Table 2~7 and Fig. 2~4.
2. The addition of calcined plaster from 10 percent to 20 percent (by weight

ratio) of the urea resin adhesive is a little worse than with pure urea resin adhesive in the plywood strip shear strength and wood failure, but the aging and spreading character are improved.

3. The strip shear strength and wood failure of birch plywood panel bonded with adhesives prepared with A and B Formula (cf. table 1) are recognized to come up to the Japanese plywood Export Specifications No. 60.

## 文 献

- 1) 豊島主税 ; 尿素樹脂接着剤の亀裂防止に関する研究 第1報, 硬化剤の組成と接着剤の亀裂生成状態, 合成樹脂研究綜報 1~3 (1946)
- 2) J. Delmonte ; The Technology of Adhesives, 60~64. (1947)
- 3) 布山五雄 ; 尿素樹脂工業・メラミン樹脂工業 (合成樹脂工業叢書 第2巻), 156. (1950)
- 4) ; 2) に同じ, 57~60 (1947)
- 5) 森 茂 ; 蛋白変性尿素樹脂接着剤, 新田産業科学研究所研究報告, 2, 47~50, (1949)
- 6) 半井勇三 ; 木材接着剤, 56~58, 76, (1947)
- 7) ; 3) に同じ, 156, 45~48 (1950)
- 8) 大島敬治 ; 最新合成樹脂, 257~258 (1950)
- 9) A. G. H. Dietz ; Material of Construction, Wood. Plastics. Fabrics 148~149 (1949)
- 10) Synthetic Resin Glues ; U. S. Forest Product Laboratory No. 1336 (1947)
- 11) 豊島主税 ; 1) に同じ, 第3報, 硬化剤に塩化アンモンを使用する場合接着剤の亀裂生成状態, 合成樹脂研究綜報, 5~10 (1946)
- 12) ; 2) に同じ (1947) 13) ; 3) に同じ, 82, 46 (1950)
- 14) A. Reitz ; Leimuntersuchungen ; VD I, 82, Nr. 52. 1491~1492 (1938)
- 15) 豊島主税 ; 1) に同じ, 第2報接着剤に各種充填剤を加えた場合の亀裂生成状態, 合成樹脂研究綜報, 3~5 (1946)
- 16) E. Bock ; Karbamidharz-Leim ; VD I, 82, Nr. 33 (1938)
- 17) 尿素系樹脂 (ドイツに於ける最近の例) ; 合成樹脂工業, 2, No. 2. 31~32 (1950)
- 18) H. Hadert ; Holzschutz und Holzveredelung, 145~146 (1938)
- 19) ; 14) に同じ.
- 20) 日本学術振興会編 ; 接着剤. 315~318 (1951)
- 21) 小田良平, 藤田敏郎, 木田和作 ; 尿素樹脂系接着剤の充填剤の研究 (第2報), 高分子化学, 4, 33~34 (1947)
- 22) ; 10) に同じ. 23) ; 6) に同じ, 67~68 (1947)
- 24) ; 3) に同じ, 81~82 (1950)
- 25) T. D. Perry ; Modern Wood Adhesives, 63 (1944)
- 26) " ; Modern Plywood, 83 (1948)
- 27) ; 25) に同じ.
- 28) 合成樹脂工業技術研究会編 ; 合成樹脂便覧, 494~502 (1951)
- 29) 中島顯三 ; 膠着剤, 478~479 (1949)
- 30) 布山五雄 ; 合成樹脂接着剤について, 木材工業 4, No. 2, 15~16 (1949)
- 31) ; 3) に同じ, 153 (1950) 32) ; 30) に同じ, 33) ; 3) に同じ,
- 34) 半井勇三 ; 尿素樹脂接着剤の増量割合とその性能. 木材工業 5, No. 2, 19~21 (1947)

- 35) ; 3) に同じ, 33., 36) ; 30) に同じ., 37) ; 6) に同じ, 59~60.  
38) ; 荒木鶴雄 ; 航空機用非金属材料, 51~56 ( )  
39) ; 10) に同じ.  
40) G. M. Kline, F. W. Reinhart, R. C. Rinker, N. J. DeLellis ; Effect of Catalysts and pH on Strength of Resin Bonded Plywood. U. S. Department of Commerce National Bureau of Standards Research Paper RP 1748, **37**. (1946)  
41) ; 28) に同じ.  
42) 榑原純哉, 谷山羊一郎, 山田彦右衛門, 松尾秀郎 ; 合板用尿素ホルマリン樹脂接着剤について, 木材工業, **6**, 44~45 (1951)  
43) ; 2) に同じ, 383~358, 44) ; 3) に同じ, 45) ; 6) に同じ, 68~71.