

パーティクルボードに関する研究 (VI)

原料樹種に関する研究 (第1報)

成分利用によるパーティクルボード の製造 (1)

岩 下 睦⁽¹⁾
石 原 重 春⁽²⁾
松 田 敏 誉⁽³⁾

I 概 説

パーティクルボード製造における接着剤の占める原価構成率はきわめて高い。この製造原価をさげるために、従来樹皮に含まれる成分を利用して、これを接着剤化する方法が検討されている。すなわち、L. H. BRYANT⁽¹⁾⁽⁶⁾ らは wattle bark 粉末に、また R. B. HALL⁽²⁾ らは *Pinus Radiata* bark 粉末に直接パラホルムアルデヒドを混合して、熱圧により成板する方法を検討している。この方法は樹皮に含まれるタンニンあるいはタンニンの成分を積極的に利用して、従来の尿素樹脂接着剤を用いなくて成板する方法であり、熱圧中に樹皮粉末中に含まれるタンニンとホルムアルデヒドが反応し、接着剤の役目をはたすことが認められている。しかしこの場合接着性を向上させるためには高い圧縮圧を必要とするので、成板されたボードは高比重のハードボード・タイプにならざるをえない。しかし、3層ボードの表層にこの考えを適用すると、すでに報告したように⁽¹⁾、内層の low compressibility に支えられて、表層がち密化され、ボード比重0.7程度の3層パーティクルボードの製造が可能になると考えられる。

この研究はスダジイ *Castanopsis cuspidata* (THUNB.) SCHOTTKY の木質に比較的多く含まれるタンニン成分と、カラマツ *Larix Kaempferi* SARG. の木質に含まれる水溶性成分を小片中に含まれた状態において利用し、接着剤化しようとしたものであり、かつ、それらの小片を3層ボードの表層に用い、内層のみ尿素樹脂接着剤を使用することによって新しい3層ボードの製造法を確立しようとしたものである。

なお、この研究は当場におけるパーティクルボード研究班の共同研究の一部として行なつたもので、種々有益なご指導を賜わつた研究班の方々、なかんずく終始適切なるご指導とご援助をいただいた木材部長小倉博士、前林産化学部長田窪博士、林産化学部長米沢博士、林産化学部特殊林産研究室長本田博士、東京農工大学教授岡岡博士に対し、さらにはこの報告をまとめるにあたり、多くのご教示をいただいた京都大学教授中戸博士に対し、また実験の労をともにした農工大学学生後藤哲哉君に対し厚くお礼申しあげる。

II カラマツ水溶性成分の接着性

(1) 木材部材質改良科材質改良研究室長・農学博士

(2) 木材部材質改良科材質改良研究室員

(3) 林産化学部パルプ繊維板科繊維板研究室員

タンニンについては前述のように BRYANT らおよび HALL らによつて、また、さらには W. J. HERZBERG³⁾ が *Pinus Radiata* bark に含まれるタンニン成分を抽出し、それにホルムアルデヒドを作用させて合板用接着剤としてのタンニン・ホルムアルデヒド樹脂を製造していることからわかるように、ホルムアルデヒドを作用させることにより、接着剤化しうことは明らかであるが、カラマツの水溶性成分については従来このような報告はない。わずかに J. O. THOMPSON⁹⁾ らによる Beater adhesive としての arabogalactan の、あるいは P. H. KUTUZOV⁶⁾ によるカラマツからの Gum arabic の採取について記載があるにすぎない。したがつて、この研究ではまず予備的に従来パルプ蒸解阻害物質として知られているカラマツの多糖類などの水溶性成分の接着性について検討を行なつた。

1. 実験方法

(1) 試料

実験に供した樹種は長野県産カラマツ *Larix Kaempferi* SARG. (冷水抽出成分 8.87%) で、長さ 10cm、幅 2cm、厚さ 5cm の柱目材 (心材) の被接着試料を作製した。なお、冷水抽出材は 7 日間純水に浸漬したが、この程度の浸漬で試料表面から深さ 1mm の付近までは水溶性成分を抽出することが可能であるとみなした。これらの試料は温度 20°C、関係湿度 45% で調湿した。ちなみに試料含水率はすべて 9~10% である。

(2) 接着条件

カラマツ素材および冷水抽出材に対する塗付薬剤は①ホルムアルデヒド 30% 溶液、②カラマツ小片 (この場合の小片は次章の実験に使用したカラマツ表層用小片を用い冷水抽出を行なつたものである) 冷水抽出液 150g (2.3% 溶液) にホルムアルデヒド 30% 溶液 5.7g (冷水抽出物: パラホルムアルデヒド = 2:1) を加え、50°C で 1/10 に濃縮した濃縮液、③カラマツ小片冷水抽出液を濃縮し、単離したアラボガラクトタン 50% 溶液、④アラボガラクトタンとパラホルムアルデヒドを等量に混合し、水で倍量に希釈した混合液、⑤尿素単体をホルムアルデヒド 30% 溶液にその 25% 添加したもの、⑥尿素樹脂 (TD511, 45% 溶液) に Catalyst 376 を 3% 添加したものである。その塗付量はパーティクルボード製造における接着剤塗付量を規準として、 0.005 g/cm^2 とした。

熱圧条件は熱圧温度 140°C、熱圧時間 10min、圧締圧 10 kg/cm^2 である。

(3) 接着力試験方法

接着力試験は引張型接着力試験で行なつた。試験片中央部に両面より切り込みを入れ、滑脱面積を 2 cm^2 にした。試料個数は 5~6 個である。

2. 実験結果ならびに考察

カラマツに含まれる冷水抽出成分は前述のように 8.87% であるが、素材にホルムアルデヒド溶液を塗付する場合は、板の表面付近 (約 0.5mm 深さ程度) に含まれる成分のみが対象になると考えられる。供試カラマツの全乾比重は 0.55 であるので、板表面 1 cm^2 、深さ 1mm の部分 (両面) に含まれる冷水抽出成分は乾量で約 0.005 g と推定される。これに対して、ホルムアルデヒド 30% 溶液の塗付量は 0.005 g/cm^2 (両面) であるから、冷水抽出成分とパラホルムアルデヒドの固形分比は約 3:1 である。

このような接着条件の接着力試験結果は Table 1 の No. 1 のとおりである。これに対して、冷水抽出を行なつた試料を用いた場合 (No. 2) は接着不能であつた。同じく冷水抽出試料に対して、冷水抽出溶液にホルムアルデヒドを添加した濃縮液 (固形分比 2:1) を塗付した場合は No. 3 の接着力を示し、冷

Table 1. カラマツ材の接着性能

No.	被接着材	接 着 処 理 薬 剤	引張り強さ(標準偏差) (kg/cm^2)
1	素 材	ホルムアルデヒド 30% 溶液	11.4 (2.0)
2	冷水抽出材	〃 〃	—
3	〃	冷水抽出液・ホルムアルデヒド濃縮液 ¹⁾	20.4 (3.4)
4	〃	アラボガラクトタン ²⁾ 50% 溶液	18.1 (6.4)
5	〃	アラボガラクトタン・ホルムアルデヒド(固形分比1:1)50%溶液	23.4 (0.8)
6	素 材	ホルムアルデヒド 30% 溶液に尿素 25% 添加	52.8 (16.4)
7	〃	尿素樹脂接着剤(TD 511・45%溶液)・Catalyst 376・3%添加	60.8 (14.8)

注 1) カラマツ小片冷水抽出液 150g (2.3%溶液) にホルムアルデヒド 30% 溶液 5.7g (冷水抽出物: パラホルムアルデヒド固形分比 2:1) を加え, 50°C で 1/10に濃縮した濃縮液

2) カラマツ小片冷水抽出液を濃縮し, 単離した。

塗 付 量: ボード製造における接着剤塗付量を規準として 0.005 g/cm^2

熱圧条件: 温度 140°C, 時間 10min, 圧縮圧 10 kg/cm^2

水抽出溶液から単離したアラボガラクトタンの 50% 溶液, およびアラボガラクトタンとホルムアルデヒド(固形分比 1:1) 50% 溶液をそれぞれ冷水抽出試料に塗付した場合はそれぞれ No.4, No.5 の接着力を示した。これらのことからカラマツ冷水抽出成分, 特に冷水抽出成分中のアラボガラクトタンは, 熱圧により接着性を有することが明らかになった。抽出液・ホルムアルデヒド濃縮液の接着力が素材にホルムアルデヒドを塗付した場合, あるいはアラボガラクトタン 50% 溶液の接着力より大になったのは接着有効成分が多いためであると思われる。余分なホルムアルデヒドの捕そくと接着力の補強の意味で, ホルムアルデヒドに尿素単体を添加すると (No.6), 接着力はほとんど尿素樹脂接着剤の接着力 (No.7) に匹敵するほど向上された。

以上の結果, カラマツに含まれる水溶性成分, 特にアラボガラクトタンは, パラホルムアルデヒドを添加することにより接着作用を有することが認められたので, スダジイとともに, 次に述べる成板試験を行なった。

III 3 層ボードの製造

前述のように Bark 粉末または Bark extract のタンニン分とパラホルムアルデヒドを熱圧中に反応させ, 接着剤化する場合は高圧締圧を要し, 成板されたボードは高比重のハードボード・タイプにならざるをえない。しかし, 3 層ボードの表層にこの考えを適用するならば, 比重 0.7 程度のボードを成板することが可能になると考えられる。したがって, 内層は従来の尿素樹脂を使用し, 表層にスダジイおよびカラマツ小片とパラホルムアルデヒドを用いて, 表層水分, パラホルムアルデヒド添加量, 尿素単体添加の影響について検討した。

1. 実験方法

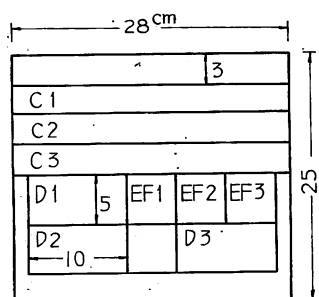
(1) 試料の調製

実験に供した樹種は愛媛県産スダジイ *Castanopsis cuspidata* (THUNB.) SCHOTTKY⁵⁾ および秋田県角館営林署管内産カラマツ *Larix Kaempferi* SARG. を用い, 前者の場合は 3 層ボードの内層用にコジイ *Castanopsis Thunbergii* (MAKINO) HATSUSHIMA⁵⁾ を用いた。これらの供試材は当场設置のシェービング・マシンおよびクラッシャーによつて, $0.2 \times 1 \sim 3 \times 20 \text{ mm}$ の表層用小片と $0.5 \times 3 \sim 6 \times 40 \text{ mm}$ の内層用小片を作製した。小片含水率はホルムアルデヒド添加後において表層を 20% および 30%, 内層を 10% に

なるように調湿した。

(2) 成板条件

表層小片に対するパラホルムアルデヒドの添加量は4%, 6%, 8%とし, さらにスダジイに対してパラホルムアルデヒド6%のものに尿素2%, 4%, 6%, カラマツに対して同じくパラホルムアルデヒド6%のものに尿素6%を添加した。そのほかスダジイ, カラマツの冷水抽出した小片を作り, パラホルムアルデヒド6%を添加した。内層小片に対する尿素樹脂(プライアミン TD 511 濃度 45%)の添加量は7%とした。



試験片 SPECIMEN

C: 曲げ Bending

D: 剝離抵抗 Tensile

G: 木ねじ保持力 Screw holding

EF: 吸湿率 Hygroscopicity

Fig. 1 試験片の採取

Sampling of specimens.

なお, 比較のため表層および内層とも尿素樹脂(TD 511)を塗付したもの(表層 11%, 内層 7%)各1条件を成板した。硬化剤はすべての尿素樹脂に対して Catalyst 376 を3% 添加した。表層, 内層構成比は1:2, 成板面積25×28cm, ボード厚さ15mm, ボード比重0.7, 熱圧温度140°C, 熱圧時間10min, 圧縮圧スケジュールは初期圧縮圧35kg/cm²とし, 2.5minごとに10kg/cm²ずつstep downさせた。成板枚数は各条件2枚とした。

(3) 材質試験方法

試験片の採取は Fig.1 に示すように, 試料の大きさの都合から曲げ試験片の幅を3cmとし, 曲げ試験終了後の試片の両端部から木ねじ保持力試験片を5cm長さに切り取った。そのほかは JIS A 5908—1957 にしたがった。

2. 実験結果ならびに考察

(1) パラホルムアルデヒド添加量の影響

Table 2. パラホルムアルデヒド添加量とボード材質の関係(スダジイ)

The relation between quantities of paraformaldehyde and the board properties (SUDAJII).

成板条件 Curing condition		比重	曲げ強さ	曲げヤング率	剝離抵抗	木ねじ保持力	吸湿率	吸湿厚さ増加率	備考 Remark
表層小片含水率 Face particle moisture content (%)	パラホルムアルデヒド添加量 Paraformaldehyde quantities (%)	Specific gravity	Bending strength (kg/cm ²)	Young's modulus × 10 ⁴ (kg/cm ²)	Tensile strength perpendicular to surface (kg/cm ²)	Wood screw holding power (kg)	Hygroscopicity (%)	Thickness expansion (%)	
20	4	0.69(0.04)	267(52)	4.5(0.3)	5.3(0.6)	36.8(6.6)	2.8(0.7)	2.6(0.7)	() 標準偏差 Standard deviation
	6	0.72(0.02)	266(29)	4.6(0.2)	5.9(1.6)	35.9(6.3)	2.5(0.4)	2.7(0.6)	
	8	0.71(0.04)	247(35)	4.4(0.3)	4.5(0.6)	32.3(4.4)	2.4(0.7)	2.6(0.9)	
30	4	0.71(0.03)	256(45)	4.6(0.3)	4.6(1.3)	31.1(4.0)	3.0(0.6)	2.7(0.5)	
	6	0.73(0.02)	223(29)	4.4(0.3)	5.3(0.9)	34.2(3.1)	2.6(0.6)	2.5(0.7)	
	8	0.68(0.04)	233(29)	4.5(0.3)	5.1(0.6)	34.7(4.2)	2.4(0.6)	2.2(0.6)	
30	6	0.68(0.03)	179(35)	3.7(0.3)	3.9(0.5)	28.0(3.7)	3.1(0.5)	2.7(0.4)	表層小片:冷水抽出小片(抽出物量2.78%) Face particle: extracts free(extracts 2.78%)

Table 3. パラホルムアルデヒド添加量とボード材質の関係 (カラマツ)

The relation between quantities of paraformaldehyde and the board properties (Larch).

成 板 条 件 Curing condition		比 重 Specific gravity	曲げ強 さ Bend- ing st- rength (kg/ cm ²)	曲げヤ ング率 Youn- g's m- odulus × 10 ⁴ (kg/ cm ²)	剝離抵抗 Tensile strength perpen- dicular to surface (kg/cm ²)	木ねじ保 持力 Wood screw holding power (kg)	吸湿率 Hygro- scopicity (%)	吸湿厚 さ増加 率 Thick- ness ex- pansion (%)	備 考 Remark
表層小片 含水率 Face part- icle moisture content (%)	パラホルム アルデヒド 添加量 Paraform- aldehyde quantities (%)								
20	4	0.69(0.02)	260(16)	4.5(0.1)	4.1(0.9)	33.8(1.4)	2.5(0.5)	2.5(0.5)	() 標準偏差 Standard deviation
	6	0.71(0.03)	255(24)	4.5(0.2)	3.7(0.6)	36.0(3.8)	2.7(0.6)	2.7(0.6)	
	8	0.69(0.02)	265(19)	4.5(0.2)	4.6(0.9)	34.2(4.7)	2.8(0.6)	2.8(0.6)	
30	4	0.73(0.02)	231(7)	4.5(0.2)	4.5(0.9)	33.9(2.2)	2.5(0.6)	2.5(0.6)	
	6	0.71(0.02)	261(28)	4.7(0.1)	4.4(1.0)	32.5(5.0)	2.9(0.3)	2.9(0.3)	
	8	0.69(0.02)	242(31)	4.4(0.2)	4.3(1.0)	31.8(5.1)	2.7(0.5)	2.7(0.5)	
30	6	0.69(0.03)	184(8)	2.1(0.2)	4.7(0.6)	22.2(3.5)	2.5(0.6)	2.5(0.6)	表層小片：冷水抽出小片 (抽出物量 8.87%) Face particle: extracts free (extracts 8.87%)

HERBERG³⁾によるとタンニン・ホルムアルデヒド樹脂を製造する際のタンニンおよびパラホルムアルデヒドの配合比は約10:1である。従来スダジイはタンニンを8%程度含むといわれているので、パラホルムアルデヒド1%で十分であると考えられた。しかし、供試のカラマツおよびスダジイについて、パラホルムアルデヒド添加量を4%、6%、8%とした結果はTable 2～3に示すとおりで、添加量に対する分散分析の結果はすべての材質にわたり、有意差はなかつた。これはスダジイ、カラマツともパラホルムアルデヒド添加量は4%以上必要のないことを示す。しかし、ボード比重が高いことと、内層に尿素樹脂接着剤が使用されているにもかかわらず、ボード強度の絶対値が低いことから、反応に必要な条件の不適正あるいは接着に必要な成分の不足が考えられる。しかし、冷水抽出処理した小片のボードは処理しないものよりも明らかに材質が低下しており（剝離抵抗に有意差がないのは内層条件が同じためである）、両樹種とも冷水抽出成分が接着にきわめて大きな影響を与えていることは認められた。以上の結果、3層ボードの表層小片の成分利用による接着は表層ち密化条件の適用により、ある程度その可能性が見い出された。

(2) 小片水分の影響

熱圧前の小片水分が高すぎると接着に関与する有効成分が流失するといわれているが¹⁾、表層ち密化の点からは、パーティクルボードに関する研究(Ⅲ)⁴⁾において考察したように、水分が多い方が有効である。実際にこの実験において成板したボードの表面の平滑性は表層小片含水率20%より30%の場合に良好であつた。しかし、材質試験の結果はTable 2～3に示したように、両樹種ともほとんど有意な差は認められなかつた。むしろ、スダジイの曲げ強さにおいて、小片含水率20%の場合に30%の場合より5% levelの危険率をもつて有意的に高い値が得られた。このことは表層の水溶性タンニン分が熱圧に際して、表層から内層への水分移動とともに移動したのではないかと考えられるが、さらに今後検討しなければならない。

(3) 尿素添加による影響

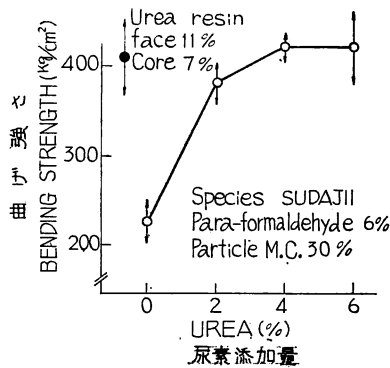


Fig. 2 ボードの曲げ強さと尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on bending strength of particle board.

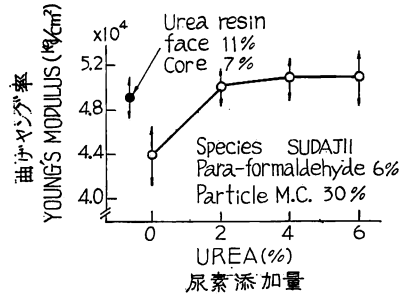


Fig. 3 ボードの曲げヤング率と尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on Young's modulus of particle board.

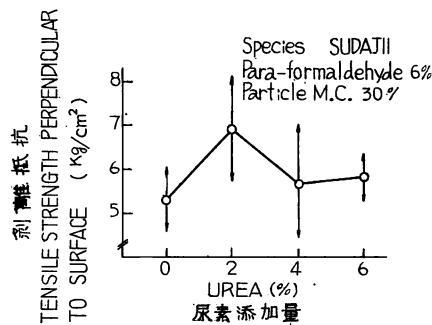


Fig. 4 ボードの剥離抵抗と尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on tensile strength perpendicular to surface of particle board.

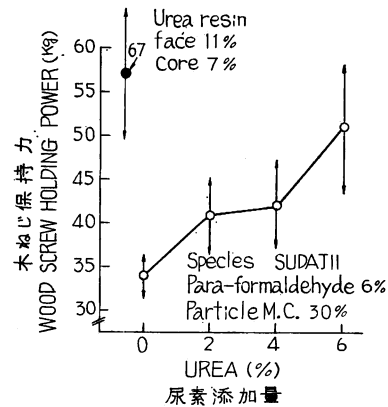


Fig. 5 ボードの木ねじ保持力と尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on wood screw holding power of particle board.

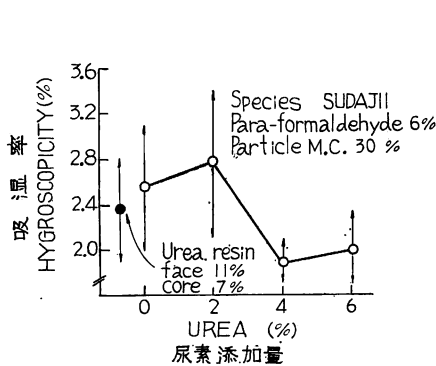


Fig. 6 ボードの吸湿率と尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on hygroscopicity of particle board.

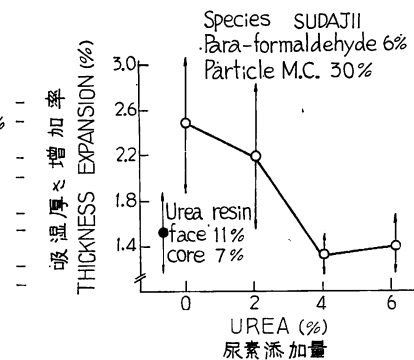


Fig. 7 ボードの吸湿厚さ増加率と尿素添加量の関係

The effect of urea quantities on hygroscopic thickness expansion of particle board.

Table 4. 尿素添加および尿素樹脂接着剤による場合のボード材質 (カラマツ)
The board properties depending on addition of urea and urea resin adhesive (Larch).

成板条件 Curing condition		比重	曲げ強さ	曲げヤング率	剝離抵抗	木ねじ保持力	吸湿率	吸湿厚さ増加率	備考
添加剤 Additives	添加量 Quantity	Specific gravity	Bending strength (kg/cm ²)	Young's modulus (kg/cm ²)	Tensile strength perpendicular to surface (kg/cm ²)	Wood screw holding power (kg)	Hygroscopicity (%)	Thickness expansion (%)	Remark (Face particle moisture content) (%)
Paraformaldehyde	6	0.71(0.02)	261(28)	4.7(0.1)	4.4(1.0)	32.5(5.0)	2.9(0.3)	2.9(0.3)	30
Paraformaldehyde urea	6 4	0.73(0.02)	387(31)	5.3(0.3)	—	44.7(6.5)	2.3(0.4)	1.4(0.2)	30
Urea resin (Face) (Core)	11 7	0.72(0.02)	391(72)	5.3(0.5)	—	54.6(7.0)	2.4(0.5)	1.4(0.2)	23

注) Note: () 標準偏差 Standard deviation

パラホルムアルデヒドを用いたボード製造の場合、熱圧に際してホルムアルデヒド・ガスが大量に失われる。この遊離のホルムアルデヒドを捕そくする目的と、接着性の補強の意味で尿素をパラホルムアルデヒドに添加した。材質試験の結果は Fig. 2～7 および Table 4 に示すとおりで、尿素添加の影響はきわめて顕著である。すなわち、スダジイの場合、曲げ強さ、曲げヤング率において尿素無添加と 2%、4%、6% との間で 1% level の危険率で有意差があり、木ねじ保持力において無添加と 2%、4% 添加の間で 5% level、無添加と 6% 添加の間で 1% level の危険率で有意差が認められた。また、吸湿率は 2% 添加と 4% 添加の間で 1% level、2% 添加と 6% 添加の間で 5% level の危険率で有意差があつたが、2% 添加と無添加との間には有意差がなかつた。吸湿厚さ増加率では無添加および 2% 添加と 4% および 6% 添加との間で 1% level の危険率で有意差が認められた。カラマツの場合は尿素 4% 添加のみであるが、無添加との間にすべて 1% level の危険率で有意な差が認められた。なお、尿素樹脂接着剤により成板したボードと尿素添加のボードと比較すると、両樹種とも、曲げ強さ、曲げヤング率において有意差が認められないが、木ねじ保持力では 1% level の危険率で有意差が認められる。

以上の結果、全般に尿素樹脂接着剤を使用したボードの材質に匹敵させるためには尿素単体を 6% 程度添加しなければならない。これはスダジイの場合、水溶性成分量が 2.78% であり、成分絶対量の不足が原因しているものと思われる。カラマツの場合は成分絶対量の不足は考えられないが、アラボガラクトンなどの水溶性成分に対する添加剤等の成板条件に適正を欠いたためと考えられる。したがつて、次にカラマツ小片のみを用い、接着条件の検討を行なつた。

IV カラマツ成分に対する種々の成板条件の影響

前章の実験においては熱圧温度、熱圧時間を一定として 3 層ボードを成板したが、さらにカラマツ成分に対する最適の熱圧成板条件を決定するために、カラマツ表層小片のみの単層ボードの形において、熱圧温度、熱圧時間、小片含水率、パラホルムアルデヒド量、さらにその他の添加剤を取り上げ、ボード材質との関係を検討した。

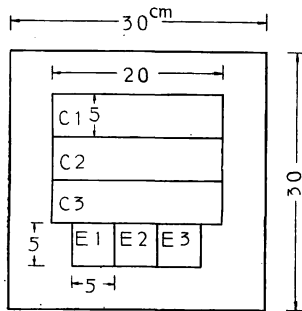
1. 実験方法

(1) 試料の調製

実験に供した試料は長野県産カラマツ（冷水抽出成分量 8.29%）*Larix Kaempferi* SARG. の心材のみを主として用い、前章に述べた方法により $0.2 \times 1 \sim 3 \times 20\text{mm}$ （表層用）の小片を作製した。

(2) 成板条件

小片に対するパラホルムアルデヒド添加量は 1%, 2%, 4% とし、ホルムアルデヒド溶液の形で添加し、小片の含水率がそれぞれ 15%, 20%, 25% になるようにした。そのほか、パラホルムアルデヒド 4% 添加のものに対し、ノニオン系活性剤（スコアロール 900）0.65%, 尿素 6%, アンモニア 0.25%（28% 溶液）をそれぞれ添加した。なお、比較のため、尿素樹脂（TD511）を 11%（硬化剤は Catalyst 376 を樹脂液に対し 3%）添加したものを成板した。



試験片 SPECIMEN

C: 曲げ Bending

E: 吸水率 Water absorption

Fig. 8 試験片の採取
Sampling of specimens.

熱圧温度ははじめの条件試験の場合に 140°C , 160°C , 180°C とし、その他の場合は 140°C とした。熱圧時間は 5 min, 10 min, 15 min とし、圧縮圧は熱圧時間 5 min の場合、 35kg/cm^2 (2 min), 20kg/cm^2 (2 min), 10kg/cm^2 (1 min), 熱圧時間 10 min の場合、 35kg/cm^2 (3 min), 20kg/cm^2 (3 min), 10kg/cm^2 (4 min), 熱圧時間 15 min の場合、 35kg/cm^2 (5 min), 20kg/cm^2 (5 min), 10kg/cm^2 (5 min) のように、それぞれ step down させた。

成板面積は $30 \times 30\text{cm}$, ボード厚さ 5 mm, ボード比重 0.8 とし、成板枚数は各条件 3 枚とした。

(3) 材質試験方法

曲げ試験は JIS A 5908 (1961) により、同時に曲げヤング率もあわせて測定した。そのほか吸水率は試験片形状を $5 \times 5\text{cm}$ とし、

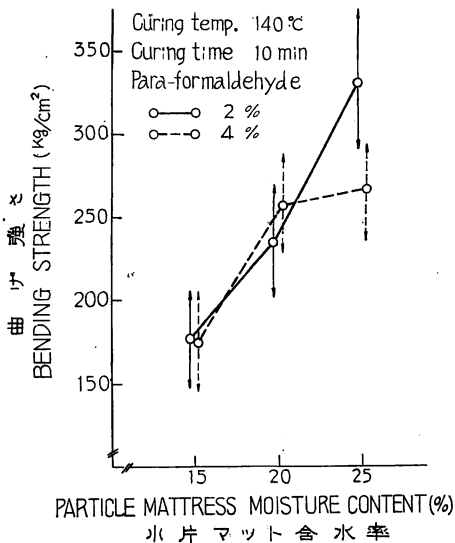


Fig. 9 カラマツ単層ボードの曲げ強さと小片マット含水率の関係
The effect of moisture contents in particle mattress on bending strength of larch mono-layer board.

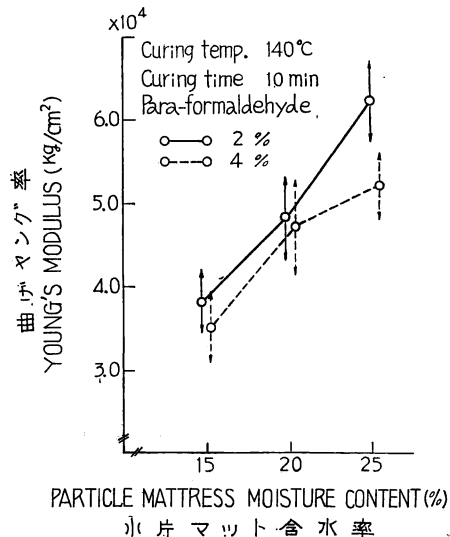


Fig. 10 カラマツ単層ボードの曲げヤング率と小片マット含水率の関係
The effect of moisture contents in particle mattress on Young's modulus of larch mono-layer board.

Table 5. 種々の成板条件のカラマツ単層ボードの材質 (1)
The properties of larch mono-layer board in various curing condition (1).

成板条件 Curing condition		比重 Specific gravity	曲げ強さ Bending strength (kg/cm ²)	曲げヤング率 Young's modulus × 10 ⁴ (kg/cm ²)	吸水率 Water absorption (%)	吸水厚さ増加率 Thickness expansion (%)	備考 Remark
添加剤 Additives	添加量 Quantity (%)						
Paraformaldehyde	4	0.78(0.02)	266(27)	5.2(0.4)	181.1(24.2)	85.3(8.7)	Extracts free particle Sap wood particle
〃	4	0.81(0.05)	82(26)	1.8(0.7)	123.3(11.1)	61.5(3.7)	
〃	4	0.72(0.06)	22(8)	—	崩壊 Disintegration		
〃	0	0.80(0.04)	235(30)	5.0(0.3)	崩壊 Disintegration		

注) Note: () 標準偏差 Standard deviation.

小片含水率 Particle moisture content: 25%

熱圧時間 Pressing time: 10 min

試験方法はJIS A 1907 (1961) により、同時に試験片中央部における吸水厚さ増加率を測定した。なお、試験片個数は各9個とし、採取方法は Fig. 8 のとおりである。

2. 実験結果ならびに考察

(1) 小片含水率の影響

この実験のように単層高比重ボードを製造する場合は、熱圧における小片マット水分の挙動が3層ボードと異なり、要因の影響を正確につかむことが非常に困難である。すなわち、3層ボードの場合は表層小片含水率がある程度大であつても、熱圧の際、水分は内層を通過して外部に蒸発しやすい形にあるため、全体の水分が極端に大でないかぎり、比較的パンクの危険は少ない。しかし、厚さの薄い小片による高比重単層ボードの場合は、比較的水分の移動が困難である。とくにマット水分が多い場合はパンクの危険が大であり、現実にはパンクしないまでも、パンクに近い様相を呈し、見掛け以上、接着力を低下せしめる場合がある。Fig. 9~10 は熱圧時間 10min における小片マット含水率とボードの曲げ強さおよび曲げヤング率の関係であるが、マット含水率 25% において、パラホルムアルデヒド量 4% の場合に 2% の場合より強度が低下したのは明らかに前者がパンクに近い様相を呈したからである。この場合、曲げ強さ、曲げヤング率ともマット含水率 15% から 25% の間で 1% level の危険率をもつて有意的に向上した。これは小片に含まれる水溶性成分を利用して小片を接着する場合、小片マット水分

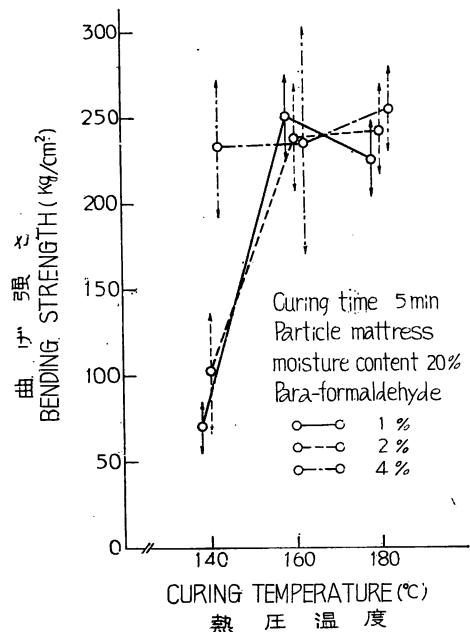


Fig. 11 カラマツ単層ボードの曲げ強さと熱圧温度の関係
The effect of curing temperature on bending strength of larch mono-layer board.

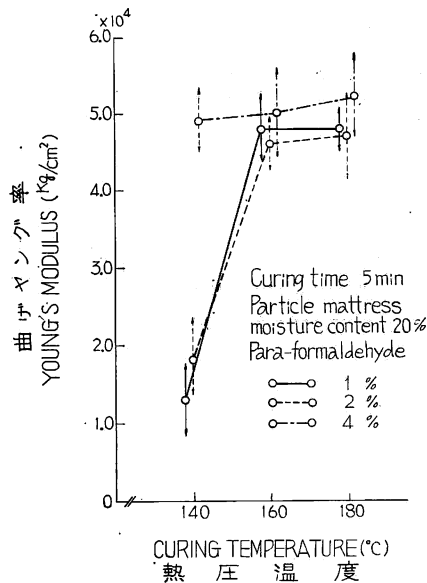


Fig. 12 カラマツ単層ボードの曲げヤング率と熱圧温度の関係
The effect of curing temperature on Young's modulus of larch mono-layer board.

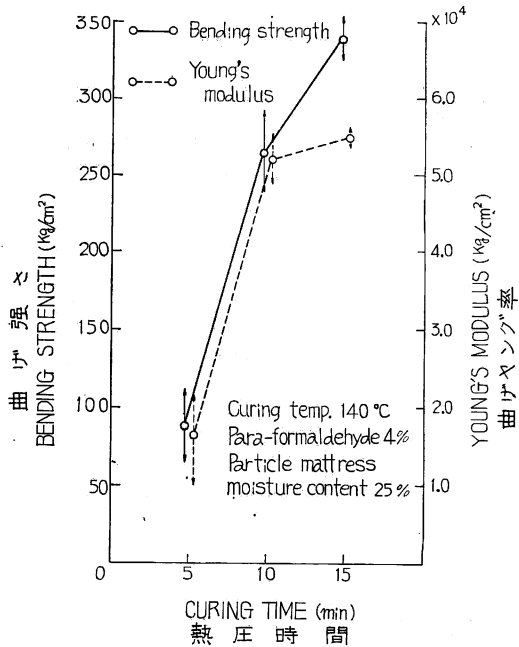


Fig. 13 カラマツ単層ボードの曲げ性能と熱圧時間の関係
The effect of curing time on bending properties of larch mono-layer board.

が可塑剂的に働くと同時に、反応性の物質を溶解し、ホルムアルデヒドが水溶性成分に反応する機会をより多く与えていることを示している。しかし、Table 5 に示すように、これらのボードの耐水性はきわめて悪い。このことは水に不溶性物質の生成がほとんど行なわれていないことを示しているとも考えられるが、一方、冷水抽出を行なつた小片によるボードは常態の強度が弱いことはもちろんであるが、水漬に際し、崩壊している。また、心材小片にパラホルムアルデヒドを添加して熱圧することにより、そこにいくぶんなりとも何等かの化学的反応が行なわれているものと推定することができる。なお、小片マット含水率を 25% 以上に大にした場合は、この成板条件においては当然パンクの危険にさらされる。

(2) 圧縮温度の影響

BRYANT らによるとタンニンにホルムアルデヒドを反応させる温度は 130°C 以上で影響がなくなるとしているが、この実験ではカラマツ水溶性成分にホルムアルデヒドを作用させて、熱圧温度を 140°C, 160°C, 180°C にとり、成板したボードの材質試験の結果は Fig. 11~12 のとおりである。この結果からは曲げ強さに対して、温度間で 5% level の危険率で有意差があり、曲げヤング率に対して 1% level の危険率で有意差を生じたが、これはパラホルムアルデヒド添加量 1% と 2% の場合、140°C にて極端に強度が低下したことに影響されている。この低下の原因は熱圧時間 5 min という短時間熱圧の場合に、小片マット含水率が比較的高いことと、カラマツ水溶性成分とホルムアルデヒドの slow cure に影響されて、パンクに近い様相を呈し、曲げ試験においても、すべて内層剪断破壊を生じた。したがって、熱圧時間が長くなれば、この実験の範囲における温度の影響はなくなるものと思われる。なお、耐水性はすべての条件においてきわめて悪く、熱圧温度の間に有意差は認められなかつた。

(3) 熱圧時間の影響

小片マット熱圧におけるパンク現象は前述のようにマット水分の過多とボードの高比重の場合に生じやすいが、cure の状態によつて2つの場合が考えられる。すなわち、1つは尿素樹脂接着剤に硬化剤を用いた場合で、接着剤が quick cure のため、ボード周縁部が早く硬化し、内部水分の蒸発口を閉じてしまうため、内部の蒸気圧が高まり、除圧と同時に接着層が破壊され、パンクを生ずる。また、他の1つは接着剤が slow cure の場合で、

小片マットの高水分のため熱圧時間が短いとパンクを生じやすい。したがつて、この場合は熱圧時間を長くすることによりパンクを防ぐことができるが、前者の場合は、熱圧時間を長くしてもパンクをさけることはできない。本実験のカラマツの水溶性成分を利用する場合は後者に属し、Fig. 13 に示すように時間とともに曲げ性能は向上した。すなわち、時間とともにマット水分が蒸発し、cure が進んだものと思われる。しかし、耐水性は Table 6 に示すとおり、熱圧時間とともにいくぶんの改善は認められるが、水に不溶性物質の完全な生成は行なわれていない。

したがつて、耐水性を改善するためには、さらに熱圧時間の延長が考えられるが、実際問題として、これ以上の時間延長は能率に影響するので、他の方法、たとえば、反応促進のための触媒などの添加が必要である。

(4) パラホルムアルデヒド添加量の影響

前章の3層ボードの実験においては4%以上のパラホルムアルデヒドの添加は不必要であるとしたが、単層ボードのこの実験において、パラホルムアルデヒド添加量を1%, 2%, 4%とした結果の1例は Fig. 9~12 に示すとおりで、明確な差異は現われていない。一部において差がでているのは、小片

Table 6. カラマツ単層ボードの耐水性と熱圧時間の関係

The effects of pressing time on the water proofing property in larch mono-layer board.

熱圧時間 Pressing time (min)	吸水率 (%) Water absorption	吸水厚さ増加率(%) Thickness expansion
5	崩壊 Disintegration	
10	181.1 (24.2)	85.3 (8.7)
15	140.7 (8.6)	73.1 (5.5)

注) Note: () 標準偏差 Standard deviation
熱圧温度 Pressing temperature: 140°C
小片含水率 Particle moisture content: 25%
Paraformaldehyde: 4%

Table 7. 種々の成板条件のカラマツ単層ボードの材質 (2)

The properties of larch mono-layer board in various curing condition (2).

成板条件 Curing condition			比 重	曲げ強さ	曲げヤング率	吸水率	吸水厚さ増加率	備 考 Remark
添加剤の種類および添加量 Additives and it's quantity	小片含水率 Particle moisture content (%)	熱圧時間 Pressing time (min)	Specific gravity	Bending strength (kg/cm ²)	Young's modulus × 10 ⁴ (kg/cm ²)	Water absorption (%)	Thick-ness expansion (%)	
Paraformaldehyde 4	25	10	0.82(0.03)	323(37)	6.1(0.7)	96.7(26.2)	48.4(12.2)	
Active agent 0.65								
Paraformaldehyde 4	20	10	0.83(0.03)	320(64)	5.8(0.3)	76.0(12.2)	42.7(16.7)	
Urea 6								
Urea resin 11	15	5	0.78(0.02)	462(51)	5.9(0.7)	38.5(4.2)	15.1(4.8)	
Paraformaldehyde 4	25	15	0.80(0.02)	339(14)	5.5(0.1)	140.7(8.6)	73.1(5.5)	Ammonium 28% sol.
Paraformaldehyde 4 Ammonium 0.25	25	15	0.74(0.04)	324(55)	5.1(0.9)	68.1(8.2)	26.0(4.6)	

注) Note: () 標準偏差 Standard deviation

マット水分、熱圧時間の影響を受けて、パンクの様相を示したものである。とくに耐水性はいずれもきわめて悪く、添加量間の差も認められない。しかし、添加量 0% の場合は Table 5 に示したように吸水時に崩壊しており、パラホルムアルデヒドを添加することにより、アラボガラクトンとの間に、いくばくかの水に不溶性物質の生成が行なわれていると見るべきであろう。したがって、パラホルムアルデヒドの添加はあまり多く要しないが、少量添加の有効性は認められる。

(5) 種々の添加物による影響

この実験に使用した小片は厚さ 0.2mm 程度であり、粉体などに比べ、表面積が小さい。このような小片の形で、その中に含まれる成分を表面的に利用しようとする場合、表面積が小さいため、反応の機会がきわめて少なく、したがって上述のように耐水接着性が不良になつたものと考えられる。しかし、従来 P. NASHAN⁸⁾ の炭化合物とホルムアルデヒドの縮合によるプラスチック生成の記載もあり、反応の機会さえ与えれば、耐水接着性も向上されると考えられる。したがって、この実験では反応の機会を与えるための活性剤の添加および反応促進のための触媒としてのアンモニアの添加を行なつた。それらの結果は Table 7 に示すとおりである。添加剤として活性剤を加えた場合、同じ成板条件のパラホルムアルデヒドのみの場合より、曲げ性能、耐水性ともに有意的に向上しており、活性剤により、明らかに反応の機会が与えられたものと考えられる。しかし、比較のため成板した尿素樹脂接着剤を使用したボードに比べ、特に耐水性がおとつている。なお、パラホルムアルデヒド 4% に尿素単体 6% 添加したボードとは有意差が認められない。また、触媒としてアンモニア 0.25% 添加したボードは、同じ成板条件のパラホルムアルデヒドのみのボードに比較すると、耐水性において、きわめて有意な差をもつて向上した。この場合でも尿素樹脂接着剤のボードに比べ、材質がいくぶんおとつており、完全に反応が進んだとは考えられない。しかし、このような触媒添加を行なうことにより、反応促進の効果が認められたので、さらに今後、触媒ならびにその最適添加条件の検討を行ない、3層ボードの表層としての性能を確実に付与し、新しい3層ボードの製造法を確立しようと考えられる。

V 摘 要

木材中の水溶性成分を利用して、パーティクルボードを製造するために、特に水溶性の特殊成分の多いカラマツとシノキを用い、それら成分に対する接着条件について基礎的な検討を行ない、大要次の結論を得た。

(1) カラマツ水溶性成分はパラホルムアルデヒドを添加し、熱圧することにより、接着性を有することがわかつた。水溶性成分のうち、とくに単離したアラボガラクトンの接着性が認められた。なお、カラマツ冷水抽出成分は 8.87%、そのうちアラボガラクトンは約 5% である。

(2) 3層ボードの内層は従来の尿素樹脂接着剤を使用し、表層にスダジイまたはカラマツ小片などとパラホルムアルデヒドを用い、熱圧成板した場合、

(a) パラホルムアルデヒド添加量の影響は両樹種とも 4~8% の範囲ではボード材質に有意差がなかつた。これはボード強度の絶対値も低く、反応に必要な条件の不適正によるものと考えられる。

(b) 小片水分(表層)の影響はボードの表面平滑性において小片含水率 20% より 30% の方が良好であつた。しかし、ボード材質は両樹種ともほとんど有意な差は認められなかつた。

(c) パラホルムアルデヒドに対する尿素添加の影響は両樹種ともきわめて顕著であり、ほとんど尿素樹脂接着剤のみを使用したボードの材質に匹敵する。しかし、スダジイの場合は、水溶性成分が 2.78%

しか含まれておらず、成分絶対量の不足が考えられる。

(3) さらにカラマツ成分に対する最適の熱圧成板条件を決定するために、単層ボードの形で基礎的な検討を行なった。

(a) 単層ボードの場合、小片マット水分の挙動は3層ボードと異なるが、この研究のように小片に含まれる水溶性成分を利用して小片を接着する場合は、マット水分が可塑剂的に働くことはもちろん、反応性の物質を溶解し、水溶性成分とホルムアルデヒドが反応する機会をより多く与えるため、この実験の範囲では(マット水分 15~25%)小片マット水分が多いほど、曲げ強さは向上した。しかし、耐水性はきわめて低いが、パラホルムアルデヒドを添加しないボードは水漬により崩壊しており、わずかながらなんらかの化学的反応が行なわれているものと推定される。

(b) 熱圧時間が長くなれば、熱圧温度が材質におよぼす影響は、なくなるものと思われる。

(c) 小片に含まれる水溶性成分を利用して、小片を接着する場合、尿素樹脂接着剤と異なり、きわめて slow cure の現象を示し、したがって、熱圧時間の延長により材質は向上した。

(d) パラホルムアルデヒド添加量 1~4% の間ではボード材質に差異を生じないが、添加量 0% の場合は水漬により崩壊しており、パラホルムアルデヒドの添加が水に不溶性物質の生成に効果あることを示した。

(e) カラマツ水溶性成分とパラホルムアルデヒドの反応の機会を与えるために活性剤を添加した場合、ボード材質は有意的に向上したが、尿素樹脂接着剤を使用したボードに比べると、特に耐水性がおとつている。また、触媒としてアンモニアを添加したボードは耐水性がきわめて向上した。しかし、この場合も尿素樹脂接着剤のボードに比べると材質はいくぶんおとつており、完全に反応が進んだとは考えられない。

しかし、触媒添加が反応促進、したがってボード材質の向上に役立ちうることは認められた。それゆえ、今後さらに触媒ならびにその最適添加条件の検討を行なうことにより、3層ボードの表層としての性能を確実に付与し、新しい3層ボードの製造法を確立しようと考えられる。

文 献

- 1) BRYANT, L. H. & F. R. HUMPHREYS : Building Boards from Sawmill Waste. Composite Wood, 5, 2~3, (1958) p. 41~46.
- 2) HALL, R. B., J. H. LEONARD & C. A. NICHOLLS : Bonding Particle Boards with Bark Extracts, F. P. J., 10, 5, (1960) p. 263~272.
- 3) HERZBERG, W. J. : New South Wales Forestry Commission (未発表). Progress report No. 1.
- 4) IWASHITA, M., T. MATSUDA & S. ISHIHARA : Studies on Particle Board (III) Studies on the pressing (1). On the curing condition, especially moisture content of wooden particles, Bulletin of the Government Forest Experiment Station, 126, (1960) p. 63~89.
- 5) 小林弥一・須川豊伸 : 本邦産クリガシ属樹材の識別に関する研究, 林試研報, 118, (1959) p. 139~178.
- 6) KUTUZOV, P. H. : Siberian Gum Arabic. Lesnaya Prom., No. 9, 20 (1943), Chem. Abstr., 38, 4824, (1944).

- 7) NARAYANAMULTI, D. : Wood Waste Utilization. Indian Forest Bulletin, 207, (1955).
- 8) NASHAN, P. : German Patent No. 541,294 (西沢勇志智: プラスチック)
- 9) THOMPSON, J. O., J. W. SWANSON & L. E. WISE : Hemicellulose and arabogalactan as Beater Adhesives. Tappi, 36, (1953) p. 534~541, Chem. Abstr., 48, 2368, (1958).

Studies on Particle Board (VI).

Suitability of species as raw material for particle board production (No. 1).

Manufacture of particle board using wooden extractives for particle bonding (I).

Mutsumi IWASHITA, Shigeharu ISHIHARA and Toshiyo MATSUDA

(Résumé)

I. Introduction

The cost of particle board is strongly influenced by the cost of adhesive, which frequently is the biggest single item in the total production cost. With a view to reducing this production cost, the method of using the bark extracts as a means of replacing synthetic resin bonding agent for board has been investigated by L.H. BRYANT¹⁾ and R. B. HALL²⁾. In these previous papers, it has been recognized that the tannin-like constituents of bark react with formaldehyde within the board during hot-pressing and can substitute synthetic resin. But as it is necessary in this case to apply substantial pressures, the resultant board becomes inevitably of high density. If this process is applied to the surface layer of three-layer board, owing to low compressibility of the inner layer, as described in the author's previous paper³⁾, density of the surface layer increases and therefore it seems that it is possible to manufacture the three-layer particle board with about 0.7 specific gravity.

From this view point, this study deals with the possibility of using the wooden particle, in which the water extracts are contained, and formaldehyde as a means of replacing synthetic resin bonding agents for the surface layer of three-layer boards.

II. Adhesion quality of the larch wood extractives

It has been demonstrated in the previous paper as mentioned above that the tanninlike constituent can be possessed adhesion quality with the aid of formaldehyde. No paper, however, has reported on the adhesion quality of larch wood extractives. But some limited information has been reported about the arabogalactan as a beater adhesive by J. O. THOMPSON⁹⁾ and picking up gum arabic from larch tree by P. H. KUTUZOV⁸⁾. Therefore, at the beginning of this study, adhesion quality of larch wood extracts, especially of the polysaccharide (arabogalactan) was investigated as follows:

1. Experimental procedure

(1) Preparation of specimens

Species of specimen was larch-Karamatsu (*Larix Kaempferi* SARG., larch wood extracts 8.87%), and specimen was edge grain wood (heart wood) 10×2×0.5 cm in size. A certain part

of specimens were submerged in pure water for a week so as to take off wood extracts from the surface of specimen to about 1 mm depth. All specimens were conditioned to 9~10 % in moisture content at 20°C temperature and 45 % relative humidity.

(2) Curing condition

The coating chemicals for larch wooden specimen and specimen extracted with cold water were as follows:

- ① formaldehyde 30 % solution
- ② concentrated solution of larch wood extracts+formaldehyde [(wood extracts : paraformaldehyde=2 : 1) the solution concentrated at 50°C to 1/10 solution to which was added 30 % formaldehyde solution 5.7 g to larch wood extracts 150 g (2.3 % solution)]
- ③ 50 % arabogalactan solution which was isolated from larch wood extracts
- ④ mixed solution (50 % solid) in which paraformaldehyde was mixed with arabogalactan (mixing ratio 1 : 1)
- ⑤ 30 % formaldehyde solution + urea solid (mixing ratio 4 : 1)
- ⑥ urea resin (TD511, 45 % sol.) + catalyst 376 (latent hardener, mixed in 3 % of urea resin)

These chemicals were spread at 0.005 g/cm^2 , based on resin spread in manufacture of particle board. Other curing conditions were 140°C temperature, 10 kg/cm^2 pressure and 10 min curing time.

(3) Testing procedure

Adhesion strength was measured on shear strength type of specimens. The area of lap-joint was 2 cm^2 . The number of replications was 5~6.

2. Results

Although the larch wood extracts as mentioned above are 8.87 %, in the case of spreading formaldehyde solution to larch wood, it seems that only extracts at near surface are necessary for adhesion. As the specific gravity of larch specimen is 0.55, it is presumed that the wood extracts at the surface (1 cm^2 in surface area and 1 mm in depth) are about 0.005 g in dry state. On the other hand, since the spread of 30 % formaldehyde solution are 0.005 g/cm^2 , the solid content ratio of the wood extracts and paraformaldehyde is about 3 : 1. In this curing condition, testing result of adhesion strength obtained is shown as No. 1 in Table 1. The specimen extracted with water was not cured in the same curing condition (No. 2). For the same specimen extracted with water, in the case of spreading the concentrated solution of paraformaldehyde mixed with wood extracts, adhesion strength was shown in No. 3. In the case of spreading the 50 % solution of arabogalactan+formaldehyde, adhesion strength was shown as No. 4 and No. 5 respectively. From these results, it was recognized that water extracts of larch wood, especially the arabogalactan, possess adhesion ability in hotpressing. In order to catch the free formaldehyde and reinforce the adhesion strength, if urea was added to formaldehyde (No. 6), the adhesion strength became almost as high as that of urea resin (No. 7).

III. Manufacture of three-layer particle board

In the case of reaction of bark extracts with formaldehyde within the board, as above-described, in hot-pressing as a means of replacing synthetic resin bonding agents for board, since it is necessary to apply high pressure, the resultant board inevitably increases its density. If this process is applied to the surface layer of a three layer-board, however, it seems possible to manufacture a three-layer particle board with about 0.7 specific gravity. Therefore, using urea resin in inner layer and SUDAJII or larch wooden particle and paraformaldehyde in surface

Table 1. Adhesion quality of larch wood extractives.

No.	Specimens	Chemicals for adhesion	Shear strength(kg/cm^2) (Standard deviation)
1	Larch solid wood	Formaldehyde 30% solution	11.4 (2.0)
2	Extracts free larch	“ “	—
3	“	Concentrated solution of the cold water extracts+Formaldehyde ¹⁾	20.4 (3.4)
4	“	Arabogalactan ²⁾ 50% solution	18.1 (6.4)
5	“	50% solution of arabogalactan+formaldehyde (Solid content ratio 1 : 1)	23.4 (0.8)
6	Larch solid wood	Formaldehyde 30% solution + Urea (25% of formaldehyde)	52.8 (16.4)
7	“	Urea resin adhesive + Catalyst 376 (3% of urea resin solution)	60.8 (14.8)

Note 1) The solution concentrated at 50°C to 1/10 of solution which added 30 % formaldehyde solution 5.7 g to larch wood extracts 150 g (2.3 % solution) (water extracts : para-formaldehyde=2 : 1)

2) Arabogalactan was isolated from larch wood extracts.

layer, the effects of surface moisture, paraformaldehyde content and addition of urea on adhesion quality of particle, were investigated as follows.

1. Experimental procedure

(1) Preparation of specimen

Species of wooden particles were chinquapin wood (SUDAJII) (*Castanopsis cuspidata* (THUNB.) SCHOTTKY) and larch (*Larix Kaempferi* SARG.). In the case of chinquapin wood, KOJII (*Castanopsis Thunbergii* (MAKINO) HATSUSIMA) was used for core layer-particles. The size of them were 0.2×1~3×20 mm for the surface layer, 0.5×3~6×40 mm for the core. The particle moisture contents before pressing were 20 % and 30% for the surface layer and 10 % for the core.

(2) Curing condition

Paraformaldehyde quantities used for surface particles were 4 %, 6 % and 8 % of absolute dry wood weight. Moreover, in the case of 6 % paraformaldehyde content, quantities of urea added to paraformaldehyde were 2 %, 4 % and 6 % of absolute dry wood particle weight for SUDAJII particles and only 6 % for larch particles. Besides, paraformaldehyde was added to SUDAJII and larch wood particles extracted with water (additional quantity 6%). Urea resin (Plyamine TD511, 45 % solids) quantity used for core particle is 7 %. As a control, urea resin (TD511) was used for surface particles (additional quantity 11 %). The hardener, catalyst 376, mixed in 3 % of urea resin. Weighing ratio of surface to core particles was 1 : 2 in dry state. The size of board was 25×18×1.5 cm. The specific gravity of board about 0.7. The temperature of hot press plates 140°C, and the pressing time 10 min. The pressure was applied in a step-down system of 35 kg/cm²→25 kg/cm²→15 kg/cm²→5 kg/cm² every 2.5 min. Two replication were used for each condition

(3) Testing procedure

Sampling of specimens is shown in Fig. 1. Width of bending specimen was 3 cm and wood screw holding specimens were cut from both sides of bending specimens after testing because of small size of board. Others were tested by JIS A 5908~1957.

2. Results

(1) The effect of paraformaldehyde quantities.

When using urea resin adhesive for core of the three-layer board and SUDAJII or larch wood particles and paraformaldehyde for the surface layers, especially in the case of 4 %, 6 % and 8 % in paraformaldehyde quantities, the properties of the three-layer board are as shown in Table 2~3, and all the properties between paraformaldehyde quantities were not significant at the 5 % level of probability. Although urea resin was used in the core layer and board density was high, board strengths were relatively low. This means that it is not necessary to add SUDAJII and larch particles more than 4 % paraformaldehyde, and that the conditions required for reaction were not suitable or the extracts required for adhesion were not sufficient. But, since the properties of a board made from wood particles without the extracts deteriorated more than those of a board made from wooden particles with extracts, it was recognized that the wood extracts of both species have a remarkable influence on the adhesion of wooden particles.

(2) The effect of moisture content of wooden particle.

It has been described that if the particle moisture content before pressing is too high, reactive materials related to adhesion are squeezed out of the mixture on application of pressure¹⁾. But from the view point of plasticization of surface layer, high moisture content in the surface layer is effective in manufacture of the three-layer board, as described in the author's previous paper⁴⁾. In this experiment surface smoothness of board, was improved at 30% of surface particle moisture content as compared with 20%. The difference of board properties between particle moisture content, as shown in Table 2~3, was scarcely significant in both species.

(3) The effect of urea additives

In the case of board manufacture using paraformaldehyde, a large quantity of formaldehyde vapour is lost in hot-pressing. For the purpose of retaining free formaldehyde and reinforcing adhesion of particles, urea was added to paraformaldehyde. Results obtained in testing of the properties show that the effect of urea on the properties was remarkable, as can be seen in Fig. 2~7 and Table 4. Compared with the board made with urea resin adhesive only, bending strength and Young's modulus between board with 6 % of urea and board with urea resin adhesive were not significant at the 5 % level of probability, whereas wood screw holding power of a board with 6 % urea was less than that of a board with urea resin at the 1 % level of probability.

Consequently, it is necessary for improving the properties of a board using extracts to add 6 % of urea to paraformaldehyde. This is because of the fact that as wood extracts in SUDAJII is only 2.78 % of wooden particles in dry state, the extracts required for adhesion is not enough, but although the extracts in larch is adequate, the condition required for reaction may be not suitable.

IV. Effects of various curing conditions for larch extracts

In this chapter, for the purpose of deciding the optimum curing condition of larch extracts, the relation between board properties and several variables such as curing temperature, curing time, moisture content in wooden particles, quantities of paraformaldehyde, and other additives was fundamentally investigated on mono-layer boards made a larch face particles only.

1. Experimental procedure

(1) Preparation of specimens

Species of wooden particles were mainly heartwood of larch (*Larix Kaempferi* SARG., larch wood extracts 8.2 %) and partially sapwood of the same larch. The size of wood particle was

0.2×1~3×20 mm (face particle).

(2) Curing condition

Paraformaldehyde quantities used were 1 %, 2 % and 4 % of absolute dry wood weight of particles. Wood particle moisture contents before pressing were 15 %, 20 % and 25 %. Besides, in the case of 4 % additional quantity of paraformaldehyde, 0.65 % nonion type active agent, 6 % of urea and 0.25 % (28 % solids) of ammonium were respectively added (based on absolute dry weight of wooden particle). As a control, urea resin (TD511) was used (additional quantity 11 %). Hardener, catalyst 376 (3 % of urea resin). The pressing times were 5 min, 10 min and 15 min, and the pressures were applied by the following step-down system; in 5 min of the pressing time 35 kg/cm² (2 min) → 20 kg/cm² (2 min) → 10 kg/cm² (1 min), in 10 min of the pressing time 35 kg/cm² (3 min) → 20 kg/cm² (3 min) → 10 kg/cm² (4 min), in 15 min of the pressing time 35 kg/cm² → 20 kg/cm² → 10 kg/cm² every 5 min. The size of board was 30×30×0.5 mm, and the specific gravity of board is about 0.8. The number of boards is 3 sheets in each condition respectively.

(3) Testing procedure

Bending strength was tested by JIS A 5908 (1961) and Young's modulus was measured simultaneously. Water absorption was tested by JIS A 5907 (1961) (25°C, 24 hours), and thickness expansion was measured at the center of specimen (size: 5×5 cm²). Sampling of specimens is shown in Fig. 8 and the number of specimens was nine

2. Results

(1) The effect of wood particle moisture content

In the case of the mono-layer high density board as in this experiment, the movement of particle mattress moisture during hot pressing is different from the three-layer board. The board being easy to rupture or "blow" especially in high moisture at the time the platten pressure is released. Even if board does not blow, bonding strength of the inner layer is apt to decrease. Fig. 9~10 illustrate the relation between particle mattress moisture content and bonding properties in 10 min pressing time. The reason why the strength in 4 % of paraformaldehyde was less than in 2 % of paraformaldehyde at 25 % of particle mattress moisture content depends on the "blowing" mentioned above. But bending strength and also Young's modulus were significantly increased at the 1 % level of probability in the range of 15 % to 25 % of the particle mattress moisture content. These phenomena indicate that in the case of bonding of the wood particles by means of using their own extractives, the wood particle moisture not only acts as plasticiser, but also dissolves the wood extracts in the particles and offers a chance for the formaldehyde to react with the extractives. But Table 5 illustrates that water proofing [property of these boards is inferior. This means that an insoluble substance was not formed, whereas the board by the extracts-free particles or sap-wood particles, and board by heartwood particles without paraformaldehyde have all disintegrated in water soak. Consequently, it can be presumed that some chemical reaction has occurred within the board during the hot pressing.

(2) The effect of curing temperature.

According to L. H. BRYANT¹⁾, the optimum temperature in reaction of tannin with formaldehyde is 130°C, whereas in this study the relation between the board properties and the curing temperatures from 140°C to 180°C in reaction of larch extracts with formaldehyde are as in Fig. 11, 12. From these results, bending strength between temperatures were significant at the 5 % level of probability, Young's modulus between temperatures were significant at the 1 % level of

probability. These phenomena are influenced by reduction of strength at 140°C in the case of 1 % or 2 % of paraformaldehyde quantities. The reduction of strength was caused by high moisture content of the particle mattress in a short curing cycle (5 min), slow cure between larch extracts and formaldehyde, and consequent rupture in the inner layer of the board at the time when the platten pressure was released. Therefore, it seems that if the curing time is prolonged, the board properties are not affected by the curing temperature in the range of this experiment.

(3) The effect of curing time.

The “blowing” phenomenon in hotpressing of the particle mattress easily happens in the case of excessive moisture in the particle mattress of a high density board, but the two cases of “blowing” are accounted for by the following curing condition. The one is urea resin adhesive with the hardener, and in this case, on account of quick cure of adhesive, the evaporation path of inner moisture is shut by surrounding part of board which is quickly cured. Consequently, vapour pressure in the inner layer is increased and adhesive layer of particles are ruptured at the time when the pressure is released. The other is slow cured adhesive; if the curing time is short, the board will easily “blow” on account of high moisture in the particle mattress. In this case, therefore, the “blowing” can be protected by prolonging the curing time, but the former cannot avoid the “blowing”, even if the curing time is prolonged. The case using larch extracts in this experiment belongs to the latter. Bending properties were increased with the increase of the curing time as shown in Fig. 13. Although water-proofing properties, as shown in Table 6, are somewhat improved with the increase of the curing time, the water insoluble substance is not entirely formed.

(4) The effect of paraformaldehyde quantities

In the foregoing experiment it was not necessary for the face layer of the three-layer board to add above 4 % of paraformaldehyde. In the present experiment of larch mono-layer board, the board properties in which 1 %, 2 % and 4 % of paraformaldehyde were added are shown in Fig. 9~12, and the effect of difference in additional quantity of paraformaldehyde is not obvious. The partial difference of properties is due to the “blowing” by influence of particle mattress moisture and the curing time. Especially water-proofing properties are extremely inferior under every curing condition, and the difference between additional quantity of paraformaldehyde is not recognized. But in the case of 0 % in paraformaldehyde, since the board was disintegrated during water soaking, it can be recognized that some water insoluble substance is formed between arabogalactan and formaldehyde.

(5) The effect of various additives

The wooden particle used in this experiment is 0.2 mm in thick and surface area of the particle is less than that of a granule or fiber. In the case of utilizing the extracts of such particles, it seems that since the surface area of particle is so small, the possibility of reaction is little indeed, and therefore the water-proofing adhesion quality of the board becomes worse as mentioned above. According to P. NASHAN⁸⁾, as a resin can be formed by condensation between carbohydrate and formaldehyde, it is presumed that even if a chance of reaction is given, the water-proofing adhesion quality may also improve. Hence, with this point of view in mind, this experiment dealt with addition of an active agent to provide a chance for reaction, and an addition of ammonium as a catalyzer for acceleration of reaction, and the results obtained are shown in Table 7. In the case of adding active agent, both bending properties and water-proofing properties were more increased than those of boards with only paraformaldehyde in same curing conditions. But compared with boards using urea resin adhesive, water-proofing property were much in-

ferior. In the case of adding 0.25 % of ammonium as a catalyzer, water-proofing property was more significantly increased than that of board with only paraformaldehyde in the same curing condisions. But even in this case, since the board properties were somewhat inferior, it is not considered that a reaction was entirely formed.

Consequently, it was recognized that larch extracts could be treated to react with formaldehyde as a mean of replacing synthetic resin bonding agents for the boards, and that addition of catalyzer could be useful for accelerating the reaction. Therefore, it is believed that further investigation of the catalyzer and the additional optimum conditions may produce a satisfactorily bonded surface layer of the three-layer board, and that a new manufacturing method of the three-layer particle board could be established.