

# 論文の内容の要旨

農学国際 専攻  
平成16年度博士課程 進学  
氏 名 奥田 修久  
指導教員名 佐藤 雅俊

論文題目 リグノセルロースにおけるバインダーレス接着の可能性

## 1. 研究概要

木材をはじめとするリグノセルロース系材料の有効利用においては、各種木質材料の製造に代表されるように、接着剤が非常に大きな役割を果たしてきた。しかし一方で社会の変化に伴い、合成樹脂系接着剤の使用はホルムアルデヒド等の問題を生ずるようにもなり、こうした各種の課題を解決するための動きが接着剤の動向にも様々な影響を与えてきた。近年では環境意識の高まりなどの影響から、接着剤を巡っては、各種揮発性有機化合物（VOC）の問題、廃棄物削減を目指したリサイクルの問題、接着剤自体の環境負荷の問題など、様々な問題が取り沙汰されている。こうした背景をうけた接着剤の環境負荷軽減への様々な研究の中で、天然系接着剤の検討やそれによる合成樹脂系接着剤の一部代替などの検討とともにその可能性を注目されているものとして、バインダーレス接着に関する研究がある。バインダーレス接着とは、木材をはじめとするリグノセルロース系材料同士を、熱圧縮によりその成分を活性化することで、従来の合成樹脂系接着剤を用いずに接着することである。この現象自体は比較的古くから知られていたが、その接着性能等に関してはまだ十分な検討がなされておらず、材料への実際の適用例はこれまでのところきわめて限定的な範囲にとどまってきた。最近では合成樹脂使用量の削減を目指す自動車業界などにおいて再びリグノセルロース系材料を用いたバインダーレス接着が着目されはじめており、その可能性を評価することが強く求められている。そこで本研究

では、リグノセルロース系材料におけるバインダーレス接着の可能性を明らかにすることを目的とし、バインダーレス接着によって実現する接着性能の評価、その性能発現要因である接着機構の推定、さらにそのバインダーレス接着の接手法としての応用可能性について検討した。

## 2. 検討内容およびその結果

### 2. 1 バインダーレス接着による接着性能

バインダーレス接着により実現する接着性能の基礎的特性について明らかにする目的で、バインダーレスボードを製造しその性能評価を実施した。材料としては、有効利用が求められている材料の一つであるケナフの芯材（ケナフコア）を用い、バインダーレスボードの製造に際しては原料の蒸気処理や爆砕処理等は行わず、代替処理として原料を粉碎処理し乾式で熱圧縮をするものとした。これまでのバインダーレスボードに関する検討例では、常態におけるボードの機械的性能等に着眼した例が多く、耐水性をはじめとするその他の各種性能に関しては十分な知見が得られていなかった。そこで本研究においては、バインダーレスボードの性能評価項目は、常態での機械的性能に加えて、耐水性、接着耐久性、ホルムアルデヒド放散特性、耐酸および耐アルカリ性、接着性能の再生可能性、等とした。

結果の一例を示す。ボードの製造条件として圧縮温度、ボード密度等がバインダーレス接着に大きな影響を与える要素であることが確認され、圧縮温度 180℃かつ密度 1.0g/cm<sup>3</sup> という条件下では、常態での初期性能として 6MPa を超えるはく離強さが認められた。また、圧縮温度 200℃かつ密度 0.8g/cm<sup>3</sup> という条件のボードでは、常態の性能のみでなく良好な耐水性能も認められ、温水処理をはじめとした様々な劣化処理後における各種強度の残存率は、実験的に製造したユリア・メラミン共縮合樹脂接着剤を用いたボードにおける結果と同程度かそれ以上の値を示した。さらにこのボードにおいては、促進劣化試験（煮沸法：沸騰水中浸せき 4 時間→水（20℃）浸せき 1 時間→70℃で乾燥、という処理を 2 サイクル）において曲げ強さ残存率 106.4%という値が認められ、さらに 19 ヶ月におよぶ屋外暴露試験においてもエレメントの脱落が認められず非常に高い寸法安定性が示された。

本項における検討の結果、バインダーレス接着によって実現する接着性能が明らかとなった。バインダーレス接着は接着剤を使用していないにもかかわらず、一般に広く用いられているユリア・メラミン共縮合樹脂接着剤と同程度かそれ以上の耐水性能を示すことが認められ、また、ある程度の接着耐久性を実現することも可能であることが示された。

### 2. 2 バインダーレス接着機構の推定

バインダーレス接着による接着性能の発現要因はバインダーレス接着機構であり、その検討はさらに効率的なバインダーレス接着形成条件の設計やその応用可能性の拡大のためにも非常に重要であると思われる。しかし、これまでに各種化学分析による検討例が報告されているものの、いまだに十分な知見が得られていない。そこで本研究では、バインダーレス接着機構に関する様々な角度からの知見を得ることを目的として、すでに報告例のある化学分析に加え、走査型電子顕微鏡による観察、バインダーレス接着を促進すると思われる製造条件で製造したバインダーレスボードの性能評価、極性の異なる溶媒に対するボードの膨潤特性評価、等の様々な手法を用いた検討を実施した。

結果の一例を示す。脱リグニンした原料を用いたバインダーレスボードでは接着力が低下した一方、リグニンを添加した原料を用いた場合は接着力が増大し、バインダーレス接着におけるリグニンの効果が示された。化学分析をはじめとするその他の結果からも、間接的にリグニンの関与を示唆する結果が得られた。しかし一方で、報告されているようなヘミセルロースに由来するフルフラールの関与を確認するデータは得られなかった。リグニンに関しては、熱圧縮により流動化することが確認され、熱圧縮の前後でその量的な変化は認められないものの、構造上のいくつかの変化が認められた。まず縮合型構造の増加が認められるとともにその接着への寄与が示唆された。一方でリグニンの一部が低分子化することも確認されたが、そこから生成する分解物は新たな化学結合を生成せず、バインダーレス接着への関与は小さい反応であることも認められた。また、おそらくはリグニン由来成分の一つであろうと思われる低分子の芳香核カルボニル化合物によるとと思われる化学結合の生成、が接着性能と関係している可能性が示唆された。

本項における検討の結果、ボードの熱圧縮中の化学変化をはじめ、バインダーレス接着機構の一つの側面に関する重要な知見が得られた。

### 2. 3 バインダーレス接着機構の応用

これまでの検討結果から、バインダーレス接着はその機構は完全に解明されていないものの、高い接着性能を発現しうることが明らかとなった。そこで、バインダーレス接着という現象を一つの「接着手法」としてとらえ、それを木材接着へ応用することを検討した。

結果の一例を示す。まず、バインダーレス接着を実現可能な材料の範囲を確認するための検討を実施し、針葉樹、広葉樹の多くの材料においてバインダーレスボードが製造可能であり、バインダーレス接着という原理が木材に対してはある程度広範に適用可能であることが示された。一方草本においては、ケナフコア、タケなどその原料種類によってバインダーレス接着の可能性が異なることが示唆された。そこで次に、バインダーレス接着の木材接着への応用として、バインダーレス合板の製造。バインダーレス挽板接着等を

検討した。その結果、木材同士のバインダーレス接着実現のためには被着材である木材表面同士を十分に近づける必要があることが示され、そして仮道管などその組織に由来する凹凸構造を持った木材表面同士を近づけるためには、その凹凸のサイズ以下に粉碎した木粉を用いてその接触を媒介することが有効であることが示された。実際、この原理を用いたバインダーレス合板では約 1.0MPa 程度のせん断強度が発現することが認められた。

本項における検討の結果、バインダーレス接着機構の木材接手法としての応用可能性が示されたものと言える。この原理は接着剤の減量等への展開も可能なものとして着目されている。

### 3. 結論

本研究の結果、バインダーレス接着により実現する接着性能が、ユリア・メラミン共縮合樹脂接着剤の性能と同程度であることが明らかになった。さらに、その性能の発現の要因である接着機構の一部に関する知見が得られた。ここで得られた結果をもとに実際にバインダーレス合板が製造可能であることが示され、バインダーレス接着という現象が一つの木材接手法として応用可能性を持つものであることが示された。本研究の成果は材料および接着という観点からその応用的価値が着目されている。