

北洋材等廃材の液化と接着剤化

鈴木 聡*, 鷺岡 雅*

Adhesives from Liquefied Waste Siberian Wood Materials

Satoshi SUZUKI*, Tadashi SAGIOKA*

富山県では、北洋材の製材に伴う鋸屑やプレーナー屑、また住宅の解体において住宅部材として多用されている北洋材が、廃木材として大量に発生している。これらの廃木材は、雑多な樹種の混合物であり、劣化程度が異なることから、品質が一定しないことが多い。このため、用途に限界がある。そこで、廃木材の利用方法として化学的液化の適用を考えた。しかし、北洋材の化学的液化に関する研究は、ほとんど行われていない。そこで北洋材等の廃木材の液化条件を検討し、さらにこれらの液化物から接着剤の合成を試みた。

その結果、第1に、廃木材の液化について、北洋材（カラマツ、エゾマツ、オウシュウアカマツ）、富山県産スギ（タテヤマスギ）、および広葉樹のコナラをフェノールで液化できることを確認した。また本実験では、160℃で1時間加熱することで、木材をほぼ液化することができた。さらに、タテヤマスギのフェノール液化において、フェノールとの重量比が1：1の場合、液化反応は、10分以内にほぼ終了することがわかった。また、ポリエチレングリコール（PEG）（多価アルコール系液化溶媒）を用いても北洋材等を液化できることを確認した。しかし、液化効率フェノールよりも低かった。

第2に、液化木材の接着剤化について、北洋材、スギ材、広葉樹材の樹種によらず、液化した木材からフェノール・ホルムアルデヒド系の接着剤を合成することができた。これらよりJAS構造用合板特類の規格に適合する引張りせん断強さを持つ合板（カバ材）を得ることができた。また、多価アルコール系液化溶媒による木材液化物から、非ホルムアルデヒド系接着剤として、イソシアネート系接着剤を合成し、JAS普通合板三類の規格に適合する引張りせん断強さを持つ合板（カバ材）を得ることができた。

1. はじめに

富山県では、北洋材の輸入量が国内最大であり、県内の木材需給の多くを北洋材が占めている。また北洋材の用途は、約9割が建築用材（タルキ、胴縁類など）であり、北洋材製材に伴う鋸屑等の廃材が多く発生している¹⁾（表-1、図-1）。また近年、住宅の建設、解体に伴い、排出される建築廃材も増加してきている。そのため、県内で発生する木質廃材の大部分は北洋材を含むものとなっている²⁾。

これら木質廃材のうち、樹皮の利用については、本試験場においても様々な検討がなされてきた³⁻⁶⁾。しかし近年、プレカット加工の増加に伴いプレーナー屑の発生量が増大しているが、この用途は、ほとんど見出しされていない。さらに、建築廃材の処理が社会的課題になっているが、この建築廃材は雑多な樹種の混合物で、劣化の程度も異なり、品質が一定していないため、用途には限界がある。

木質廃材を有効に利用する方法の一つに木材の液

本報の一部は、1998年度木材学会中部支部大会、1998. 8. 27, 富山、および、第50回木材学会大会、2000. 4. 5, 京都において発表した。

* 木材試験場

表一 1 富山県における北洋材製材残廢材の年間発生量 (平成9年度)

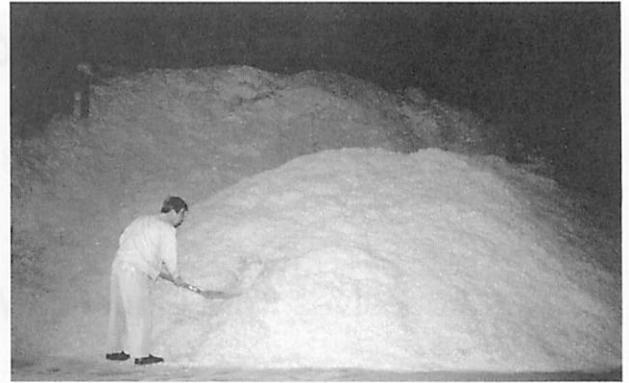
種類	重量 (万t)	嵩容量 (万 m^3)	主な用途
樹皮	5.1	34	バーク堆肥
鋸屑	5.6	47	セメント焼成用燃料 きのご培地 家畜敷料
プレーナー屑	1.7	24	家畜敷料
計	12.4	105	

化がある。木材の液化技術は、木材を液状にしてしまうため、原料となる木材の形状、品質に制限がほとんどなく、様々な木質廢材を利用できる。さらに、古紙や古畳等も植物性原料であれば利用することが可能である。

これまで非常に高い温度と圧力を使って液化を行う方法等が研究されてきたが、これらの多くは液化物を液体燃料として利用することを目的としており、木材成分から酸素を除くために反応条件が過酷となり、原料から得られる液化物の収率が5割程度でしかなく、消費エネルギーも多くを必要とした⁷⁾。一方、木材をフェノール等で化学的に液化する方法が近年注目されている。この方法は、これまでの液化技術と異なり、加熱条件が穏やかで、液化物の収率も10割近くと非常に優れ⁸⁾、コスト的にも期待もてる技術である。この化学的木材液化法は、大別して触媒法と高圧法の2つの方法がある⁸⁾。触媒法は、硫酸等の酸を触媒として用い、150~200℃程度の低めの温度で圧力を加えずに液化を行う方法である。一方、高圧法は、240~280℃程度のやや高めの温度で圧力をかけて液化を行う方法である。

これまで木材液化に用いられてきた原料樹種は、広葉樹についてはカンバ類、針葉樹についてはベイマツ等であり^{9,10)}、北洋材については、住宅用材として使われることが多いにもかかわらず、木材の液化利用に関する検討が行われた例はほとんどなかった。

そこで、本研究では、富山県の木質廢材の発生状況ふまへ、北洋材等の液化の可能性について検討した。まず、北洋材等のフェノールによる液化を試みた。その液化手法としては、高耐圧容器を必要とせず、得られた木材液化物の反応性も高いことが期待できる触媒法を採用し、また、木材液化溶媒として、



図一 1 プレーナー屑の山

多価アルコール系の利用の可能性についても検討した。さらに、木材液化物の利用法の一つとして木材用接着剤を考え、北洋材等の液化物から接着剤を試作し、これらの性能を評価した。

2. 実験方法

2.1 廢木材の液化の検討

2.1.1 フェノール系溶媒による液化条件の検討

木材のフェノールによる液化について、北洋材3種(エゾマツ、オウシュウアカマツ、カラマツ)、富山県産スギ1種(タテヤマスギ)、広葉樹1種(コナラ)の5樹種に対し条件等を検討した。

木材液化装置を図一2に示す。液化方法は既往の文献を参考にし^{11,12)}、以下の条件で行った。

1) 液化条件: 各試料は、35~60メッシュの木粉とした。フェノールを木粉重量に対し添加率3~6倍、液化温度を120~160℃、液化時間を0.5~2時間と変化させた。また酸触媒として、72%硫酸を2 mol%加えた。

2) 液化反応: 還流冷却器をつけた開放系で行い、ほぼ大気圧下とした。オイルバスにより加熱し、攪拌しながら液化させた。その後、液化物は、ガラスフィルター(孔径100 μm)でアセトンにより濾過・洗浄した。105℃で乾燥した後、重量を測定し、木粉重量に対するアセトン不溶解残渣率を求め、液化の程度を評価した。

2.1.2 多価アルコール系溶媒による液化条件の検討

フェノールによる液化と同様、北洋材3種(エゾマツ、オウシュウアカマツ、カラマツ)、富山県産スギ1種(タテヤマスギ)、広葉樹1種(コナラ)の5樹種について液化条件等を検討した。多価アルコー

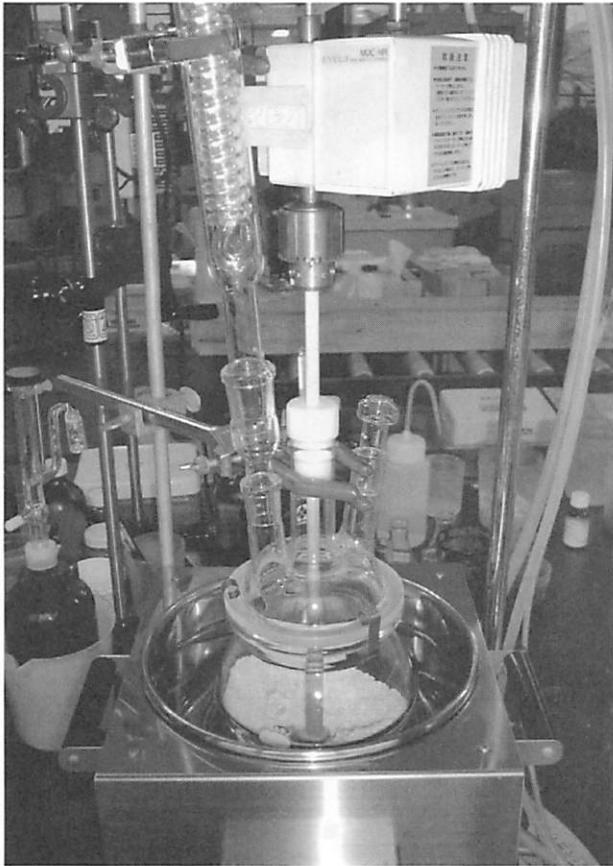


図-2 木材液化装置（還流冷却器付）

ル系液化溶媒としては、ポリエチレングリコール (PEG) とし、平均分子量400のものを使用した。その他の液化方法は、2.1.1と同様とした。

PEGを木粉重量に対し、フェノールによる液化と同じ添加率3倍量とし、適当な液化条件を検討するため、液化温度を120～160℃、液化時間を10～90分と変えて、液化した後、洗浄溶媒を80%ジオキサンとして、2.1.1と同様の方法で処理し、80%ジオキサン不溶解残渣量から、液化の程度を検討した。また、環状エチレンによる木材の液化についても検討した。

2.2 木材液化物の接着剤化の検討

2.2.1 フェノール系木材液化物からの接着剤の試作と性能評価

1) 接着剤の試作

標準的な接着剤であるフェノール・ホルムアルデヒド系接着剤を試作し、その接着性能等を評価した。まず、フェノール系木材液化物にホルムアルデヒドを反応させて接着剤化を試みた。

液化条件：液化時間は1時間とした。液化温度とフェノール添加率は、①120℃、5倍量、②160℃、3倍量の2条件とした。その他の条件は、2.1.1と同

様とした。

木材液化物を水酸化ナトリウムによってアルカリ性とし、木材液化物にホルムアルデヒドを加えて、沸騰した水浴中で1時間攪拌して接着剤化した。ホルムアルデヒド添加率は、液化物に対する重量比で、0.86倍、1.29倍、1.76倍の3水準とした。

2) 接着強さ試験

合成した接着剤について、普通合板の日本農林規格 (JAS) および構造用合板のJASに基づいて、常態接着力試験およびスチーミング繰り返し試験を行い、引張りせん断接着強さと平均木部破断率を測定した。また対照として、市販のフェノール・ホルムアルデヒド樹脂接着剤を使用した。

引張りせん断接着強さ測定条件は以下のとおりとした。

試験片用単板には、カバ材ロータリー単板 (厚さ1.5mm, 含水率6～10%) を使用した。接着剤を中板となるカバ単板に150g/㎡の割合で両面に塗り、表板と裏板をそれぞれ木表が外側となるように繊維方向を中板と直交するようにして、張り合わせ、160℃のホットプレスで、0.7～1.0MPaで約3分間圧縮した。この合板から、試験片 (木片：繊維方向80mm, 木口面25×1.5mm, 3枚を接着し、切り込みを入れたもの) を切り出した。

試験機：島津製作所製、万能試験機RS-2型。

2.2.2 アルコール系木材液化物からの接着剤の試作と性能評価

1) 接着剤の試作

アルコール系木材液化物からの接着剤として、イソシアネート系接着剤の試作と評価を行った。

液化溶媒としては、PEG (平均分子量400) を使用した。エゾマツ木粉に対し、重量比で3倍量のPEGを加えて、160℃、30分の条件で液化し、その後、イミダゾールで中和した。次に、イソシアネートとして、ヘキサメチレンジイソシアネート (HDI) を加えて60分攪拌した後、接着剤として使用した。

2) 接着強さ試験

試作した接着剤について、普通合板および構造用合板のJASに基づき引張りせん断接着強さ試験を行った。

引張りせん断接着強さ試験の条件は、2.2.1と同様とした。

2.3 フェノール系木材液化物と接着剤化物の ゲル濾過クロマトグラフィー

試作した木材液化物およびその接着剤化物について、ゲル濾過クロマトグラフィー (GPC) による検討を行った。未反応フェノールの割合は、GPC の全ピーク面積に対するフェノールピーク面積の比から求めた¹³⁾。

GPC の条件は以下のとおりである。

展開溶媒：ジメチルホルムアミド (DMF) (臭化リチウム10mmol/L 添加)，溶媒流速：1 ml/min，カラム：Shodex GPC KD-802，Shodex GPC KD-801 (昭和電工製)，検出器：示差屈折計 (SSC-5100，センシユ科学製)

3. 結果と考察

3.1 廃木材の液化の検討

3.1.1 フェノールによる木材の液化

北洋材 3 樹種をフェノールにより液化することができた (図-3)。また、得られた液化物は暗紫色を示した。木粉をほぼ完全な液化状態とするためには、エゾマツ、オウシュウアカマツ、コナラにおいては、加熱温度160°Cで、フェノール添加率を3倍以上、カラマツにおいては、4倍以上必要とした (図-4)。これに対し、タテヤマスギは、加熱温度160°Cの場合、フェノール添加率が1倍であってもほぼ完全に液化した。

一方、加熱温度を120°Cまで下げると、フェノール添加率を6倍まで上げてほとんどの樹種で残渣は15%以上あった (図-4)。また、カラマツ材は、加熱温度によらず、フェノール添加率が低いと液化しにくい傾向が見られた。木材の液化ではリグニン、ヘミセルロース、セルロースの順に反応が進んでいく¹⁴⁾。カラマツ材は、他の樹種と比べて、糖類としてアラビノガラクトランを多く含むため、液化しにくい原因の一つになっている可能性がある。

本実験においては、ほとんどの樹種がほぼ完全液化状態になる液化の条件としては、木粉に対してフェノール添加率3倍、160°C加熱が適当である。

フェノールによる液化について、既往の報文^{7,11)}を参考にして、液化時間を1時間程度としてきた。しかしながら、今回の実験条件ではタテヤマスギは液化の効率が非常に良かったので、必要とする液化時間が短いのかかもしれない。そこで、液化物の重合



図-3 フェノールによる木材液化物

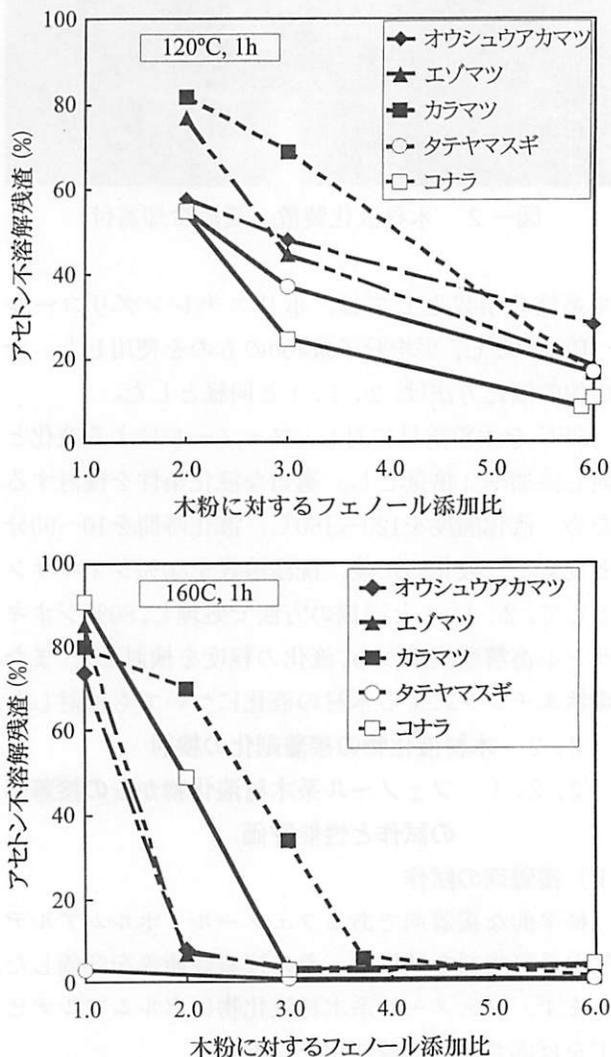


図-4 フェノール添加率とアセトン不溶解残渣量の関係

の程度、液化反応の状態を検討するため、液化時間を変えたタテヤマスギ液化物について、GPCを行った。

その結果、タテヤマスギを160℃でフェノール液化した場合、液化時間10分後に未反応フェノール量は3%にまで低下し、60分後もあまり変わらなかった(図-5)。

したがって、タテヤマスギの場合、本実験では液化反応自体は最初の10分以内にほぼ完了するものと思われる。60分反応させると、分子量分布が高分子側にシフトする。これは、重合反応が進んだためと思われる。したがって、長時間の液化反応は、重合剤との反応性を低めるなど、接着剤の原料としての性能を落とす可能性がある。

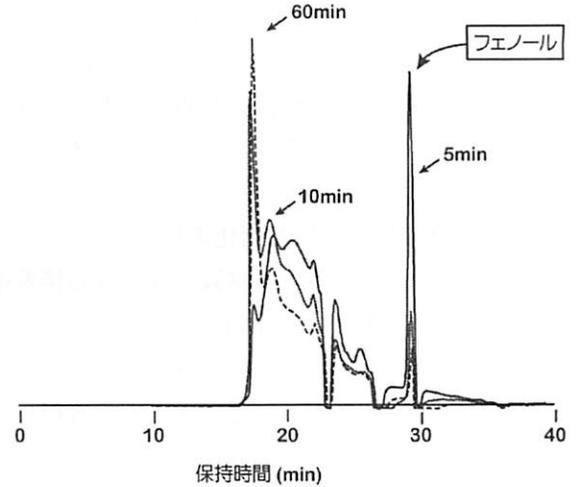


図-5 液化時間を変化させた液化物のGPC (タテヤマスギを160℃でフェノール液化)

※保持時間28分付近が未反応フェノールのピーク
※液化時間は、5分(実線)、10分(点線)、60分(破線)

3.1.2 多価アルコール系液化溶媒による液化

適当な液化温度を検討するため、液化温度を120, 140, 160℃と変えて、80%ジオキサン不溶解残渣量を求めた結果、エゾマツ、オウシュウアカマツ、タテヤマスギにおいて、液化温度が高くなるに従って、80%ジオキサン不溶解残渣量は減少する傾向が見られた(図-6)。また、液化温度160℃で残渣は10~30%程度であったが、フェノールによる液化では残渣は5%程度であり(図-4)、PEGによる液化の効率はフェノールより低いようである。また、樹種による液化程度の違いは、あまり大きくないようであった。エゾマツ液化物の場合、160℃液化の場合で残渣は30%程度あり、接着剤化の際に支障があれば、液化溶媒の添加割合、液化時間などをさらに検討する必要がある。

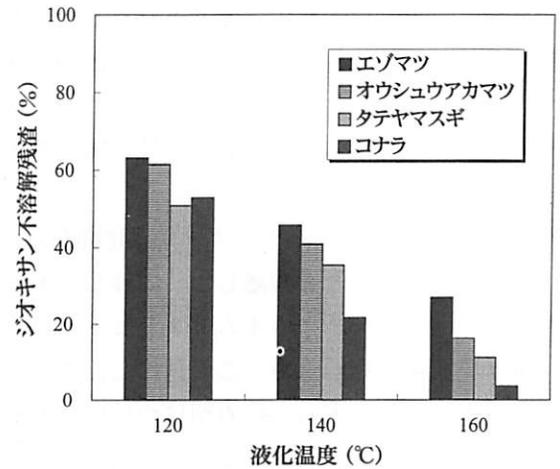


図-6 PEGによる液化の温度と液化の程度の関係 (木粉重量に対するジオキサン不溶解残渣割合)

※液化時間：30分

120℃における液化の場合、残渣が50~65%とかなり多かったため、液化時間と残渣量の関係を調べた(図-7)。その結果、液化時間が20分までは、液化残渣量が急激に低下したが、それ以降は60分までやや緩やかに減少した。しかし、90分反応させた場合、残渣量は減少せずにやや増加した。これは、液化物が縮合反応等により80%ジオキサンに不溶解になったことが原因と考えられる。120℃では液化時間は20~60分程度が適当と思われる。

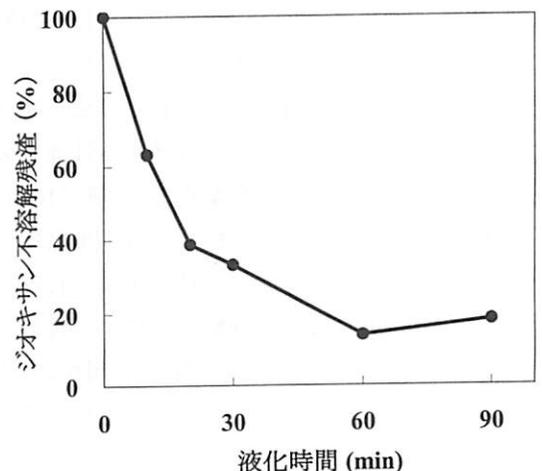


図-7 PEGによる120℃液化における液化時間と液化の程度の関係 (エゾマツ)

次に、液化効率が高いと言われている環状アルコール系による液化^{15,16)}の検討を行った。環状アルコールとしては、炭酸エチレンを用いたが、炭酸エチレンのみを用いた液化では木材液化物の粘度が高くなり、攪拌・混合等が非常にしづらく、扱いにくいものとなった。この対策として、ポリエチレングリ

コールなどを50%程度以上加えた混合液化溶媒とすれば良いことがわかった。ただし、粘度が高くなったことは液化物の反応性が高いためとも考えられ、プレス成型品への適用の際には、かえってメリットとなる可能性もある。

3.2 木材液化物の接着剤化の検討

3.2.1 フェノール系木材液化物からの接着剤の試作と性能評価

北洋材等のフェノールによる木材液化物からホルムアルデヒドとのエノール反応によって接着剤化を試みた。フェノール液化の条件としては、3.1.1の液化条件の検討結果から、木粉に対してフェノール添加率3倍量とし、温度160℃で1時間加熱が適当と思われるが、160℃の条件ではステンレス製反応容器に若干の腐食が認められ、またエネルギー的にも不利である。一方、接着剤化まで考慮したとき、不溶解残渣を接着剤の増量剤として考えれば、30%程度までの残渣は許容されると思われる。そこで、フェノール添加率5倍量、温度120℃、1時間加熱の条件も検討した。

その結果、2条件下でのフェノール液化物から、接着剤が合成できることを確認した。試作した木材液化物からのフェノール・ホルムアルデヒド系接着剤は、液状で暗褐色を示した。この試作したフェノール・ホルムアルデヒド系の接着剤について、引張りせん断接着強さ試験（常態およびスチーミング繰り返し）を行った（図-8）。

カラマツ、タテヤマスギ、コナラの160℃液化物から接着剤について接着強さ試験を行ったところ、液化物に対するホルマリン添加率1.29倍の場合、常態接着力試験において、それぞれ1.8、2.1、2.4MPaとなった（図-9）。また、スチーミング繰り返し試験では、それぞれ1.3、1.5、1.6MPaのせん断強さとなり、JAS 構造用合板特類に合格する性能（カバ合板の場合、スチーミング繰り返し試験で10kg/cm² (0.981MPa) 以上）となった。また、120℃液化物についても、液化物に対するホルマリン添加率1.29倍以上の場合、JAS 構造用合板特類に合格する性能を示した（図-10）。このことより、試作接着剤が、市販接着剤と同等の接着強さを持っていることが示された。

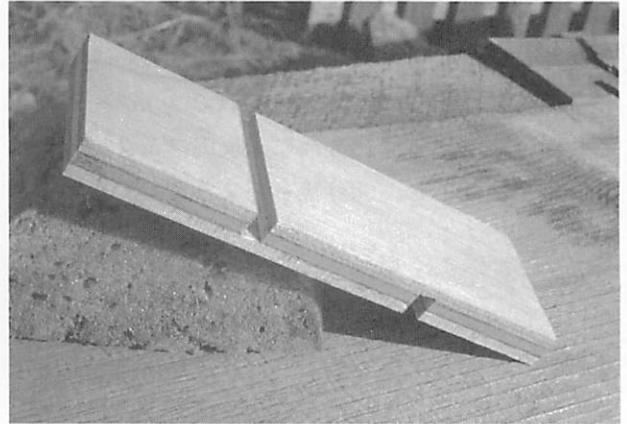


図-8 フェノール系木材液化物接着剤から試作した合板(引張りせん断強さ試験片)

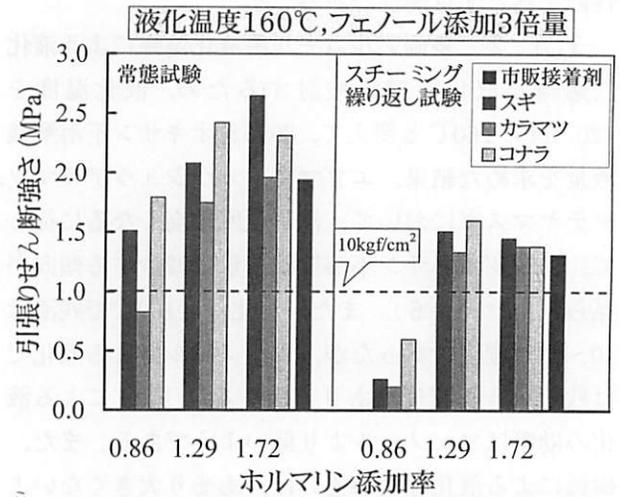


図-9 原料樹種と引張り強さの関係(160℃液化物からの接着剤化物)

※ホルムアルデヒド添加率は木材液化物重量に対しての重量比
※液化時間：1時間

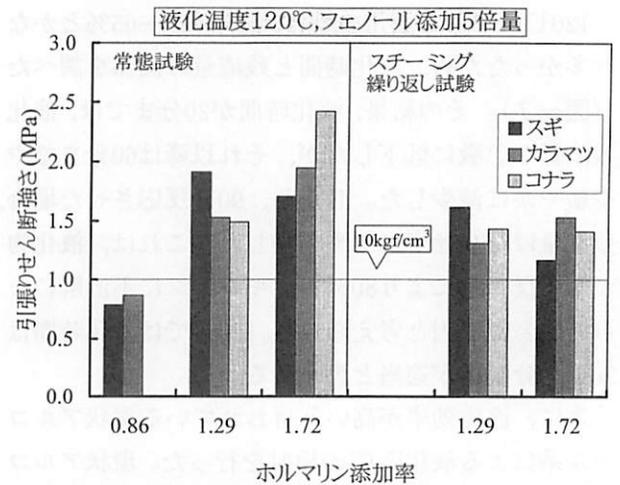


図-10 原料樹種と引張り強さの関係(120℃液化物からの接着剤化物)

※ホルムアルデヒド添加率は木材液化物重量に対しての重量比
※液化時間：1時間

次に、液化温度、ホルマリン添加率が接着性能に及ぼす影響について検討した。ホルマリン添加率が同じなら、160℃での液化物からの接着剤の方が、120℃のものに比べて、引張りせん断強さは大きくなる傾向が見られた。また、ホルマリン添加率について、0.86倍では十分な耐水接着性能が得られなかったが、1.29倍以上では、JAS 構造用合板特類に合格する性能を示した。また、木破についても、ホルマリン添加率が低い場合は、木破率も低いので、強固な接着層が形成されていない可能性がある。本実験においては、160℃の液化温度で、1.29倍以上のホルマリン添加量ならば、引張りせん断強さについては良い結果が得られると考えられる。ただし、必要以上のホルマリン添加は、遊離ホルムアルデヒドを生じる原因となるため、適切なホルマリン添加量を把握する必要がある。

3.2.2 フェノール系木材液化物と接着剤化合物の性状

接着剤の試作においては、未反応フェノールの量とホルムアルデヒド添加量は、フェノール系接着剤化においては、性能に対して重要な因子となるため(17)、より適切な接着剤化条件を得るために、液化物の性状を把握しておくことが望ましい。そこで、主に液化物の重合の程度、反応の状態を検討するため、2.2.1で試作した木材液化物およびその接着剤化合物について、GPCを行った。

図-11にカラマツとコナラの液化物のGPCを示す。樹種により、木材液化物の分子量分布状態に極端な違いは認められなかった。したがって、樹種により木材の液化反応過程に大きな違いはない可能性がある。

また、各樹種の液化物を接着剤化した場合、ホルマリンを1.72倍まで加えても、タテヤマスギ液化物には未反応フェノールが残っていた(表-2)。このことは接着剤化の際の重合反応が完了していないことを示していると考えられる。したがって、ホルマリン添加量を上げる等、接着剤化条件を検討すれば、タテヤマスギ液化物からの接着剤の引張りせん断強さは、図-9の結果よりも大きくなる可能性がある。

3.2.3 アルコール系木材液化物からの接着剤の試作と評価

ホルムアルデヒドを合成過程で使用しない接着剤の一つとして、イソシアネート系接着剤がある。イ

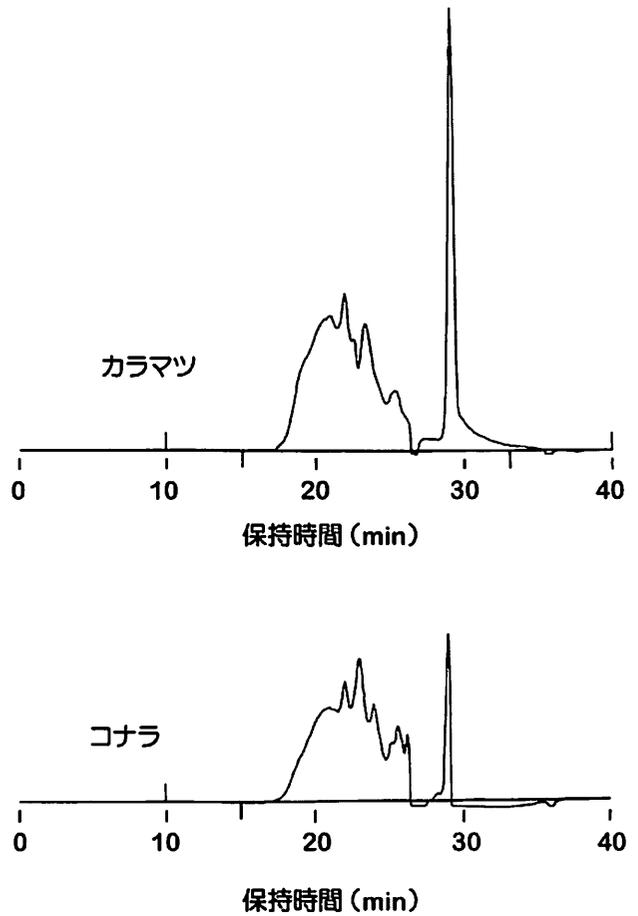


図-11 樹種によるフェノール液化物の分子量分布の違い (GPC)

※液化温度：160℃

表-2 160℃木材液化物の接着剤化における未反応フェノールの割合 (%)

樹種	ホルマリン添加率		
	0	1.29	1.72
オウシュウアカマツ	11	-	-
エゾマツ	27	-	-
カラマツ	26	0	0
コナラ	5	3	0
タテヤマスギ	24	-	5

※木粉に対するフェノールの重量比は3倍。

ホルマリン添加率は液化物に対する重量比。

“-”：未測定。

※ホルマリン添加率0とは、液化物のみ状態。

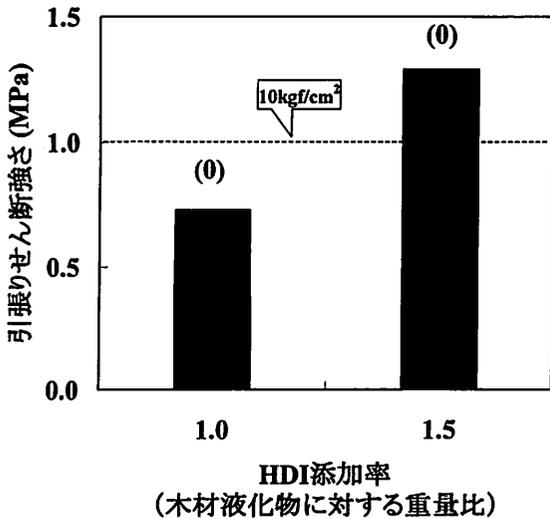


図-12 イソシアネート系試作接着剤の接着強さ

※図中括弧内は木破率 (%) を示す。
 ※点線は、JAS 普通合板三類引張りせん断強さ
 ※ HDI：ヘキサメチレンジイソシアネート

ソシアネートは、様々なポリオールとウレタン反応を起こすが、ポリエーテルポリオール類が多く使われている¹⁸⁾。

3.1.2で示したように、アルコール系液化溶媒であるPEGにより木材の液化が可能であることが確認できたので、イソシアネート系接着剤の試作を行った。反応速度等を考え、イソシアネートはHDIを使用した。この試作接着剤について、フェノール系接着剤と同様の方法で接着強さ試験を行った。

その結果、HDI添加量を1.5倍量としたとき、引張りせん断強さが1.0MPa以上であり、JAS普通合板三類の引張りせん断強さを持つ合板を得ることができた(図-12)。

しかし、木破に至るものはほとんどなかった。今回供試した木材液化物の水分量は10%程度であり、試作接着剤の強度を高めるためには、この水分量の調整を行うことが必要であるかもしれない。また、使用するイソシアネートの種類等を検討する必要があるかもしれない。これらのことにより、より強い接着剤を合成することは可能と考える。

4. 結論

本研究において、以下のような結果が得られた。

- (1) 廃木材の液化について、
 a) 北洋材(カラマツ, エゾマツ, オウシュウアカマツ), 富山県産スギ(タテヤマスギ), および広葉

樹のコナラをフェノールで液化できることを確認した。また、本実験では、160℃で1時間加熱することで、木材をほぼ完全に液化することができた。さらに、タテヤマスギのフェノール液化において、フェノールとの重量比が1:1の場合、液化は10分以内にほぼ終了することがわかった。

b) PEG(多価アルコール系液化溶媒)を用いて北洋材等を液化できることを確認した。しかしながら、液化効率、フェノールよりも低かった。

(2) 液化木材の接着剤化について、

a) 北洋材, スギ材, 広葉樹材の樹種によらず、液化した木材からフェノール・ホルムアルデヒド系の接着剤を合成することができた。これらの接着剤を用いてJAS構造用合板特類の規格に適合する引張りせん断強さを持つ合板(カバ材)を得ることができた。

b) 非ホルムアルデヒド系接着剤として、木材液化物とHDIからイソシアネート系接着剤を合成することができた。これらの接着剤を用いて、JAS普通合板三類の規格に適合する引張りせん断強さを持つ合板を得ることができた。

謝 辞

本実験において、木材液化物のGPCによる分析等において、ご指導とご協力くださいました東京大学大学院農学生命科学研究科小野拓邦教授に深く感謝いたします。

引用文献

- 1) 水本克夫：“とやま林業木材技術Q&A”，富山県林業技術センター振興協議会編，富山県林業技術センター振興協議会，富山，2000，pp.128-129.
- 2) 高野了一：“とやま林業木材技術Q&A”，富山県林業技術センター振興協議会編，富山県林業技術センター振興協議会，富山，2000，pp.10-11.
- 3) 高野了一，唐沢了：樹皮抽出物による天然系接着剤の製造(第1報)抽出物とホルムアルデヒドの反応性，木材と技術，40，11-14(1980).
- 4) 高野了一，唐沢了：樹皮抽出物による天然系接着剤の製造(第2報)シベリア産カラマツ樹皮抽出物の接着性能，木材と技術，47，1-6(1981).

- 5) 水本克夫, 高橋理平: カラマツアラビノガラクトンの製造 (第1報) マグネシアによるアラビノガラクトンの精製, 富山林技研報, 3, 17-24 (1990).
- 6) 水本克夫, 唐沢了: アラビノガラクトンの精製方法, 特開平2-129202 (1990).
- 7) 白石信夫: 木材の液化と二, 三の応用, 油化学, 46, 1227-1236 (1997).
- 8) 山田竜彦: 木材の液化技術の開発と反応機構の解明, 木材工業, 54, 2-7 (1999).
- 9) Pu, S., Shiraishi, N.: Liquefaction of wood without a catalyst I. Time course of wood liquefaction with phenols and effects of woos / phenol ratios, *Mokuzai Gakkaishi*, 39, 446-452 (1993).
- 10) 小野拓邦: 木質材料フェノール化物の接着剤への応用 (I) 木質材料のフェノール化反応, 木材工業, 48, 590-594 (1993).
- 11) Yamada, T., Ono, H. Ohara, S., Yamaguchi, A.: Characterization of the products resulting from direct liquefaction of cellulose I. Identification of intermediates and the relevant mechanism in direct phenol liquefaction of cellulose in the presence of water, *Mokuzai Gakkaishi*, 42, 1098-1104 (1996).
- 12) 小野拓邦, 須藤賢一: 木質系物質からなる樹脂原料の製造方法, 特開平1-217070 (1989).
- 13) 小野拓邦: 木質材料フェノール化物の接着剤への応用 (II) フェノール化物からの木材用接着剤, 木材工業, 49, 8-13 (1994).
- 14) 小野拓邦: 木材フェノール化物の検討 (2) - 酸触媒下でのフェノール化機構 -, 第42回日本木材学会研究発表要旨集, 名古屋, 1992, p. 302
- 15) 山田竜彦, 小野拓邦, 大原誠資: 炭酸エチレンを用いた木材の液化, 第47回日本木材学会研究発表要旨集, 高知, 1997, p. 308.
- 16) Yamada, T., Ono, H.: Rapid liquefaction of lignocellulosic waste by using ethylene carbonate, *Bioresource Technology*, 70, 61-67 (1999).
- 17) 盧正官, 秦野泰典, 塔村真一郎, 山田竜彦, 小野拓邦: バイオマス液化物の樹脂化 - 木材のフェノール液化物とホルムアルデヒドの反応性 -, 第34回日本接着学会年次大会講演要旨集, 岐阜, 1996, pp. 173-174.
- 18) 岡部憲昭: “ポリウレタン応用技術”, シーエムシー編集部編, シーエムシー, 東京, 1999, pp. 14-22.

Summary

Abundant waste wood, such as sawdust and planer-dust from sawmills and wood materials from disassemblies of buildings, are waiting effective utilization. Chemical liquefaction is one of the powerful methods for the utilization of such waste wood. The chemical liquefaction of the Siberian wood materials has not been studied until now, however, it is mainly used as a material for residential buildings especially, in the Hokuriku region.

Therefore, the chemical liquefaction was applied to utilization of the waste wood. The result is shown as follows:

- 1) Siberian lumber (hokuyo-karamatsu (*Larix gmelinii* Kuzen.), ezomatsu (*Picea jezoensis* Carr.), oushuakamatsu (*Pinus sylvestris* Linn.)), tateyama-sugi (Variety of *Cryptomeria japonica* D. Don, cropped from Toyama prefecture) and konara (*Quercus serrata* Thunberg) could be liquefied in the phenol. The optimum liquefaction conditions of tateyama-sugi (water ratio; wood: phenol = 1: 1) were about 160°C, 10 minutes, in this study.
- 2) Siberian lumbars could be liquefied using polyethylene glycol (PEG) (polyalcohol type liquefaction solvent), however, the efficiency of liquefaction was low compared with the phenol liquefaction.
- 3) It was possible to synthesize the phenol-formaldehyde type adhesive from phenol-liquefied wood in regardless of the tree species. This adhesive was confirmed to have tension shearing strength which suits the superior class in the structural plywood of the Japanese agricultural standards.
- 4) The isocyanate type adhesive could be synthesized from PEG-liquefied wood, and the adhesive was confirmed to have tension shearing strength that suits the type III class in the structural plywood of the Japanese agricultural standards.