

短期外部応力下における水性高分子ーイソシアネート系樹脂接着剤の接着耐久性

本多 琢 己

Durability Testing of Adhesive Joints with Aqueous Polymer Isocyanate Adhesive under Short-Term Loading.

Takumi HONDA

Summary : The durability of double-lap adhesive joints under equilibrium moisture content conditions and non-equilibrium moisture content conditions with tensile loading was investigated. The effects of adhesives (*API* : aqueous polymer isocyanate adhesive, *PRF* : phenol-resorcinol formaldehyde adhesive) and stress levels (10%, 20%, 30%) on the adhesion strength were examined. Results of the analysis of variance of the adhesion strength, adhesives and stress levels showed that adhesion strength was affected by adhesives. However, it was similar to adhesion behaviors under every exposure conditions on and also to be constant to the relative strength ration γ . Therefore this seems reasonable to suppose that both the adhesive bonding durabilities is almost comparable. On the other hand, wood failure showed the decreasing tendency when exposing under high-equilibrium moisture content condition.

要旨 : 2Ply 試験片に引張り応力を負荷した状態で含水率一定および吸湿下における暴露試験を行い、水性高分子ーイソシアネート系樹脂 (*API*) 接着剤の接着耐久性をフェノール・レゾルシノール共縮合樹脂 (*PRF*) 接着剤のそれと比較検討した。応力レベルは、それぞれの引張りせん断接着強さの 10%、20%、30%とした。各暴露条件ごとに引張りせん断接着強さ、接着剤および応力レベルを因子とする分散分析を行った結果、接着剤間に有意差が認められた。しかしながら、各暴露環境において両接着剤の引張りせん断接着強さはほぼ同様の挙動を示し、その上相対強度比もほぼ等しいことなどから、*API* 接着剤は *PRF* 接着剤に匹敵する接着耐久性を有していると考えられる。一方、平衡含水率が高い条件の場合、木部破断率は顕著に減少した。

1 緒 言

接着系は、実用面において温度、水分による化学的劣化や応力による物理的劣化によって接着強度の低下をきたす。これらの外的因子が同時に作用する構造接着では、特に高い接着耐久性が要求される。これまで木材接着の耐久性に関する研究は多数報告されているが、荷重負荷の影響を扱ったものは少ない。

最近、使い勝手の良さや非ホルマリン系であることから水性高分子ーイソシアネート系樹脂 (*API*) 接着剤の使用実績が伸びている¹⁾。この接着剤は熱可塑性樹脂をベースポリマーとし、イソシアネートを架橋剤とするハイブリッド型の接着剤である。レゾルシノール樹脂接着剤と同等の接着力を示すものは、構造用集材への使用も認められている。しかしながら、比較的新しい接着剤であるがゆえ、実用的な観点からの接着耐久性に関する

データは充分ではない。また、熱可塑性樹脂をベースポリマーとしていることから、耐クリープ性が懸念される場所である。これまでの *API* 接着剤のクリープ特性に関する報告^{2) 3)}では、いずれも製品段階におけるクリープ特性が検討されており、接着剤そのもののクリープ特性は検討されていない。接着剤のクリープ試験は ASTM⁴⁾ や JIS⁵⁾ に規定されているものの、前者ではクリープ破断まで長時間を要すこと、また、後者では負荷荷重の容量が過大になることからいずれも簡単に行える方法ではない。

そこで、本研究では応力下における *API* 接着剤の接着耐久性を検討⁶⁾するため、低レベル荷重を短期間負荷した状態で促進劣化試験を行い、構造用接着剤として最も信頼性のあるレゾルシノール系樹脂接着剤と比較評価した。

2 実験方法

2-1 試験片の作製

厚さ 6 mm のカラマツ材 (気乾比重 0.56~0.63、平均年輪幅 1.6mm、晩材率 30%程度) を供試材に用い、JISK 6851 に規定された 2PLY 試験体を作製した。接着剤は API (PII27) とフェノール・レゾルシノール共縮合樹脂 (PRF: D40) 接着剤の 2 種類で、ともに大鹿振興(株)社製である。塗布量は 250g/m² で、接着面を柾目とした。圧縮圧 0.98Mpa、室温で 24hr 圧縮した。解圧後、20°C-65% RH の恒温恒湿室中で 3 週間以上養生し充分硬化させた。

2-2 試験装置

試作した応力負荷装置の概略図を Fig.1 に示した。本装置は負荷応力の調整をスプリングで行うことを特徴としている。スプリングのバネ定数を知ることで所定の引張り応力を負荷でき、また、試験体をピン及び金属プレートで連結することで同時に多数の負荷を可能とした。さらに、恒温恒湿機内に設置できるようにコンパクトに設計した。

2-3 促進劣化試験

促進劣化試験の際の温湿度条件を Table.1 に示す。シリーズ I では試験体の含水率を変えて、また、シリーズ II では試験体の吸湿過程において負荷した。負荷応力レベルは、引張せん断接着試験から求めた平均破壊荷重の 10%、20% および 30% の 3 水準としたが、シリーズ I ではそれぞれの含水率に調整した試験体の引張せん断接着試験から求めた平均破壊荷重を基準とした。

ピンおよびプレートで 7 対の試験体を連結したものを 1 組とし、これに同一応力が負荷されているものとみなした。また、試験中特に応力の調整は行わなかった。

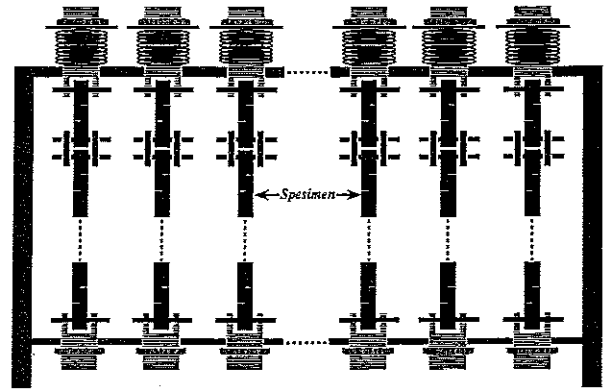


Fig. 1. Scheme of the testing procedure.

3 結果および考察

接着系に応力が負荷されると接着部に水分が侵入しやすくなり、耐湿性・耐水性が低下することが知られている⁷⁾。ところで、本研究では後述するように、接着耐久性に及ぼす応力レベルの影響は確認されなかった。この理由として、①スプリング方式の負荷としたため応力緩和が生じたこと、②採用した応力レベルが負荷応力の影響が出ない上限の応力 (許容限界値) 以下であったこと、③あるいは上限応力以上ではあったが暴露期間内において影響が現われなかったこと、④暴露中の熱によって接着剤の硬化が促進したこと、⑤接着剤硬化時に生じた内部応力が被着体が吸湿することにより緩和されたこと、⑥①~⑤の複合効果などが推定されるが、特定は困難である。以下ではこれらの点を考慮し考察を進める。

3-1 引張りせん断接着強さの経時変化

引張りせん断試験片の含水率を一定にして引張応力を負荷した状態で、20°C・30%RH、20°C・60%RH、20°C・

Table. 1 Test conditions

Code	Test procedures
Series I -1	Conditioning to EMC at 20°C・65%RH→Conditioning to EMC at 20°C・30%RH →Tensile loading at 20°C・30%RH for 30days
Series I -2	Conditioning to EMC at 20°C・65%RH→Conditioning to EMC at 20°C・60%RH →Tensile loading at 20°C・60%RH for 30days
Series I -3	Conditioning to EMC at 20°C・65%RH→Conditioning to EMC at 20°C・90%RH →Tensile loading at 20°C・90%RH for 30days
Series II -1	20°C・65%RH 3weeks→Tensile loading at 40°C・90%RH for 30days
Series II -2	20°C・65%RH 3weeks→Tensile loading at 60°C・90%RH for 30days

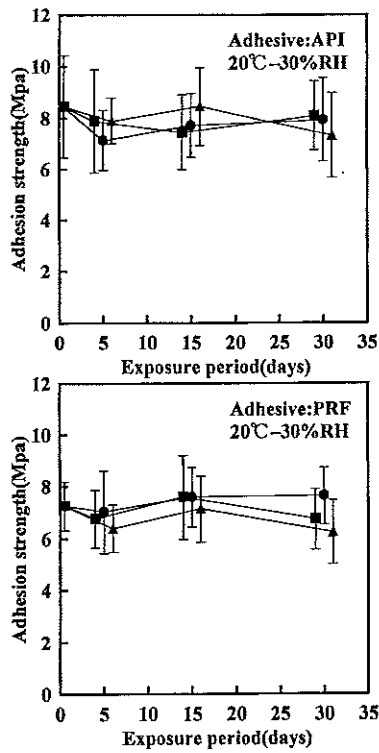


Fig. 2 . Relationship between adhesion strength and exposure period.
Legend : stress level ; ●-10%, ▲-20%, ■-30%

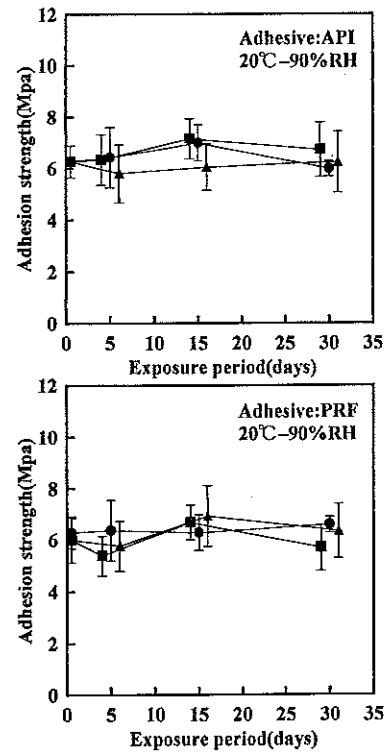


Fig. 4 . Relationship between adhesion strength and exposure period.
Legend : stress level ; ●-10%, ▲-20%, ■-30%

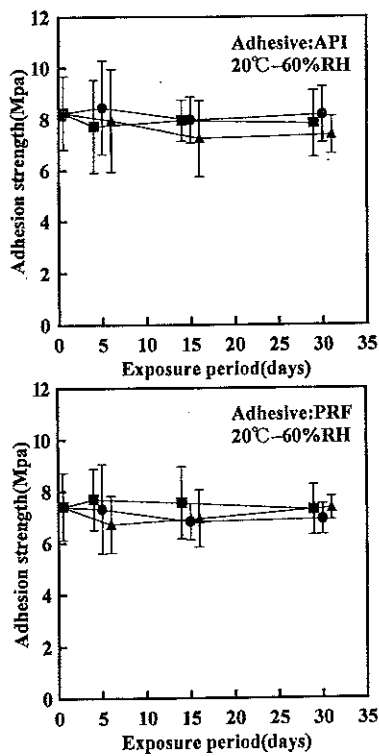


Fig. 3 . Relationship between adhesion strength and exposure period.
Legend : stress level ; ●-10%, ▲-20%, ■-30%

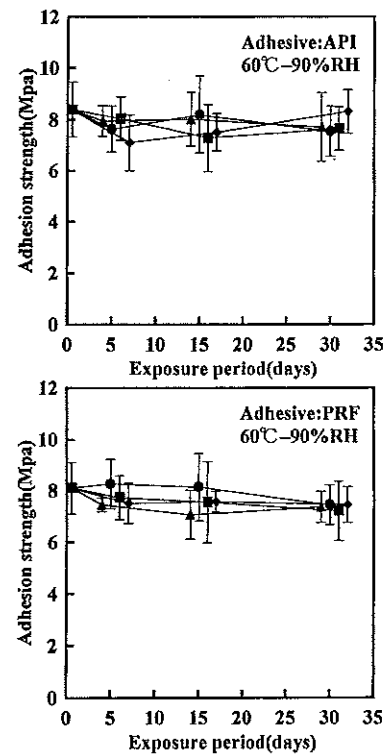


Fig. 5 . Relationship between adhesion strength and exposure period.
Legend : stress level ; ●-0%, ▲-10%, ■-20%, ◆-30%

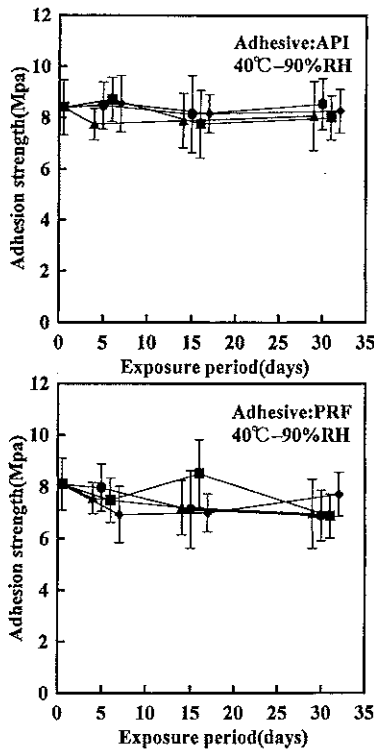


Fig. 6 . Relationship between adhesion strength and exposure period.
Legend : stress level ; -●- 0% , -▲-10% , -■-20% , -◆-30%

Table. 2 Relationship between relative shear strength and test conditions.

Test conditions	$\gamma : \sigma (30) / \sigma (0)$	
	API	PRF
Series I -1	0.92	0.95
Series I -2	0.96	0.92
Series I -3	1.01	1.04
Series II -1	0.98	0.92
Series II -2	0.93	0.91

Notes:() loading days.

90%RH の各雰囲気中に 30 日間暴露した時の引張りせん断接着強さの経時変化を Fig.2~Fig.4 に示す。また、引張りせん断試験片の含水率変化過程において引張応力を負荷した状態で、40℃・90%RH、60℃・90%RH の各雰囲気中に 30 日間暴露した時の引張りせん断接着強さの経時変化を Fig.5、Fig.6 に示す。これらのグラフから両接着剤は、いずれの暴露環境においてもほぼ同様の挙動を示していることは明らかであり、接着耐久性もほぼ同程度であろうことが推察されるが、さらに統計的分析を

加えることとした。すなわち各シリーズごとに接着剤、応力レベルを因子とする分散分析を行った。その結果、シリーズ I -1、I -2、II -1 において接着剤間に有意差 ($P < 0.05$, $API > PRF$) が認められた。応力レベルに関してはいずれのシリーズにおいても有意差は認められなかった。この接着剤間の有意差の意味について検討を加えるべく、応力負荷開始から 30 日経過後の引張りせん断接着強さの平均値から相対強度比 γ を求め、その結果を Table.2 に示す。相対強度比 γ は API と PRF でほぼ同程度の値を示し、シリーズによって 0.91~1.04 であった。このことから、2 種類の接着剤において暴露環境の違いは引張りせん断接着強さの挙動にほとんど影響しないことが分かる。したがって接着剤間の統計上の有意差は、接着耐久性の優劣が判定された結果から生じたのではない。それゆえ 2 種類の接着剤の接着耐久性はほぼ同等であると考えられる。

3-2 木部破断率の変化

木部破断率は全般的にバラツキが大きく、負荷荷重の大小による影響が明確ではないので一定の傾向がつかみにくい。そこで、各シリーズごとの木部破断率を接着剤ごとにプーリングして整理しなおすと Fig.7 のようになる。いずれのシリーズにおいても促進劣化処理前後の木部破断率の変化は少ない。

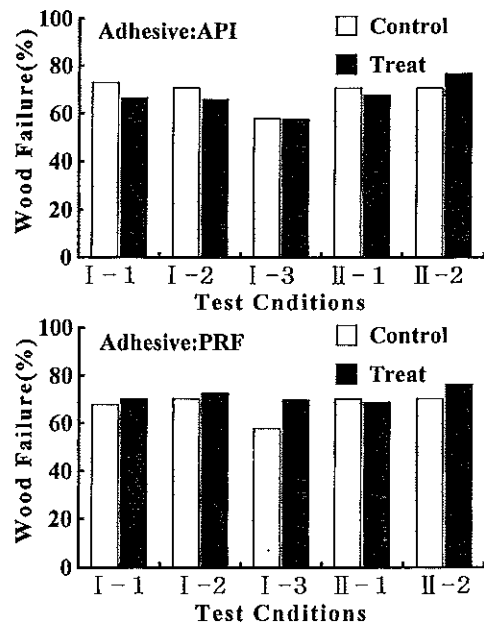


Fig. 7. Wood Failure vs Test Conditions.

なお、大鹿振興(株)様から接着剤を快く提供していただきました。ここに厚く謝意を申し述べます。

参 考 文 献

- 1) 井上大成, 田村靖夫, 桑子延照: 木材工業, 47, 302-305 (1992)
- 2) 吉田弥明: 第15回木材接着研究会講演要旨集, p20 (1994)
- 3) 上杉三郎, 宮武敦, 川元紀雄: 木材学会誌, 39, 1201-1207 (1993)
- 4) AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. 1990. Standard Test Method for Determining Durability of Adhesive Joints Stressed in Shear by Tension Loading. ASTM D 2919-90. Philadelphia, Pa.
- 5) 日本工業規格: 接着剤のクリープ破壊試験方法 JIS K 6859 (1980)
- 6) 本多琢己: 第46回日本木材学会大会研究発表要旨集, p555 (1996)
- 7) 宮入裕夫ら: 接着応用技術, 日経技術図書株式会社, 521-526 (1991)