

衝撃接着力に関する研究(第3報)^{※1}

比重, pH およびぬれの影響^{※2}

作野友康^{※3}・後藤輝男^{※3}

Tomoyasu SAKUNO^{※3} and Teruo GOTO^{※3}

Studies on the Impact Strength of Adhesives III^{※1}
Effects of Specific Gravity, pH and Wettability^{※2}

1 はじめに

木材接着にはきわめて多くの因子が関与し、これらの因子が相互に関係し接着力に種々の影響を及ぼしている⁽⁷⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾など、衝撃接着力試験においてもその影響は大きい⁽⁷⁾が、静的荷重による接着力試験における場合と異なった影響を与えることが考えられる。前報⁽⁴⁾では接着剤の種類、接着層厚みおよび暴露条件の影響について検討した。

被着材の諸性質は接着力に影響を及ぼす大きな因子であり、各材の諸性質を明らかにし、接着力にどのような影響をおよぼすかを検討することが、接着部材の設計等には非常に重要である。そこで本報では15樹種の温帯産

材と11樹種の熱帯産材について、比重, pH およびぬれと衝撃接着力との関係を検討した。

2 実験材料および方法

2.1 実験材料

被着材としては Table 1 に示すような比重0.23~0.85の温帯産材(主として日本産材)15樹種と、比重0.41~1.00の熱帯産材11樹種を用いた。

接着剤には市販の一般木工用ユリア樹脂接着剤[†]を用いた。

2.2 実験方法

各材について気乾比重(以下比重という)、pH およ

Table 1 Temperate woods and tropical woods used in this experiment.

Common name	Botanical name	Specific gravity
Kili (sapwood)	<i>Paulownia tomentosa</i> STEUD.	0.23
Hinoki (sapwood)	<i>Chamaecyparis obtusa</i> SIEB. et ZUCC.	0.35
Sugi (sapwood)	<i>Cryptomeria japonica</i> D. DON	0.37
Hoonoki	<i>Magnolia obovata</i> THUNB.	0.44
Nagi	<i>Podocarpus nagi</i> PILG.	0.46
Akamatsu (sapwood)	<i>Pinus densiflora</i> SIEB. et ZUCC.	0.47
Katsura	<i>Cercidiphyllum japonicum</i> SIEB. et ZUCC.	0.50
Lawson cypress (sapwood)	<i>Chamaecyparis Lawsoniana</i> PARL.	0.52
Buna (sapwood)	<i>Fagus crenata</i> BLUME	0.58
Kuri	<i>Castanea crenata</i> SIEB. et ZUCC.	0.60
Douglas fir (sapwood)	<i>Pseudotsuga taxifolia</i> BRITT.	0.61
Shirakashi (sapwood)	<i>Quercus myrsinaefolia</i> BLUME	0.67
Hard maple (sapwood)	<i>Acer barbatum</i> MICHX.	0.69
Isunoki	<i>Distylium racemosum</i> SIEB. et ZUCC.	0.79
Akagashi (sapwood)	<i>Quercus acuta</i> THUNB.	0.85

※1 第2報:日本接着協会誌 3, 339 (1967)

※2 第18回日本木材学会大会(1968年4月)で発表した。

※3 改良木材学研究室

Laboratory of Chemical and Physical Processing of Wood

† キゲタライムUA-104:本接着剤を提供していただいた住友ベークライト株式会社に感謝の意を表します。

Tropical woods

Common name	Botanical name	Specific gravity
Red lauan	<i>Shorea negrosensis</i> FOXW.	0.41
Manggasinoro	<i>Shorea philipnensis</i> BRANDIS	0.45
Spinarl	<i>Anisoptera thurifera</i> BLUME	0.62
Mansonia	<i>Mansonia altissime</i> A. CHEU.	0.63
Rose wood	<i>Dalbergia latifolia</i> ROXB.	0.72
Zebra wood	<i>Microberinia blazzavilenis</i> A. CHEU.	0.81
Black butt	?	0.83
New england black butt	?	0.86
Yellow stringybark	?	0.88
Silvertop ash	<i>Eucaripts propinqua</i> DEANE	0.88
Red mahogany	<i>Eucaripts resenifera</i> SMITH	1.00

びぬれをそれぞれ測定した。

pH の測定は各材から木粉 (20~40メッシュ) を採取し、これを蒸溜水に懸濁して、その濾過液についてガラス電極 pH メーターで測定した。

ぬれの測定には毛管上昇法、傾板法および液滴法の3方法を用いた。毛管上昇法は木粉を目盛付ガラス管につめて、その水分吸収高を測定し、CWAH を求めた。傾板法、液滴法は $1 \times 8 \times 0.2\text{cm}$ の試験片を用いて蒸溜水との接触角を求めた。なおこれらの詳細な測定法については既報⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾と同様に行なった。

また各材の柁目板 (含水率10~12%) を2枚集成して、ユリア樹脂接着剤で接着した。接着条件は塗布量 $180\text{g}/\text{m}^2$ で片面塗布、圧縮力 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 、圧縮時間24時間、硬化温度 25°C とした。接着した試験片について前報⁽⁶⁾と同様の衝撃接着力試験を行なった。

3 実験結果および考察

実験結果より比重、pH およびぬれと衝撃接着力 (以下接着力という) との関係は温帯産材と熱帯産材とに分けて、各々について相関係数を求めた。相関係数が1%または5%レベルで有意な場合に回帰直線式を求めて、これらの関係を明らかにした。

3.1 比重の影響

比重と接着力との関係は温帯産材では5%レベルで有意な相関関係が認められた。しかし熱帯産材では相関係数が-0.13で無意であった。すなわち Fig. 1 に示すように温帯産材は、比重が大きい材ほど接着力は高くなる傾向がある。これに対して熱帯産材では一定の傾向が認められず、その平均値を破線で示した。

従来の静的ブロックせん断試験では常態接着力の比重依存度が非常に高く、相関係数が大きく常態接着力がほとんど比重によって左右されることが多かった。

熱帯産木材については筆者ら⁽⁴⁾⁽⁵⁾のこれまでの実験で

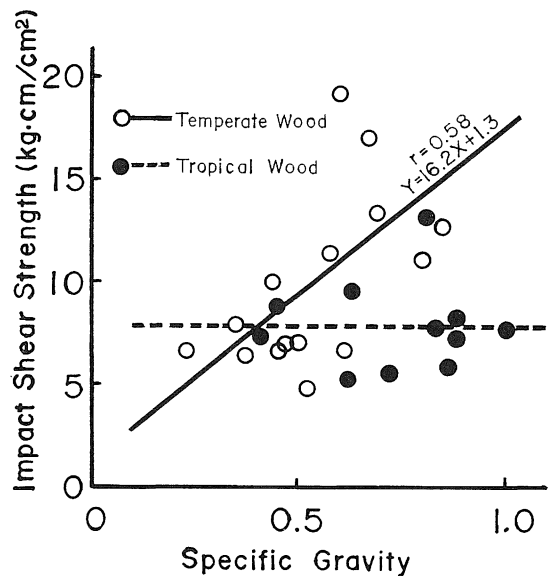


Fig. 1 Correlation between impact shear strength and specific gravity.

静的ブロックせん断試験における常態接着力と比重との間には高度な相関関係が認められた。

ところで衝撃接着力については、温帯産材のみにおいて相関係数0.58で5%レベルで有意であった。一方、熱帯産材は供試樹種が若干少ないけれども、衝撃接着力との関係が、従来の静的ブロックせん断試験の場合よりも比重の影響を受けることが少ないことが明らかである。

このような衝撃荷重に対する比重の影響が少ない理由として次のことがあげられる。1) 衝撃せん断試験においては、前報⁽⁶⁾で示したように静的なそれよりも接着層に比較的純粋なせん断応力がかかる。2) FREEMAN⁽³⁾は比重0.8以上の材をユリア樹脂接着剤で接着した場合、接着力は比重の影響を受けないとしている。本実験

で用いた熱帯産材は比重0.8以上の材が多く、この場合にも一層比重の影響を受けない。しかしながら、さらに素材の衝撃せん断吸収エネルギーに対する比重の影響など明らかにして、詳細に検討する必要がある。

なお衝撃曲げ吸収エネルギーについては比重との関係は一般的に $U=ar^2$ (U : 衝撃曲げ吸収エネルギー, r = 気乾比重) で表わされる⁽⁶⁾。しかしながら、特に熱帯産材については高橋ら⁽⁴⁾が一般式をすべての材に適用することは出来なくて直線関係を示す場合もあり、樹種によって種々異った特性を示すのでこれに留意しなければならぬことを報告している。

3.2 pH の影響

温帯産材では衝撃接着力と pH との間に 1% レベルで有意な相関関係が認められ、熱帯産材ではその関係は認められなかった。Fig. 2 に示すように温帯産材では pH の低い酸性度の強い材ほど接着力が高く中性に近い材は接着力が低くなった。これは比重の影響が比較的少ないために pH の影響が明白にあらわれてきた。しかしながら熱帯産材ではさらに抽出成分などの影響も加味されるために、pH との関係が一定の傾向を示さない。ユリア樹脂の硬化度は被着材の pH にも関係し、pH の低い酸性の材は硬化速度も速く、硬化度も上昇し常態では接着力が高くなる。しかし耐久性については異なった挙動を示すものと思われるのでこの点を今後検討する必要があると考える。

pH と静的ブロックせん断接着力との関係については、FREEMAN⁽³⁾がアメリカ産材についてユリア樹脂接

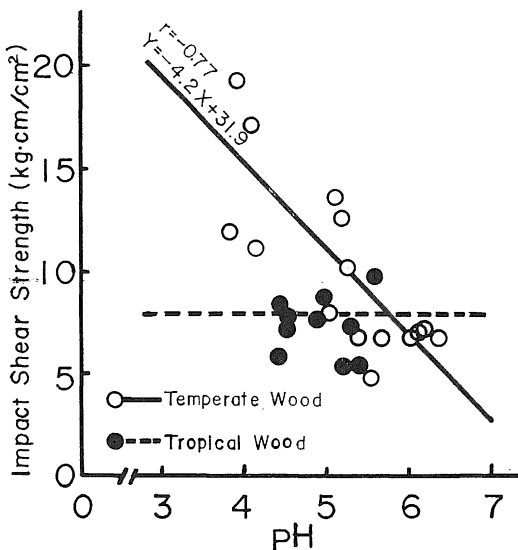


Fig. 2 Correlation between impact shear strength and pH value.

着剤で接着した場合に、比重0.8以上の材で pH が低いほど接着力が高いことを報告している。一方熱帯産材について筆者ら⁽⁵⁾⁽⁶⁾の実験では一定の関係が認められなかった。本実験において温帯産材が有意で、熱帯産材では有意でない理由は明らかでない。

3.3 ぬれの影響

毛管上昇法で測定したぬれ (CWAH) と接着力との関係は相関係数が温帯産材で -0.51, 熱帯産材で 0.48 といずれも r 検定の結果、有意な相関関係は認められなかった。

しかしながら静的せん断接着力とこの方法で測定したぬれの関係は熱帯産材については、BODIG⁽⁹⁾が 5 種類のフィリップピンマホガニーについての実験で非常に高い相関関係 (相関係数 0.946) があることを報告している。また筆者ら⁽⁴⁾の実験においては接着力との関係は明らかでなかったが、ほぼ同一比重の材の間ではぬれのよい方が接着力が高い傾向がみられた。

次に傾板法で測定したぬれ (接触角の cosine) との関係は Fig. 3 に示す。温帯産材の場合、すべての材が cosine 0.7 以上の高い値を示し、各材のぬれの差がはっきりしなかった。これは傾板法によるぬれの測定方法あるいは試験片の調整などに問題があるためと思われる。そこでこの場合には接着力との相関係数を求めて、それによって両者の関係を判定することに疑問があるので相関係数あるいは回帰直線は示さなかった。一方熱帯産材では cosine 0.156~0.923 と値が広範囲にわたっ

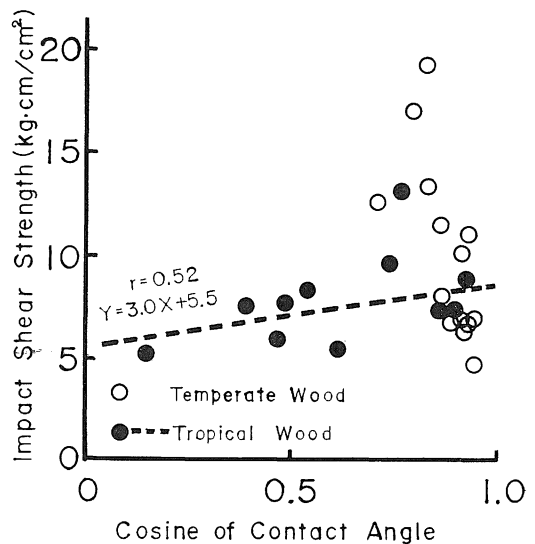


Fig. 3 Correlation between impact shear strength and cosine of contact angle determined by inclined plate method.

ており、このような場合にはぬれの差は明示されるものと思われる。これによると5%レベルで有意な相関関係がありぬれのよい材ほど接着力が高かった。

傾板法によるぬれと静的せん断接着力との関係について FREEMAN⁽³⁾ はぬれのよい方が高い、しかしながらこの場合せん断率(せん断接着力/素材のせん断強度)とぬれの間をみると比重0.8以下の低比重材ではぬれのよい方が低くなることを報告している。一方、熱帯産材について BODIG⁽²⁾ は相関係数0.849と両者の間に高度の相関関係があり、ぬれのよい方が接着力が高いことを報告している。また筆者らの実験⁽⁶⁾ では比接着力(せん断接着力/比重)とぬれとの関係は、比重0.8以下の熱帯産材で有意な相関関係(相関係数0.68)が認められた。

さらに液滴法で測定したぬれと接着力との関係については温帯産材、熱帯産材ともに相関関係は認められなかった。

この測定法による研究で浅野⁽⁴⁾ は熱帯産材単板についてゴニオメーターで測定したぬれと合板接着力との関係ではっきりした傾向がみられなかったとしている。また筆者らの実験⁽⁶⁾ でも有意な相関関係は認められなかった。

このように衝撃接着力におよぼすぬれの影響はすべての場合にあまり顕著でなかった。

3.4 ぬれと比重および pH との関係

ぬれの測定には種々の問題点があり、ぬれの値に他の因子の影響があることが十分考えられる。そこで比重および pH と3方法によって測定したぬれの値との関係についても同様に相関関係を検討した。

比重との関係についてはFig. 4 に示すように熱帯産材の液滴法以外はすべて有意な相関関係が認められた。そして温帯産材の傾板法の場合以外は1%レベルで有意であり比重の高い材はぬれが悪くなることが明らかである。これは既報の結果⁽⁴⁾⁽⁶⁾ と同様である。

次に pH との関係は温帯産材でのみ毛管上昇法の CWAH と液滴法の cosine との間に有意な相関関係が認められた (Fig. 5)。熱帯産材についてはいずれの場合も相関関係は認められなかった。これは本実験に用いた材の pH が4.44~6.15と比較的差が少なかった(温帯産材は3.72~6.29) こともあるが以前の実験⁽⁶⁾ においてもこの関係は認められなかった。

このようにぬれの値が比重および pH の影響を受けており、また接着力も比重および pH の影響を受けていることが認められた。そこでぬれの値と接着力をいずれも比重で除した値(比重の影響を除くため)について両者の関係をみだが、これはいずれの場合も一定の傾向は

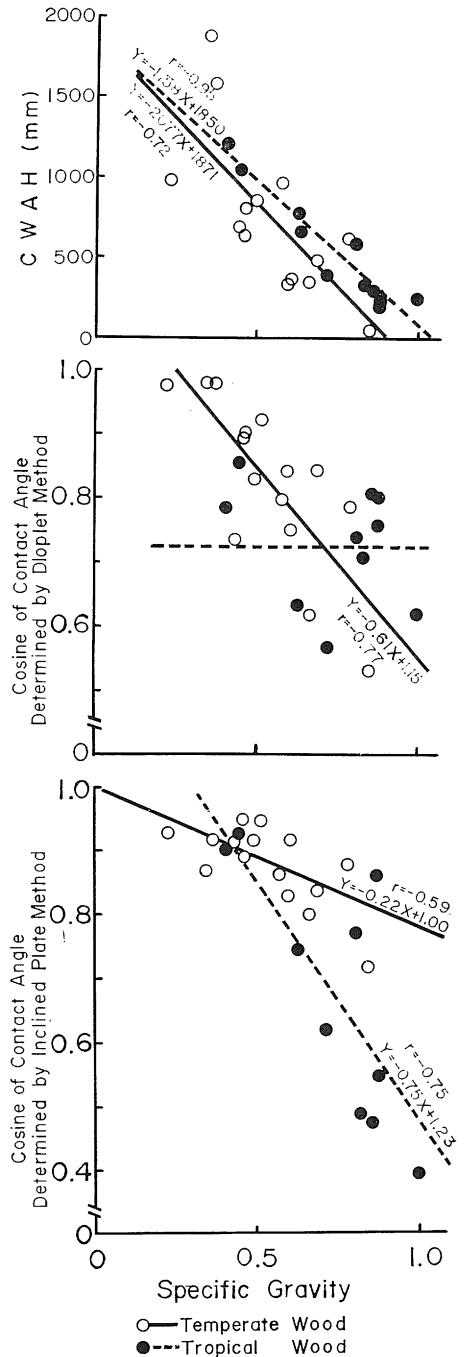


Fig. 4 Correlation between specific gravity and wettability determined by method of capillary rise, droplet and inclined plate.

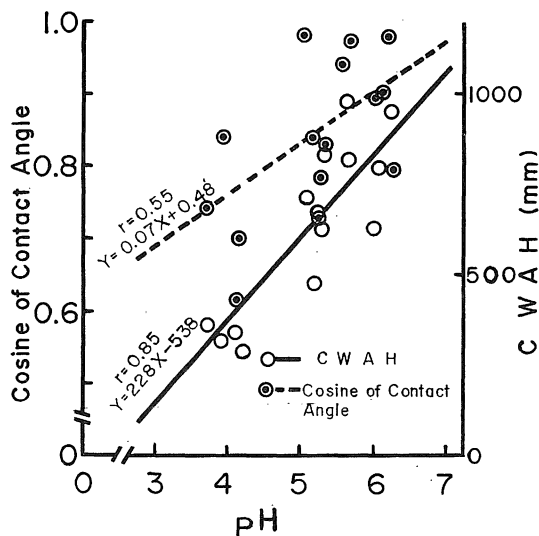


Fig. 5 Correlation between pH value and wettability determined by method of capillary rise and droplet for temperate woods.

みられなかった。ぬれや接着力は単一因子のみの影響でなく数多くの因子が複雑に相互に作用しており、これらを明らかにするためには種々の方向から検討しなければならないと考えられるので今後検討していく必要がある。

4 要 約

被着材の諸性質が衝撃接着力におよぼす影響について検討するため、温帯産材15樹種と熱帯産材11樹種について、比重、pH およびぬれとユリア樹脂接着剤の衝撃接着力との関係を明らかにした。またぬれの測定には毛管上昇法、傾板法および液滴法を用い、これらの値と比重および pH との相関関係についても検討した。

これらの実験結果より、各々の関係について相関係数を求めて r 検定の結果 1% および 5% レベルで有意な相関が認められた場合は、回帰直線式を求めてこの関係をさらに明らかにした。

これらの分析結果を要約すれば次のようである。

1) 温帯産材については比重が大きくなれば衝撃接着

力は高くなり、また pH が低いほど衝撃接着力は高くなる。一方熱帯産材では比重、pH とともに衝撃接着力との関係は無意であった。

2) ぬれと衝撃接着力の関係は熱帯産材で傾板法の場合のみ 5% レベルで有意な相関関係があり、ぬれのよい方が接着力は高かった。

3) 衝撃接着力試験による場合、その値は接着層の性質の影響を主として受けて被着材の影響が比較的少なく、凝集破壊に近い状態を示すものと思われる。これに対して一般に静的ブロックせん断接着力試験の値は被着材の影響が大きい。

4) ぬれはほとんどの場合、比重が大きくなるにつれて悪くなる。また温帯産材のぬれは毛管上昇法および液滴法の場合に pH が低い材ほど悪くなる。

引用文献

1. 浅野信治：木材工業 22：318～323, 1967
2. BODIG, J.: For. Prod. J. 12: 265～270, 1962
3. FREEMAN, M. A.: For. Prod. J. 9: 451～458, 1959
4. 後藤輝男・作野友康・往西弘次：島根農科大学研究報告 第15号, A-2, 53～60, 1967
5. 後藤輝男・作野友康：島根大学農学部研究報告 第1号, 104～109, 1967
6. 後藤輝男・作野友康・篠原悌三：第5回接着研究発表会講演要旨集 p.5～6, 1967
7. 梶田茂編：木材工学 1967 養賢堂, 東京 p.471
8. 北原覚一：木材物理 1966 森北出版, 東京 p.178
9. 高分子学会編：接着理論と応用 1965 丸善, 東京 p.320
10. 半井勇三：木材の接着と接着剤 1963 森北出版, 東京 p.9
11. 作野友康・後藤輝男：日本接着協会誌 3: 339～343, 1967
12. 作野友康・後藤輝男：日本接着協会誌 1: 389～396, 1965
13. 高橋 徹・藤田晋輔：木材学会誌 15: 140～145, 1969

Summary

In this paper, the effects of various properties of adherend on the impact shear strength are investigated.

The correlation between the impact shear strength and specific gravity, pH value or

wettability was determined. Also the correlation between wettability measured by three methods and specific gravity or pH value was determined.

As experimental materials, 15 species from the temperate zone and 11 species from the tropical zone were used. These woods were glued with urea-formaldehyde resin adhesive and the glued woods were tested for the impact shear according to ASTM D 950-54. The wettability for each wood was determined by the method of capillary rise, inclined plate and droplet.

The coefficient of correlations for each case was calculated from experimental results. Then the regression line was yielded by regression analysis only when the significant correlation at the five percent level or better was recognized. If the correlation was not significant, it was either not present or a horizontal line was drawn through the mean value. The results analysis were presented in Figures 1-5.

The following conclusions may be drawn from the results of analysis :

(1) The impact shear strength increased along with the increasing of specific gravity or the decreasing of pH value in the temperate woods. In the tropical woods, the correlation between the impact shear strength and specific gravity or pH value was not significant.

(2) In the tropical woods, the correlation between the impact shear strength and wettability was significant in the case of the inclined plate method, therefore, the impact shear strength increased along with the increasing of cosine of contact angle.

(3) In the impact shear test of glued wood, the impact shear strength affects mainly the properties (thickness, brittleness, degree of cure etc.) of glue line, while the effects of adherend are slight.

(4) In many cases, the wettability decreased along with the increasing of specific gravity. For the temperate woods, the wettability when determined by method of capillary rise and droplet decreased along with the decreasing of pH value.