

金属と木材の接着性 (第2報)[†]

金属—木材接着におけるエポキシ樹脂の耐水接着性の向上^{*1}

佐野敦子^{*2}, ピルヴ・チピリアン^{*2}, 山田雅章^{*2},
滝 欽二^{*2}, 吉田弥明^{*2}

Bondability of Metal to Wood Joints II.[†] Improvement of the water resistance of epoxy resin in metal-wood joints^{*1}

Atsuko SANO^{*2}, Ciprian PIRVU^{*2}, Masaaki YAMADA^{*2},
Kinji TAKI^{*2} and Hiroaki YOSHIDA^{*2}

To improve the water resistance of metal to wood glued joints, the effect of a waterproofing treatment was investigated, using epoxy resin adhesives that cure at room temperature. In the case of metal to wood joints, water penetrated the wood and the glue-line. It was impossible to inhibit water penetration even for the specimens previously covered with sealant or staining oil, probably because the water-repellent cover was insufficient. When an isocyanate compound was used as a primer to retard the water penetration of the epoxy glue-line, not only the dry bond strength but also the wet bond strength improved to a certain extent.

A multiple glue-line system, which tries to prevent the penetration of water into the epoxy glue-line, using a phenol formaldehyde (PF) resin sheet between the metal and the wood, was designed. In this case, a resorcinol formaldehyde adhesive was used for gluing the PF resin sheet and the wood, and an epoxy resin adhesive was used for gluing the PF resin sheet and the metal. The results after water-soaking and cyclic vacuum pressure soaking-drying (VPSD) test showed approximately the same bond strength as compared with the normal state. Thickness of the PF resin sheet and the applied gluing pressure had little effect on improvement of performance. On the basis of results obtained for water penetrability of PF resin sheet, it is concluded that water absorption of the epoxy glue-line was delayed by the PF resin sheet layer.

Keywords: metal-wood joint, water resistance, epoxy resin, PF resin sheet.

常温硬化エポキシ接着剤による金属—木材接着の耐水性向上を目的として、接着層への防水対策として3方法について検討した。接着層への水の浸入は、木材の外周から木材内部へ、さらに接着層へと進むと考えられる。そこで防水剤としてシーラントまたはオイルステインを木材部分に塗布し、木材内部への水の浸入防止を試みたが、これらの防水剤の効果は十分ではなく、耐水性を向上させることはできなかった。木材内部から接着層への侵入を防止するため、プライマーとしてイソシアネート化合物を使用した場合は、ある程度耐水性が向上した。一方、金属—木材間にPF樹脂板を挿入して、エポキシ接着層への水の浸入防止を図った樹脂板挿入接着では、接着強さの低下はほとんど認められなかった。さらに樹脂板の厚さ、圧縮圧を変化させて試験を行

[†] Report I: This journal 44(3), 192-198 (1998).

^{*1} Received August 18, 1998; accepted November 30, 1998. 本研究の一部は第48回日本木材学会大会(1998年4月, 静岡)において発表した。

^{*2} 静岡大学農学部 Faculty of Agriculture, Shizuoka University, Shizuoka 422-8529

った結果、すべての条件において優れた耐水接着性を示した。樹脂板は木材側からエポキシ接着層への水の浸入を遅らせていると考えられる。

1. 緒 言

大規模木構造の問題点とされている接合部の改善策として従来の鋼板、ボルト等による機械的接合に接着剤を併用した構（工）法¹⁾が注目されている。このような状況の中で、常温硬化タイプのエポキシ接着剤は、金属-木材接着において高い評価を得ている。前報²⁾では、木質構造用エポキシ接着剤を用いた金属と木材の接着が、水分の影響を大きく受けて接着強さを低下させること、また、硬化エポキシ樹脂自体の強度性能も水分の影響を大きく受けることを報告した。

金属と木材の接着において水は木材の外周から内部へ、さらに接着層へと浸入し、最終的に金属側の接着界面に達すると推測される。さらにこれとは別に、接着層の縁からも侵入する。一般に接着層は、吸水膨潤するとひずみを発生させるため、接着剤の吸水率の増加に伴い接着強さが低減することが報告されている³⁻⁵⁾。これらでは、耐水接着性を向上させるには、接着層の吸水率を小さくすることが必要であるとしている。筆者らは、耐水性の向上が見込まれる種々の接着剤を用いて金属と木材の接着を行ったが、十分な結果は得られなかった。

そこで、金属と木材の耐水接着性を向上させるため、接着層への防水対策を考案し、その効果について検討したので報告する。

2. 実 験

2.1 接着性能試験

接着性能試験には、Fig. 1 に示すWシングルラップ試験片を用いた。単板積層材（LVL）は含水率8.6%のDouglas-fir 6ply（キークック⁶⁾製）を用いた。金属にはサンドブラスト処理ステンレス鋼材または無処理ステンレス鋼材を使用し、これらは接着直前にアセトンで脱脂した。エポキシ樹脂接着剤（大日本インキ化学工業⁷⁾製、エピコンR-114A/エピコンR-140B(100 phr または50 phr)）を塗布量180 g/m²で両面塗布し、4 kgf/cm²で20時間圧縮した後、20°C65% RHで1週間以上養生した。接着試験は、常態および24時間室温水浸せき処理後、減圧加圧処理（VPSD 処理、室温水浸せき→減圧635 mmHg, 5 min → 加圧5.2±0.3 kgf/cm², 1 h の2回繰り返して乾燥40±3°C/24 h）後行った。容量10 tf の万能試験機を利用し、加力点を上下とも

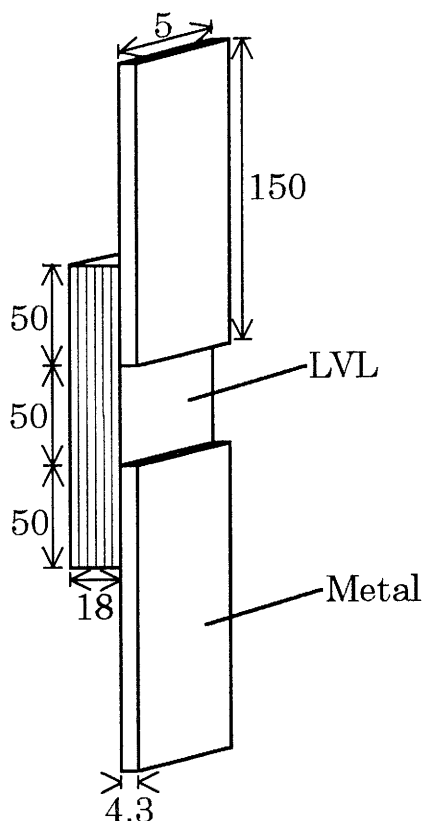


Fig. 1. Dimensions of W single-lap specimen for adhesion tests (unit: mm).

くさび状のグリップで固定して、クロスヘッドスピード1 mm/min で引張せん断試験を行った。なお、上部グリップはユニバーサルジョイントを介してロードセルと連結させた。

2.2 耐水接着性の改善

試験片のシールは、シリコン系シーラント（セメダイン⁸⁾製、シリコンシーラント）とオイルステイン（和信化学工業⁹⁾製、ガードラック）を使用した。シーラントはFig. 2 に図示するとおり、I はLVLの木口面のみ、II はLVLの木口面と接着部のLVLの木口面と接着部のLVLの側面と接着層の縁を覆うように、接着層への水の浸入が予想される部位に塗布した。オイルステインは試験片のLVLの部分に塗布した後24時間乾燥（20°C65% RH）を2回繰り返した。プライマーには水性高分子イソシアネート樹脂接着剤の

架橋剤であるイソシアネート化合物（光洋産業㈱製，AJ-1）を使用した。プライマーは金属と LVL の両接着面に塗布後十分に乾燥（20°C65% RH）させた。

金属と LVL 間に挿入材としてフェノール樹脂板（PF 樹脂板，アイカ工業㈱製，比重1.6）を入れた樹脂板挿入接着では，金属と PF 樹脂板間の接着にはエポキシ樹脂接着剤，PF 樹脂板と LVL の接着

にはレゾルシノール樹脂接着剤（大日本インキ化学工業㈱，フェノライト 6000/TD473(15 phr)）を使用した（Fig. 3）。実験に用いた PF 樹脂板は，一般にメラミン樹脂板の裏打ち材などとして使用されるフェノールバッカーと呼ばれるもので，表面はサンディング処理を施してある。上記の樹脂板の接着は，金属と PF 樹脂板，PF 樹脂板と LVL を同時に接着する方法と，まず金属と PF 樹脂板を接着し，続いて PF 樹脂板と LVL を接着する 2 段階で接着する方法がある。前者の場合，圧縮圧は 4 kgf/cm² とし，後者では金属と PF 樹脂板との接着は 4 kgf/cm²，PF 樹脂板と LVL との接着は 2, 4, 8 kgf/cm² と変化させて行った。本研究では接着作業の簡便性などの理由により，同時接着法から 2 段階接着法に移行した。PF 樹脂板ははじめ厚さ 0.8 mm のものを使用した，比較のため 0.5 mm のものを使った試験も行った。

これらの防水処理は，それぞれの被着材，接着剤，試験片数とともに Table 1 に示した。

2.3 PF 樹脂板の水浸透性の評価

試験片は，50 mm（繊維方向）×50 mm（半径方向）×10 mm（接線方向）のマカバ（気乾比重0.67 含水率9.7%）のまさ目面に 50 mm×50 mm の PF 樹脂板をレゾルシノール樹脂接着剤で接着して作製した。実験に使用した PF 樹脂板の厚さは 0.8 mm である。PF 樹脂板を接着したまさ目面から接線方向に水が浸透するように，残りの 5 面（木口面と板目面ともう一方のまさ目面）をシリコン系シーラントでシールし，室温水に浸せきして PF 樹脂板接着面からの吸水による試験片の重量増加率を測定した。比較のため，PF 樹脂板を接着せず一方のまさ目面にレゾルシノール接着剤のみを塗布して残り 5 面をシールしたもの，吸水する面以外の 5 面をシールし，レゾルシノール接着剤を塗布せず木材面から直接吸水するようにしたものについて同様の試験を行った。

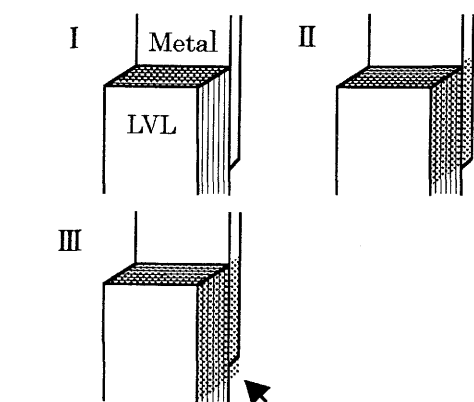


Fig. 2. Specimens covered with sealant (shadow area).

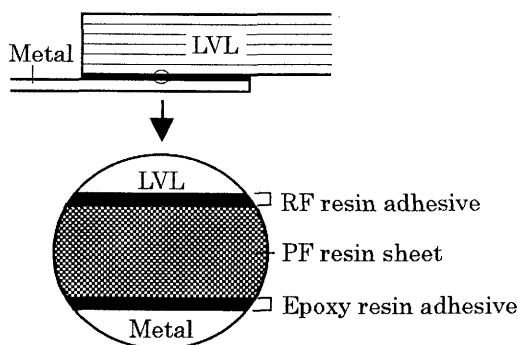


Fig. 3. Diagram of multiple glue-line system.

Table 1. Specimens for tests.

Types	Materials			Waterproof treatments			Number of specimens
	LVL*	Metal	Adhesives	Seal	Primer	PF resin sheet	
Untreated	Douglas-fir	Sandblasted stainless steel	Epoxy resin (100/100)**	—	—	—	15
	Douglas-fir	Stainless steel	Epoxy resin (100/50)**	—	—	—	6
Sealant	Douglas-fir	Sandblasted stainless steel	Epoxy resin (100/100)**	○	—	—	15
Staining oil	Douglas-fir	Sandblasted stainless steel	Epoxy resin (100/100)**	○	—	—	6
Primer	Douglas-fir	Stainless steel	Epoxy resin (100/50)**	—	○	—	4
PF sheet	Douglas-fir	Stainless steel	Epoxy resin (100/50)**	—	—	○	90

* Douglas-fir; *Pseudotsuga menziesii* Franco

** This is the ratio of curing agent to base resin.

3. 結果と考察

3.1 耐水接着性

シーラントでシールした試験片の24時間室温水浸せき後の接着強さを Fig. 4 に示す。シーラント塗布面の増加に伴い、耐水接着強さが高くなる傾向が認められた。水浸せきした試験片ではシーラントを塗布していない無処理、LVL の木口面だけに塗布したシーラント I では接着破壊面への水の浸入が認められ、金属とエポキシ接着層の界面ではなく離れている部分もみられた。一方、LVL の木口面と側面、さらに接着層の縁を覆ったシーラント II、シーラント III では、破壊面は常態試験片と同様に乾燥しており、ほとんどが LVL の木材部分で破壊した。したがって、シーラントの防水効果によりある程度耐水接着性の改善が可能であると考えられる。

前報では、ステンレス鋼とマカバを用いて、接着面積を $25 \times 10 \text{ mm}$ としてシングルラップ試験片を作製し、24時間の室温水浸せき処理後接着試験を行った。その結果はすべての試験片がステンレス鋼とエポキシ接着層の界面ではなく離した。これに対して、今回の実験では24時間浸せきしても接着強さは低下したものの、はく離には至っていない。この理由としてまず、Wシングルラップ試験片の接着面積は 25 cm^2 であり、前報におけるシングルラップ試

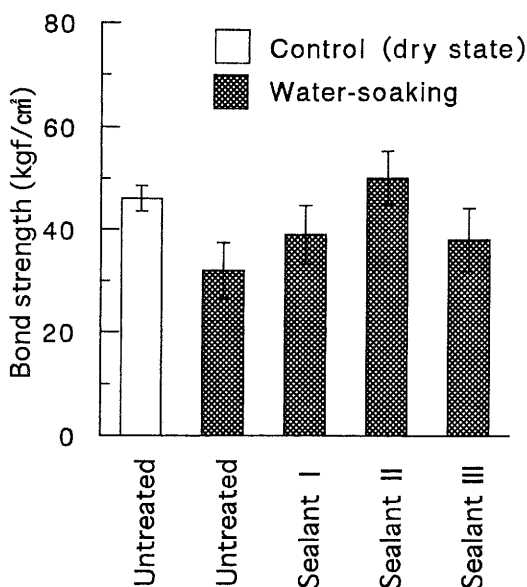


Fig. 4. Effects of sealed area on bond strength after 24 hr water-soaking.

Notes: Sealant I-II: See Fig. 2.

—: Average \pm one standard deviation.

験片の接着面積 2.5 cm^2 の約10倍と大きくなっていることが挙げられる。接着面積が大きくなると、接着層の縁から浸入する水が中心部まで進むのにより多くの時間を必要とする。つぎに LVL 内のフェノール樹脂接着層によりエポキシ接着層への水の浸入が妨げられたことが考えられる。さらにこの LVL の製造に使用されているフェノール樹脂接着層により LVL の吸水膨潤が抑えられることも考えられる。木材への吸水とそれに伴う膨潤は、もう一方の被着体である金属が吸水も膨潤もしないので、エポキシ接着層に応力を生じさせ、接着強さを低下させる原因となる。

Fig. 5 にはシーラントまたはオイルステインによりシールした試験片の VPSD 処理後の接着強さを示した。VPSD 処理試験は、一般に構造用集成材

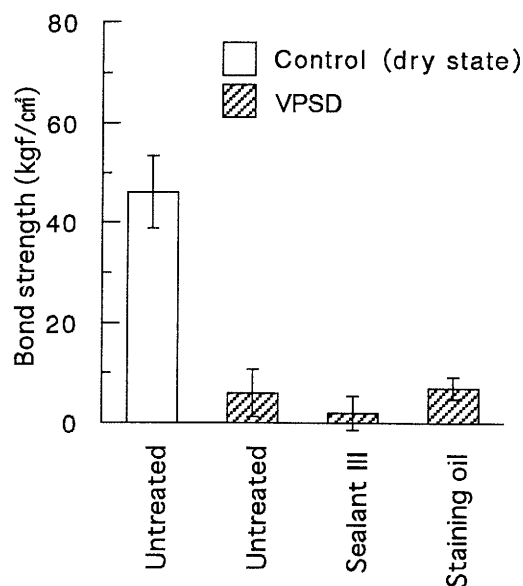


Fig. 5. Bond strength of various sealed specimens after VPSD treatment.

Note: —: Average \pm one standard deviation.

Table 2. Changes of water absorption of LVLs.

Water-repellent treatment	Water uptake (%)	
	Water-soaking ^{a)}	VPS ^{b)}
Untreated	27	87
Staining oil	19	83

^{a)} Soaking in water at room temperature for 24 hours.

^{b)} Soaking in water at room temperature and two cycles of vacuum treatment (635 mmHg for 5 minutes) and pressure treatment ($5.2 \pm 0.5 \text{ kgf/cm}^2$ for 1 hour) and finally 24 hours drying ($40 \pm 3^\circ\text{C}$).

の耐水接着試験に利用される方法の1つである。VPSD処理後はいずれの防水処理をしたものでも接着強さが大きく低下し、破壊はすべて金属とエポキシ接着層の界面で起こった。

そこでシーラントに比べてやや耐水接着性の良かったオイルステインの防水効果を知るため、オイルステインを表面に塗布したLVLの吸水量を測定した(Table 2)。24時間室温水浸せき後では吸水量が19~27%であったが、VPSD処理後では85%前後と大きく増大した。LVLではオイルステイン処理をしても無処理のものに比べて吸水量は4~8%抑制されるのみであった。

前報では、吸水後の乾燥によるエポキシ樹脂の接着強さの回復があることを報告したが、本研究では接着強さの回復は認められなかった。接着強さの回復は、界面の結合力が弱められた部分で起こる⁶⁾とされているが、VPSD処理によるLVLの吸水とそれに付随して起こる接着層の吸水によりエポキシ樹脂の凝集力が低下して、接着界面の結合は完全に破壊されたものと考えられる。

以上のことからシーラント、オイルステイン処理により試験片の表面部から接着層への水の浸入を止めることは難しいと考えられたので、LVLの被着面にプライマーを直接塗布することで、LVLからエポキシ接着層への水の浸入防止を試みた。さらに、LVLからエポキシ接着層を通して金属側の接着界面に移動する水を、接着層にPF樹脂板を挿入して止めることを試みた。これらの結果をFig. 6に示した。プライマーは鋼板では一般に使用されて

いるイソシアネート化合物(本研究では水性高分子イソシアネート接着剤の架橋剤を使用)⁷⁾を使用し、金属とLVLの両接着面に塗布した後十分に乾燥させた。イソシアネート化合物は反応性が高く、プライマーとして利用される場合、接着剤と被着材間の接着性向上が期待されるが、本実験においてはプライマー塗布後1週間以上経過した後に接着作業を行ったため、プライマー自身による表面の活性はほとんど失われていると推察される。したがってこの場合、LVLの接着面を被覆しLVL内部からの水の浸出を防止する効果のみが期待されたが、プライマーを塗布することにより、耐水接着性だけでなく、常態接着性の向上も認められた。これは無処理の常態試験片が主にLVLの木材部分で破壊しているのに対し、プライマーを塗布した常態試験片がエポキシ接着層の凝集破壊であったことから、脆弱なLVL表面がプライマーによって強化されたと考えられる。室温水浸せき処理後も高い接着強さを示したが、エポキシ接着層で凝集破壊しておりLVL側の接着界面まで水の浸入が認められた。このことからプライマーによる耐水性向上には限界があり、長時間水に浸せきした場合は、前述のシーラント、オイルステインの場合と同様に金属側の接着界面まで水が浸入すると推察される。しかしながら、プライマーの選択には多くの組み合わせが考えられるので、更なる検討が必要である。

樹脂板挿入接着は、LVL側から浸入して金属側の界面に至る水をPF樹脂板によって止めようと考えたものである。LVLとPF樹脂板の接着には耐水性のあるレゾルシノール接着剤⁸⁾を使用した。室温水浸せき後の接着強さの低下は認められず、常態、水浸せき処理後ともにLVLの木材部分で破壊した。

樹脂板挿入接着については、さらにPF樹脂板の厚さを変え、またPF樹脂板の接着方法を、金属とPF樹脂板、PF樹脂板とLVLを同時に接着する同時接着法から、まず金属とPF樹脂板を接着し、続いてPF樹脂板とLVLを接着する2段階接着法に変更し、LVLとPF樹脂板をレゾルシノール接着剤で接着する際の圧縮圧を2, 4, 8 kgf/cm²と変化させて試験を行った。Fig. 7にはこれらの結果を示す。2段階で接着した場合も同時接着法の場合と同様に、常態、水浸せき処理後、VPSD処理後ともにほとんどがLVLの木材部分で破壊した。PF樹脂板の厚さは常態、耐水ともに、0.8 mmよりも0.5 mmのほうがわずかに高い接着強さを示す傾向が認められた。LVLとPF樹脂板をレゾルシノール

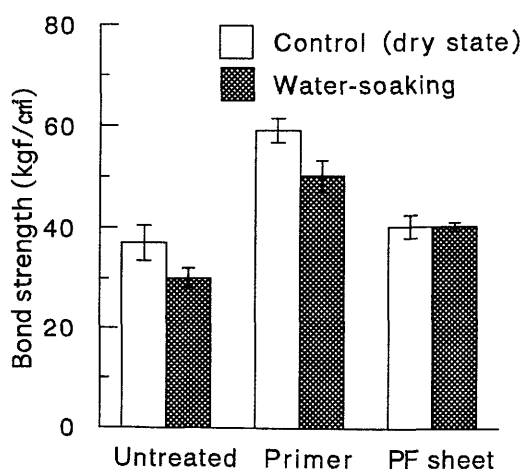
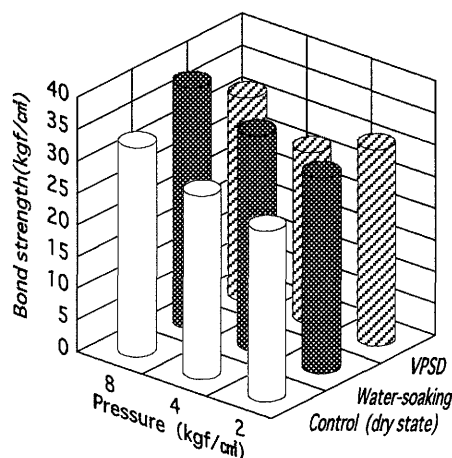
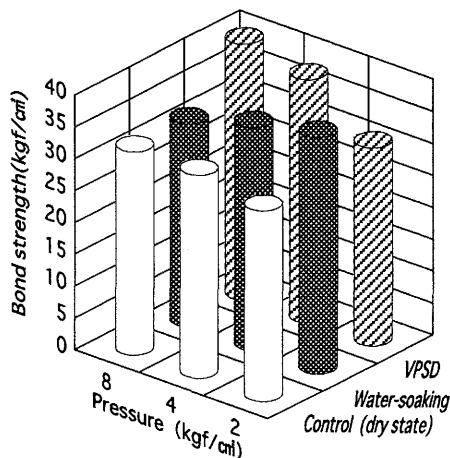


Fig. 6. Effect of waterproof treatments on bond strength.

Note: —: Average \pm one standard deviation.



(a) Thickness of PF resin sheet : 0.8mm



(b) Thickness of PF resin sheet : 0.5mm

Fig. 7. Bond strength at various pressing pressures after treatments.

(a) Thickness of PF resin sheet : 0.8 mm

(b) Thickness of PF resin sheet : 0.5 mm

ル接着剤で接着するときの圧縮圧は、PF 樹脂板の厚さが0.8 mm の場合、0.5 mm の場合、いずれも高い方が優れた結果を示す傾向が認められた。圧縮圧が高すぎると、PF 樹脂板の損傷が懸念されたが、試験後の破壊面からはそのような現象は認められなかった。

3.2 PF 樹脂板の水浸透性

樹脂板挿入接着は安定した耐水接着性を示したが、PF 樹脂板の効果を明らかにするため、PF 板の水透過性を調べた (Fig. 8)。吸水速度は、木材のみ (■) > 木材にレゾルシノール樹脂を塗布 (△) > 木材にレゾルシノール樹脂で PF 板を接着 (●) の順であった。このことは樹脂板挿入接着では、水浸せき処理したとき、PF 樹脂板とレゾルシノール接着層によって LVL 側からエポキシ接着層側へ水が浸入するのを遅らせていることを示している。

上述のように樹脂板挿入接着では、被着材の一方が水を通さない金属であり、もう一方は水を通しにくい PF 樹脂板となる。この場合、エポキシ接着部への水の浸入は接着層の縁からのみとなり、接着面積が大きいほど中心部まで水が到達するのに多くの時間を要すると考えられる。本研究では、接着面積を50×50 mm としたが、実用にあたっては、接着面積はさらに大きくなる。したがって、樹脂板挿入接着による金属と木材の接着の耐水接着性は、24時間程度の冠水を受けても実用上問題ないと考えられ

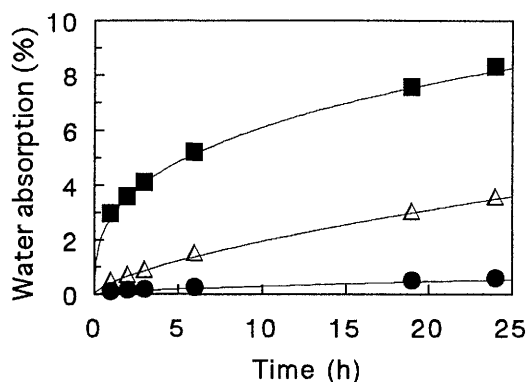


Fig. 8. Relative weight changes in ■, reference; △, RF resin; ●, PF resin sheet in water-soaking test.

る。

4. 結 論

金属と木材の耐水接着性を向上させるため、接着層への防水処理を施した金属と LVL の W シングルラップ試験片を作製してその効果について検討した。得られた結果は以下のとおりである。

1) シーラント、オイルステインなどの外部からの防水処理の効果は十分でなく、室温水浸せき後は耐水接着性の向上が認められたが、VPSD 処理後は LVL が多量に吸水し、接着強さを著しく低下させ

た。

2) プライマーはLVL被着面を強化させ、優れた常態接着性を示した。室温水浸せき後も接着強さの大きな低下はなく、ある程度は耐水接着性が改善された。

3) 樹脂板挿入接着は、VPSD処理後もほとんど接着強さが低下せず優れた耐水接着性を示した。PF樹脂板は完全に水を遮るのではなく、LVL側から浸入した水がエポキシ接着層へ進むのを著しく遅らせる効果がある。

4) PF樹脂板の厚さは、0.8 mmよりも0.5 mmのほうが常態、耐水ともに高い接着強さを示す傾向が認められた。LVLとPF樹脂板をレゾルシノール接着剤で接着するときの圧縮圧は、高い方が優れた結果を示す傾向が認められた。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、供試材料を提供して

いただいたアイカ工業㈱、キーテック㈱、大日本インキ化学工業㈱に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) 手塚 升, 山田伸典: 木材工業 49(6), 269-273 (1994).
- 2) 佐野敦子, 山田千香子, 滝 欽二, 吉田弥明: 木材学会誌 44(3), 192-198 (1998).
- 3) 原賀康介: “接着応用技術”, 日経技術図書, 1991, pp. 529-532.
- 4) Cornyn, J.: *J. Adhesion* 29, 121-130 (1989).
- 5) 元起 巖: 接着の技術 14(3), 25-29 (1994).
- 6) 原賀康介: “接着応用技術”, 日経技術図書, 1991, pp. 532-534.
- 7) 安田直樹: “接着ハンドブック”, 日本接着学会編, 日刊工業新聞社, 1996, p. 739.
- 8) 中村孝一: “構造用接着剤”, 中村孝一編, シーエムシー, 1984, pp. 88-93.