

氏名(本国籍)	劉昌男(中華人民共和国)
学位の種類	博士(農学)
学位記番号	農博甲第478号
学位授与年月日	平成20年3月13日
学位授与の要件	学位規則第3条第1項該当
研究科及び専攻	連合農学研究科 生物資源科学専攻
研究指導を受けた大学	静岡大学
学位論文題目	集成材用1液湿気硬化型ポリウレタン系接着剤の接着性に関する研究
審査委員会	主査 静岡大学 教授 滝 欽 二 副査 静岡大学 教授 祖父江 信 夫 副査 岐阜大学 教授 篠 田 善 彦 副査 信州大学 教授 徳 本 守 彦

### 論文の内容の要旨

ヨーロッパとくにスイスではここ10年ほど集成材の製造に使用されてきているが、我が国ではほとんど実績のない集成材用1液湿気硬化型ポリウレタン系接着剤(PU)をとりあげ、日本の農林規格(JAS)および日本工業規格(JIS)に基づいて接着性能試験や耐水性能、接着強さの温度依存性、さらに乾燥・水中時のPUの動的粘弾性等の解明を検討した。

PUは粘度が高いため、一般に行われるローラー塗布法とプラスチック容器から縛りだして木材表面に塗布するリボン状塗布法を比較し、リボン状塗布でもローラー塗布法とほとんどに同等の接着性能を有することを確認し、以後の実験はPUはリボン状塗布で行った。その結果2枚合わせ集成材を作製し、接着性能試験を行い、次のことが明らかとなった。中密度のヒノキ、低密度のスギ集成材におけるせん断接着性能については、API、RFと同等の性能であり、ヒノキ5枚合わせ集成材のはく離試験でもはく離率が5%以下で、良好な接着性能を示し、構造用集成材JAS規格を満たす。

密度が0.57g/cm<sup>3</sup>のベイマツ集成材においては1週間養生でも、常態ではAPI、RFとほぼ同等の性能を示した。しかし、促進劣化処理後の接着性能はAPIとほぼ同じ性能を有するが、RFに及ばなかった。

またマカンバのPUクロスラップ引張り強さはラップジョイント引張りせん断値の約1/5を示し、従来の接着剤(1/4-1/3)に比べて低い傾向が見られた。高密度(0.75g/cm<sup>3</sup>)のマカンバ集成材においては、常態で2ヶ月以上養生するとせん断接着性能はJAS規格を満たすが、促進劣化処理後では木部破断率がほぼ0%となった。また、マカンバ5枚合わせ集成材のはく離率は70%以上にも達した。一方、PU接着剤フィルム中のNCO基は1日間放置することによりかなり消費されるが、2ヶ月経過後でも未反応のNCO基が存在していることを確認した。

次に PU の動的粘弾性と広い温度領域にわたる木材接着強さとを測定し、API、RF と比較して物性と接着性との関係について検討した結果、乾燥 PU フィルムの広い温度領域にわたる物性において、E' 値は 0~170℃の間の低下は緩やかであり、また明瞭なガラス転移点を有していないことを確認した。ただし、水中で粘弾性測定を行った研究例は見られなく、初めて行った PU の物性は、常温付近での E' は全乾の E' に比べて 1/2 程度まで低下し、80℃付近では全乾の約 1/6 の値を示すことを明らかにした。

PU におけるせん断接着強さの温度依存性の傾向は API とほぼ同等であるが、常温以上の温度域では RF よりも全体的に約 17%程度低い傾向を示した。

圧縮圧を高くした場合および高周波加熱により接着したとき、PU は 1 週間養生でも常態で JAS 規格を満たした。VPS、CB 等各促進処理後のブロックせん断試験においてマカンバ集成材の木破率が発現しにくかった原因として、接着層が水分によって膨張することが影響したと考えられる。

非ホルムアルデヒド系である本接着剤の PU からのホルムアルデヒドおよび VOC 放散量測定試験を行った結果、ホルムアルデヒドの放散は全くなく、カルボニル 13 化合物の放散は認められなかった。しかし接着剤中の溶剤と考えられるテトラデカン、ペンタデカン、酢酸エチルなどの放散が認められた。

以上のように本研究に用いた集成材用 PU は広葉樹のマカンバにおいては、接着性能にやや難点が認められるが、一般的に集成材に用いられる針葉樹においては RF、API とほぼ同等の接着性能を示し、構造用集成材用接着剤として、今後日本での普及が期待される。

## 審 査 結 果 の 要 旨

集成材用 1 液湿気硬化型ポリウレタン系接着剤 (PU) の接着性能や耐水性能、接着強さの温度依存性ならびに乾燥・水中時の PU の動的粘弾性等について研究した内容を要約すると、以下のようである。

PU をリボン状塗布法によって 2 枚合わせ集成材を作製し、接着性能試験を行い、次のことが明らかとなった。中密度のヒノキ、低密度のスギ集成材におけるせん断接着性能については、API、RF と同等の性能であり、ヒノキ 5 枚合わせ集成材のはく離試験でもはく離率が 5%以下で、良好な接着性能を示し、構造用集成材 JAS 規格を満たす。

密度が 0.57g/cm<sup>3</sup> のベイマツ集成材においては 1 週間養生でも、常態では API、RF とほぼ同等の性能を示した。しかし、促進劣化処理後の接着性能は API とほぼ同じ性能を有するが、RF に及ばなかった。

またマカンバの PU クロスラップ引張り強さはラップジョイント引張りせん断値の約 1/5 を示し、従来の接着剤 (1/4・1/3) に比べて低い傾向が見られた。高密度(0.75g/cm<sup>3</sup>)のマカンバ集成材においては、常態で 2 ヶ月以上養生するとせん断接着性能は JAS 規格を満たすが、促進劣化処理後では木部破断率がほぼ 0%となった。また、マカンバ 5 枚合わせ集成材のはく離率は 70%以上にも達した。一方、PU 接着剤フィルム中の NCO 基は 1 日間放置することによりかなり消費されるが、2 ヶ月経過後でも未反応の NCO 基が存在していることを確認した。

次に PU の動的粘弾性と広い温度領域にわたる木材接着強さとを測定し、API、RF と比較して物性と接着性との関係について検討した結果、乾燥 PU フィルムの広い温度領域にわたる物性において、E' 値は 0~170℃の間の低下は緩やかであり、また明瞭なガラ

ス転移点を有していないことを確認した。ただし、水中で粘弾性測定を行った研究例は見られなく、初めて行った PU の物性は、常温付近での E' は全乾の E' に比べて 1/2 程度まで低下し、80℃付近では全乾の約 1/6 の値を示すことを明らかにした。

PU におけるせん断接着強さの温度依存性の傾向は API とほぼ同等であるが、常温以上の温度域では RF よりも全体的に約 17%程度低い傾向を示した。

圧縮圧を高くした場合および高周波加熱により接着したとき、PU は 1 週間養生でも常態で JAS 規格を満たした。VPS、CB 等各促進処理後のブロックせん断試験においてマカンバ集成材の木破率が発現しにくかった原因として、接着層が水分によって膨張することが影響したと考えられる。

非ホルムアルデヒド系である本接着剤の PU からのホルムアルデヒドおよび VOC 放散量測定試験を行った結果、ホルムアルデヒドの放散は全くなく、カルボニル 13 化合物の放散は認められなかった。しかし接着剤中の溶剤と考えられるテトラデカン、ペンタデカン、酢酸エチルなどの放散が認められた。

以上のように本研究に用いた集成材用 PU は広葉樹のマカンバにおいては、接着性能にやや難点が認められるが、一般的に集成材に用いられる針葉樹においては RF、API とほぼ同等の接着性能を示し、構造用集成材用接着剤として、今後日本での普及が期待される。

以上について、審査委員全員一致で本論文が岐阜大学大学院連合農学研究科の学位論文として十分価値あるものと認めた。

#### 「学位論文の基礎となる学術論文」

1. 劉 昌男、エカ ムリヤ アラムシャ、山田 雅章、滝 欽二：集成材用 1 液湿気硬化型ポリウレタン接着剤の接着性能(第 1 報)、日本接着学会誌 43、260(2007)
2. 劉 昌男、エカ ムリヤ アラムシャ、山田 雅章、滝 欽二：集成材用 1 液湿気硬化型ポリウレタン接着剤の接着性能(第 2 報)、—接着強さの温度依存性と耐水性能—日本接着学会誌、43、313 (2007)