

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05759

研究課題名（和文）接着層による振動制御特性を有する新規木質材料の開発

研究課題名（英文）Development of new wooden materials with vibration control characteristics by adhesive layer

研究代表者

山田 雅章（Yamada, Masaaki）

静岡大学・農学部・教授

研究者番号：20293615

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：接着層を接着の機能だけでなく、振動制御層として利用する今までにない新規木質材料の創出を目指して、振動減衰に優れた樹脂や反応性ポリマー、セルロースナノファイバーなどを配合して接着剤の物性を制御し新規木質材料の開発を試みた。その結果、作製したパーティクルボード（PB）の損失係数と接着剤の損失係数の間には広い周波数域に渡って高い相関があること、接着剤の動的粘弾性からPBの損失係数を高い精度で予測できる可能性があること、これらに架橋構造やCNFを添加することで振動吸収性能と接着性能の両立した木質材料を開発することが可能であること等が明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

接着する目的だけでなく高分子としての特性を活かした何らかの機能を有する機能性ポリマーとして接着層を使用することが考えられ、ここでは接着層を主として振動減衰の目的で使用することとした。使用する接着剤が振動へ及ぼす影響を詳細に調査した例はこれまでに少ないだけでなく、振動抑制と接着性能を同時に向上させる試みは無く学術的意義は非常に高い。また、集合・個建に限らず、住宅における振動騒音の問題は後を絶たず、より振動減衰能の高い新規素材の登場が待たれている。集合住宅での騒音問題やリモートワークにおける住宅騒音問題を解決するためにも、この技術が実用化されれば社会的意義は非常に高いと考えられる。

研究成果の概要（英文）：This research aims to create a new wood-based material that uses the adhesive layer not only as an adhesive function but also as a vibration control layer. An adhesive was prepared by mixing a resin having excellent vibration damping, a highly reactive polymer, and cellulose nanofibers with the adhesive. As a result, there was a high correlation between the loss coefficient of the produced particle board and the loss coefficient of the adhesive over a wide frequency range. The PB loss coefficient could be predicted with high accuracy from the dynamic viscoelasticity of the adhesive. By adding a crosslinked structure or CNF to the adhesive, it was possible to develop a wood-based material that has both vibration absorption performance and adhesive performance.

研究分野：木質

キーワード：木材接着 制振 動的粘弾性 接着剤 木質材料

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

接着する目的だけでなく、接着剤を高分子としての特性を活かした何らかの機能を有する機能性ポリマーとして使用することが考えられる。ここでは接着剤の振動特性に着目し、接着層を振動伝達または振動減衰の目的で使用することを考えた。これまでに使用する接着剤が振動へ及ぼす影響を詳細に調査した例は少ないものの、接着剤の粘弾性特性を活かし、振動ひずみを接着層に集中させることで振動エネルギーを熱エネルギーに変換・消費させることにより振動減衰性の高い材料を開発した例は存在する。一方で、振動減衰の少ない接着剤を積極的に楽器等の音響部材に使用した研究例は見当たらない。一般に楽器等音の伝達・増幅部分に使用される接着剤は主として弾性率が高く振動減衰の少ないホルムアルデヒド系接着剤が多い。しかし近年、生産現場での環境問題規制が厳しく、ホルムアルデヒドについては0.1ppm未満に抑える必要があるため、これを非ホルムアルデヒド系接着剤に変えたいという要望は多い。また、集合・個建に限らず、住宅における振動騒音の問題は後を絶たず、より振動減衰能の高い新規素材の登場が待たれている。

### 2. 研究の目的

振動維持効果については、ホルムアルデヒド系接着剤の振動性能を低下させずに非ホルムアルデヒド系接着剤に転換する必要があるため、架橋剤添加による弾性率の向上やガラス転移温度の上昇(ガラス状態の維持)セルロースナノファイバーによる弾性率の向上を目指す。また、木質材料を振動材料として使用するには、その用途に合わせた材料を選ぶことが重要であるが、逆に言うと、振動特性をコントロールできる手法が確立できれば、振動を増幅・維持する場合でも減衰させる場合でも、製品特性に合わせた材料を容易に供給することが出来る。さらに、無垢材よりも安価でリサイクル材が利用しやすい木質材料を用いることで、様々な製品に利用することが可能である。しかし、今まで上記の観点で木質材料の振動特性について制御を試みた研究は少なく、十分に解明が進んでいるとは言い切れない。

そこで本研究では、木質材料に用いられる各種接着剤ヘジフェニルメタンジイソシアネート等の硬化剤、アセトアセチル化ポリビニルアルコールといった反応性ポリマー、セルロースナノファイバー等の充填剤を複合化したり、損失係数( $\tan \delta$ )の大きなポリマーや充填剤の使用により、接着剤の高機能化と振動特性に及ぼす影響について調査するとともに、木質材料として主にパーティクルボード(PB)による評価を行う。PBの作製方法についても工夫し、接着剤の塗布量や充填剤添加方法を変えることで材料中の接着剤存在状態を大きく変化させ、それが振動特性に与える影響を検討する。本研究の最終目的は、振動伝達および吸収を効果的に行える木質建材を開発することにあるが、研究期間が3年ということもあり、今回は接着層による主として吸収メカニズムの解明、接着剤の物性とそれら効果の相関を明らかにすること、およびPB中の接着剤種や量の違いによる上記性質への関与を明らかにするところまでを行う。

### 3. 研究の方法

熱硬化樹脂、熱可塑性樹脂、エラストマー(ゴム系)の市販各種接着剤や、様々な振動特性を有する数種類のアクリル樹脂エマルジョン(AE)を単独またはブレンドして接着剤としてPBを作製し、そこから切り出した試験片を用いて広い周波数範囲における $\tan \delta$ を測定する。振動測定方法には、両端自由たわみ振動法を用い、ピックアップマイク等で振動を拾った後、FFTアナライザを用いて得られた波形の共振周波数から動的ヤング率を、ヒルベルト変換後の振動

減衰の傾きから損失係数を算出する（図1）。

具体的には、接着剤の評価にはフィルムや木質材料の動的粘弾性測定、SEM 構造観察、DSC による結晶化度測定、JAS ブロックせん断強度測定、フィルム溶出率測定等を行う。動的粘弾性測定で得られた貯蔵弾性率、損失弾性率、損失係数は、接着剤単体から得られた測定結果と相関があるか比較する。

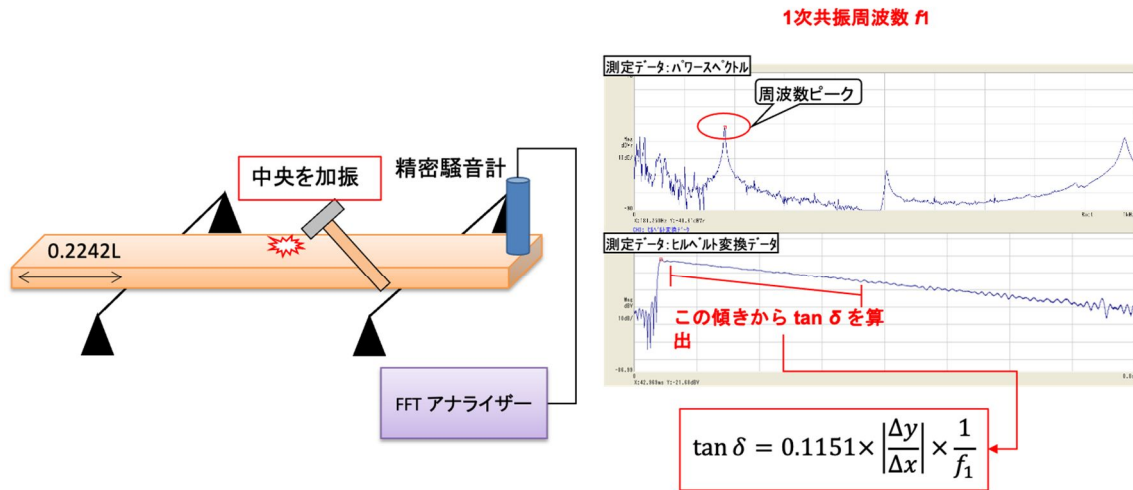


図1 損失係数測定方法

#### 4. 研究成果

研究1年目には、様々な市販樹脂を接着剤として用いてパーティクルボード (PB) を作製し、両端自由たわみ振動法による1次共振周波数における損失正接 ( $\tan \delta$ ) を測定することで、接着剤の違いによる振動特性の検証を行い、増幅・伝搬による活用と遮断・吸収による活用のどちらに使用できる接着剤なのかの振り分けを行った。

その結果、常温付近にガラス転移点 ( $T_g$ ) のあるスチレン-ブタジエンラバー (SBR) および水性高分子-イソシアネート接着剤 (API) が振動の吸収を目的とした材料に、酢酸ビニル樹脂 (PVAc)、ニカワ、常温よりも  $T_g$  の高い SBR、ユリア樹脂が振動の伝搬を目的とした材料に適している可能性が示唆された (図2)。中でも前記 SBR が飛びぬけて  $\tan \delta$  が大きかった。この原因を探るために、成分が同一で  $T_g$  を変えた (低温、常温、高温) 3 種類の SBR を用いて、接着剤フィルムの  $\tan \delta$  の温度依存性について検討した結果、 $20^\circ\text{C}$  付近で常温  $T_g$  の SBR の  $\tan \delta$  が最も高く、これが PB の  $\tan \delta$  が突出して大きかった原因だと考えられた。また、PB の  $\tan \delta$  と接着剤の  $\tan \delta$  の間には高い正の相関があり、接着剤の動的粘弾性から PB の  $\tan \delta$  を高い精度で予測できる可能性が示唆された。

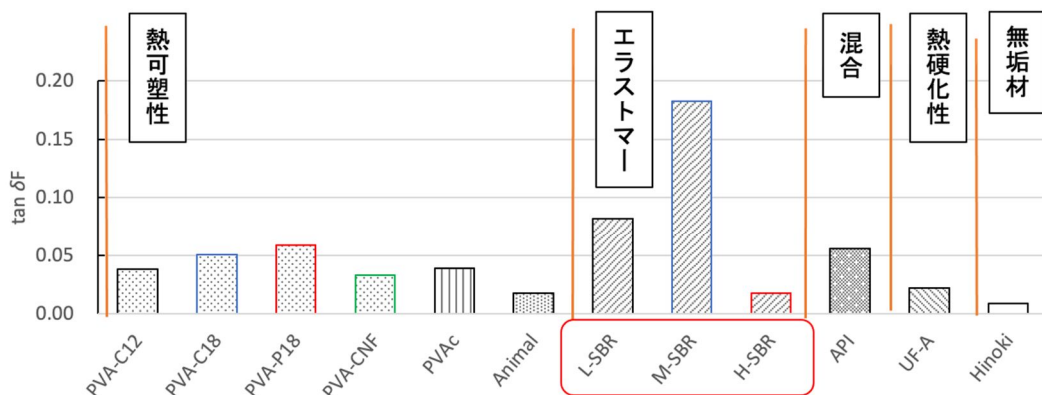


図2 市販接着剤を使用した各 PB の損失係数

2年度目はPBの2次共振周波数以上の周波数域における  $\tan \delta$  を測定し、高周波数域における、つまりより広い周波数帯における振動の吸収・伝搬について検討した。様々な振動特性を有する数種類のアクリル樹脂エマルジョン(AE)を用いてPBを作製し、広い周波数範囲における  $\tan \delta$  を測定した。また、接着剤自身の  $\tan \delta$  と比較した。その結果、室温でゴム状態にあるAEのブレンド量が多いとPBの  $\tan \delta$  が高くなり、木質材料の制振性が大きくなることがわかった。また、PBの  $\tan \delta$  と接着剤自身の  $\tan \delta$  とには相関があることがわかった(図3、4)。一方、振動吸収特性を持つ接着剤は 常温よりも低い温度領域に  $T_g$  を有し弾性率が比較的低く、接着性能も低いため実用に耐えないことも明らかとなった。そのため、振動吸収性と接着性能とを両立するためには更なる検討が必要であることがわかった。

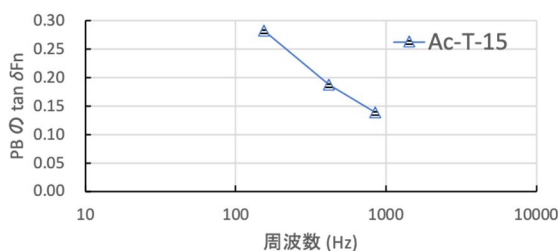


図3 PBの周波数と損失係数の関係

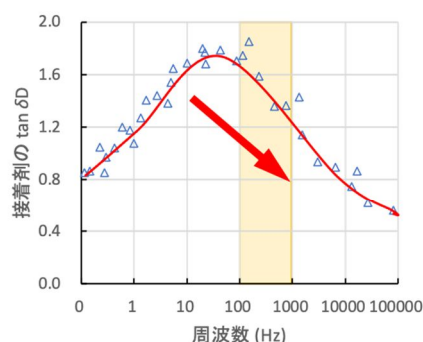


図4 接着剤の広い周波数域にわたる損失係数

最終年度である3年度目は、振動抑制を中心に、常温で損失係数が大きな振動減衰に優れた樹脂を用いることに加え、架橋剤、セルロースナノファイバー(CNF)などの添加や木質材料の種類や製造方法を変えることで新規木質振動制御材料を作製するための基礎的研究を行った。振動特性を維持したまま接着性能を向上させることを目指して、常温付近での振動吸収性能と接着性能との両立を狙い、 $T_g$ の異なるAEブレンド物に架橋構造を加えることやCNF添加について検討した。その結果、制振性能が高いAEのブレンド量を増やした系では、これまでで最大の制振性能が得られた。しかし一方で強度は低下したため、試験温度付近に  $T_g$  を有するAEをブレンドしたところ接着性能の向上が見られた。また、架橋性高分子であるpMDIで架橋したPVAを添加することで接着性能の向上が見られ日本農林規格の1類合板規準を満たした(図5、6)。また、凍結乾燥CNFを添加した全てのAEで圧縮せん断強さが20~40%ほど上昇した。これら知見を組み合わせることで高い接着性を有しながらも、制振性能に優れた木質材料を開発することが可能となると考えられる。

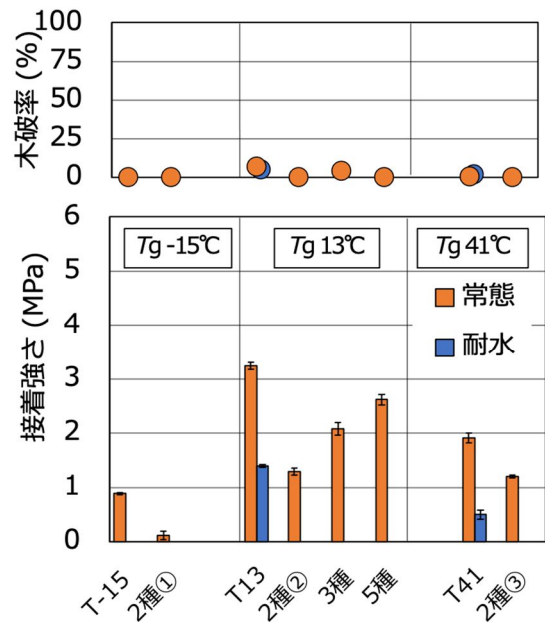


図5 接着剤の接着性能

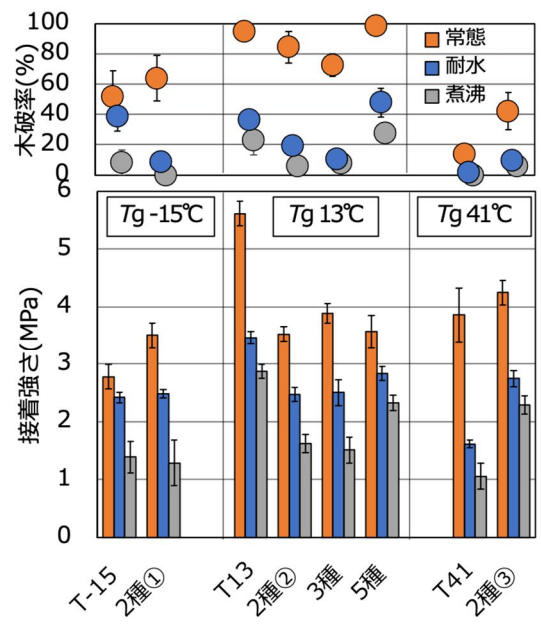


図6 架橋構造を付与した接着剤の接着性能

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 山田雅章	4. 巻 56
2. 論文標題 各種接着剤の基礎と進展（1）水性高分子 - イソシアネート系接着剤	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本接着学会誌	6. 最初と最後の頁 103, 109
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 藤代薫, 鳴田ひかり, 伊藤拓哉, 鳴田ひかり, 前田研司, 長澤正, 山田雅章
2. 発表標題 セルロースナノファイバーの添加に伴うPVA-pMDI接着剤の接着性能低下の原因調査
3. 学会等名 第58回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 久保周平, 藤代薫, 山田雅章
2. 発表標題 ガラス転移点異なるアクリル樹脂エマルジョンを用いたパーティクルボードの振動特性
3. 学会等名 第58回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 泉岡篤樹, 藤代薫, 山田雅章
2. 発表標題 ガラス転移温度異なるアクリル樹脂エマルジョンを用いて塗装および接着した木材の振動特性
3. 学会等名 第58回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 竹原大紀、山田雅章、河合真吾、小島陽一、(パームホルツ) 福山昌男、月東秀夫
2. 発表標題 アブラヤシ単板を用いた合板の製造とその性能
3. 学会等名 第58回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤代薫、杉原輝、伊藤拓哉、鳴田ひかり、山田雅章、前田研司、石橋佳奈、櫻川智史
2. 発表標題 セルロースナノファイバーを添加した水性樹脂接着剤の物性
3. 学会等名 日本接着学会中部支部第18回産官学接着若手フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 竹原大紀、山田雅章
2. 発表標題 オイルパーム単板を用いた合板の製造とその性能
3. 学会等名 日本接着学会中部支部第18回産官学接着若手フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 久保周平、藤代薫、山田雅章
2. 発表標題 室温付近に $\tan \delta$ ピークを有する接着剤を用いたパーティクルボードの振動特性
3. 学会等名 日本接着学会中部支部第18回産官学接着若手フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 泉岡篤樹、藤代薫、山田雅章
2. 発表標題 アクリル樹脂エマルジョンを塗装したスプルー材の振動特性
3. 学会等名 日本接着学会中部支部第18回産官学接着若手フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤代薫、長屋日奈子、左藤寛子、伊藤拓哉、山田雅章、前田研司、長澤正
2. 発表標題 ガラス転移点の異なるアクリル樹脂ブレンドエマルジョンの木材接着性能と振動特性
3. 学会等名 第57回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤代 薫、左藤寛子、伊藤拓哉、長屋日奈子、山田雅章、前田研司、長澤正
2. 発表標題 ガラス転移点の異なるアクリル樹脂エマルジョンを用いたパーティクルボードの振動特性とフィルム動的粘弾性
3. 学会等名 第69回日本木材学会大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤代薫、増成亮介、伊藤拓哉、田中孝、山田雅章、前田研司、田中伸佳
2. 発表標題 様々な接着剤を用いたパーティクルボードの振動特性とフィルム動的粘弾性測定
3. 学会等名 第56回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 伊藤拓哉、左藤寛子、増成良介、田中 孝、山田雅章、藤代 薫、前田研司、長澤 正
2. 発表標題 熱可塑性樹脂およびエラストマー系接着剤を用いたパーティクルボードの振動特性
3. 学会等名 2018年度日本木材学会大会中部支部
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤代 薫、左藤寛子、伊藤拓哉、長屋日菜子、山田雅章、前田研司、長澤 正
2. 発表標題 ガラス転移点の異なるアクリル樹脂エマルジョンを用いたパーティクルボードの振動特性
3. 学会等名 第69回日本木材学会大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関