

報告番号	第 号	氏 名	古杉 美幸	
	氏 名	職 名	氏 名	職 名
論文審査員	主査 杉林 俊雄・教授		木原 幸一郎・教授 香川 美仁・教授 松永 直樹・教授	

論文: シアノアクリレート樹脂の接着強度とその強度向上法

各種の接着剤を用いた接着接合は身の回りの日用品から宇宙機器に至る幅広い範囲で用いられている接合技術の一つである。接着接合は機械的接合法や機械要素等を用いた締結法と比して、多くの利点を有している。しかしながら、接着剤により二つの個体を結合機構には例えば、機械的接着理論や拡散理論、電子理論や吸着理論等の多くの理論が存在し、接着現象を一つの接着理論により説明することは極めて困難である。従って、接着剤を用いたその接着強度の把握には系統的かつ詳細な高精度の実験に頼らざるを得ないのが現状である。

近年、瞬間接着剤と呼ばれている、シアノアクリレート系接着剤がその使用の簡便さから、機械構造物や電子機器の機器等の組み立て工程において紫外線硬化型や湿気硬化型が多用されている。さらには、生物材料の接合等にまで用いられている。ところが、シアノアクリレート接着剤の硬化過程における挙動に関する重合反応及び被着体の表面性状が接着強度に及ぼす影響についての報告はほとんど見当たらない。

そこで、本研究では一液性湿気硬化型シアノアクリレート系接着剤の接着強度について力学的及び化学的手法を組み合わせて、接着強度に影響を及ぼす因子について実験的に解明している。まず、シアノアクリレート系接着剤の硬化過程を把握するために、赤外分光分析及びラマン分析を用いて接着剤の化学反応の挙動について示した。次に、得られた化学反応の挙動と単純重ね合わせ接着継手による接着強度との関係について、被着体の表面性状をも考慮して、それらの関係を調べている。さらに、接着剤の化学反応に及ぼす加熱の影響を赤外線分光分析により、接着強度に大きく影響を及ぼす因子を見出し、接着強度のその強度向上法についての一提案を行っている。すなわち、本研究の接着剤硬化過程の評価法に基づいて接着強度の向上法を提案し、高強度な接着法の指針を得ることである。

第1章「緒論」では接着接合に関する研究背景についての説明を行っている。まず、接着の代表的な理論について概説している。次に、これまでの接着強度の評価方法について、負荷の種類別、接着継手の形状、使用環境や接着剤及び被着体の性質や表面性状が接着強度に及ぼす影響や接着継手に外力を負荷した際の変形挙動を解析的及びFEMによる数値解析による応力分から評価した報告について説明している。

第2章「硬化条件が接着強度と硬化過程に及ぼす影響」では、ジェルタイプのシアノアクリレート系接着剤を用いて、その接着剤の硬化過程における重合反応を赤外分光分析及びラマン分析を用いて調べている。最初に接着剤を赤外分光分析により、接着剤の膜厚方向におけるC=C(二重結合)の赤外吸収スペクトルを測定した。硬化時間が経過するとともに、C=C(二重結合)の吸光度は低下している。さらに、接着剤の表面近傍における重合反応について、ラマン分析により測定し、ラマン散乱強度においても硬化時間が経過するとともに、C=C(二重結合)の値は低下する傾向を示している。それに対して単純重ね合わせ接着継手を用いた接着強度はC=Cの値が低下するに従って増加するが、C=Cの吸光度値が一定になるとその接着強度の値も一定値に収束する。すなわち、接着強度とC=C(二重結合)の赤外吸収スペクトルにおける吸光度値との関係は逆相関となる傾向を見出している。

第3章「接着面の寸法と形状」では、一液性湿気硬化型シアノアクリレート系接着剤の硬化は通常、接着面の周囲すなわち端部から硬化を開始する。従って、接着面の形状および寸法がその接着強度に及ぼす影響を予め調べる必要がある。そこで、接着面の形状と寸法の影響を調べるために接着幅と接着長さを変化させた種々の形状と寸法を有する試験片を用いて、それらの因子が接着強度に与える影響を調べている。その結果、その接着強度にほとんど接着幅の影響がないことを確認した。それに対して、接着長さが長くなるに従って接着強度は低下する傾向がある。この接着強度と接着長さの関係は加熱硬化型のエポキシ接着剤の強度変化と同様の結果であり、シアノアクリレート系接着剤の接着強度を測定する試験片形状及び寸法の妥当性を確認している。

第4章「接着面の三次元表面性状と接着強度の関係」では、接着面の三次元表面性状パラメータの中から、算術平均高さ及び展開面積比の値に着目し、展開面積比と接着面の濡れ性の関係について調べている。展開面積比の増加とともに接着面に付着した水分(0-H)の値が増加することを赤外線分光分析より見出している。このことにより、接着剤の硬化が促進されて、接着強度が高くなったと考えられる。展開面積比が高くなるに従

い、接着面に付着した水分(O-H)は上昇し、引張試験後の破断面における接着剤中の C=C の吸光度値は減少する。すなわち、展開面積比の増加とともに接着面に付着した水分(O-H)が多くなるため、接着剤の硬化が接着面全域において促進されることにより接着強度が高くなる。すなわち、接着面の展開面積比の増加による接着面のぬれ性の向上は、シアノアクリレート系接着剤の接着強度に影響を及ぼす因子の一つであることを実験的に示している。

第5章「再加熱と接着強度の関係」では、シアノアクリレート系接着剤を構造用接着剤としての可能性を探るために、再加熱による強度向上を目指している。単純重ね合せ接着継手の接着強度の値がほぼ一定値に収束する硬化時間の経過後に再加熱を行っている。その結果、本研究で用いた一液性湿気硬化型シアノアクリレート系接着剤の接着強度は加熱を行うことによりその値は大きく増加し、エポキシ系接着剤の接着強度とほぼ同一の値を示している。すなわち、この再加熱による接着強度の増加はシアノアクリレート系接着剤を構造用の接着剤として用いられる可能性を示唆していると言える。

第6章では、各章で得られた結果を総括している。すなわち、シアノアクリレート系接着剤の接着強度について、硬化時に生じる重合反応に着目し、接着剤のC=C(二重結合)の値と接着強度とが逆相関になることを見出している。さらに、接着剤硬化過程の評価法に基づいて接着強度の向上法を検討し、高強度な接着法の指針を提出している。

これらの成果は学術的な新規性のみならず、今後、シアノアクリレート系接着剤を構造部材の接合に用いる際の設計資料となり得る。従って、本論文は、博士(工学)の学位論文として合格と認められる。