酸素プラズマ処理による GF/PP 複合材料の表面改質と 接着特性に関する研究[†]

松岡 敬* 坂口 一彦* 羽田 千洋**

Surface Modification and Adhesive Properties of GF/PP Composites by Using Oxygen Plasma Treatment

by

Takashi MATSUOKA*, Kazuhiko SAKAGUCHI* and Chihiro HATA**

An investigation was performed on interfacial control between adhesive and surface of GF/PP composites in the case of oxygen plasma treatment. In particular, the relationship between the adhesive strength and the surface energy of GF/PP composites in the case of oxygen plasma treatment was reported. The surface energy was determined by a contact angle measurement test and shear tensile tests were carried out using single lap joint specimens in order to estimate the adhesive strength properties of GF/PP composites. Furthermore, an XPS analysis and a SEM observation were carried out to investigate the surface characteristics of GF/PP composites. The results showed that their surface energy largely increased, and functional groups, namely, carboxyl group, hydroxyl group and carbonyl group, were formed on their surface after the oxygen plasma treatment. It was also found that their adhesive strengths using the oxygen plasma were higher than those for the non-plasma-treated specimens. In addition, from SEM observations of the surface of oxygen-plasma-treated specimens, many cracks formed due to plasma etching were observed in the interface. These results showed that the adhesive strength could be further improved by the anchor effect.

Key words : GF/PP composite, Adhesive strength, Oxygen plasma treatment, Surface analysis, Surface energy

1 緒 言

熱可塑性複合材料 (FRTP) は強化材とマトリックスとの分離が可能であることから、マトリックスの再利用が望まれており、今後その使用量がさらに増大すると考えられる。¹⁾したがって、FRTP の高機能化や成形技術の発達にともなう大型構造用材料への展開も視野に入れた研究が重要であり、²⁾特に構造用材料として FRTP の用途を拡大するには、FRTP と異種材料との接合技術の確立が必要となる。³⁾

一般に、熱可塑性プラスチックや熱可塑性複合材料での同質材料の接合には、熱溶融による溶着接合が望ましいとされている。⁴⁾しかしながら、溶着接合はあくまでも同質材同士でのみに使用可能であり、異種材料との接合は不可能であることから、FRTP の接合方法としては接着による方法が工業的には有効となる。しかし、ここで問題となるのが熱可塑性樹脂における接着性の乏しさである。ポリエチレンやポリプロピレンに代表される結晶性ポリマーは外部との反応性に乏しく、難接着材料と呼ばれている。例えば、安価で汎用性の高いガラス繊維強化ポリプロピレン複合材料 (GF/PP 複合材料) が、接着構造用材料として使用される場合には、プライマー塗布などの表面処理を施す必要がある。⁵⁾また、最近ではこの

種の材料に対して工業的に利便性のよいコロナ放電や低温プラズマ処理などの物理的表面処理方法が利用されるようになってきた。中でも低温プラズマ処理は、低公害でかつ表面層のみの改質が可能であり、複雑形状の物にも均一な処理ができることから、プライマー塗布による表面処理にかわる接着工程の前処理として期待されている。⁶⁾低温プラズマ処理は処理条件や被処理体によって改質効果は大きく異なる。例えば、酸素プラズマ処理を用いて PP を処理した場合、酸化反応により水酸基 (-OH)、カルボニル基 (=CO)、カルボキシル基 (-COOH) といった官能基が表面に生成され、同時にエッチング反応による表面の粗化が生じる。^{7), 9)}このような表面改質が行われた場合、接着剤との化学的結合および投錨効果 (アンカー効果) による機械的結合も同時に得ることが可能となり、接着強度の大幅な改善が期待される。

本研究では FRTP と異種材料との接着に関する基礎研究の一端として、被着材料に GF/PP 複合材料を用い、酸素プラズマ処理を施した場合の表面性状の変化と接着強度に及ぼす表面改質効果について検討を行った。

2 実験方法

2・1 低温プラズマ処理

本研究で用いた低温プラズマ処理装置は、ベルジャー

[†] 原稿受理 平成 13 年 10 月 3 日 Received Oct. 3, 2001

* 正 会 員 同志社大学工学部機械システム工学科 〒610-0321 京田辺市多々羅郡谷, Dept. of Mech. Eng. and Syst., Doshisha Univ., Tataramiyakodani, Kyotanabe, 610-0321

** 同志社大学大学院 (現在 凸版印刷㈱) 〒610-0321 京田辺市多々羅郡谷, Graduate Student, Doshisha Univ., Tataramiyakodani, Kyotanabe, 610-0321

型の処理装置であり、処理はベルジャー（内径 315mm × 高さ 400mm）内で行った。ベルジャー内部の圧力は真空ポンプにより 0.1Pa 程度まで減圧でき、処理中はベルジャー内部からの排出量との調節により、所定の処理圧力に保てるように設計されている。なお、本研究では処理ガスとして酸素ガスを用いた。ベルジャー内部には、電極間距離が 100mm である一対の電極板（260mm × 190mm × 5mm）を設置し、この中間の位置に同じく平行に処理材用支持ホルダーが取り付けられている。また、プラズマ発生電源としては、ADVANCED ENERGY 社製の PE-1000 を使い、周波数は 40kHz ± 100Hz のオーディオ波領域のものを使用した。低温プラズマ処理条件としては、処理圧力 50Pa、処理電力 50W 一定とし、処理時間を変化させることによりプラズマ処理効果の検討を行った。

2・2 供試材

各試料は GF/PP 複合材料（株式会社神戸製鋼所製、繊維含有率 30%、繊維直径 13 μ m、平均繊維長さ 2mm の射出成形品）の板（100mm × 130mm × 3mm）からダイヤモンドカッターにより切り出して使用した。XPS 分析に用いた試料寸法は 30mm × 10mm × 3mm、ぬれ性試験の試料寸法は 13mm × 10mm × 3mm、また単純重ね合わせ継手試験片の各被着材寸法は 80mm × 20mm × 3mm とした。また、単純重ね合わせ継手試験片としては、酸素プラズマ処理（5 分、20 分、40 分）を行った試料に加えて、サンドペーパー（#1000、#150）により研磨した試料、および未処理材の計 6 種類とし、各 10 本の試験片を作製し実験に用いた。また、接着層厚さは 0.3mm と一定になるように作製し、接着剤のはみ出し部はすべてカッターおよびサンドペーパーにより注意深く取り除いて実験に用いた。

2・3 ぬれ性試験

酸素プラズマ処理を施した GF/PP 複合材料表面の表面エネルギーを評価するために、接触角測定器（ERMA 社製、G-I 型）を用いて、蒸留水による液滴法により接触角の測定を行った。測定は 3 個の試料を用意し、試料表面の各 3 箇所計 9 箇所について行った。また、酸素プラズマ処理材においては処理後 15 分以内に接触角の測定を行った。接触角の測定結果から Young-Dupre の式を用いて表面エネルギーを算出した。⁸⁾

2・4 SEM 観察および XPS 分析

酸素プラズマ処理が表面に与える影響を調べるために、表面観察および XPS 分析を行った。表面観察は SEM（日本電子株式会社製、JSM-5200）を用いた。また、XPS 分析は X 線光電子分光測定装置（株式会社島津製作所製、ESCA1000）を使用した。なお、測定条件は真空度 10⁻⁷Pa、X 線の線源 8kV、30mA でアルミニウム線 (AlK α) を用いて、C1s スペクトルについて測定を行った。また、データ分析は X 線光電子分析装置用データ処理システム (Vision4-1) を使用した。

2・5 表面粗さ計測

接着強度はアンカー効果により向上することが考えられることから、表面粗さの測定を行った。表面粗さの計測にはレーザー変位計（株式会社 KEYENCE 製、LT-8010）を

用いて行い、計測レンジは 100 μ m × 100 μ m、計測ステップは 1 μ m とした。

2・6 引張せん断試験

試験片は Fig. 1 に示す単純重ね合わせ継手試験片とし、プラズマ処理材はプラズマ処理後 10 分以内に接着を行った。接着剤にはエポキシ樹脂系 2 液混合型（コニシ株式会社製、E-250、硬化剤ポリアミドアミン系、混合比 1:1）を用い、温度 23℃、湿度 35% で 4 日間硬化させた後、引張せん断試験を行った。引張せん断試験はインストロン材料試験機（4467 型）を用い、負荷速度 0.5mm/min、室温（23 ± 2℃）下で行った。

3 実験結果および考察

3・1 表面性状

3・1・1 表面エネルギー 各プラズマ処理時間に対する表面エネルギーの変化を Fig. 2 に示す。なお、図中の W および γ は Young-Dupre の式における接着仕事と液体の表面エネルギーを示している。プラズマ処理開始後、5 分で表面エネルギーは著しく上昇し、その後同程度の値で変動した後に 20 分で一度ピークを迎える。この時点での表面エネルギーは未処理の段階の約 2 倍程度である。その後、表面エネルギーに大きなばらつきはあるが、若干低い値で変動した後に、40 分で 20 分と同程度の値を示した。表面エネルギーの値がこのように変動した値をとるのは、以下のような PP 樹脂部における表

Fig. 1. Schematic figure of single lap joint specimen.

Fig. 2. Changes of the surface energy W/γ for plasma treatment times.

面改質過程が原因であると考えられる。⁹⁾

5分処理材に見られた表面エネルギーの向上は、酸化層に官能基が導入されたことによるものである。その後、官能基の導入とエッチングによる解離が起こるため表面エネルギーの値は変動し、20分処理材ではこの酸化層が除去され、真のPP樹脂表面に官能基が導入された状態となり、ピーク値が現れたと考えられる。その後も同様に官能基の導入と解離により表面エネルギーは変動し、40分処理では再び20分処理と同じ状態に戻るため、20分と同等の表面エネルギー値になったと考えられる。

以上の結果より、表面エネルギーが特徴的に変化していると思われる5、20、40分処理の3条件について以下の各項目について検討した。

3・1・2 XPS 分析 酸素プラズマ処理による官能基の導入量を調べるために、処理前後のXPS分析を行った。XPS分析はプラズマ処理後3時間以内に実施した。GF/PP複合材料の接着性は、その表面のほとんどを占めているPPの表面特性に大きく依存する。PPに酸素プラズマ処理を行った場合、酸素原子の導入が起こるため、一般に炭素原子と酸素原子の割合が一つの表面改質指標として用いられる。Fig. 3に各試料のC_{1s}スペクトルを示す。未処理材についてはC-C、C-Hピークのみが観察され、接着特性の向上に寄与する官能基の存在は確認されない。しかしながら、20分処理材では明らかにC-O、C=O、O-C=Oのピークが確認され、官能基が導入されていることがわかる。なお、40分処理材においても20分処理材とほぼ同様のスペクトルを示していた。

次に、得られたスペクトルから酸素の導入量を定量的に評価するために、C_{1s}スペクトルおよびO_{1s}スペクトルからCとOとのアトム比O/(C+O)を求め、表面エネルギーとの関係を求めた。その結果をFig. 4に示す。この結果からも明らかのように、処理時間の増加とともに酸素原子の導入量も増大しており、また両者には線形関係（相関係数：0.997）が認められた。本来はPPの分子構造には酸素原子は含まれていないはずであるが、この結果からは酸素原子の存在が認められた。これは、樹脂表面の酸化層の存在による影響であると考えられる。

3・1・3 表面粗さ 接着強度に与える表面粗さの影響を調べるために、プラズマ処理を施した3試料とサンドペーパーにより表面を研磨した2試料（#1000、#150）および未処理材の計6種類について表面粗さ測定を行った。レーザー変位計により計測した結果、5分処理材および20分処理材の表面粗さは処理前後において明確な差はみられなかったが、40分処理材の表面は明らかに粗化されているのが確認され、処理前とは異なる表面粗さとなっていた。Fig. 5に中心線平均粗さRaを求めた結果を示す。なお、Ra_pは処理前の表面粗さであり、Ra_p'は処理後の粗さである。この結果から、サンドペーパーで研磨した試料では表面粗さは大きくなっていることがわかる。一方、プラズマ処理を施した試料では、5分処理材および20分処理材ではさほど表面粗さの変化は見られないが、40分処理材においては少し粗さが増加した。以上の結果から、処理時間20分まではプラズマエッチング作用

Fig. 3. Carbon curve-fit analysis of GF/PP composites' surface.
(Peak assignments are : 1, C-C and C-H peak ; 2, C-O peak ; 3, C=O peak, 4, O-C=O peak)

Fig. 4. Relationship between the surface energy W/γ_1 and the atomic ratio $O/(C+O)$.

による表面の粗化は微量であるが、40分処理材では表面粗さが増加しており、アンカー効果による機械的接着強度の向上が期待できる。

3・1・4 SEM 観察 SEM観察の結果、未処理材表面のガラス繊維は薄くPPで覆われていた。また、サンドペーパーで研磨した試料表面は毛羽立った粗い表面とな

Fig. 5. Relationship between each surface treatment type and the surface roughness ratio Ra_1/Ra_0 .

り、同時にガラス繊維の露出が多くなっていた。しかし、露出した繊維は損傷を受けており、破断しているものや繊維がすでに抜き取られている部分も観察された。Fig. 6は、プラズマ処理を施した各試料表面のSEM写真である。5分処理材では見かけ上未処理材と表面形状に変化はなく、ガラス繊維の露出はほとんど見られない。一方、20分処理材では一部でガラス繊維を覆っていたPPがプラズマエッチングにより取り除かれているのが確認された。さらに、40分処理材ではエッチングが進みガラス繊維の露出が増大しており、特に繊維と樹脂界面で侵食され、はげしい割れが生じているのが確認された。

3・2 接着強度評価

3・2・1 引張せん断強度の比較 Fig. 7に引張せん断強度の結果を示す。未処理材では引張強度は約0.5MPaであり、非常に小さい値である。サンドペーパーにより研磨したものでは、#1000で1.1MPaと未処理の約2倍、#150で1.9MPaと約4倍程度の強度の向上がみられた。これは、表面粗さの増加による接着面積の増加およびアンカー効果によるものである。一方、酸素プラズマ処理を施したものでは、未処理材に比べて5分処理で約3倍、20分処理で約5倍、40分処理では約9倍と顕著な強度の向上が見られた。これらの結果から、酸素プラズマ処理はGF/PP複合材料の接着強度の改善に有効であることがわかる。

3・2・2 接着強度に及ぼす官能基導入効果 Fig. 8に表面エネルギー W/γ と引張せん断強度との関係を示す。この図から明らかなように、20分処理材までは表面エネルギーと接着強度との関係は線形関係であるが、40分処理材ではこの線形関係を逸脱し、より高強度となっている。これは表面エネルギーの向上以外の要因である表面粗さの増加が関与しているものと考えられる。なお、この点については3・2・3項および3・2・4項で詳しく考察する。

本研究で使用した接着剤は、ビスフェノールA型のエポキシ系樹脂とポリアミドアミン系硬化剤との混合によ

(a) 5min treated type

10 μ m

(b) 20min treated type

10 μ m

(c) 40min treated type

10 μ m

Fig. 6. SEM micrographs of GF/PP composites' surfaces.

り硬化するタイプであり、その結果生じる-OH基と酸素プラズマ処理によりPP樹脂表面に導入された各官能基が水素結合すると考えられる。¹⁰⁾したがって、官能基の導入量が接着強度に大きく影響すると推測される。Fig. 9に、XPS分析により得たO/(C+O)値と接着強度との関係を示す。この結果から、Oの導入量の増加と共に接着強度も向上していることがわかる。前述のように、5分、20分処理材では表面粗さに変化がみられなかったため、この範囲での接着強度の向上は官能基の導入による化学結合（水素結合）の増加に依存していると考えられる。以上の結果から、酸素プラズマ処理開始後20分ま

Fig. 7. Tensile shear strength for various surface treatment.

Fig. 10. Relationship between surface roughness ratio Ra_p'/Ra_p and tensile shear strength.

Fig. 8. Relationship between tensile shear strength and surface energy W/γ_1 .

Fig. 9. Relationship between atomic ratio $O/(C+O)$ and tensile shear strength.

での接着強度の増加は化学結合により生じており、この範囲では接着強度と官能基の導入量との間にはほぼ線形関係が成り立つことが見出された。

3・2・3 接着強度に及ぼす表面粗さの影響 Fig. 10に、表面粗さの増加割合 (Ra_p'/Ra_p) と接着強度の関係を示す。サンドペーパーにより研磨した試料の接着強度の向上は、表面粗さの増加に伴うものである。一方、酸素

プラズマ処理では、官能基の導入が起こるため、純粋に表面粗さの接着強度への影響を論じるのは難しい。したがって、官能基の導入による影響を取り除き、被着体表面粗さのみの接着強度への影響を調べる必要がある。本研究では、酸素プラズマ処理を施した後、空気中（温度 23°C 、湿度 $35 \pm 5\%$ ）で1週間エイジングさせた試料を用いて単純重ね合わせ継手試験片を作成し、引張せん断試験を行った。また、接着は1週間のエイジングを行った後すぐに実施し、各試料においてエイジングと接着時期に差が生じないように注意した。なお、この実験は、官能基が時間とともに消失する特性を利用したものである。^{11), 12)} その結果、空気中で1週間エイジングさせた試料では、どの処理時間のものでも表面エネルギーは0.80付近（未処理材：0.76）まで減少しており、Fig. 4から判断すると $O/(O+C)$ 値は約0.175程度であると考えられる。Fig. 11に5分、20分、40分の酸素プラズマ処理材および1週間エイジングした試料を用いて作製した単純重ね合わせ継手の引張せん断強度結果を示す。エイジング後の5分処理材および20分処理材の強度は、ほぼ未処理材と同等の強度である。前述のように、これら両試料の表面粗さは、未処理材とほぼ同じ表面粗さであったことから、両処理材の強度の向上は被着体表面への官能基の導入によるものであると考えられる。しかし、40分処理材の強度はエイジング後未処理材の強度には戻らず高い値を示した。また、Fig. 11とFig. 10を比較すると、酸素プラズマ40分処理により粗さが大きくなることによる接着強度の上昇は、サンドペーパーによる接着強度の上昇より若干大きくなることがわかる。これはプラズマエッチングによるGF/PP複合材料表面の粗化のみならずそれに伴うガラス繊維の露出量の増大が原因であると考えられる。

3・2・4 破面観察 各処理条件における引張せん断試験後の破面のSEM観察を行った。各表面処理条件においていずれも界面近傍で破壊していたため、被着体側と接着剤側の両破面の観察を行った。

未処理材では完全な界面破壊となっており、接着剤側には被着材側接着面の跡が明確に残っていた。さらに、接着剤側表面には直径 $10 \sim 30\mu\text{m}$ 程度のボイドも数多く確認された。このボイドが原因で破壊が引き起こされ

Fig. 11. Changes of the tensile shear strength for aged specimens.

たかどうかは明確ではないが、接着面積が減少するため、接着強度の低下につながる可能性がある。また、サンドペーパーで研磨した試料では、研磨後に被着体表面に露出したガラス繊維が接着剤側表面に付着しているのが確認できたが、接着剤および被着体内部での破壊は見られなかった。

次に、酸素プラズマ処理を施した試料の被着体側の SEM 観察結果を Fig. 12 に示す。5 分処理材ではラップ中心部において極表層の PP 樹脂が剥ぎ取られた跡が見られた。接着前、すでに繊維が露出していたと思われる箇所では繊維の引き抜けも確認された。前述のように、5 分処理材では若干ではあるが官能基の導入が進んでおり、PP-エポキシ間の界面強度が向上している。また、き裂はラップ端界面で発生していたが、一部では界面強度が増加したため、き裂は界面から PP 樹脂内部へ進展していた。しかしながら、ラップ端を始め大部分では界面破壊が支配的であった。20 分処理材では 5 分処理材のような表層の PP 樹脂のみではなく、Fig. 12 (b) の A 部のような繊維もろとも深層までえぐり取られた箇所が多く見られ、さらに 40 分処理材では接着面のほぼ全域において Fig. 12 (c) の B 部のような被着体の破壊が観察された。また、3・1・4 項で述べたように 20 分処理材および 40 分処理材ではガラス繊維の露出部が増加しており、その部分を起点としてき裂は被着体-接着剤界面付近から被着体内部のガラス繊維-PP 界面へ進展し、その後 PP 樹脂内部へ進行したと思われる。このようにガラス繊維の露出部を起点として進行する PP 樹脂内部型破壊が増大するため、40 分処理材では表面エネルギーが同等である 20 分処理材と比べて約 2 倍程度の強度増加が得られた。以上の観察結果から、プラズマ処理による表面粗化は界面型破壊から被着体内部型破壊へと移行させ、その結果接着強度を増加させていることが明らかになった。

3・2・5 引張せん断強度の統計的評価 各表面処理により引張せん断強度のばらつきがどのように変化するのか統計的評価を試みた。Fig. 13 は各表面処理条件における引張せん断強度をメディアンランク法によりワイブル確率紙上にプロットした図である。図中の直線は 2 母数ワイブル分布より求めた解析結果を示している。この

(a) 5 min treated type 10 μm

(b) 20min treated type 100 μm

(c) 40 min treated type 100 μm

Fig. 12. Fracture surfaces on adherend side of single lap specimen.

Fig. 13. Tensile shear strength plotted on Weibull probability paper for each surface treatment specimen.

結果から、どの試料に対してもほぼ2母数ワイブル分布で近似できることがわかる。

未処理材の形状母数 α は2.8と強度のばらつきが他の試料より大きくなっている。これは前述のように未処理材では界面破壊が主体であったため、破壊の起点となるき裂が発生するとほぼ同時に最終破断が引き起こされるため、破壊の起点となる様々な要因に依存するためばらつきが増大すると考えられる。

次に、サンドペーパーで研磨した2つの試料#150, #1000の形状母数はそれぞれ $\alpha = 9.0, 8.4$ と強度のばらつきは小さい。これは表面粗さの向上による接着面積の増大およびアンカー効果が得られたこと、さらにガラス繊維の露出によりガラス繊維-エポキシ界面でも破壊が生じ、ガラス繊維の引き抜きを伴う破壊形態へ変化したことも影響している。一方、プラズマ処理を施した場合、5分、20分、40分と処理時間が進むにつれて形状母数 α は2.9, 3.6, 8.0と増加し、接着強度のばらつきが小さくなっていることがわかる。これは表面粗さの増大や官能基の導入が強度のばらつきを減少させたと考えられるが、試料#150, #1000のばらつきの結果と考え合わせると、表面粗さの増大が接着強度のばらつきを減少させていると思われる。また、3・2・3項で述べたエイジング材に対する接着強度のばらつきは、5分処理材、20分処理材ではほぼ未処理材のばらつきと同様であったが、40分処理材の形状母数は4.2となりばらつきは減少していた。しかし、この形状母数はエイジングを施していない40分処理材の形状母数より小さくなっており、そのばらつきは増大していた。したがって、この結果から官能基も接着強度のばらつきに影響を及ぼす重要な因子であると考えられる。

以上の結果から、接着強度の信頼性向上には適度な被着体表面の粗化が必要であり、GF/PP複合材料のように接着性の悪い材料に対しては、何らかの表面処理と同時に表面粗化が重要となる。したがって、本研究で取り上げた低温プラズマ処理は、官能基の導入と同時に表面粗化が可能であることから、この種の材料の接着特性改善に有効な手段であると考えられる。

4 結 言

本研究では、難接着材料であるGF/PP複合材料に対して物理的 surface 処理の一つである酸素プラズマ処理を用いて、この処理の接着特性への影響について検討した。その結果、以下の結論を得た。

(1) ぬれ性試験結果から、酸素プラズマ処理によりGF/PP複合材料の表面エネルギーは著しく向上し、XPS分析から20分処理材、40分処理材ではカルボキシル基、カルボニル基および水酸基などの官能基の顕著な導入が確認された。

(2) 酸素プラズマ処理を施した5分、20分処理材では表面粗さの変化はみられなかったが、40分処理材の表面性状は明らかに処理前と異なって粗化されていた。

(3) SEM観察より、未処理材および5分処理材では

GF/PP複合材料表面にガラス繊維の露出はほとんどみられなかったが、40分処理材では露出した繊維が多く見受けられ、繊維周囲のPP樹脂が浸食されていた。

(4) 単純重ね合わせ継手による引張せん断試験の結果、サンドペーパーで研磨したものでは最大で未処理材の4倍程度強度が向上していたのに対し、酸素プラズマ処理を施した40分処理材では未処理材の9倍程度と著しい引張せん断強度の向上がみられた。

(5) 表面形状に変化が少ない未処理材、5分、20分処理材では表面エネルギーと接着強度の間に線形性が確認された。また、酸素プラズマ処理後1週間エイジングして接着した試料の場合、5分、20分処理材の強度は未処理材と同等の値に戻っていた。したがって、5分、20分処理材における接着強度の向上は官能基の導入に伴うものであることが明らかになった。

(6) 破面観察から、未処理材では完全な界面破壊であり、サンドペーパーで研磨したものでは強化材の引き抜きを伴う部分以外は未処理材同様、界面破壊であった。一方、酸素プラズマ処理を行った場合、破壊は界面から被着体内部へ移行し、処理時間が進むほどより深層での破壊がみられた。

(7) 引張せん断強度の2母数ワイブル解析を行った結果、表面粗さの増大は接着強度のばらつきを減少させる傾向があることが判明した。

本研究は私立大学学術研究高度化推進事業の補助による同志社大学大学院 RCAST の支援を受けた。また、本研究は、2000年度同志社大学学術奨励研究費「生分解性複合材料の界面制御に関する基礎研究」の成果の一部である。記して謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) 日本機械学会編, “先端複合材料”, p.39 (1990) 技報堂出版。
- 2) 小野昌孝, “新版 接着と接着剤”, p.175 (1989) 日本規格協会。
- 3) 山本哲也, 接着の技術, **21**, 38 (2001)。
- 4) 高島米司, 接着の技術, **12**, 6 (1992)。
- 5) 小野昌孝, “新版 接着と接着剤”, p.205 (1989) 日本規格協会。
- 6) M. Morra, V. Di Ruocco, E. Occhiello and F. Garbassi, J. Adhesion, **41**, 139 (1993)。
- 7) 長田義仁, “低温プラズマ材料化学”, p.192 (1994) 産業図書。
- 8) D. ハル, “複合材料入門”, p.36 (1983) 培風館。
- 9) N. Sako, T. Matsuoka and K. Sakaguchi, Composite Interfaces, **401** (1997)。
- 10) 日本化学会編, “化学総説 No.44 表面の改質”, p.105 (1984) 学会出版センター。
- 11) N. Shahidzadeh-Ahmadi, F. Arefi-Khonsari and J. Amouroux, J. Mater. Chem., **229** (1995)。
- 12) 四津成章, 松岡 敬, 坂口 一彦, 材料, **50**, 174 (2001)。