接着力と接着強度は等しくない

栗 山 卓*

溶着・接着に共通したプロセスは、高分子等を流動化(溶融、溶液化)させ固化するものである。

接合系形成に関係する現象として、拡散、粘性(粘弾性が正しい)、濡れ、結晶化、相溶性(化)があり、これらを制御パラメータとして、温度、時間、圧力、形状がある。接着(接合)力に寄与するものとして、投錨、物理吸着(微視的投錨)、絡み合い、分子間力、共有結合、酸-塩基相互作用、クーロン力があり、接着(接合)強度関係するマクロな物理量として、接着(溶融)層厚さ、接着(溶融)層弾性率、接着(溶融)層粘性、接着(溶融)層強度などがある。接着(接合)強度評価として、はく離強度(90° , 180° T はく離)、せん断強度(ラップ接合)、引張り強度(突き合わせ接合)がある。

ここで、接着力と接着(接合)強度は異なることに注意してほしい。すなわち、接着力は被着体と接着剤との界面結合力を意味し、接着(接合)強度は接合系を破壊させたときの強度評価値である。

このことは、古くから中尾らにより指摘されている。たとえば、エポキシ樹脂を接着剤として鋼板の接合に用いたとき、せん断強さは10~20 MPaに達するが、はく離強さでは25 N/25 mm 以下にすぎない。この現象は、界面の接着力だけでは説明できない。

接着接合系破壊形態は、接着層破壊(凝集破壊)、界面破壊、これらの混合破壊および被着体破壊の4種類に大別される。すべて、接着(接合)強度試験後に観察される破壊形態である。

破壊形態と接着(接合)強度の関係は単純なものとはならない。たとえば、はく離強度は、破壊形態とは無関係に接着層の弾性率、試験速度温度に応じて変化する二つのピークを持つ。また、接着層の弾性率および接着層の厚みは、上述したせん断強度とはく離強度の相反現象と大きくかわり、接着層の弾性率の増加は、せん断強度を増加させるが、はく離強度を低下させる。逆に、接着層の厚み増加は、せん断強度を低下させ、はく離強度を増加させる。

この場合、明らかな凝集破壊が起きたときは、弾性率の高い被着体に挟まれた高分子の破壊の問題として取り扱える。すなわち、はく離強度(および引張り強度/突き合わせ接合)と弾性率の関係は、一般の材料のModI破壊じん性と弾性率の関係とまったく一致したものとなる。たと

えば、接着層の厚さは、接着層内の見かけの弾性率の増加、すなわち、被着体による接着層の拘束として働き、層内の三軸引張り応力の増加させることに対応する。言い換えれば、はく離試験では、引張応力条件下での接合形態に由来するマクロな応力集中を考慮する必要がある。この接合系における力学的拘束の効果は大きく、接着剤のModI破壊じん性を大幅に増加させないと、これを用いた接合系のはく離強度増加が表れない。

一方、せん断試験においては、その接合端部に多少の応力集中が見られるが、接着層内には、負荷方向のせん断応力が支配的となり、三軸引張応力の発生はない。したがって、接着層内のミクロな欠陥に支配されることになり、接着層の減少はそれらの減少につながり、弾性率の増加が強度の増加に働く理想材料の挙動に近づく。

問題は界面破壊である。1959年、Bikermanは、「完全な界面破壊は力学的あり得ない」としてWeak Boundary Layer (WBL)の存在を唱えた。これは、ポリエチレンの接着強度の低さを、無極性であることを理由とせずに、ポリエチレン表面にあるWBLが簡単に破壊するためであるとしたものである。たとえば、Al箔とポリエチレンのホットメルトで、目視で界面破壊であってもWBLからの破壊で、低分子量のポリエチレンあるいは添加物がAl箔に残存するものと見なした。

その後、多くの研究者により様々な表面分析を行った結果、真の界面破壊があったかは別にして、目視での界面破壊のはく離面には、移行物もしくは接着物が残存することが確かめられている。被着体表面に残存した油分あるいは移行物の存在は、強度を低下させるものとして除去されるべきWBLであるが、それ以外の接着界面にある高分子の存在は界面接着力の発現を考える上で重要な示唆を与えるものである。

結晶性高分子を接着層としたときの界面近傍に成長するトランスクリスタルと界面接着力との関係も併せて議論されてきた。トランスクリスタル形成についても、畑らの検討によれば、高エネルギー被着体表面の結晶核生成であることが主因ではなく、表面粗度が主たる要因であることが明らかにされている。他方、被着体に残る分子鎖の多くは分子鎖のすり抜け(すべり)だけでなく分子鎖切断を伴うことも、最近の研究で明らかになっている。

本特集号では最新の接合方法について解説されている。表題の言葉を忘れずに読んで頂きたい。

* Kuriyama, Takashi
山形大学 工学部 機能高分子工学科
米沢市城南 4-3-16 (〒992-8510)
2003. 2. 14