

アルミナ/エポキシ樹脂間の接着における 温度の影響に関する理論的研究

¹九大先導研, ²分子システム
○村田裕幸¹, 辻雄太², 吉澤一成¹

Theoretical Study of the Influence of Temperature on Adhesion between Alumina and Epoxy Resin

○Hiroyuki Murata¹, Yuta Tsuji², Kazunari Yoshizawa¹

¹ Institute for Materials Chemistry and Engineering, Kyushu University, Japan

² Education Center for Global Leaders in Molecular Systems for Devices, Kyushu University, Japan

【Abstract】 Adhesion is one of the most important technologies in industrial field because of its characteristics such as lightness and strength. Therefore, various studies about adhesion are reported, but interfacial interaction of adhesion remains unclear. Then, quantum chemical method is required to consider adhesion mechanism on molecular scale. In previous work, interfacial interaction and structure between alumina and epoxy resin, which is one of the most important adhesion systems, was investigated with quantum chemical calculation. However, static quantum chemical calculations cannot include the effect of temperature. On the other hand, molecular dynamics (MD) calculations are capable of incorporating it. In this work, we investigate the influence of temperature on the adhesion interface between alumina and epoxy resin by using the MD calculation.

接着は材料を接合する手法の一つとして知られており、接合の方法としては他に溶解やボルトによるものがある。これらの中で接着を用いる利点として、軽量化や接合部の高強度化が挙げられる。そのため接着は自動車産業や航空産業など様々な工業分野で利用されており、工業的に非常に重要な技術の一つとなっている。そのため、接着に関する様々な研究が行われているが、接着の相互作用については未だ不明瞭な点が多い。[1]接着の詳細を明らかにするには実験的手法では困難であるため、計算化学的手法が必要とされている。

そこで我々はこれまでに計算化学的手法を用いて、金属と樹脂の間に働く接着の相互作用についての研究を行った。[2-3]金属に代表的な軽金属として工業的によく使われているアルミニウムを使用し、その接着剤としてよく知られているエポキシ樹脂との相互作用について解析を行った。アルミニウムは常温の大気中で容易に酸化され表面に酸化アルミニウムを形成する。酸化アルミニウム表面は空気中の水分子を吸着することで、表面にヒドロキシル基を形成する。ヒドロキシル化された酸化アルミニウム表面はさらに水分子を吸着することで表面に水分子層を形成することが報告されている。[4-6]そこで、これまでに Fig. 1 に示す接着モデルを構築し量子化学計算を用いて、アルミナ/エポキシ樹脂間の接着の

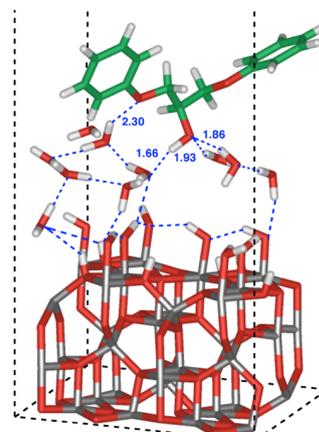


Fig. 1. Slab model which we have used.

相互作用を解析し、アルミナとエポキシ樹脂の接着の系において水素結合が重要な役割をもっていることが明らかとなった。[3]

しかし、量子化学計算は温度の条件が考慮されないため絶対零度での解析となり、計算における温度条件は実験と異なる。ここで、計算によって得られる理想的な系における接着力に対して、実際の系では金属表面の不純物や吸着の不完全さ等の様々な要因が実験によって得られる接着力を著しく低下させることが示唆されているため[3]、温度が接着力に及ぼす影響を考慮することは重要である。そこで、本研究では温度の条件を取り入れるため分子動力学 (MD) 計算を用いて、アルミナ/エポキシ樹脂間の接着において温度が及ぼす影響について解析を行った。

アルミニウム表面のモデルとして、ヒドロキシル基で被覆されたセルの大きさ $8.4 \text{ \AA} \times 8.1 \text{ \AA}$ の γ -アルミナ (100) 面を作製し構造の最適化を行った後、 2×2 の Supercell としたものを用意した。水分子層に関しては Amorphous Cell を使い、セルの大きさをアルミナ表面に合わせ密度を 1.0 g/cm^3 に設定し、厚さ約 3 \AA となるように作製した。エポキシ樹脂としてビスフェノール A 型エポキシ樹脂の繰り返し単位が 2 である分子を用い、密度を 1.1 g/cm^3 に設定し厚さ約 29.8 \AA となるエポキシ樹脂層のモデルを作製した。これらを Fig. 2 に示すように、水分子が吸着したアルミナ表面でエポキシ樹脂を挟んだスラブモデルを作製した。このモデルについて古典力学計算ツールである Forcite を用いて MD 計算を行った。Ensemble を NVT とし、Forcefield に Universal を用いた。計算後得られた構造について上部のアルミナ表面を界面から垂直に 0.2 \AA 引き離し、さらに MD 計算を行った。これを繰り返すことでアルミナ表面の変位に対するエネルギープロットを作製し、モースポテンシャルに近似した。得られた曲線を変位で微分することで力を求め、アルミナ表面の面積で割ることで応力を計算した。その最大値を最大接着応力として接着力の評価を行った。

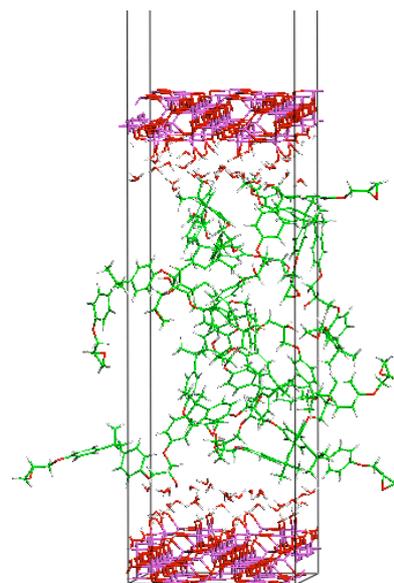


Fig. 2. Slab model of adhesion interface used in this work.

【参考文献】

- [1] 大迫文裕, 吉澤一成, 高分子論文集 **68**, 72 (2011).
- [2] T. Semoto, Y. Tsuji, K. Yoshizawa, *J. Phys. Chem. C* **115**, 11701 (2011).
- [3] T. Semoto, Y. Tsuji, K. Yoshizawa, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **85**, 672 (2012).
- [4] J. B. Peri, *J. Phys. Chem.* **69**, 211-219 (1965).
- [5] J. B. Peri, *J. Phys. Chem.* **69**, 220-230 (1965).
- [6] A. L. Goodman, E. T. Bernard, V. H. Grassian, *J. Phys. Chem. A* **105**, 6443-6457 (2001).