

未来社会創造事業 大規模プロジェクト型
年次報告書

平成 30 年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:田中 敬二]

[国立大学法人九州大学大学院工学研究院・主幹教授]

[研究開発課題名:界面マルチスケール 4 次元解析による革新的接着技術の構築]

実施期間 : 令和 5 年 4 月 1 日～令和 6 年 3 月 31 日

§1. 研究開発実施体制

アカデミア

(1)「田中 PM」グループ(九州大学)

①研究開発代表者:田中 敬二(九州大学大学院工学研究院、主幹教授)

②研究項目 1

1. 接着現象の理解
 - 接着界面層における構造・物性解析
 - 接着界面近傍における不均一性解析
2. 接着寿命の支配因子の理解と制御
 - 熱硬化性樹脂の構造・物性解析
 - 接着界面近傍の劣化因子解析

研究項目 2

1. 種々の材料の疲労破壊規準式の確立
2. 複屈折測定を用いた疲労破壊規準式の確立
3. 疲労挙動に及ぼす温度の影響と寿命予知の高速化

研究項目 3

1. 量子化学計算や第一原理バンド計算など量子力学による「接着の分子論」の確立
2. 炭素材料とエポキシ樹脂との接着界面相互作用に関する理論的考察
3. ヒドロキシ基密度の異なるアルミナ表面とエポキシ樹脂との分子間相互作用解析
4. アルミナ表面の水の凝集構造と硬化反応に及ぼす影響に関する理論的考察

研究項目 4

1. 接着分野における機械学習モデルの構築および実験検証
 - 疲労試験の初期サイクルデータから寿命を予測する機械学習モデルの構築
 - 樹脂・炭素繊維強化樹脂(CFRP)界面に対する劣化・接着強度予測の機械学習モデルの構築
2. ソフトウェアパッケージの機能追加・強化
 - 上記1の技術を活用したソフトウェアの機能追加・強化

研究項目 5

1. 統計数学を用いた高精度な疲労寿命予測モデルの構築
2. 欠損データの補完アルゴリズムの構築

研究項目 6

1. 自動車用構造接着剤における競争構造と知財ネットワーク分析
2. オープン&クローズ戦略の適合範囲の分析
3. 革新的接着剤における社会実装シナリオの構想

(2)「A 西野」グループ(神戸大学)

①研究開発代表者:西野 孝(神戸大学大学院工学研究科、教授)

②研究項目

1. ナノラマン分光解析
2. 接着界面における残留応力の接着界面評価
3. X線コンピュータトモグラフィー(CT)による界面評価
4. リサイクル炭素繊維の界面評価

(3)「B 中嶋」グループ(東京工業大学)

① 研究開発代表者:中嶋 健 (東京工業大学物質理工学院、教授)

② 研究項目

1. 架橋剤や吸湿状態と不均一構造の相関解析
2. フィラー/ゴム・樹脂界面の力学物性解析
3. ナノオロジー原子間力顕微鏡(AFM)の高分解能化とその応用

(4)「C 堀内」グループ(産業技術総合研究所)

① 研究開発代表者:堀内 伸 (産業技術総合研究所、上級主任研究員)

② 研究項目

1. 走査透過電子顕微鏡(STEM)-電子エネルギー損失分光(EELS)による接着界面の水分劣化メカニズム解明
2. STEM-EELS による接着剤の不均一構造の解析
3. in-situ STEM による接着界面の破壊のその場観察

(5)「D 小林」グループ(株式会社メカニカルデザイン)

① 研究開発代表者:小林 卓哉 (株式会社メカニカルデザイン、代表取締役)

② 研究項目

1. 硬化プロセスに基づく樹脂の力学計算
2. フィラー/マトリックス界面でのマクロスケール解析
3. 強度および破壊に関する力学的指標の定量化
4. 実用解析ツールの構築

(6)「E 初井」グループ(理化学研究所)

① 研究開発代表者:初井 宇記 (理化学研究所放射光科学研究センター、チームリーダー)

② 研究項目

1. 接着界面観察用の軟 X 線顕微鏡の開発
2. 接着界面の軟 X 線イメージング法の開発

(7)「F 青木」グループ(高エネルギー加速器研究機構)

① 研究開発代表者:青木 裕之 (高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所/日本原子力研究開発機構 J-PARC センター、教授/研究主幹)

② 研究項目

1. 接着界面構造解析のための中性子反射率法の開発
2. 中性子・ミュオンを用いた界面計測による接着・粘着力発現機構の解明

(8)「G 山田」グループ(九州先端科学技術研究所)

- ① 研究開発代表者:山田 淳 (九州先端科学技術研究所、研究所長兼ディレクター)
- ② 研究項目
 1. 透過型電子顕微鏡 (TEM) による引張破壊挙動の高感度解析
 2. 走査型電子顕微鏡 (SEM) による引張過程の in-situ 観察系構築

(9)「H 竹中」グループ(京都大学)

- ① 研究開発代表者:竹中 幹人 (京都大学化学研究所、教授)
- ② 研究項目
 1. エポキシ系接着剤の攪拌時間に対する硬化過程の不均一性評価
 2. 攪拌時間が異なるエポキシ系接着剤の力学特性評価
 3. エポキシ系接着剤の高空間分解能不均一性計測の検証

(10)「I 伊藤」グループ(東京大学)

- ① 研究開発代表者:伊藤 耕三 (東京大学大学院新領域創成科学研究科、教授)
- ② 研究項目
 1. タフな接着剤の開発
 2. 分子的接着機構の解明

(11)「J 横澤」グループ(神奈川大学)

- ① 研究開発代表者:横澤 勉 (神奈川大学化学生命学部、教授)
- ② 研究項目
 1. 新規硬化技術による高耐熱性樹脂の開発
 2. 耐熱性ポリアミド接着剤の開発
 3. 側鎖にエポキシ基を持つポリエステル合成

(12)「K 大塚」グループ(東京工業大学)

- ① 研究開発代表者:大塚 英幸 (東京工業大学物質理工学院、教授)
- ② 研究項目
 1. 架橋高分子接着技術の展開
 2. 応力緩和技術の展開

(13)「L 佐藤(絵)」グループ(大阪公立大学)

- ① 研究開発代表者:佐藤 絵理子 (大阪公立大学大学院工学研究科、教授)
- ② 研究項目

1. 非分解性架橋ポリマーを用いる界面剥離可能な易解体性接着材料の開発
2. エポキシ系接着材料に適用可能な解体性ユニットの開発

(14)「M 佐藤(浩)」グループ(東京工業大学)

①研究開発代表者:佐藤 浩太郎 (東京工業大学物質理工学院、教授)

②研究項目

1. 新規カテコール類縁体モノマーの合成と重合
2. カテコールモノマーによる特殊構造ポリマーの合成
3. カテコールの接着および金属基盤との相互作用機構解明

共同連携機関

(1)住友化学株式会社

①研究開発代表者:富永 武史 (エッセンシャルケミカルズ研究所、主席研究員)

②研究項目

1. ポリオレフィンの接着技術の開発
2. 接着機構の解明
3. 接着の市場劣化予測
4. 環境負荷の低減

(2)DIC 株式会社

①研究開発代表者:有田 和郎 (アドバンストマテリアル開発センター、シニアサイエンティスト)

②研究項目

1. 易解体性を有する樹脂の設計および解体手法の検討
2. 接着力/解体性能の兼備
3. 長期信頼性の評価および劣化メカニズム解明

(3)東ソー株式会社

①研究開発代表者:齋藤 俊裕 (高分子材料研究所、ゴムグループリーダー)

②研究項目

1. 新規クロロスルホン化ポリマーの開発と PP/金属接着剤への応用
2. 塩素系ポリマーの接着機構の解明

(4)日本ゼオン株式会社

①研究開発代表者:石黒 淳 (総合開発センター モビリティスタジオ、スタジオ長)

②研究項目

1. 樹脂と被着体の界面結合状態分析
2. 鉄球落下試験の因子調査
3. 長期信頼性評価

(5) 三菱ケミカル株式会社

①研究開発代表者:小澤 寛 (分析物性研究所先端解析研究室、主席研究員)

②研究項目

1. ポリロタキサソ/エポキシ樹脂の複合化検討
2. 接着界面解析及び界面制御

(6) コニシ株式会社

①研究開発代表者:尾藤 陽介 (材料科学研究所、主任研究員)

②研究項目

1. 自動車アルミ部材に適応可能なバイオマスベースウレタン系接着剤の開発

(7) 東亜合成株式会社

①研究開発代表者:高木 晃 (R&D 総合センター 製品研究所、主査)

②研究項目

1. ポリプロピレン(PP)への接着発現機構の解明
2. PP に対して高い信頼性を持つ粘着剤の開発

(8) 日東電工株式会社

①研究開発代表者:岡田 研一 (粘着技術研究センター、主幹研究員)

②研究項目

1. 接着界面の構造解析とその設計(樹脂パーツ/プライマー、プライマー/接着剤)
2. 接着界面を有する接着部の疲労破壊寿命評価とその設計

(9) 旭化成株式会社

①研究開発代表者:前川 知文 (研究・開発本部 サステナブルポリマー研究所 XRP 開発プロジェクト、プロジェクト長)

②研究項目

1. セルロースナノファイバー/ゴム界面構造と界面相互作用(物性)の解明
2. セルロースナノファイバー強化ゴム材料の開発
3. ゴム製品への応用

(10) 東レ株式会社

①研究開発代表者:増永 淳史 (化成品研究所、主任研究員)

②研究項目

1. リサイクル炭素繊維強化熱可塑性樹脂(rCFRTP)の物性低下要因解明(CF-樹脂界面の高度理解)
2. 高接着性 rCF の開発 rCFRTP の物性向上検討
3. 高接着性 rCF による高物性・軽量素材の創出およびモビリティパーツへの適用

(11)株式会社ブリヂストン

①研究開発代表者:角田 克彦 (サステナブル・先端材料統括部門、首席研究主幹)

②研究項目

1. エネルギー散逸の自在な制御による革新的力学機能の創出
2. 架橋ゴム/ゴム接着のリレッド技術の深化、および革新的製法改革

(12)株式会社クレハ

①研究開発代表者:岡田 佳余子 (研究開発本部中央研究所電池材料研究グループ、グループリーダー)

②研究項目

1. 界面の分析及び機構解明による接着性向上
2. バルク強化による接着性向上

(13)積水化学工業株式会社

①研究開発代表者:大鷲 圭吾 (高機能プラスチックカンパニー 開発研究所 先端技術センター、グループ長)

②研究項目

1. 高絶縁高放熱樹脂シートの開発

(14)セメダイン株式会社

①研究開発代表者:秋本 雅人 (技術本部、取締役技術本部長)

②研究項目

1. 新規硬化性樹脂技術に基づく低温実装可能な高耐熱樹脂開発
2. N-保護ポリアミドによる高耐熱接着接合の実現

§ 2. 研究開発成果の概要

アカデミア

【田中 PM グループ】

研究項目 1

界面における官能基の配向分布を和周波発生分光顕微鏡に基づき評価し、接着特性との相関を明らかにした。エポキシ化合物の官能基数や分子構造の違いが硬化過程に及ぼす影響を解明した。エポキシ硬化物の湿熱処理で生成する低分子量成分を分析し、湿熱劣化の初期機構を提案した。異なるメチレン基数を有するジアミンとエポキシの硬化物について、種々の温度で応力と時間の関係性を評価してマスターカーブを作成した。界面におけるエポキシ樹脂の凝集状態と収着水の硬化過程への影響を分子動力学計算で明らかにした。

研究項目 2

種々のジアミンとエポキシの混合比で調製したエポキシ硬化物のバルクおよび単純重ね合わせ継手 (SLJ) 試料を調製し、網目構造と接着特性を評価した。ジアミンの分率の増加に伴い、バルクの引張強度は増加したが、SLJ の接着強度は低下した。接着界面における(被着体/接着剤)相互作用力が SLJ の力学物性に大きな影響を及ぼすことが明らかとなった。種々の測定温度でエポキシ硬化物の疲労試験を行い、各温度の $S-N$ (応力-繰返し数) 曲線を疲労寿命軸にシフトすることで長時間側の疲労寿命を予測できることを明らかにした。

研究項目 3

接着界面相互作用の詳細な分子論的解析を行い、接着の学理構築とその応用展開を目標とした理論研究を実施した。第一原理計算に基づいて、グラフェンおよび酸化グラフェンとエポキシ樹脂との接着相互作用の理論的研究を行った。水酸基密度の異なるアルミナ表面とエポキシ樹脂との接着界面相互作用の解析を行い、水酸基の表面密度に応じて、異なる分子間相互作用の寄与が見られることを示した。企業との連携研究に取り組み、接着技術の信頼性向上のために重要な研究手段となりうる理論研究を展開した。

研究項目 4

連携企業や他グループのデータセットを活用し、機械学習モデルを構築して、要求を満たす条件を明らかにした。疲労試験データに基づき、初期サイクルのデータから疲労寿命を予測する機械学習モデルを開発し、バルク試料と SLJ 試料で有効性を検証した。また、樹脂と CFRP の界面接着力予測においては、高温劣化した樹脂の引張強度残存率を予測する機械学習モデルを構築した。解析事例を踏まえ、産業界ニーズに合わせたソフトウェア開発を通じて、機能性と信頼性の向上を目指す。

研究項目 5

接着現象の理解とスマート接着技術の構築を目指し、高精度な疲労寿命予測を行うための統計数学を構築した。まず、サイクルとひずみの関係性を表す非線形曲線フィッティングを行い、さらにエネルギー損失量などの物理量を追加した回帰モデルを組み合わせる新たな統計モデルを構築した。その結果、接着現象の理解と寿命予測が同時にできるモデルとなった。また、ステージ1で構築した欠損データに対応したスパースモデリングであるアルゴリズムを、入力・出力の両方に欠損がある場合に適用できるように拡張した

研究項目 6

自動車用構造部材の接合技術に関する特許を対象にオープンイノベーション (OI) の実践状況を分析した。分析の結果、接合技術に関しては特許間で引用の重なりが少なく、クラスターに分断されていること、特許出願数上位の企業は OI (インバウンド、アウトバウンドとも) に積極的であることが明らかになった。また、自動車用接着剤の潜在市場規模の推定手法を検討し、影響因子の作用 (例えば、電気自動車の販売比率変化など) により、

推定市場規模がどう変化し得るかシミュレーションを行った。

【A 西野グループ】

接着界面のラマン分光解析では、類似の骨格を持つエポキシ樹脂界面の評価に取り組み、同種エポキシ界面の場合と同じように 2 種類の界面形成機構の存在が示唆された。また、結晶性/非晶性高分子の接着界面における拡散挙動が結晶領域の存在により制約を受けることを明らかにした。湿熱劣化の影響による接着剤の分解により、界面領域の残留応力が大きく低減することを明らかにし、ポリエーテルケトン(PEEK)試料の接着界面の残留応力評価にも成功した。リサイクル炭素繊維の表面処理により、強度が向上することが明らかになった。

【B 中嶋グループ】

ナノ触診原子間力顕微鏡(AFM)を用いてシリカ充填エポキシ樹脂を観察し、バルクよりも弾性率値が数倍小さい界面領域の存在を明らかにした。ナノオロジーAFM によって、その領域のナノ粘弾性の温度分散を計測し、界面で増幅された粘弾性エネルギー散逸がこのナノコンポジットの強靱化メカニズムに関係していることが示唆された。ナノ触診 AFM と導電性 AFM を組み合わせた手法を開発し、導電性フィラー充填エラストマーの圧縮変形に対する導電性ネットワーク構造の変化を追跡し、微視的・巨視的電気特性の相関を明らかにした。

【C 堀内グループ】

アルミ接着界面の破壊及び劣化メカニズムについて評価・解析を行なった。高湿劣化を迅速に評価する手法としてくさび試験が有効であり、アルミへのレーザー処理により腐食が劇的に改善されることを見出した。レーザー処理により共連続ナノ多孔構造がアルミ表面の酸化膜に形成し、耐腐食性を向上させることが STEM-トモグラフィにより明らかになった。STEM 観察下で界面の破壊を直接観察することにより、高靱性な接着界面の破壊をリアルタイムで観察し、予備亀裂からのクレーズの発生・進展を高分解能で観察することが可能となった。

【D 小林グループ】

フィラー/マトリックス接着界面のマルチスケール解析手法の開発を目的として、TEM 可視化観察と分子動力学(MD)計算による知見に基づき、硬化プロセスに依存するエポキシ樹脂の硬化曲線と力学特性を定量化し、材料の硬化・変形・破壊を解析する技術を実現した。特に、実用製品の強度に直結するエポキシ樹脂の強靱化、すなわち破壊(き裂)の進展に必要な散逸エネルギーの向上について、ナノ粒子によるクラックアレスト、界面はく離などから成る強靱化の発現機構の全体像を、シミュレーションによって定量評価することを可能にした。

【E 初井グループ】

界面の化学状態観察法と相補的な手法として放射光 X 線 CT 法の可能性を追求した。最初に行ったのは放射光 X 線ナノ CT 法を用いての炭素繊維強化プラスチック(CFRP)の観測で、炭素繊維の凝集領域の存在を明らかにすることが出来た。このような機械特性を劣化させる因子に対し、製造方法との定量的な関係を理解する目的で標準的な機械物性試験片全体について可視化可能な高精細放射光 X 線 CT 法を開発することに成功し、特徴量(走行方向分布、繊維間距離等)を得ることに成功した。

【F 青木グループ】

バルク内部に埋もれた接着界面の構造解析を高精度化する技術開発を行った。埋もれた界面の中性子反射率計測において大きな問題となるバルク由来の散乱ノイズ成分を、偏極中性子を利用することで除去することに成功し、高精度な評価を実現した。また、反射率データの解析において深層学習とベイズ統計を導入した自動構造解析の開発も進めている。また、中性子反射トモグラフィーによる破壊界面の解析を行い、さらにミュオンスピンドル緩和分光ではエポキシ硬化物のベータ緩和ダイナミクスを評価可能であることを示した。

【G 山田グループ】

接着界面における階層的かつ空間不均一な構造を、TEM および SEM 等を駆使してナノ～マイクロメートルスケールで評価するための観察技術の構築と応用展開を進めた。具体的には、シリカフィラーを含有するエポキシコンポジット樹脂について、TEM 内での引張過程における亀裂進展とそれに伴うひずみ分布の変化のナノスケール解析、SEM 内での引張過程における応力-ひずみ曲線と一定応力下におけるシリカ/エポキシ接着界面の様子を観測する装置系を構築し、実試料への応用展開を進めた

【H 竹中グループ】

中角 X 線散乱法とコンピュータトモグラフィー法 (MAXS-CT 法) と画像処理によってエポキシ系接着剤のナノ粒子及び架橋構造量の不均一性評価を実施した。エポキシ樹脂とアミン化合物の混合時における攪拌時間が異なる条件での硬化過程を調べた結果、攪拌時間が短時間の場合には、シリカ粒子の不均一性が増加することを実証した。また、引張試験を実施したところ、短時間では試料の破断ひずみが低下することがわかった。これらの結果から、接着剤の力学特性とフィラーの不均一性の間には相関関係があることが示唆された

【I 伊藤グループ】

環動高分子や超分子などを用いたタフでしなやかな接着剤の開発とその分子的接着機構の解明を目指している。本年度はエポキシ樹脂の架橋ネットワーク構造と破壊様相の関係性について、詳細な解析を実施し、含有させたポリロタキサンのダイナミクスが効果的に反映可能なネットワーク構造の指針を見出した。そして革新的な接着技術構築のためのポリロタキサゲル、疑ポリロタキサンナノシート、ポリロタキサン含有ビトリマーなどの基盤技術をもとに企業連携を通じて社会実装に向けた疲労耐久性試験の実施を進めた。

【J 横澤グループ】

重縮合で得られるエンジニアリングプラスチックと同一骨格を持つポリマーを三次元架橋化する技術を開発し、従来のエポキシ樹脂やシアネート樹脂より耐熱性が高く、高温下においても貯蔵弾性率が高い樹脂を得た。また、シリカを加えた組成物は、耐熱性をさらに高めることができた。有機溶媒への溶解性が高い N-アルキル芳香族ポリアミドは、ブラスト処理した軟鋼板に対して N-H 芳香族ポリアミドより高い接着強度を示すことを見出した。ポリアミドの構造と分子量、接着時の実装時間と加圧の影響について明らかにした。

【K 大塚グループ】

自己修復性分子骨格として、ビス(2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-イル)ジスルフィド(BiTEMPS)を異なる割合で架橋点に有する 3 種の架橋高分子を合成し、希釈条件下で結合の組み換え反応を行うことで、全ての

系で定量的に分子内架橋高分子を調製することに成功した。得られた一連の分子内架橋高分子を単独あるいは混合して加熱すると異なる架橋密度の架橋高分子が再生されることが、粘弾性および力学物性の変化から明らかとなり、架橋高分子のトポジカル接着への応用可能性が明確に示された。

【L 佐藤(絵)グループ】

界面剥離により解体可能な非分解型の硬化型易解体性接着材料について、初期強度の向上(1.4倍)と、高い解体性維持(初期接着強度の14%まで低下)の両立に成功した。高い解体性達成の要因が、基板選択的な界面剥離に起因すると考察し、さらなる高性能化の設計指針を得た。エポキシ樹脂の硬化剤として利用できる解体性ユニットの分子設計を行い、エポキシ基との反応性を向上させることに成功し、これまでより低い硬化温度で反応を進行させられることを明らかにした。さらに、易解体性接着剤としての性能も向上することを見出した。

【M 佐藤(浩)グループ】

コーヒー豆から抽出できる「カフェ酸」を原料とし、カテコール基をもつスチレンモノマーへの変換を行い、精密重合反応による分子設計を試みてきた。今年度は、これまでに石油由来モノマーの重合で培ってきた精密重合法の知見を駆使し、様々なバイオベースカテコール類縁体モノマーの重合や特殊構造ポリマーの設計を行い、接着性能評価を行った。また、他グループおよび参画企業と連携して、当該モノマーから得られるカテコールポリマーの革新的なスマート接着技術および金属基盤との相互作用機構解明に向けた検討を実施した。

共同連携機関

【住友化学株式会社】

ポリプロピレン(PP)複合材とアルミを加熱圧着により強固に接着させる接着性ポリオレフィン材料を開発した。PP複合材とアルミを本開発材で接着した試験片を用いて引張りせん断接着強さ試験を実施したところ、12MPa以上の接着強さを示し、PP複合材が破断した。また、走査透過電子顕微鏡・エネルギー分散型X線分光法(STEM-EDX)測定を用いて接着性ポリオレフィンとアルミニウムの接着界面近傍を観察したところ、接着性ポリオレフィンに添加された特殊な接着成分が接着界面に偏析していることが観察された。

【DIC株式会社】

「接着力」と「解体性」を両立させるために、「エポキシ系反応誘発型相分離技術」、「解架橋可能な樹脂設計」、「熱膨張材料」を駆使して研究開発を進めている。アカデミア連携で開発中の解架橋可能なユニットを含む特殊樹脂について、接着剤成分との相溶性を高めた樹脂設計により、初期接着力や解体性の改善に成功した。また接着剤配合の検討により、長時間の耐熱暴露後でも解体性が維持できるという見込みを得た。耐熱試験の詳細な評価(1000時間～)とともに、機能発現メカニズムの解明に向けた分析を開始した。

【東ソー株式会社】

クロロスルホン(CS)基の金属接着性を応用し、主鎖骨格にPP接着性を持たせることで、PPと金属の両方に接着性を有するポリマーの開発に取り組み、PP・金属接着性の両立を達成した。開発したポリマーは様々な樹脂、金属への接着性を有し、湿熱条件にさらしても接着性の低下はわずかであった。さらに、アルミへの接着機構解明を目的に走査型透過電子顕微鏡・電子エネルギー損失分光(STEM-EELS)測定を実施し、接着時に

CS 基が表面エッチングすることで接着性を発現することを明らかにした。

【日本ゼオン株式会社】

研究項目 1 の結合状態分析について、分析結果をまとめ論文作成を開始した。研究項目 2 の鉄球落下試験因子調査について、応力シミュレーションとガラスの強度データから破壊確率を予測する手法を開発し、単体ガラスの静的試験についてシミュレーションで破壊確率を求めることに成功した。この手法を合わせガラスに適用する前段階として、ガラスの厚みや温度などを変化させたときの応力シミュレーションを実施し、応力分布に影響を及ぼす因子を明らかにした。研究項目 3 の信頼性評価について開発材料での歪試験ができることを確認した。

【三菱ケミカル株式会社】

ポリロタキサンをエポキシ樹脂に複合化させる方法として、ビトリマー化が効果的であることを明らかにした。ポリロタキサン複合化エポキシビトリマーの特徴として、高い接着強度、高温での易解体性、再接着性、熱応力の緩和、特定条件下における溶剤洗浄性を有することを確認した。接着剤としては高接着力を保持しつつ接着特性の制御や異種材料接着における反りの低減などの機能を付与することができ、マルチマテリアル化の促進や被着体のリサイクル性向上などが期待できる。

【コニシ株式会社】

バイオベースのカテコールポリマーを 2 液型ウレタン樹脂系接着剤へ配合し、プライマーレスでアルミへ良好な接着性を有する接着剤の開発に取り組んだ。カテコールポリマーの構造・分子量の検討、接着剤処方最適化を行い、アルミ(A5052P)での引張せん断接着強さ試験において、POC 目標である常態:25-30 MPa、耐久後:15-18 MPa を達成した。今後、常温硬化への適応、プラスチック材など適応可能な被着材の拡大に取り組み、さらなる性能向上に取り組む。

【東亜合成株式会社】

自動車の軽量化に伴い樹脂部品の採用が進んでおり、特に軽量のポリプロピレン(PP)に対する接着技術が求められている。このような背景の中、粘着付与剤であるタッキファイヤ(TF)を粘着剤表面に濃縮させる技術をベースとし、高温下でも PP に高い接着性を示す粘着剤の開発に取り組んできた。本年度は、この粘着剤の製造をフラスコからパイロットプラントにスケールアップし、小型塗工機を用いて量産に向けたフィルム製造条件検討を実施した。その結果、フラスコ品と同等の粘着性能を発揮することを確認した。

【日東電工株式会社】

難接着な樹脂表面のプライマー処理を、金型内で成形と同時にすることが可能な「表面改質シート」の開発に取り組んでいる。樹脂とプライマー界面が拡散混合して接着した界面(接着界面フリー)を形成させることで接着界面を強靱化することをコンセプトにしている。アカデミアと連携した研究成果を活用して実施した接着界面分析と疲労破壊試験により、接着界面付近で組成比が徐々に変化している部分で力学物性を把握できた。さらに接着界面付近の力学物性の異なる試験片では疲労破壊試験の結果に違いが生じることが分かった。

【旭化成株式会社】

天然ゴム中にセルロースナノファイバー(CNF)5部を微分散させ、且つ CNF/ゴムカップリング技術を確立することで、ベンチマーク材(カーボンブラック 50部)に対して、低比重で同等レベルの引張特性、耐摩耗性、且つ倍以上の省燃費性能を発現する性能レベルに到達した。アカデミアとの連携において、カップリング剤を配合した天然ゴム/CNF5部試料は、材料延伸時における CNF 周辺のゴムの応力鎖が増加することを原子間力顕微鏡(AFM)で可視化することに成功した。今後、材料を強靱化するための原理を明確にすることが期待できる。

【東レ株式会社】

アカデミアと連携した界面の高度解析により、リサイクル CF はバージン CF と比べて低接着性を示唆する結果が得られ、破壊時に界面を経由して亀裂が進展する様子も観測された。またリサイクル CF 特有の熱硬化樹脂残渣が CF RTP とした際に凝集物となり品質安定性の低下に寄与することも確認した。そこで CF 表面官能基に作用する高接着化技術および樹脂残渣微細化技術により、バージンの CF RTP 同等の物性および品質安定性を発現させることに成功した。

【株式会社ブリヂストン】

研究項目1では、耐久性と低燃費性を両立する革新的な高分子複合体の創成を目的として、非線形エネルギー散逸に着目したマイクロ/マクロ構造の詳細設計を推進し、本年度目標である特異なき裂進展挙動の発現に成功した。研究項目2では、ポリマーへの極性官能基導入と、続く金属塩の添加により、配位架橋からなる新しい架橋ゴム/ゴム接着機構の具現化を推進した。得られた配位架橋ゴムは、ステージ2の目標である接着強度を達成するとともに、分子設計と配合設計により、接着強度を制御する設計指針の明確化にも成功した。

【株式会社クレハ】

電極断面試料の走査型電子顕微鏡(SEM)観察と薄膜試料の表面界面物性解析装置(SAICAS)試験により電極剥離における破壊部を特定し、モデル材料を用いた評価で前期破壊部の力学強度を明らかにした。また、収束イオンビーム(FIB)-SEMによる電極の三次元構造評価と有限要素法シミュレーションを組み合わせることにより、電極構造と剥離強度の関係を定性的に理解し、電極剥離強度が破壊部の強度と電極構造に支配されていることを明らかにした。モデル材料を用いたコンセプト検証実験で現行品比 1.4 倍の電極剥離強度が得られた。

【積水化学工業株式会社】

電動車である電気自動車やハイブリッド車の普及に伴い、パワーエレクトロニクスの中心であるパワーモジュールの高性能化や小型化が加速しており、放熱機能が非常に重要になっている。その中でもキーマテリアルである絶縁放熱シートのさらなる高熱伝導率化が望まれている。昨年度は、絶縁放熱シートのマトリックス樹脂の高熱伝導率化検討をアカデミアグループと連携し、熱伝導率シミュレーション技術を構築した。今年度はその手法をさらにブラッシュアップし、最適骨格の探索を行った結果、熱抵抗が 30%改善する構造を見出した。

【セメダイン株式会社】

耐熱性に優れる全芳香族一次構造に拘った 2 通りのアプローチで接着剤を設計し、それぞれ低温実装性と高耐熱性の両立を目指した。接着剤のベースポリマーとしての適性を検討し、いずれも 180 °C 以下の実装温度にて 200°C 環境下においても強度低下がなく、優れた熱間接着性を持つことを示した。今後、アカデミアとの連携によりベースポリマーの改良や安価生産の手法検討、接着機構の解明を継続しつつ、当社では実装用途に即した性能/性状の組成を選定し、耐熱接着のニーズに応えた製品開発を行う。

【代表的な原著論文情報】

1. Kawaguchi, D.; Nakayama, R.; Koga, H.; Totani, M.; Tanaka, K. Improvement of Polymer Adhesion by Designating the Interface Layer. *Polymer* **2023**, 265, 125581.
2. Chu, C. W.; Cheng, C. H.; Obayashi, K.; Bayomi, R. A.; Takahara, A.; Kojio, K. Effect of Curing Conditions on Adhesive and Fatigue Properties of Bulk and Single-lap-joint Hydrogenated Epoxy Resins. *Int. J. Adhesion Adhes.* **2024**, 132, 103690.
3. Hashimoto, K.; Shiwaku, T.; Aoki, H.; Yokoyama, H.; Mayumi, K.; Ito, K. Strain-induced Crystallization and Phase Separation Used for Fabricating a Tough and Stiff Slide-ring Solid Polymer Electrolyte. *Sci. Adv.* **2023**, 9, eadi8505.