

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 21 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360049

研究課題名（和文） タック性制御によるリサイクル対応解体性接着剤の界面剥離特性改善

研究課題名（英文） Improvement of Interfacial Fracture Characteristics of Dismantlable Adhesive for Adherend Recycling by Controlling Tackiness

研究代表者

佐藤 千明 (Chiaki Sato)

東京工業大学・精密工学研究所・准教授

研究者番号：80235366

研究成果の概要（和文）：

本研究では、接着により接合した被接合材料のリサイクルを実現すべく、必要な時に剥がせる解体性接着剤の開発を実施した。具体的には、接着剤に発泡剤として熱膨張性マイクロカプセルを混入し、加熱時に生じる膨張力を利用して接着接合部の解体を図った。まず、本接着剤のマトリックス樹脂としてエポキシ樹脂を採用し、その弾性率、強度および粘弾性特性を測定した。また、熱膨張性マイクロカプセルの膨張特性を測定した。さらに、有限要素法を用いた応力解析を実施し、界面に生じる剥離応力成分を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

In this study, a type of adhesive that can be separated on demand has been developed for material recycling of adherends bonded by adhesion. The adhesive includes thermally expandable microcapsules (TEMs) as blowing agent, which induces internal force and leads to the fracture of the interfaces in high temperature. For the purpose, the matrix resin of the adhesive, which is epoxy resin, was examined in terms of modulus, strength, and viscoelastic properties. The expansion characteristics of TEMs were also measured experimentally. In addition, stress distribution in the joint bonded by the adhesive was calculated by finite element analysis.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,900,000	2,670,000	11,570,000
2010年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2011年度	2,100,000	630,000	2,730,000
年度			
年度			
総計	15,000,000	4,500,000	19,500,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学，機械材料・材料力学

キーワード：接着，接着剤，リサイクル，発泡剤，熱膨張マイクロカプセル，膨張黒鉛，エポキシ樹脂，解体性設計

## 1. 研究開始当初の背景

工業製品のマテリアルリサイクルは、資源の有効利用および希少元素回収の観点で極めて重要である。このため、製品の易解体設計が求められている。しかし近年では接着接合が用いられる場合も多く、リサイクルプロセスで問題を引き起こしている。特に異種材料の接着接合物は処理が難しく、必要なときに簡単に剥離・解体できる接着剤（解体性接着剤）が要望されている。

## 2. 研究の目的

本研究では、加熱発泡剤を接着剤に混入し、その膨張力で接合部を分離する新しいタイプの接着剤の開発を行う。具体的には、膨張剤として膨張黒鉛および熱膨張性マイクロカプセル（TEM）を取り上げ、その膨張特性を明らかにする。また、樹脂中での挙動を明らかにするため、樹脂の弾性率や強度、およびその温度依存性を明らかにする。さらに、本膨張剤と樹脂の複合物中に発生する応力を、有限要素法により明らかとする。これらの結果を基に、剥離性に優れた解体性接着剤を実現する。

## 3. 研究の方法

### (1) 発泡剤の熱膨張特性

発泡剤として膨張黒鉛および熱膨張性マイクロカプセルを用い、その膨張特性を実験的に調べた。具体的には、膨張黒鉛はガラスシリンジを用いてその膨張特性を調べた。また、熱膨張性マイクロカプセルについては、図1、2に示す压力容器を試作し、この中で加熱しつつ、その膨張の様子を光学顕微鏡により観察した。本压力容器には窒素を封入し、その圧力を0~3MPaまで可変し、高温・高圧下での膨張特性を観察した。

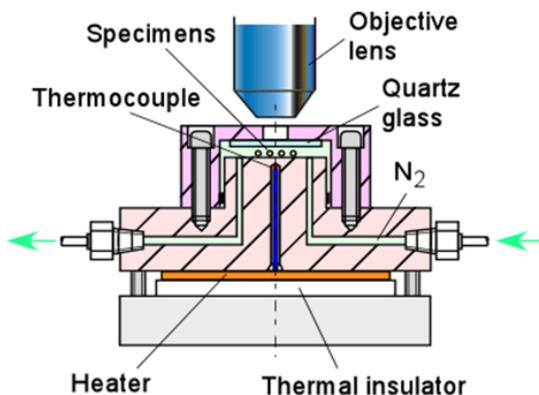


図1 TEM膨張観察用チャンバー

### (2) 樹脂物性の温度依存性

本接着剤のマトリクス樹脂をエポキシ樹脂とし、その弾性率、強度および粘弾性特性に及ぼす温度の影響を実験的に調べた。エポキシ樹脂硬化物試験片を作成し、その引張試験を、温度を変化させつつ実施した。また、本樹脂の熱膨張率や粘弾性挙動（クリープコンプライアンス）もTMAを用いて測定した。

### (3) 発泡剤により生じる剥離応力の解析

発泡剤を接着剤に混入した場合に接着界面に生じる剥離応力を、有限要素法を用いて求めた。図3に解析モデルを示す。本解析では、計算の容易さから発泡剤として熱膨張性マイクロカプセルを選択し、形状の軸対称性を仮定し、前述の実験より求めた物性値を用い弾性解析を行った。さらに、樹脂中心部に熱膨張性マイクロカプセルが存在する場合の膨張率も本有限要素法により求めた。

### (4) 樹脂中での発泡剤膨張率の測定

前述の有限要素解析結果を検証するため、樹脂中に熱膨張性マイクロカプセルを封入し、その膨張特性を測定した。さらに、接着界面に熱膨張性マイクロカプセルを配置した試験片を作成し、その剥離の様子を観察した。



図2 TEM膨張観測装置

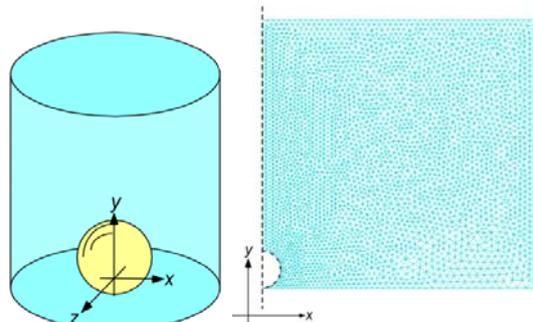


図3 界面近傍の応力解析モデル

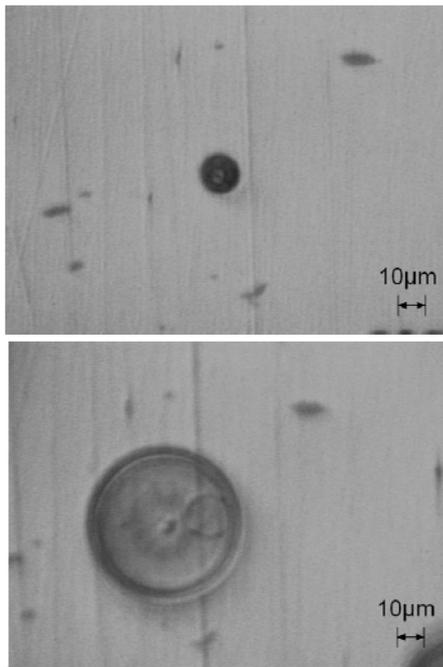


図4 圧力下のTEM膨張(上:室温,下:120°C)

#### 4. 研究成果

##### (1) 発泡剤の熱膨張特性

図4に、圧力1MPaの窒素ガス中に熱膨張性マイクロカプセルを封入し、その温度を上昇させた場合の様子を示す。本マイクロカプセルは温度の上昇と共に膨張し、120°C程度で最大となり、その後徐々に収縮した。また、周囲圧力の増大に伴い、膨張量が低下した。以上の結果より、本マイクロカプセルの圧力・体積・温度関係(PVT関係)を求めることに成功した。

##### (2) 樹脂物性の温度依存性

マトリックス樹脂(エポキシ樹脂)の引張試験、およびTMAを用いた試験により、各温度での応力・ひずみ曲線、熱膨張率、およびクリープコンプライアンスが得られた。強度および弾性率は高温で顕著に低下し、樹脂の軟化が確認できた。ただし、粘弾性特性は熱軟化温度近傍で顕著であり、それ以上の温度領域では低減することが分かった。したがって、本接着剤の高温剥離特性に及ぼす粘弾性の影響は低いと考えられる。これは当初の予想とは大きく異なった。

##### (3) 発泡剤により生じる剥離応力の解析

図5に、本マイクロカプセルを界面近くに配置した場合の、接着剤層内のせん断応力分布を示す。接着界面近傍では、垂直応力が支配的であるものの、圧縮の領域が多く、界面剥離には寄与しないと考えられる。一方、値は小さいものの、せん断応力成分も存在している。ただし、最大値は1MPa程度と、接着

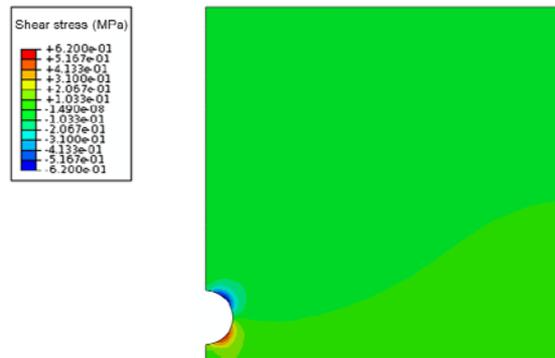


図5 樹脂内のせん断応力分布

界面を剥離させるには十分な値では無いことが分かった。接着剤中心部に配置したマイクロカプセルの膨張量も有限要素法により求めたが、この値は温度と共に増加した。

##### (4) 樹脂中での発泡剤膨張率の測定

上記の有限要素解析結果を確認するために、樹脂中でマイクロカプセルを膨張させ、その寸法変化を測定した。マイクロカプセルは80°C付近で膨張をはじめ、90°C付近で膨張が止まり、その後は寸法変化を見せなかった。これは有限要素解析結果と大きく異なった。この原因は今のところ不明であるが、樹脂の大変形領域における硬化が原因と考えられる。

ガラス被着体上にマイクロカプセルを多数配置し、その上からエポキシ樹脂を塗布し、硬化させた試験片(図6)を作成し、その熱剥離試験を実施した。前述の有限要素解析では、単体のマイクロカプセルが生じる応力値が小さく、界面の剥離は生じないものと予想された。しかし、この試験片を加熱したところ、図7に示すように、接着剤層が膨張し、接着界面で剥離が生じた。この理由を調べるために、接着界面近傍を顕微鏡で観察したところ、図8に示すようにマイクロカプセルが重なり合って膨張している様子が見られた。これは従来知られていない現象であり、界面剥離の主要な原因と考えられる。すなわち、マイクロカプセルには大きさのバラつきがあり、小さなマイクロカプセルが大きなマイクロカプセルと界面とに挟まった形で存在するため、膨張に伴い大きなマイクロカプセルを押し上げる現象を生じる。これに伴い、大きなマイクロカプセルと接着界面の間に大きな引張応力が生じ、これが界面剥離の原因となると考えられる。本仮説より、界面剥離に有利な接着剤の改良法が見出される。すなわち、同径のマイクロカプセルを用いるよりは、大きさの異なる2種類のマイクロカプセルを用いる方が、剥離の発生には有利であると考えられる。

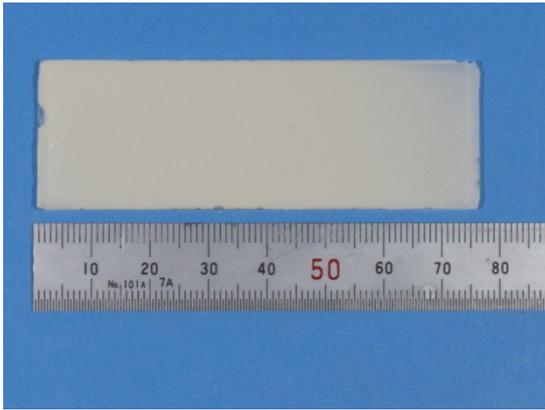


図6 剥離試験片

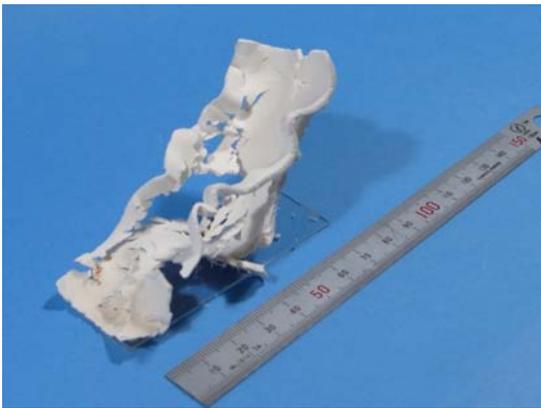


図7 剥離試験片の熱剥離の様子

以下に本研究で得られた主な結果を示す。

- ・熱膨張性マイクロカプセルのPVT特性を測定し、同定できた。
- ・エポキシ樹脂の、高温域での物性を測定した。この結果、熱軟化温度以上の温度では、樹脂が十分軟化し、かつ粘弾性特性は低減することが分かった。
- ・有限要素解析により、界面近傍に発生する剥離応力はせん断が支配的であり、かつその値は剥離を引き起こすには小さいことが分かった。
- ・界面剥離の主要なメカニズムが、マイクロカプセル同士の膨張の干渉にあることを発見した。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計6件)

- ① Yoshiaki Uratani, Tatsuya Obuchi and Chiaki Sato, Finite Element Analysis of Stress Distribution in Cured Dismantlable Adhesive

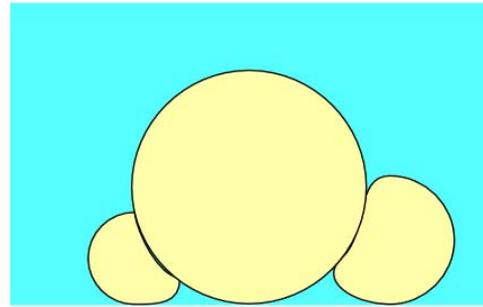


図8 マイクロカプセル同士の膨張の干渉

Including Thermally Expandable Microcapsules, AB2011 International Conference on Structural Adhesive Joining, 7/July/2011, Porto/ Portugal.

② 浦谷佳明, 佐藤千明, 熱膨張性マイクロカプセル混入接着剤に生じる残留応力の有限要素解析, 日本機械学会2010年度年次大会, 2010年9月7日, 名古屋工業大学.

③ Chiaki Sato, Yoshiaki Uratani, DEBONDING PROCESS OF DISMANTLABLE ADHESIVE INCLUDING THERMALLY EXPANDABLE MICROCAPSULES, WC ARP IV, 29/September/2010, Arcachon/France.

④ Yoshiaki Uratani, Chiaki Sato, Stress Distribution in Dismantlable Adhesives Including Thermally Expandable Microcapsules, ACE-X 2010, 9/July/2010, Paris/France.

⑤ Chiaki Sato, Creep Strength Prediction of CFRP Lap Joints Bonded Adhesively, ACE-X 2009, 22/June/2009, Rome/Italy

⑥ Chiaki Sato, Recent Progress of Dismantlable Adhesives, The 3<sup>rd</sup> Asian Conference on Adhesion, 8/June/2009, Hamamatsu/Japan.

[図書] (計2件)

① 佐藤千明 他 (分担), 工業材料 Vol.58, No.2, 日刊工業新聞社, 2010, 33-36.

② 佐藤千明 他 (分担), 接着技術教本 日本接着学会 編, 日刊工業新聞社, 2009, 227-283.

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

佐藤 千明 (Chiaki Sato)

東京工業大学・精密工学研究所・准教授  
研究者番号：80235366