

世界初、接着剤が引き剥がされるプロセスを電子顕微鏡でリアルタイム観察 — 接着破壊メカニズムの解明で、接着接合部の耐久性向上に貢献 —

2021年11月4日

国立研究開発法人 産業技術総合研究所

国立研究開発法人 科学技術振興機構(JST)

■ ポイント ■

- ・ 金属から接着剤が引き剥がされる過程を、透過型電子顕微鏡でリアルタイム観察
- ・ 剥離の起点となる微小な変形やき裂の観察により、接着破壊メカニズムの解明が可能に
- ・ 科学的見地から強度や耐久性を解明することで、異種材料接着接合技術の信頼性向上

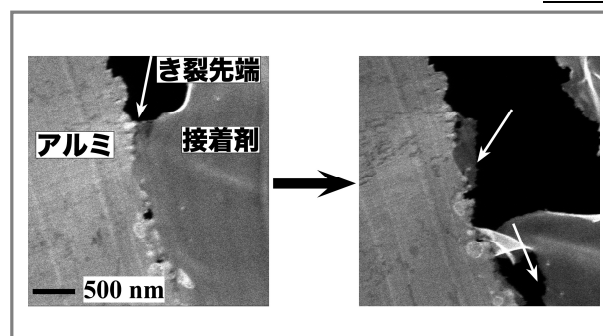
■ 概要 ■

国立研究開発法人 産業技術総合研究所【理事長 石村 和彦】(以下「産総研」という)ナノ材料研究部門【研究部門長 原 重樹】接着界面研究グループ 堀内 伸 上級主任研究員と、国立研究開発法人 科学技術振興機構(JST)は、電子顕微鏡下で接着剤の剥離過程をリアルタイムで直接観察することに成功した。

現在、自動車をはじめとする構造体の製造ではマルチマテリアル構造設計による軽量化と、それを実現するための異種材料同士の接着接合技術が検討されている。今後の普及に向けて、接着接合部の強度や耐久性の信頼性確保が重要である。今回、接着接合部の破壊メカニズム究明に向けて、高分解能透過型電子顕微鏡により、接着接合部の破壊現象に伴う極微小な変形現象をリアルタイムで観察することに世界で初めて成功した。

アルミニウム合金とエポキシ系接着剤の接着接合部の破壊過程においては、これまでの知見では、き裂が接着面上を進展することで接着剤が剥離すると考えられていた。しかしながら今回の破壊過程を直接観察することで、破壊に至るまでに接着剤の極微小な変形が複雑に進行する現象が明らかになった。今後、本観察技術で解明される破壊メカニズムを基に、接着接合部の耐久性向上に向けた接着剤の高性能化や被着体表面処理の最適化が進むと期待される。なお、この技術の詳細は、2021年11月4日にElsevier(エルゼビア)社が発行する国際専門誌 International Journal of Adhesion and Adhesive で発表される。

_____は【用語の説明】参照



接着剤の極微小な変形に伴うき裂の進展(矢印はき裂先端および進展方向)

■ 開発の社会的背景 ■

世界的な課題である CO₂ 排出量削減に向けて、自動車に代表される輸送機器の燃費向上のため、車体の軽量化が必須の課題となっている。異種材料を適材適所に配置したマルチマテリアル構造設計による軽量化が有効とされているが、その実現には従来の溶接に代わる異種材料同士の接合技術が鍵となる。現在、接着接合が生産性とコストの面で有効であると考えられているが、最大の問題は、その信頼性・耐久性の実証が困難なことである。人命にかかわる輸送機器に接着接合を導入するには、接合部の強度や耐久性に関する科学的裏付けが必要である。

■ 研究の経緯 ■

産総研は、様々な解析手法やシミュレーション技術を取り入れ、接着の原理や耐久性・信頼性に関する研究を進めている。この研究の中で、電子顕微鏡により接着接合部を直接観察し、1 ナノメートル～数十マイクロメートルのスケールでの空間構造の解明を進めている。その一環として、接着接合部の破壊過程観察による接着破壊メカニズム解明を目指し、世界で初めて金属から接着剤が剥がれる過程をナノメートルレベルでリアルタイム観察することに成功した。接着破壊の起点と過程が明確になることで、複雑な接着破壊現象のメカニズムを推定できるため、接着接合部の耐久性向上の指針を提示することができる。

本研究開発は、国立研究開発法人科学技術振興機構の未来社会創造事業「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(2018～2028 年度)」による支援を受けて行ったものである。

■ 研究の内容 ■

接着接合部の破壊現象を理解するためには、剥離後の試料表面の観察や成分分析から、破壊挙動を推測するのが一般的な方法である。しかしながら、正確に破壊現象を理解するためには、破壊過程の進展をリアルタイムで直接的に観察する評価手法が求められていた。また、光学顕微鏡や走査型電子顕微鏡(SEM)でも破壊過程のリアルタイム観察はできるが、1 マイクロメートル以下の微細な変形を観察するのは困難である。今回、より高倍率で観察可能な透過型電子顕微鏡(TEM)を用い、接着接合部が破壊する過程をリアルタイムで観察した。この観察では、電子線が透過するのに十分な薄さの試料を作製する必要がある。アルミニウム合金(以降、アルミ)の接着接合試料から TEM 観察が可能な 100 ナノメートル程度の薄片試料を切り出し、試料両端を引っ張る機構を備えた試料ホルダーに固定し、TEM 観察下で試料両端を引っ張ることで、接着部が破壊される様子をナノメートルレベルでリアルタイム観察することに成功した。

図1は、アルミとエポキシ系接着剤の接着接合部が剥がれる瞬間を捉えた画像である。図1左上図は、左右に引き剥がそうとする力を加え、き裂が広がり始めた様子である。既にこの時、き裂がまだ進む手前の接着剤に小さなひずみが発生している様子が、高倍率撮影により観察できた(図1左下図 a)。このひずみが微小なき裂となり(図1中央上図 b)、さらに、接合面に微小の空洞が発生する(図1, 中央上図 c)。その後、微小なき裂がアルミとの接合部に到達すると、接合面に沿ってき裂が進展し、先立って発生していた微小の空洞と一体化し(図1, 右上図)、破壊に至る。この時、破壊後のアルミ側には接着剤がわずかに残っていることが確認される(図1, 右下図 d)。被着体であるアルミ表面のわずかな凹凸が破壊挙動に関与し、被着体表面の所々に接着剤が残る(図1 右下図 d)要因になっていると思われる。

従来のマイクロメートルレベルの観察では、このような接合部の付近で進行する現象や薄い残存接着剤層の観察は不可能であった。しかし今回の TEM による観察で、接着接合における破壊の起点が接着

剤内部・接合面・金属層のいずれであるかが明確になる。このような破壊形式が明らかになることで、接合部の耐久性向上に有効な接着剤や基材の表面処理法の開発指針を提供することができる。

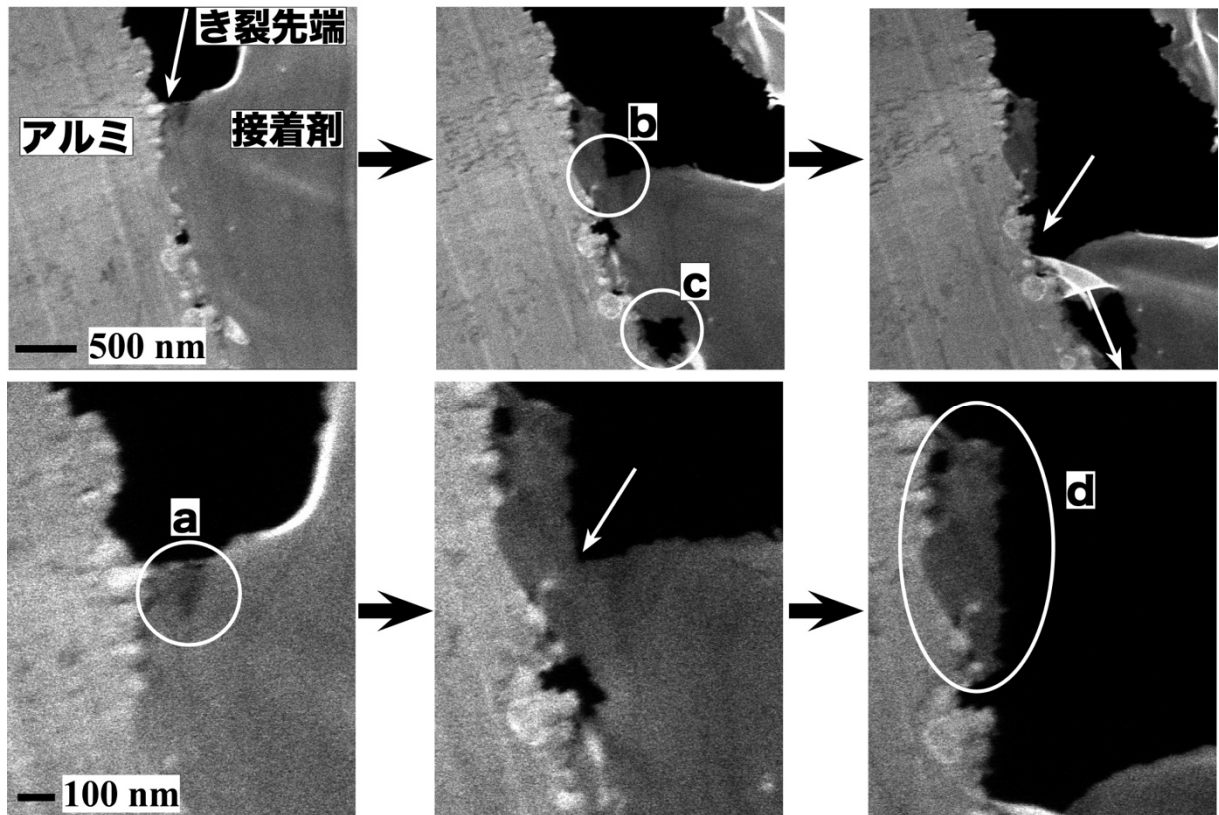


図 1 電子顕微鏡下で観察されたアルミと接着剤の接合部におけるき裂先端からの破壊現象
(下段は上段の高倍率像、矢印はき裂先端と進展方向を示す)

■ 今後の予定 ■

今後は、接着接合部の破壊現象のリアルタイム観察結果をシミュレーションで再現することで、複雑な接着破壊現象のメカニズム解明を進める。さらにそこで得た知見を基に、接着剤の耐久性向上、被着体の表面処理の最適化など接着接合の信頼性の評価・実証につなげる予定である。

■ 本件問い合わせ先 ■

国立研究開発法人 産業技術総合研究所
 ナノ材料研究部門 接着界面研究グループ
 上級主任研究員 堀内 伸 〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央第 5
 TEL:029-861-6281 FAX:029-861-4437
 E-mail:s.horiuchi[at]aist.go.jp

■ JST 事業に関すること ■

国立研究開発法人 科学技術振興機構
 未来創造研究開発推進部
 庄司 真理子 〒102-0076 東京都千代田区五番町 7 K's 五番町

【取材に関する窓口】

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 広報部 報道室
〒305-8560 茨城県つくば市梅園 1-1-1 中央第1
つくば本部・情報技術共同研究棟
TEL:029-862-6216 FAX:029-862-6212 E-mail:hodo-mi[at]aist.go.jp

国立研究開発法人 科学技術振興機構 広報課
〒102-8666 東京都千代田区四番町 5 番地 3
TEL:03-5214-8404 FAX:03-5214-8432 E-mail:jstkoho[at]jst.go.jp

【用語の説明】

◆電子顕微鏡

加速した電子を試料に照射することにより、試料表面や内部構造の高倍率での観察や、元素組成などの分析を行う装置。走査型電子顕微鏡(SEM)と透過型電子顕微鏡(TEM)の2種類に大きく分類される。SEMは、細く絞った電子ビームを試料表面上で走査し、表面の凹凸や元素の重さに応じた像を得ることができる。TEMは、100ナノメートル程度の薄い試料に対して、電子ビームを照射し、透過した電子から試料内部の構造を画像化する。また、試料内部の構造を原子レベルで観察することが可能である。

◆マルチマテリアル構造

自動車などの軽量化に向けて、軽量化と剛性の両立を実現するための構造体。高強度鋼板、アルミニウム合金、マグネシウム合金、炭素繊維強化複合材料(CFRP)や樹脂材など高強度軽量材料を特性に応じて適材適所に配置する。

◆接着接合

接着剤で部品をつなぎ合わせる方法。以前から、ねじ・ボルト・ナット、溶接、ろう付け、はんだ付け、リベット、かしめ、焼きばめ・圧入、接着・粘着など、種々の方法が用いられている。接着剤を利用することで広範囲の材料の接合が可能であること、また面での接合であるため溶接等に比べて応力の集中が起きない利点がある。さらに、部品の小型化・高密度化、軽量化、工程簡素化などの特徴が挙げられる。